

## 열이온화 질량분석에 의한 극미량 우라늄 정량에 미치는 바탕값 영향

전영신\* · 박용준 · 조기수 · 한선호 · 송규석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150  
(2008. 10. 6. 접수, 2008. 11. 5. 승인)

### Background effect on the measurement of trace amount of uranium by thermal ionization mass spectrometry

Young-Shin Jeon\*, Yong-Joon Park, Kih-Soo Joe, Sun-Ho Han and Kyu-Seok Song

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

(Received October 6, 2008, Accepted November 5, 2008)

**요 약:** 극미량 우라늄시료에 대한 열이온화 질량분석기를 이용하여 우라늄 동위원소 비 측정 및 정량과 관련하여 고순도(zone refined) 레늄필라멘트와 일반 레늄필라멘트로부터 오는 바탕값(background) 특성을 비교하였다. 두 종류 필라멘트에서 가벼운 알칼리금속원소들의 클러스터(cluster)인 ( $^{39}\text{K}_6$ )<sup>+</sup>, ( $^{39}\text{K}_5 + ^{41}\text{K}$ )<sup>+</sup> 및 금속산화물( $\text{PbO}_2$ )로 추측되는 우라늄 동중원소영향(isobaric effect)을 확인하였다. 고순도 레늄필라멘트를  $<10^{-7}$  torr에서 약 2000°C로 1.5 시간 이상 degassing 함으로 불순물들을 완전히 제거할 수 있었으나 일반 레늄필라멘트의 경우 5시간 이상 degassing을 하여도 약 3 pg-U이 남아있었다. 일반 레늄필라멘트에 대한 불순물 제거(degassing) 실험결과 5 A, 30 분이 불순물제거의 최소조건이었다. U-233을 spike로 사용, 동위원소희석 질량분석법으로 일반 레늄필라멘트 중 불순물로 포함된 우라늄 양을 측정된 결과 degassing을 하지 않은 필라멘트에서는 0.31 ng-U이 측정되었고, degassing(5.5 A, 1 hr.)을 한 것은 약 3 pg-U 이 측정되었다. 즉, 일반필라멘트의 경우, degassing을 하더라도 1 ng-U 시료에 대하여 0.3% 오차를 근본적으로 갖는 것을 알 수 있었다. 따라서 환경급 극미량 우라늄시료 측정에는 고순도 필라멘트를 degassing하여 사용해야 함을 알 수 있었다. 우라늄 측정 시 필라멘트 전류를 5.5 A로 하였을 때보다 6.0 A로 했을 때 불순물 우라늄 양이 1.5 배 더 크게 나타났다. 따라서 필라멘트 전류를 5.5 A 이상 올리지 않는 것이 바탕값 영향이 작음을 알 수 있었다. 우라늄 표준물질(KRISS 표준물질/NIST U-005, 030)을 사용하여 우라늄 동위원소 함량을 측정된 후 인증 값과 비교한 결과 U-235 는 0.04%, U-234, U-236는 2% 이내에서 각각 일치하였다.

**Abstract:** An experiment was performed for zone refined Re-filament and normal (nonzone refined) Re-filament to reduce the background effect on the measurement of low level uranium samples. From both filaments, the signals which seemed to come from a cluster of light alkali elements, ( $^{39}\text{K}_6$ )<sup>+</sup>, ( $^{39}\text{K}_5 + ^{41}\text{K}$ )<sup>+</sup> and  $\text{PbO}_2$  were identified as the isobaric effect of the uranium isotopes. The isobaric effect signal was completely disappeared

★ Corresponding author

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

E-mail : ysjeon@kaeri.re.kr

by heating the filament about 2000°C at  $< 10^{-7}$  torr of vacuum for more than 1.5 hour in zone refined Re-filaments, while that from the normal Re-filaments was not disappeared completely and was still remained as 3 pg. of uranium as the impurities after the degassing treatment was performed for more than 5 hours at the same condition of zone refined filaments. A threshold condition eliminating impurities were proved to be at 5 A and 30 minutes of degassing time. The uranium content as an impurity in rhenium filament was checked with a filament degassing treatment using the U-233 spike by isotope dilution mass spectrometry. A 0.31 ng of U was detected in rhenium filament without degassing, while only 3 pg of U was detected with baking treatment at a current of 5.5 A for 1 hr. Using normal Re-filaments for the ultra trace of uranium sample analysis had something problem because uranium remains to be 3 pg on the filament even though degassed for long hours. If the 1 ng uranium were measured, 0.3% error occurred basically. It was also conformed that ionization filament current was recommended not to be increased over 5.5 A to reduce the background. Finally, the contents of uranium isotopes in uranium standard materials (KRISS standard material and NIST standard materials, U-005 and U-030) were measured and compared with certified values. The differences between them showed 0.04% for U-235, 2% for U-234 and 2% for U-236, respectively.

