



KR0100907

KAERI/TR-1840/2001

흔적량 핵물질 탐지기술 개발(II)

Development of Detection Techniques
for a Single-Particle of Fissile Material-II

2001. 6

한국원자력연구소

32/43

**PLEASE BE AWARE THAT
ALL OF THE MISSING PAGES IN THIS DOCUMENT
WERE ORIGINALLY BLANK**

제 출 문

한국원자력연구소장 귀하

본 보고서를 2000년도 “국가핵물질 계량관리 및 통제기술 개발” 과제
“흔적량 핵물질 탐지기술 개발” 분야의 기술보고서로 제출합니다.

2001년 6월

주 저 자 : 손 세 철
공 저 자 : 김 원 호
박 용 준
송 병 철
전 영 신
지 광 용
표 형 열
곽 은 호

요 약 문

본 기술보고서에서는 흔적량 핵물질 탐지기술 개발과 관련하여 현미경을 이용한 미지의 입자 판별기술 중에서 편광현미경의 특성 및 입자 관찰 방법 등에 대해 기술하고, 현미경을 이용하여 미세 입자의 성분을 알아내기 위한 미세화학 실험의 방법과 각 성분원소들의 정성적 확인 실험 방법에 대해 기술하였다. 또한, 지표핵종 및 화합물의 분석법과 관련해서는 질량분석법에 의한 핵종(우라늄 및 플루토늄 등) 분석의 기본적인 개념을 기술하고, 지표물질(TBP 유도체 등)의 분석과 관련된 기체크로마토그래피, 질량분석법, 기체크로마토그래피/질량분석법 및 적외선 분광법의 측정원리와 검출한계 등에 대해 간략히 기술하였다. 또한, Swipe 시료 전처리 기술과 관련하여 swipe 시료 채취절차, 중성자조사용 시편제작, 에칭방법, 트랙관찰 및 핵분열 입자채취와 관련된 기술을 종합 검토하여 swipe 시료 전처리 절차서를 작성하고 이를 본 보고서의 부록으로 첨부하였다.

목 차

요약문	iii
I. 서론	1
II. 현미경을 이용한 입자 판별기술	2
1. 편광현미경의 특성	2
2. 미세화학 실험	7
III. 지표핵종 및 화합물 분석법 비교	13
참고 문헌	18
그림	19
부록	25

I. 서론

원자력 시설에서의 방사선 작업으로 인한 오염여부와 미 신고 핵활동을 감지하기 위한 흔적량 핵물질 입자의 분석을 위해서는, 흔적량 핵물질 입자의 채취, 이동, 농축 및 분석과 관련된 고도의 입자취급 기술이 필요하다. 이와 같은 기술과 관련하여, 미국 McCrone research institute에서는 입자분리, 조작, 분석 및 판별기술과 관련된 교육과정을 개설하고 이를 교육하고 있다. 이러한 교육을 통해, 여러 가지의 흔적량 입자 분석을 위한 현미경 조작방법, 흔적량 입자와 특성 시약과의 반응 및 반응 후 생성된 물질의 판별기술을 습득하고 흔적량 입자의 정성분석에 활용하는 것은 흔적량 핵물질 탐지와 관련하여 필수적인 연구 업무가 될 수 있다.

핵물질을 취급하는 신고된 활동을 제외한 원자력시설에서 수행하고 있는 미신고 활동을 사찰하기 위해서는 우선 시료를 채취하고 분석해야 한다. 그 중에서 핵분열성 물질 또는 지표물질을 찾아내고, 농축도 또는 함량을 결정하는 기술은 시설내외의 방사성 안정성 문제와 미신고 활동을 감지하는데 매우 중요할 뿐만 아니라, 미신고 활동에 대한 결정적인 정보를 제공하는 역할을 한다.

본 기술보고서에서는 흔적량 핵물질 탐지기술 개발과 관련하여 현미경을 이용한 미지의 입자 판별기술 중에서 편광현미경의 특성 및 입자 관찰 방법 등에 대해 기술하고, 현미경을 이용하여 미세 입자의 성분을 알아내기 위한 미세화학 실험의 방법과 각 성분원소들의 정성적 확인 실험 방법에 대해 기술하였다. 또한, 지표핵종 및 화합물의 분석법과 관련해서는 질량분석법에 의한 핵종(우라늄 및 플루토늄 등) 분석의 기본적인 개념을 기술하고, 지표물질(TBP 유도체 등)의 분석과 관련된 기체크로마토그래피, 질량분석법, 기체크로마토그래피/질량분석법 및 적외선 분광법의 측정원리와 검출한계 등에 대해 기술하였다. 한편, Swipe 시료 전처리 기술과 관련하여 swipe 시료 채취절차, 중성자조사용 시편제작, 에칭방법, 트랙관찰 및 핵분열 입자채취에 관련된 기술을 종합 검토하여 swipe 시료 전처리 절차를 작성하고 이를 본 보고서의 부록으로 첨부하였다.

II. 현미경을 이용한 입자 판별기술

1. 편광현미경의 특성

가. 편광현미경의 개요

최초의 현미경이 1610년 Galileo에 의하여 발명된 이래, 1847년 Carl Zeiss Jena에 의해서 보다 근대적인 현미경의 개발과 생산에 착수하게 되었다. 현미경은 가까이 있는 작은 물체를 크게 보기 위한 것으로, 물체 쪽에 가까이 있는 대물렌즈는 물체를 초점거리에 가깝게 놓아 그 상을 대안렌즈의 초점거리 바로 안쪽에 만들어 놓는다. 한편, 대안렌즈는 돋보기와 같은 역할을 하며 대물렌즈가 맺은 물체의 상을 더욱 크게 확대하여 작은 물체의 관찰을 용이하게 하는 역할을 한다.

나. 현미경 각 부분의 명칭과 기능

1) Stand(몸체)

현미경 전체를 견고하고 안정성 있게 유지시킬 수 있도록 하고 내부에 각종 전기장치 및 광로를 설치할 수 있도록 되어있다.

2) Illuminator(발광체)

일반적으로 가장 많이 사용되는 발광체는 halogen lamp이며, 발생파장의 다양성 또는 빛의 intensity 요구에 따라 Hg lamp 또는 Xe lamp 등이 사용된다.

3) Condenser(집광기)

광원으로부터 발생된 빛을 집광하여 관찰하고자 하는 시료 면에 최대의 빛을 주사하기 위한 장치로 그 종류는 구면수차와 색수차 모두 보정되지 않은 가장 간단한 집광장치인 Abbe condenser, 색수차가 보정되고, 단색광에 대해서는 구면수차도 보정된 achromatic condenser, 구면수차와 함께 코마수차도 보정된 aplanatic condenser 등이 사용되고 있다.

4) Aperture diaphragm

광로 상에서 집광 렌즈(condenser) 직전에 설치되는 조리개 장치로 이를

조정하여 조명강도를 변화시킴으로서 결과적으로 condenser의 focal depth를 조정할 수 있다.

5) Field diaphragm

광로상에 설치되는 또 하나의 조리계를 말하며, 이를 조정하면 조도면적을 바꿀 수 있다. 광원 및 광로에 있어 위에서 언급한 aperture diaphragm과 field diaphragm을 이용하여 최적의 light yield를 얻을 수 있도록 설계된 illumination system을 Koehler illumination이라 하며, 이때 두 조리개는 각각 독립적으로 작용한다.

6) Stage

시료를 올려놓는 장치로서, 고정식과 이동식이 있고 이동식인 경우 slide의 X축 또는 Y축 방향의 이동거리를 측정할 수 있는 눈금 및 stage 전체를 180° 또는 360° 회전시킬 수 있는 장치가 되어있다. 용도에 따라 square, round, transmitted 및 reflected type 등이 있다.

7) Focusing knobs

일반적으로 fine focus adjusting knob과 coarse focus adjusting knob이 동축상(co-axial)에 설치되어 있고 대부분 focusing knob를 조정하면 stage가 상하로 움직여 초점을 조정하도록 되어 있으나, 특수한 경우 stage는 고정시키고 대물렌즈를 상하로 움직여 초점을 조정하는 장치도 있다.

8) Revolving nose piece

Objective를 설치할 수 있는 장치로 다양한 배율의 objective를 사용할 수 있도록 통상 6개의 hole이 준비되어 있고, 용도에 따라 고정식과 분리식이 있다.

9) Objective(대물렌즈)

현미경에 있어서 가장 중요한 부분은 역시 objective이다. 현미경의 질을 가름하고, resolving power를 결정하는 것이 바로 objective이기 때문이다. Objective의 성능과 질을 말하기 전에 렌즈의 수차(aberration)는 렌즈는 구면을 가지기 때문에 렌즈의 중심을 지나는 광선과 바깥부분을 지나는 광선은 서로 굴절하는 정도가 다르다. 이렇게 렌즈가 가지는 구면적 특성 때문에 생기는 수차를 구면수차라 한다. 렌즈의 중앙부를 지나는 광선과 변두리를 지나는 광선이 동일점에 상을 맺지 못 한다는 점은 구면수차와 비슷하

지만 점 형태 물체의 상이 원이 되지 않고 혜성과 같은 모양으로 상을 맺는 것을 코마(coma)수차라 한다. 렌즈의 초점거리는 렌즈를 만든 물질의 굴절률의 함수이다. 또한, 모든 광학물질의 굴절률은 파장에 따라 변하므로 렌즈의 초점거리는 색에 따라 틀린다. 즉, 렌즈의 프리즘작용은 끝으로 가면서 심하며 입사광을 분산시킴으로써 보라색이 렌즈에서 가장 가깝게 초점을 맺는다. 이를 색수차(chromatic aberration)이라 한다. 렌즈의 성능표시법은 회사마다 조금씩 차이는 있으나 가장 공통적으로 사용되는 표시들은 다음과 같다. 앞에서 언급한 수차들에 대하여 그 보정 정도에 따라 렌즈의 수준과 질을 분류하면 구면수차가 보정된 것은 P(plane), 색수차 보정에서 적색과 파란색이 동일 평면에 상이 맺히도록 보정된 것은 A(achromats), 삼원색 모두를 동일 평면에 상이 맺히도록 한 것은 APO(apochroats)로 표시한다.

일례로 대물렌즈에 써있는 1.30은 : objective N.A.(numerical aperture)를 나타내는 수치이다. 이 수치는 $N.A. = n \sin \theta/2$ 이라는 공식에 의해 얻어지며, 이때 n 은 매개물질의 굴절률(dry objective의 경우는 공기가 매개물질이므로 1.0, oil objective의 경우는 oil의 굴절률)이고 θ 는 렌즈가 초점을 형성하면서 형성하는 흡광 각을 의미한다. 결국, 매개물질의 굴절률값 n 을 무시하면 $N.A. \geq 1$ 은 성립할 수가 없다. 즉 $\sin \theta/2 = 1$ 이라는 의미는 $\theta = 180^\circ$ 가 되어 초점을 형성하지 못한 다는 뜻이 되기 때문이다. 따라서 모든 렌즈에 있어서 N.A.가 1 이상으로 표기되어 있으면 immersion oil을 사용해야 한다. HI: Homogeneous immersion의 약자로 이렇게 표기된 렌즈는 표기된 N.A.을 얻기 위해 통상 oil을 사용하며, 간혹 물 또는 기타 액체를 시료에 덮어 사용한다. 100X: objective magnification 표시로 최대 관찰표면을 얻기 위하여 1배부터 통상 100배까지의 다양한 배율의 렌즈가 사용된다. CF: cross field 또는 wide field라는 뜻으로 eyepiece를 통해서 상을 볼 때 시야에 보이는 원형상의 크기를 말한다. 일반적으로 이 field의 크기는 eyepiece에 표기가 되는데 표기된 field No. 숫자를 cm단위로 생각하면 그것이 image field의 직경이 된다.

10) Arm tube

Eyepiece tube, photo tube 등을 장착시킬 수 있는 장치로서 eyepiece tube만을 장착시킬 수 있는 binocular, eyepiece tube와 photo-tube를 모두

장착시킬 수 있는 trinocular로 구분된다. 또한, arm tube에는 간편한 중간 배율전환장치인 magnification changer, 광로 중에 설치되는 각종장치 (Bertrand lens, analyzer)들을 설치할 수 있다.

11) Eyepiece(ocular, 접안렌즈)

통상 10배율의 eyepiece가 표준으로 사용되고 필요에 따라 그 이상 혹은 그 이하의 배율의 eyepiece를 사용한다. Eyepiece 배율은 사람 눈이 충분히 적응하여 선명한 상을 만들 수 있는 근점 명시거리 250 mm를 eyepiece의 초점거리로 나누어 표시하게 된다.

