

공기 중 우라늄 동위원소 분석을 위한 방사화학 전처리방법에 대한 비교 분석 연구

강한별, 정희준, 박승훈, 신중기,곽성우
한국원자력통제기술원

2015년 2월 16일 접수 / 2015년 4월 29일 1차 수정 / 2015년 6월 3일 2차 수정 / 2015년 6월 11일 채택

대기 중에 존재하는 우라늄 동위원소 분석을 위해서 일반적으로 알파분광분석법(alpha spectrometry)이 사용되고 있으며, 정확한 분석을 위해서는 정밀한 방사화학 전처리가 요구된다. 보편적인 방사화학 전처리 방법으로는 회화법(ashing method) 및 알칼리 용융법(alkali fusion method)가 있다. 그러나 회화법의 경우 전처리 시간이 길어 빠른 분석이 어렵다는 단점이 있으며, 이와 달리 알칼리 용융법은 단시간 내에 전처리가 가능하다는 장점은 있으나 보편적으로 전처리 장비의 무게가 무겁고 분석 소요 비용 역시 상당히 높다는 단점이 있다. 이러한 단점들은 신속한 분석 결과가 요구되는 방사능 사고 분석 또는 IAEA 안전조치 물자재고 검사(Physical Inventory Verification, PIV) 수행 시, 효율성을 저하시키는 원인이 된다. 이에 본 연구에서는 간편하면서도 주어진 짧은 시간 내에 공기 중 우라늄 동위원소 분석을 완료하는 것을 목적으로, 초음파 세척법(ultrasonic cleaning method)을 이용한 새로운 방사화학 전처리 방법을 개발하였다. 또한 초음파 세척법의 효율성 분석을 위해 전처리 소요시간, 편의성, 소요비용, 우라늄 동위원소 회수율의 측면에서 기존의 방법들과 비교 분석하였다. 동일 조건의 공기 포집시료에 대해 비교실험을 수행한 결과, 본 연구에서 개발한 초음파 세척법을 활용한 공정은 상대적으로 전처리 시간도 짧고, 이동이 간편하며, 저가이며, 단순함에도 불구하고 기존 방식과 비교하여 유사한 회수율을 보였다.

중심어 : 우라늄, 동위원소분석, 전처리, 방사화학, 초음파 세척법

1. 서론

원자력시설에 대한 IAEA 안전조치 검사 및 핵 물질을 취급하는 원자력시설 안전성 평가를 위해 일반적으로 알파분광분석법이 사용된다. 알파분광분석법은 대기 중에 존재하는 우라늄 총량과 동위원소 비(ratio)를 특성 알파선 계측을 통해 결정하는 실험법이며, 해당 시설 주변의 공기를 포집하고, 포집된 샘플의 방사화학 전처리, 우라늄 분리 및 추출, 선원 제작, 그리고 측정 과정을 통해서 최종적으로 공기 중 우라늄의 동위원소 특성을 결정하게 된다. 이러한 일련의 전체 공정을 위해서 대략 7~10 일 정도의 시간이 소요되며, 대부분의 시간이 방사화학 전처리 중 시료 용해 공정에서 소요된다. 또한 회화로와 같은 무거운 장비가 요구되는 공정에서는 현장에서 채집한 샘플을 분석실로 이송하는 시간이 추가로 소요되어, IAEA 안전조치 물자재고검사(physical inventory verification, PIV) 혹은 방사성 사고 분석과 같이 가능한 빠른 시간 내에 분석결과를 얻어야 하는 경우에는 효율성이 떨어진다. 이에 본 연구에서는 간편하면서도 주어진 짧은

은 시간 내에 공기 중 우라늄 동위원소 분석을 완료하는 것을 목적으로, 초음파 세척법을 이용한 새로운 방사화학 전처리 방법을 개발하였다. 또한 초음파 세척법의 효율성 분석을 위해 전처리 소요시간, 편의성, 소요비용, 우라늄 동위원소 회수율의 측면에서 기존의 방법들과 비교 분석하였다.

2. 실험 및 방법

새로 고안된 초음파 세척법과 기존 방식들의 정밀 비교 분석을 위해, 동일한 조건의 공기 필터를 준비하여 회화법(ashing method) [1-3] 및 용융법(alkali fusion method) [4-7] 그리고 본 연구에서 적용한 초음파 세척법(ultrasonic cleaning method) [8-11] 으로 각각 전처리를 진행하였다. 방사화학 전처리 방식에 의한 시료 회수율 변화율만을 확인하기 위해, 전처리 이후 공정들은(우라늄 분리 및 추출, 선원제작, 알파선 측정) 모두 동일한 조건에서 수행되었다. 또한 회수율 이외에 전처리 소요시간, 편의성, 그리고 소요비용 관점에서도 비교 평가하였다. 결론적으로, 본 연구에서 개발한 공정은 기존 공정과 비교하여 유사한 화학처리 회수율을 보임에도 불구하고