**Key words :** Uranium isotope, thermal ionization mass spectrometer, background test, rhenium filament

## 1. 서 론

미신고 핵활동을 감지하기 위한 핵사찰 극미량 시료로부터 정확한 정보를 알아내기 위해서는 외부환경으로부터 오염되지 않도록 각별한 주의가 필요함은 물론 바탕값(background) 영향과 측정기기의 특성들을 고려해야 한다.<sup>1</sup> 자연존재비를 갖는 U-235, 0.72%와 비교하여 측정값이 이보다 작은 값(감손)이나 혹은 큰 값(농축)으로 나타난다는 것은 인위적 핵활동에 의한 결과이다. 따라서 시료가 가진 동위원소 비를 측정함으로써 일련의 핵 활동과정을 감지할 수 있게 된다. 특히 U-236은 중성자 포획에 의해 생성되기 때문에 이 동위원소의 존재는 원자로부터 나온 우라늄이라는 것을 알 수 있을 뿐만 아니라 연소이력 등을 알아낼 수 있다. 인위적 핵반응을 이용하는 산업에서 나타나는 U-236/U-238의 비가  $10^{-7} \sim 10^{-2}$  범위에 있게 된다.<sup>2</sup> Oklo reactor<sup>3</sup>와 우주선 등의 조사(irradiation)에 따른 것으로 자연 중에 U-236이 발견되는 경우가 있으며, 이의 검출을 위해서는 질량분석기의 성능이(abundance sensitivity)  $10^{-7} \sim 10^{-10}$  정도를 구분할 수 있는 기기여야 측정 가능할 정도로 미미한 량으로 일반적으로 무시된다.

자연계에서 긴 반감기를 갖는 우라늄 동위원소들로 U-234( $2.5 \times 10^5$  yr), U-235( $7 \times 10^8$  yr), 그리고 U-238( $4.5 \times 10^9$  yr) 3종류가 있으며 이들의 존재 비는 대략 각각 0.00055: 0.00725 : 1 이다.<sup>4,6</sup> 그러나 이와 같은 자연

존재 비를 갖지 않는 경우는 지질학적 요인에 의한 자연적으로 동위원소 분리가 일어나는 경우와 인위적 핵 반응물질에 의한 경우이다. 인위적 핵변환에 의한 동위원소비 변화를 정확히 측정하는 일은 미신고 핵 활동을 감지해 내는데 매우 중요하다. 주 시설에 대한 시료는 물론 주변 환경에 유출되었을 수 있는 극미량 시료로부터 정보를 얻어야 하는 경우도 있다. 따라서 극미량 시료에 대한 질량분석은 바탕 값으로부터 오는 영향 등을 포함, 주위에 흔히 존재하는 우라늄 오염에 각별한 주의가 필요하다. 바탕값에 영향을 미칠 수 있는 요인으로 실험기구나 시약으로부터 오는 영향을 조심해야 하며, 특히 질량분석에 사용되는 레늄 필라멘트에 불순물로 들어있는 우라늄은 측정결과에 직접 영향을 미칠 수 있다. 현재 환경시료에 대한 국제적 측정가능 최소 우라늄 및 플루토늄 량은 각각  $10^{-9}$  g과  $10^{-12} \sim 10^{-15}$  g으로 매우 작은 량이다.<sup>7-10</sup> 여기서 플루토늄은 주위환경으로부터 오염될 확률이 작은 반면 우라늄의 경우는 주위환경으로부터 오염될 가능성이 크다. 토양 중 우라늄 함량이  $\sim 6$  ug/g으로 알려져 있다. 원자 수 개념의 극미량 시료에 대한 질량분석을 위해서는 별도의 고진공, 고온에서 불순물을 제거할 수 있는 degassing system을 사용하게 된다. 본 실험에서 IAEA 핵안전보장조치와 관련한 환경급 시료에 대한 우라늄 동위원소 비 측정 및 정량과 관련하여 일련의 바탕값 영향을 줄일 수 있는 방법에 대한 기초실험을 하였으며, 고순도 필라멘트와 일반 필

라멘트의 차이를 알아보고 이를 바탕으로 우라늄 동위원소 표준물을 이용하여 측정값의 신뢰도를 검정하고자 하였다.

## 2. 실험

### 2.1. 질량분석

우라늄 동위원소 표준물(NIST,  $U_3O_8$ , powder)을 각각 1:1 초순도 질산용액으로 용해시키고, 이를 건조한 후 1 M 질산용액으로 재 용해시켜 1 mg-U/mL 용액을 만들었으며 이를 필요한 농도로 희석하여 사용하였다.