다. 편광현미경의 이론 및 관찰방법

1) 편광

일반적으로 자연광은 그 진행방향에 대하여 직각인 평면내의 모든 방향으로 진동하고 있는데 이에 대하여, 이러한 빛들이 물질의 경계면에서 반사되거나 편광을 시키는 물질을 통과하게 되면 어느 특정한 방향으로 진동하는 빛의 개수가 다른 방향으로 진동하는 개수보다 상대적으로 많아진다. 이렇게 특정한 방향으로 진동하는 빛의 개수가 다른 방향으로 진동하는 빛의 개수보다 상대적으로 많을 때 이런 빛을 편광 되었다고 말한다. 편광이 되지 않은 빛을 편광시키는 일반적인 방법은 빛을 편광자에 통과시키는 것이다. 편광자는 긴 분자들이 특정한 방향으로 늘어서 있는 물질인데 빛의 전기장 진동방향이 분자의 길이 방향과 같으면 그런 빛은 분자에 잘 흡수되고 그 반대방향으로 진동하는 빛은 그대로 통과한다. 이렇게 그대로 통과시키는 진동방향을 편광방향이라고 한다. 그리고 편광방향에 대해 45° 로 진동하는 빛은 흡수되거나 통과할 확율이 반반이다. 빛이 방해석과 같은 광물을 통과하면 편광이 된다.

2) 복굴절

방해석이나 전기석의 박편(두께 0.3 mm)을 통하여 물체를 보면 이중으로 겹친 것 같이 보인다. 이것은 빛이 서로 직각방향으로 진동하는 2개의 편광으로 나누어지기 때문이다. 이러한 현상을 복굴절이라 한다.

3) 편광현미경

편광으로 결정의 광학적 성질을 관찰하는 현미경으로 보통 현미경과 다

른 점은 재물대 아래에 편광판(편광 니콜)을 끼우고, 대물렌즈와 대안렌즈사이에도 해석 니콜을 끼운 점이다. 위의 해석니콜은 끼웠다 뺐다 할 수 있다. 두 니콜을 서로 직각이 되게 끼운 상태를 직교 니콜, 편광 니콜만 끼우고 해석 니콜을 뺀 상태를 개방 니콜이라 한다.

4) 등방체, 이방체의 구분

Open nicol하에서 재물대 위에 시료 박편을 놓고 관찰하여 빛이 통과하는 시료를 찾는다. 이 시료 박편이 직교 니콜하에서 관찰되는가의 여부를 판정한다. 만일 보이면 이방체, 안보이면 등방체로 판정한다.

5) 색, 다색성의 관찰

Open nicol하에서 보이는 시료 박편의 색을 관찰한다. 역시 open nicol하에서 재물대를 회전시킴으로 해서 변하는 색의 정도를 조사한다.

6) 굴절률 측정(relief measurement)

Open nicol하에서 조리개를 조여서 시야를 다소 어둡게 하고 시료 박편과 immersion oil의 경계면에 초점을 맞추어 하얀선을 찾는다. 이 선을 Becke's line이라 하며, 굴절률 측정의 기준이 된다. 시료 박편으로부터 대물렌즈를 멀리 할 때 Becke's 선이 옮겨가는 상황을 관찰한다. 이때 Becke's 선이 옮겨가는 쪽의 굴절률이 크다.

7) 소광현상(extinction)

직교 니콜하에서 이방체 시료 박편을 재물대에 놓고 회전시켜서 90°마다 한번씩 암흑이 되는 현상을 관찰한다. 이 현상을 소광이라 하며 소광된 위치를 소광위라 한다. 앞 위치에서 45° 회전시켜서 관찰하면 이 위치를 대각위라 하고 가장 밝게 보이는데 이때의 색을 간섭색이라 한다. 십자선의 수직선과 소광된 광물의 결정면, 쪼개짐 면, 쌍정 면과의 각(θ)을 측정하면 이 각을 소광각이라 하며 이 각이 0° 인 경우를 평행소광 또는 직소광, 그 밖의 경우를 사소광이라 한다.

8) 편광현미경을 이용한 박편시료의 감정

박편시료 관찰시 투명한 시료의 감정을 위해서는 보통 투과 편광현미경을 사용하고 불투명 시료의 감정을 위해서는 반사 편광현미경을 사용해야 한다. 편광현미경하서는 시료의 투과색, 다색성, 입자의 크기 및 형태, 개재물 등을 관찰할 수 있고 결정의 굴절률, 소광각, 복굴절 현상, 등방성과 이방

성, 일축성과 이축성, 광축각 등을 측정할 수 있다. 시료의 이와 같은 각종 광학적 성질을 관찰, 측정하여 시료의 성분을 결정하게 된다. 편광현미경을 사용하여 시료를 관찰하려면 시료두께가 0.02~0.03mm 되도록 박편을 만들거나 소량의 시료를 취하여 용해 후 건조하여 박편을 만들어 사용해야 한다. 시료의 조직분석을 위해서는 rotating stage가 이용된다. 이 stage를 이용하여 박편 시료를 임의의 방향으로 회전시켜서 광물의 광학적 성질을 측정할 수 있다. 반사 편광현미경은 반사광에 의하여 불투명한 물질의 광학적 성질과 조직 등을 관찰할 수 있다. 불투명 광물을 감정하는데 있어서 이용되는 광물의 물리적 성질은 광물의 색, 반사도, 복반사, 내부반사, 이방성 및 경도 등이다.

2. 미세화학 실험

미세화학 실험(microchemical tests)은 10~100 μ m 크기의 미지 미세 입자들의 성분을 알아내기 위해 현미경을 이용하여 slide glass 위에서 적절한 시약들과 반응시켜 특성 화합물의 생성시킨 다음 성분원소의 존재를 알아내는 화학실험을 말한다. 이 방법의 장점은 1) 작은 시료를 취급할 수 있다. 2) 승화, 증발, 추출 및 여과 등과 같은 조작을 시료 1~2 방울을 사용하여 microscope slide 위에서 할 수 있다. 3) 작은 양을 취급하므로 비싼 시약을 절약할 수 있다. 4) 결정구조를 확인할 수 있다. 5) 매우 작은 공간에서 작업할 수 있다. 6) 결과적으로 가격, 안전성, 시설, 시약소모 등을 고려할 때 매우 환경 친화적인 방법이다. 이 조작을 통하여 미세 흔적량 입자들 속에 포함되어 있는 은(silver) 외 수십 종의 성분들을 확인하는 정성실험을 수행하였다.

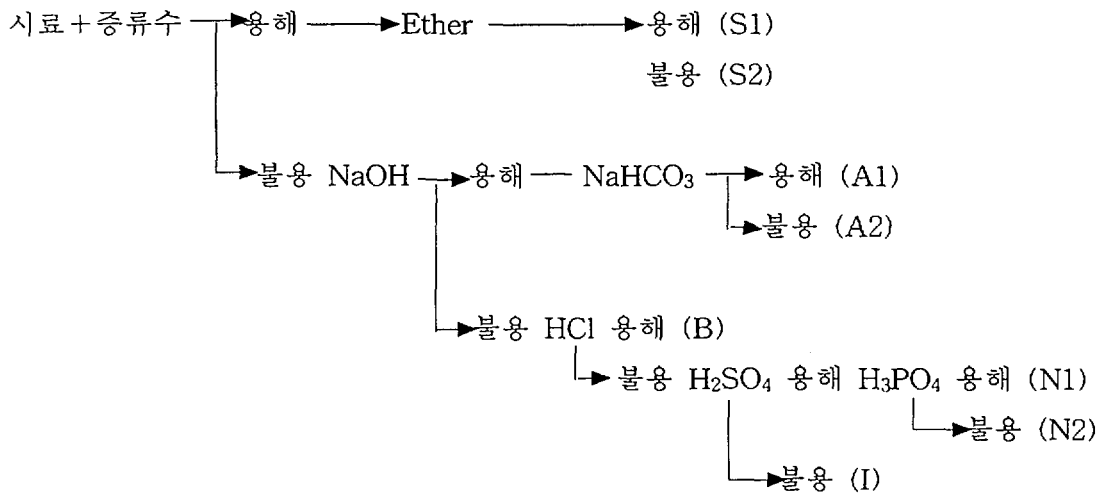
가. 용해 실험

물, 산 혹은 알칼리 용액을 이용하여 미지의 시료를 용해한 다음 미지입자의 성분을 예측할 수 있다. 한가지 예로, 알루미늄은 다른 금속성분과는 다르게 알칼리 용액에 잘 녹으므로 금속광택이 있는 미지입자에 소량의 가성소다 용액을 점적하여 용해해 보면 알루미늄의 존재 가능성을 쉽게 알 수

있다. 용해도 실험을 위해서는 미지 혼적량 시료를 slide glass 위에 옮긴 다음 그림1과 같이 미리 점적한 물, 산, 알칼리 및 왕수 용액들 위치로 유리나 백금으로 만든 탐침을 이용하여 접촉을 시켜 용해되는 정도를 입체현미경하에서 관찰한다.

미지시료가 상온에서는 잘 녹지 않는 경우에는 알코올램프로 서서히 가열하여 준다. 이때 시료가 타거나 튀지 않게 하여 다음 실험에 지장을 주지 않도록 해야한다. 용해 실험 후 녹지 않는 부분은 그림2와 같이 slide glass를 기울이면서 탐침을 이용하여 용해용액만을 모은다.

유기물은 용매에 대한 용해도 관계만을 조사하여도 대별할 수 있다.



여기서, S1 : 저분자량 물질, 그러나 halogen 유도체는 녹지 않음.

S2 : 수용성 염류로 두 개의 기를 가진 저분자량 물질.

A1 : 물에 불용성인 물질 및 picric acid와 같은 음성으로 치환된 phenol 류.

A2 : 약산류로 oxime, imide 등.

B : amine 류.

N1 : 저급의 alcohol, aldehyde 등이 이에 속함.

N2 : 9개 이상의 탄소원자를 포함한 alcohol, aldehyde 등이 속함.

I : 탄화수소의 halogen 유도체 등이 여기에 속함.

나. 시약첨가 방법

1) (A) 방법 : 대부분의 경우에 사용하는 방법으로, 미지시료와 시약을 slide glass 위의 서로 다른 위치에 놓고 그림3과 같이 각각을 증류수 혹은 적당한 산 또는 알칼리로 녹인 후 끝이 가는 탐침을 이용하여 두 용액간의 통로를 만들어 접촉시키는 방법이다.

2) (B) 방법 : 결정을 만들기 위해 고농도의 시약과 접촉이 필요한 경우에 사용하는 방법으로 시약을 직접 용해된 미지시료에 접촉시키는 방법이다.

다. 미세화학적 정성시험(Microchemical qualitative tests)

1) Ag^+

가) 은 이온에 염산을 가하여 염화은 침전을 얻는 방법.

매우 신속히 반응하며 용해적이 아주 작은 침전을 형성하나 현미경하에서 특정한 모습은 볼 수 없다. 이 침전에서 용액부분은 기울림 방법으로 제거한 다음 건조하여 재결정한 후 암모니아 용액을 첨가하면 $Ag(NH_3)_2Cl$ 이 생성되면서 $AgCl$ 침전은 녹는다. 이것의 암모니아 성분을 날려보낸 후 편광현미경으로 관찰하면 그림4와 같이 고 굴절율을 갖은 등방성의 육각형 결정을 볼 수 있다.

나) $(NH_4)_2Cr_2O_7$ 을 가하여 $Ag_2Cr_2O_7$ 이나 Ag_2CrO_4 를 얻는 방법

이 반응은 산도와 반응용액의 농도에 의존한다. 시약첨가는 (A)방법으로 하고 이 방법은 $AgCl$ 침전과는 반응하지 않는다.

2) Pb^{++}

시약첨가는 방법(A)으로 하여 KI (potassium iodide)를 납이 포함된 용액에 가하면 반응($Pb^{++} + 2I^- \rightarrow PbI_2$)하여 그림5와 같이 육각형의 결정을 관찰할 수 있으며, 결정의 색은 밝은 노란색이다.

3) Cu^{++}

방법(A)를 이용하여 $K_2Hg(SCN)_4$ (potassium mercuric thiocyanate)를 가하면 그림6과 같이 $CuHg(SCN)_4$ 의 노란색의 민들레 모양 혹은 나뭇가지 형태의 비등방성 결정을 확인할 수 있다.

4) Zn^{++}

방법(A)를 이용하여 $K_2Hg(SCN)_4$ (potassium mercuric thiocyanate)를 가

하면 그림7과 같이 깃털모양 또는 나무 구루터기 모양의 $ZnHg(SCN)_4$ 결정을 확인할 수 있다.

5) Co^{++}

방법(A)로 $K_2Hg(SCN)_4$ (potassium mercuric thiocyanate)를 가하면 그림 8과 같이 프리즘 형태의 아름다운 진한 푸른빛의 비 등방성 $CoHg(SCN)_4$ 결정을 확인할 수 있다.

6) Fe^{++} 및 Fe^{3+}

방법(A)를 이용하여 $K_2Hg(SCN)_4$ (potassium mercuric thiocyanate)를 가하면 $\{Fe(SCN)^{++}\}$ 의 검붉은색 화합물을 형성하나 Fe^{++} 는 반응을 하지 않는다. 제일철도 질산을 가하고 끓여 건조한 다음 제이철로 산화시키면 $K_2Hg(SCN)_4$ (potassium mercuric thiocyanate)와 반응하여 검붉은 색의 화합물을 얻을 수 있다. 또한, $K_4Fe(CN)_6$ 와 반응하면 $KFe\{Fe(CN)_6\}$ 로 되어 prussian blue색의 화합물을 얻는다.