책임저자 : 곽성우, swkwak@kinac.re.kr
대전광역시 유성구 유성대로 1534 한국원자력통제기술원

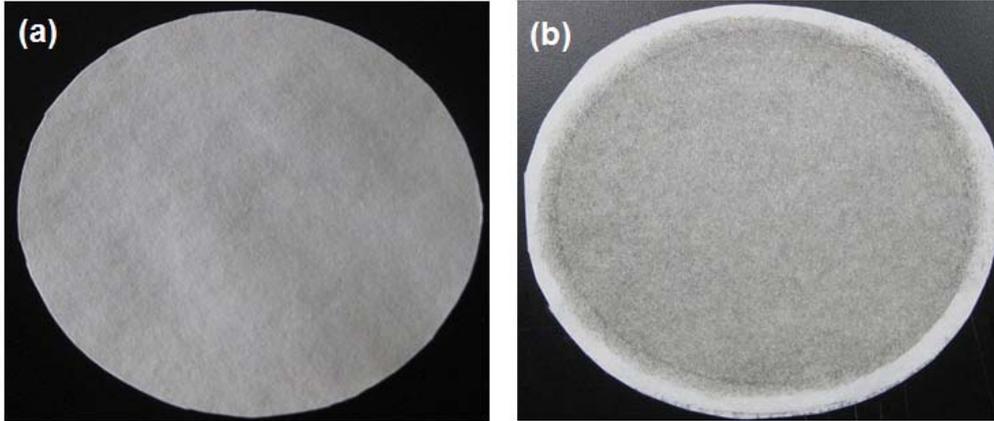


Fig. 1. (a) Air filter before collecting, (b) Air filter after 12hr collection.

하고 단순하고 저가이며 또한 공정 처리 시간이 짧은 장점을 보였으며, 이러한 장점은 안전조치 사찰과 방사능 사고 대비 신속한 비상대응 계획 수립 시 유용하게 활용될 수 있을 것으로 판단된다.

2.1 기기 및 시약

회화법(ashing method), 용융법(alkali fusion method), 초음파 세척법(ultrasonic cleaning method) 각각의 전처리 및 특성 알파선 계측을 위해 사용된 기기 및 시약은 다음과 같다. 회화로는 제이오텍의 MF-12GH Model이 사용되었으며, 용융에 사용된 장비는 K2-Prime (Katanax, CANADA)이며 초음파 세척기는 Branson 사의 MTH-3510 Model이 사용되었다. 시료 중 존재하는 matrix 성분을 제거하고 순수한 우라늄을 분리하기 위해 컬럼은 5 ml empty column(Eichrom, USA), 수지는 UTEVA resin (100~150 μ , Eichrom, USA)을 사용하였다. 판형(disk) 선원을 제작하기 위한 전기전착장비는 (주)한진 엔지니어링에서 제작한 다채널 고전압 전원장치 (multi channel power supply)를 사용하였다. 제작된 선원을 분석하기 위해 알파분광분석장치(Canberra Industries, Inc., U.S.A.)를 이용하였다. 실험에 사용된 시약은 영국 국립 물리학 연구소(National Physical Laboratory, NPL, UK)에서 제작된 ^{232}U tracer, 미국 국립표준기술연구소(National Institute of Standards and Technology, NIST, USA)에서 제작된 SRM 3164(Standard reference material) 그리고 Sigma-Aldrich에서 구입한 nitric acid(ACS reagent, 65%), hydrochloric acid(ACS reagent, 37%), sulfuric acid(ACS, 95.0~98.0%), ammonia hydroxide solution(ACS reagent, 28.0~30.0%), methyl red(ACS reagent, crystalline)를 사용하였다. 시약제조나 용기의 세척에 사용된 물은 millipore direct-Q system에서 얻은 18.2 MOcm^{-1} 이상의 3차 증류수를 이용하였다.

2.2 시료 제작

포집에 사용된 필터는 Staplex에서 제작된 TFAQ810 필터로서 ashless 재질을 가지고 있고 1μ 단위 입자의 포집 효율이 95% 이다. 일반적인 환경에서는 공기 중



Fig. 2. Automatic air sampler used for collection of uranium particle.

우라늄 입자의 포집이 거의 불가능하기 때문에, 본 실험에서는 포집필터를 포집기 입구 크기에 맞춰서 준비한 다음 NPL에서 제작된 ^{232}U tracer 0.5 ml와 NIST에서 제작된 표준시료물질 (standard reference materials, SRM 3164) 0.25 ml를 미리 필터에 묻혀놓고 하루 동안 fume 후두에서 건조시켜 시료를 제작하였다. 사용된 포집기는 (Fig. 2) 휴대형 자동 연속 공기 포집기이며 포집 시간은 12 시간, 유속은 500 SLM(standard liter per minute)으로 진행하였고 각각 3 개씩의 공기 시료를 포집하여 총 9 개 시료를 제작하였다.