실험에 사용한 질량분석기는 Finnigan MAT 262 TIMS (Thermal Ionization Mass Spectrometer)이었으며, multi-collector Faraday Cup과 SEM (secondary electron multiplier detector)이 있어, 작은 동위원소 비를 갖는 U-234 와 U-236은 SEM을 사용하고, 비교적 큰 동위원소 비를 갖는 U-235 와 U-238은 Faraday cup을 사용하여 동시에 측정하였다. 두 종류의 검출기 사이에 얻어지는 측정 차이를 고려한 보정값(conversion factor)을 측정값에 적용하였다. 기기의 자장과 질량관련 검정곡선은  $m/z$ 를 알고 있는 6개의 원소, Na-23, K-39, Sr-88, Nd-142, Re-187, 그리고 U-238을 이용하여 수행하였다. 동위원소 비 측정에서 높은 정밀도와 정확도를 얻기 위해서는 질량분석을 하기 전 시료를 화학적으로 순수하게 분리 정제하여 불순물에 의한 동위원소 영향이 없도록 해야 한다. 그러나 본 실험에 사용된 동위원소 표준물 등의 기초실험에 사용된 우라늄 시료들은 순수한 것으로 별도 화학분리를 수행하지 않고 용해 후 희석하여 사용하였다.<sup>11,12</sup>

### 2.2. Background 측정 및 불순물제거

질량분석에 사용되는 레늄필라멘트는 일반필라멘트와 고순도<sup>13</sup> 필라멘트로 구분되어 사용한다. 본 실험은 일반 레늄필라멘트와 고순도 레늄필라멘트를 사용하여 우라늄 동위원소 비 측정조건에서 시간에 따라 불순물 우라늄을 측정하였다. 고순도 레늄필라멘트에 존재하는 불순물을 제거하기 위한 별도의 장비(filament degassing system)를 사용하여 진공중 필라멘트에 흘러주는 전류(온도)와 시간에 따라 불순물이 제거되는 정도를 SEM 검출기를 이용하여 U-238 counts를 통하여 알아보았다. 시간을 30분으로 하고 필라멘트 전류를 높여가며 degassing 한 후 이를 우라늄 동위원소 비 측정조건(E.F. 1.5 A, I.F. 5.5 A)에서  $m/z=238$ 의

count수를 측정하여 온도에 따른 불순물제거 정도를 시험했다. 레늄필라멘트를 degassing한 것과 하지 않은 것으로 구분하여 SEM 검출기만을 사용하여 우라늄 동위원소 비를 peak jumping 방법으로 측정하였다. 이 실험에서 우라늄 피크가 매우 작기 때문에 기기 측정조건을 우라늄 피크 대신 레늄 필라멘트로부터 나오는 Re-187 피크를 이용하여 조절하였다.

불순물을 제거한 필라멘트와 그렇지 않은 필라멘트로부터 나오는 우라늄 양을 IDMS 방법으로 측정하였다. 필라멘트에 U-233 spike, IRMM-043a, 2.14 ng-U/uL 용액 1 uL를 점적하여 U-238/U-233 동위원소 비를 측정하였으며, 여기서 얻은 결과를 동위원소희석 질량분석법으로 우라늄 량을 구하였다.

### 2.3. 동위원소 표준물 검정

NIST의 동위원소 표준물(U-005, U-030), 각각 10 ng-U 및 한국표준과학연구원의 자연동위원소비를 갖는 우라늄 동위원소 표준물, 0.35 ng-U을 각각 레늄필라멘트에 올려 질량분석을 수행하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. 바탕값 특성 및 최소화

질량분석에서 사용되는 blank 레늄필라멘트에 대하여 우라늄 동위원소 비를 측정하는 조건에서,  $m/z=230$ 부터 239까지 초당 0.02 씩 증가시키면서 SEM 검출기를 이용한 질량스캐닝 결과 유령신호들이 확인되었으며 이를 Fig. 1에 보였다. 그림에서  $m/z=237$ 과  $m/z=239$ 는 어떠한 동위원소도 자연에 존재하지 않는 데도 불구하고 피크가 나타남을 볼 수 있다. 이들 불순물로 생성된 피크들은 약간 작은 질량 쪽, 즉 왼쪽으로 치우쳐져 나타나는 것을 볼 수 있다. 레늄 필라멘트를 사용한 열이온화 질량분석에서  $Na^+$ ,  $K^+$ ,  $Re^+$  등의 이온들은 항상 존재하게 되며, 특히 U-234와 U-236에  $(^{239}K_0)^+$ ,  $(^{239}K_5 + ^{41}K)^+$ 이 각각 동위원소 영향을 주는 것으로 알려져 있다.<sup>14</sup> 또한 납산화물(lead dioxide)이 우라늄 및 플루토늄 동위원소에 동위원소로 영향을 줄 수 있으며 이를 Table 1에 보였다.

