

대기 상태에서 실시간 핵물질 측정시스템의 건전도 확인을 위한 Cu plate ablation 기준값 선택에 관한 연구

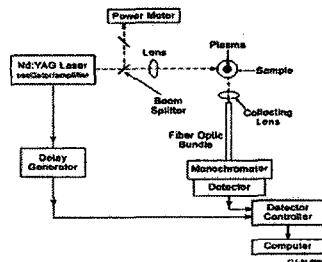
김승현, 이태훈, 김호동

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

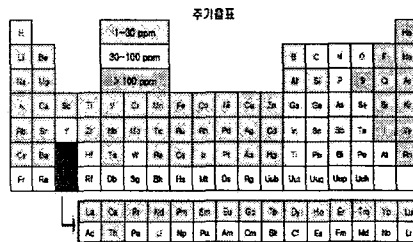
kimsh76@kaeri.re.kr

LIBS(Laser Induced Breakdown Spectroscopy)는 고출력의 laser를 사용, 일종의 방전 현상인 breakdown이 발생하여 생성되는 plasma를 여기원(excited source)으로 사용하는 분광분석법으로서, Plasma 속에서 시료는 충분히 vaporization되어, atomization 및 ionization되고, 흡수된 에너지에 의하여 원자 및 이온은 여기 상태로 존재할 수 있다. 여기 상태의 원자 및 이온은 일정 수명 이후 에너지를 방출하며 다시 바닥상태(ground state)로 돌아가는데, 이 때 방출되는 에너지는 원소의 종류 및 여기 상태(1st, 2nd excited state등)에 따라 고유의 파장을 방출하게 되는데, 표준 시료를 이용해 획득된 각 원소별 고유 파장과 비교함으로써 미지의 sample에 대해 정성분석, 나아가 정량분석까지도 가능케 하는 기술이다.

이 LIBS를 이용한 핵물질 측정은 모든 형질의 시료에 적용이 가능하며, 동시에 다중 원소에 대해 분석이 가능하고, 실시간으로 바로 측정 결과가 나온다는 점에서, 기존의 핵물질 측정 및 계량시스템을 보완 및 대체하는 효과를 지닌다. 현재 국외는 물론, 국내에서도 이 LIBS에 대한 기초적인 연구 및 산업적 응용에 대한 연구가 활발하게 진행 중이며, 핵물질 계량 관리 시스템에 대한 응용도 연구가 진행 중이다. 아래의 <그림1>은 전형적인 LIBS 장치의 구조이며, <그림2>는 현재까지 알려진 LIBS를 이용한 각 원소별 검출한계를 보여준다. <그림2>에서 보는 바와 같이 핵물질 측정에 직접적인 대상이 되는 U, Pu, Cm등에 대해서는 실험실 단계에서의 실험이 어려운 관례로 아직까지는 그 데이터 미비하며, 핵물질 계량을 위해서라도 그 데이터의 수립이 요구되고 있다.



<그림1> Typical LIBS apparatus



<그림2> LIBS를 이용한 각 원소별 검출한계

하지만, 아직 이 LIBS기술을 이용하여 핵물질을 측정, 계량하는 데에는 많은 어려움이 남아있다. 정성분석의 측면에서 살펴보면, 일단 측정과 결과치를 얻는 시간이 순식간에 이루어짐에도 불구하고, 기존의 분석방법에 비해 그 결과치는 큰 오차(약 5~10%)를 수반할 수밖에 없다. 이 오차를 최대한으로 줄이기 위해서는 plasma 환경에서 주변 공기와의 interaction을 줄이기 위한 vacuum chamber의 사용이 요구되는데, 이 과정에서 sample을 chamber에 맞게 절단하고 가공해야 하는 단계가 요구된다. 본 연구는 이러한 sample의 처리단계를 제거하기 위해, sample을 chamber에 넣지 않고, 대기내에서 LIBS를 이용해 얻은 데이터를 어디까지 참값으로 수용해야 하는지 결정하고, 이를 통해 LIBS기기의 건전도를 확인하기 위한 준비단계를 실시하기 위함이다

이번 실험에서, Laser는 Bigsky社(미)의 Ultra CFR series Nd:YAG laser의 1064 nm를 사용하였으며, 최대 에너지는 50 mJ, 기본 주파수는 5 Hz로 설정하였다. 시료 고정용 홀더 및 수광렌즈, 분광계는 OceanOptics사의 HR2000 series이며, 300~600 nm 영역을 측정하는 spectrometer를 구성하여 사용하였다.

