

레이저 유도 파열 분광을 이용한 유리시료 내 미량원소 분석

정의창, 김종구, 이동형*, 윤종일*, 연제원, 송규석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150-1)

*KAIST, 대전광역시 유성구 구성동 373-1

ecjung@kaeri.re.kr

1. 서론

레이저 유도 파열 분광(LIBS, Laser-Induced Breakdown Spectroscopy) 기술은 시료의 성분 분석을 위한 시료 전처리(pretreatment) 과정을 최소화할 수 있고, 시료의 국부적인 분석이 가능하며, 고체, 액체, 기체 시료 모두에 적용이 가능하기 때문에 여러 분야에서 널리 이용되고 있는 분석기술이다. 광섬유를 이용하여 레이저빔을 시료에 전송하거나 플라즈마에서 발생된 원자발광(atomic emission)을 분광기로 전송할 경우에는 실시간 및 원격으로 시료의 성분을 분석할 수 있기 때문에 산업 현장에서의 공정 제어 또는 유해 환경에서의 원소 분석 등에도 적용이 가능하다. 원자력 산업 분야에서는 증기 발생기의 부식물 현장 분석과 방사성 폐기물 유리화(vitrification) 공정 중의 유리용탕 성분 실시간 분석 등에 LIBS 기술을 적용하려는 연구가 보고된 바 있다 [1-3].

이 논문에서는 유리시료 내에 미량으로 존재하는 스트론튬(Sr), 우라늄(U) 원소 분석 결과를 보고한다. 이 원소들은 유리화 공정을 이용하여 방사성 폐기물을 처리할 때 산화물(SrO , UO_2) 형태로 시료 내에 포함되는 대표적인 원소들이다.

2. 실험 및 결과

실험장치의 구성을 그림 1에 나타내었다. 펄스폭이 약 6 ns, 파장이 266 nm, 최대 펄스 에너지가 약 30 mJ인 Nd:YAG 레이저 1(Continuum, Surelite II)을 광원으로 사용하였다. 빔 스플리터(beam splitter) 장치를 구성하였고, 일부 반사되는 레이저빔을 출력측정기에 입사시켜 레이저빔 펄스 에너지를 측정하였다. 초점길이가 10 cm인 렌즈를 이용하여 레이저빔을 시료에 입사시켰다.

플라즈마에서 발생한 원자발광 스펙트럼을 중심(core) 직경이 0.6 mm인 광섬유를 사용하여 에셀레(Echelle) 분광기(LLA Instruments GmbH, ESA 3000)에 입사시켰다. 광섬유를 통과할 수 있는 최단 파장은 200 nm이며, 분광기가 스펙트럼을 동시에 기록할 수 있는 파장의 범위가 200-780 nm 이므로 다중 시료 분석이 가능하다.

측정감도를 높이기 위해 펄스폭이 약 10 ns, 파장이 532 nm, 최대 펄스 에너지가 약 150 mJ인 Nd:YAG 레이저 2(Spectron, SL805G)를 별도의 광원으로 사용하였다. 두 레이저빔을 시료에 동시에 입사시키고, 두 레이저 펄스가 시료에 입사되는 시간을 조절하기 위해 시간지연(time delay) 조절장치를 사용하였다.

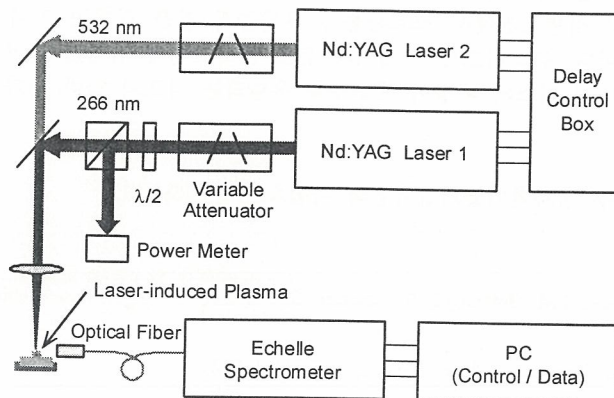


Fig. 1. An experimental setup of the double pulse LIBS.