바탕값 불순물 우라늄에 대한 동위원소 비 측정결과를 Table 2에 보였다. 여기서 234/238, 235/238 및 236/238 우라늄동위원소 측정값이 자연존재비와 달리 높게 나왔으며, baking을 시행한 필라멘트에서 보다 하지 않은 쪽이 더 높게 측정되었다. 이는 불순물에 의한 동위원소 영향으로 볼 수 있다.

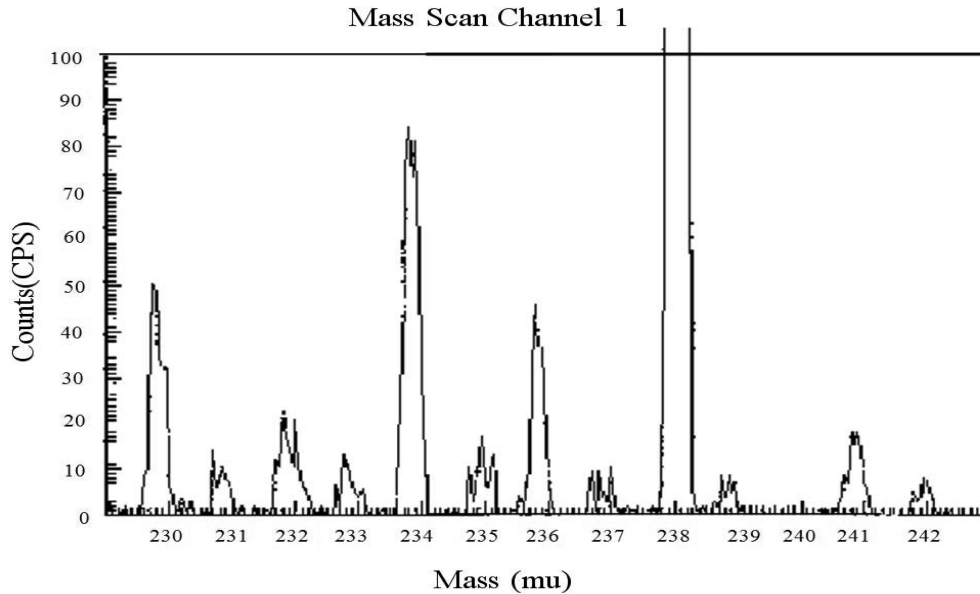


Fig. 1. Result of mass scanning for the blank Re-filaments.

Table 1. Effect of lead dioxide on the measurement of uranium and plutonium isotopes

Poly atomic ions	Abundance %	Mass	Isotopes	Mass
$^{204}\text{Pb } ^{16}\text{O}_2$	1.4	235.9629	$^{236}\text{U}$	236.0456
$^{206}\text{Pb } ^{16}\text{O}_2$	24.0	237.9643	$^{238}\text{U}$	238.0508
$^{207}\text{Pb } ^{16}\text{O}_2$	22.0	238.9657	$^{239}\text{Pu}$	239.0522
$^{208}\text{Pb } ^{16}\text{O}_2$	52.1	239.9665	$^{240}\text{Pu}$	240.0538

Filament degassing system을 이용하여 진공 중에서 3.5 A로 가열하여 30분 가열한 필라멘트, 10개를 이용하여 일반적 우라늄 동위원소 비를 측정하는 조건에서 우라늄,  $m/z=238$ 의 피크크기(CPS)를 측정한 결과의 평균은 280 CPS 이었으며, 이를 IDMS 방법으로

우라늄 량을 간접계산 하면 약  $33 \pm 4$  pg 정도이며 이 결과를 Table 3에 나타내었다. 이 결과로 볼 때 3.5 A에서 30분 만으로는 필라멘트 불순물이 충분히 제거되지 않음을 알 수 있었다.

따라서 시간을 30분으로 하고 필라멘트 전류를 높여가며 degassing을 한 후 이를 우라늄 동위원소 비 측정조건(E.F. 1.5 A, I.F. 5.5 A)에서  $m/z=238$ 의 count 수를 측정하여 온도에 따른 불순물제거 정도를 시험했으며 이의 결과를 Table 4에 보였다. 5A 와 5.5 A에서 30분 degassing을 한 결과는 40 CPS로 똑 같았다. 따라서 5A에서 30분 baking을 하면 제거될 불순물은 거의 제거됨을 알 수 있었다. 실험 중 5.5 A에서 무려 5시간을 baking을 시행한 필라멘트에서 U-238이 40 CPS가 나옴을 확인하였으며, 이는 IDMS 정량개념

