

열 이온화 질량분석기를 이용한 Ru 동위원소 측정 및 동중원소 영향 보정

전영신* · 김정석 · 한선호 · 송규석

한국원자력연구원

(2010. 8. 5. 접수, 2010. 9. 10. 승인)

The isobaric effect correction and measurement of the Ru isotopes by thermal ionization mass spectrometry

Young-Shin Jeon*, Jung-Suk Kim, Sun-Ho Han and Kyuseok Song

Korea Atomic Energy Research Institute, 150, Duckjin-dong, Yuseong-Gu, Daejeon, Korea

(Received August 5, 2010; Accepted September 10, 2010)

요 약: 열 이온화 질량분석을 이용한 루테늄(Ru) 동위원소 비 측정은 루테늄의 이온화 포텐셜이 높고 산화상태로 휘발이 일어나 시료가 쉽게 소모되어 안정된 이온피크를 얻기가 어렵다. 따라서 이온화 효율을 높이고 안정적 이온생성을 위한 실험과 질량분석에 사용되는 레늄(Re) 필라멘트에 함유된 불순물들에 의한 동중원소 영향을 검토하였다. 질량분석에서 double filament를 사용하는 것 보다는 single filament를 사용하는 것이 더 안정적 이온 피크를 얻을 수 있었을 뿐만 아니라 몰리브데넘(Mo)에 의한 동중원소 영향도 작았다. 또한 필라멘트 온도를 필요이상 높이면 높일수록 동중원소 영향이 큼을 알 수 있었다. 즉, 불순물로 함유된 Mo이 Ru 동위원소 비 측정에 큰 영향을 주었다. 특히 필라멘트 온도를 일정한 시간 간격을 두고 서서히 올려주는 것이 안정된 피크를 얻는데 매우 중요함을 알 수 있었다. Mo으로부터 오는 동중원소 영향을 $^{94}\text{Mo}/^{99}\text{Ru}$ 비를 측정하여 보정함으로써 Ru 동위원소 비를 정확히 측정할 수 있었다.

Abstract: It is very difficult to get stable ion peak intensity of ruthenium by thermal ionization mass spectrometry because of its high ionization potential and high volatility of its oxides which causes to lose much of ruthenium ions, so the intensity of the signal decrease quickly. Accordingly, a study was performed in order to increase the ionization efficiency and to prevent sample losses due to volatilization and to check with isobaric effect by impurities in filament for the measurement of ruthenium isotopes. Both single filament and double filament were tested. The former was proved to be more efficient for the stable and strong intensity of signal and revealed less isobaric effect from the molybdenum (Mo) as a filament impurity. Also, when the temperature of filament increased too high, the isobaric effect from Mo greatly appeared. That is, Mo impurity from filament gave a serious effect for measuring the ruthenium isotopes. It was proved to be of importance that filament current should be slowly increased with time interval. Finally, ruthenium isotopes were accurately measured by correction with measuring $^{94}\text{Mo}/^{99}\text{Ru}$.

Key words: ruthenium, isotope measurement, thermal ionization mass spectrometry, isobaric effect correction.

★ Corresponding author

Phone : +82-(0)42-868-8902 Fax : +82-(0)42-868-8148

E-mail : ysjeon@kaeri.re.kr

www.kci.go.kr

1. 서 론

루테튬(Ru)은 주기율표 제8족에 속하는 백금족원소의 하나로 1828년 러시아의 화학자 G. W. 오산이 처음 발견하였으며 러시아를 의미하는 라틴어인 'Ruthenia'를 따서 명명하였다. Ru은 백금족원소 중에서도 가장 희귀하며 지구상에 아주 소량 존재한다. 공기 또는 산소 속에서 가열하면 산화하여 청색 산화루테튬, RuO_2 가 되고, 일부는 RuO_4 로서 휘발하며 산에는 극히 안정하여 왕수에도 녹지 않는다.