2.3 전처리 방법

2.3.1 회화법(ashing method)

각각의 포집된 3개의 필터를 도가니에 담아 450°C 로 예열된 회화로에서 30 시간 동안(승온 시간 15 시간, 회화 시간 15 시간) 회화시켜 필터에 붙어있는 유기물 및 방해요소를 완전 제거해 준다. 포집에 사용된 필터는 ashless filter paper로서 회화 후 잔여물이 거의 다 제거되는 장점이 있다. 회화 후 재만 남아있는 도가니 안 (Fig. 3)에 순수 질산(Conc. HNO_3) 10 ml를 피펫을 이용하여 부어주면서 도가니를 씻은 후, 내용물을 50 ml



Fig. 3. Air filter after 450 °C, 15 hr ashing.



Fig. 4. A digital hot plate and stirrer.



Fig. 5. Folded air filter and LiBO₂ in Pt crucible.

비커로 완전히 옮겨 가열판(Fig. 4)에서 180~190°C로 가열을 진행하였다. 1 시간 동안 가열 후 완전 건조시켰으며, 이후 최종 회수율을 높이기 위해 총 2 번의 건조과정을 추가로 진행하였다. 일차적으로 건조된 생성물에 다시 Conc. HCl 5 ml를 첨가하여 30 분 동안 가열 후



Fig. 6. Automatic fusion equipment (K2 Prime).

완전 재건고시켰고, 다시 Conc. HNO₃ 5 ml를 첨가하여 30 분 동안 가열하여 최종적으로 건조하였다. 건조가 다 끝난 비커에 이온교환수지와 동일한 8 M HNO₃ 농도로 매질을 맞춰서 우라늄 분리를 준비하였다. 본 전처리 방식은 가장 널리 쓰이며 필터에 붙어있는 많은 불순물을 쉽고 확실하게 제거할 수 있다는 장점이 있으나, 앞서 언급하였듯이 회화를 진행하는 시간만 30 시간 이상으로 길고, 장비가 무거워 이동성이 떨어진다.

2.3.2 알칼리 용융법(alkali fusion method)

알칼리 용융법을 이용한 전처리는 다음과 같이 수행되었다. 회화법과 동일하게 준비된 3개의 필터를 준비된 백금 도가니에 잘 접어서 넣고(Fig. 5), 각 백금 도가니에 필터와 용융을 위하여 lithium metaborate(LiBO₂)를 넣어주었다. 필터와 LiBO₂는 1:3의 비율로 사용하였다. 또한 용융 후 도가니 벽면에 달라붙지 않도록 하기 위해 박리제 (LiBr) 0.5 g을 넣어주었으며, 시료의 용액화를 위해 K2-Prime fusion 장비가 사용되었다(Fig. 6). K2-Prime fusion 장비는 전기로 형태로 안전성을 확보하고 온도 조절 프로그램을 다양하게 선택할 수 있으며 다양한 시료를 용융제와 함께 단시간에 1,000°C에서 용융할 수 있어서, 위험작업인 용액화를 안전하게 자동으로 할 수 있는 장비이다. 본 실험에서의 분해온도 및 시간은 다음과 같이 설정되었다. 30°C에서 700°C까지는 온도를 빠르게 올린 후 700°C에서 3 분간 유지 시키고 다시 700°C에서 1,000°C 까지 3 분 동안 온도를 올려 필터와 LiBO₂를 산화시킨 이후 다시 1,020°C까지 온도를 올려 1,020°C에서 8 분간 온도를 유지하였다. 이후 가열된 용융물을 서서히 식혀 미리 준비한 10% HNO₃ 50 ml에 넣어 완전히 녹인 후, 가열판에서 180~190°C로 가열을 진행하였다. 3시간 동안 건조를 진행한 후 이온교환수지와 동일한 8 M HNO₃ 농도로 매질변경을 진행하는데 건조 시 바닥에 불순물이 발생하여 원심분리기를 이용 20 분간 원심 분리를 진행한 후, 상등액을 가지고 우라늄 분리를 준비하였다. 알칼리 용융법을 이용한 전처리는 단시간(약 4시간) 이내 샘플의 처리가 가능하고 작업이 단순하다는 장점이 있으나, 장비의 가격이 고가이면서 무거우며 용융에 사용되는 백금 도가니가 오염에 취약하다는 단점이 있다.



Fig. 7. The process of ultrasonic cleaning.



Fig. 8. UTEVA resin, column and column wrack.

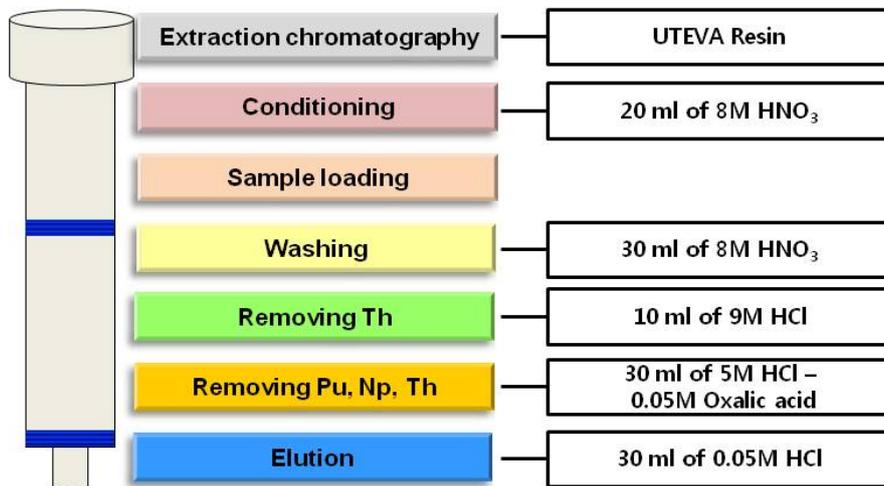


Fig. 9. Synoptic scheme for the separation of uranium.