Table 2. Result of U-isotope measurement for the rhenium filaments

Filament	None baked filament			Baked filament		
	234/238	235/238	236/238	234/238	235/238	236/238
1	0.03962	0.01739	0.00952	0.00249	0.01199	0.00133
2	0.05036	0.01280	0.02142	0.00416	0.00923	0.00124
3	0.01355	0.01163	0.01776	0.01032	0.01693	0.00058
4	0.01940	0.01716	0.01704	0.00216	0.01021	0.00786
5	0.05954	0.02482	0.02627	0.02142	0.01321	0.00818
6	0.04113	0.06229	0.01810	0.00352	0.01161	0.00738
Ave.	0.03726	0.02435	0.01835	0.00734	0.00977	0.00799

Table 3. Result of measurement of U-238, CPS for the Re-filament (3.5 A, 30 min. baked filaments), E.F.: 1.5 A, I.F.:5.5 A

Filament	U-238(CPS)
1	330
2	270
3	310
4	320
5	290
6	270
7	250
8	260
9	290
10	210
Average	280 ± 36(33 ± 4 pg-U)

Table 4. Change of uranium impurity by degassing filament current

Filament current, A	m/z=238의(CPS)
3.0	1100
3.5	270
4.0	130
4.5	70
5.0	40
5.5	40
5.5(5 hrs)	40

Table 5. Uranium content according to ionization filament current (3.5 A, 30 min. baked) E.F.: 1.5 A, I. F.: 5.5 A

I.F. Current	U-238(CPS)	
	6.0 A	5.5 A
1	400	250
2	420	270
3	410	250
4	320	260
5		290
6		210
Average.	388	255

으로 계산할 경우 우라늄 약 3 pg에 해당되는 양이다. 즉 이 필라멘트 구성자체가 이런 정도 우라늄 함량을 갖고 있기 때문에 더 이상 줄일 수 없음을 알 수 있었으며, 이 값은 1 ng-U 시료측정에 약 3% 정도의 바탕값 오차를 유발하는 것으로 계산되었다.

일반적으로 우라늄 동위원소 비를 측정할 때 I. F. 전류를 5.5 A로 측정하지만, 신호가 충분하지 않은 경

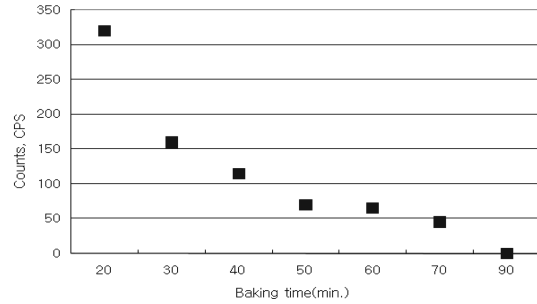


Fig. 2. Counts of U-238 as a function of peak intensity (counts) by degassing time for the zone refined Re-filament.

우 6.0 A에서 측정하는 경우도 있다. 그러나 앞에서 별도의 불순물 제거장치를 이용하여 3.5 A에서 30분간 불순물을 제거한 필라멘트를 이용하여 우라늄동위원소 비 측정 조건에서 바탕값 영향을 검토한 결과 I. F. 전류를 5.5 A로 하였을 때보다 6.0 A로 했을 때 1.5배 더 크게 나타났으며 이를 Table 5에 보였다. 따라서 가능한 한 I. F. current는 5.5 A 이상 올리지 않는 것이 바탕 값 영향을 줄일 수 있음을 알 수 있었다.

Filament degassing system을 이용하지 않고 직접 질량분석기의 이온화실에 고순도 레늄필라멘트들을 장착하여 넣고 <math>10^{-7}</math> torr에서 E. F. 와 I. F. 전류를 각각 1.5 A 와 5.5 A로 가열, 시간에 따라 우라늄 존재변화를 U-238 기준으로 하여 SEM 검출기로 측정된 결과들을 Fig. 2에 보였다.

5.5 A 진공 <math>10^{-7}</math> torr 에서 1.5 시간 이상 가열하고 난 후 질량스캐닝을 한 결과 대부분 유령피크들이 없어졌으며 이의 결과를 Fig. 3에 보였다. 이는 이온화실과 analyser tube 사이에 있는 밸브를 닫고 기기자체 바탕값을 측정된 것과 같은, <math><0.1</math> CPS로 바탕값 영향이 없어졌음을 보였다. 그러나 일반레늄필라멘트의 경우 칼륨 6-cluster로부터 오는 이온들의 nuclide mass를 계산해 보면 233.7822 (38.963708×6)가 되고, 우라늄 234의 nuclide mass는 234.040947이므로 이들을 고분해능 질량분석기로 측정한다면 구분하여 측정할 수 있을 것이다. 또한 Table 1에 보인 불순물로 들어 있는 납산화물(PbO<sub>2</sub>)의 경우도 우라늄과 질량차이를 구분할 수 있는 분해능을 갖는 기기라면 이들의 영향을 배제한 측정이 가능 할 것이다. Fig. 1에서 볼 수 있듯이 U-235 및 U-238은 정확히 m/z 위치에 피크가 나타나는 것을 볼 수 있는 반면에 U-234, U-236 그리고 플루토늄 동위원소 영역에서 나타나는 피크들은 정수의 위치에서 약간 낮은 쪽에서 나오는 것을 볼

