

방사능 분석기술을 이용한 ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu 및 ^{241}Am 축차분리

이명호★ · 박경균 · 김종윤 · 박영재 · 김원호

한국원자력 연구소

(2005. 8. 18 접수, 2005. 11. 24 승인)

Sequential separation of ^{90}Sr , ^{241}Am , $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{238}Pu by radioanalytical techniques

Myung Ho Lee★, Kyoung Kyun Park, Jong-Yun Kim, Yeong Jae Park and Won Ho Kim

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Dukjin-dong, Yuseong-gu, Daejeon, Korea

(Received August 18, 2005, Accepted November 24, 2005)

요 약 : 본 연구에서는 음이온 교환수지와 Sr-Spec 수지를 사용하여 토양중 ^{90}Sr , ^{241}Am 및 Pu 동위원소들에 대하여 축차적으로 분리하는 정량법을 제시하였다. 플루토늄은 음이온 교환수지를 이용하여 분리하였고, 아메리슘 및 스트론튬은 옥살산 공침법 및 Sr-Spec 수지를 사용하여 순수 분리하였다. Pu 및 Am 동위원소는 알파 스펙트로메트리법으로 정량하였고, Sr-90은 액체섬광계수기를 사용하여 정량하였다. 본 연구에서 고찰된 ^{90}Sr , ^{241}Am 및 Pu 동위원소 분석법을 IAEA 기준시료에 적용하여 분석법의 타당성을 검증하였다.

Abstract : This paper presents a quantitative method of sequential separation of ^{90}Sr , ^{241}Am and Pu radionuclides with an anion exchange resin and a Sr-Spec resin. The Pu isotopes were purified with an anion exchange resin. The americium and strontium fractions were separated from the matrix elements with an oxalate co-precipitation method. Americium fraction was separated from the strontium fraction with iron co-precipitation method and purified from lanthanides with anion exchange resin. Strontium-90 was purified from other hindrance elements with the Sr-Spec resin after oxalate co-precipitation. The measurement of Pu and Am isotopes was carried out by an α -spectrometer. Strontium-90 was measured by a liquid scintillation counter. The radiochemical procedure of ^{90}Sr , ^{241}Am and Pu radionuclides investigated in this study has been validated by application to IAEA-Reference soils.

Key words : sequential separation, ^{90}Sr , ^{241}Am and Pu isotopes, anion exchange resin, Sr-Spec resin

★ Corresponding author

Phone : +82-(0)42-868-4728 Fax : +82-(0)42-868-8148

E-mail: mhlee@kaeri.re.kr

1. 서 론

과거 미국, 러시아 및 중국등의 강대국들이 실시한 대기권 핵실험에 의해 환경으로 방출된 수많은 인공 방사성 핵종들중에 반감기가 비교적 짧은 ^{131}I 및 ^{55}Fe 등의 방사능 농도는 대부분 감쇄되어 환경중에서는 거의 측정이 불가능하다. 그러나, ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu 및 ^{241}Am 과 같은 장반감기 핵종은 아직도 환경중에서 검출되고 있다. 이들 인공방사능 핵종중에서 환경중에 아주 극소량 존재하는 베타 방출체인 ^{90}Sr , 알파방출체인 $^{239,240}\text{Pu}$ 및 ^{238}Pu 등에 대한 방사능분석은 검출하한치를 만족시키는 신뢰성 있는 자료를 산출하는 것은 상당히 어렵다. 또한 베타 방출핵종인 ^{241}Pu 의 딸핵종인 ^{241}Am 은 알파방출체로 토양 및 농작물을 통한 먹이사슬을 거쳐서 인체로 유입되면 ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ 및 ^{238}Pu 등의 핵종처럼 뼈에 쉽게 침적되어 장기간 동안에 방사성 독성을 유발한다. 현재 ^{241}Am 의 농도는 ^{241}Pu 농도의 1/3 수준으로 순수분리 조치가 매우 어려울 뿐만 아니라 시간의 경과에 따라서 그 농도가 증가하여 방사화학식을 사용하여 이론적으로 ^{241}Am 농도를 계산하면 2010년도에 ^{241}Am 의 농도가 최대가 된다.