2.3.3 초음파 세척법(Ultrasonic cleaning)

초음파 세척은 일반적으로 다양한 매질의 오염 물질 제거를 목적으로 널리 사용되고 있으며, 사람의 귀에 들리지 않는 높은 주파수(20 kHz)로 인하여 발생하는 공동현상(세척액 중의 지속적인 공동의 발생 및 소멸)을 활용하여 세척하는 방법이다. 지속적인 공동현상은 세척액의 교란, 탈지, 유화작용을 반복하여 세척효과를 촉진

시키며, 세척 대상물에 흠(defects)이 발생되지 않고 단 시간 안에 깨끗하게 세척되는 장점으로 인해 정밀세척, 요철부의 세척, 도금전후 세척 및 금형세척 등 많은 분야에서 이용되고 있다. 즉, 세척액에 초음파를 발사하면 세척액의 진동에 의하여 미세 알맹이의 기포가 “형성되고 소멸되는” 현상으로, 순간작용으로 인해 진공상태를 유지함과 동시에 피 세척물에 부딪히면서 매우 큰 압력

(수십~수천 기압)과 고온(수백~수천)을 동반하는 작용을 반복하게 된다. 이 초음파에 의해 세척액 중에 담겨있는 피 세척물의 표면 깊숙이 보이지 않는 곳 까지 단시간 내에 세척효과를 얻을 수 있는 것이다.

본 연구에서는 우라늄 입자가 포집 된 필터를 오염된 매질이라 가정하고, 필터에 흡착 된 우라늄 입자(오염물질)를 초음파 세척법을 이용하여 단시간 내에 오염물질을 효과적으로 분리 및 추출 할 수 있을 것이라고 가정하고 다음과 같은 방법으로 실험을 진행하였다. 앞선 전처리 방식들과 동일한 조건에서 포집된 3 개의 필터를 50 ml 비커 안에 잘 접어서 넣은 후 8 M HNO₃ 30 ml를 채운다. 8 M HNO₃을 채운 비커를 초음파 세척기에 담겨 1 시간 동안 세척을 진행하였다. Frequency는 42 kHz 진행하였다(Fig. 7). 초음파 세척이 끝난 후 비커 안에 있는 필터는 제거되었으며, 남아있는 용액을 가열판으로 옮긴 후 180~190℃로 가열 건조 과정을 진행하였다. 용액 속에 떠 있는 부유물질과 방해요소를 제거하기 위해 3시간 동안 가열 후 완전 건조 시켰으며, 다시 Con. HCl 5 ml를 첨가하여 30 분 동안 가열 후 완전 건조 시켰고, 다시 Conc. HNO₃ 5 ml 를 첨가하여 30 분 동안 가열 후 건조 시켰다. 건조가 다 끝난 비커에 이온교환수지와 동일한 8 M HNO₃ 농도로 매질을 맞춰서 우라늄 분리를 준비하였다. 개발된 초음파 세척법의 처리 시간은 회화법에 비해 상대적으로 짧고(약 5 시간 이내), 작업 및 실험장비가 단순하고, 경량화 되어 이동이 용이하며, 가격이 매우 저렴하다는 장점이 있다. 그러나 기존의 방식들과 달리 열처리를 통한 정제화가 이루어지지 않아, 초음파 세척 후 샘플 용액 자체를 정제화 해야 하는 번거로움이 있다.

2.4 우라늄 분리 및 추출

각각의 전처리 방법의 우라늄 회수율 비교 평가를 위해 우라늄 분리 및 추출 공정을 진행하였다. 본 연구는 전처리 방식들의 비교 및 분석을 목적으로 하기에, 우라늄 분리 및 추출 공정은 모두 동일한 조건에서 수행되었다.

우라늄을 분리 및 추출하기 위해서 컬럼과 컬럼 지지대, UTEVA 수지를 사용하였다.(Fig. 8) 비커에 미리 10 g 정도의 UTEVA 수지를 넣고 1 M HNO₃로 충분히 팽윤시킨 후, 컬럼에 충전하였다. 플라스틱 재질의 분리관 아래쪽에 폴리에틸렌 필터 디스크를 끼워 넣고, 일정량의 UTEVA 수지를 6 cm정도[12] 채운 다음, 상부에 다시 폴리에틸렌 필터 디스크를 끼워 넣고 갈매기를 연결시켰다. 충전 분리관에 1 M HNO₃ 용액 2 ml를 흘려 분리관을 정제한 다음, 8 M HNO₃ 용액을 10 ml씩 2 회 흘려 보내어 UTEVA 수지가 포함된 컬럼 조건을 시료조건과 동일하게 조절하였다. 8 M HNO₃ 용액에 용해된 시료들을 준비된 UTEVA 분리관에 흘려주었다. 시료가 완전히 통과하면 9 M HCl 10 ml를 수지에 통과시켜 산 조건을 바꿔주고, 5 M HCl-0.05 M Oxalic acid 20 ml로 넵투늄(neptunium), 플루토늄(plutonium), 토륨(thorium)을 제거하였다. 마지막으로 0.01 M HCl 30 ml를 흘려주어

