

加速器質量分析技術(AMS)의 原理 및 應用

朴育植 · 禹亨柱

韓國資源研究所 分析研究部

요약 : 수 MV급 탄뎀형 가속기와 정전형, 자장형 질량분석기를 결합함으로써 존재비가 극히 작은 동위원소 측정이 가능해진다. 수 MeV로 가속이 되면 분해에 방해가 되는 모든 분자이온들이 제거되며, 탄뎀형 가속기에서는 음이온으로부터 가속이 개시되므로 몇몇 음이온을 형성하지 못하는 동중원소의 간섭으로부터 자유로워지기 때문에 고감도분석이 실현될 수 있다. 이외에 음이온을 형성하는 동중원소들은 주로 이온함인 최종 검출기에서의 유효 전하에 따른 에너지손실 차이를 이용하여 효과적으로 제거할 수 있다. 현재는 주로 장반감기 방사성동위원소인 ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl 과 ^{129}I 등의 측정법이 확립되어 천연시료 중에서 동위원소 존재비 10^{-12} 에서 10^{-15} 까지의 정량이 가능하며, 원자수로 환산한 검출하한은 10^5 개가 된다. 또한 해당 원소를 기준으로 소요 시료량은 대부분 mg 정도로 충분하다. 지금까지는 불가능했던 이러한 특징으로 인해 지난 수년간 AMS(Accelerator Mass Spectrometry)가 활용되어 온 연구분야는 지구과학(기후학, 우주화학, 빙하학, 수문학, 해양학, 퇴적학, 화산학 및 광물탐사), 인류 및 고고학(연대측정), 그리고 물리학(천체물리, 핵 및 입자물리) 등으로 다양하다. 이외에 생의학 및 재료과학 분야에서도 AMS를 활용하고자 하는 노력이 계속되고 있다. 본 해설에서는 가속기질량분석기술의 특징, 원리, 장치 및 활용분야 등을 소개하고자 하며, 이로써 관련 분야의 연구 활성화에 기여하고자 한다.

1. 서론

지금까지 지질학적 변동, 운석 및 우주선의 이력, 인간의 진화 및 신진대사에 관한 정보를 얻는 데 방사성 동위원소들이 널리 사용되어 왔다. 반감기가 1년 이하인 단반감기 동위원소들은 재래식 감쇠계수법(decay counting)을 사용함으로써 고감도 측정이 가능하다. 반감기가 10억년 이상인 동위원소들은 자연계 내의 함량이 상대적으로 많으며, 안정된 감쇠 부산물의 축적 정도를 측정함으로써 연대측정에 활용될 수 있다. 반면에 반감기가 중간 영역인 10^3 년에서 10^6 년 사이에 있는 방사성동위원소들의 정량에 감쇠계수법을 사용하기는 일반적으로 곤란하며 지구나 태양계에서 발생한 관심 있는 여러 과정들은 주로 시간규모로 이 영역에 속한다. 대략 30개 이상의 원소들이 반감기가 이 영역에 있는 동위원소들을 가지고 있으며, 신기술인 AMS를 활용함으로써 이들 중 ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl 과 ^{129}I 등

다섯 개의 동위원소들을 자연계 존재수준 이하인 10^{-15} 까지 측정할 수 있는 길이 열려 있다. 이 외에도 방사성동위원소인 ^{32}S , ^{41}Ca , ^{59}Ni , ^{60}Fe 과 Os, Pt, Ir, B, P 및 Sb 등의 안정동위원소에 관한 가능성 조사가 완료된 상태이다.

Fig. 1에 지각을 구성하고 있는 안정동위원소들의 평균 상대함량과 지구 표면에 존재하는 방사성동위원소들의 존재비를 같이 나타내었다.¹ 방사성동위원소들의 존재비는 안정동위원소들의 경우에 비해 $10^{10} \sim 10^{15}$ 정도 작다. 방사성동위원소를 직접 계수하는 방법은 원자수가 달수로 환산한 반감기보다 작은 경우 감쇠계수법에 비해 우위를 가지며, 이 경우 1 개월당 감쇠계수율은 1 이하가 된다. 경우에 따라 재래식 방법에 의한 천연시료 측정이 가능하나 소요 시료량이 수천 내지 수만 배 이상이 된다. 천연수 중의 ^{36}Cl 정량을 예로 들면 재래식 방법을 위해 수천 리터의 물에서 추출한 40g 정도의 염소가 필요하나, AMS 측정의 경우 단지

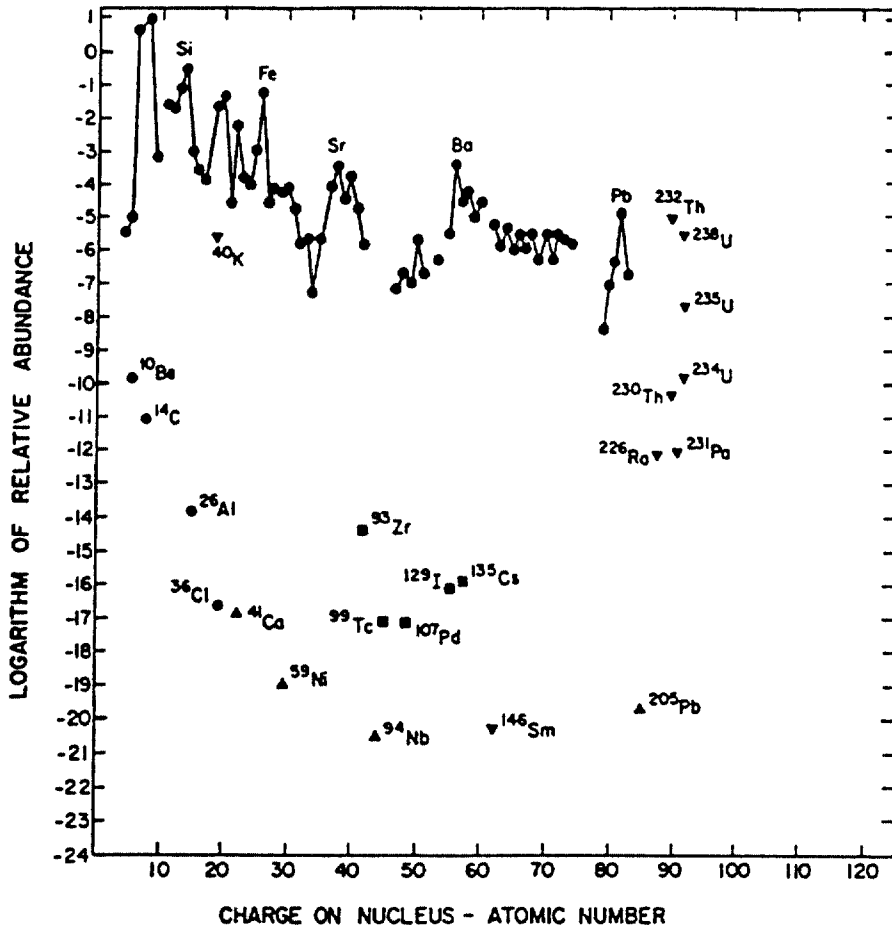


Fig. 1. The relative abundances of the stable elements in the earth's crust are shown together with the relative abundances of some long-lived radioisotopes. The radioisotopes shown as solid circles (●) are generated mainly by cosmic rays. The inverted solid triangles (▼) are survivors from element formation prior to the formation of the solar system. The solid triangles (▲) are created by neutron capture and the solid squares (■) are from the spontaneous fission of uranium 238.

1mg이면 충분하다. 여타 극미량원소 측정법에 비해 백 그라운드가 아주 낮기 때문에 AMS는 또한 시료 중의 극미량 원소정량에도 활용될 수 있으며², microprobe 이온원을 조합함으로써 1 μ m 분해능으로 시료 표면의 2차원적 주사 분석도 가능하다.

AMS의 역사는 1939년으로 거슬러 올라간다. Alvarez와 Cornog가 버클리의 60인치 사이클로트론을 이용하여 질량수가 3인 동중원소, ^3He 및 ^3H 의 안정성을 연구하다가 천연 ^3He 를 우연히 발견했으며, 이때 대기 중의 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 비율이 10^{-7} 이 된다고 발표하였다.³ 실재는 존재비가 1.37×10^{-6} 이다. ^3He 실험은 입

자가속기를 질량분석에 활용한 효시가 될 뿐만 아니라 AMS를 이용하여 핵물리 문제를 해결한 첫번째 실험이기도 하다. 이후 오랜 동면 끝에 1977년 사이클로트론이 ^{14}C , ^{10}Be 등의 동위원소측정에 활용될 수 있음을 밝힌 Muller⁴와 음이온의 불안정성 때문에 동중원소인 ^{14}N 을 ^{14}C 으로부터 효과적으로 분리시킬 수 있음을 발견한 로체스터 그룹⁵에 의해 실질적인 AMS의 역사가 시작되었다. 곧이어 맥매스터와 로체스터의 천연 ^{14}C 측정결과가 보고되었고, 그 뒤를 그레노블의 ^{10}Be 측정, 로체스터의 ^{36}Cl 측정이 잇게 되었으며, 1990년 현재 전 세계적으로 약 30개의 AMS 시설이 운영되고 있

Table 1. Negative ions used for AMS measurements of cosmogenic radioisotopes.

Radioisotope ion	$T_{1/2}(y)$	Stable isobar	Negative ion of stable isobar
$^{10}\text{Be}^{16}\text{O}^-$	1.6×10^6	$^{10}\text{B}^{16}\text{O}, ^9\text{Be}^{17}\text{O}$	yes, yes
$^{14}\text{C}^-$	5,730	^{14}N	no
$^{26}\text{Al}^-$	7.2×10^5	^{26}Mg	no
$^{36}\text{Cl}^-$	3.0×10^5	$^{36}\text{Ar}, ^{36}\text{S}$	no, yes
$^{41}\text{CaH}_3^-$	1×10^5	$^{41}\text{KH}_3, ^{41}\text{KDH}$	no, yes
$^{129}\text{I}^-$	1.6×10^7	^{129}Xe	no

다.⁶

초기에는 연대측정, 하전쿼크 및 초중원소 연구에 AMS를 활용하기 시작했으며, 현재는 활용분야가 고고학, 예술, 천체물리, 약학, 기후학, 우주선물리, 환경물리, 지구연대학, 수문학, 핵물리, 해양학, 고고인류학, 입자물리, 고체물리, 화산학, 재료과학, 그리고 지질학 등 다방면으로 확산되었다. 몇몇 경우를 제외하고 대부분 AMS 측정에는 탄뎀형 가속기에 의한다. 이는 동위원소측정에 방해가 되는 안정동위원소들이, 많은 경우

안정한 음이온을 형성하지 못하는 점을 이용하기 위한 것이다. Table 1에 널리 활용되고 있는 장반감기 우주선 유발 동위원소를 볼 수 있다.