^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , 및 ^{241}Am 등의 베타 및 알파방출핵종에 대한 기존의 방사능 분석법은 현재 환경중에 존재하는 방사능 농도가 극소량이므로 신뢰성 있는 자료를 생산하기 위해서는 많은 시료(토양시료의 경우 20 g 이상)가 필요하다. 특히 토양시료의 경우 많은 무기이온, 유기물 및 토양 매트릭스 성분들이 방사성 핵종들과 결합되어 있어서 목적하는 방사성 핵종을 방해원소로부터 완벽하게 제거하려면 복잡한 화학적 순수분리 조치가 필요하다. 미국 EML(Environmental Measurement Laboratory)¹, 일본 JCAC(Japan Chemical Analysis Center)², 독일의 FZK³등의 원자력 관련기관에서는 전통적인 습식분석화학 기술인 공침, 이온교환, 용매추출 및 전기전착등의 방법들을 사용하여 독립적으로 알파 및 베타방출 핵종을 정량하고 있다. 최근에는 미국 Eichrom사에서 악티나이드 원소를 분리하고자 TRU, TEVA 및 Sr-Spec등의 추출 크로마토그래피 수지를 개발하였다.^{4,5} Eichrom에서 생산되는 크로마토그래피 수지는 상용되는 양이온 및 음이온 수지(Dowex, Bio Rad)에 비해 현저히 비싼 단점이 있으나 분석시간 및 분석폐액을 획기적으로 단축하는 장점이 있어 환경방사능 분석에 널리 사용되고 있다.

기존의 $^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , 및 ^{241}Am 등의 악티나이드 원소에 대한 분리법에 대해서는 많은 연구가 발표되었으나⁶⁻⁸ 스트론튬-90을 포함한 악티나이드 원소들에 대한 축차분리법에 대한 연구는 미미한 실정이다.⁹ ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , 및 ^{241}Am 등의 인공방사성 핵종을 축차적으로 분리하는 기술은 각각의 핵종에 대한 독립분석법과 비교하면, 동일한 시료에 대하여 방사성 핵종 농도비에 대한 직접 비교가 가능하고 시료전처리 시간을 단축하는 장점이 있다. 본 연구의 목적은 기존의 독립적인 분석법과 비교하여 분석소요시간 및 분석경비를 단축하는 Sr-90, Am-241 및 Pu 동위원소 축차 분석기술을 개발하여 기존 독립적인 분석법에 비해 검출 하한치 향상에 의한 분석 신뢰도를 확보하는데 있다.

2. 실험방법

환경시료에 대한 ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , 및 ^{241}Am 축차 분리 및 측정 절차도를 Fig. 1에 나타내었다.

2.1. 시료 전처리 및 분해

500°C로 회화된 토양시료 50 g을 테프론 비이커로 옮기고 Sr 추적자 50 mg, ^{243}Am 및 ^{242}Pu 를 각각 0.037 Bq, 0.023 Bq을 가한후 65% 질산 100 ml 및 HF 20 ml를 가해 토양시료를 분해시키는 과정을 두 번 반복하였다. 잔유물을 8 M 질산 100 ml를 사용하여 핫플레이트에서 2시간 이상 교반하여 방사성 핵종을 완벽하게 토양으로부터 추출한 후 원심분리하여 상등액을 membrane filter(0.2 μm)로 여과하였다.