UTEVA 분리관에 흡착된 우라늄을 분리하였다(Fig. 9). 분리된 우라늄을 가열판에서 증발 건조한 후, 1 M HNO₃ 1 ml, HClO₄ 1 ml, H₂O₂ 2~3 방울을 사용해서 다시 2~3 회 반복적으로 증발 건조하여 불순물을 제거하였다.

2.5 전기전착

분리된 우라늄 시료를 계측하기 위해서는 알파선의 특성을 고려하여 시료를 얇고, 균일하게 만들어야 한다. 시료 제작 방법에는 진공승화(vacuum sublimation), 직접증발(direct evaporation), 공침법(micro coprecipitation)[13-15], 전기전착(electrodeposition) [16-18] 법 등이 있다. 기존의 논문들에 따르면, 전기전착 방식이 일반적으로 얇고 균일한 시료를 얻을 수 있고, 또한 에너지 분해능이 우수한 특징을 가지고 있다. 따라서 본 실험에서는 전기전착 방식으로 선원을 제작하였으며, 전기전착을 위해서 분리된 시료에 (1+9) H₂SO₄ 4 ml를 넣은 후, 메틸레드 지시약을 한 방울을 떨어뜨렸다. 붉은색으로 변한 시료에 NH₄OH를 노란색이 되는 시점까지 넣은 후 (대략 2~3 ml), (1+9) H₂SO₄를 다시 한 방울씩 떨어뜨려 붉은 색이 되게 만들고 반복해서 NH₄OH와 (1+9) H₂SO₄를 이용해 최종 pH가 1.7~2.0 사이에 위치하도록 조정하였다. 이후 백금 전극을 양극, 전착판을 음극으로 하여 1 A 전류를 2 시간 동안 흘려주었다. 전착이 끝나기 1 분 전에, 매질의 전착력을 높이기 위해 NH₄OH 1 ml를 추가하였으며, 전착이 끝난 후 가스버너로 열을 가해 최종적으로 불순물을 제거하고 전착된 산화물을 고정시켰다.

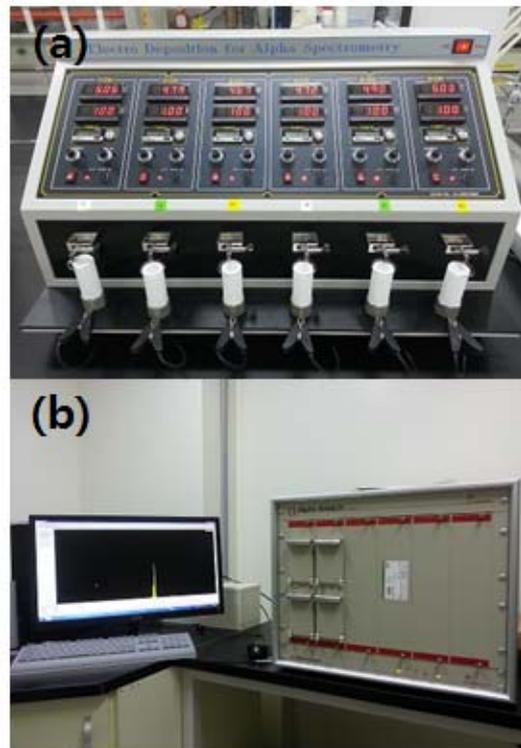


Fig. 10. (a) Electrodeposition system, (b) Alpha spectrometer.

Table 1. Uranium Results in the Air Filter

Pre-treatment method	Time(s)	Uranium activity ($\mu\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$)			Chemical yield (%)
		U-238	U-235	U-234	
Ashing (1)	100,000	158.05	2.68	142.87	88.22
Ashing (2)	100,000	125.99	0.88	125.12	88.70
Ashing (3)	100,000	122.56	2.68	109.14	88.06
Alkali Fusion (1)	100,000	120.81	4.54	116.27	86.73
Alkali Fusion (2)	100,000	121.00	2.69	107.55	87.21
Alkali Fusion (3)	100,000	125.54	4.61	108.92	85.34
Ultrasonic cleaning (1)	100,000	124.88	5.20	120.54	90.84
Ultrasonic cleaning (2)	100,000	91.64	4.36	89.89	89.56
Ultrasonic cleaning (3)	100,000	112.93	2.78	106.45	85.10

Table 2. Comparison of Three Different Pre-treatment Methods Employed for This Study.

