

Ru 동위원소 비 측정에서 나타나는 Mo 동중원소 영향 및 이의 보정

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

1. 서론

조사 후 핵연료 중 몰리브덴, 백금족원소들과 같이 루테튬(Ru)은 질산에 잘 녹지 않고 잔유물로 남아있어 필터 및 추출과정에 심각한 문제를 일으킨다. 사용 후 핵연료에서 이들의 거동을 알기 위하여 정량분석은 필수이며, Ru 스파이크를 사용한 동위원소희석정량분석법이 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. 특히 몰리브데늄(Mo)이 질량분석에 사용되는 필라멘트에 불순물로 포함되어 있으며 이는 baking system에서 고진공 고온에서 가열하여도 일정부분 없어지지 않아 Ru 동위원소 비 측정에 영향을 미친다. 따라서 Mo로부터 오는 동중원소 영향을 보정하는 방법으로 $^{94}\text{Mo}/^{99}\text{Ru}$ 를 측정하여 Ru동위원소 비 측정값을 보정하였으며 double filament를 사용하는 것 보다는 single filament를 사용하는 것이 더 안정적 이온 피크를 얻을 수 있었을 뿐만 아니라 Mo에 의한 동중원소 영향도 작았다. 또한 필라멘트 온도를 높이면 높일수록 동중원소 영향이 크을 알 수 있었다.

2. 실험

사용한 기기는 Finnigan MAT 262, 열 이온화 질량분석기를 사용하였으며, 두 종류의 레늄 필라멘트(ATES-프랑스, Thermo Electro Co.)를 별도의 진공, 가열시스템에서 5.5 A, 60 분 동안 baking하여 실험에 사용하였다. Ru mass($m/z=96, 98, 99, 100, 101, 102, 104$)에 대하여 바탕값 영향을 실험하였다. 이온생성효율을 높이기 위해 이온화 에너지를 낮추는 방법으로 보론, 바륨, 실리케이트 화합물 등을 첨가하거나 산화상태로 휘발되

는 것을 억제하기 위하여 환원제로 HI 또는 설탕 용액을 사용하였다. 또한 single filament와 double filament를 비교 실험하였으며 filament current(온도)에 따라 변화되는 Mo 이온 피크를 알아보았으며, $^{94}\text{Mo}/^{99}\text{Ru}$ 를 측정하여 Mo에 의한 동중원소 영향을 계산하는 지표로 삼았다.

3. 결과 및 토의

Baking을 시행한 필라멘트에 대하여 SEM 검출기를 사용하여 Ru 질량(m/z) 영역을 스캔 하였으며 이를 Fig. 1, 2에 보였다. 그림에서 볼 수 있듯이 불순물들로 Mo-94, 95, 96, 97, 98, 100 질량(m/z)피크 들이 작지 않게 나오는 것을 볼 수 있으며 이는 Ru-96, 98, 100 동위원소 비 측정에 심각한 동중원소 영향을 직접 미치게 된다. 본 실험에서 나타난 피크 중 Ru-100을 기준으로 Ru 동위원소 비 측정에 미치는 영향을 대략적으로 계산하였다. $m/z=100$ 에서 10000 CPS가 얻어졌으며 이는 Ru-100 측정값에 약 0.4% 정도 오차를 주는 것으로계산되었다.

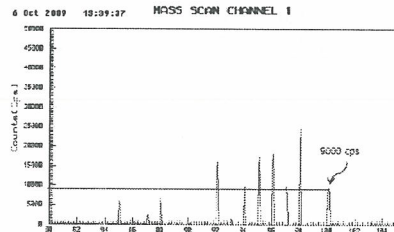


Fig. 1. Baked Re filament(Thermo Electro Co.) blank test for Ru isotope mass range(m/z).

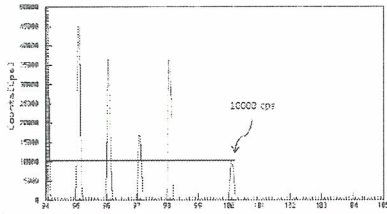


Fig. 2. Baked Re filament(ATES) blank test for Ru isotope mass range(m/z).

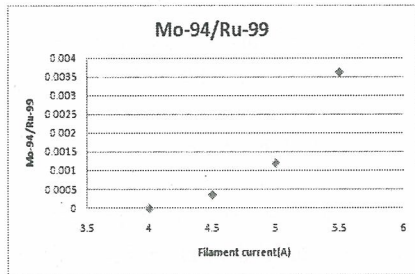


Fig. 3. Comparison of ratio(⁹⁴Mo/⁹⁹Ru) depend on filament temperature.

Table 1. Ru isotope measurement and correction with ⁹⁴Mo/⁹⁹Ru

| Ru-Isotopes | Ref. V. | TIMS | |
|-------------|---------|---------|----------|
| | | Mea. V. | Corr. V. |
| 96 | 0.434 | 0.610 | 0.427 |
| 98 | 0.148 | 0.409 | 0.145 |
| 99 | 1.000 | 1.000 | - |
| 100 | 0.992 | 1.098 | 0.992 |
| 101 | 1.339 | 1.349 | - |
| 102 | 2.488 | 2.478 | - |
| 104 | 1.472 | 1.475 | - |

Mo에 의한 동중원소 영향을 ⁹⁴Mo/⁹⁹Ru 비를 측정하여 Fig. 3에 보였으며 온도를 높일수록 Mo 영향이 크게 나타났다. 따라서 할 수 있는 한 낮은 온도에서 측정하는 것이 필라멘트로부터 오는 Mo 영향을 적게 받음을 알 수 있다. 또한 Ru 동위원소 비 측정에서 double filament 보다 single filament를 사용하는 것이 더 안정적 이온이 얻어졌으며 Mo로부터 오는 불순물 영향도 작음을 알 수 있었다. Table 1.에 Mo 불순물영향을 받은 측정값과 ⁹⁴Mo/⁹⁹Ru를 측정하여 보정한 값을 나타내었다.

4. 참고문헌

- [1] K. Gunji, Z. Yoshida, T. Adachi, T. Komori, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters* 118(3), 225-233(1987).
- [2] 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).
- [3] Min Huang, Akimasa Masuda, *Anal. Chem.*, 69, 1135-1139(1997).
- [4] Min Huang, Yongzhong Liu, and Akimasa Masuda, *Anal. Chem.*, 68, 41-844(1996).
- [5] W. Smullek, R. K. Al-Dabbagh, K. Goroccek, M. Borkowski, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*,121(2) , 385-393(1988).
- [6] Petra Krystek, Klaus G. Heumann, *Fresenius J Anal. Chem.*, 364, 87-90(1999).