2. AMS의 원리 및 특징

재료과학 및 광물탐사에 이용되는 안정동위원소를 제외하고는 AMS 분석법이 확립된 대부분의 동위원소들은 우주선유발 방사성동위원소(cosmogenic radio-

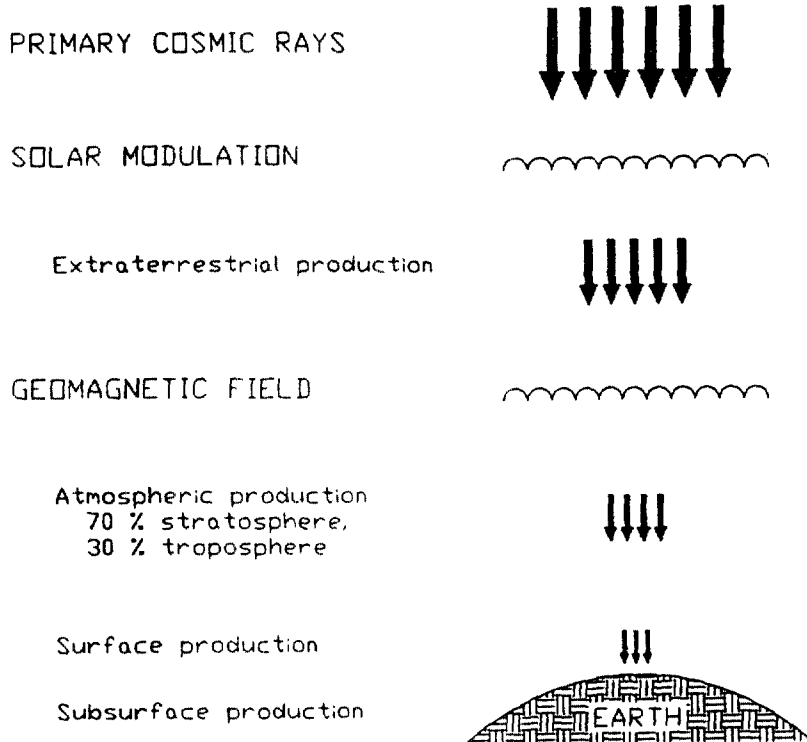


Fig. 2. Schematic diagram of galactic cosmic-ray intensity, factors which influence it, and the resulting cosmogenic nuclide production on earth and near interplanetary space.

nuclide)들이다. 우주선유발 방사성동위원소는 직접 또는 간접적으로 우주선에 의해 유발된 핵반응에 의해 생성된 동위원소들을 일컫는다.⁷ Fig. 2에서 유추해 볼 수 있듯이 대기권 밖의 외계에 있는 물질에서 이러한 동위원소의 농도가 가장 높게 나타나며, AMS가 개발되기 전까지는 우주선유발 동위원소의 적용 대상은 감도상 주로 혜성, 달 등 대기권 밖의 물질에 국한되었다. 그러나 여기서는 논의 범위를 지구권으로 제한하기로 한다. 대다수 이러한 동위원소들은 2차 중성자에 의해 유발된다. 우주선이 지구에 입사될 때 우선 대기권과 만나게 되며, 동위원소의 약 70%는 성층권에서, 30%는 대류권에서 생성된다.⁸ 대기의 구성성분은 질소(78%), 산소(21%) 및 아르곤(0.9%)이므로 우주선유발 방사성 동위원소는 대부분 질량번호가 40 이하이다. 질소, 산소로부터 생성되는 장반감기 동위원소는 ¹⁴C(5,730년) 및 ¹⁰Be(1,600,000년)이며, Ar으로부터 생성되는 동위원소로는 ²⁶Al(716,000년), ³²Si(108년), ³⁶Cl(301,000년) 및 ³⁹Ar(269년)을 들 수 있다. 대기층에서 우주선의 세기가 약 1/1000 정도로 감쇠되지만 지표에서도 우주선 유발 핵종이 생성된다. 대기층에서는 생성되지 않는 ⁴¹Ca(100,000년)이나 저 에너지 중성자단면적이 큰 ³⁶Cl이 이에 해당된다. 지표 밑 수 m 깊이에서는 우주선이 급속히 흡수 소멸되며, muon 결국은 중성미자(nutrino)만이 반응에 참가한다. 앞에서 언급한 바와 같이 외계물질 내의 동위원소 농도가 매우 크므로 운석 등을 통한 이들의 지구권 내의 유입이 특정 동위원소 농도에 영향을 줄 수 있다. ²⁶Al의 경우가 효과가 약 10%에 달함이 최근 측정결과에 의해 밝혀졌다.

질량분석법(mass spectrometry)은 각 원자나 분자들은 각기 고유한 질량을 가지고 있다는 사실에 기초를 두고 있다. 질량 분석기는 대개 (i) 원자 및 분자 이온 형성; (ii) 전장을 이용한 수 kV까지의 가속; (iii) 질량 대 전하비(mass-to-charge ratio)의 차이를 이용한 분리(Table 2 참조); 그리고 (iv) 검출기를 이용한 이온계수 또는 파라메이컵을 이용한 전류측정 등 네 단계로 구동된다. AMS도 기본과정은 마찬가지이나 이온 에너지를 수 MeV로 높이게 되며, 구체적으로 다시 언급하게 되겠지만 에너지를 높임과 아울러 음이온을 활용함으로써 고감도의 동위원소 측정이 가능하게 된다. 일반 질량분석법이 유용하고 널리 쓰이는 방법이지만 질량분해능이 커야 된다는 점 때문에

Table 2. Four types of analysis stages used in mass spectrometer. Any two of these elements placed in series will select particles that have unique mass-to-charge and energy-to-charge ratio.

Type of analysis	Quantity selected
Magnetic field	Mass \times energy / charge ²
Electrostatic field	Energy / charge
Velocity selector	Mass / energy
Cyclotron resonance	Mass / charge

감도가 제한된다. 동중원소간의 질량 차이는 대개 아주 작아서 ¹⁴C과 ¹⁴N을 보면 M/ Δ M이 84,000이나 된다. 이 경우 동중원소 분리는 슬릿의 폭을 아주 좁힘으로써만 가능하며, 이로써 시스템을 통과하는 이온의 효율이 아주 작아지게 된다. 반면 AMS의 경우 적절히 동중원소 및 분자이온의 간섭을 배제할 수 있기 때문에 슬릿을 크게 열어 최대효율을 얻을 수가 있다.⁹

AMS의 검출 하한은 주로 백그라운드에 의해 좌우되며 안정동위원소의 경우 10⁻¹²(ppt), 방사성동위원소는 10⁻¹⁶, 이상입자(exotic particles)의 경우는 10⁻¹⁹ 정도이다. 여기서는 장반감기 방사성동위원소 측정에 중점을 둔다. 장반감기란 측정 시간에 비해 반감기가 매우 큰 경우를 말하며, 이는 방사성 감쇠에 의존하지 않고 직접 해당 원소수를 셀 수 있는 조건이다. 탄소 동위원소비 ¹⁴C/¹²C가 자연수준인 1.2 \times 10⁻¹²일 때 1mg 탄소 내에는 6 \times 10⁷개의 방사성 탄소원자가 존재하며, AMS에 의해 대개 한 시간 이내에 1% 정도 계수가 가능하나 이 시간 내에 단 한 개의 ¹⁴C 원자만이 붕괴할 확률을 갖는다. 반감기가 5,000년보다 짧은 단반감기 동위원소들은 재래식 감쇠계수법에 의해서 정밀한 측정이 가능하다.

AMS 측정시의 주요 백그라운드는 크게 오염에 의한 동종의 동위원소의 검출(contamination)과 해당 동위원소와 동일한 거동을 하며 최종 검출기까지 동행하는 기기백그라운드(instrumental background) 두 가지로 대별할 수 있다. 오염은 시료채취, 처리 및 최종 시료 준비 과정에서 유입되며, ¹⁴C, ¹⁰Be 및 ¹²⁹I의 경우 특히 감도에 영향을 준다. 고감도 AMS를 위해서는 기기백그라운드에 해당되는 산란이온 및 간섭분자(interfering molecule) 제거와 동중원소(isobar) 분리가 가능해야 하며, 이들이 효율적으로 이루어지는 경우

mg 정도의 시료로도 많은 천연 방사성동위원소들의 측정이 가능하다. 이들 중 산란이온 및 간섭분자 제거만이 실현된다면 방사성동위원소 측정은 어렵지만, 1ppb 정도의 안정동위원소 측정이 가능하며 이 때 검출 하한은 방사성핵종에 의한 백그라운드에 의해 결정된다.

2.1. 산란(scattering)

시스템 내부 표면에서 산란되거나 잔류 가스와의 충돌에 의해 전하수가 바뀐 이온들은 Table 2와 같은 질량, 에너지 선별요소들을 다단을 사용하여 제거가 가능하다.

2.2. 분자간섭 제어

대부분의 질량 분석계에서 Table 3과 같은 분자간섭

현상을 보이고 있으며, 재래식 질량 분석기에서 감도를 결정하는 주된 요인이 된다. 1976년 Purser가 이온의 에너지를 수 MeV 정도로 가속하는 경우 이러한 분자간섭 문제를 해결할 수 있을 것이라는 제안을 함으로써 AMS의 기초를 마련하였다.¹⁰ 수 MeV의 입자가 얇은 가스 셀이나 박막을 통과하면 몇 개의 전자를 잃게 되며 전하수는 종 모양의 통계적 분포를 갖게 된다. 원자 이온은 안정한 상태로 머물러 있는 반면, 분자이온은 불안정한 상태가 되어 소위 쿨롱폭발(Coulomb explosion)에 의해 두 개 내지 세 개의 파편으로 분해된다. 이들 분자이온의 수명은 아주 짧아서 세 개의 결합전자가 떨어져 나간 경우 10^{-9} 초가 되는 것으로 알려져 있다.

가벼운 원소의 경우 세 개 이상의 전자가 떨어져 나갈 확률이 3MeV에서 대해 50% 정도 되므로 고전압전

Table 3. Information about radioisotopes measured routinely at natural levels with AMS.