Air filter pre-treatment	Equipment	Operating time	Acid digestion	Separation/extraction
Ashing method	Furnace	Appx 30 hours	2 hours	3 hours
Alkali fusion method	Fusion machine	Appx 30 minutes	3 hours	"
Ultrasonic cleaning	Ultra-sonification	1 hour	4 hours	"

Table 3. Compared Specification for Apparatus Employed for Each Pre-treatment Methods.

Equipment standard	Voltage	Power	Size	Weight	Price
Furnace	220 V 60 Hz	3000 W	48 × 53 × 73 cm	40 Kg	\$ 5,060
Fusion machine	220 - 240 VAC (50 ~ 60 Hz)	3000 W	91 × 48 × 48 cm	43 Kg	\$ 63,000
Ultra-sonification	220 ~ 230 V (50 ~ 60 Hz)	335 W	29 × 15 × 15 cm	4.9 Kg	\$ 1,085

2.6 알파분광분석

우라늄 동위원소의 방사능 농도 및 농도비(ratio)의 분석에는 일반적으로 질량분석방법(mass spectrometry) 또는 알파분광분석방법(alpha spectrometry)이 활용된다. 질량분석방법은 측정시간이 짧고 극미량 시료 분석도 가능하다는 장점이 있으나, 장비가 고가라는 단점이 있다. 이와 달리 분광분석방법은 극미량 시료의 분석은 불가하나, 가격이 저렴하다는 장점이 있다. 보편적으로 토양 또는 공기포집 시료의 경우, 분광분석법을 통해 우라늄 동위원소의 방사능 농도 및 농도비(ratio)를 결정하게 된다.

이에, 본 연구에서 세 가지 전처리 방식으로 제작된 선원들은 알파분광분석기를 이용하여 계측되었으며, 계측에 사용된 알파분광분석장치(PIPS detector, Canberra Industries, Inc.)의 에너지 측정범위는 3~15 MeV 이고, 유효면적 및 분해능은 각각 450 mm² 그리고 18 keV 이다. 계측 시, 검출기 내부를 진공펌프(Edwards 제품)를 사용하여 10⁻² torr 이하로 유지 하였다. 계측 시료와 검출기 간의 거리는 1 cm로 고정되었으며, 총 계측시간은 10⁵ 초로 모든 선원에 일정하게 설정하였다.

3. 결과 및 논의

초음파 세척법은 안경 세척과 같이 일상생활에서도 보편적으로 활용되는 오염 세척 방식이며 그 우수성은 널리 알려져 있다. 이에 본 연구에서는 초음파 세척법을 우라늄 동위원소 분석을 위한 전처리 방식에 적용하였으며, 기존의 방법들과의 비교 분석을 하였다. 비교한 사항은 1) 우라늄 동위원소 회수율, 2) 소요 시간, 3) 장비 사양이다. 기존 전처리 방식들과의 정확한 비교분석을 위해 동일한 시료를 사용하였으며, 전처리 공정을 제외한 나머지 실험조건은 모두 동일하게 유지하였다. 또한 실험의 정확성을 위해, 각 전처리 방법별로 3 가지 포집 샘플을 활용하였다.

각 전처리 방식으로 제작된 선원의 회수율을 비교한 결과, 본 연구에서 제안 한 초음파 세척법이 상대적으로 짧은 전처리 시간에도 불구하고 타 전처리방법들과 비교하여 유사한 회수율을 보였다(Table 1). 또한 최종적으로 계측된 스펙트럼 역시 모든 전처리 방법으로 준비된 선원들이 동일한 경향성을 지녔음을 확인할 수 있었다(Fig. 11). 회수율은 다음과 같은 공식에 의거 계산되었다.