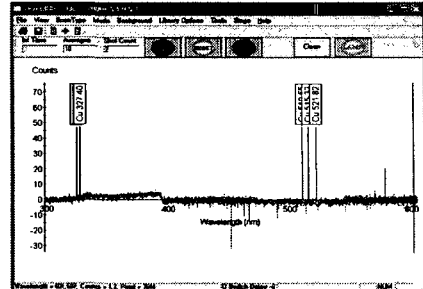
<표1> 실험 환경

sample	Cu plate (99.9%)
실험 환경	온도 : 16.2~18.8 ℃, 습도 : 39~44%
laser inf.	average : 10 shot count : 2 delay time : -2.5

<그림3> plasma 발진 모습



<그림4> 실험 결과



<표2> 실험 결과 (¹⁾ 각 파장별 각 파장별 기준counts값은 vacuum상태에서의 표준값이며, 참고로 제시함)

기준선	510.486 nm (150) ¹⁾	515.264 nm (200)	521.761 nm (250)	578.102 nm (150)	특 이 사 항 (기준선 외, 관찰된 파장)
실험1	62.1 =	18.2 =	26.9 =	21.5 =	- --
실험2	58.9 =	19.4 =	27.8 =	17.9 =	324.674 nm ; 22.5 327.321 nm ; 16.1
실험3	67.5 =	19.4 =	33.2 =	19.4 =	324.674 nm ; 23.2 327.321 nm ; 17.2
실험4	73.2 =	21.7 =	35.6 =	20.6 =	324.674 nm ; 21.1 327.321 nm ; 17.1
실험5	56.8 =	15.4 =	25.7 521.796 nm ; 27.1	18.7 =	324.674 nm ; 17.0 327.321 nm ; 13.7
mean	63.7	18.8	29.84	19.6	

먼저, 결과치의 X축, 즉 파장에 대해서는 실험5의 521.761 nm의 결과처럼 파장의 peak치가 간혹 shift 되기도 하는데, 이는 파장의 폭이 약간 broad해서 생기는 것으로, 측정시스템의 프로그램 상에서 cursor의 이동이 0.032~0.036 nm 범위에서 조정되며 이 정도 범위 안에서 선폭이 결정되므로, 0.032~0.036 nm의 오차범위를 용인해야 한다. 다음으로, Y축 intensity(count)에 대해서는 표2에서 보는 바와 같이, unstable하며, 일반적인 error계산치보다 더 큰 값이 나오므로 mean값에 ± (counts)^{0.75}의 오차는 용인해야 하며, 예를 들면, <표2>에서의 510.486nm의 경우에는 63.7 ±22.5 값까지는 용인해야 한다.

- 결론 및 향후 계획

본 연구에서는 실시간 핵물질 측정 시스템을 대기 중에서 어느 정도의 허용치를 두고 그 결과치를 용인해야 하는 지를 두고 결정해 보았다(일반적인 error범위보다 broad하게 설정). 파장의 위치에 대해서는 측정기기의 성능과 파장의 선폭을 감안하여, 0.032~0.036 nm의 오차범위를 용인해야 한다. 또한, intensity(count)에 대해서는 count수가 클수록 그 오차는 더 커지고, 최대 ± (counts)^{0.75}의 오차범위를 용인해야 하며, 이를 참값으로 판단, 실험기기에 대한 건전도를 확인해야 한다. 물론, 동일한 조건하에서 더 많은 측정이 필요하며, 각 원소마다 그 오차값도 다를 수 있어 이에 대한 연구도 더 필요하다. sample로 cooper를 사용한 이유는 intensity를 얻기 용이하고, 또한 기기자체의 calibration의 용도로 수행한 것으로 이를 바탕으로 위 실험 장치를 이용하여, 앞으로 핵물질 계량의 주 관심 원소인 U, Pu, Cm에 대해 vacuum 상태에서의 stable한 결과치(표준값 획득)와 대기 중에서의 결과치를 획득하여 분석할 것이며, 좀 더 나은 gain 획득을 위한 plasma 수광장치에 대한 디자인을 마련하고자 한다.