

## Ru 동위원소 비 측정에서 나타나는 동중원소 영향

전영신, 김정석, 한선호, 송규석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150 번지

[ysieon@kaeri.re.kr](mailto:ysieon@kaeri.re.kr)

### 1. 서론

Ru은 핵연료 핵분열생성물질 중 하나로 이의 동위원소 비를 측정함으로써 핵연료의 조사거동을 알아내는 지표원소로 이용된다. W. Smulek 등은 Zr과 Ru의 동위원소로부터 총 연소도에 플루토늄이 기여한 정도를 알아내는 연구를 수행하였으며, 또한 원자리에 문제가 발생할 때 유출물로 가스 상태인 RuO<sub>4</sub>로 공기 중에 방출되는데 이를 탐지하여 방사성물질오염 척도인자로 이용한다. Ru은 가열하면 산화되어 청색 RuO<sub>2</sub>가 되고 일부는 RuO<sub>4</sub>로서 휘발한다. 조사 후 핵연료 중 몰리브덴, 백금족원소들과 같이 Ru은 질산에 잘 녹지 않고 잔유물로 남아있어 필터 및 추출과정에 심각한 문제를 일으킨다. 사용 후 핵연료에서 이들의 거동을 알기위하여 정량분석은 필수이며, Ru 스파이크를 사용한 동위원소희석질량분석법이 적합한 방법으로 알려져 있다. 그러나 Ru은 높은 이온화 에너지(7.37 eV)를 갖기 때문에 동위원소 비를 정확하고 안정되게 측정하기가 쉽지 않다. 본 실험은 이온화효율을 높이기 위한 방법과 안정적 이온생성을 얻기 위한 실험, 그리고 레늄 필라멘트에 함유된 불순물들에 대한 동중원소 영향을 실험하였다.

### 2. 실험

사용한 기기는 Finnigan MAT 262, 열 이온화질량분석기를 사용하였으며, Re 필라멘트를 별도의 진공, 가열시스템에서 5.5 A, 60 분 동안 baking하여 실험에 사용하였다. 질량영역(m/z=96, 98, 99, 100, 101, 102, 104)에 대하여 측정조건에 따른 바탕값 영향을 실험하였다. 이온생성효율을 높이기 위해 이온화 에너지를 낮추는 방법으로 보론, 바륨, 실리케이트 화합물 등을 첨가하거나 산화상태로 휘발되는 것을 억제하기 위하여 환원제로 HI 또는 설탕용액을 사용하였다. 온도에 따른 산화상태의 안정과 효율적인 이온을 얻기 위해 single filament와 double filament를 비교 실험하였다. 또한 filament current(온도)에 따라 변화되는 이온생성경향을 Ru-101 피크를 기준으로 알아보았다.

### 3. 결과 및 토의

Fig 1.에서 볼 수 있듯이 baking을 하지 않은 필라멘트에 있는 불순물들로 Rb-85, 87과 Mo-92, 94, 95, 96, 97, 98, 100 질량(m/z)들이 작지 않게 나오는 것을 볼 수 있으며 이는 Ru-96, 98, 100 동위원소 비 측정에 심각한 동중원소 영향을 직접 미치게 된다. 또한 Rb는 <sup>85</sup>Rb<sup>16</sup>O<sup>+</sup>(m/z=101)이 Ru-101에 영향을 미친다. Baking을 시행한 필라멘트에 대하여 SEM 검출기를 사용하여 Ru 질량(m/z) 영역을 스캔 하였으며 이를 Fig. 2에 보였다. 이 또한 작지 않은 불순물 Mo가 남아 있었으며 이때 나타난 피크 중 Ru-100을 기준으로 Ru 동위원소 비 측정에 미치는 영향을 대략적으로 계산하였다. m/z=100에서 10000 CPS가

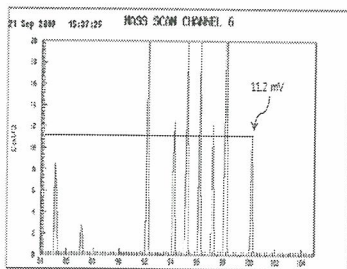


Fig. 1. None baked Re filament blank test for Ru isotope range(m/z).

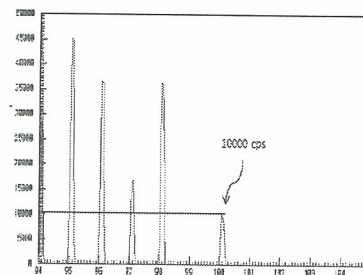


Fig. 2. Baked Re filament blank test for Ru isotope range(m/z).

얻어졌으며 이는 Ru-100 측정값에 약 0.4% 정도 오차를 주는 것으로 나타났다. Filament current(온도)

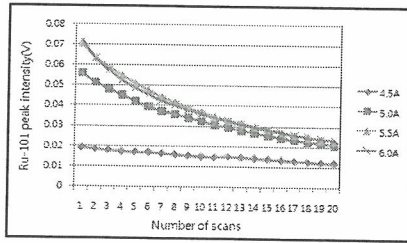


Fig. 3. Tendency of Ru ionization according to filament current.

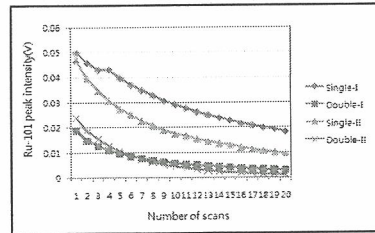


Fig. 4. Comparison of single filament to double filament configuration in Ru isotope measurement.

에 따라 변화되는 이온생성경향을 Ru-101 peak를 기준으로 실험하여 Fig. 3에 보였다. 4.5 A에서는 비교적 안정된 경향을 보였지만 전체적으로 너무 낮았다. 또한 5.0, 5.5 와 6.0 A에서 비슷한 peak intensity를 보였으며, 낮은 온도에서 측정하는 것이 필라멘트로부터 오는 Mo 영향을 적게 받기 때문에 5.0 A에서 측정하는 것이 적당한 것으로 나타났다. Fig. 4.에서 볼 수 있듯이 Ru 동위원소 비 측정에서 double filament 보다 single filament를 사용하는 것이 더 안정적이며 많은 이온이 얻어졌다. 따라서 한 개의 필라멘트보다 두개로부터 오는 동위원소 영향을 미치는 불순물이 많기 때문에 single filament를 사용하는 것이 더 바람직함을 알 수 있다.

#### 참고문헌

1. Petra Krystek, Klaus G. Heumann, *Fresenius J Anal. Chem.*, 364, 87-90(1999).
2. Min Huang, Yongzhong Liu, and Akimasa Masuda, *Anal. Chem.*, 68, 841-844(1996)..
3. Min Huang, Akimasa Masuda, *Anal. Chem.*, 69, 1135-1139(1997).
4. K. Gunji, Z. Yoshida, T. Adachi, T. Komori, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters* 118(3), 225-233(1987).
5. W. Smullek, R. K. Al-Dabbagh, K. Goroccek, M. Borkowski, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 121(2), 385-393(1988).
6. M.A. El-Absy, M.A. El-Amir, M. Mostafa, A.A. Abdel Fattah, H. M. Aly, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 266(2), 295-305(2005).