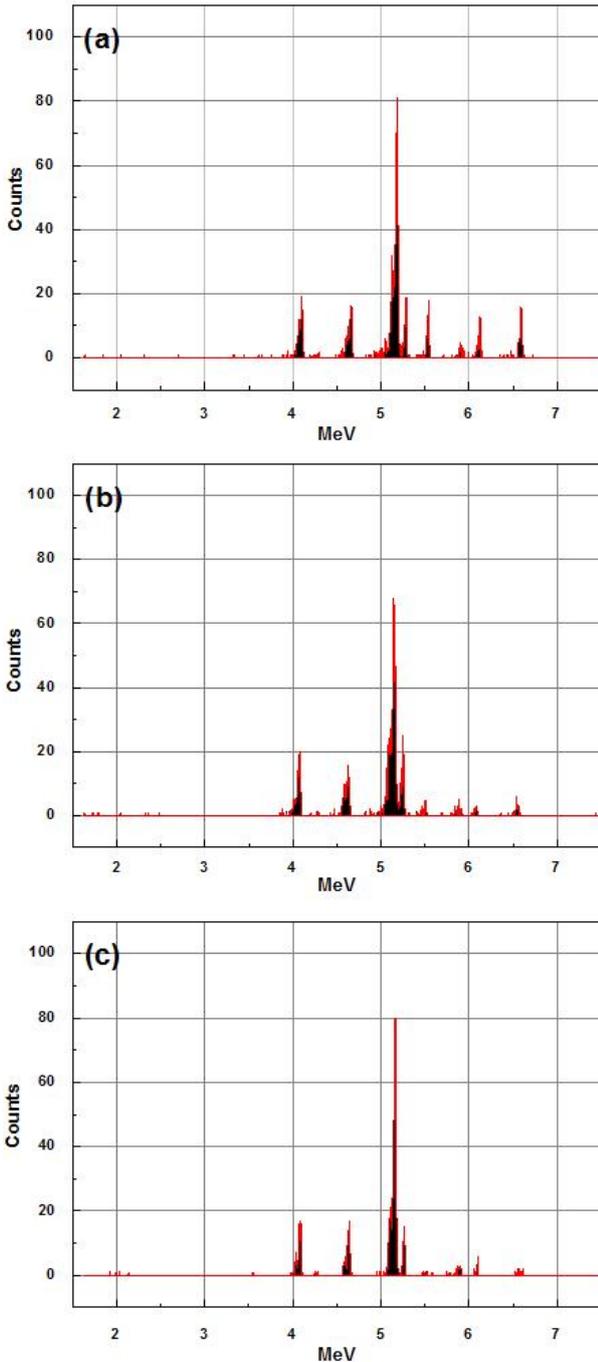


Fig. 11. Alpha-particle spectra of uranium source isolated from air filter; (a) Ashing method, (b) Alkali-fusion method (c) Ultrasonic cleaning method.

$$Y = \frac{\left(\frac{C_{u-232}}{T_{u-232}} \right)}{A_{u-232} \times E} \times 100$$

회수율은 Y(%)로 표시되며, C는 ²³²U의 총 계수, T는 계측시간, E는 알파분광분석장치의 효율도(eficiency), A는 ²³²U의 비방사능을 의미한다.

각 전처리 방식에 필요한 총 시간은 각각의 장비를 활용하여 필터에서 포집 물질을 분리하는 시간과 포집 물질을 산에 용해하는 시간의 합으로 비교하였으며, 우라

늄 분리 추출(UTEVA resin을 이용한 분리/추출) 공정은 모두 동일하게 3 시간 동안 수행하였다(Table 2). 회화법의 경우, 분당 승온 간격(max=>5℃)을 올림으로 총 승온 시간을 줄일 수는 있으나 장비의 건전성에 문제가 발생할 수 있다. 게다가 승온 시간이 짧아진다고 해도 회화 시간이 15 시간 소요되어 실질적인 시간적 이득은 기대하기 어렵다. 알칼리 용융법은 가장 소요 시간이 짧아 빠른 분석에 적당해 보이지만, 장비가 무거워 포집된 시료가 포집 현장에서 실험 시설로 운반되어지는 시간을 고려하여야만 한다. 또한 장비가 매우 고가임으로 경제적 어려움이 따른다. 본 연구에서 제안한 초음파 세척법은 1) 장비가 저렴하고, 2) 무게가 가벼워 이동성이 탁월하며, 3) 소요시간의 경우, 가장 빠른 알칼리 용융법과 비교하여도 1 시간 이내의 차이를 보이는 장점을 보였다. 또한 가장 중요한 회수율에서도 다른 여타 전처리법에 비해 유사 또는 높은 회수율을 보였다. 각 소요 장비들의 주요 사양은 Table 3에 정리하였다.

4. 결론

알파분광분석을 위한 방사화학 전처리는 포집된 공기 샘플에서 목표 분석물인 우라늄 동위원소(uranium isotopes) 만을 분리하는 것을 목적으로 하며, 일반적으로 많은 시간이 소모될 뿐만 아니라 전처리의 정밀도 여부가 최종 분석결과의 부정확도(uncertainty)를 결정짓는 요인이 된다. 또한 방사성 사고 및 IAEA 안전조치 사찰 활동 같은 상황에서는 신속한 분석이 요구됨으로 되는 데, 기존의 전처리 방식은 신속성 또는 이동성 등이 떨어지는 경향이 있다. 일부 장비의 경우에는 금전적인 부담이 발생하기도 한다.

이에 본 연구에서는 1) 신속성, 2) 높은 회수율, 3) 편리성을 목적으로 초음파 세척법(ultrasonic cleaning method)을 제안하였다. 제안된 초음파 세척법의 기술적 비교를 위해 기존의 회화법(ashing method) 및 용융법(alkali fusion method)을 동일 시료를 대상으로 각 3회씩 수행하여 비교 분석 하였다. 전처리를 제외한 기타 공정은 모든 시료에 동일하게 적용되었다.

비교실험 결과, 3 가지 방법들 모두 유사한 회수율을 보였으며 전처리 소요 시간, 편리성, 그리고 소요 비용을 모두 고려하였을 때, 본 연구에서 제안한 초음파 전처리 방법이 기존 전처리 방법들 보다 간단하고 시간 및 비용적 이득이 있음을 확인할 수 있었다. 따라서 향후 기 중 우라늄 농도 분포 측정 결과가 신속히 필요한 경우 또는 현장 분석이 요구되는 경우에 초음파 세척법을 활용한 전처리 방법이 매우 유용하게 활용될 것으로 예상된다.