사용후핵연료 중 U, Pu, Kr, Xe, Cs, Nd, Eu와 같이 Ru 역시 동위원소 비를 측정함으로써 핵연료의 조사 거동을 알아내는 지표원소들 중 하나이다. W. Smulek 등¹⁻⁵은 사용후핵연료로부터 분리한 Zr과 Ru의 동위원소를 측정하여 총 연소도에 플루토늄(Pu)이 기여한 정도를 알아내는 연구를 수행하였다. Ru은 핵연료 핵분열 생성물(fission product) 중⁶ 하나로 몰리브데늄(Mo)과 백금족원소들과 같이 질산에 잘 녹지 않아 핵연료 용해과정에서 잔유물로 남게 되어 필터 및 추출과정에 심각한 문제를 일으킨다. 따라서 사용후핵연료에서 이들의 기본적 거동을 알기위하여 이의 분석은 필수이며 용액 중 복잡한 화학적 형태나 혹은 산화상태로 인하여 작은 양의 Ru을 분리정량 하는 일은 쉽지 않다. 또한 원자로에 문제가 발생하게 되면 가스형태의 RuO_4 가 공기 중에 방출되어 주위환경에 침적되는 등의 위험이 있으며 이를 탐지하여 방사성물질오염 척도인자로 이용되기 때문에 이들의 정량기술개발이 중요하다. 분광법⁷(Spectrometry)에 의한 Ru의 정량은 분리과정 등에서 정확한 산화상태를 조절해 주어야 하는 까다로움이 있으며 검출한계는 5 $\mu\text{g/mL}$ 이다. 또한 Atomic Absorption Spectrometry(AAS)⁸⁻⁹나 Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry(ICP-AES)¹⁰의 경우 상대적으로 높은 감도를 갖기 때문에 검출한계, 0.005~1 $\mu\text{g/mL}$ 을 갖는 장점은 있지만 고방사성물질을 불꽃에 분무해 정량하는 방법은 비교적 많은 량의 시료를 사용해야 하는 문제점이 있다. 따라서 일본의 K. Guji 등¹¹은 사용후핵연료 중 Ru 정량방법으로 동위원소희석질량분석법(Isotope Dilution Mass Spectrometry: IDMS)을 연구하였으며, 텅스텐필라멘트와 ^{96}Ru 을 spike로 사용하여 열 이온화 질량분석기로 검출한계 0.005 $\mu\text{g/mL}$ 를 갖는 정량을 하였다. 또한 Min Huang 등은 Ru은 높은 이온화 포텐셜을 갖기 때문에 이온화가 잘 일어나지 않음을 알고, 음이온을 측정하는 방법을 시도하였으며 RuO_3^- 형태의 Negative

Thermal Ionization Mass Spectrometry (NTI-MS) 방법으로 Re 과 Pt 필라멘트를 이용하였으며 환원제로 HI를 필라멘트에 올려 Ru 이온형성을 증가시키고 안정적 이온을 얻는 연구를 수행하였다. NTI-MS 방법으로 얻어진 결과로부터 $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ 를 보정하였으며 정밀도를 기존의 방법들 보다 10배 향상된 결과를 발표하였다. Devillers¹² 등과 Poths¹³ 등은 실리카겔과 boric acid, $Ba(NO_3)_2$ 를 사용하여 Ru의 이온생성을 증진시켰으나 실리카겔로부터 동중원소 영향이 있음을 알았다.

본 실험은 사용후핵연료로부터 Ru을 정량하기 위하여 열 이온화 질량분석기(TIMMS)와 ^{99}Ru spike를 사용하여 동위원소 희석법으로 Ru 정량실험을 하기위한 예비실험으로 Ru 동위원소 비를 정확히 측정하는 방법을 실험하였다. Ru의 경우 이온화 포텐셜(7.364 eV)이 높고 산소와 결합하게 되면 산화상태(RuO_4)로 되어 휘발이 일어나기 때문에 시료가 급격히 소모되어 안정된 이온피크를 얻기 어렵다. 따라서 필라멘트 일함수(work function)을 고려한 이온화 증진제 들과 산화상태로 쉽게 휘발되어 시료가 소실되는 것을 방지하기 위한 환원제 영향 및 필라멘트 온도 조절에 따른 이온생성 등의 질량분석 특성에 대해 실험하였다. 필라멘트 불순물, Mo로부터 야기되는 동중원소 영향을 $^{94}\text{Mo}/^{99}\text{Ru}$ 비를 측정하여 이로부터 ^{96}Ru , ^{98}Ru , ^{100}Ru 측정값을 보정하는 방법으로 질량분석실험을 수행하였다.

