

레이저 유도 파열 분광학(LIBS)을 이용한 무독성 산화물 (Nd, Sm) 분석

정정환, 정의창, 양정하, 신희성, 김호동
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
iwieong@kaeri.re.kr

1. 서론

핵물질 계량 연구에 레이저 유도 파열 분광학 (Laser-Induced Breakdown Spectroscopy, LIBS) 기술을 적용하려는 이유는 사용후핵연료를 다루는 고온전해분리공정(pyroprocessing)에서 악티나이드 원소(U, Pu 등)를 포함한 민감 핵물질의 실시간 정량분석이 가능하기 때문이다 [1,2]. 현재 사용 중인 중성자 검출기는 중성자 계수율로 핵물질을 계량하는 방법으로서 핵물질에 미량으로 포함된 Cm의 양이 일정하다는 전제 아래 Cm 비에 따라 U, Pu 양을 계산하지만, Cm 함유량에 변화가 있다면 오차가 발생할 가능성이 크다. 따라서 LIBS 기술을 적용하여 핵물질에 함유된 Cm 비를 현장에서 실시간으로 측정할 수 있는 분석 장비와 방법을 개발할 필요성이 대두되었다.

Cm 비를 분석하기 위한 LIBS 기술 개발의 일환으로 DOE/LANL과 MEST/KAERI의 국제공동연구가 2009년부터 수행되고 있으며, 2009년에는 LIBS를 통한 안전조치 관련 정보 및 지식 교류, 2010년도에는 사용후핵연료 측정을 위한 LIBS 기술의 이론적 연구, 2011년도에는 물리적 검증을 위한 물질 시료 실험을 중점적으로 수행할 계획이다. 이 논문에서는 2010년 공동연구 내용에 포함된 대기 중의 무독성 대응 물질(란탄족 원소 대상)의 LIBS 실험 수행 결과에 대해 보고한다.

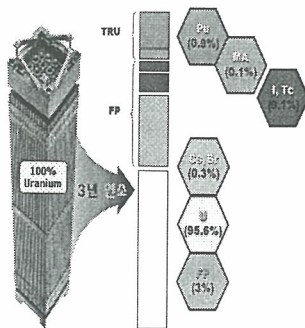


Fig. 1. Constituents of spent fuel

2. 본론

2.1 시료의 제작

핵물질을 다루는 시설 및 장비를 구축함과 동시에 사전 단계로 란탄족 원소인 Nd, Sm을 무독성 대응 물질로 선정하여 LIBS 연구를 수행하였다. 란탄족 원소는 원자발광(atomic emission) 스펙트럼의 복잡성이 악티나이드 원소와 유사하다. 따라서 한국원자력연구원의 원자력화학연구부에서 보유하고 있는 레이저 (Nd:YAG 레이저, Continuum, Surelite II) 및 분광기 (Echelle Spectrometer, ESA 3000) 등의 LIBS 장비를 이용하여 Nd, Sm의 LIBS 스펙트라를 측정하였다.

란탄족 원소를 대상으로 한 표준시료를 구하는 것이 불가능하므로 자체적으로 시료를 혼합물 형태로 제조하였다. Nd (순도 99.9%), Sm (순도 99.9%) 및 Cu (순도 99.9%) 분말을 섞어 arc melting furnace를 이용하여 다양한 혼합비의 시료를 제조하였다. 제조한 시료의 외형을 아래 사진에 나타내었다.

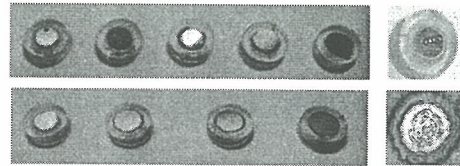


Fig. 2. Photograph of the samples with different mixing ratios (upper: Sm & Cu, lower: Nd & Cu)

2.2 측정 결과 및 고찰

대기압 조건에서 LIBS 실험을 수행하였고, 레이저 유도 플라즈마를 발생시키기 위해 532 nm 레이저 파장을 이용하였다. 혼합된 시료에서 농도를 결정하기 위해서는 검정 곡선(calibration curve)을 구해야 한다. 이를 위해 Cu의 경우 282.437 nm, Nd의 경우 415.608 nm, Sm의 경우 315.252 nm 파장을 선정하여 스펙트럼의 세기를 측정하였다.

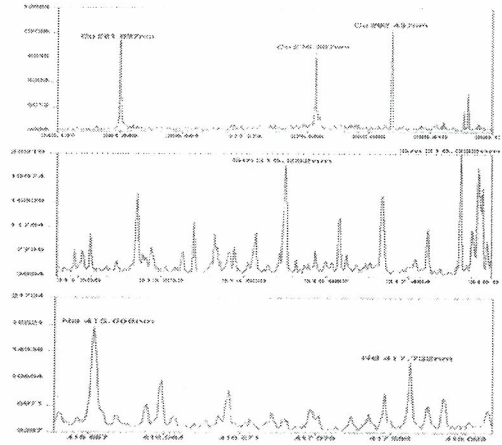


Fig. 3. Cu, Sm and Nd spectra measured from mixed samples

각 원소에 대응하는 대표적인 스펙트라를 그림 3에 나타내었다. 그림 4, 5에 나타낸 것과 같이 Sm과 Cu 혼합시료의 검정 곡선에서 기울기에 대한 오차는 1.04%이고, 상관계수(R^2)는 0.9995이다. Nd과 Cu 혼합시료의 검정 곡선에서 기울기에 대한 오차는 1.50%, 상관계수는 0.9992이다.

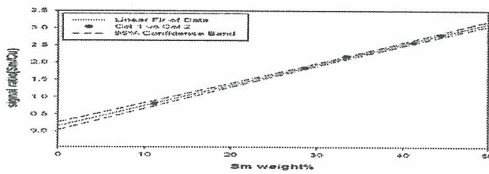


Fig. 4. Calibration curves for Sm

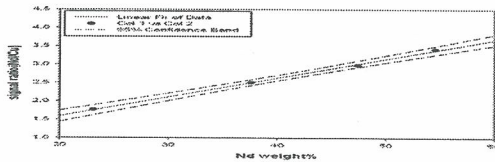


Fig. 5. Calibration curves for Nd

3. 결론

악티나이드 원소를 포함한 핵물질을 다루기 이전 단계에서 무독성 대응 물질로 란타늄 원소 Nd, Sm을 선택하여 LIBS 연구를 수행하였다. Cu, Fe와 같은 금속의 원자발광 스펙트럼과 중첩되지 않는 파장 영역에서 Nd, Sm의 발광 스펙트럼을 측정하였고, 시료의 농도에 따른 검정 곡선을 구했다.

핵물질 계량 및 안전조치 적용을 위해서는 hot-cell이나 고방사선 환경에서의 분석이 필요하므로 실시간, 원격 측정이 가능한 LIBS 기술의 적용 가능성을 지속적으로 조사하고 있다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력연구개발사업으로 지원받았습니다.

5. 참고문헌

- [1] W. Pietsch, A. Petit, A. Briand, Spectrochim. Acta Part B vol. 53, pp. 751-761, 1998.
- [2] C.A. Smith, M.A. Martinez, D.K. Veirs, D.A. Cremers, Spectrochim. Acta Part B 57, pp. 929-937, 2002.