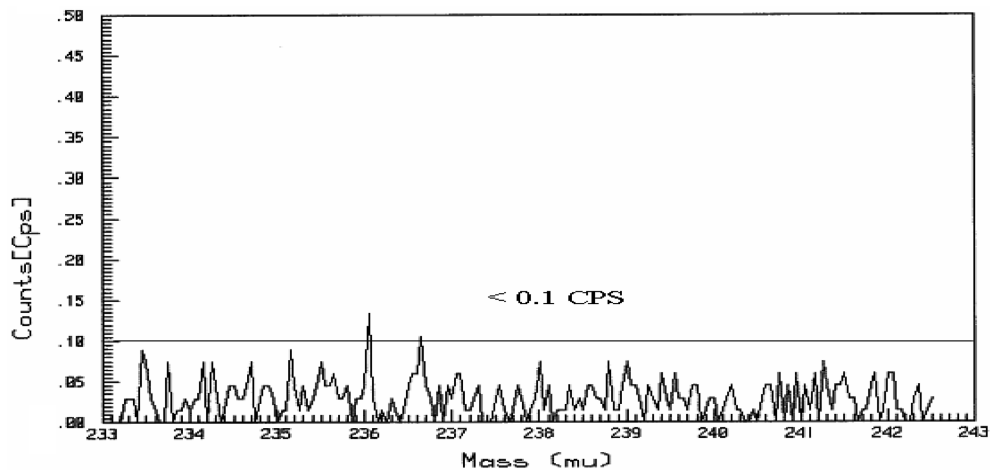


Fig. 3. Blank test for the Re filament after baking at 5.5 A for 1.5 hr.

수 있다. 이러한 결과로 232, 235, 238의 위치에 나타나는 것들은 실제로 존재하는 동위원소들이고 그 외의 위치에서 나타나는 것들은 불순물에 의한 유령의 피크로 볼 수 있다.

### 3.2. 바탕값 우라늄 정량

사용하는 레늄필라멘트 혹은 바탕 값으로 들어있는 우라늄이 동위원소 비 측정에 미치는 정도를 수치적으로 표현하기 위하여 우라늄을 정량하였다. IRMM-040a, U-233 spike 2.14 ng을 필라멘트에 올려 동위원소 비(U-238/U-233)를 측정 하고 아래와 같은 계산식에 의한 동위원소 회석질량분석법<sup>15,16</sup>으로 계산한 결과를 Table 6에 나타내었다.

$$C_x = C_y \cdot \frac{M_x}{M_y} \cdot \frac{W_y}{W_x} \cdot \frac{R_y - R_b}{R_b - R_x} \cdot \frac{\sum_x R_i}{\sum_y R_i}$$

$C_x$  : 시료 중 U 농도

$C_y$  : 스파이크 U 농도

$M_x$  : 시료 중 U 평균원자량

$M_y$  : 스파이크 중 U 평균원자량

$W_y$  : 스파이크 취한 무게

$W_x$  : 시료 취한 무게

$R_y$  : 스파이크 중 U-238/U-233

$R_b$  : 섞은 시료 중 U-238/U-233

$R_x$  : 시료 중 U-238/U-233

$\sum_x R_i$  : 시료 중 U-238를 포함한 각 동위원소 비의 합

$\sum_y R_i$  : 스파이크 중 U-233를 포함한 각 동위원소 비의 합

또한 동위원소 회석질량분석법으로 우라늄을 정량하는 과정에서 U-233 피크와 U-238 피크를 질량 스캐닝한 결과를 Fig. 4에 나타내었다. 여기서 사용한 spike에는 U-238이 U-233의 1/124 만큼 포함되어 있기 때문에 이를 보정해 주어야 한다. 따라서 그림에 보인 U-233 피크, 32000 CPS 중 124분의 1인 258 CPS가 바탕값 필라멘트로부터 얻어진 U-238, 700 CPS에 기여 하였으므로 258 CPS를 뺀 나머지가 순수한 불순물 우라늄으로 볼 수 있다. 즉 spike U-233, 2.14 ng의 피크는 32000 CPS이고 필라멘트 불순물로 들어있는 우라늄은 442 CPS 이므로 0.03 ng-U이 계산된다. 여기서 얻어진 우라늄 량과 CPS 관계를 본 실험에서 얻어진 CPS를 우라늄 량으로 간접 적용하였다. 얻어진 우라늄 량을 Table 6에 보였으며 baking을 하지 않은 필라멘트에서 0.31 ng이었고, 5 A에서 30분 baking을 한 것은 평균 0.05 ng으로 baking을 한 필라멘트가 그렇지 않은 필라멘트보다 6배 정도 작게 나왔다. 필라멘트는 하나하나 별도로(batch process)