2. 실험

2.1. 기기 및 시약

실험에 사용한 기기는 Finnigan MAT 262, 열 이온화 질량분석기로 9개의 Faraday cup(variable multi-collector)를 갖는 기기로 질량에 따른 동위원소를 동시에 측정할 수 있기 때문에 하나의 콜렉터를 갖는 시스템에 비해 시간에 따른 변화에 영향을 받지 않고 측정할 수 있는 장점이 있다. 10 kV로 발전시킨 이온을 정전렌즈를 이용하여 추출 조정할 수 있으며, 23 cm 반경을 갖는 90° 마그네틱 섹터를 갖는데 이는 기하학적으로 비대칭적 확장된 개념으로 64 cm 반경을 갖는 기기와 같은 성능을 갖는다. Multi-collector는 각각 10^{11} Ω 으로 Faraday cup에 연동되어 있으며 Secondary Electron Multiplier (SEM) 검출기가 장착되어 있다. 본 실험에서 필라멘트 바탕값 측정에는 SEM을 사용하였지만 동위원소 비 측정에는 사용하지 않았다. 질량 분해능(m/m)은 500 이상(10% valley definition) 이고, 우

라늄 주 동위원소 ^{238}U 피크의 꼬리 끝기가 인접한 ^{237}U 에 영향을 미치는 정도(abundance sensitivity)는 1.0×10^{-6} 이다.

본 실험에 사용된 Ru 표준용액은 Aldrich Co., Ru 표준용액, 1000 $\mu\text{g/mL}$ 을 사용하였으며 설탕(sucrose: Merck Co.)용액은 설탕 1 g을 50 mL 물에 용해하여 사용하였다. HI 및 $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ 등은 ICP-AES 표준용액을 사용하였다. 이온화 효율을 높이기 위해 사용된 실리콘카겔은 레이저용발(LASER ablation) 목적으로 사용하는 것을 사용하였다. ^{99}Ru (spike-metal)은 미국 Cambridge Isotope Laboratory로부터 구매하였으며 알칼리 용융법으로 용해시켰다.

2.2. 필라멘트 바탕값 시험 및 동중원소 영향

Ru 동위원소 비 측정에서 동중원소 영향을 제거하기 위하여 고진공에서 5.5 A 전류를 50분간 흘려주어 (baking) 불순물을 제거하였다. Baking한 것과 baking하지 않은 블랭크 레늄필라멘트를 이용하여 m/z, 84~104까지 질량스캔을 통하여 바탕 값 영향을 알아 보았다. 또한 홑 필라멘트(single filament)와 이중 필라멘트(double filament)를 사용하여 Ru 이온화 효율 및 동중원소 영향을 알아보았다.

2.3. 이온화 효율증대

환원제로 설탕용액 및 HI를 Ru 시료와 함께 Re 필라멘트에 올려 질량분석을 하였으며 필라멘트 전류세기를 올려줌에 따라 변화되는 ^{101}Ru 피크 크기를 기준으로 이온생성 특성을 실험하였다. 필라멘트 전류세기를 일정 시간간격(time interval)으로 올려줌에 따른 안정된 피크를 얻는 실험을 수행하였다.

