

지발중성자방사화분석법(DNAA)를 이용한 극미량 우라늄 분석

고문성 · 안길훈 · 박일진
한국원자력통제기술원(KINAC)
E-mail: mskoh@kinac.re.kr

중심어 (keyword) : DNAA, 방사화분석, 우라늄

서론

환경시료의 채취 및 분석기술은 핵활동의 감시 및 추적에 매우 유용한 수단으로 국가 및 IAEA 사찰에 활용되고 있다. KINAC에서는 환경시료 내 핵물질 정량분석을 자체적으로 수행하기 위한 노력의 일환으로 원자력연구소의 하나로 연구로를 이용하여 지발중성자 방사화 분석장비(DNAA: Delayed Neutron Activation Analysis)를 구축하였다[1]. 본 연구에서는 DNAA의 성능평가를 수행하고 NIST에서 제작된 표준시료물질을 이용해서 시료내 극미량 우라늄을 측정하였다.

DNAA 성능평가

DNAA는 시료를 원자로의 중성자에 조사시켜 핵분열 생성물의 붕괴 과정에서 방출되는 지발중성자를 측정하여 시료 내 우라늄 및 플루토늄 등의 핵분열성 물질의 양을 분석하는 중성자 방사화 분석법이다. 구축된 DNAA 시스템의 성능평가를 위해 인가전압, 래빗(시료)의 위치, 측정시간, 잡음, 백그라운드 등에 대한 실험을 수행하였다.

중성자검출기 인가전압 측정. 중성자 검출시스템을 작동하기 위해서는 먼저 장비에 인가하는 동작전압을 결정해야 한다. 따라서, Cf-252 (54 μ Ci, 2007. 7. 20) 중성자 선원을 사용하여 전압(1000~1700 V)에 따른 중성자 계수를 측정하였다. 18개의 He-3 중성자 검출기의 플래토우(plateau)곡선을 측정하여 동

작전압을 1350 V로 결정하였다.

래빗(시료)의 위치에 따른 계수율 측정. 조사용 래빗의 검출위치가 공급되는 질소압력 변화에 따라 변할 수 있다. 이에 위치에 따른 측정값의 변화를 살펴보기 위해 중성자선원을 바닥부터 5 mm씩 이동시키면서 계수변화를 측정하였다. 실험결과, 래빗의 이동에 따라 약 ~100 #/mm의 변화를 보였다. 이는 래빗이 6 mm 이동했을 때 U^{235} 1 ng의 계수치 오차를 갖게 되므로, 이에 대한 안정화 방안연구가 필요하다.

검출시간에 따른 계수율 오차 측정. 일반적으로 DNAA를 사용하여 하나의 시료를 측정하는데 걸리는 시간은 총 5 분 이내이며, 2 분 이내의 조사시간을 설정한다. 짧은 측정시간에 대한 계수값의 정밀성을 확인하기 위해 4가지 측정시간(15, 30, 45, 60초) 조건하에 측정한 결과, 전 측정시간에 대해 약 0.5%의 낮은 오차율을 보였다. 이를 통해 2분이내의 측정시간에 대한 신뢰도를 확인 할 수 있었다.

검출 잡음 및 백그라운드 측정. 측정계수율에 대한 결과를 정량적으로 분석하기 위해 고려해야할 잡음 및 백그라운드를 측정하였다. 먼저, 래빗을 검출기 내 위치시키지 않고 고유의 잡음을 측정하였다. 측정 결과 평균 40 ± 9 개의 계수치 나타났으며, 래빗을 위치시키고 백그라운드를 측정한 결과 평균 300 ± 24 개의 계수치를 나타내었다. 실제로 백그라운드는 원자로의 출력에 따라 변화가 있어 측정시마다 공래빗을 함께 측정하여 확인해야 한다.