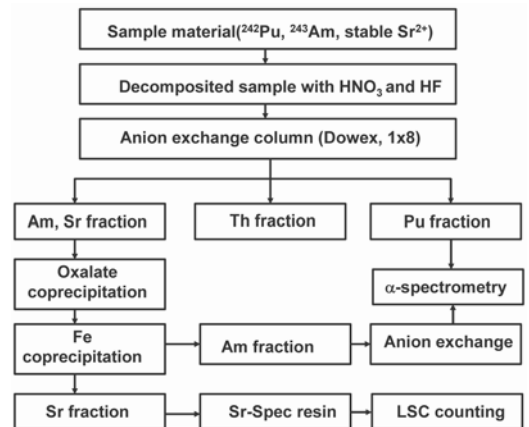


Fig. 1. Flow chart for separation of Sr-90, Am-241 and Pu isotopes.

2.2. 음이온교환수지를 이용한 Pu 동위원소 순수분리 및 측정

Sr, Am, U 및 Pu 성분등이 추출된 용액에 대하여 Pu 산화가를 +4로 고정시키기 위해 Na_2SO_3 2 g 및 NaNO_2 1 g를 첨가한 후 가열하였다. 음이온 교환수지(Dowex 1×8, 100-200 mesh, NO_3^- form)를 사용하여 Pu 동위원소를 컬럼(내경; 1 cm, 높이; 8 cm)에 흡착시켰다. 컬럼을 8 M 질산 100 ml로 세정한후 여액과 세정액은 Am 및 Sr 분석에 사용하였다. 9 M 염산으로 컬럼을 세정하여 토륨을 제거한 후 음이온 교환컬럼에 흡착된 Pu 성분을 20 ml 0.36 M HCl/0.01 M HF를 사용하여 추출한 후 전기전착¹⁰하여 알파 스펙트로메타로 Pu 동위원소를 측정하였다.

2.3. 옥살산 공침법을 이용한 매트릭스 성분으로부터 Sr 및 Am 분리

음이온 교환수지를 통과한 여액과 세정액을 20 ml가 되도록 증발시킨 후 증류수 180 ml를 가하고 옥살산 30 g를 첨가한 다음, 암모니아수로 pH를 4로 조절하여 Am과 Sr 성분을 옥살산에 공침시킨후 원심분리하였다. 옥살산 침전을 65% HNO_3 10 ml 사용하여 옥살산을 분해시키는 과정을 세번 반복하였다.

2.4. 염화철 공침법에 의한 Sr과 Am 분리

잔유물에 1 M HNO_3 100 ml를 사용하여 녹인후 Fe(III) 5 mg을 첨가한 다음, 암모니아로 pH를 8-9 사이로 조절하였다. Am, 희토류원소, 우라늄 및 토륨등은 철에 공침되지만 스트론튬과 칼슘은 공침되지 않고 상등액에 존재한다. 침전을 원심분리한 후 상등액은 스트론튬 분리에 이용하였다. 침전에 9 M HCl를 사용하여 녹인후 암모니아수를 사용하여 다시 철공침한 후 침전은 아메리슘 분리에 사용하고 상등액은 Sr 분석에 이용하였다.

2.5. 철, 우라늄 및 희토류 원소들로부터 Am 순수분리 및 측정

염화철 공침에는 Am 뿐만 아니라 희토류원소 및 소량의 우라늄이 함유되어서 음이온교환수지를 사용하여 방해원소를 제거하였다. 염화철 공침시료를 9 M HCl 20 ml로 녹인후 9 M HCl로 전처리한 음이온 교환수지(Cl^- form)로 충전된 컬럼(내경; 1 cm, 높이; 3 cm)에 통과시켰다. 컬럼을 9 M HCl 30 ml로 세정하면 철 및 우라늄등은 음이온 교환수지에 강하게 흡착되며 희토류원소 및 Am은 컬럼에 흡착되지 않고 통과한다. 컬럼으로부터 여액과 세정액을 증발건고시킨 후 액상을 nitrate