7) Ni^{++}

니켈의 경우는 암모니아 염기성 하에서 dimethylglyoxime과 결합하여 그림9와 같이 붉은색의 침상결정을 얻을 수 있다.

8) Sn^{++} 및 Sn^{4+}

제일 주석은 묽은 질산(1 : 1)으로 증발 건조시킨 다음 제이 주석으로 산화한 후 묽은 염산(1 : 1)을 가하면 H_2SnCl_6 형태로 된다. 이에 방법(A)를 이용하여 $RbCl$ 을 가하면 등방성의 팔면체인 Rb_2SnCl_6 를 얻을 수 있다.

9) Bi^{3+}

$CsCl$ 을 가하여 그림10과 같이 육면체의 $2BiCl_3 \cdot 3CsCl$ 결정을 얻은 후 방법(B)를 이용하여 KI 조각을 가하고, 묽은 염산 상으로 하면 붉은 오렌지색의 $2BiI_3 \cdot 3CsCl$ 결정을 얻을 수 있다.

10) Cr^{3+} 및 Cr^{6+}

3가의 크롬은 질산과 $KClO_3$ 를 접촉시켜 가열 건조한 다음 6가 크롬으로 만든 후 방법(A)를 이용하여 $AgNO_3$ 를 가하면 그림11과 같이 붉은 피빛의 $Ag_2Cr_2O_7$, Ag_2CrO_4 결정을 얻을 수 있다.

11) Ca^{++}

$CaCO_3$ 를 묽은 염산에 녹인 후 방법(A)로 5%—황산용액을 가하면 복굴

절을 일으키는 침상의 $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 을 얻을 수 있다.

12) K^+

가) 방법(A)를 이용하여 HClO_4 를 접촉시키면 그림12와 같은 팔면체 형태의 KClO_4 불용성 결정을 얻는다.

나) 방법(A)로 H_2PtCl_6 를 실험방울에 접촉시키면 그림13과 같은 고 굴절을 가지는 등방성 오렌지색의 K_2PtCl_6 의 팔면체 결정을 얻을 수 있다 .

13) Na^+

방법(A)로 초산 분위기에서 $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot \text{UO}_2(\text{CH}_3\text{COO})_2$ (zinc uranyl acetate)를 가하면 그림14와 같은 노란색 $\text{NaZn}(\text{UO}_2)_3(\text{CH}_3\text{COO})_9 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ 인 팔면체결정을 얻는다. 때로는 분해되어 $\text{Na}(\text{CH}_3\text{COO}) \cdot \text{UO}_2(\text{CH}_3\text{COO})_2$ 형태의 사면체 결정을 얻는다.

14) NH_4^+

그림15와 같이 반응기를 만든 후 상부 덮개에 H_2PtCl_6 한 방울을 붙인 후 하부 slide에는 암모니아 포함입자를 묶은 가성소다에 넣고 가열하여 녹이면 다음과 같은 반응에 의해: $\text{NH}_4^+ + \text{OH}^- \rightarrow \text{NH}_3 (\text{gas}) + \text{H}_2\text{O}$ 암모니아 가스가 휘발하면서 천장의 H_2PtCl_6 와 반응하여 오렌지색 $(\text{NH}_4)_2\text{PtCl}_6$ 인 팔면체의 결정을 얻는다.

15) NO_3^-

방법(A)로 초산에 녹인 Nitrol(diphenyl-endo-anilo-dihydrotriazole)과 반응하면 나무가지 형태의 노란 결정을 얻을 수 있다.

16) S^{2-}

암모니아 반응의 경우와 같은 장치에 탄산, 황을 함유하고 있는 입자를 염산과 반응시키면 H_2S 증기가 상부에 붙어있는 $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ 와 반응하면서 검은색의 PbS 를 만든다.

17) PO_4^{3-}

입자를 질산에 녹인 후 ammonium molybdate와 반응하면 노란색의 등방성 팔면체 결정인 ammonium phosphomolybdate를 얻는다.

18) U^{6+}

두세 알맹이의 $\text{NaC}_2\text{H}_4\text{O}_2$ 와 2배 정도의 $\text{Zn}(\text{C}_2\text{H}_3\text{O}_2)_2$ 를 묶은 초산으로 미리 녹인 다음 잘 석어 말린 후, 우라늄이 존재 가능한 입자를 옆에 놓고 묶

은 초산으로 녹인 후 가는 유리 병으로 녹은 용액을 끌어 미리 준비한 시약과 접촉시킨다. 이때, 그림16과 같은 사면체의 결정이 생기면 우라늄의 존재를 확인할 수 있다. 이외에도 Tl_2SO_4 와 반응하여 그림17과 같은 결정을 얻거나, quinoline과 ammonium thiocyanate 혼합시약과 반응하여 그림18과 같은 형태의 결정들을 얻어 우라늄의 존재여부를 확인할 수 있다.

라. 금속 합금에 적용시험

시편 조각은 유기용매를 이용하여 oil 성분을 제거한 후 비철합금은 질산에 녹인다. 그러나 Sn, Sb, P, As, W, Si, Ti 및 Zr 등은 녹지 않는 상태로 남아 있고 약간의 질산 용해물을 흡수하고 있다. 철합금은 황산(1:3)용액을 작은 도가니에 넣고 완전히 녹을 때까지 가열 용해한다. 용융물들은 산용액으로 씻은 후 $K_2S_2O_7$ 과 같은 용융제를 넣고 용융시켜 W, Si 및 Ti 등과 같은 성분을 녹인다. 한가지 예로, 그림19는 stainless steel 조각을 실험하는 경우를 나타낸 것으로 단계별 조각은 아래와 같다.

지름 1~1.5 mm, 길이 10 cm 유리관의 중간부분을(a)와 같이 가열, 연신하여 (b)와 같은 작은 시험관을 만든 후 입체 현미경하에서 stainless steel 조각을 넣은 후(c) 마이크로 피펫으로 왕수를 취하여 시편 조각을 넣은 시험관에 수동식 원심분리기를 이용하여 주입한다(d).

작은 시험관의 한쪽도 가열하여(e) 완전 밀봉한 후 (f)와 같이 물중탕 하에서 시편을 녹인다.

용해가 끝나면 냉소에서 2~3분간 방치하여 완전히 식힌 후 평줄 칼로 시험관에 금을 그어 절단한다.

(g)와 같이 마이크로 피펫을 넣어 내부용액을 microscope slide 위에 옮긴 후 예상 함유성분에 대한 각각의 미세화학 시험을 수행한다.

또한, (h)와 같이 시험관을 수직으로 한 후 위에서 관찰하여 녹은 용액의 색깔을 관찰하여 합금의 종류를 대별할 수도 있다.

III. 지표핵종 및 화합물 분석법 비교

1. 지표핵종의 분석법

본 연구에서는 지표핵종의 분석법 비교와 관련하여 열이온화 질량분석기(Thermal Ionization Mass Spectrometer, TIMS)를 이용한 동위원소 희석 질량분석법(Isotope Dilution Mass Spectrometry, IDMS)으로 우라늄 및 플루토늄의 동위원소를 분석하는 방법에 대한 일반적인 적용성을 검토하였다. 질량분석기를 이용한 동위원소 희석질량분석법으로 분석이 가능한 원소들은 약 75종에 달하며, 이들 중에서 열이온화 질량분석기를 이용하여 분석이 가능한 고체원소들은 약 50여종이다. 핵물질 관련 연구에서 이용되는 대표적 원소들에는 우라늄, 플루토늄 및 희토류원소(Nd, Gd, Sm, Ce, Eu 및 Dy) 등이 있다. IDMS로 미지의 플루토늄 시료를 정량하는 분석방법에서는 이미 동위원소비와 농도를 정확히 알고있는 일정량의 표준물을 미지의 일정량 시료와 섞어 이를 TIMS를 이용하여 동위원소 비를 측정한다. IDMS 정량에서 표준물 중 한가지 동위원소비가 상대적으로 월등히 크게 되면 미지시료에 대한 넓은 농도범위에서의 적용에 유리하다.

질량분석에서 정밀도와 정확도는 전자기술과 고 진공화 등의 기술발달로 크게 신장되었으며, abundance sensitivity 가 10^{-6} 또는 그 이하로 점차 낮아지게 되었다. 미확인 핵물질 사찰 등과 같이 극미량을 검출하는 경우에는 이와 같은 abundance sensitivity가 낮은 질량분석기가 요구된다. Tandem mass spectrometer를 사용하는 경우에는 μg 단위의 시료내 우라늄과 플루토늄의 분석이 가능하며, 이 경우에는 이온교환수지를 시료가 용해되어 있는 질산용액에 넣어 우라늄과 플루토늄이 선택적으로 흡착되는 특성을 이용하는 방법을 병행한다. 이온교환수지를 이용한 동위원소 희석법의 장점은 우라늄과 플루토늄의 양이 극미량인 경우에도 분석이 가능하다는데 있다. 플루토늄과 우라늄이 흡착된 이온교환수지를 특수 제작된 유리봉을 이용하여 Rhenium filament에 현미경을 이용해 옮긴 다음 collodion 혹은 다른 점성이 있는 물질로 고정하고 질량분석기 이온화 상자에 넣어 우라늄과 플루토늄을 동시에 정량 하는 방법도 보고된 바 있다. 이 방법에서, U/Pu 비는 최소 10

이상이어야 하며, 100 이상일 경우에는 만족스런 결과를 얻을 수 있으나 U/Pu비가 10 이하일 경우에는 플루토늄의 동위원소 비만 측정이 가능하다. 이온교환수지를 이용하는 방법과 동위원소희석법을 병행하여 적용하면 10 pg 정도의 미량 플루토늄 정량이 가능하며, 이와 같은 방법은 핵사찰 등 미확인 핵물질 활동에 대한 모니터링 또는 환경시료 중에서 검출되는 핵물질의 근원을 밝혀내는 방법으로 활용할 수 있을 것으로 생각된다.

우라늄과 플루토늄에 대한 최근의 분석법으로는 핵활동 감시 목적으로 환경시료내의 미량 핵물질의 양을 TIMS와 ICP-MS 분석법을 사용하여 분석한 경우가 있으며, 이 경우 TIMS와 ICP-MS의 분석한계는 각각 10^{-15} g과 10^{-12} g/mL이었다. 이와 같이 bulk 시료내 우라늄과 플루토늄을 분석하는 경우에 TIMS와 ICP-MS 분석법을 병행 또는 개별 사용하는 분석법도 역시 미량의 핵물질을 분석하는데 적합한 방법으로 생각된다.

2. 지표 화합물의 분석법

사용후핵연료로부터 우라늄과 플루토늄을 회수하기 위해서는 용매추출법이 주로 이용되며, 이 때 가장 사용 가능성이 높은 유기화학적 지표물질로는 재처리 시설들에서 사용된 추출제들과 유기 용매를 들 수 있다. 사용후핵연료나 우라늄 광석으로부터 우라늄 또는 플루토늄을 회수하기 위해서는 tri-butyl phosphate(TBP)를 유기용매 하에서 추출제로 사용한다. TBP는 질산 매질로부터 5가와 6가의 악틴족 원소들을 추출하는데 사용하는 강한 추출제이며, TBP는 PUREX 과정에서 mono-와 di-butyl phosphate(MBP와 DBP)로 분해될 수 있다. TBP를 포함한 시료와 몇몇 radiolysis product들의 확인은 TBP가 핵연료의 재처리에 사용되었음을 의미할 수 있으며, 이외에도 지표 화합물로 선정될 수 유기화합물에는 organophosphates와 organophosphonates, amines, amides, miscellaneous solvents 등이 있다.

지표화합물에 대한 물리화학적 특성들은 매우 다양하며, 따라서 시료의 준비와 분석방법 및 채취한 시료의 형태에 크게 영향을 받는다. 예를 들어 PUREX 공정에서 사용된 TBP는 추출 공정에서 부분적으로 가수분해되어 DBP와 MBP로 되며, TBP가 완전히 가수분해되면 인산으로 되고 이 화합물은 전 세계에서 일반적으로 사용되는 물질이다. butylphosponate의 경우는

최종 가수분해 생산물로서 butylphosphonic acid를 생성하며 이 물질은 안정하고 인산보다는 더 좋은 지표물질이 될 수 있다.