	Radioisotope				
	¹⁰ Be	¹⁴ C	²⁶ Al	³⁶ Cl	¹²⁹ I
Half-life (years)	1.6×10^6	5730	7.05×10^5	3.0×10^5	1.57×10^7
Stable isotopes	⁹ Be	¹² C, ¹³ C	²⁷ Al	³⁵ Cl, ³⁷ Cl	¹²⁷ I
Stable isobars	¹⁰ B	¹⁴ N*	²⁶ Mg*	³⁶ Ar*, ³⁶ S	¹²⁹ Xe*
Molecular interferences	⁹ BeH	⁷ Li ₂ , ¹² CH ₂ , ¹³ CH		¹² C ₃ , ¹⁸ O ₂ , ³⁵ ClH	
Chemical form	BeO	C, CO ₂	Al ₂ O ₃	AgCl	AgI
Terminal voltage (MV)	7.3	2	7.5	8	5
Charge state	3	3	7	7	5
Energy (MeV)	24.7	8	60	64	30
Sample size (mg) †	0.2	0.25	3	2	2
Background ($\times 10^{-15}$)	3	7	1	2	20
Ion source current (μ A)	12	7	1.5	8	3
Ion source efficiency	5×10^{-3}	0.09, 0.08	2.05×10^{-3}	0.03	0.01
Stripper yield	0.54	0.42	0.35	0.32	0.10
Accelerator efficiency	0.28	0.71	0.43	0.18	0.23
Overall efficiency	7.5×10^{-4}	1.5×10^{-2}	3.8×10^{-4}	1.7×10^{-3}	2.3×10^{-4}
Run time (minutes)	10	7	40	30	20
Atoms per sample ¶	2×10^5	2×10^5	4×10^5	5×10^5	2×10^5
Decay counting interval (years) ‡	1100	3	250	86	1130

*These isotopes do not form negative ions.

† Sample size (for the element only) needed for 10% precision.

¶ The number of atoms of radioisotope in the original sample needed for 10% precision.

‡ The time it would take to count 100 radioactive decay events for the given number of atoms placed in a detector that is 100% efficient.

극 내에서 양이온을 음이온으로 바꾸는 스트리핑(striping) 반응을 이용하는 탄뎀형 가속기가 이런 측면에서도 이상적인 유형이라 할 수 있다. 대상 원자 이온의 전하수는 스트리핑효율 및 여타 간섭 등을 고려하여 대개 3+ 이상을 택하게 되며, 측정에 사용되는 전하수는 한 가지이므로 분자파편들과 아울러 다른 전하수의 입자들을 가속기 후단에서 추가로 제거해야 한다.

2.3. 동중원소 분리

방사성동위원소는 궁극적으로 안정동위원소로 변하게 되며 베타붕괴시 방출되는 에너지는 총 질량에 비해 무시되므로 모핵종과 자핵종의 질량은 거의 같다. 동중원소간섭은 AMS에서 가장 문제가 되는 것으로서 이러한 동중원소를 제거할 수 있는 일반적인 방법은 없으므로 경우에 따라 다음과 같은 방법들을 선택적으로 사용할 수밖에 없다.

- 1) **화학적 분리법** : ^{36}Cl 으로부터의 ^{36}S 의 1차 제거에 유용하며 시약의 순도가 문제시되어 상대적으로 10^{-6} 에서 10^{-9} 이 한계임.
- 2) **음이온 사용법** : Table 3과 같은 몇몇 동중원소들은 음이온 형태로는 존재할 수 없으므로 완벽한 제거가 가능함.
- 3) **비정거리 차이 이용법** : 경원소에서 동중원소의 원자번호가 해당 동위원소의 원자번호보다 큰 경우 검출기 전단에 적절한 두께의 흡수체를 위치함으로써 동중원소의 완전 제거가 가능함. 이로써 계수율도 낮출 수 있지만 현재로서는 ^{10}Be - ^{10}B 분리에만 유용함.¹¹
- 4) **저지능 차이 이용법** : 매질에서의 이온의 에너지 손실(dE/dX)이 원자번호의 제곱에 비례하는 특징을 이용하는 것으로서, 동중원소의 세기가 10^4 배 이하일 때 원자번호 20 이하의 가벼운 동중원소 제거에 활용되며 80MeV 에너지에서 ^{36}Cl - ^{36}S 쌍의 경우 $10^6:1$ 이상의 분리가 가능함.¹²
- 5) **분자이온 사용법** : 동중원소가 이루는 분자이온들의 안정성 차이를 이용하여 분리하는 것으로서 $^{14}\text{CH}_2^+$ 에 대해 $^{14}\text{NH}_2^+$ 형성이 곤란함.
- 6) **양이온의 자발이온화(auto-ionization) 이용법** : $^{10}\text{Be}^+(4P_{5/2})$ 이 $0.5\mu\text{s}$ 의 반감기로서 $^{10}\text{Be}^{2+}$ 로 붕괴하는 현상을 이용하여 ^{10}B 과 분리함

7) 레이저에 의한 공명이온화 : 동중원소별 선택적 이온화가 가능하나 아직 실용화에는 못 미침.¹³

최근 기체주입 전자석을 사용하는 동중원소 제거 방안이 새로이 제시되었다.^{14, 15} 전자석 진공함 내에 기체를 채우면 이온의 궤적이 기체와의 충돌에 의한 평균 전하수에 의해 결정이 된다. 전하수는 원자번호에 의해 좌우되므로 결국 대상 동위원소와 동중원소의 궤적이 달라지며 분리가 가능해진다. 이 기술을 활용함으로써 ^{36}Cl 을 더욱 낮은 에너지(소형 가속기)로서도 측정할 수 있으며, 활용 가능한 동위원소 범위도 늘어날 것으로 기대된다.

AMS를 위한 질량분석계통은 질량차이 하나인 인접 질량을 분간할 수 있는 질량 분해능을 요구하므로 $M/\Delta M$ 이 400 정도가 되면 충분하다. 이외에 처리 가능 시료량과 생산성에 직접 관련되는 인자로서 효율성을 들 수 있으며, 크게 이온원 효율과 최종 검출기까지의 수송효율로 나눌 수 있다. 슈퍼터링형 이온원의 효율은 표적원소의 종류, 화합물의 형태, 이온원의 구조 등의 함수가 되며 이를 Table 3에서 살펴볼 수 있다.¹⁶ 총 효율은 이외에 스트리핑효율을 포함한 가속기 전반의 수송효율이 고려되어야 하며, ^{14}C 가 1.5%, ^{10}Be 이 3×10^{-4} 정도이며, 슈퍼터링효율의 특히 작은 ^{26}Al 과 ^{41}Ca 의 경우 10^{-4} 정도이다.¹⁷

2.4. 동위원소별 특징

2.4.1. ^{14}C 측정

대개 10^{-15} 정도의 ^{14}C 동위원소비를 갖는 시료측정이 가능하지만 정확도면에서 재래식 감쇠계수법과 겨루기 위해서는 적어도 $\pm 1\%$ ($\pm 80\text{y}$) 정도의 정확도가 보장되어야 한다. 기존의 탄뎀가속기를 보완함으로써 $\pm 5\%$ 정도의 정확도는 어렵지 않게 유지할 수 있으나, 정확도 개선상 문제점으로는 측정 중의 이온원 방사면량(emittance) 변동에 의한 가속효율 변화를 들 수 있다. 또한 세습 슈퍼터링 중의 동위원소 비율변동을 포함한 모든 단계별 동위원소분별현상(isotope fractionation)을 파악하여 개선이 되어야 한다. 방사성탄소측정시 측정 감도는 주로 시료처리 과정상의 외부오염 정도에 의해 좌우된다. 시료 크기 0.5mg일 때 오염도는 현대탄소의 0.5%에 이르며, 이를 최대 측정 가능 연대로 환산했을 때 약 4만 2천년이 된다. 정확도는 약 0.5% 수준까지 도달할 것으로 보고되고 있다.

2.4.2. ¹⁰Be 측정

반감기가 160만년인 ¹⁰Be은 우주선에 의한 대기 중의 질소, 산소의 분열에 의해 생성되어 대기분자에 흡착되어 있다가 지구 표면에 떨어지게 된다. 대기 중의 체류시간은 ¹⁴C의 70년에 비해 아주 짧은 1~2년 정도이나 해양 중의 체류시간은 수백 년에 달한다. ¹⁰Be의 침강률은 $10^6 \text{ atoms cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ 정도이며, 대상 시료 중의 함량은 아주 적어서 남극빙의 경우 10^4 atoms/g , 망간단괴의 경우 10^{10} atoms/g 이다. 재래식 감쇠측정에 의존하자면 수 톤의 시료처리가 불가피하나 AMS 측정에는 1~2kg의 남극빙이, 그리고 퇴적물의 경우 수 그램 정도가 요구된다. 지구물리시료에 대한 ¹⁰Be 측정이 활발히 이루어지고 있으며 현재 가능한 $\pm 10\%$ 정도의 정확도는 일반 적용에 충분한 수준이다. ¹⁰Be 측정은 ¹⁰Be¹⁶O⁻ 이온으로 출발한다. ¹⁰Be¹⁶O⁻ 이온 또한 안정한 이온이므로 ¹⁰B 제거에 비정거리차이 현상을 이용하여, 현재 $2 \times 10^{-15} \text{ Be}/^9\text{Be}$ 정도의 비율측정이 가능하다. ¹⁰Be의 경우 동중원소인 ¹⁰B을 빔수송부품 조정에 파일트륨으로 활용할 수 있으며, ¹⁴C 측정시는 ⁷Li⁻에 의한 ⁷Li⁺나 ⁷Li²⁺를 활용할 수 있다.

2.4.3. ³⁶Cl 측정

동중원소인 ³⁶S 또한 안정한 음이온을 형성하며, 동시에 가속되는 ¹⁶O₂⁻, ¹²Cl₃⁻ 등으로부터 분자파편이 생성되므로 제거되어야 한다. ³⁶Cl의 질량번호는 2, 3, 4, 6으로 나누어지므로 전하가 5+ 또는 7+를 사용함으로써 분자파편을 제거할 수 있으며¹², ³⁶S 제거에는 시료전처리시의 화학적 분리와 최종 이온함에서의 dE/dX 측정을 병행하게 된다. 6MV급 탄뎀가속기로 가능한 검출한계는 1×10^{-15} 정도이다.