스트론튬과 우라늄 농도를 정확하게 알고 있는 표준시료(NIST, SRM 610, 612, 614, 616), 우라늄 함유량이 약 1%인 U-glass 시료, 그리고 우라늄 농도를 다양하게 변화시킨 실험실에서 만든 유리시료를 실험에 사용하였다.

유리시료에서 레이저 유도 플라즈마가 형성될 때의 플라즈마 온도, 레이저 펄스에 의해 용발(ablation)되는 양의 레이저 과장 의존성, 시료의 검출 한계(limit of detection), 두 번째 레이저 펄스에 의한 신호증강 효과 등을 조사하였다.

그림 2에 표준시료에서 측정된 대표적인 스펙트럼을 나타내었다. 유리시료의 주성분인 칼슘(Ca) 원소의 경우에는 네 개의 표준시료에 대해 세기가 거의 유사한 원자발광 스펙트럼이 측정되었고, 스트론튬 원소의 경우에는 원자발광 스펙트럼의 세기가 시료에 함유된 스트론튬 농도에 비례하는 양상이 보인다. 서로 다른 농도의 시료에 대한 원자발광 스펙트럼의 세기를 이용하여 검정 곡선(calibration curve)을 구하고, 미지의 시료에 대한 스펙트럼의 세기를 이 검정 곡선에 삽입하여 그 농도를 구할 수 있다.

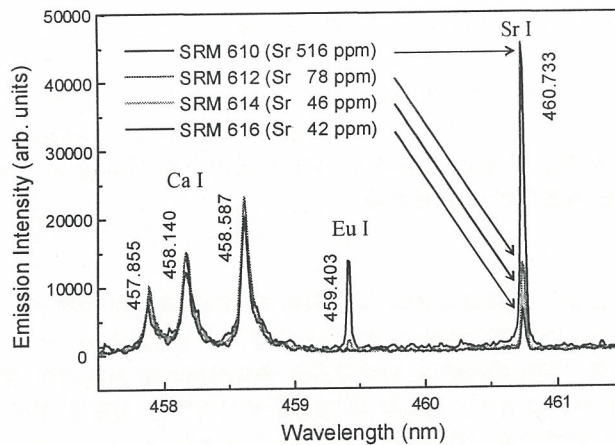


Fig. 2. Series of atomic emission spectra with varying concentrations of Sr in the wavelength range from 475.5 nm to 461.5 nm.

3. 결론

LIBS 기술을 이용하여 유리시료 내에 존재하는 미량 원소의 성분 분석 연구를 수행하였다. 핵분열 생성물의 주요 원소인 스트론튬과 대표적인 악티나이드 원소인 우라늄을 대상으로 검출 한계를 조사하였다. 현재의 실험조건에서 스트론튬과 우라늄의 검출 한계는 각각 수 ppm(parts per million), 수천 ppm 정도이다. 유리시료에서 레이저 유도 플라즈마가 형성될 때의 플라즈마 온도는 약 6000-8000 K이고, 레이저 펄스의 과장이 짧을수록 용발되는 시료의 양이 증가함을 알았다.

감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 원자력기술개발사업의 지원으로 수행되었다.

참고문헌

- [1] A.I. Whitehouse, J. Young, I.M. Botheroyd, S. Lawson, C.P. Evans, J. Wright, Spectrochim. Acta Part B. **56**, 821-830 (2001).
- [2] J.-I. Yun, R. Klenze, J.-I. Kim, Appl. Spectrosc. **56**, 437-448, (2002).
- [3] J.-I. Yun, R. Klenze, J.-I. Kim, Appl. Spectrosc. **56**, 852-858, (2002).