2.4. 동중원소 보정

불순물로 필라멘트에 들어있는 Mo 동중원소 영향을 보정하기 위하여 Ru 동위원소가 없는 ^{94}Mo 와 Mo 동위원소에 없는 ^{99}Ru 의 비를 측정하였으며 시간과 필라멘트 온도에 따른 이들의 비 변화를 실험하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 필라멘트 바탕값 시험 및 동중원소 영향

진공 가열에 의한 불순물 제거과정을 거치지 않은 Re 필라멘트로부터 Ru 동위원소 측정에 영향을 미칠 수 있는 동중원소 영향을 알아보기 위하여 Ru 동위원소 질량영역(m/z: 84~104)에 대하여 mass 스캔 결과

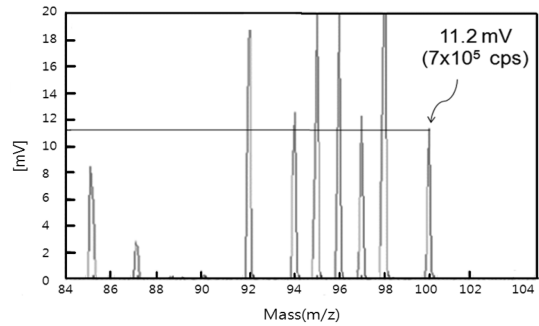


Fig. 1. None baked Re filament blank test for Ru isotope mass range (m/z).

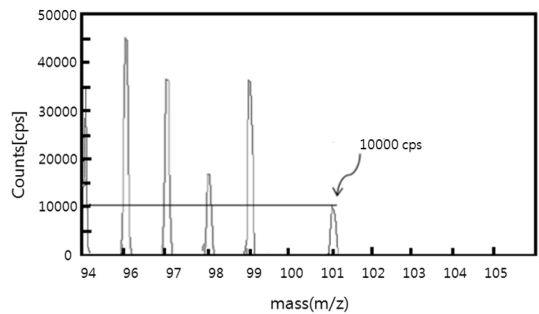


Fig. 2. Baked Re filament (ATES Co.) blank test for Ru isotope mass range (m/z).

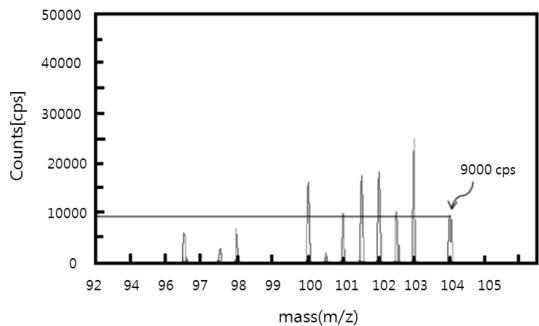


Fig. 3. Baked Re filament (Thermo Electric Co.) blank test for Ru isotope mass range (m/z).

를 Fig. 1에 보였다. 불순물로 ^{85}Rb , ^{87}Rb 과 ^{92}Mo , ^{94}Mo , ^{95}Mo , ^{96}Mo , ^{97}Mo , ^{98}Mo , ^{100}Mo 질량(m/z)들이 작지 않게 나오는 것을 볼 수 있으며 이는 ^{96}Ru , ^{98}Ru , ^{100}Ru 동위원소 비 측정에 심각한 동중원소 영향을 미치게 된다. 또한 루비듐(Rb)은 $^{85}\text{Rb}^{16}\text{O}^+$ (m/z=101)으로 Ru-101에 영향을 미친다. 따라서 필라멘트에 불순물로 들어있는 Mo의 영향을 줄이기 위하여 사용하는 Re 필라멘트를 별도의 고진공 가열시스템에서 필라멘트 전류를 5.5 A로 하여 50분간 가열한 후 바탕값 시

Table 1. Isobaric effect elements and isotopic composition (%) for Ru isotope measurement

m/z	96	98	99	100	101	102	104
Zr	2.8						
Mo	16.7	24.1		9.63			
Ru	5.52	1.88	12.7	12.6	17.0	31.6	18.7

험결과 가열하지 않은 것에 비하여 불순물 피크가 많이 감소하기는 하였지만 Fig. 2 및 Fig. 3에 보인 것처럼 Mo 불순물을 완전히 제거할 수 없었다. Fig. 2는 ATES(프랑스)에서 만든 Re 필라멘트이고 Fig. 3은 Thermo Electric Co.에서 만든 필라멘트로서 m/z=100 피크를 기준으로 볼 때 Thermo Electric Co.에서 만든 필라멘트에서 ATES 필라멘트보다는 Mo 불순물이 조금 작게 나왔지만 실험조건을 감안할 때 별 차이가 없음을 알 수 있었다.

