

Pu 동위원소 비 측정에 미치는 U 동위원소 영향 및 이의 보정

전영신, 김정석, 한선호, 하영경, 송규석
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 ysieon@kaeri.re.kr

1. 서론

^{238}Pu 동위원소 비 측정에서 우라늄 영향을 완전히 배제한 측정은 쉽지 않은데 이는 플루토늄을 분리하는 과정에서 분리가 완전히 안 된 우라늄 및 질량분석에 사용되는 필라멘트와 시약에 불순물로 들어있는 우라늄(^{238}U)이 ^{238}Pu 에 동위원소영향을 미치기 때문이며 항상 부의오차(positive error)를 갖게 된다. 따라서 측정하고자 하는 플루토늄시료에 동위원소조성을 알고 있는 우라늄(^{233}U spike)을 넣어 우라늄과 플루토늄을 UO^+ 와 Pu^+ 상태로 각각 동시에 측정하고 측정결과로부터 우라늄영향을 빼주는 방법으로 ^{238}U 영향을 보정하는 실험을 하였다. 열 이온화 질량분석에 사용되는 시약 및 필라멘트에 대하여 우라늄 검출실험 및 바탕값 영향을 알아보았다. 본 실험에서 우라늄을 완전히 제거할 수 없음을 알 수 있으며 우라늄으로 약 50 pg이 검출되었다. 따라서 ^{238}Pu 측정에 영향을 크게 미칠 수 있음을 알 수 있다. 국제비교시험(REIMEP-16A)에 사용한 플루토늄시료, $^{238}/^{239}\text{Pu}=0.00006696$ 에 적용한 결과 보정하지 않은 $^{238}/^{239}\text{Pu}$ 측정값은 0.0006851로 10배 정도 큰 값이 얻어졌으나 ^{233}U 를 넣어 측정하고 이를 보정한 값은 0.0000966 ± 0.0000122 이었다. 그러나 reference 값과 30% 정도 큰 값이 얻어졌는데 이는 극히 작은 량을 측정하는데서 오는 오차임을 알 수 있다.

2. 본론

Re 필라멘트 불순물로부터 오는 영향을 알아보기 위해 자장을 변화시키는 방법으로 우라늄, 플루토늄질량(m/z)영역을 SEM 검출기를 이용 스캔하였다. 또한 필라멘트에 가해주는 필라멘트 온도에 따른 영향을 실험하였다. 플루토늄 동위원소 비 측정 시 우라늄동위원소 영향을 보정하기 위한 실험에서 우라늄은 IRMM-040a(uranium ^{233}U spike, ^{233}U 이 98.042%, ^{238}U 경우 0.8042%, 그리고 ^{234}U , ^{235}U 동위원소들이 조금씩 들어있음)를 이용하였고, 플루토늄은 IRMM주관 플루토늄 동위원소 비

측정 국제 비교시험에 사용했던 시료(REIMEP-16, A)를 이용하였다.

3. 결론

REIMEP-16A, 플루토늄시료에 IRMM-040a를 섞어 238/239 비(U/Pu)를 측정한 결과 Fig. 1에 보인 것처럼 우라늄이 시간에 따라 점차 줄어드는 것을 볼 수 있는데 이는 플루토늄 보다 우라늄이 쉽게 휘발되어 줄어들기 때문이다. 그러나 Fig. 2에 보인 241/239(Pu/Pu)측정에서는 시간에 따른 비의 변화가 거의 없음을 알 수 있다. 플루토늄시료(REIMEP-16, A)에 ^{233}U spike 용액을 섞어 $^{233}\text{U}^{16}\text{O}^+$ (m/z; 249)와 $^{238}\text{U}^{16}\text{O}^+$ (m/z; 254)를 그리고 $^{240}/^{239}\text{Pu}$ 비를 동시에 측정한 결과를 table 1에 보였다.