가. 시료채취 장비 및 준비

시료채취 장비는 사전에 세척하고 myler bag 같은 불침투성 재질로 밀봉해야 하며, 장비는 TBP가 유출되지 않도록 철저히 확인하고 인증된 것을 사용해야 한다. 시료를 준비하는 과정은 분석 방법, 분석 장비의 형태 및 작동 조건, 시료의 형태, 목표로 하는 화합물 및 분석 소요시간 등에 의존하며, on-site 분석을 위한 시료 제조에는 제한성이 있어 off-site 분석의 경우보다도 시간, 장비 및 용매 등이 더 엄격히 관리되어야 한다. 지표 유기화합물들을 실험실에서 분석하기 위해 주로 사용하는 분석방법으로는 gas chromatography-mass spectrometry(GC-MS), gas chromatography-Fourier transform infrared spectrometry(GC-FTIR), nuclear magnetic resonance spectrometry(NMR) 및 감도가 높은 검출기를 장치한 gas chromatography(GC) 등이 있다. 최근에는 휘발성 화학물질에 대해서 시료 전처리 과정이 간단해졌기 때문에 liquid chromatography mass spectrometry(LC-MS)의 역할이 상당히 증가되고 있다. 위에 제시한 분석 방법들 중에서 GC, GC-MS와 FTIR 방법이 on-site 분석에 적합하며 GC-FTIR 방법은 사용에 불편하고 들고 다니기에도 충분하지 않은 단점이 있다.

나. Gas chromatography

Gas chromatography는 이동상과 작은 지름의 모세관 고정상 사이에서 물질 분배를 통해 화합물은 분리하는 분석방법이다. 이 분석장비는 사용하는 적용 온도에서 분해되지는 않고 증발만 될 수 있는 모든 종류의 화합물을 분석하는데 사용할 수 있으며 carrier gas와 함께 검출기로 용리된 화합물은 carrier gas내에 들어 있는 화합물의 양에 비례하여 signal을 만든다. 이 방법의 장점은 높은 분리효율과 검출의 감도가 매우 높아 휘발성 유기화합물들의 혼합물에 대한 분석정확도와 정밀도가 다른 방법들에 비해 월등 높다는 것이다. Gas chromatography의 검출기 및 검출한계를 살펴보면, 불

꽃 이온화검출기(Flame ionization detector)는 현재 가장 널리 사용되는 검출기로 거의 모든 유기 화합물들에 대해 감응을 보이며 검출한계는 대략 0.5 ng이다. Nitrogen-phosphorus detector(FDP)는 phosphorus와 nitrogen을 포함하는 화합물에 대해서 감도와 선택성이 매우 높으며, 검출한계는 phosphorus와 nitrogen에 대해서 각각 0.5~5 pg과 10~100 pg이다. Flame photometric detector(FPD)는 sulfur를 포함하는 화합물을 검출하는데 가장 널리 사용되는 검출기이며, sulfur 외에 phosphorus에 대해서도 선택성이 있어 이들 종류의 분석에 검출기로서 적합하며 검출한계는 5~50 pg phosphorus/sec와 50~500 pg sulfur/sec이다.

다. Mass spectrometry

질량분광법은 미지 물질에 대한 구조를 밝히거나 이미 알고 있는 화합물을 모니터하고 확인하는데 적용할 수 있는 아주 좋은 분석방법이다. 질량 분석에서는 관심의 대상이 되는 화합물들을 전하를 띤 분자 또는 분자들의 아주 작은 파편들인 전하를 띤 이온들로 이온화시키며 이들 하전된 화학종들은 그들의 질량 대 하전의 비율에 따라 전기적, 자기적 또는 전자기적 장을 사용하여 분리되고 분석된다. Mass spectrometry의 검출한계는 질량분광법의 기법, 장비의 작동 조건, 화합물의 이온화 방법 및 분석할 화합물의 종류 등에 따라 다르나, 일반적으로 0.1 pg~100 ng 사이이다.

라. 기체 크로마토그래피/질량 분석법(GC/MS)

기체 크로마토그래피는 혼합물 중에 들어 있는 기화될 수 있는 성분들을 시간에 따라 분리하는 기술이며, GC를 MS와 연결한 GC/MS에서는 GC에 의해 시간적으로 분리된 각 성분들의 질량 스펙트럼을 얻을 수 있는 분석방법이다. 기체 크로마토그래프와 질량분석기의 연결방법으로는 모세관 컬럼의 연결 방법이 있으며, 모세관 컬럼에서의 운반 기체 유속은 크지 않으므로 충전 컬럼의 경우보다 질량 분석기와의 연결이 훨씬 용이하다. 모세관 컬럼은 질량분석기 이온원에 직접 연결할 수 있는 가장 보편적인 연결 방법이며, 모세관 컬럼을 직접 연결하면 dead volume이 없어서 GC의 성능을 그대로 유지할 수 있는 장점이 있다. 복잡한 혼합물에 들어 있는 성분들의 질

량 스펙트럼을 얻기 위해서는 원칙적으로 시료를 GC에 주입하고 MS를 반복적으로 주사하면 되지만 환경 시료나 생체 시료를 직접 주입하면 GC와 MS를 크게 오염시키는 등 문제점이 있으므로 우선 분석 대상 성분들을 용매 추출 등을 통해 분리한 후 용액 형태로 주입하게 된다. 이 방법에서는 사전 처리된 시료 용액 1 μ L 를 GC에 주입하게 되며 ng 수준으로 존재하는 성분에 대한 질량 스펙트럼을 얻을 수 있다.

마. 적외선 분광법

Fourier transform infrared(FTIR) 분광법은 분자내 진동 결합이 적외선 광선을 흡수한다는 사실을 기본으로 한 분석방법으로, 적외선 분광법에서는 다른 형태의 결합들 예로 분자의 기능기들을 분석할 수 있는 방법이며 질량 분광법에 대한 보조기법으로 선정하면 화합물들의 관능기에 대한 정보를 쉽게 얻을 수 있는 분석방법이다. 자외선 분광법은 기체, 액체 또는 고체 상태의 거의 모든 화합물을 분석하는데 적합하며, 단지, 질소 또는 산소와 같은 분자의 분석에는 제한이 있다. FT-IR은 michelson 간섭계(interferometer)를 이용하여 시간지배 스펙트럼인 인터페로 그램(interferogram)을 얻은 뒤, 이를 Fourier 변환시켜 주파수 지배 스펙트럼을 얻는 방법으로 기존의 dispersive IR에 비해 스펙트럼을 얻는 시간과 감도면에서 많은 이점을 가지고 있을 뿐만 아니라 Fourier 변환을 위해 사용되는 컴퓨터를 이용한 장점들을 포함하고 있으며, 기존의 분산형 IR로는 수행하기 어려운 표면 연구, 미량분석, GC/IR, diffuse reflectance IR 및 microscope의 부착이 가능하므로, 활용이 증가하고 있는 분광법 중의 하나이다. 적외선 분광법의 검출 및 확인한계를 살펴보면, GC-FTIR에서의 검출한계는 화합물에 크게 의존한다. 즉, 매우 극성인 결합들은 강하게 흡착되는 특성으로 인해 매우 낮은 검출한계를 갖으며, 일반적으로 검출한계의 범위는 보통 mid-picogram에서 low-nanogram 사이이고 확인한계는 nano-gram 범위이다.

참고 문헌

1. "Microchemical Microscopy" 1270-course text book, McCrone Research Institute, Chicago, 1999.
2. "Microscopes and Accessories", McCrone Research Institute, Chicago, 1999.
3. A. N. Winchell, "The Microscopical Characters of Artificial Inorganic Solid Substances", McCrone Research Institute, Chicago, 1989.
4. M. Rautio, H. Bjork, V. Hakkinen, O. Kostainen, M-L. Kuitunen, P. Lehtonen. M. Mesilaakso, and M. Soderstrom, "Application of CWC analytical Procedures for Safeguards", STUK-YTO-TR 77, 1995.

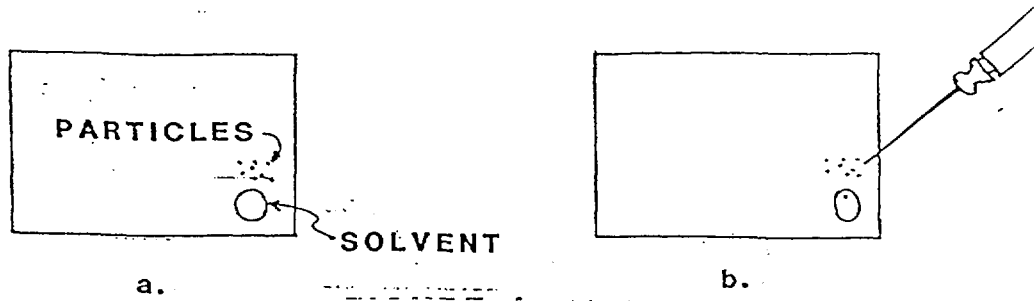


그림 1. 시료의 용해도 측정을 위한 간단한 방법.

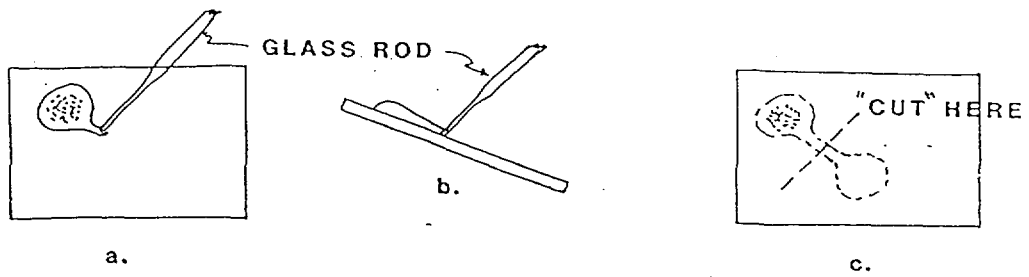


그림 2. 불용성 잔유물을 기울여서 분리하는 방법.

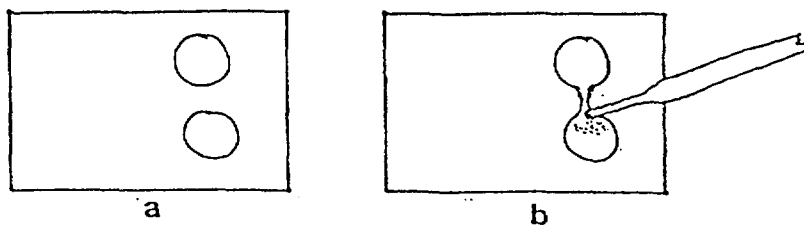


그림 3. 시약을 첨가하는 방법.

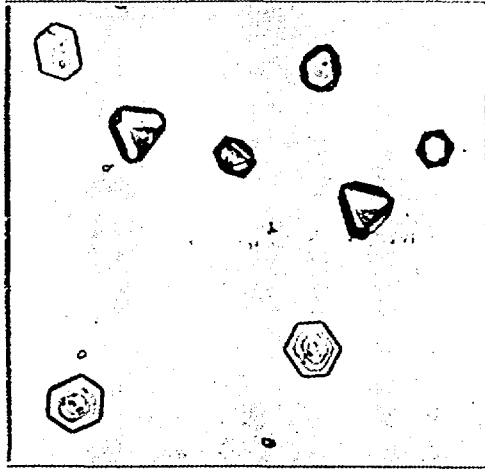


그림 4. $\text{Ag}(\text{NH}_3)_2\text{Cl}$ 결정. $500\times$.

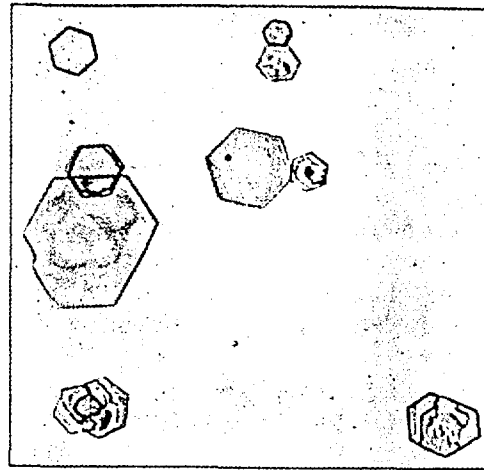


그림 5. PbI_2 결정. $100\times$.

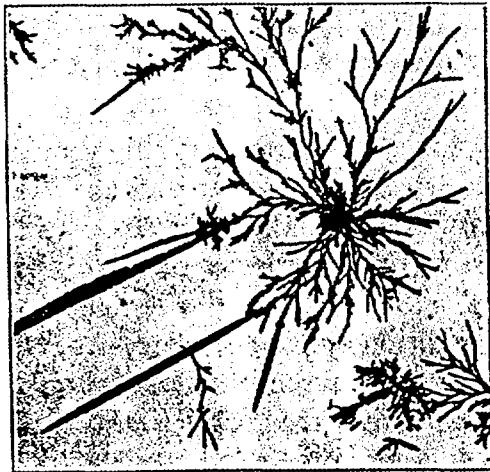


그림 6. $\text{CuHg}(\text{SCN})_4$ 결정. $100\times$.



그림 7. $\text{ZnHg}(\text{SCN})_4$ 결정. $100\times$.

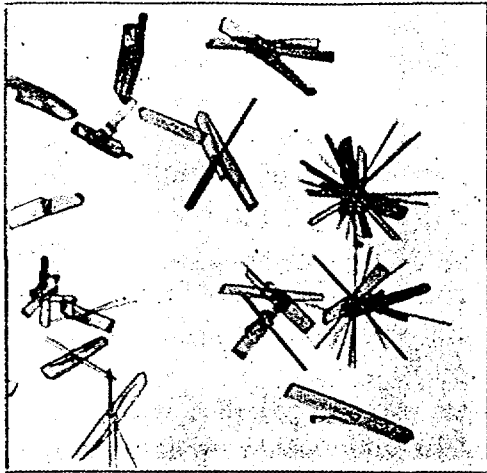


그림 8. $\text{CoHg}(\text{SCN})_4$ 결정. 100 \times .