참고로 Table 1에 Ru 동위원소 비 측정에 영향을 미칠 수 있는 동중원소들과 동위원소 조성비(isotopic composition %)를 나타내었다.

Baking을 시행한 필라멘트에 대해 SEM 검출기를 사용하여 Ru 질량(m/z) 영역을 스캔 하였으며, 이때 나타난 피크 중 ^{100}Ru 을 기준으로 Ru 동위원소 비 측정에 미치는 영향을 대략적으로 계산하였다. ATES 제품의 경우 10000 CPS가 얻어졌으며 이는 0.21 mV (1 mV = 62500 CPS)가 된다. 실제 자연 동위원소 비를 갖는 Ru 1000 ug/mL 표준용액 2~3 μg 측정에서 나타나는 ^{101}Ru 피크크기를 약 50 mV로 볼 때 ^{100}Ru 은 37 mV ($^{100}\text{Ru}/^{101}\text{Ru}$, 0.74)이므로 약 0.4%(0.21 mV/50 mV \times 0.74 \times 100) 정도의 오차를 주는 것으로 나타났다. Ru 동위원소 비 측정에 필라멘트에 들어있는 불순물 Mo에 의한 영향은 ^{96}Ru , ^{98}Ru , ^{100}Ru 에 각각 3.5%, 10.5% 그리고 0.4% 정도 임을 알 수 있었다.

3.2. Ru 동위원소 비 측정

열 이온화 질량분석에 의한 Ru 동위원소 비 측정에 Ru은 높은 이온화 포텐셜 에너지(7.37 eV)를 갖기 때문에 이온화를 위해 고온으로 올려야 되는데, 이 과정에서 산소와 결합하여 RuO_4 형태로 쉽게 휘발되어 없어지거나 필라멘트에 불순물로 함유된 Mo(7.10 eV) 등에 의한 동중원소 영향을 크게 받기 때문에 정확하고 안정된 값을 얻기가 쉽지 않다. ICP-AES, Ru 표준용액(1000 $\mu\text{g}/\text{mL}$), 3 μL (3 μg -Ru)를 Re 필라멘트에 올려 질량분석 하였다. 처음에 Ru 동위원소의 작은 피크가 나타나기는 했지만 온도를 올림에 따라 점차 피크가 사라져 측정할 수 없었다. 따라서 이온화가 쉽게 일어나도록 이온화 증진제로 실리카겔 boric acid, $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ 를 Ru과 함께 필라멘트에 올려 질량분석을 하였다. 이 역시 초기에 작은 피크를 보이다 빠르게 사라져 동위원소 비를 측정할 수 없었다. 루테튬산화 상태는 0-8가 까지 존재하며 원자가가 높을수록 쉽게 휘발이 일어난다. 즉 RuO_4 경우 끓는 온도(b.p.)가 108 $^\circ\text{C}$ 로 이온화가 일어나기 전에 휘발되어 피크가 나타나지는 않을 수 있다. 따라서 위의 방법에 설탕(sucrose) 및 HI 환원제 용액을 점적하여 질량분석한 결과 Ru 이온피크를 측정할 수 있었다. 그러나 이 역시 만족할 만한 안정적 이 충분한 피크를 얻을 수 없었을 뿐만 아니라 필라멘트 불순물로부터 오는 동중원소 영향으로 정확한 값을 얻을 수 없었으며 이의 결과를 Table 2에 동위원소 비로 보였으며 기준값(ref. value)과의 차를 퍼센트로 나타내었다. Ru (m/z)-96, 98, 100에서 기준 값과 많은 차이가 있음을 알 수 있다. 필라멘트에 존재하는 불순물, Mo에 의한 동중원소 영향이 크음을 알 수 있으며, 필라멘트를 진공 가열하여 불순물을 제거해도 일정부분 Mo에 의한 영향이 없어지지 않음을 알 수 있었다. 비 진공가열 필라멘트

Table 2. Measurement of Ru isotope with none baked filament and baked filament

Ru-Isotopes	Ref. V.* (Isotope Ratio)	None Baked Filament.		Baked Filament.	
		Isotope Ratio	(Mea.V.+Ref.V.) 100/Ref. V.	Isotope Ratio	(Mea.V.+Ref.V.) 100/Ref. V.
96	0.1748	1.827	945	0.247	41.2
98	0.0589	2.321	3840	0.063	6.8
99	0.4036	0.452	12	0.405	0.4
100	0.3991	1.408	253	0.411	2.9
101	0.5401	0.658	22	0.541	0.1
102	1.0000	1	0	1.000	0
104	0.5911	0.517	-13	0.590	-0.1

*reference value. + measured value.