2.4.4. ¹²⁹I 측정

반감기가 약 1,600만년인 ¹²⁹I는 Cl과 마찬가지로 무기형태로 유동성이 강하여 약 1억년까지의 지질학적, 수문학적인 이력을 조사하는 데 유용한 수단이 된다. 이는 우주선에 의한 대기 중의 크세논의 분해와 지각 중의 우라늄핵분열에 의해 형성된다. 대기 및 해양 중에는 약 10^{-12} 정도 존재하며, 지하수 및 원유에서의 함량이 예상치와 잘 일치하는 것으로 밝혀졌다. 시료는 AgI 형태로 이온원에 주입되며 시료처리과정이 상대적으로 단순하다. 최종 검출기로는 ¹²⁷I의 간섭을 배제하기 위한 time-of-flight 시스템과 기체상 검출기를 조합하여 사용한다. 동중원소인 ¹²⁹Xe은 안정한 음이온을 형성하지 못하므로 측정감도는 주로 담체(carrier)

로 사용하는 시약의 방사화학적 순도에 의해 좌우되며 1×10^{-14} 정도의 측정이 가능하다.¹⁶

2.4.5. ²⁶Al 측정

²⁶Al은 대기 중에서 우주선에 의한 ⁴⁰Ar의 분열에 의해 생성되며 대기분자에 흡착되었다가 비에 의해 지구 표면으로 이송된다. 생성률은 ¹⁰Be의 4×10^{-3} 수준으로 적으며 지각 중에 10^{-14} 정도의 존재비를 갖는다. 이 동위원소는 암석 중의 Al과 Si의 중성자방사화에 의해서도 생성되며, 외계물질에서는 10^{-11} 이상 높은 농도를 보이고 있다. Al의 전자결합에너지가 0.46eV로 작아 스퍼터링에 의한 음이온발생효율이 낮지만 로체스터의 측정결과만 분의 일의 효율로 시료 내의 ²⁶Al 원자 측정이 가능함이 밝혀졌다.¹⁹ 또한 양이온형태로 인출하여 칼륨증기 내에서 음이온으로 전하교환을 시키는 경우 측정효율을 1% 정도로 증가시킬 수 있게 된다. 동중원소인 ²⁶Mg이 안정한 음이온을 형성하지 못하므로 소형 가속기로도 10^{-15} 정도의 감도를 낼 수 있으며, 현재 정확도는 2% 수준에 도달해 있다.

2.4.6. ³²Si 측정

³²Si는 ²⁶Al과 마찬가지로 대기 중에서 Ar의 분열에 의해 생성되며 해수의 흐름과 섞임, 빙하 형성, 퇴적층 연구, 수백년 규모의 지하수 연대측정에 유용하다. 한 가지 흥미로운 것은 반감기로서, 베타 방사능세기를 알고 있는 시료에서 AMS 측정을 통해 250년으로 알고 있던 ³²Si의 반감기를 재측정하고자 하는 시도가 있었다.²⁰ 측정결과는 105 ± 18 년으로서 최근의 정밀한 배타측정결과인 172 ± 4 년과 큰 차이를 보이고 있으며, 이 수수께끼를 풀려는 노력이 계속되고 있다. 지금까지는 존재비가 작고 세기가 강한 동중원소인 ³²S(95%) 때문에 ³²Si 측정이 어려울 것으로 생각했으나 SiH₃⁻ 음이온을 사용함으로써 10^{-15} 대의 측정이 가능할 것으로 기대되고 있다.

2.4.7. ⁴¹Ca 측정

반감기가 십만년인 ⁴¹Ca은 약 백만년까지의 칼슘 함유 시료의 연대측정에 활용될 수 있다. 이는 특히 홍적세(Pleistocene) 중기 및 말기의 뼈에 대한 유용한 연대측정 수단이 된다. 지각 중에서 이 동위원소는 ⁴⁰Ca의 중성자방사화에 의해 생성되며 존재비는 10^{-14} 정도이다. 천연방사능 측정의 성공 여부는 음이온발생물의 증대와 동중원소인 ⁴¹K의 억제 정도에 달려 있으며, CaH₃⁻ 빔을 사용함으로써 가능성을 조사하고 있다.

3. 장치

70년대 개발기부터 대부분 실험실들이 기존의 핵물리 실험용 가속기를 개조하여 AMS를 수행할 수 있는 방안을 강구해 왔다. Rochester에서는 $^{14}\text{C}^-$ 검출에 방해가 되는 $^{14}\text{N}^-$ 이온의 존재에 대한 연구를 수행하여 10^{-15} 정도의 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 측정이 가능성을 보였다. Rochester와 Oxford의 연구결과는 ^{14}C 연대측정 시스템의 기본설계 개념정립에 크게 기여한 바 있다. 현재는 약 32개의 가속기 그룹이 AMS 연구에 참여하고 있으며, 장비측면에서 보면 기존장비 보완형, AMS 전용으로 설계한 신형, 핵 및 원자물리연구를 위한 100 MeV급의 초대형, 그리고 일단가속형 VDG 및 사이클로트론을 사용하는 기타 형태로 나눌 수 있다. 대부분 6-16MV급 기존 장비를 보완하여 활용하고 있으며, 다양성 및 고에너지에 의한 높은 스트리핑효율 등을 장점으로 들 수 있으나, 이온광학특성, 안정성 및 진공특성이 AMS 표준조건에는 대부분 미치지 못하고 있다. 또한 대형 장비이므로 유지, 운영비가 문제가 된다. AMS 전용으로 설계된 최신 장비들은 대개 2 MV급으로서 ^{14}C 정밀측정에 초점이 맞춰져 있다. 이들은 운전

및 유지의 간편성, 높은 수송효율 등을 자랑하며, 동중원소간섭이 문제되지 않을 경우 ^{26}Al , ^{129}I 등 무거운 동위원소 측정도 가능하다. 또한 재료나 지구과학시료 중의 안정동위원소 측정에도 활용할 수 있다.

Fig. 3에서 대표적인 AMS 시스템의 개략도를 볼 수 있으며, 대형 정전형 분석기 이외는 일반 핵물리 장치와 다를 바가 없다. 단계별 조건 및 기능은 다음과 같다.

(1) 시료처리 : 이온원 주입 전의 대상원소 분리는 대개 화학적 처리에 의존한다. 탄소의 경우 최종적으로는 흑연 형태로 이온원에 주입되며 다른 화학적 형태의 시료에 비해 10배 이상의 음이온 인출이 가능하다.

(2) 이온원 : 주로 세슘스퍼터형 이온원을 사용하므로 시료는 고체상이며, 빔 전류는 원소에 따라 1에서 $50\mu\text{A}$ 정도이다. 이러한 음이온 이온원을 사용함으로써 Table 1에 보인 바와 같이 선택적으로 특정 동중원소를 제거할 수 있다. 원리적으로는 양이온 인출 후 이온교환반응을 통해 음이온 생성이 가능하며, 전자결합 에너지가 작은 Al의 경우 유리하다.²¹ 대부분 생산성을 위해 수십 개의 시료를 동시에 장착할 수 있는 시료교환 기능을 갖추고 있다. 특히 탄소의 경우 이산화탄소

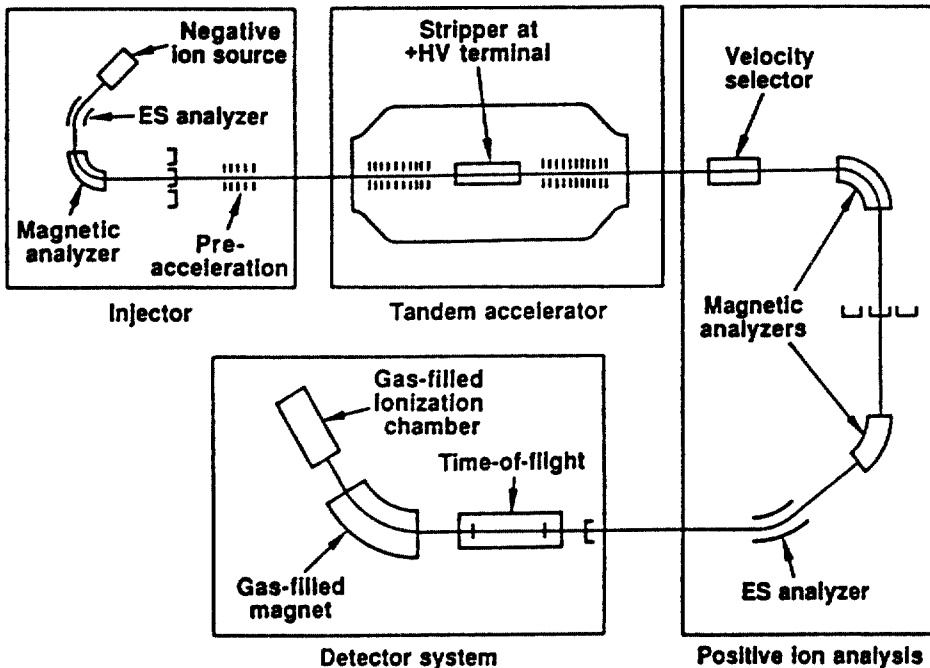


Fig. 3. Schematic diagram showing apparatus used for AMS.

형태로 주입함으로써 빔전류를 키울 수 있으나 시료간 상호오염(cross-talking)이 아직 문제점으로 남아 있다.²²

(3) 전단주입부 : 중원소의 동위원소 분리에 필요한 질량 분해능이 요구된다. 이온원에서 인출된 이온은 1 단계 전단가속을 받게 되고 Einzel 렌즈에 의해서는 집속이 되며, 전자석($M/\Delta M=25$)에 의해서는 30° 휘게 된다. 첫번째 집속점(waist)에서 Einzel 렌즈의 유한한 초점거리에 의한 에너지 구분(selection)이, 전자석에 의해서는 (질량×에너지) 구분이 일어난다.

이어서 가속기 수송효율 극대화를 위해 약 150kV 정도로 2단계 전단가속이 일어나고 가속기 입사 전에 정전형 4중극렌즈에 의해 다시 집속되며 이 과정에서 또 한번의 에너지 구분이 일어난다.

(4) 탄뎀가속기 : 저에너지 가속관에서 수 MeV 정도로 가속이 되며 전자 stripping canal에서 세번째로 집속된다. 가속관의 E/q에 대응한 집속효과로 인해 또 다른 에너지 구분이 발생한다. 음이온을 stripping canal에 통과시킴으로써 전자 제거에 의해 분자이온을 효과적으로 파괴시킬 수 있다. 분자 파편들은 다음 단계에서 제거된다.

