

Nd 동위원소 비 측정에서 나타나는 Ce 동중원소 영향

전영신, 김정석, 하영경, 한선호, 송규석
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150 번지
 ysieon@kaeri.re.kr

1. 서론

사용 후 핵연료에 대한 연소도 측정에서¹⁴⁰Nd 질량방법이 연소도 측정모니터로서 가장 적합한 것으로 평가되고 있다. 이의 이유로 ¹⁴⁸Nd fission yield는 ²³⁵U와 ²³⁹Pu와 별 차이가 없으며 중성자 capture cross section이 적고(2.6 barns) 휘발성이 없으므로 고체핵연료에서 새어 나가지 않기 때문이다. 또한 조사 전 핵연료의 구성 성분이 아니고 방사성 물질이 아니므로 붕괴에 대한 보정 및 핵연료의 조사이력(irradiation history)을 알 필요가 없다. 그러나 사용 후 핵연료로부터 순수하게 Nd를 분리해 내지 않으면 인접한 Ce 및 Sm으로부터 Nd 동위원소 측정에 동중원소 영향을 받게 된다. 따라서 ¹⁴⁸Nd를 질량분석방법으로 정량에 앞서 조사된 핵연료 중 U, Pu 및 다른 희토류 원소들로부터 화학적인 방법으로 Nd만을 순수 분리하여야 한다. 특히 ¹⁴²Ce, ¹⁴⁸Sm, ¹⁵⁰Sm이 같이 들어있으면 이들이 동중원소 영향을 주기 때문에 이들 분리는 필수다. 본 연구에서 조사후 핵연료의 연소도 측정을 위해 Nd를 column gravimetric method로 순수하게 분리하여 질량분석기를 이용 ¹⁴⁸Nd를 정량하게 되는 과정 중 Nd에 인접해 나오는 Ce 및 Sm의 동중원소가 경우에 따라 아주 미량이지만 완전히 분리되지 않고 섞이는 경우가 있다. 이와 같은 Nd 분리용액에 들어있는 동중원소 영향을 열 이온화 질량분석에서 이온소스 필라멘트에 대하여 온도와 시간을 조절함으로써 각 원소 간 증발 및 이온화 현상이 서로 다른 물리 화학적 특성을 이용하여 Ce의 동중원소를 배제할 수 있는지 자연동위원소비를 갖는 Nd에 Ce을 섞어 실험하였다.

2. 실험

사용한 기기는 Finnigan MAT 262, 열 이온화 질량분석기를 사용하였다. Re 필라멘트에 대한 바탕값, Ce, Nd, Sm mass가 포함되는 영역

(m/z=136~152)에 대하여 질량분석기의 자장을 변화시켜가며 mass scan을 하였다. 레늄 필라멘트를 별도의 진공가열시스템에서 불순물을 제거하기 위해 전류를 5.5 A로 50분 동안 가열하여 Nd 동위원소 비 측정실험에 사용하였다. ICP-AES 표준용액을 사용하여 Nd에 Ce이 3%, 1%, 0.5% 포함하는 시료를 만들어 각각에 대하여 filament current(온도)에 따라 Ce이 미치는 동중원소 영향을 알아보았으며, ¹⁴⁰Ce/¹⁴⁴Nd를 측정하여 Ce에 의한 동중원소 영향을 계산하는 지표로 삼았다.

3. 결과 및 토의

불순물 제거를 위해 진공가열 하지 않은 필라멘트에 대하여 Faraday Cup 검출기를 사용하여 Ce, Nd 질량(m/z) 영역을 스캔 하였으며 이를 Fig. 1에 보였다.

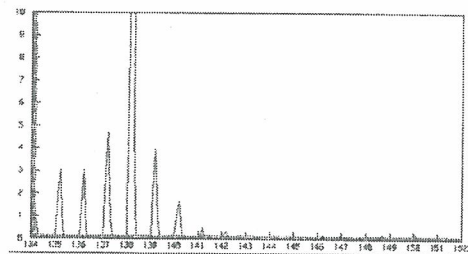


Fig. 1. Blank test for the none baked Re filament.