form으로 만들기위해 65% HNO_3 5 ml를 가한후 증발건고시켰다. 잔유물에 1 M HNO_3 -93% methanol 50 ml를 가한 후, 가열하여 녹인 후, 1 M HNO_3 -93% methanol 50 ml로 전처리한 음이온교환수지(NO_3^- -form, 내경; 1cm, 높이; 5 cm)에 통과시켰다. 컬럼에 0.1 M HCl-0.5 M NH_4SCN -80% methanol 80 ml를 가해 희토류 원소를 제거하였다. 1 M HNO_3 -93% methanol 20 ml를 사용하여 컬럼을 세정하였다. 1.5 M HCl-86% methanol 용액 80 ml를 사용하여 Am 성분을 추출한후 전기전착하여 알파스펙트로메타로 Am 동위원소를 측정하였다.

2.6. Sr-spec 컬럼을 사용한 Sr-90 순수분리 및 측정

철에 공침되지 않은 성분을 증발건고한후 6 M HNO_3 10 ml에 녹였다. 시료매질로부터 스트론튬만을 분리하기위해 6 M HNO_3 으로 전처리한 Sr-spec 컬럼에 통과시켰다. 6 M HNO_3 20 ml를 사용하여 컬럼을 세척하여 칼슘 및 이트륨등의 방해원소를 제거하였다. 증류수 20 ml를 사용하여 Sr-spec 컬럼에 흡착된 스트론튬을 용출시켰다. 포화 탄산암모늄 2 ml를 Sr이 함유된 용출용액에 첨가한 후 암모니아수(25%)로 pH를 9로 조절하여 탄산스트론튬 침전을 만들어서 Sr 화학수율을 결정하였다. 0.1 M HCl 10 ml를 사용하여 침전물을 녹인후 폴리에틸렌 용기(20 ml)로 옮긴후 액체섬광체(Ultima Gold LLT, Packard Instrument) 10 ml를 가한후 액체섬광계수기내에 내장된 spectrum unfolding 기법¹¹⁻¹³을 사용하여 ^{90}Sr 을 정량하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. Pu 동위원소 분석

8 M 질산에 추출된 Pu의 산화상태는 +3, +4, +5 및 +6 형태로 존재한다고 보고되었다.¹⁴ Pu을 순수분리하기위해 Pu가 추출된 용액을 음이온 교환수지에 통과시키면 Pu 산화상태가 +4가인 경우에 강하게 음이온 교환수지에 흡착된다. 만일 추출용액에 함유된 Pu의 산화상태가 +3가로 존재할 경우, Pu는 음이온 교환수지에 흡착되지 않고 용출되어서 Pu 회수율을 감소시키는 원인이 된다. 따라서 Pu 동위원소를 신뢰성 있게 검출하려면 산화/환원제를 사용하여 음이온 교환수지를 통과하기 전에 Pu 산화상태를 +4로 고정시키는 단계가 필요하다. 산화/환원제 종류에 따른 Pu 회수율을 Table 1에 나타내었다. H_2O_2 및 NaNO_2 등의 산화/환원제를 단독으로 사용한 경우에 회수율은 70% 미만으로 측정되

Table 1. Pu recoveries with oxidation/reduction agents (IAEA-375 50 g).

Separation Method	Oxidizing/Reducing agent	Chemical yield (^{242}Pu , %)
TOPO Extraction	NaNO_2	69 ± 7^a
Anion Exchange	H_2O_2	54 ± 6
Anion Exchange	$\text{NaNO}_2/\text{N}_2\text{H}_5\text{OH}$	75 ± 9
Anion Exchange	$\text{NaNO}_2/\text{Na}_2\text{SO}_3$	77 ± 7