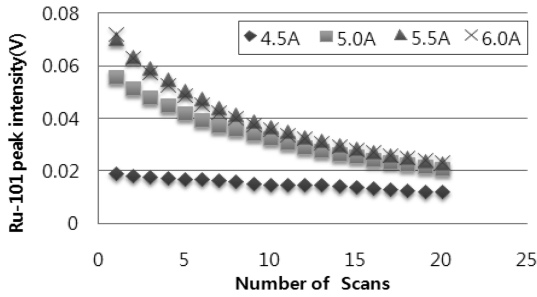


Fig. 4. Stability of Ru-101 ion peak depend on filament temperature (current, A).

를 사용한 측정에서 ^{98}Ru 이 제일 큰 편차를 보인 이유로 ^{98}Ru 은 Ru 중 동위원소가 제일 낮은 1.9% 이고, ^{98}Mo 은 Mo 중 제일 큰 24.1%를 갖기 때문에 상대적으로 영향을 크게 받기 때문이다. 이온화가 쉽게 일어나게 하기 위하여 사용하는 실리카겔, $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ 들과 산화 상태를 막기 위한 환원제를 필라멘트에 올려 바탕값 질량을 스캔한 결과 실리카겔에 들어있는 $^{40}\text{Ca}^{28}\text{Si}^{16}\text{O}_2$ ($m/z=100$), $^{88}\text{Sr}^{16}\text{O}_2$ ($m/z=104$)이 ^{100}Ru , ^{104}Ru 에 동중원소 영향을 미칠 수 있는데, 본 실험에서 사용한 실리카겔은 레이저 용발(LASER ablation) 목적으로 사용되는 고순도를 사용하였기 때문에 이의 영향은 보이지 않았다.

3.3. 필라멘트 전류세기에 따른 이온피크 안정성

필라멘트 전류세기에 따라 이온피크 안정화 경향을 ^{101}Ru 피크기준으로 측정하여 Fig. 4에 보였다. 4.5 A에서는 비교적 안정된 경향을 보였지만 전체적으로 피크크기(peak intensity)가 너무 낮았다. 또한 5.0, 5.5와 6.0 A에서 비슷한 피크크기를 보였으며 5.0 A에서 측정하는 것이 Mo 영향을 작게 받기 때문에 5.0 A가 적당한 것으로 나타났다.

3.4. 홀 필라멘트와 이중 필라멘트에 따른 이온 피크 안정성 비교

Fig. 5에서 볼 수 있듯이 Ru 동위원소 비 측정에서 이중 필라멘트 보다 홀 필라멘트를 사용하는 것이 더 안정적이며 많은 이온이 얻어졌다. 또한 한 개의 필라멘트보다 2개로부터 오는 동중원소 영향이 작기 때문에 홀 필라멘트를 사용하는 것이 바람직함을 알 수 있다. Re 필라멘트에 차례로 실리카겔, barium nitrate, 시료, HI를 순차적으로 점적하고 필라멘트 전류를 천천히 0.5 A/min, 0.2 A/min, 0.1 A/min 간격으로 5.0 A까지 올려 각각의 이온피크 안정화 경향을 ^{101}Ru 피

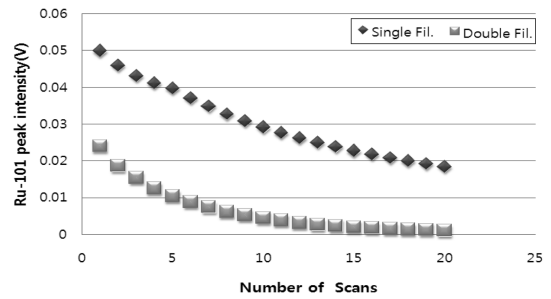


Fig. 5. Stability of Ru-101 ion peak depend on single and double filament.

