

미 신고 핵 활동시설 사찰을 위한 swipe 시료 취급 방법

The Handling Method of Swipe Samples for the Detection of the Undeclared Nuclear Activities

표형열, 손세철, 박용준, 송병철, 곽은호

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

Swipe 시료들은 시료채취장소에서의 핵 활동과 사용 핵 물질에 대한 정보를 Swipe 시료에 붙은 입자들을 분석하여 얻을 수 있는 매우 우수한 방법이다. 그러므로 이 방법을 이용하면 미 신고 핵 활동에 대한 보다 나은 정보를 얻을 수 있다. 따라서 swipe 시료 채취, 취급방법이 매우 중요하다. 이를 위하여 swipe 시료를 취급하는 데 필요한 절차를 여러 관련 자료와 실험을 통하여 방법을 확립하였다.

Abstract

Swipe samples are well suited to the particle analysis technique which gives the maximum amount of useful information about the nuclear materials and activities present in the sampled location. So, it provides an enhanced ability to detect an undeclared nuclear activities. Since the method for sampling and subsequent handling of the swipe samples is of importance, the method for handling swipe samples through experimental works as well as literature searches.

1. 서론

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[1]. 핵 물질들은 대개 공기보다 무거우므로 공기 중에 존재하는 양보다는 근거리 비행 후 바닥에 존재할 가능성이 크다. Swipe 시료를 채취하는데 있어서 가장 중요한 사항은 분열성 핵 물질(^{235}U , ^{239}Pu)의 활용여부를 결정하고 목적 이외의 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 침투 성이 원활한 표면 재료로 만들어진 장소에서 미량의 오염원을 발견하는데 적합하다. 채취된 시료는 시료채취 기술서 양식에 의거하여 시료에 대한 구체적인 기

술, 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 핵 물질에 중성자를 조사하면 핵분열이 일어나 작은 원소(Sr, Cs 등)들로 분열되며, 이 원소들은 강한 운동에너지를 갖고 있어 고체 표면에 흔적을 남긴다[2].

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

2. Swipe 시료 채취방법[3]

2.1 기구 및 준비물

2.1.1 Survey meter : 알파 방사선 검출용

2.1.2 알루미늄 Foil roll : 50×500 cm

2.1.3 Sampling kit가 들어있는 밀폐용 비닐봉지.

2.1.3.1 시료채취 방법에 대한 Swipe 시료 전처리 절차서

2.1.3.2 유성 펜

2.1.3.3 Talc(분말)가 없는 수술용 장갑

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

2.1.3.5 빈 밀폐용 비닐봉지 ; 20×20 cm

2.1.3.6 견출지 : 3×9 cm

2.1.3.7 봉인 테이프

2.1.3.8 시료보관 용 밀폐용 비닐봉지 : 30×30 cm

2.2 시료채취 방법

2.2.1 시료채취 준비

2.2.1.1 시설내 설계도면을 이해하고 핵 물질 이동경로를 예측하여 시료 채취장소를 선정한다. 특히, 오랜 시간동안 먼지가 많이 쌓이는 지점을 선정하는 것이 적합하다.

2.2.1.2 작업장소 근처의 편편한 바닥에 알루미늄 호일(2.1.2) 한 장을 펴고, 같은 방법으로 준비한 다른 한 장의 알루미늄 호일 에 시료채취 kit(2.1.3)를 열어 내용물을 꺼내어 놓는다. 이때 빈 비닐봉지는 옆의 알루미늄 호일 위에 놓아둔다.

2.2.1.3 Swipe 시료 전처리 절차서를 숙지한다.

2.2.1.4 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 sample이라 명기하여 다시 큰 밀폐용 비닐봉지에 넣고 봉인한다.

2.2.1.5 작업자와 보조자가 함께 장갑을 착용한다.

2.2.1.6 보조자는 filter paper가 들어있는 작은 비닐봉지와 중간크기의 비닐봉지에 견출지를 사용하여 분석자가 시료를 구분할 수 있도록 표시(label)한다.

2.2.2 시료채취

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

2.2.2.2 보조자는 언제나 채취된 시료에 접촉하지 않도록 유의한다.

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

2.2.2.4 가능하다면, 작업자는 보조자의 도움을 받아 swipe 시료의 알파, 베타, 감마방사능을 검사하여 그 결과를 시료채취용 비닐봉지에 기록한다.