a: $\pm 1\sigma$, n = 3

있고, NaNO_2 에 Na_2SO_3 혹은 $\text{N}_2\text{H}_5\text{OH}$ 을 같이 사용한 경우에 Pu 회수율은 75% 이상으로 측정되었다. Pu 분석에서 H_2O_2 혹은 NaNO_2 등의 산화/환원제만을 독립적으로 사용할 경우 종종 토양에서 추출된 무기/유기 원소들이 산화/환원제에 의한 Pu의 산화/환원 작용을 억제할 가능성이 있다. 결과적으로 추출용액에서 Pu 산화상태가 +4가로 완벽하게 조절이 되지 않아서 Pu 회수율이 감소되었다고 생각할 수 있다. 또한 $\text{NaNO}_2/\text{N}_2\text{H}_5\text{OH}$ 를 사용한 경우 $\text{NaNO}_2/\text{Na}_2\text{SO}_3$ 를 사용한 경우와 ^{242}Pu 회수율이 비슷하게 측정되었으나, 이 방법을 사용할 경우 $\text{N}_2\text{H}_5\text{OH}$ 가 폭발성이 강하므로 사용시에 상당한 주의가 필요로 한다. 따라서 본 연구에서는 NaNO_2 1 g과 Na_2SO_3 2 g을 사용하여 Pu 산화상태를 +4가로 조절하였다. Pu 분석에 대한 검출하한치는 0.00450 Bq/kg 로 기본분석법의 검출하한치인 0.00519 Bq/kg 와 비교하면 약간 감소하여 분석신뢰도가 향상되었다. 본 연구에서 사용한 검출하한치는 백그라운드 측정시간, 시료의 회수율, 시료의 측정시간 및 시료량을 고려하여 산출하였다.¹⁵

3.2. Am 동위원소 분석

아메리슘 정량에는 란타나이드와 ^{210}Po 등이 아메리슘 스펙트럼 측정에 영향을 준다. 란타나이드 원소들이 방사화학 분리단계에서 완벽하게 제거되지 않으면 알파핵종에 대한 측정시료 조제시에 Am과 같이 전기전착되어서 알파스펙트럼을 퇴화(degrade) 시켜 피크 분리를 어렵게 한다. 또한 ^{210}Po 은 방출에너지는 5.30 MeV로 추적자로 사용하는 ^{243}Am 의 방출에너지인 5.27 MeV와 비슷하여 아메리슘 방사능 농도값은 실제 농도보다 과소 평가될 위험성이 있다. 따라서 기존의 Am 분석법은 이러한 방해원소들을 제거하기 위해 여러단계의 분석조작이 필요하여 결과적으로 Pu 분석법보다 낮은 화학수율이 측정되었다. 본 연구에서는 Am 분석에 중요한 영향을 주는 pH 변화에 따른 옥살산 공침효율을 조사하였다. 일정량의 방사능 추적자(^{232}U ; 124 dpm, ^{241}Am ;

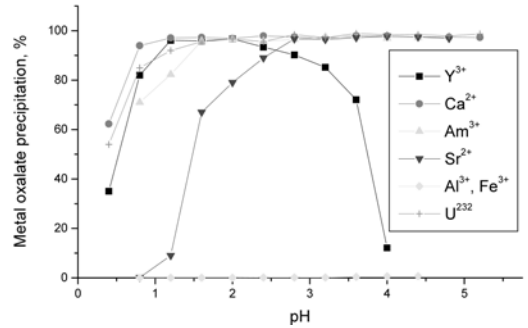


Fig. 2. Precipitation recoveries for Y^{3+} , Ca^{2+} , Am^{3+} , Sr^{2+} , Al^{3+} , Fe^{3+} and U^{232} with varying pH.