그림에서 볼 수 있듯이 불순물들로 Ba 및 Ce 질량(m/z)피크 들이 작지 않게 나오는 것을 볼 수 있으며 이들 중 ¹⁴²Ce가 ¹⁴²Nd 동위원소 비 측정에 동중원소 영향을 직접 미치게 된다. 따라서 별도의 진공 가열시스템을 이용하여 5.5 A, 50분 동안 baking한 결과 Fig. 1에 보인 불순물 피크들이 모두 사라졌음을 알 수 있었다. 또한 Nd에 Ce이 3%, 1%, 0.5% 포함되도록 하여 ¹⁴⁰Ce 및 ¹⁴²Nd+¹⁴²Ce/¹⁴⁴Nd 비 변화를 필라멘트 온도와 시

간에 따라 측정된 결과를 Fig. 2에 보였다.

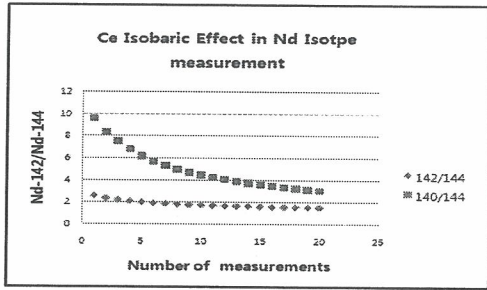


Fig. 2. Isobaric effect by Ce for the ^{142}Nd

0.5% Ce이 포함된 시료에서 filament current(온도)를 evaporation filament 1.8 A, ionization filament 5.5 A로 하여 20분경과 후 측정된 결과 Ce에 의한 영향이 없음을 알 수 있었다. 이는 온도에 따라 Ce이 Nd 보다 먼저 증발과 이온화가 일어남으로 어느 시점에서부터는 Nd만 측정되기 때문이며 이 결과를 Fig. 3에 보였다.

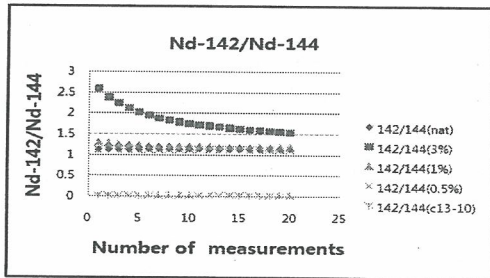


Fig. 3. Isobaric effect by Ce for the ^{142}Nd depend on Ce content and ime controlling

Nd만을 측정할 때 $^{142}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ 값이 1.129였으며, Ce을 0.5% 포함한 Nd 시료에 대한 측정값은 1.123으로 Ce 동중원소 영향을 받지 않은 결과를 얻을 수 있었다. 이는 각 원소가 갖는 물리화학적 특성에 따라 증발 및 이온화되는 정도가 다르기 때문에 나타나는 현상으로 높은 방사성 연소도 측정시료에서 Nd만 순수하게 정밀 분리가 이루어져야 하지만 미량의 Ce이 포함되게 된 경우 필라멘트 온도와 시간을 조절함으로 Ce의 동중원소 영향을 제거할 수 있음을 알 수 있었다.

4. 참고문헌

[1] ASTM E-321-75, standard method of test

for Atom Percent Fission in Uranium and Plutonium Fuel(Neodymium-148 method): ASTM Vol. 12, 02, 70(1983).

- [2] R. M. Abernathy, G. M. Matlack and J. E. Rein: IAEA SM/149/37(1972).
- [3] 엄태운, 서무열, 전영신: KAERI/RR-210/80 (1980).
- [4] F. W. E. Strelow: Anal. Chem. 52, 2420 (1980).
- [5] J. E. Rein and C. F. Metz, " The Determination of Nuclear Fuel Burn up based on Isotope Dilution Mass Spectrometric Measurements" IAEA STI/PUB/337,143(1972).
- [6] I.T. Platzner, K Habfast, A. J. Walder, A. Goetz, Modern Isotope Ratio Mass Spectrometry, Jhon Willy & Sons, P. 320-326(1999).