REFERENCES

1. Riekkinen I, Jaakkola T, Pulli S, Salminen S, Ristonmaa S, Rosenberg R, Zilliacus R, Analytical methods for wide area environmental sampling

- (WAES) for air filters. STUK-YTO-TR report No 184. 2002.
2. Sherrod L, Maxwell III, Brian K, Culligan, GWN. Rapid separation method for actinides in emergency air filter samples. *Appl Radiat Isotopes*. 2010; 68(12):2125-2131.
 3. Salminen S. Development of analytical methods for the separation of plutonium, americium, curium and neptunium from environmental samples. Dissertations for the degree of Doctor of Philosophy in Chemistry. University of Helsinki, Helsinki, Finland. 2009.
 4. IAEA. A procedure for the rapid determination of Pu isotopes and Am-241 in soil and sediment samples by alpha spectrometry. IAEA Analytical Quality in Nuclear Applications Series NO 11. Vienna, Austria. 2009.
 5. Galindo C, Mougin L, Nourreddine A. An improved radiochemical separation of uranium and thorium in environmental samples involving peroxide fusion. *Appl Radiat Isotopes*. 2007;65(1): 9-16.
 6. Milliard A, Durand-jezequel M, Lariviere D. Sequential automated fusion/extraction chromatography methodology for the dissolution of uranium in environmental samples for mass spectrometric determination. *Anal Chim Acta*. 2011; 684(1-2):40-46.
 7. Rudisill TS, Karraker DG. Development of a sodium peroxide pre-treatment process for the recovery of plutonium from refractory residues. U.S. Department of Energy WSRC-TR-2001-00348. 2001.
 8. Muthukumar S, Yang K, Seuren A, Kentish S, Ashokkumar M, Stevens GW, Grieser F. The use of ultrasonic cleaning for ultrafiltration membranes in the dairy industry. *Sep Purif Technol*. 2004;39:99-107.
 9. Park BG, Son YG, Hwang AN, Kim GH. Investigation for optimization of ultrasonic soil-washing process for remediation of diesel contaminated soil. *J Korean Soc Hazard Mitig*. 2011;11(1):101-105.
 10. Awad SB, Nagarajan R. Ultrasonic cleaning. In: R. Kohli, K. L. Mittal. *Developments in Surface Contamination and Cleaning*. 1st ed. Amsterdam, Netherlands; Elsevier. 2009:225-280.
 11. Crawford AE. A practical introduction to ultrasonic cleaning. *Ultrasonics*. 1963;1(2):65-69.
 12. Philip Horwitz E, Dietz ML, Chiarizia R, Diamond H, Sherrod L, Maxwell III, Nelson MR. Separation and pre-concentration actinides by extraction chromatography using a supported liquid anion exchanger : application to the characterization of high-level nuclear waste solutions. *Anal Chim Act*. 1995;310:63-78.
 13. Lee MH, Park TH, Song BC, Park JH, Song KS. A study of simple alpha source preparation using a micro co-precipitation method. *Bull Korean Chem Soc*. 2012;33(11):3745-3748.
 14. Lozano JC, Fernandez F, Gomez JMG. Preparation of alpha-spectrometric sources by coprecipitation with Fe(OH)₃:application to uranium. *Appl Radiat Isotopes*. 1999;50(3):475-477.
 15. ASTM. Standard test method for mounting actinides for alpha spectrometry using neodymium fluoride. ASTM C1163-98. ASTM International. West Conshohocken, Philadelphia. 1998.
 16. Lee MH, Lee CW. Preparation of alpha-emitting nuclides by electrodeposition. *Nucl Instrum Meth A*. 2000;447(3):593-600.
 17. Hallstadius L. A method for the electrodeposition of actinides. *Nucl Instrum Meth A*. 1984;223: 266-267.
 18. Dumitru OA, Begy RC, Nita DC, Bobos LD, Cosma C. Uranium electrodeposition for alpha spectrometric source preparation. *J Radioanal Nucl Ch*. 2013;298:1335-1339.

A Comparative Study on Radiochemical Pre-treatment Methods for Airborne Uranium-Isotopic Analysis

Han-Byeol Kang, Heejun Chung, Seunghoon Park, Jung-Ki Shin, and Sung-Woo Kwak
Korea Institute of Nuclear Non-proliferation and Control

Abstract - Alpha spectrometry is typically used for the assessment of uranium particle concentrations and its accuracy can be directly related to the accuracy in which the radiochemical pre-treatment is conducted. Ashing and alkali fusion methods are typically used but the ashing method requires longer analysis time and the alkali fusion method is extremely costly. Therefore, a new pre-treatment method using ultrasonic cleaning was developed and its experimental result was compared against the two conventional methods in terms of pre-treatment time, convenience, cost, and recovery rate of a target material. The results that were obtained by the conventional methods(ashing and alkali fusion) and the new method were compared. Consequently, even though the shorter pre-treatment time was required, the new technique showed almost same recovery rate comparing with two conventional methods. The new method was also featured by its relatively lower cost and a simpler process than two conventional methods.

Keywords : Uranium, Radioisotopic analysis, Pre-treatment, Radiochemistry, Ultrasonic cleaning method