543 dpm) 및 무기이온(Ca^{2+} , Sr^{2+} , Fe^{3+} , Al^{3+} , Y^{3+}) 50 ppm을 모의시료에 첨가하고 pH 변화(0.5, 1, 1.5, 2, 2.5, 3, 3.5, 4)에 따른 옥살산 공침효율을 ICP-AES, 감마 및 알파스펙트로메타로 측정된 결과, Fig. 2에 나타난 것처럼 pH 3에서 무기이온 (Ca^{2+} , Sr^{2+}), ^{232}U 및 ^{241}Am 등은 옥살산에 90% 이상 공침되나 토양 매트릭스 주성분인 Fe^{3+} , Al^{3+} , Y^{3+} 등은 pH 3에서 옥살산에 거의 공침이 되지 않고 수용액에 옥살레이트 착물형태로 존재하므로 스트론튬 및 아메리슘을 토양 매트릭스 성분으로부터 완벽하게 분리할 수 있었다. 또한 철에 공침된 Am에 대하여 음이온 교환수지(Cl^- form)를 이용하여 철을 제거한 후 음이온 교환수지(NO_3^- form)를 사용하여 란타나이드 성분 및 ^{210}Po 를 제거하여 순수한 Am만을 분리하였다. Am 분석에 대한 회수율 평균은 $69 \pm 6\%$ 로 기존의 Am 분석법(65% 이하)보다 약간 증가되었다. ^{241}Am 의 검출하한치는 $0.00482 \text{ Bq/kg-dry}$ 로 기존 독립적인 분석법을 사용한 경우의 검출하한치인 $0.00870 \text{ Bq/kg-dry}$ 와 비교하면 약간 감소되었다.

3.3. Sr-90 분석

최근 Moreno⁹ 등은 옥살산에 공침된 스트론튬을 분리하기 위해서 TRU Spec 수지를 이용하였으나 TRU 수지 단가가 비싼 단점이 있으므로, 본 연구에서는 철공침으로 스트론튬을 아메리슘 성분들과 분리하였다. pH 8에서 대부분의 Am^{3+} 은 철에 공침되나 Sr^{2+} 는 철에 공침되지 않는 특성을 이용하여 Sr 성분을 Am으로부터 분리하였다. 또한 철에 공침되지 않는 Sr, Ba 및 Ca 이온들은 화학수율 결정 및 액체섬광 측정시 악영향을 주므로 Sr만을 순수분리하기 위해 Sr Spec 수지를 사용하여 Sr만을 순수분리한 후 화학수율을 측정된 결과 Sr 회수율의 평균은 $68 \pm 8\%$ 로 기존의 발연질산법의 회수율과 유사하였다. 또한 분석단계가 많이 축소되어 기존의

Table 2. Radioactivity concentrations of ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ 및 ^{241}Am in the IAEA reference soils.

Sample	Radionuclide	Recommended value(Bq/kg)	This method (Bq/kg)
IAEA-375	^{90}Sr	108	113 ± 7
	$^{239,240}\text{Pu}$	0.30	0.26 ± 0.05
	^{241}Am	0.13	0.11 ± 0.04
IAEA-300	^{90}Sr	10.8	15.5 ± 2.1
	$^{239,240}\text{Pu}$	3.55	3.42 ± 0.12
	^{241}Am	1.38	1.49 ± 0.24

분석법에 비해 분석시간 및 분석단가가 절약되는 장점이 있다. 또한 기존의 가스비례 계수기로 베타선을 측정할 경우 스펙트럼 분석이 불가능한데 비해 액체섬광 계수기를 사용할 경우 Sr-90 스펙트럼 분석이 가능하였다.

3.4. Pu, Am 및 Sr 동위원소 분석법 검증

^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ 및 ^{241}Am 핵종에 대한 측차 분리법을 IAEA Reference 토양시료¹⁶에 적용하여 얻은 결과를 Table 2에 나타내었다. 각각의 방사능 농도값에 대한 불확도 수치는 불확도 산출 지침¹⁷에 의거해 계산하였다. 또한 IAEA-375 토양시료에 대하여 측정 한 $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am 및 ^{90}Sr 스펙트럼을 Fig. 3 및 Fig. 4에 나타내었다. IAEA-375 Reference 토양시료에서 ^{90}Sr 방사능 농도는 95% 신뢰구간인 101-114 범위의 값으로 허용오차 범위내에서 일치하였다. 또한 $^{239,240}\text{Pu}$ 및 ^{241}Am 의 경우