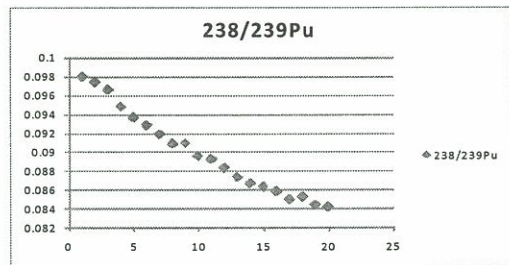


Fig. 1. Trend of peak intensity depend on measuring time($^{238}/^{239}\text{Pu}$)

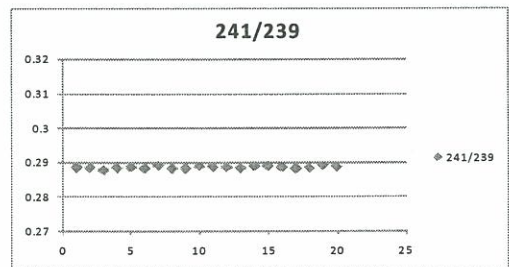


Fig. 2. Trend of peak intensity depend on measuring time($^{241}/^{239}\text{Pu}$)

결과에서 보듯이 우라늄 $^{238/233}\text{U}$ 과 $^{238/239}\text{Pu}$ 비 측정 값을 같은 필라멘트에서 동시에 측정하여도 $^{238/233}\text{U}$ 비 측정에 문제가 되지 않음을 알 수 있다. 그러나 M/Z, 238/239 측정에서 ^{233}U spike 중에 들어있는 ^{238}U 및 바탕값 ^{238}U 영향으로 약 100배정도 큰 값을 보였다.

Table 1. Result of Pu isotopic ratio for mixed REIMEP-16-A, Pu sample and IRMM-040a, U-233 spike.

Isotope ratio	Ref. Value	Meas. Value
$^{238/233}\text{U}(\text{m/z}:254/249)$	0.008202	0.008499
$^{238/239}\text{Pu}$	0.00006696	0.007179

$^{238/239}\text{Pu}$ 로부터 측정된 값 중에는 ^{233}U spike 중에 들어있는 ^{238}U 과 바탕 값으로 들어있는 ^{238}U , 그리고 ^{238}Pu 이 포함된 값이다. 따라서 ^{233}U , ^{239}Pu 및 ^{238}U 을 동시에 측정하여 총 얻어진 ^{238}Pu intensity(mV)로부터 우라늄이 영향을 미친 값을 빼주는 방법으로 보정하였으며 이를 Fig. 3 및 table 2에 보였다.

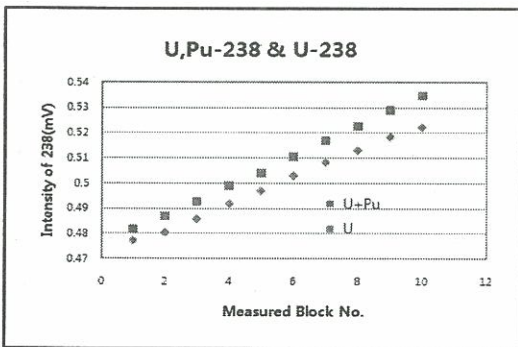


Fig. 3. Difference of intensity in 238(U+Pu and Pu-238)

Table 2. Result of corrected Pu isotopic ratio

Isotope ratio	Ref. Value	Meas. Value	Corr. value
$^{238/239}\text{Pu}$	0.00006696	0.0006851	0.0000966

REIMEP-16 A, 플루토늄 시료에 들어있는 $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 비가 6.6×10^{-5} 범위에 있는 극히 작은 값으로 정밀한 실험을 한다하여도 사용되는 필라멘트, 시약, 초자, 질량분석기의 소스오염 등으로 정확

한 값을 얻기가 쉽지 않다. 보정하지 않은 $^{238/239}\text{Pu}$ 측정값은 0.0006851로 10배 정도 큰 값이 얻어졌으나 ^{233}U 을 넣어 측정하고 이를 보정한 값은 0.0000966 ± 0.0000122 이었다. 그러나 reference 값, 0.00006696과 30% 정도 큰 값이 얻어졌는데 이는 극히 작은 량을 측정하는데서 오는 오차임을 알 수 있다. 그러나 사용 후 핵연료 중 $^{238/239}\text{Pu}$ 동위원소 비는 약 0.03정도 되므로 훨씬 근접한 보정 값을 얻을 수 있을 것으로 보며 이와 관련 추가 보충실험이 필요하다.

4. 참고문헌

- [1] D. Alamelu, P. S. Khodade, P. M. Shah, S. K. Aggarwal, *International Journal of Mass Spectrometry*, 239, 51-56. 2004.
- [2] 전영신, 박용준, 조기수, 한선호, 송규석, *Analytical Science & Technology*, Vol. 21, No. 6, 487-494, 2008.