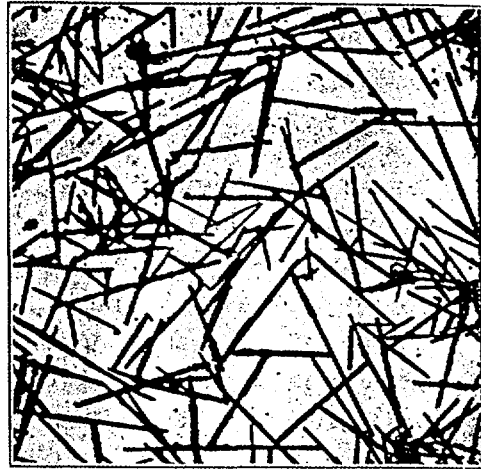


그림 9. Ni-DMG 결정. 400 \times .

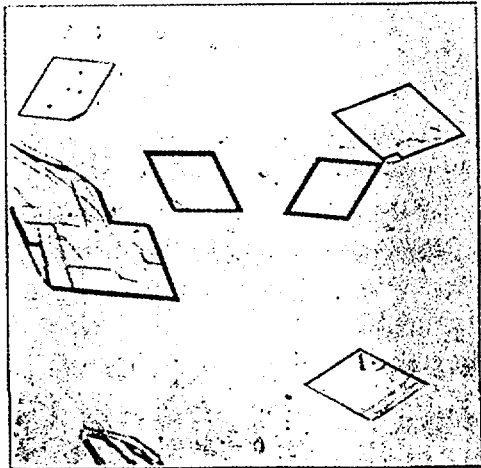
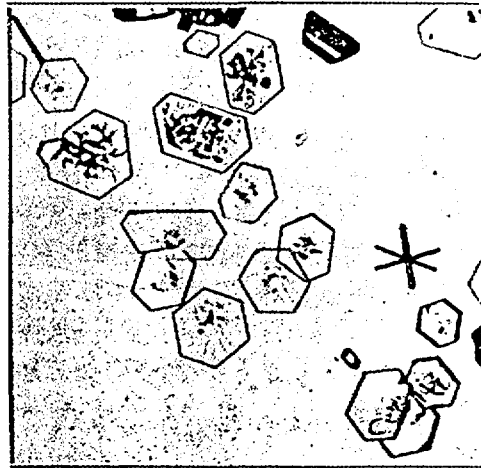


그림 10. Bi에 과량 및 적정량의 CsCl 첨가 후 생성된 $\text{Bi}_3 \cdot 3\text{CsCl}$ 결정. 100 \times .



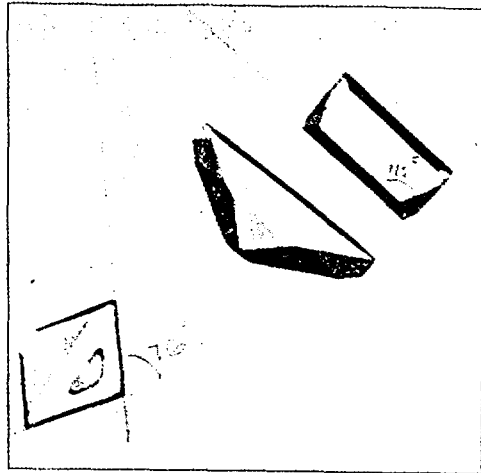
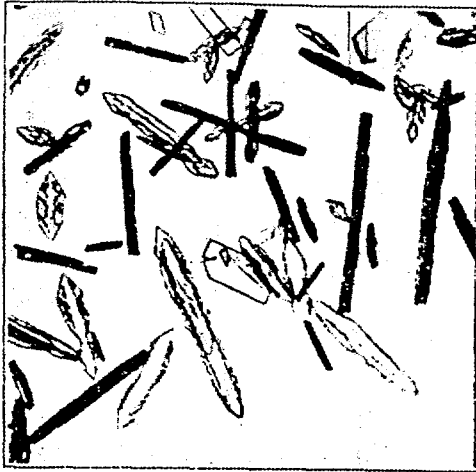


그림 11. AgCr_2O_7 , AgCrO_4 결정. 100×. 그림 12. KClO_4 결정. 100×.

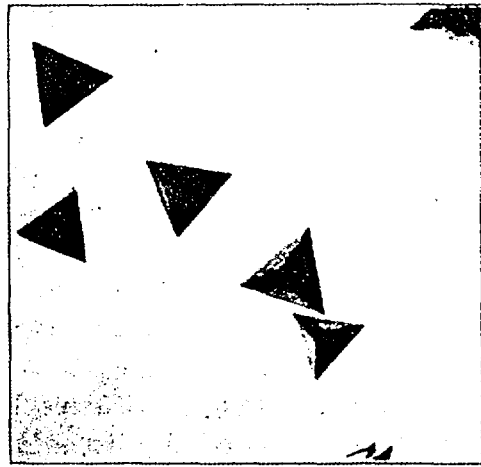
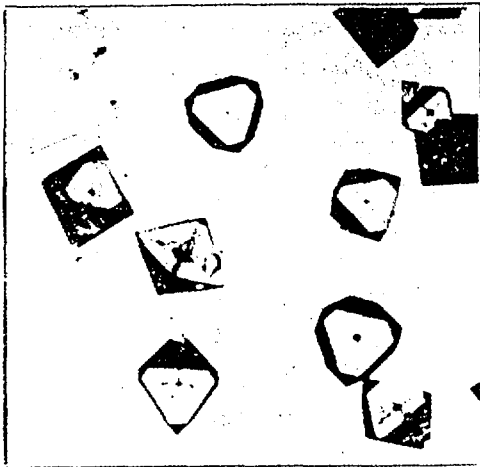


그림 13. K_2PtCl_6 결정. 100×.

그림 14. $\text{Na}(\text{AcO}) \cdot \text{UO}_2(\text{AcO})_2$ 결정.
100×.

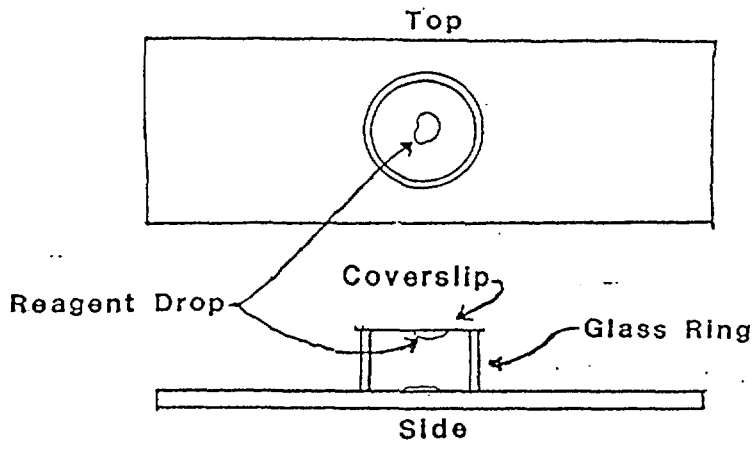


그림 15. 발생 기체 반응용기.

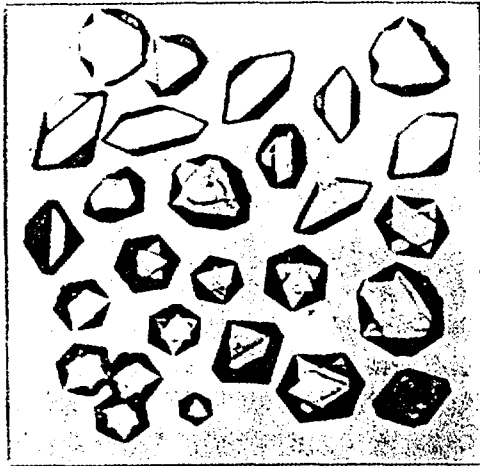


그림 16. $\text{Na}(\text{AcO}) \cdot \text{Zn}(\text{AcO})_2 \cdot 3\text{UO}_2 (\text{AcO})_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ 결정. 100×.

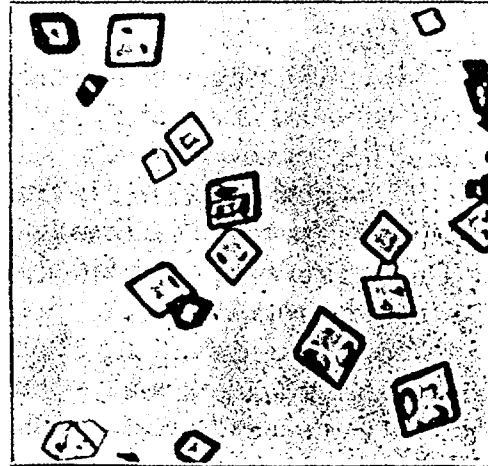


그림 17. $2\text{Ti}_2\text{CO}_3 \cdot (\text{UO}_2)\text{CO}_3$ 결정. 200×.

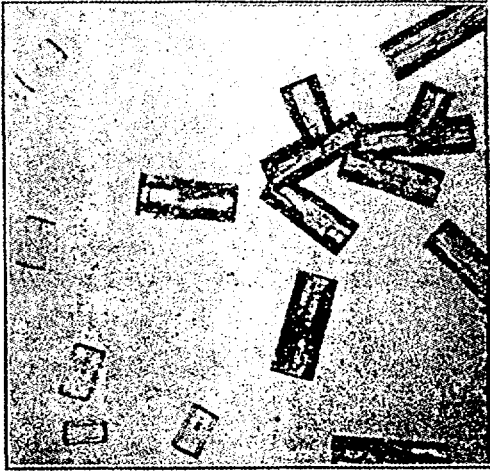


그림 18. UO_2 + Quinoline 결정. $150\times$, $70\times$.

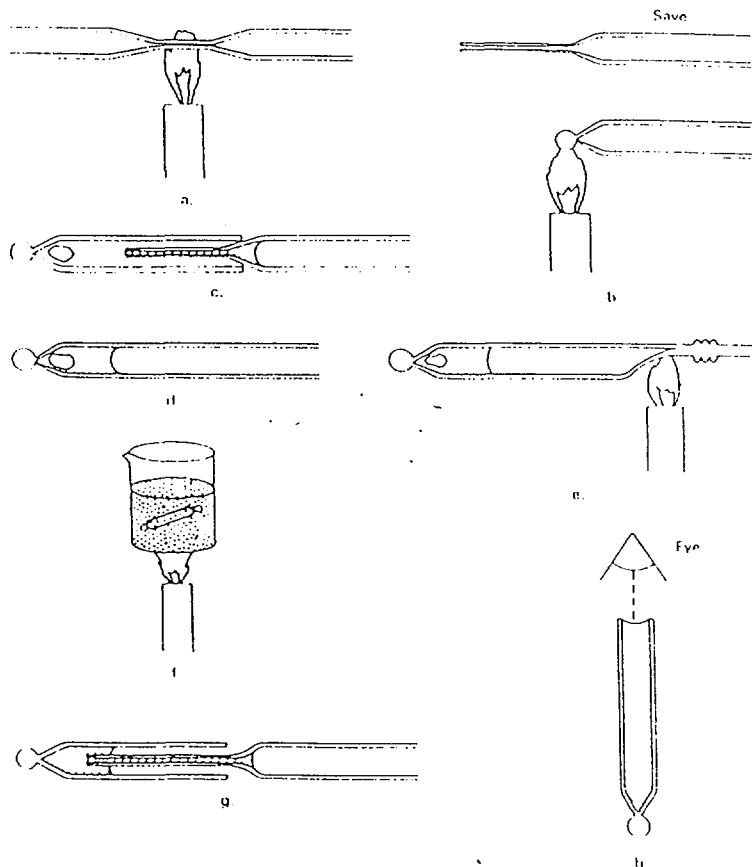


그림 19. Stainless steel 시료의 용해 과정.