(5) 양이온 분석 : Canal을 통과한 양이온은 2차 가속된 다음 자기 4중극렌즈(MQD)에 의해 다시 집속된다. 여기서 E/q나 (M/q)(E/q) 구분이 일어나며, 이 현상은 가속관과 MQD간의 정렬이 불확실할 때 심하게 된다. 90° 휘용 자석에 의해 (M/q)(E/q) 구분이 다시 일어나며 네번째로 집속된다. 이온의 산란단면적은 에너지가 증가할수록 급격히 감소하므로 단계(3)에서 산란되어 빔에 들어온 질량이 다른 이온들이 여기서 완전히 제거된다. 이어서 MQD, 스위칭전자석(45)과 정전형 분석기에 의해 여섯번째로 집속되며, 이들에 의해 (M/q)(E/q)와 특히 (E/q) 구분($E/\Delta E=200$)이 발생된다. 속도선별기(velocity selector)는 정전형에 비해 분해능은 떨어지나 빔의 꺾임이 없기 때문에 기존의 라인에 설치하기가 용이하다. 또한 산란 및 전하교환문제 때문에 종종 두 대의 전자석을 사용한다.

(6) 검출계통 : Time-of-flight 검출기는 또 하나의 질량분석기 역할을 하며, ¹²⁹I와 같은 무거운 동위원소 측정에 유용하다.²³ 가벼운 동위원소의 총 에너지와 dE/dX 측정에는 주로 기체이온함²⁴이나 반도체검출

기가 사용된다.

(7) 측정계 : 동위원소비는 각 안정 동위원소의 전류를 이동형 파라데이컵으로 측정한 후 방사성 동위원소의 계수율을 검출기로 측정함으로써 얻어진다. 시료 측정 사이에 표준 시료와 백그라운드 시료를 주기적으로 측정하여 정량기준과 백그라운드율 산정에 사용한다.

이 시스템은 두 대의 전자석과 한 대의 정전형 분석기를 갖추고 집속점이 기껏 3점인 전통적인 저에너지 질량 분석기에 비해서는 많은 단계를 갖고 있다. 사이클로트론형 가속기를 질량 분석에 활용하는 경우는 가속방법상의 공명특성으로 인해 연속적인 구분이 일어나게 된다. 그러나 1,000m가 넘는 긴 이온궤적으로 인해 빔수송효율이 챔버 진공도에 민감하고, 전후단에서의 이온혼입문제가 정확한 동위원소 비율측정을 어렵게 하여 탄뎀형 가속기에 비해서는 그 쓰임새가 제한된다.⁴

4. 활용분야

AMS에서 우주선유발 방사성동위원소들이 활용 빈도수의 90% 이상을 점하고 있으며, 우주선유발 방사성동위원소의 활용분야는 생성물 변화 조사, 연대 측정 및 추적자 이용 등 크게 세 분야로 대별할 수 있다. 여기서는 이들의 생의학, 물리학 분야에의 활용예와 아울러 안정동위원소를 이용한 활용분야도 일부 소개하고자 한다.

4.1. 생성물 변화 조사

우주선의 핵반응연구의 최적 조건은 달 표면에서 얻을 수 있으며, 이는 달에는 대기가 없으며 부식물이 매우 적기 때문이다. 원리적으로는 운석도 유사한 활용성을 갖고 있으나 지구권에 유입할 때 대부분 표면이 제거되므로 다소 제한적이다. 지구의 대기권은 우주선유발 동위원소 형성상 주요한 표적이라 할 수 있으나 1차 우주선 세기, 태양 변조(solar modulation) 및 지자기 변조(geomagnetic modulation) 영향을 받게 되며, 고도에 따른 변화 및 대기권 내의 유동 등을 고려해야 하므로 변화 요인이 확인될 수 있다는 가정하에 과거의 요인별 변동에 관한 정보를 얻을 수 있다. 생성물은

입사입자의 종류, 에너지, 선속, 표적의 조성, 그리고 핵반응단면적의 함수가 되며, 현재로는 핵반응단면적에 관한 불확실성이 가장 큰 문제가 된다. 최근 분석이 되지 않고 피폭시간을 알고 있는 암석 중의 수정에 관한 연구결과에 의하면 3,340m 고도에서의 ^{10}Be , ^{26}Al 의 생성물은 SiO_2 그램당 연간 62 및 374개로 추정된다.

4.1.1. 1차 우주선 선속

1차 우주선은 우주공간으로부터 태양계에 입사되는 고에너지 입자속을 말하며, 입자수의 비로 양성자가 약 90%, 알파선 약 10%, 그리고 무거운 핵들이 1% 정도를 점하고 있다. 이들의 근원은 아직 확실하지 않으나 초신성(supernova) 폭발의 잔재임이 유력한 확률로 대두되고 있다. 따라서 우주선선속은 시간에 따라 변하게 되므로 과거 이들 변화를 측정함으로써 우주선 이론을 뒷받침할 많은 정보를 얻게 된다. Fig. 4는 적도 부근 태평양 심해저 퇴적층 내의 ^{10}Be 함량을 연대별로 측정된 결과이며²⁵, 지난 천만년간 침적속도가 일정함은 이미 확인되어 있다. 이 그림에서 백만년에서 8백만년까지는 ^{10}Be 의 감쇠선을 잘 따르고 있으나 그 밑으로는 증가하는 경향을 보이고 있으며, 이는 약 천만년 전

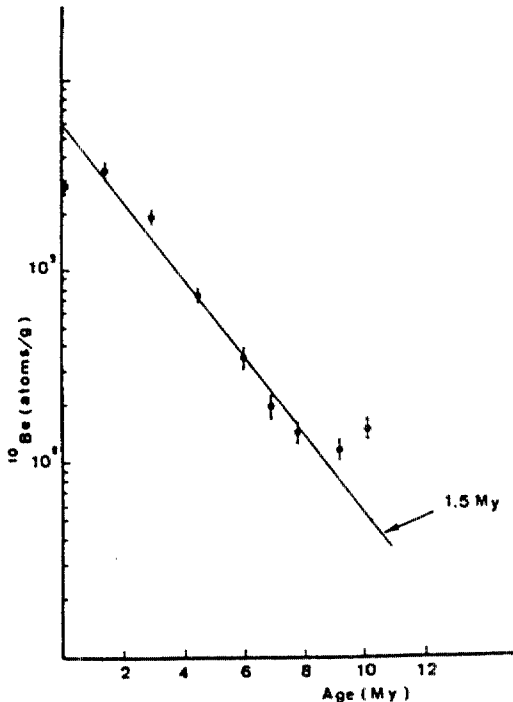


Fig. 4. ^{10}Be concentration as a function of age in marine sediment core RC 12-65.

에 1차 우주선선속이 크게 증가했었기 때문으로 판단된다. 여기서 최상위점이 적함선보다 낮게 나타나고 있는데, 이는 이 점에 해당되는 시료가 퇴적층 표면에서 10cm 정도로 낮게 묻혀 있으며 여기서는 화학적 교환반응이 활발히 일어나고 있기 때문이다.

4.1.2. 태양풍 변화

태양으로부터 오는 하전입자의 흐름, 즉 태양풍에 의한 자기장에 의해 주로 1GeV 이하의 에너지를 갖는 우주선들은 태양계 유입이 억제된다. 이를 solar modulation이라 한다. 이에 의해 대기권에서의 우주선 유발 동위원소의 생성률이 약 30% 정도 저하되며, 따라서 태양활동과 생성률간에 밀접한 역관계(anti-correlation)가 성립한다.

태양활동의 주기는 11년 (실제로는 22년)으로 알려져 있으며, 근래의 대표적인 비정상적인 활동기간으로는 1645~1715 AD(Maunder Minimum:MM)을 들 수 있다. 오래된 고목의 ^{14}C 측정(^{14}C dendrochronology)에 의해서도 이러한 관계가 확인되어 있으며, MM 기간 중에 ^{10}Be 생성률이 비정상적으로 증가했음을 Raisbeck 등이 남극빙을 조사하여 알아낸 바 있다.²⁶ ^{10}Be 의 대기체류기간은 ^{14}C 에 비해 짧기 때문에 긴 체류기간으로 인한 변화감소효과를 덜 받게 된다. 이러한 증가현상이 빙하기 말에서도 나타남을 남극빙에서 확인했으나 이를 단순히 태양변조로 보는 시각에는 여러 문제점이 따른다는 주장이 있다. 이외에 ^{41}Ca , ^{36}Cl 및 ^{206}Pb 등이 동위원소를 수단으로 $10^5 \sim 10^6$ 년 주기의 태양활동 변화에 관한 이론을 뒷받침할 수 있는 AMS 측정이 시도되고 있다.

4.1.3. 지자기 변조(geomagnetic variations)

1차 우주선은 하전입자이므로 지자기에 의해서도 영향을 받게 된다. 우주선유발 동위원소의 생성률은 지자장의 세기를 P라 하고 현 자장에서 큰 변화가 없을 때 $P^{-0.5}$ 에 비례하며, 지자장의 세기가 0일 때 약 2배가량 증가할 것으로 예측된다. 자자기는 수백년에서 수백만년의 주기로 변하는 것으로 알려져 있다. 지난 10,000년 동안 자기쌍극자의 세기는 약 2배 가량 변한 것으로 추정되며, 이 현상이 이 기간 중에 대기 중의 ^{14}C 농도 변화를 유발한 것으로 믿어져 왔다. 그러나 ^{14}C 농도 변화는 다른 요인을 포함하여 종합적으로 해석해야 한다는 반론도 제기되고 있다.

4.2. 연대 측정

연대 측정상 방사성붕괴는 핵심적인 요소가 되며, 연대 측정은 활용이나 개발측면에서 AMS를 가장 활성화시키는 분야가 된다. 이는 물론 가장 잘 알려진 방사성탄소연대측정에 기인하지만 모든 방사성핵종을 ¹⁴C에 버금가는 연대측정에 활용하고자 하는 생각은 환상일 뿐이다. 우주선에 의해 생성된 ¹⁴C은 대륙과 해양 중의 유기권과 평형을 유지하면서 대기권에 기체상으로 존재할 수 있으며, 이러한 특성으로 인해 안정동위원소인 ¹²C 및 ¹³C과 균일하게 섞이게 되며 앞에서 언급한 여러 변화 요인들에 의한 영향을 덜 받게 된다. 이러한 특징은 방사성 탄소의 경우에 독특한 것이므로 여타 방사성핵종을 연대측정에 활용하고자 할 때는 각 경우의 문제점을 충분히 극복할 수 있는 대안이 준비되어야 한다.