2.2.3 시료의 봉인

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

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

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

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

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

2.2.4 시료채취 후 유의사항

2.2.4.1 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.

2.2.4.2 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.

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

3. 중성자조사용 시편 제작

중성자조사를 위한 시편제작은 하나로 원자로의 중성자조사용 용기의 크기를 고려하여 swipe 시료 채취용 재료를 사전에 중성자 분석을 통해 불순물 함량을 조사한 후 적절한 여과지와 고체 트랙 검출기를 선택하고, swipe 시료의 크기에 따라 지름이 4.5 cm인 여과지를 이용하였다.

3.1 기구 및 준비물

3.1.1 Lexan sheet (G.E. plastic co, 두께 1mm)

3.1.2 접착 테이프

3.1.3 비닐 시트

3.1.4 중성자 조사용 용기(fig. 1 참조)

3.1.5 전기로

3.1.6 사기 도가니 (용량: 50 mL)

3.1.7 Flexible collodion

3.2 직접법 시편제작 및 중성자조사

3.2.1 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.

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

3.2.3 열중성자 조사는 하나로 연구용 원자로를 이용하여 동일한 중성자속($\sim 1 \times 10^{13} \text{ n/s} \cdot \text{cm}^2$)

으로 시료에 따라 1~10 분간 조사시킨 후 일주일 동안 방치시켜 방사능이 1mR/hr 이하로 감소 되게 한 후 취급한다.

4. 에칭, 트랙관찰 및 핵분열 입자채취

4.1 기구 및 준비물

- 4.1.1 항온조
- 4.1.2 6.25M-NaOH 용액
- 4.1.3 아세트산.
- 4.1.4 광학현미경, 입체현미경
- 4.1.5 Digital camera, Image analyser system
- 4.1.6 Micro-tool
- 4.1.7 TIMAS용 filament
- 4.1.8 Micro-tool

4.2 에칭 과정

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

4.3 트랙관찰

현미경(200 배율)으로 에칭 면을 관찰하면 Fig. 2와 같은 모양의 트랙을 관찰할 수 있다. 입체현미경과 유성팬 을 이용하여 트랙부분을 표시하여 분열성 핵 물질 입자 위치를 표시한다.

- 4.3.1 Lexan plate에 생긴 핵분열 트랙은 광학현미경을 이용하여 현미경의 배율을 50~400 배 범위에서 조정하면서 최적조건으로 트랙을 관찰한다.
- 4.3.2 입체현미경하에서 트랙들의 위치를 Lexan plate 면에 끝이 가는 유성 팬으로 표시한다.
- 4.3.3 위치를 표시한 부분들과 일치하는 swipe 시료의 뒷면에 끝이 가는 유성 팬으로 분열성 핵 물질 입자들의 위치를 입체현미경하에서 표시한다.
- 4.3.4 에칭한 Lexan plate의 단위 면적당 sun-burst 형태의 핵분열 트랙개수와 blank filter 트랙 개수를 비교하여 시료채취 장소에 대한 분열성 핵물질 오염 정도를 확인한다.

4.4 Digital image analyser를 이용한 트랙개수 측정

- 4.4.1 현미경관찰을 통하여 sun-burst 형태의 트랙 위치를 표시한 부분을 200 배율의 광학현미경하에서 초점을 정확하게 맞춘다.
- 4.4.2 Digital camera와 image system을 이용하여 트랙을 PC 모니터 상에서 모양을 선명하게 조절한다.
- 4.4.3 Digital Image analyser를 이용하여 트랙의 크기, 분포와 개수를 측정한다.

4.5 분열성 핵물질 입자채취

분열성 핵물질입자 들을 떼어내어 TIMAS-filament위에 올려 놓기 위해서는1~100 μ m 크기의 흔적량 입자들을 10~20 배율의 입체 현미경하에서 분리, 이전, 용해하거나 혹은 분석 기기를 사용하여 성분 및 함량을 분석시 사용되는 입체 현미경과 미세도구(Microtools)[4]들이 필수적으로

필요하다.