부 록

Swipe 시료 전처리 절차서

2001

한국원자력연구소



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자: . . .
개정번호: 0
쪽 번호: 1/19

1. 개요

원자력관련 시설의 미 신고 활동을 감시하기 위해서는 swipe 시료를 채취하고 분석하여 분열성 핵 물질 (^{235}U , ^{239}Pu)의 활용여부를 확인하는 것이 매우 중요하다. 재처리 행위와 시설추적을 위한 swipe 시료를 채취하는 장소는 시설에 관한 설계도면을 자세히 파악한 후, 물질이동 경로를 고려하여 핵 물질이나 화학물질의 오염이 용이한 지점을 선정해야 한다. 핵 물질들은 대개 공기보다 무거우므로 공기 중에 존재하는 양보다는 근거리 비행 후 바닥에 존재할 가능성이 크다. Swipe 시료를 채취하는데 있어서 가장 중요한 사항은 분열성 핵물질(^{235}U , ^{239}Pu)의 활용여부를 결정하고 목적이외의 수단에 의한 오염을 방지하는 것과 사찰의 일반적 원칙인 채취된 시료의 신뢰도를 유지하는 것이다. Swipe 시료의 채취면적은 원칙적으로 100 cm^2 이지만 의심나는 지역은 중점을 두어 넓은 면적을 채취하는 방식이 효과적이다. Swipe 시료채취 방법은 방사화학 실험실과 같이 바닥, 책상, 표면의 침투성이 원활한 표면 재료로 만들어진 장소에서 미량의 오염원을 발견하는데 적합하다. 채취된 시료는 시료채취 기술서 양식에 의거하여 시료에 대한 구체적인 기술, 신뢰도를 유지하기 위한 봉인과 시료보관, 그리고 채취된 시료의 기록이 명확하게 유지되어야 한다.

한편, 분열성 핵 물질의 양을 알기 위해서는 여러 가지의 화학적 방법과 분석 기기를 이용한다. 이들 방법 중에서 Mass Spectrometry(질량분광법) 및 Fission Track Registration Technique(핵분열 트랙기입 기법)과 같은 분석방법 가장 적합한 방법이다. 분열성 핵물질에 중성자를 조사하면 핵분열이 일어나 작은 원소(Sr, Cs 등)들로 분열되며, 이 원소들은 강한 운동에너지를 갖고 있어 고체 표면에 흔적을 남긴다[1].

(양식 1)

Swipe 시료채취 작업기술서

시료 고유번호	
건물 고유번호(지도참조)	
시설/건물 이름	
시료채취 작업자 성명 보조자 성명	
시료채취 장소에 관한 설명: (시료채취장소의 정확한 위치/약도)	
시료에 대한 상세 설명: (시료의 크기 또는 색깔등)	
시료채취 기술: (예를 들면, swipe/swiped area)	
가능한 방사성 또는 화학적 위해요소: (가능한 양)	
시료사진: (예/아니요)	
요구되는 시료분석:	
비 고	
첨부된 설명서의 쪽수:	
최종시료 고유번호:	



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자: . . .
개정번호: 0
쪽 번호: 2/19

본 절차서에서는 swipe 시료의 전처리와 관련하여 시료의 채취절차, 중성자조사 용 시편제작, 에칭, 핵분열 트랙관찰 및 핵분열 입자의 채취방법에 대하여 기술하였다.

2. 적용범위

본 절차서는 swipe 시료의 전처리와 관련하여 시료의 채취절차, 중성자조사 용 시편제작, 에칭, 핵분열 트랙관찰 및 핵분열 입자의 채취방법에 적용한다.

3. Swipe 시료 채취절차[2]

3.1 기구 및 준비물[3]

3.1.1 Survey meter : 알파 방사선 검출용

3.1.2 알루미늄 Foil roll : 50×500 cm

3.1.3 Sampling kit가 들어있는 밀폐용 비닐봉지.

3.1.3.1 시료채취 방법에 대한 Swipe 시료 전처리 절차서와 Swipe 시료 채취 작업기술서(양식-1)

3.1.3.2 유성 펜

3.1.3.3 Talc(분말)가 없는 수술용 장갑

3.1.3.4 Filter paper(Whatman No. 42, 지름 4.5 cm) 한 장이 들어있는 밀폐용 비닐봉지



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자: . . .
개정번호: 0
쪽 번호: 3/19

- 3.1.3.5 빈 밀폐용 비닐봉지 : 20×20 cm
- 3.1.3.6 견출지 : 3×9 cm
- 3.1.3.7 봉인 테이프
- 3.1.3.8 시료보관 용 밀폐용 비닐봉지 : 30×30 cm

3.2 시료채취 방법

3.2.1 시료채취 준비

- 3.2.1.1 시설내 설계도면을 이해하고 핵 물질 이동경로를 예측하여 시료 채취장소를 선정한다. 특히, 오랜 시간동안 먼지가 많이 쌓이는 지점을 선정하는 것이 적합하다.
- 3.2.1.2 작업장소 근처의 편편한 바닥에 알루미늄 호일(2.1.2) 한 장을 펴고, 같은 방법으로 준비한 다른 한 장의 알루미늄 호일에 시료채취 kit(2.1.3)를 열어 내용물을 꺼내어 놓는다. 이때 빈 비닐봉지는 옆의 알루미늄 호일 위에 놓아둔다.
- 3.2.1.3 Swipe 시료 전처리 절차서를 숙지하고 swipe 시료 채취 작업기 술서(양식-1)를 작성한다.
- 3.2.1.4 Filter paper 한 장을 사용하여 시료를 채취하고자 하는 사람(이하 작업자)과 보조역할을 하게 되는 사람(이하 보조자)의 양손을 씻은 후, 밀폐용 비닐봉지에 넣고 control sample[4]이라 명기하여 다시 큰 밀폐용 비닐봉지에 넣고 봉인한다.
- 3.2.1.5 작업자와 보조자가 함께 장갑을 착용한다.
- 3.2.1.6 보조자는 filter paper가 들어있는 작은 비닐봉지와 중간크기의 비닐봉지에 견출지를 사용하여 분석자가 시료를 구분할 수 있도록



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자: . . .
개정번호: 0
쪽 번호: 4/19

표시(label)하고, swipe 시료 채취 작업기술서(양식-1)에 적합하게 기술한다.

3.2.2 시료채취

3.2.2.1 시료채취 전 과정을 통하여 작업자는 항상 핵 물질에 오염된 것으로 가정하고, 보조자는 핵 물질에 대하여 전혀 오염되지 않은 것으로 가정하면서 작업을 수행한다.

3.2.2.2 보조자는 언제나 채취된 시료에 접촉하지 않도록 유의한다.

3.2.2.3 작업자는 선정된 시료채취 장소에서 약 100 cm²의 면적을 고려하여 swipe 시료를 채취한다.

3.2.2.4 가능하다면, 작업자는 보조자의 도움을 받아 swipe 시료의 알파, 베타 및 감마 방사능을 검사하여 그 결과를 시료채취용 비닐봉지에 기록한다.

3.2.3 시료의 봉인

3.2.3.1 작업자는 항상 보조자의 장갑이나, 시료채취용 비닐봉지의 표면과 접촉하지 않도록 유의하여야 한다.

3.2.3.2 작업자는 보조자의 도움을 받아 이미 표시(label)되어 있는 비닐봉지에 채취한 시료를 조심스럽게 넣는다.

3.2.3.3 이러한 과정에서 작업자가 보조자의 장갑에 접촉하였다면, 즉각 작업자와 보조자는 장갑을 새로이 착용하여야 한다.

3.2.3.4 마찬가지로 작업자가 시료용 비닐봉지의 표면과 접촉한 경우, 새로운 비닐봉지를 사용하여야 하며, 새로이 표시(label)하고 이러한 사실을 비닐봉지에 간략하게 기술하여야 한다.



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자: . . .
개정번호: 0
쪽 번호: 5/19

3.2.3.5 보조자는 시료채취가 끝난 비닐봉지를 봉인하고, 시료가 채취되어 있는 작은 봉지를 중간크기의 비닐봉지에 넣은 후, 다시 봉인하여야 한다.

3.2.4 시료채취 후 유의사항

3.2.4.1 시료채취가 끝난 후, 작업자는 가능한 상호오염을 방지하기 위하여 이미 사용하였거나 사용하지 않은 sampling kit의 준비물 모두를 폐기하여야 한다. 그리고 봉인된 시료는 수송에 적합하게 보관하여야 한다.

3.2.4.2 선정된 모든 시료채취장소에서 같은 방법의 시료채취 작업이 이루어져야 한다. 작업자와 보조자는 적어도 시료의 봉인이 끝난 후, 또는 새로운 시료채취 장소에서 시료채취가 이루어지기 전에는 장갑을 벗어도 좋다.

3.2.4.3 시료채취는 한 시설 내에서 적어도 50여 지점에서 이루어져야 하며, 각 지점에 대하여 control 시료 외 6개의 시료가 채취되어야 한다.

4. 중성자조사용 시편제작

중성자조사를 위한 시편제작은 하나로 원자로의 중성자조사용 용기의 크기를 고려하여 swipe 시료 채취용 재료를 사전에 중성자 분석을 통해 불순물 함량을 조사한 후[5] 적절한 여과지와 고체트랙 검출기를 선택하고, swipe 시료의 크기에 따라 지름이 4.5 cm인 여과지를 이용하는 경우에는 사



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자: . . .
개정번호: 0
쪽 번호: 6/19

전 전처리 없이 중성자조사가 가능하므로 이 방법은 직접법으로 명칭하며, 지름이 11 cm인 여과지를 이용하는 경우에는 중성자조사용 용기 크기를 고려하여 여과지를 회화한 다음 그 회분을 Lexan plate 위에 고르게 편 후 중성자조사하므로 이 방법은 간접법으로 명칭 하였다.

4.1 기구 및 준비물

- 4.1.1 Lexan sheet : G. E. plastic co, 두께 1 mm
- 4.1.2 접착 테이프
- 4.1.3 비닐 시트
- 4.1.4 중성자 조사용 용기(Fig. 1 참조)
- 4.1.5 전기로
- 4.1.6 사기 도가니 : 용량 = 50 mL
- 4.1.7 Flexible collodion

4.2 직접법 시편제작 및 중성자조사

- 4.2.1 Swipe 시료를 채취한 여과지를 $6 \times 6 \text{ cm}^2$ 로 자른 Lexan plate 위에 덮은 후 테이프를 이용하여 서로 떨어지지 않도록 접착한 다음 외부를 얇은 비닐로 포장하여 외부로부터 방사성 물질의 오염을 방지한다. 다양한 시료에 대한 중성자조사 준비는 참고사항[6]을 참조한다.
- 4.2.2 준비된 시료는 Fig. 1에 보여주는 바와 같은 중성자조사용 용기에 넣고 용기의 외부에 시료이력과 조사시간 등에 대한 특기사항을 표시한다.



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자: . . .
개정번호: 0
쪽 번호: 7/19

4.2.3 열중성자 조사는 하나로 연구용 원자로를 이용하여 동일한 중성자속 ($\sim 1 \times 10^{13}$ n/s \cdot cm²)으로 시료에 따라 1~10 분간 조사시킨 후[7] 일주일 동안 방치시켜 방사능이 1 mR/hr 이하로 감소 되게 한 후 취급한다.

4.3 간접법 시편제작 및 중성자조사

4.3.1 채취한 swipe 시료를 사기 도가니에 넣고 muffle furnace(전기로) 내에서 500 °C 까지 서서히 온도를 올려 회화하여[8] 유기물질을 제거한 후 회분을 6×6 cm²로 자른 Lexan plate 위에 옮긴 후 flexible collodion[9]을 이용하여 회분을 표면에 고르게 편 다음 자연 건조시킨다.

4.3.2 새로 준비한 6×6 cm²로 자른 Lexan plate를 (3.3.1)에서 준비한 시료 위에 덮은 후 테이프를 이용하여 서로 떨어지지 않도록 붙인 후 다시 외부를 얇은 비닐로 포장하여 외부로부터 방사성 물질의 오염을 방지한다.

4.3.3 준비된 시료는 Fig. 1에 보여주는 바와 같은 중성자조사용 용기에 넣고 용기의 외부에 시료이력과 조사시간 등에 대한 특기사항을 표시한다.

4.3.4 열중성자 조사는 하나로 연구용 원자로를 이용하여 동일한 중성자속 ($\sim 1 \times 10^{13}$ n/s \cdot cm²)으로 시료에 따라 1~10 분간 조사시킨 후[7] 일주일 동안 방치시켜 방사능이 1mR/hr 이하로 감소 되게 한 후 취급한다.



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자:
개정번호: 0
쪽 번호: 8/10

5. 에칭, 트랙관찰 및 핵분열 입자채취

5.1 기구 및 준비물

- 5.1.1 항온조
- 5.1.2 6.25 M-NaOH 용액
- 5.1.3 아세트산
- 5.1.4 광학현미경, 입체현미경
- 5.1.5 Digital camera, Image analyser system
- 5.1.6 Micro-tool
- 5.1.7 TI-MS용 filament
- 5.1.8 1,2-dichloroethane

5.2 에칭 과정[10]

- 5.2.1 중성자를 조사한 Lexan plate를 취하여 증류수로 표면을 깨끗이 세척하여 오염물질을 제거한다.
- 5.2.2 표면을 세척한 Lexan plate는 항온조의 온도가 60 °C이고 용액의 조성이 6.25 M-NaOH인 에칭 용액이 담긴 그릇에 넣고서 10분 동안 저어 주면서 에칭한다.
- 5.2.3 에칭이 끝난 Lexan plate 시료는 3~4 방울의 아세트산이 포함된 증류수 200 mL에 넣고 흔들어서 과잉의 알칼리 성분을 제거한다.
- 5.2.4 알칼리 성분을 제거한 Lexan plate는 소량의 세탁제와 증류수가 담긴 ultrasonic bath에서 10분 씻는다.
- 5.2.5 최종적으로 증류수로 다시 세척한 후 자연 건조시킨다.