Table 6. Result of U content on Re-filaments by IDMS

	None baked filament	Baked filament (3.5 A, 30 min.)
	U(ng)	U(ng)
1	0.15	0.03
2	0.12	0.08
3	0.52	0.07
4	0.55	0.04
5	0.22	0.05
Ave.	0.31±0.21	0.05±0.02

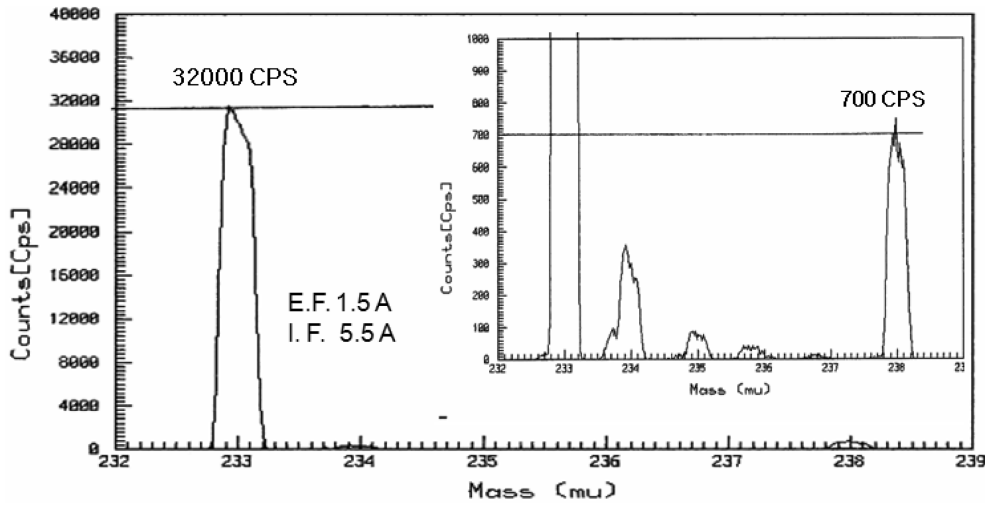


Fig. 4. Mass scan U-233 peak and U-238 peak in IDMS.

Table 7. Results of uranium isotope ratio for the KRISS uranium standard solution, 0.35 ng

	Meas. Value	Ref. Value (Nat. U)
234/238	0.000050 ± 0.000016	0.000055
235/238	0.007234 ± 0.000159	0.00725

Table 8. Results of uranium isotope ratio for the NIST U030, 10 ng

	Ref. Value	Meas. Value
234/238	0.000196 ± 0.000001	0.000200 ± 0.000007
235/238	0.031429 ± 0.000031	0.031442 ± 0.000031
236/238	0.000210 ± 0.000001	0.000216 ± 0.000007

Table 9. Result of NIST U-005 isotope measurement, 10 ng-U

	234/238 (SEM)	235/238 (Faraday cup)	236/238 (SEM)
certified value	0.000 0219	0.004 9194	0.000 0468
1	0.000 0222	0.004 9121	0.000 0479
2	0.000 0227	0.004 9201	0.000 0480
3	0.000 0220	0.004 9113	0.000 0476
Average	0.000 0223 ± 0.000 0003	0.004 9145 ± 0.000 0049	0.000 0478 ± 0.000 0002

만들어 지기 때문에 두께, 크기, 순도 등의 특성이 엄밀히 따져 각기 다를 수 있다. 따라서 개별 필라멘트에 따른 편차가 크게 나타나는 것을 볼 수 있다.

3.4. 동위원소 표준물 검정 결과

미량의 우라늄동위원소 표준물을 시료로 사용하여 우라늄동위원소 비를 측정하고 검정값과 비교하여 주변 실험환경이나 기타 우라늄 오염원으로부터 영향을 받았는지 여부를 알고자 하였다. 우라늄 동위원소 표준물, 0.35 ng과 10 ng을 각각 사용하여 5.5 A에서 1.5시간 baking 한 필라멘트에 올리고 질량분석을 수행한 결과를 Table 9에 나타내었다. NIST U-005는 U-235 농축도가 약 0.5%농축된 표준물로 자연동위원소 비를 갖는 우라늄(U-235, 0.72%) 오염이 있었다면 결과가 높게 나왔을 것인데 그러지 않은 결과로 볼 때