검출기 선형성 측정. 앞선 성능평가 결과를 바탕으로 미국 ORNL에서 제작된 핵물질 표준시료를 이용하여 선형성 실험을 수행하였다.

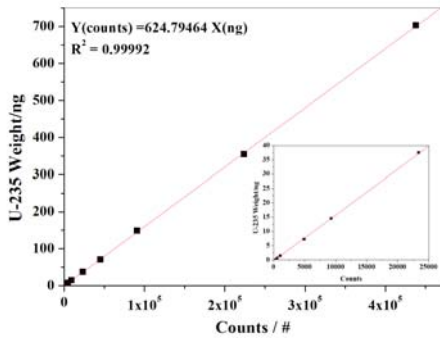


그림 1. 시스템 선형성 결과

U^{235} 함유량이 0.14 ng부터 712 ng까지 총 10개 시료를 이용해서 측정된 결과, 매우 정확한 선형성을 나타내었고 약 U^{235} 1 ng당 624 개의 계수치를 보였다(그림 1). 이 값을 이용해서 실제 시료를 정량분석하였다.

표준시료물질 측정실험

DNAA의 성능평가를 통해 U^{235} 1 ng당 약 624개의 측정계수치가 측정됨을 확인하였다. NIST에서 제작된 표준시료물질(SRM : Standard Reference Materials)를 이용해서 우라늄의 양을 측정하였다. 먼저, 다양한 시료량(9.7~501.4 mg)내 포함하고 있는 우라늄량을 측정하여 분석하였다.

표 1. 시료질량에 따른 U^{235} 측정; SRM 2719 Montana Soil, U^{235} - 177.75 ng/g

Sample(g)	U^{235} in Sample (ng/g)	Measured U^{235} in Sample (ng/g)	Error (%)
0.0097	1.7	2.4	39.8
0.0200	3.6	4.1	14.9
0.0406	7.2	7.5	3.9
0.0606	10.8	11.2	3.8
0.0997	17.7	17.6	-0.5
0.5014	89.1	88.7	-0.5

표 1에서 보는 바와 같이, U^{235} 함량이 7.2 ng이상에서는 3.9 % 이내의 오차로 정확한 측정값을 보였으나, 그 이하에서는 15 % 이상의 오차율을 보여 신뢰

하는 측정값을 나타내지 못했다.

표 2. 다양한 SRM 시료분석

SRM No.	SRM name	U^{235} (ng/g)	Sample (g)	U^{235} in Sample (ng/g)	Measured U^{235} in Sample (ng/g)	Error (%)
1633	Fly ash	72.522	0.1870	13.6	15.0	10.5
2782	Industrial Sludge	56.88	0.1995	11.3	11.8	4.0
2709	Soil	21.33	0.5006	10.7	11.8	10.7
2710	Montana Soil	177.75	0.0606	10.8	11.2	3.8

표 2에서는 다양한 형태(Fly ash, Sludge, Soil)의 시료에 대한 우라늄량을 측정하였다. 동일량의 우라늄을 포함하는 시료량을 결정하여 측정된 결과 4개 시료 모두에 대해 약 10 % 이내의 오차율을 보였다.

결론

이상의 실험결과를 통해, 극미량의 핵물질을 포함하고 있는 환경시료에 대한 분석 신뢰도를 확인하였다. 시료내 U^{235} 약 5 ng까지는 정량적인 분석이 가능하였으며, 그 이하의 양에 대해서도 시료 준비 및 분석법 개량을 통해 측정가능 할 것으로 예상된다. 빠른 분석, 정확한 측정, 극미량 측정, 비파괴 분석 등의 다양한 장점을 갖고 있는 DNAA는 핵물질 검증뿐 아니라 다양한 분야에 적용이 가능할 것으로 기대된다.

참고 문헌

1. Gil Hoon AHN, et al, Development of the DNAA System for Screening Environmental Samples to Measure Fissile Material, J of Nuclear Science and Technology, Supplement 5, p654, (2008).