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자: . . .
개정번호: 0
쪽 번호: 9/19

5.3 트랙관찰[11]

현미경(200 배율)으로 에칭 면을 관찰하면 Fig. 2와 같은 모양의 트랙을 관찰할 수 있다. 입체현미경과 유성 펜을 이용하여 트랙부분을 표시하여 분열성 핵물질 입자 위치를 표시한다.

5.3.1 Lexan plate에 생긴 핵분열 트랙은 광학현미경을 이용하여 현미경의 배율을 50~400배 범위에서 조정하면서 최적조건으로 트랙을 관찰한다.

5.3.2 입체현미경하에서 트랙들의 위치를 Lexan plate 면에 끝이 가는 유성 펜으로 표시한다.

5.3.3 위치를 표시한 부분들과 일치하는 swipe 시료의 뒷면에 끝이 가는 유성 펜으로 분열성 핵 물질 입자들의 위치를 입체현미경하에서 표시한다.

5.3.4 에칭한 Lexan plate의 단위 면적당 sun-burst 형태의 핵분열 트랙 개수와 blank filter 트랙 개수를 비교하여 시료채취 장소에 대한 분열성 핵물질 오염 정도를 확인한다.

5.4 Digital image analyser를 이용한 트랙개수 측정

5.4.1 현미경관찰을 통하여 sun-burst 형태의 트랙 위치를 표시한 부분을 200 배율의 광학현미경하에서 초점을 정확하게 맞춘다.

5.4.2 Digital camera와 image system을 이용하여 트랙을 PC 모니터 상에서 모양을 선명하게 조절한다.



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자: . . .
개정번호: 0
쪽 번호: 10/19

5.4.3 Digital Image analyser를 이용하여 트랙의 크기, 분포와 개수를 측정한다.[12]

5.5 분열성 핵물질 입자채취

분열성 핵물질 입자들을 절취하여 TI-MS용 filament 위에 올려 놓기 위해서는 1~100 μm 크기의 흔적량 입자들을 10~20 배율의 입체 현미경하에서 분리, 이전, 용해하거나 또는 분석 기기를 사용하여 성분 및 함량을 분석하기 위해 사용되는 입체 현미경과 미세도구(Microtools)[13]들이 필수적으로 필요하다[14].

5.5.1 입체현미경하에서 Fig. 3과 같은 micro-tool을 이용하여 분열성 핵물질 입자가 존재하는 부위를 크기 $0.5 \times 0.5 \text{ cm}^2$ 크기로 절취한다.

5.5.2 TI-MS용 filament 위에 절취한 부분을 올려놓은 후 간접법 시료는 1,2-dichloroethane을 점적하여 Lexan plate를 녹이고, 직접법 시료는 접착제로 TI-MS용 filament의 rhenium stripe위에 고정시킨다 (Fig. 4 참조).



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자:
개정번호: 0
쪽 번호: 11/19

6. 참고 문헌

1. R. L. Fleischer and P. B. Price "Tracks of Charged Particles in High Polymers" Science, Vol. 140 (1963) 1221~1222pp.
2. KAERI-NEMAC/RR-142/94, 핵물질의 화학분석, (1994) pp 3~7.
3. D. L. Donohue, "Strengthening IAEA safeguards through environmental sampling and analysis" J. of Alloys and Compounds, 271-273, (1998) 11~18pp.
4. Control sample : Each standard kit contains seven cotten swipes and mini-grip bags for double bagging. These are used for taking a number of replicate sub-samples from the same location along with a "control swipe of the sampler's hands to check for possible cross-contamination.
5. 여과지와 고체트랙 검출기의 핵물질 바탕 값을 알아보기 위하여, 여과지와 Lexan 고체 검출기에 대하여 중성자 방사화 분석을 하였다. Table 2에는 Lexan plate와 여과지에 대한 NAA 분석결과를 나타냈다. 고체트랙 검출기로 사용할 Lexan plate와 사용하지 않은 여과지에서도 분석결과 U과 Th 등이 검출 한계치(12×10^{-9} mg/cm²) 이상 되지 않아 고체트랙 검출기로 사용이 적합함을 알 수 있었다.
6. 토양 시료내 우라늄 함량은 시료를 곱게 분쇄한 다음 IR 시료를 만들기 위해 도구를 이용하여 pellet화한 후 고체트랙 검출기를 붙인다. 중성자조사와 에칭을 한 다음 단위 면적당 트랙의 수를 세어 표준 검량선을 이용하여 시료내의 우라늄 함량을 측정할 수 있다. 이 방법으로 특별한 화학적인 분리나 전처리 없이 ppm 단위의 우라늄을 정량할 수 있다[15]. 수중의 우라늄 함량을 측정할 경우에는 시료와 서로 다른 농도의 표준용액을 준비한 후 brilliant green 지시약을 가한 다음 두께 125 μ m, 지름 22 mm의 Lexan plate 위에 collodion으로 1:10으로 희석한 시료용액을 일정량 점적하여 말린다. 중성자조사, 에칭 및 단위면적 당 트랙개수 세기 등을 통하여 수중의 우라늄 농도를 ppb 단위까지 정량 할 수 있다[16]. 또는 적은 양의 시료용액을 플라스틱 용기에 담고 그 내부에 고체트랙 검출기를 넣고 밀봉하여 중성자를 조사하고, 에칭 한 후, 트랙의 수를 세어 수중의 핵분열성 물질의 농도를 구하는 직접방법이 있으나 이 방법을 이용할 때는 누수에 의한



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자:
개정번호: 0
쪽 번호: 12/19

방사능 오염에 특히 주의해야 한다. 우라늄을 소량 포함하고 있는 광석을 박편으로 만든 후 고체 트랙 검출기를 붙여 U-238의 알파입자에 의한 트랙을 관찰하거나 중성자를 조사하여, 핵분열 물질에 의한 트랙을 얻은 다음 에칭한 후 트랙의 분포를 관찰하여 우라늄의 분포, 이동, 생성 등에 대한 정보도 얻을 수 있다[17].

- 중성자 조사량이 10^{16} n/cm² 이상이 되면 과도한 조사량으로 인하여 Lexan plate의 주 성분인 탄소, 산소 등의 결합부분이 절단되고 plate 전면이 손상을 입게되어 핵분열에 의한 트랙을 관찰할 수가 없다. 또한, 너무 짧은 조사시간은 흔적량 분열성 핵물질을 확인하는데 어려움이 있다. 따라서 여러 차례의 실험결과 중성자 선 속이 10^{13} n/cm² · sec 인 하나로 연구용 원자로에서는 조사시간을 1-10분으로 하는 것이 적당함을 알 수 있었다.
- 여과지를 회화할 경우에 발생하는 두 가지 문제점으로, 첫째 고온에서의 휘발성이 있는 대표적인 원소인 비소, 카드뮴, 수은등과 같은 원소들의 감소와 Fe, Sb, Pb 및 Cs 등의 염화물 감소, 두 번째 사용 도가니에 유착되어 손실되는 문제점을 고려해야 한다. 회화용 도가니는 fused silica, porcelain, platinum으로 구성되어 있다. 이 중에서 처음 두 종류는 metal oxides, carbonates, other salts와 반응하여 도가니 표면에 silicates 형태로 남는 경우가 있다. 그리고 이런 현상은 회화온도가 높을수록 더하다. 이런 현상을 방지하기 위해서 회화 시에 Magnesium nitrate를 넣어 Magnesium oxide의 완충효과를 이용하는 경우도 있다[18]. 따라서 여과지를 건식 회화할 경우에는 될 수 있는 한 다단계의 온도변화를 시키는 것이 좋다. 참고자료[19]의 Fig. 5와 같이 1단계에서는 drying, carbonizing 과정을 거친 후 2 단계에서 ashing 과정을 거친 후 알려진 바와 같이 550 °C에서 장시간 방치하여 회화를 완료해야 한다[20].
- Flexible Collodion : 보통 시판중인 Collodion은 25mL의 에탄올과 75mL의 에테르를 섞은 용액에 nitro cellulose가 주성분인 pyoxylin 4g을 녹인 용액이다. Flexible collodion은 2% camphor, 3% castor oil, 67% ether와 22% 알코올이 섞인 100mL 용액에 4g의 nitro cellulose를 넣어 녹인 용액이다. 이 용액은 흔적량 입자를 다루는데 아주 필요한 것으로 표면의 오염물질 제거와 복제시, 조직 속에서의 결합부분을 분리시, 유리층의 결합부분을 떼어 낼 때, 흔적량 입자들을 넓게 펼 때, 분석하는 동안 흔적량 입자를 일정위치에 고정이 필요할때 그리고 굴절을 표준용액 대응으로도 사용한다. 이 용액을 사용할 경우에는 화기에 특히 주의해야 한다.



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자: . . .
개정번호: 0
쪽 번호: 13/19

10. 고체트랙검출기로 입자의 트랙을 관찰하는 중요한 방법은 트랙을 크게 하고 그것을 시각적으로 나타내 주기 위해서는 우선적으로 화학적 에칭 기술을 확립하여야 한다. 즉 확대되어 에칭된 트랙의 크기가 보통의 광학현미경으로 그것들을 관찰할 수 있을 정도의 효과적인 크기로 될 수 있는 방법이어야 한다. Lexan plate에 남아있는 핵분열 생성물질이 남긴 흔적을 현미경을 통하여 관찰할 수 있는 1 μm 이상의 크기로 만드는 에칭 과정은 매우 중요하다. 고체트랙 검출기중 무기물 고체트랙 검출기인 운모나 유리에는 불화수소산을 이용하고 유기물 고체 검출기는 유기물질 분해 성능이 뛰어난 수산화나트륨(NaOH)을 이용한다. 에칭 온도는 높은 온도로 인한 빠른 에칭 속도와 Lexan plate의 열에 의한 수축성을 감안하고 Table 1를 참조하여 60 $^{\circ}\text{C}$ 로 하였다. 에칭시간은 1분씩 증가하면서 현미경하에서 관찰하여 Lexan plate 손상도 방지하고 트랙도 잘 관찰할 수 있는 10분을 적정시간 으로 선택하였다. 에칭시간을 20분 이상으로 하는 경우에는 Lexan plate 표면 전체가 손상됨을 알 수 있었다. 보통 무기물질의 트랙 검출기는 불화수소산을 사용하여 트랙 흔적을 현미경으로 관찰할 수 있도록 하나, 유기물질의 트랙 검출기는 진한 알칼리용액을 사용한다. W. Enge는 Lexan을 1~13 N의 다양한 농도의 LiOH, KOH, NaOH 용액으로 에칭 현상을 실험하여, 에칭에 알맞은 알칼리의 선정과 알칼리 농도에 대해 보고한 바 있다[21].
11. 일반적으로 핵분열 트랙 기입분석은 중성자를 조사시킨 Lexan 검출기상의 핵분열 트랙을 피트 혹은 선형 형태로 관찰하고 단위면적 당 트랙밀도를 계산하여 분석하는 방법이다. 선형의 트랙은 에칭시간이 길수록 길어지고 넓어지며, 화학적 부식 율에 따라 일정 원추 각을 지닌 원추형으로 변하는 것으로 알려져 있다. Lexan 검출기상에 생기는 트랙의 밀도는 중성자의 에너지 스펙트럼에 좌우되므로 여러 중성자 반응에 대한 검출기의 감도를 알아야 한다. 감마선량이 증가하면 에칭 율도 증가한다. 에칭 율의 증가는 감마선이 검출기의 분자사슬을 절단하여 평균 분자량을 감소시켜 화학적 부식 율을 증가시키기 때문인 것으로 알려져 있다.
12. 핵분열 트랙을 에칭 하여 현미경하에서 단위면적 당 흔적 수를 센 후 다음과 같은 식으로 부터 미지 시료내 fissile 물질의 농도를 구한다

$$T_d = K \frac{C \times N}{A} \sigma \phi t$$



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자: . . .
개정번호: 0
쪽 번호: 14/19

여기서 Td : track density (number of tracks/cm²)

K : constant and may be identified as track registration
efficiency in solution(in cm)

C : concentration of the element (g/mL)

X : isotopic abundance of the isotope (%)

N : Avogadro number

A : isotopic mass (g)

σ : fission cross-section (cm²)

ψt : the integrated neutron flux (n/cm²)를 의미한다.

상기 식으로 부터 농도가 서로 다른 표준용액들을 이용하여 Td값을 구한 다음 K값을 얻으면 동일 중성자조사 조건하에서의 미지 시료 용액 내에 존재하는 구하고자 하는 핵종의 농도를 구할 수 있다[22]. 또한 알파입자 검출기와 핵분열입자 검출기를 미지의 핵분열성 물질에 이용하면, 함유된 U-235와 Pu-239 중에서 Pu-239는 알파입자 방출과 중성자에 의한 핵분열이 가능하나 U-235는 알파입자 방출 반감기가 길어 핵분열에 의한 감지만이 가능하므로 이들을 각각 구분할 수 있다.