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

4.5.2 TIMS-filament위에 떼어낸 부위를 올려놓은 후 시료를 접착제로 TIMS-filament의 rhenium stripe위에 고정시킨다(fig. 4참조).

5. 결과 및 고찰

5.1 Swipe용 여과지, air filter와 Lexan plate의 분석

Swipe 시료 채취에 적합한 filter paper의 선정과 고체트랙 검출기의 바탕 값을 알아보기 위하여, whatman filter paper 및 Lexan 고체트랙 검출기에 대한 성분을 분석하였다. 또한, 우라늄 취급시설에서 채취한 swipe 시료의 부착 성분을 알아보기 위하여 각각을 3장씩 취하고 하나로 중성자 조사용 rabbit에 각각 담아 비과피 중성자 방사화분석(NAA)을 수행하였다.

Table 1에는 air filter, Lexan plate와 swipe 시료에 대한 NAA 분석결과를 나타냈다. air sampler용 여과지는 먼지 포집효율과 기계적 강도에 중점을 두어 재질은 튼튼하였으나, NAA의 분석결과에서 알 수 있듯이 불순물이 많았다. 따라서, 흔적 량의 분열성 핵 물질을 감지하기 위해서는 질긴 재질의 air filter보다는 Whatman No. 42, 여과지가 swipe 시료 채취용으로 적합한 것으로 판단되었다. 시설 내에서 채취한 swipe 시료의 먼지들을 중성자 방사화 분석결과 Fe, Al, Ca, Cr, K, Mg, Na 등이 주성분임을 알 수 있었으며, 고체트랙 검출기로 사용할 Lexan plate에서는 전혀 우라늄이 검출되지 않았기 때문에 고체트랙 검출기로 사용할 수 있었다.

5.2 중성자 조사

핵분열 트랙기입 분석을 위하여 준비한 시료와 동일한 크기의 Lexan plate를 테이프로 잘 붙이고 얇은 비닐로 싸 외부로부터 방사성 오염을 방지한 후 중성자 조사용 rabbit에 넣어 하나로 연구용 원자로 내에서 동일한 중성자 선속($\sim 1 \times 10^{13} \text{ n/s} \cdot \text{cm}^2$)으로 2분간 조사시켰다. 시료는 중성자를 조사한 후, 총 감마 방사선량이 1mR/h 이하가 되도록 10일 동안 방치하였다.

중성자 조사량이 10^{16} n/cm^2 이상이 되면 과도한 조사량으로 인하여 Lexan plate의 주성분인 탄소, 산소 등의 결합부분이 절단되고 plate 전면이 손상을 입게되어 핵분열에 의한 트랙을 관찰할 수가 없다. 또한, 짧은 조사시간 후 얻은 plate에서는 에칭 후 나타난 트랙을 관찰하여 흔적 량의 분열성 핵 물질을 확인하는데 어려움이 있었다. 따라서, 여러 차례의 반복 실험결과를 종합하여 중성자 선속이 $10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 인 하나로 연구용 원자로에서는 조사시간을 2분으로 하는 것이 적당함을 알 수 있었다.

5.3 에칭

고체트랙검출기로 입자의 트랙을 관찰하는 중요한 방법은 트랙을 크게 하고 그것을 시각적으로 나타내 주기 위해서는 우선 화학적 에칭기술을 확립하여야 한다. 다시 말하자면, 확대되어 에칭된 트랙의 크기는 보통의 광학현미경으로 쉽게 관찰할 수 있는 정도의 효과적인 크기로 만들 수 있는 방법이어야 한다.

Lexan plate에 나타난 핵분열 생성물질이 만든 흔적을 현미경을 통하여 관찰할 수 있는 $1 \mu\text{m}$ 이상의 크기로 만드는 에칭 과정이 매우 중요하다. 고체트랙 검출기중 무기물 고체트랙 검출기인 운모나 유리를 에칭하기 위하여 불화수소산을 이용하고, 유기물 고체트랙 검출기는 유기물질 분해 성능이 뛰어난 수산화나트륨(NaOH)을 이용한다. 에칭 온도는 높은 온도로 인한 빠른 에칭 속도와 Lexan plate의 열에 의한 수축성을 감안하고 Table 2를 참조하여 $60 \text{ }^\circ\text{C}$ 로 하였다. 에칭시간은 1분씩 증가하면서 현미경으로 관찰하여 Lexan plate 손상도 방지하고 트랙도 잘 관찰할 수 있는 10분을 적정시간으로 선택하였다. 에칭시간을 20분 이상으로 하는 경우에는 Lexan plate 표면 전체가 손상됨을 알 수 있었다.