연대측정을 위해서는 방사성핵종의 초기 농도를 알 수 있어야 하며, 측정계가 형성된 후 관련 방사성 핵종의 유출입이 없어야 한다. 기체상이 아닌 우주선유발 방사성동위원소에 의해 연대측정을 시도할 경우 크게 다음 세 가지 방법이 고려될 수 있다.⁸

1) 첫째는 관련 핵종의 단순 농도정량이다. 이때 초기 농도는 동일 저장고 내의 연대가 작은 최근 시료를 측정하든지 아니면 이론적으로 계산하여 추정하게 된다. 다소 정성적인 방법이 되지만 주로 ¹⁰Be을 수단으로 남극빙이나 퇴적층의 연대측정에 유효함이 확인되어 있다. 그러나 앞의 가정에서 발생할 수 있는 문제점을 극복하기 위해 측정 횟수를 증가시킬 필요가 있다. 그린랜드나 남극 얼음층 내의 깊이 방향의 ¹⁰Be 농도분포는 대기 중에서의 우주선 반응물의 시간에 따른 변화에 대응되며, 어느 정도의 깊이까지는 계절별 ¹⁸O/¹⁶O 변화를 측정함으로써 연대측정이 가능하다. 얼음층에는 ¹⁰Be, ¹⁴C, ²⁶Al, ³⁶Cl, ³⁹Ar, ⁴¹Kr, ¹²⁹I 등의 동위원소들이 저장되어 있으나 현재까지는 ¹⁰Be, ¹⁴C, ³⁶Cl만이 AMS의 측정 대상이 되어 왔다. 반감기가 2.1×10⁵년인 ⁴¹Kr은 오래된 얼음에 대한 이상적인 연대측정수단이 되나 이를 위해서는 양이온 AMS가 실현되고, ⁴¹Kr이 킬로그램당 10¹³개 정도의 저농도로 존재하므로 측정효율이 극대화되어야 하는 등 극복해야 할 난제들이 남아 있다.

2) 두번째 방법으로는 방사성핵종과 안정동위원소의 상대비에 의존하는 것이며 이때는 측정계 내에 두 동위원소가 고루 분산되어 있다는 가정을 하게 된다.

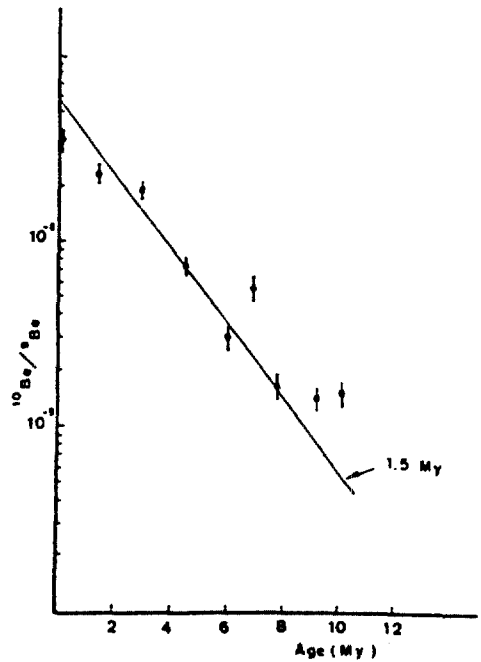


Fig. 5. ¹⁰Be/⁹Be ratio as a function of age for the same samples as in Fig. 4.

이러한 가정의 수용 정도는 동위원소와 측정계에 따라 매우 달라지게 된다. 심해저의 망간단괴 또는 산호초를 대상으로 ¹⁰Be/⁹Be 측정이 일부 성공적으로 이루어졌으나, 해저 퇴적층에 대한 조사는 아직까지는 다소 부정적이다. Fig. 5의 시료는 Fig. 4의 경우와 동일하며, 690만년 전의 시료에서는 이 비율이 높게 나타나고 있다. 이를 ⁹Be 생성물의 저하로 보면 측정자료는 설명이 되나 추가 연구가 요구된다 하겠다.

3) 위의 두 가지 방법은 생성물 변화효과를 받게 되며, 세번째로는 한 쌍의 동위원소들을 활용하는 것이다. 생성물 변화는 두 동위원소 모두 영향을 받게 되므로 생성물 변화효과를 극소화시킬 수가 있다. ²⁶Al과 ¹⁰Be은 화학적 특성이 서로 유사하므로 대양환경의 연대측정에 이상적인 쌍으로 알려져 있다. 특히 극빙(polar ice)의 경우가 세번째 방법의 이상적인 활용분야가 되며 수백년 이상일 때 ³²Si/¹⁰Be, 5만년 이상의 경우 ³⁶Cl/¹⁰Be 측정을 통해 연대측정이 가능하다.

이외에 방사성 감쇠에 의존하지 않고 지각 표면에 연속적으로 우주선에 의해 피폭되어 축적된 특정 방사성핵종을 측정함으로써 피폭연대(exposure age)를 산출하는 방법이 있다. 일반적으로 생성물이 아주 낮기

때문에 지금까지 관련 연구가 미미하지만 고감도 AMS를 활용함으로써 주로 ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{10}Be , ^{26}Al 등을 이용한 연구가 진행되고 있다.

4.2.1. 방사성탄소

방사성탄소 연대측정은 40년 이상 개발되어 확립된 기술로서 방사성탄소는 연대측정 및 추적용으로 가장 대표적인 우주선유발 방사성동위원소이다. AMS 측정 시 요구되는 시료량은 재래식 감쇠측정의 경우에 비해 1/1000 수준으로 50 μg 정도의 시료처리도 가능하므로 가히 기술혁명을 가져왔다 할 수 있다. 이로써 해양퇴적물이나 그린랜드 또는 남극빙 등 지구상의 각종 탄소저장고에 대한 체계적이며 다양한 연구가 가능해졌다. 여기서 방사성탄소 연대측정의 대표적인 예를 두 가지 소개한다.

4.2.1.1. Turin의 성의(聖衣)에 대한 연대측정

본격적인 AMS 시대가 1977년에 열리면서 mg 정도의 시료만으로도 1% 정도의 정밀도로 연대측정이 가능하게 되어, 그리스도의 수의(壽衣)로 믿어져 온 그 유명한 Turin의 성의에 대한 연대측정이 시도되었다. 소장하고 있는 교회 당국과의 협상 끝에 대표적인 세 AMS 연대측정기관, 즉 미국 애리조나대, 영국의 옥스포드대, 그리고 스위스의 취리히대가 분석기관으로 선정되어 4.4m \times 1.1m 넓이의 천에서 총 50mg의 린네르(亞麻布) 조각이 측정시료로 주어졌으며, 결과는 1989년 'Nature'지에 발표되었다.²⁷ 세 기관의 측정결과는 서로 잘 일치하였으며 성의의 연대는 1260~1390AD로 밝혀졌다. 이는 또한 몇몇 예술역사가들의 견해도 일치한다.

4.2.1.2. 북아메리카의 고대인

유골은 인체를 대표하는 유일한 유물이므로 인류학자들에게 신뢰성 있는 연대측정을 위해 가장 관심 있는 시료가 된다. 그간 이를 대상으로 한 많은 연대측정 기술들이 개발되었으며, 소위 아미노산 연대측정법에 의하면 북아메리카 후기 홍적세 선사인의 유골의 일부는 28,000년에서 70,000년까지의 연대를 보이고 있다. 이 방법은 뼈의 콜라겐(collagen)에서 추출한 아미노산이 초기에는 좌측으로 편향되어 있다가 시간이 지남에 따라 우측으로 편향되는 특성을 이용한 것이다. 그러나 최근의 AMS 측정 결과는 대개 3,000~6,000년 범위의 연대를 보이고 있고 가장 오래된 것이 11,000년이며 이는 북아메리카에 인류가 생활해 왔다고 믿어져 온 시기와 대체로 일치한다.²⁸

4.3. 추적자(tracers)

우주선유발 동위원소들은 공간적, 시간적으로 유입 경위가 잘 알려져 있으므로 추적자로서 유용하다. 여기서 인위적인 핵폭발(nuclear explosion)에 의해 형성된 핵종들은 논의이지만 이들도 유사한 활용가치가 있다. 이들 동위원소들의 역할은 첫째, 해당 원소 추적자(대기 중의 ^{14}C)²⁹, 둘째로는 결합되어 있는 물질의 추적자(대기분진 중의 ^{10}Be , 지하수 중의 ^{36}Cl , 해수 중의 ^{39}Ar), 셋째로는 그들이 발견된 시료의 근원을 밝힐 수 있는 추적자 등으로 대별할 수 있다.

두번째 활용분야의 예로서 Fig. 6에 대기 중의 $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 분포를 보이고 있다. 성층권의 값은 예전의 측정값과 유사하나, 고도가 낮은 대류권에서는 지금까지 측정된 것 중에 가장 작은 값을 보이며 대기권에서의 예상 생성률비인 0.5에 접근하고 있다. 이로써 이때는 성층권 내의 에어로졸의 대류권에의 기여도가 아주 작으며, 대류가 정체되어 있거나 상승기류가 있었음을 짐작하게 된다.³⁰ 셋째 분야의 예로서는, 아직 신뢰성에 문제가 많지만 최근 용암층 내의 ^{10}Be 을 분석하여 마그마 중에 포함되어 있는 퇴적물의 양을 측정하고자 하

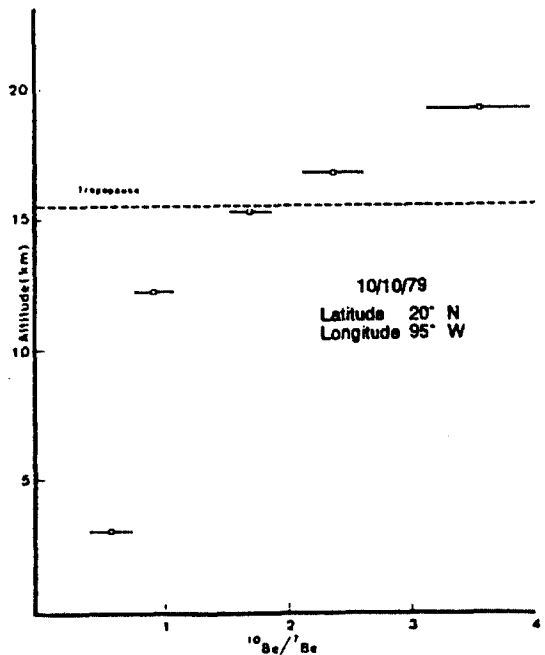


Fig. 6. $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ ratio as a function of altitude in the atmosphere.

는 연구가 시도되고 있다.