오염없이 측정이 잘 되었음을 알 수 있었다. 또한 한국표준과학연구원 우라늄표준물은 자연동위원소비를 갖는 우라늄으로 U-235는 0.72% 이다. 결과에서 볼 수 있듯이 표준검정 값에 잘 일치하는 결과를 보임으로서 농축된 우라늄의 혼입이 없었음을 알 수 있었다. 본 실험실은 U-235 농축도, 2~20%을 취급하는 실험실 여건을 고려할 때 우라늄이 혼입되었다면 검정 값보다 높은 값을 보일 수 있지만 실험결과 검정 값과 잘 일치함을 보였다. 우라늄 표준물질(KRISS 표준물질과 NIST, U-005, U-030)을 사용하여 우라늄 동위원소 비를 측정한 후 인증 값과 비교한 결과 U-235는 0.04%, U-234, U-236는 2% 이내에서 각각 일치하였다.

4. 결 론

고순도 레늄필라멘트와 일반 레늄필라멘트로부터 오는 바탕값 특성을 비교 실험하였다. 두 종류 필라멘

트에서 가벼운 알칼리금속원소들의 클러스터(cluster), ( $^{39}\text{K}_6$ )<sup>+</sup>, ( $^{39}\text{K}_5 + ^{41}\text{K}$ )<sup>+</sup> 및 금속산화물( $\text{PbO}_2$ ) 형태로 추정되는 동중원소영향(isobaric effect)을 야기하는 신호들을 확인하였으며, 고순도 레늄필라멘트를  $<10^{-7}$  torr 에서 약 2000°C로 1.5 시간 이상 degassing 함으로 불순물들을 완전히 제거할 수 있었다. 그러나 일반 레늄 필라멘트는 5시간 이상 degassing 처리를 하여도, 약 3 pg-U이 없어지지 않고 계속하여 측정되었다. 일반 레늄필라멘트에 대한 불순물 제거 실험 결과 5 A, 30 분이 불순물 제거 최소조건이었다. 본 실험을 통해서 극미량 우라늄 시료 측정을 위해서는 고순도 필라멘트를 degassing 한 후 사용하여야 하며, 일반 필라멘트 경우는 degassing 하여 사용한다 할지라도 1 ng-U 시료에 대하여 0.3% 오차를 근본적으로 갖는 것을 알 수 있었다. 우라늄 표준물질(KRISS 표준물질과 NIST, U-005, U-030)을 사용하여 우라늄 동위원소 비를 측정 한 후 인증 값과 비교한 결과 U-235는 0.04%, U-234, U-236는 2% 이내에서 각각 일치하였다.

### 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 중 장기 연구개발 사업의 일환으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

### 참고문헌

1. D. L. Donohue, *Journal of Alloys and Compounds*, 11-18(1998).
2. R. Ovaskainen, K. Mayer, W. DeBolle, D. Donohue and P. De Bievre, *Proceedings of the 19th Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management*, Montpellier, C. Foggi, F. Genoni (Eds.) Ispra, ESARDA No. 28 (1997).
3. G. R. Choppin and J. Rydberg, Pergamon Press, *Nuclear Chemistry, Theory and Applications*, p. 460-461(1980).
4. J. B. Osmond and Cowart, *Atomic Energy review* **14**(4), (1976).
5. R. L. Holden, Martin and I. L. Barnes, *International Union of Pure & Appl. Chem.*, **55**(7), 1119-1136(1983).
6. G. Lafaye, F. Weber and H. Ohmoto, *Economic Geology*, 84(1989).
7. E. W. Becker and W. Welcher, *Mass Spectroscopy in Physics Research, National Bureau of Standards, Circular 522*, Washington, DC, p. 225(1953).
8. K. Habfast, I. T. Platzner, A. J. Walder and A. Goetz, *Modern Isotope Ratio Mass Spectrometry*, John Wiley & Sons Ltd, West Sussex, England, pp. 182(1997).
9. S. R. Hart and A. Zindler, *Int. J. Mass Spectrom. Ion Processes* **89**, 287301(1989).
10. A. P. Dickin, *Radiogenic Isotope Geology*, Cambridge University Press, Cambridge, UK, p.452 (1995).
11. S. Richter, A. Alonso, W. De Bolle, R. Wellum and P. D. P. Taylor, *International Journal of Mass Spectrometry*, **193**, 9-14(1999).
12. Finnigan MAT *Application Flash Report No. 7, 8*. (1995).
13. Sci-Tech Encyclopedia. McGraw-Hill Encyclopedia of Science and Technology. Copyright-2005 by The McGraw-Hill Companies, Inc..
14. G. H. Palmer, *Advances in Mass Spectrometry*, p. 89, Pergamon Press (1959).
15. P. de Bievre, *Adv. Mass Spectrom.*, **7A**, 395(1978).
16. K. G. Heumann, *Int. J. Mass Spectrom. Ion Phys.*, **45**, 87(1982).