6. 결론

본 연구에서는 미신고 핵활동 감시와 핵물질을 사용하는 시설에 대한 핵물질 오염을 감지하기 위한 필수적인 기술을 확립하기 위해 수행하였다.

첫 단계로 사용할 swipe용 filter와 Lexan 내의 불순물 성분분석(중성자 방사화 분석), 중성자 조사 조건(1×10^{13} n/cm² · sec, 5min) 및 핵분열 트랙감지를 위한 예칭 조건(6.25 M - NaOH, 10 min, 60°C) 등을 확립하였다. 또한, 광학현미경을 이용하여 Lexan 고체 트랙검출기내 핵분열 입자에 의한 트랙의 존재 유·무를 확인하고, 확인된 위치의 거울상 image로 swipe 시료내 흔적량 분열성 핵물질 존재를 감지하고 확인된 분열성 핵물질을 swipe 시료에서 떼어내어 질량분석기 (thermal ionization mass spectrometer)로 동위원소 비와 원소분석을 수행할 수 있도록 절차서를 만들어 추후 핵사찰 시료의 흔적량의 분열성 핵물질 입자 분포와 양을 구하여 시설내의 핵물질에 의한 방사성 오염정도를 파악할 수 있는 방법을 확립하는 방향으로 연구를 확장할 예정이다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

참고 문헌

1. D. L. Donohue, " Strengthening IAEA safeguards through environmental sampling and analysis" J. of Alloys and Compounds 271-273 (1998) 11-18pp.
2. R L. Fleischer and P. B. Price " Tracks of Charged Particles in High Polymers " Science, Vol. 140 (1963) 1221-1222pp.
3. KAERI-NEMAC/RR-142/94, 핵물질의 화학분석, pp 3-7 참조.
4. Anna S. Teetsov " Particle isolation, manipulation and mounting for additional analysis " McCrone research institute, USA, 1501E-course.

Table 1. NAA Results of Smear, 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

Table 2. Summary of Etching Conditions for Various Track Detectors

Detector	Composition	Etching Condition	Remark
Macrofol-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 ₁₆ 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.	$1 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \leq$ High background
Soda lime glass		48%-HF 20°C, 30 min.	“
Phosphate glass		10N-NaOH 50°C	“

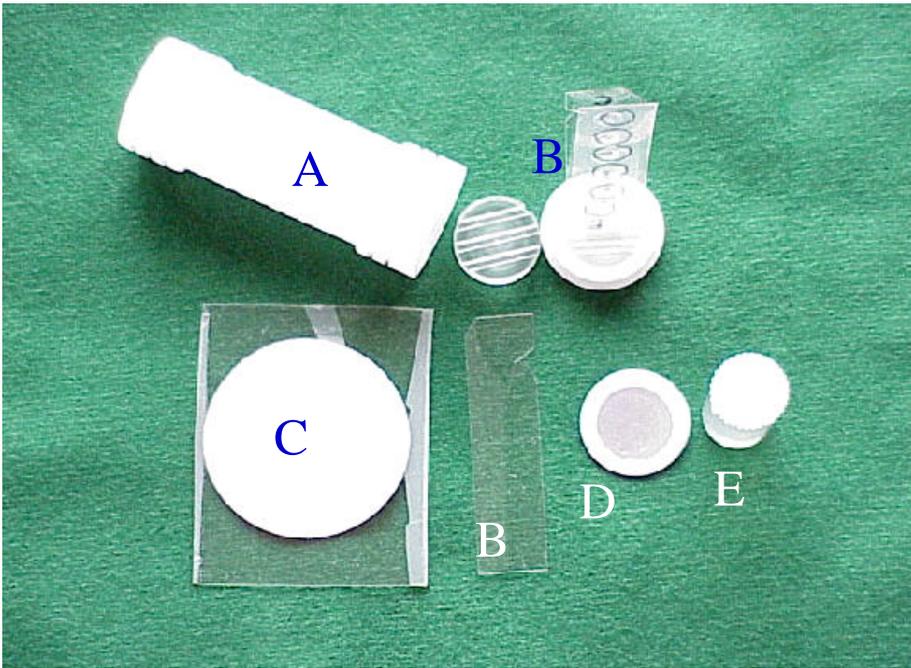


Fig. 1 ;
A: Rabbit, B: Lexan film, C: Air filter, D: Membrane filter,
E: .