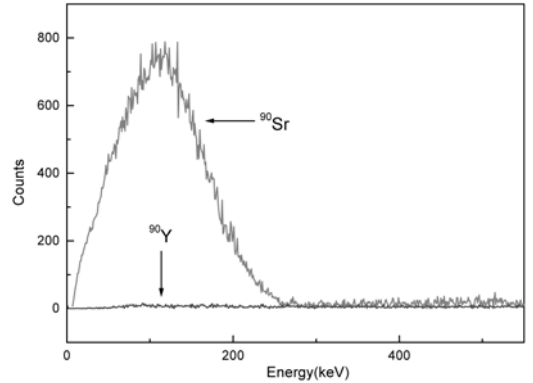


Fig. 4. Beta spectra for Sr-90 and Y-90 isotopes in the IAEA-375 reference soil.

도 95% 신뢰구간($^{239,240}\text{Pu}$; 0.26-0.34, ^{241}Am ; 0.11-0.15) 내의 농도값을 나타내었다. IAEA-300 Reference 해저토의 경우 $^{239,240}\text{Pu}$ 및 ^{241}Am 농도는 95% 신뢰구간 ($^{239,240}\text{Pu}$; 3.44-3.65, ^{241}Am ; 1.2-1.5)내의 값으로 측정되었으나 ^{90}Sr 의 농도값(15.5 Bq/kg)은 95% 신뢰구간 (8.2-12.1)보다 높게 측정되었다. 이 결과치는 IAEA-300 해저토에 대한 ^{90}Sr 순수분리시 소량의 ^{137}Cs (1066 Bq/kg)이 제거되지 않고 Sr 성분에 함유되어서 액체섬광 계수기로 측정시 ^{90}Sr 스펙트럼에 영향을 주어 ^{90}Sr 농도가 과대평가 되었다고 사료된다. 따라서 차후 이러한 단점을 보완하기 위해서는 Sr-Spec 수지양을 증가시켜 ^{90}Sr 을 ^{137}Cs 으로부터 완벽하게 분리하여야 한다고 생각된다.

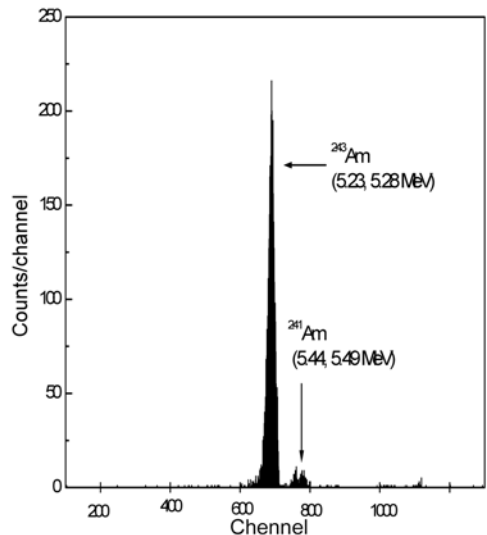
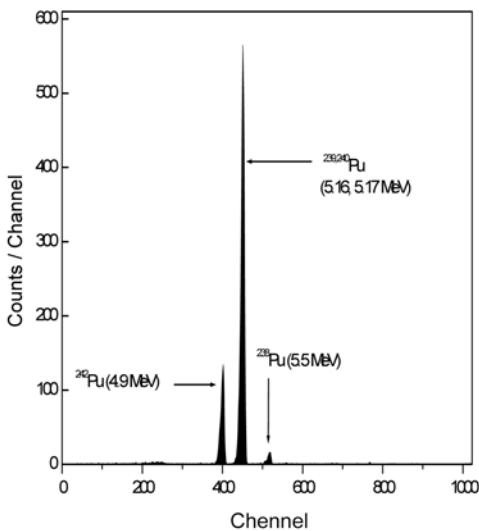


Fig. 3. Alpha spectra for Pu and Am isotopes in the IAEA-375 reference soil.