또 다른 예로는 심해저에서 발견된 작은 구형 자성체(magnetic spherule)의 근원을 밝힌 것으로서 $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$ 비율측정에 의한 것이다. 지난 100여년간 이 물체는 외계에서 온 것으로 막연히 짐작해 왔으며 다소 큰 운석이 사마된 것으로 알려졌다. 그러나 동위원소 비율측정결과 우주공간에서의 모체의 크기는 1cm 이하로 드러났으며, 따라서 이는 혜성의 부스러기임을 밝히는 근거가 된다. ^{26}Al 및 ^{10}Be 측정은 시료 내에 수백만 개의 원자가 있으면 가능하므로 수천년간 해저면에 남아 있는 $100\mu\text{g}$ 이상의 크기를 갖는 운석의 근원을 밝힐 수 있게 되며, 이는 AMS를 이용한 우주선유발 동위원소측정의 유용성을 웅변으로 말하고 있는 것이다.

4.3.1. ^{10}Be 을 이용한 화산 연구

천연 방사성동위원소들은 지구 전역에서 생성되므로 대규모 현상에 관한 연구가 가능하다.¹⁵ 한 예로 대양의 퇴적층으로부터 해저화산 밑의 용암으로의 ^{10}Be 이동연구를 들 수 있으며³¹, 지각구조의 변화에 의해 ^{10}Be 이 이동된다. 대개 용암 속의 ^{10}Be 농도는 1×10^5 에서 2.4×10^7 범위에 있으며, 이러한 측정결과는 퇴적층과 지각의 이동형상을 규명하는 데 유용하다.

4.3.2. ^{36}Cl 및 ^{129}I 을 이용한 수문학 연구

^{36}Cl 은 주로 ^{40}Ar 의 분열에 의해 생성되며, $^{36}\text{Ar}(n, p)^{36}\text{Cl}$ 반응과 $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$ 열중성자 핵반응도 이에 기여한다. 세번째 반응은 지각 내에서 우라늄, 토륨 계열 동위원소로부터 방출되는 핵분열중성자 및 (α, n) 반응에 의해 가벼운 동위원소로부터 방출되는 2차 중성자에 기인한다. ^{36}Cl 의 침강률은 $2 \times 10^5 \text{ atoms cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ 정도이며, Be과 마찬가지로 지구과학분야, 특히 지화학분야에의 활용성이 뛰어나다. Cl은 전자친화력이 높아 자연계에서 널리 음이온으로 발견되며, 친수성이 크기 때문에 수중의 보존성이 뛰어나므로 수문학분야에서 추적자 및 연대측정수단으로서 가치가 크다. AMS의 출현으로 인해 ^{36}Cl 은 수문학연구를 위한 최상의 동위원소로 등장했으며 재래식 방법에 비해 시료 크기를 100분의 1 수준으로 낮춤으로써 자연계 대부분의 시료측정이 가능하게 되었다. 곧이어 ^{36}I 가 수문학분야에 활용되기 시작했으며, ^{129}I 는 ^{238}U 의 자발핵분열에 의해 생성된다.

이 추적자 이용의 한 예로 요르단강과 사해(Dead Sea)의 건조지역에 대한 지표수연구를 들어 보자. 수

원지로부터 저장고까지 물줄기를 따라 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 비율 측정이 이루어졌으며 이로 인해 염화(salination)의 요인들을 상호 구분할 수 있게 되었다. 증발이나 식물에 의한 증산(蒸散)은 동위원소 비율변동의 요인이 되지 않는 반면, 염분이 여과됨으로써 비율은 증가된다. 사해의 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 측정결과는 염분측정기간이 19,000~25,000년이 됨을 보여 주고 있으며, 이는 이전의 지화학적 측정값 12,000년보다 큰 값이다.

4.4. 생의학 연구

지금까지 반감기가 100년 이하인 여러 단반감기 방사성 표지화합물(labelled compound)들이 생의학연구에 활용되어 왔으며, 이들 동위원소 활용시 AMS는 재래식 감쇄계수법과는 경쟁이 되지 않는다. 반감기가 10^6 년 이상인 동위원소들은 자연계에서의 존재비가 크므로 추적자로서 활용하기가 곤란하다. 동위원소의 반감기가 1시간에서 100년 사이에는 없으며, 100년에서 10^9 년 사이에는 있는 원소는 네 가지이며 탄소(^{14}C), 알루미늄(^{26}Al), 실리콘(^{32}Si), 그리고 염소(^{36}Cl) 등이 이에 해당된다. 감쇄계수기술은 측정 가능한 정도의 방사능 세기를 요구하므로 방사선피폭이 종종 문제가 되는 반면 AMS의 경우 장반감기 동위원소추적자를 AMS로 측정함으로써 측정시간 단축, 사용 선량 감소에 따른 방사선피폭 및 비용절감, 2차원적인 주사분석 가능 등의 장점을 가지고 있다. 더구나 장기, 단기 현상 모두 처리가 가능하므로 인체에 대한 현장연구가 가능하다.

^{14}C 을 특정 단백질에 표지함으로써 DNA 조작 및 유전적 효과 연구가 가능하며, Livermore를 위시한 몇 개 기관에서 수년 전 연구를 개시한 바 있다. 또한 인체 내에 인체에 무해한 $30\text{pCi}(4 \times 10^{13} \text{ atoms})$ 정도의 ^{26}Al 을 주입함으로써 알루미늄의 체내 신진대사 연구가 가능하며, 특히 Alzheimer병과 뇌 속의 알루미늄 축적에 관한 상관관계가 연구되고 있다.

인체의 뼈는 약 30%가 칼슘으로 이루어져 있으며, 나이가 들어감에 따라 뼈가 약해지는 골다공증(osteoporosis)에 칼슘이 중요한 역할을 함이 밝혀져 있다. 따라서 ^{41}Ca 을 활용하여 뼈의 신진대사를 밝히고자 하는 노력이 이루어지고 있다. 체내에 주입할 수 있는 ^{41}Ca 의 연간 허용량은 원자수로 5×10^{20} 개이며, 이들이 체내의 전체 칼슘($\sim 1\text{kg Ca} = 1.5 \times 10^{25} \text{ atoms}$)과 고루 섞인다 해도 AMS 측정에 아주 충분한 10^{-5}

정도의 동위원소비를 갖게 된다.

4.5. 중원소(heavy elements) 정량

백금족 원소들은 음이온 형성이 용이하므로 AMS의 대상이 될 수 있다.³⁵ 이들 이온 검출에 이온함이나 반도체검출기를 활용하는 경우 무게 때문에 분해능이 떨어져 곤란하므로 time-of-flight 시스템이 대안이 될 수 있다. Fig. 7에서 백그라운드로부터 분리된 Pt 피크를 볼 수 있으며 감도는 1ppb 이하가 된다. Ir은 중성자방사화분석의 감도와 유사하나 ²⁴⁴Pu의 경우 동위원소 간섭이 없으므로 중성자방사화분석의 경우보다 감도가 상당히 뛰어나다.³⁶

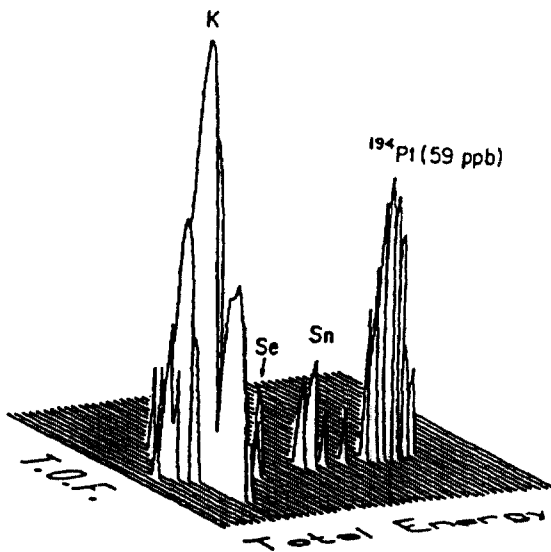


Fig. 7. A three-dimensional representation of the data from a time-of-flight measurement and an energy measurement. The vertical scale is a logarithmic scale. The sample of rock powder used contained 59 ppb of platinum.

4.6. 재료과학

반도체소재 중에 포함된 금속불순물들은 1ppt에서 10^{-2} ppt 정도라도 소재특성에 영향을 주게 되며, 기존의 정량기술로는 측정이 곤란한 수준이다. 일부에서는 AMS를 이용한 극미량 불순물 분석을 시도한 바 있으며, 기본 AMS 시스템에서 이온원을 개조하고 이온원 내 초고진공을 유지하며 질량분석기 전단에 탄소 스트

리퍼박막을 위치함으로써 Si, GaAs 및 HgCdTe에 함유된 B, P, Cr, Ge, As, Sb 및 Au 등의 깊이방향 농도 분포를 측정할 수 있었다.³⁷ 검출감도를 보면 SIMS보다 10배에서 1000배 가량 우수한 것으로 보고되었으며, 또한 터미널전압 1.8MV의 소형 가속기도 재료과학 분야에 활용될 수 있음을 보인 뜻있는 실험결과라 하겠다.

4.7. 물리학

현대 물리학의 이론에 의하면 우주대폭발(big bang)에 의해 생성된 많은 이상(exotic) 소립자가 대부분 중성자, 양성자, 전자 등 안정한 입자로 바뀌었으나, 아직 자연계에는 전하수가 $\pm 1/3$, $\pm 2/3$ 이거나 비정상 질량을 가진 안정, 또는 준안정 입자가 존재할 것으로 예견된다. 고감도의 특성으로 인해 AMS는 이들 입자 연구에도 유용한 수단이 될 수 있다.³⁸

단반감기 동위원소들의 반감기는 재래식 감쇄계수법에 의해 측정이 용이하나 반감기가 100년 이상인 장반감기 동위원소의 경우 방사능 세기로 인해 곤란한 경우가 많아 이를 AMS에 의존하는 경향이 있다. 지금까지 ³²Si, ⁴⁴Ti, 그리고 ⁶⁰Fe 등의 반감기 측정에 AMS가 이용되었다.

5. AMS의 한계 및 최근 연구경향

일천한 역사에도 불구하고 AMS로 인해 초고감도 방사성동위원소 측정이 가능해졌지만 가용 동위원소 및 활용분야의 확대를 위해 기술적으로 해결해야 할 난제들이 아직 많이 남아 있다.

1) **효율**: 여기서 총 효율이란 검출된 동위원소 수와 시료 내의 동위원소 수의 비를 말하며, 이는 (i) 시료 사용효율; (ii) 음이온발생수율; (iii) 특정 전하수의 분율; (iv) 전반적인 수송효율 등이 곱으로 계산된다. 총효율 면에서 보았을 때 AMS의 효율은 저에너지 질량분석이나 공명이온분석법, 중성자방사화분석법 등 여타 분석법에 비해 떨어지나 동위원소 백그라운드 분리도가 크기 때문에 저준위 동위원소 측정이 가능한 것이다.