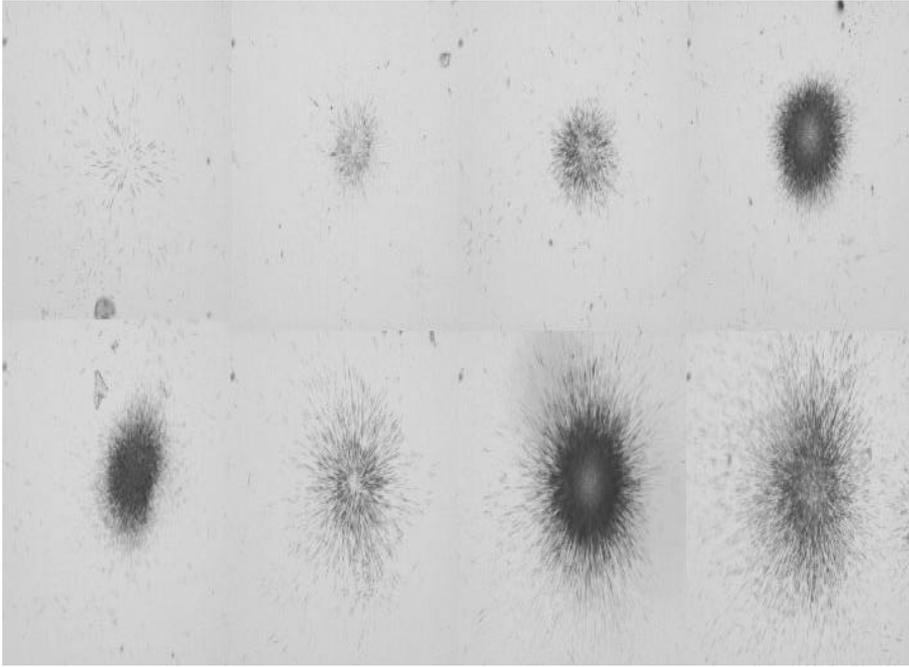


Fig. 2

. (200

가
)



Fig. 3
micro - tool.

가

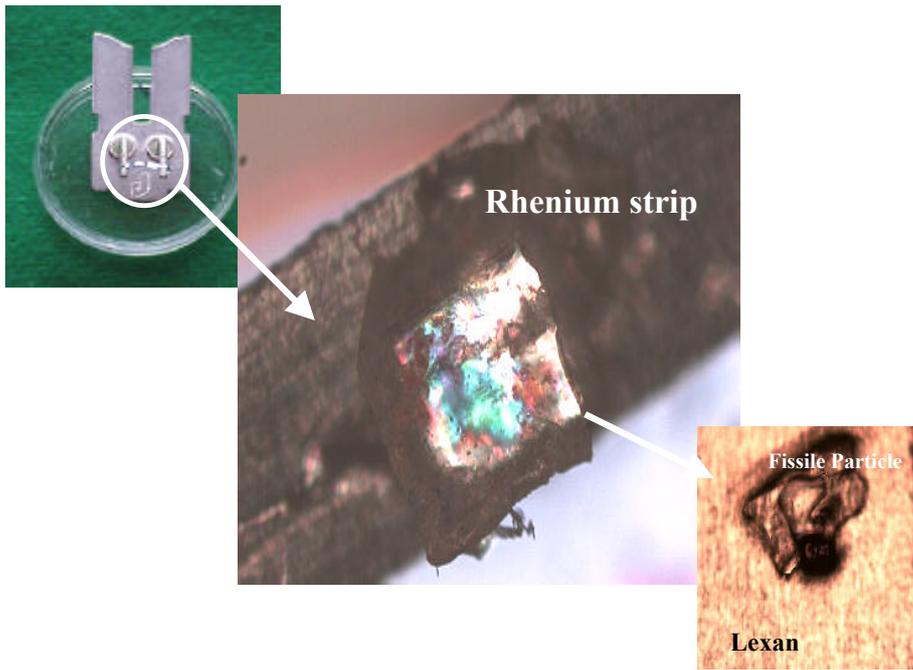


Fig. 4 filament rhenium stripe Lexan TI-MS .