4. 결 론

Pu 동위원소를 분리하기위해 8 M 질산으로 Pu 성분을 추출한 후, $\text{NaNO}_3/\text{Na}_2\text{SO}_3$ 을 사용하여 Pu 산화상태를 +4가로 조절한다음 음이온 교환수지를 이용하여 Pu 성분만을 순수분리하였다. 아메리슘 동위원소는 옥살산 공침 및 염화철 공침법을 이용하여 무기이온 및 스트론튬과 분리한후 음이온 교환수지를 이용하여 순수분리하였다. 순수분리된 Pu 및 Am 동위원소를 각각 전기전착하여 Pu 및 Am 방사능을 측정하였다. Pu 및 Am 측차 분석법에 대한 검출한계치는 기존 분석법에 비해 향상되었다. 스트론튬-90은 옥살산 공침 및 Sr-Spec 수지를 사용하여 순수분리한 후 액체 섬광계수기로 Sr-90 베타선 스펙트럼을 측정하였다. ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ 및 ^{241}Am 측차 분리법을 IAEA Reference 시료에 적용한 결과, $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am 및 ^{90}Sr 방사능 농도는 95% 신뢰구간에서 잘 일치하였다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부가 주관하는 원자력 중장기 연구의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

1. N. A. Chieco, D. C. Bogen, E. O. Knutson (Eds), EML Procedures Manual, 27th ed., U.S. Department of Energy, New York, 1992.
2. Analytical Methods of Uranium, Radioactivity Measurement Series no. 14, Japan Chemical Analysis Center, Science and Technology Agency in Japan, 1991.
3. Schuttelkopf H. KfK-Report 3035, 1981.
4. E. P. Horwitz, M. L. Dietz, D. M. Nelson, J. J. Larosa, W. D. Fairman, *Analyt. Chim. Acta*, **238**, 263(1990).
5. E. P. Horwitz, R. Chiarizia, M. L. Dietz, H. Diamond, *Analyt. Chim. Acta* 281, 361(1993).
6. M. Yamamoto, K. Komura, M. Sakanoue, *Radiochem. Acta*, **29**, 205(1981).
7. A. Yamato, *J. Radioanal. Nucl. Chem. Article*, **75**, 265 (1982).
8. K. Bunzl, W. Kracke, *J. Radioanal. Nucl. Chem. Article*, **115**, 13(1987).
9. J. Moreno, N. Vajda, P. R. Danesi, J. J. Larosa, E. Zeiller, M. Sinojmeri, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **226**, 2799(1997).
10. M. H. Lee and C. W. Lee, *Instrum. Methods Phys. Res.*, **447**, 593(2000).
11. M. J. Kessler (Ed), *Liquid Scintillation Analysis. Science and Technology*, Packard Instrument Co., 1989.
12. K. H. Hong, Y. H. Cho, M. H. Lee, G. S. Choi, C. W. Lee, *Appl. Radiat. Isot.*, **54**, 299(2001).
13. M. H. Lee, K. H. Chung, G. K. Choi, C. W. Lee, *Appl. Radiat. Isot.*, **57**, 257(2002).
14. G. R. Choppin, *J. Anal. Chem.* **51**, 1129(1996).
15. M. H. Lee, Y. H. Cho, G. S. Choi, C. W. Lee, H. S. Shin, *Anal. Sci. Tech.*, **14**, 64(2001).
16. Z. Radecki, M. Campbell, K. I. Burns, *Radionuclides and Trace Elements in Soil*, IAEA-375 Reference Material, Vienna, 1991.
17. "Quantifying Uncertainty in Analytical Measurement", Eurachem, 1999.