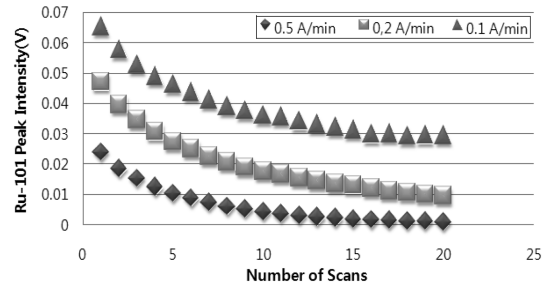


Fig. 6. Stability of Ru-101 ion peak depend on filament current increasing time interval.

크기 기준으로 측정하여 Fig. 6에 보였다. 매우 천천히 필라멘트 온도를 올려준 0.1 A/min 측정에서 제일 크고 안정된 이온피크를 보였다.

홀 필라멘트를 사용하여 필라멘트 전류세기에 따라 동위원소 비 측정에 어떤 현상이 일어나는지 보기 위하여 많은 시료 량을 필라멘트에 올려 동위원소 비를 측정하고 가해준 전류세기에 따라 측정된 값(isotope ratio)을 아래 Table 3에 보였다. Baking을 통해 불순물을 제거했다고는 하지만 m/z , ^{96}Ru , ^{98}Ru , ^{100}Ru 에서 Mo의 영향으로 인한 정의오차(positive error)를 보임을 알 수 있다. 또한 ^{104}Ru 에서 약간 높게 나온 이유는 $^{88}\text{Sr}^{16}\text{O}$ ($m/z=104$)에 의한 영향으로 추정된다.

3.5. Mo 동중원소영향 보정

필라멘트를 baking하여 불순물을 제거하여도 일정 부분 Mo에 의한 동중원소 영향을 완전히 배제시킬 수 없다. 따라서 이의 보정을 위해 Ru에 없는 m/z , ^{94}Ru 와 Mo에 없는 ^{99}Mo 비($^{94}\text{Mo}/^{99}\text{Ru}$)를 측정하여 Ru 동위원소 비로부터 Mo가 기여한 동위원소 비를 빼주는 보정을 하였으며 이 결과를 Table 4에 보였다. 또한 $^{94}\text{Mo}/^{99}\text{Ru}$ 동위원소 비를 필라멘트에 가해준 전류에 따라 측정하였으며 이 결과를 아래 Fig. 7에 보

Table 3. Ru isotope measurements for the various filament current

Ru-Isotopes	Ref. V.* (ratio)	Measured Value(ratio)			
		4.0 A	4.5 A	5.0 A	5.5 A
96	0.3236	0.3287	0.3290	0.3293	0.3305
98	0.1091	0.1095	0.1098	0.1099	0.1105
99	0.7473	0.7373	0.7367	0.7385	0.7378
100	0.7389	0.7394	0.7397	0.7399	0.7405
101	1	1	1	1	1
102	1.8515	1.8585	1.8602	1.8593	1.8599
104	1.0944	1.1057	1.1077	1.1077	1.1089

Table 4. Ru isotope measurement and correction with $^{94}\text{Mo}/^{99}\text{Ru}$

Ru-Isotopes	Ref. V.* (ratio)	TIMS	
		Mea. V.† (ratio)	Corr. V.‡ (ratio)
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	-

*reference value. †measured value. ‡correction value

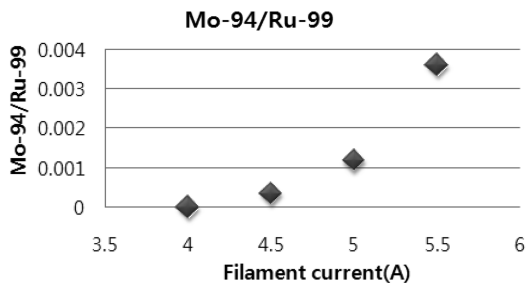


Fig. 7. Comparison of ratio ($^{94}\text{Mo}/^{99}\text{Ru}$) depend on filament current (temperature).