13. 여러 종류의 도구 중에서 탐침, Micropipet, glass block, Needle holder와 탐침을 세척하는 도구 등은 가장 빈번히 사용되는 도구들이다. 이 도구들에 대한 제작방법과 사용방법은 아래와 같다.

탐 침 : 미세 도구의 하나인 탐침으로는 텅스텐이나 몰리브덴 금속으로 만든 금속 탐침이 사용되며, 아주 연약한 표면에서의 흔적량 입자를 취급하기 위해서는 polyethylene 재질의 eyelash 형태의 탐침을 사용한다.

텅스텐 탐침 : 텅스텐 탐침은 nipper를 사용하여 0.52mm 굵기의 텅스텐 선을 절단면이 부서지지 않도록 3cm 정도로 자른 후, 금속선의 절단 부위를 가스버너 또는 알코올 램프의 온도가 가장 높은 불꽃 부위에서 붉은 색이 나타날 때까지 가열한 다음 막대형 아질산소다(NaNO₂)에 쬐으면 발열반응이 일어나면서 아질산소다와 접촉된 부위가 용융되고 날카로운 침이 된다. 처음 금속선으로 탐침을 만들 때는 5초 정도 아질산소다와 접촉시키고 사용 중 무더진 탐침은 1~2초 정도 아질산소다와 접촉시키면 침단이 알맞게 용융이 되어 다시 날카로운 침이 된다. 탐침의 끝은 항상 용융 전후 입체현미경하에



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자: . . .
개정번호: 0
쪽 번호: 15/19

서 관찰하여 사용 목적에 적합하도록 끝을 만들어 사용한다. 날카로운 형태를 갖춘 탐침에는 과량으로 아질산소다 성분이 잔류되어 있으므로, 잔류 아질산소다 성분은 따뜻한 물이 담겨있는 비커에 담아 수회 씻은 후 침을 fine, medium, coarse로 구분하여 바닥에 양면 테이입을 붙인 깨끗한 플라스틱상자(2×3×0.25 inch 크기)에 상하를 구분하여 보관한다.

Polyethylene Needles : 폴리에틸렌 침은 고밀 도의 폴리에틸렌 관을 이용하여 제조하며, 두께 1/4 inch인 관의 2~3 inch 끝 부분을 알코올 램프로 고르게 천천히 가열하면서 좌우 반대 방향으로 당겨서 만든다. 이 조작을 수회 반복하여 두께 5 μ m의 폴리에틸렌 침을 만든 후 2~3cm 길이로 폴리에틸렌 관을 절단하여 사용한다. 이 침은 내구성이 좋아 오래 사용할 수 있다.

Eyelash needles : 아주 가는 관을 3mm 정도 절단하여 중간 굵기의 텅스텐침 끝에 에폭시 수지를 사용하여 붙인 후 이 부분을 알코올이나, xylene 용액으로 씻어서 깨끗이 한 다음 텅스텐 침과 함께 플라스틱 상자에 보관하여 사용한다.

Tweezer : 작은 조각들을 집거나 이동이 필요할 때 사용하는 집게로 항상 침단을 점검해야 하며 필요시는 400 grit의 거친 sand paper와 고운 2,000 grit paper를 이용한다.

Cutting tools: 필요한 시료 부분을 절단하는 경우, 여러 종류의 칼을 용도에 맞게 선택하여 사용해야 한다. Double edge stainless steel blade는 작은 집게 형태의 blade breaker 도구를 사용하면 필요한 크기와 다양한 각도로 칼날을 안전하게 자를 수 있다.

Polyethylene Micropipet : Polyethylene Micropipet은 혼적량 입자 취급시 매우 중요한 도구이다. 이 도구를 사용하면 오직 입체 현미경하에서만 다룰 수 있는 아주 작은 입자를 취급할 수 있다. 또한 표면장력을 이용하여 용매의 작은 방울을 만들 수 있으며, 작은방울을 얻기 위해서는 pipet 끝의 구멍 크기를 조절해야 하며, Tube 대신에 상용의 1~10 μ L micropipet tip을 이용하여 만들 수도 있다. Micropipet 은 제작하여 용기에 넣어 보관사용하며, 각기 사용할 용액들(Amyl acetate, Nonane, 굴절률 표준용액)을 tip의 끝 부분이 3mm 이상 잠기게 하여 사용한다.

Glass Block : Slide glass 위의 시료를 적당한 높이에서 관찰하고 조작하기 위해서, 하부는 가죽을 붙여 현미경의 stage를 보호하게 하고 상부는 post-it을 붙여 사용한다.

Slide glass를 위에 얹어 놓고 사용할 때는 밀리는 것을 방지하기 위해서 glass block



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자: . . .
개정번호: 0
쪽 번호: 16/19

을 이용한다. 손 조작을 용이하게 하는 높이이므로 시료 물질 내에 포함된 흔적량 입자의 분리 및 이동을 수월하게 할 수 있으며, 다양한 여과지 표면의 작은 입자들을 옮길 경우 glass block을 사용하면 탐침을 낮은 각도로 조절하여 사용할 수 있기 때문에 여과지 표면의 손상됨이 없이 많은 입자들을 모을 수 있고 필요한 부분을 절단할 때 적절한 힘을 가하기에 편리하다. 가열이 필요한 경우에도 glass block이 오랫동안 온기를 유지할 수 있기 때문에 온도가 높은 상태에서의 미세 관찰이 가능하다. glass block 위에서 작업을 하면 현미경 stage plate의 손상을 방지할 수 있고 미세 조작시 손 떨림을 방지할 수 있다.

14. A. S. Teetsov "Particle isolation, manipulation and mounting for additional analysis" McCrone research institute, USA, 1501E-course.
15. D. E. Fisher, Homogenized fission track determination of uranium in whole rock geologic samples" Anal. Chem., Vol.42, No.3 (1970) 414~416pp.
16. R. H. McCorkell and Y. F. Huang, " Discharge counter for the determination of uranium in water by the fission track method" Rev. Sci. Instrum., Vol. 48, No. 8, (1977) 1005~1009pp.
17. K. Thiel, R. Saager and Stupp. "Some applications of uranium tracing in geological samples using thermal neutron induced fission" Nucl. Tracks. Radiat. Meas. Vol.15 (1988) 775~778pp.
18. E. B. Sandell and H. Onishi "Photometric Determination of Traces of Metals General Aspects" John Wily & Sons 1978, 131~138pp
19. 손 세철 외, "흔적량 핵물질 탐지 기술개발" KAERI/TR-1552/2000, 40p.
20. U-04-RC. Vol.11" Uranium in biological and environmental materials"
21. W. Enge, et al., "Etching behaviour of the lexan polycarbonate plastic detector" Nuclear Instruments and Methods 127(1975) 125~135pp.
22. N.K. Chaudhuri et al., "Application of fission track registration technique in the estimation of fissile materials analysis of plutonium in solutions of complex matrices" J. of radioanalytical chemistry, Vol.33(1976) 53~65pp.



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자:
개정번호: 0
쪽 번호: 17/19

Table 1. 다양한 고체트랙검출기와 에칭조건

Detector	Composition	Etching Condition	Remark
Marcrofol-N	(C ₁₆ H ₁₄ O ₃)	6N-NaOH, 50°C 35%-KOH, 60°C	Bayer Chemical Ltd.
CR-39	Poly-Diethylene glycol bis-ally carbonate	6N-NaOH, 70°C	Pershore-Moulding Ltd (UK)
Lexan	Poly-Bis-phenol-aceton carbonate, (C ₆ H ₁₄ O ₃)	6.25N-NaOH, 70°C	GE-plastics
Hostaphan	Polyethylene-teraphtalate	33%6N-NaOH + 33% H ₂ O + 33% CH ₃ OH, 40°C	
CTA	Cellulose triacetate (C ₁₂ H ₁₆ O ₈)		Kodack film
LR-115	Cellulose nitrate	2.5N-NaOH 50°C, 3h	Kodack-Pathe (France)
CN-85	Cellulose nitrate (C ₆ H ₈ O ₉ N ₂)	2.5N-NaOH 60°C, 20-30 min.	Kodack-Pathe(France)
SR-85	Poly-Diethylene glycol bis-ally sulphonate	6.6N-NaOH 70°C	Higher sensitive than CR-39
Muscovite Mica		48%-HF 20°C, 30 min.	1x10 ¹¹ n/cm ² ≤ High background
Soda lime glass		48%-HF 20°C, 30 min.	"
Phosphate glass		10N-NaOH 50°C	"



Swipe 시료 전처리 절차서

제정일자: 2001. 1. 2.
개정일자:
개정번호: 0
쪽 번호: 18/19

Table 2. NAA results of Swipe, Air filter, and Lexan plate

Element	Smear filter	Blank Filter	Air Filter	Blank filter	Lexan plate
Al	6.46E-03	6.05E-05	1.15E-01	7.88E-02	3.60E-05
As	1.12E-05	5.06E-07	2.08E-05	-	
Ba	6.43E-04	-	2.67E-02	2.20E-02	
Ca	1.42E-02	-	3.22E-02	2.28E-02	
Cl	1.58E-02	6.08E-04	3.51E-02	2.21E-02	1.40E-04
Co	2.19E-05	1.03E-07	2.10E-06	3.05E-07	1.32E-07
Cr	1.07E-03	9.06E-06	2.28E-05	1.18E-05	1.23E-06
Cs	1.68E-06	-	2.29E-06	-	
Fe	3.48E-02	3.68E-05	2.33E-03	1.97E-07	
K	6.21E-03	2.41E-05	3.09E-02	2.46E-02	
La	1.42E-05	1.14E-07	7.90E-06	4.48E-06	
Mg	5.59E-03	-	1.25E-02	-	
Mn	2.69E-04	1.44E-06	2.67E-04	7.76E-05	8.61E-07
Mo	1.04E-04	8.06E-07	-	-	
Na	4.23E-03	1.29E-04	5.70E-02	4.72E-02	1.53E-05
Sm	1.37E-06	1.03E-08	9.96E-07	8.85E-07	3.03E-08
Th	4.28E-06	-	1.80E-06	1.09E-06	
U	1.05E-05	<1.2E-10	<1.2E-10	<1.2E-10	<1.2E-10
V	1.23E-05	-	-	-	9.97E-08
Zn	1.16E-05	4.75E-06	1.54E-02	1.24E-04	3.95E-06

unit : mg / cm²

BIBLIOGRAPHIC INFORMATION SHEET

Performing Org. Report No.	Sponsoring Org. Report No.	Standard Report No.	INIS Subject Code
KAERI/TR-1840/2001			
Title / Subtitle	Development of Detection Techniques for a Single-Particle of Fissile Material(II)		
Project Manager and Department	S. C. Sohn(Nuclear Chemistry Research Team)		
Researcher and Department	W. H. Kim, Y. J. Park, B. C. Song, Y. S. Jeon, K. Y. Jee, H. Y. Pyo(Nuclear Chemistry Research Team) E. H. Kwack(Safeguard Technology Department)		
Publication Place	Taejeon	Publisher	KAERI
			Publication Date
			2001. 6.
Page	45p.	Ill. & Tab.	Yes(o), No ()
			Size
			29 cm.
Note			
Classified	Open(o), Restricted(), ___ Class Document	Report Type	Technical Report
Sponsoring Org.		Contract No.	
Abstract (15-20 Lines)	<p>The Analytical methods and detection limit of signatures, and the particle discrimination techniques of unknown particles by microscope were investigated in this technical report. In connection with pre-treatment of swipe samples, sampling and treatment of particles, etching method, fission track observation and the preparation of sample for the neutron activation analysis were also described in this technical report.</p>		
Subject Keywords (About 10 words)	Particle-discrimination, Signature, Swipe sample, Pretreatment.		

서 지 정 보 양 식

수행기관보고서번호	위탁기관보고서번호	표준보고서번호	INIS 주제코드		
KAERI/TR-1840/2001					
제목 / 부제	혼적량 핵물질 탐지기술 개발(II)				
연구책임자 및 부서명	손 세철(원자력화학연구팀)				
연구자 및 부서명	김 원호, 박 용준, 송 병철, 전 영신, 지 광용, 표 형열(원자력화학연구팀), 곽 은호(통제기술개발실)				
출 판 지	대 전	발행기관	한국원자력연구소	발행년도	2001. 6.
페 이 지	45p.	도 표	있음(o), 없음()	크 기	29 cm.
참고사항					
비밀여부	공개(o), 대외비(), _ 급비밀		보고서 종류	기술보고서	
연구위탁기관			계약 번호		
초록 (15-20줄내외)	<p>본 기술보고서에서는 현미경을 이용한 미지입자 판별기술에 대해 기술하고 지표 물질의 분석방법 및 검출한계에 대해 기술하였다. 또한, swipe 시료 전처리와 관련하여 시료 채취절차, 중성자조사용 시편제작, 에칭방법, 트랙관찰 및 핵분열 입자채 취와 관련된 전처리 절차를 작성하여 기술하였다.</p>				
주제명 키워드 (10단어 내외)	입자판별, 지표물질, swipe 시료, 전처리.				