2) **백그라운드**: 백그라운드의 요인은 (i) 시료처리 전이나 처리시의 외부로부터의 오염; (ii) 이온원 내에서의 시료간 상호오염; (iii) 이온원 내의 잔류기체 및 구조물; 그리고 (iv) 검출기까지 도달하여 분리

되지 않은 동위원소나 동중원소 등으로 나눌 수 있으며, 동위원소별 백그라운드 정도를 Table 3에서 볼 수 있다. 시료 상호간 오염 정도는 이온원 구조에 따라 10^{-3} 에서 10^{-6} 까지 변한다. ^{14}C 은 대기 중에 상대적으로 다량 존재하기 때문에 제염이 용이하지 않으며, 오염원 추적이 어렵다. 또한 ppt 이하의 극미량불순물 분석시에는 백그라운드 제어를 위해 초고진공이 요구된다.³⁹ 그러나 기체주입전자석 사용법이 실용화되면 오염과 통계성을 위한 총 효율만이 문제시될 것으로 생각된다.

3) 정밀도 : 정밀도에는 계측통계오차, 동위원소분별 효과, 동위원소측정주기, 백그라운드 보정 및 표준화 등이 영향을 미치며, ^{14}C 을 제외하고는 통계오차가 대개 3에서 10% 정도이다. 2만년 이하의 시료에서 측정빈도를 10Hz로 하면 ^{14}C 의 경우 1% 미만까지 가능하다. 재래식 질량분석법의 경우 정밀도가 상대적으로 양호하며, 이는 통계오차가 아주 작으며 이온광학계통이 단순하여 동위원소분별효과가 집속조건에 의해서만 좌우되기 때문이다.

AMS 활용을 극대화하기 위해서는 시료측정의 생산성, 측정의 정밀도, 그리고 오염도 극소화 등이 고려되어야 하며 이를 위한 최근의 연구개발 실태를 간략히 살펴본다.

우선 기체상 이온원을 들 수 있다. 현재까지 모든 방사성탄소 측정엔 세슘스퍼터 이온원의 표적으로 고체상 흑연시료를 사용함으로써 이루어졌으나, 이 경우 여러 단계의 시료처리과정이 따르며 이로 인해 현대탄소 오염이 불가피하며 시료처리 시간도 길어지게 된다. 탄소시료의 첫 단계는 CO_2 로의 변환이므로 이산화탄소를 직접 사용함은 매우 바람직한 것이다. 이러한 시도는 옥스포드대에서 처음으로 이루어졌으며 300 μA 이상의 탄소이온을 인출하는 데 성공하였다.⁴⁰ Middleton 등은 이온원에서 탄산칼슘을 직접 가열하여 이산화탄소를 얻는 새로운 방법을 제시하고 있다.¹⁶ 이러한 방법을 사용함으로써 시료처리의 단순화, 오염도 극소화 뿐만 아니라 시료간 상호 오염도 감소효과까지 얻을 수 있는 것으로 보고되고 있다.

이외에 레이저가 원소분리에 강력한 수단임을 이용하여 AMS에서 가장 난제인 동중원소를 분리하고자 하는 연구가 일부 시도되고 있다. 이스라엘 Rehovot 연구소는 레이저를 이용한 선택적 전자부착을 통해 음

이온으로부터 백그라운드로 작용하는 동중원소를 분리하는 데 성공하였다. 전자 친화도가 2.08eV인 $^{32}\text{S}^-$ 이온은 Nd: YAG 레이저에서 펄스형으로 방출되는 2.33eV의 광자에 의해 쉽게 중성 입자로 바뀌는 반면, 전자 친화도가 3.62eV인 염소 이온은 영향을 받지 않는다. 이로써 최종 검출기까지 백그라운드로서 따라오는 ^{32}S 를 가속기 전단에서 제거할 수 있으므로 소형 가속기를 가지고도 고감도 ^{36}Cl 측정이 가능해진다. 그러나 실용화를 위해서는 제거효율 증대에 관한 연구가 더욱 요구된다 하겠다.

그밖에 고순도물질 중의 ^{14}C 과 ^{36}Cl 의 농도를 AMS로 정량하고자 하는 연구를 들 수 있다. 우선 중성자조사에 의해 ^{14}N 과 ^{35}Cl 을 ^{14}C 과 ^{36}Cl 으로 핵변환시킨 다음 주사형 세슘스퍼터 이온원으로 AMS 측정을 함으로써 SIMS보다 월등히 우수한 감도로서 해당 핵종의 깊이방향의 농도분포를 알아 낼 수 있게 된다.⁴¹

6. 결론

1977년 연구가 본격적으로 시작된 후 10여년만에 AMS는 ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl 및 ^{129}I 등 다섯 개의 장반감기 동위원소들의 고감도 분석에 특히 유용함이 밝혀졌다. 재래식 감쇠계수법의 경우보다 소요 시료량이 1000배 이상 감소되어 지구과학분야에 새로운 지평을 열 수 있게 되었으며, 수백년에서 수백만년에 걸친 연대측정 및 천연추적자 활용분야에 AMS 활용빈도가 급증하고 있다. 이렇게 AMS는 극저준위의 동위원소들을 측정할 수 있는 강력한 수단으로 발전되어 왔으나 아직까지는 실용성 있는 활용범위가 몇몇 동위원소에 그치고 있다. 이는 AMS 발전을 위해 도전해야 할 기술들이 무한함을 말해 주고 있는 것이며, 따라서 지구과학뿐만 아니라 재료과학, 생의학, 물리학 등 제분야까지의 활용성을 볼 때 AMS의 앞날은 밝다 하겠다.

REFERENCES

1. K. H. Purser, A. E. Litherland and J. C. Rucklidge, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **NS-26**(1), 1338-1344(1979).
2. D. Elmore and F. M. Philips, *Science*, **236**, 543 (1987).
3. L. W. Alvarez and R. Cornog, *Phys. Rev.*, **56**, 379 (1939).

4. R. A. Muller, *Science*, **196**, 489(1977).
5. K. H. Purser et al., *Rev. Phys. Appl.*, **12**, 1487 (1977).
6. W. Kutchera, *Nucl. Instr. & Meth.*, **B50**, 252 (1990).
7. D. Lal and B. Peters, *Handbuch der Physik*, **46**, 551(1967).
8. G. M. Ramsey and R. E. M. Hedges, *Nucl. Instr. & Meth.*, **B92**, 100(1994).
9. K. H. Purser, P. Williams, A. E. Litherland, H. E. Gove and C. M. Stevens, *Nucl. Instr. & Meth.*, **186**, 487(1981).
10. K. H. Purser, A. E. Litherland and J. C. Rucklidge, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **Ns-26**(1), 1338(1979).
11. J. Klein, R. Middleton and H. Tang, *Nucl. Instr. & Meth.*, **193**, 601(1982).
12. D. Elmore, *Nature*, **277**, 22(1979).
13. J. D. Fassett, L. J. Moore, J. C. Travis and J. R. DeVoe, *Science*, **230**, 262(1985).
14. B. L. Cohen and C. B. Fulmer, *Nucl. Phys.*, **6**, 547 (1958).
15. M. Paul, *Nucl. Instr. & Meth.*, **B52**, 315-321(1990).
16. R. M. Middleton, J. Klein and D. Fink *Nucl. Instr. & Meth.*, **B43**, 231(1989).
17. M. Suter, *Nucl. Instr. & Meth.*, **B55**, 211(1990).
18. W. Wolfli, *Nucl. Instr. & Meth.*, **B29**, 1(1987).
19. A. E. Litherland, *Ann. Rev. Nucl. Part. Sci.*, **30**, 437(1980).
20. W. Kutchera, W. Henning, M. Paul, R. K. Smither, E. J. Stephenson and J. L. Yhtema, *Phys. Rev. Lett.*, **45**, 592(1980).
21. J. Heinmeier and P. Hvelplund, *Nucl. Instr. & Meth.*, **148**, 425(1978).
22. R. M. Middleton, *Nucl. Instr. & Meth.*, **B5**, 193 (1978).
23. J. D. Bowman and R. H. Heffner, *Nucl. Instr. & Meth.*, **148**, 503(1978).
24. D. Shapira, R. M. DeVries, H. W. Fulbright, J. Toke and M. R. Clover, *Nucl. Instr. & Meth.*, **B10/11**, 498(1985).
25. G. M. Raisbeck, F. Yiou, D. Bourles, J. Lestringuez and D. Deboffle, *Nucl. Instr. & Meth.*, **B5**, 175(1984).
26. G. M. Raisbeck, F. Yiou, M. Frueau, J. M. Loiseaux, M. Lieuvin, J. C. Ravel and C. Lorius, *Nature*, **292**, 825(1981).
27. P. E. Damon, D. J. Donahue, B. H. Gove, A. L. Hatheway, A. J. T. Jull et al., *Nature*, **337**, 611 (1989).
28. J. L. Bada, R. Gillespie, J. A. J. Gowlett and R. E. M. Hedges, *Nature*, **312**, 442(1984).
29. L. Curri, G. A. Klouda and K. J. Voorhees, *Nucl. Instr. & Meth.*, **B5**, 371(1984).
30. G. M. Raisbeck, F. Yiou, M. Fruneau, J. M. Loiseaux, M. Lieuvin and J. C. Ravel, *Geophys. Res. Lett.*, **8**, 1015(1981).
31. F. Tera, L. Brown, J. Morris, I. S. Sacks, J. Klein and R. Middleton, *Geochim. Cosmochim. Acta.*, **50**, 535(1986).
32. M. Paul, A. Kaufman, M. Magaritz et al., *Nature*, **321**, 511(1986).
33. D. Elmore, *Biol. Trace Element Res.*, **12**, 231 (1987).
34. J. C. Davis, *Nucl. Instr. & Meth.*, **B40/41**, 705 (1989).
35. L. W. Alvarez, W. Alvarez, F. Asaro and H. V. Michel, *Science*, **208**, 1095(1980).
36. J. C. Rucklidge et al., *Can. Mineral.*, **219**, 127 (1983).
37. J. M. Anthony and D. J. Donahue, *Nucl. Instr. & Meth.*, **B29**, 77(1987).
38. R. G. Milner et al., *Phys. Rev. Lett.*, **54**, 1472 (1985).
40. C. R. Bronk and R. E. Hedges, *Nucl. Instr. & Meth.*, **B29**, 45(1987).
41. D. Elmore, T. Z. Hossain, H. E. Gove, T. K. Hemmick, P. W. Kubik, J. P. Lavine and S. T. Lee, *Proc. 13th. Int. Radiocarbon Conf., Dubrovnik, 1988*, ed. R. Kra, *Radiocarbon*, **31**, (1989).