였다. 가해진 전류세기가 클수록, 즉 필라멘트 온도를 높일수록 Mo 동중원소 영향이 큼을 알 수 있었다.

4. 결 론

Ru 동위원소 비 측정에서 Re 필라멘트에 들어있는 불순물 Mo에 의한 동중원소 영향으로 ^{96}Ru , ^{98}Ru , ^{100}Ru 에 각각 3.5%, 10.5% 그리고 0.4% 정도 정의오차를 미치는 것을 알 수 있었다. Ru의 이온화 에너지

를 낮추기 위하여 실리카겔과 boric acid, $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ 를 사용하였으며, 산화상태로 휘발에 의한 시료의 소모를 방지하기 위하여 설탕(sucrose) 및 HI 환원용액을 첨가하여 질량 분석한 결과 Ru의 안정적 이온피크를 얻을 수 있었다. 필라멘트 전류세기를 높이면 큰 Ru 피크를 얻을 수 있지만 온도가 높을수록 필라멘트에 불순물로 함유된 Mo 동중원소 영향 역시 컸다. 따라서 5.0 A 전류세기에서 측정하는 것이 적당하였으며, 이중필라멘트 보다 홑 필라멘트를 사용하는 것이 더 안정적이며 큰 Ru 이온이 얻어졌고 Mo로부터 오는 동중원소 영향도 작았다. 무엇보다 일정시간 간격을 두고 필라멘트 온도를 서서히 올려주는 것이 안정적 큰 이온피크를 얻는데 매우 중요하였다. 필라멘트 불순물로부터 오는 Mo에 의한 동중원소 영향을 완전히 배제시킬 수 없었으며 이의 보정을 위해 Ru에 없는 m/z, 94와 Mo에 없는 m/z, 99 비($^{94}\text{Mo}/^{99}\text{Ru}$)를 측정하여 Ru 동위원소 비를 측정 한 값으로부터 Mo가 기여한 동위원소 비를 빼주는 방법으로 Ru 동위원소 비를 정확히 측정할 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 대한민국 교육과학기술부 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. F. L. Lisman, W. J. Maeck and J. E. Rein, *Nucl. Sci. Eng.*, **42**, 215(1970).
2. L. Koch, *Analytical Chemistry of Nuclear Fuels, Proceedings of a Panel*, IAEA, Vienna, 111(1972).
3. A. Hermann and H. Stephan, *Radiochem. Radioanal. Lett.*, **28**, 399(1977).

4. W. Smulek et al., *Radiochem. Radioanal. Lett.*, **50**, 299(1980).
5. W. Smulek, R. K. Al-Dabbagh, K. Goroccek and M. Borkowski, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **121**(2), 385-393(1988).
6. I. L. Jenkins and P. E. Brown, *Radiochim. Acta*, **36**, 25(1984).
7. F. E. Beamish and J. C. Vanloon, 'Recent Advances in the Analytical Chemistry of the Noble Metals', Pergamon Press, Oxford, p. 375, 1978.
8. M. M. M El-Defrawy, J. Posta and M. T. Beck, *Anal. Chim. Acta*, **102**, 185(1978).
9. K. Motogima, K. Tatenuma, Z. Yoshida, H. Takei and E. Akatsu, *Anal. Chim. Acta*, **183**, 217(1986).
10. R. B. Wemyss and R. H. Scott, *Anal. Chem.*, **50**, 1964(1978).
11. K. Gungi, Z. Yoshida, T. Adachi and T. Komori, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Lett.*, **118**(3), 225-233(1987).
12. Divillers, C., Lecomte, T., Lucas, M. and Hagemann, R., *Adv. Mass Spectro.*, **7A**, 553-564(1978).
13. Pothas, H., Schmitt-Strecker, S. and Begemann, F., *Geochem cosmochim., Acta*, **51**, 1143-1149(1987).