

## LIBS를 이용한 플루토늄, 큐륨 분석용 ROI(region of interest) 선정 연구

양정하, 서지선, 정정환, 정의창, 최선수, 신희성, 김호동  
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045번지  
[yih@kaeri.re.kr](mailto:yih@kaeri.re.kr)

### 1. 서론

안전조치(safeguards)를 행하는 구체적인 주요 수단은 사찰(inspection)이며, 해당 국가가 제공한 핵물질 보고서를 확인하고 검증하는 것이다. 핵물질에 대한 계량 관리는 안전조치의 목적을 달성하기 위한 접근 방안 중 하나이며, 사용후 핵연료에는 우라늄과 플루토늄이 포함되기 때문에 핵물질 계량 관리가 필수적이다.

레이저 유도 파열 분광학 (Laser-induced breakdown spectroscopy, LIBS) 기술은 악티나이드 원소와 같은 고방사능 시료에 대한 현장 분석기술로서, 필요한 시료의 양, 분석시간, 시료 전처리 등을 최소화 시킨 조건에서 미량으로 존재하는 다양한 원소들을 분석할 수 있다. 또한 소형화된 레이저의 상용화로 현장 적용이 용이하고 광섬유와 결합하여 원격으로 시료의 측정이 가능하므로 hot-cell 등의 고방사능 환경에서 민감 핵물질의 계량에 적합하다. 민감 핵물질인 플루토늄과 우라늄 등에 대한 레이저 조사 실험은 허가받은 실험실에서만 가능하므로, 본 실험실에서는 사전 연구의 일환으로 란타나이드 계열을 LIBS로 측정하고, 그 측정 오차를 분석하여 안전조치 적용 가능성을 분석한 바 있다 [1].

이 논문에서는 다음 실험 목표인 악티나이드 계열 원소 실험을 수행하기 위한 사전 연구 결과를 정리한다. 플루토늄의 직접적인 분석이 어려운 점을 고려하여 LIBS 기술로 측정된 Pu/Cm 비율을 이용하는 방법을 채택하였고, NIST atomic spectra database [3]를 이용하여 플루토늄과 큐륨의 ROI (Region Of Interest)를 분석하였다.

### 2. 본론

파이로 공정 과정에서는 여러 가지 생성물이 나온다 [2]. 이 생성물들 중에서 전해제련을 거친 TRU의 플루토늄과 큐륨이 총 질량 대비 함량이 가장 높으며, 함량이 높을수록 스펙트럼 세기가

증가해 LIBS 장비를 통한 측정 및 스펙트럼 분석이 용이하므로, 본 연구에서는 이 생성물에 대한 ROI 분석을 수행하였다.

Table 1. Gram of Nuclides

	전해환원	전해정련	전해제련
U	48815.01	138.32	138.32
TRU	476.98	477.46	476.98
NM	528.84	0	0
REFP	493.64	494.13	116.28
AMPF	0.19	0.19	0
AEPF	2.83	2.83	0
Total	50317.49	1112.93	731.58

Table 2. Group of Nuclides

Group	Nuclide
U	U
TRU	Ac, Th, Pa, Np, Pu, Am, Cm, Bk, Cf, Es, S
REFP	Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu

Table 3. Content of Nuclide elements

	전해환원	전해정련	전해제련
우라늄	97.01%	12.43%	18.91%
플루토늄	0.81%	36.58%	55.60%
큐륨	0.01%	0.31%	0.48%

플루토늄과 큐륨의 원자 발광 파장을 그래프로 그려 확인한 결과(Fig 1. 참조), 원자 발광 파장이 자외선 영역에 집중되어 있는 것을 알 수 있었다. 이러한 스펙트럼은 매우 좁은 영역에서 밀집해 있기 때문에 각 핵종의 ROI를 결정하기 위해서는 사용하는 분광기의 분해능을 고려해야 한다.

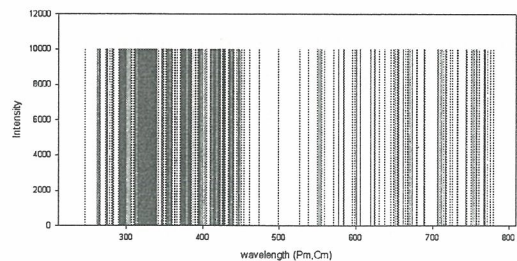


Fig. 1. Atomic emission spectra of Cm and Pu

플루토늄과 큐륨의 측정에 사용할 장비는 Echelle 분광기(LLA, ESA-4000 UV)이며, 측정 가능한 파장 영역은 190-420 nm 이다. 자외선 파장 영역에서 측정하고자 하는 플루토늄과 큐륨 원소들의 측정에 유리하다. 이 장비는 190 nm에서 0.0027 nm 350 nm에서 0.0051 nm 의 분해능을 가지고 있어 최소 0.01 nm의 분해능을 가진다는 조건 하에 ROI 선정 연구를 수행하였다 [4].

우선 NIST atomic spectra database [3]를 이용하여 전해제련 공정중의 물질인 U, TRU, REFP 핵종별 원소들의 자외선 영역의 스펙트럼을 얻은 후, 자체 개발한 전산 프로그램을 이용하여 플루토늄과 큐륨의 스펙트럼의 각 파장을 분석하여 ROI를 선정하였다.

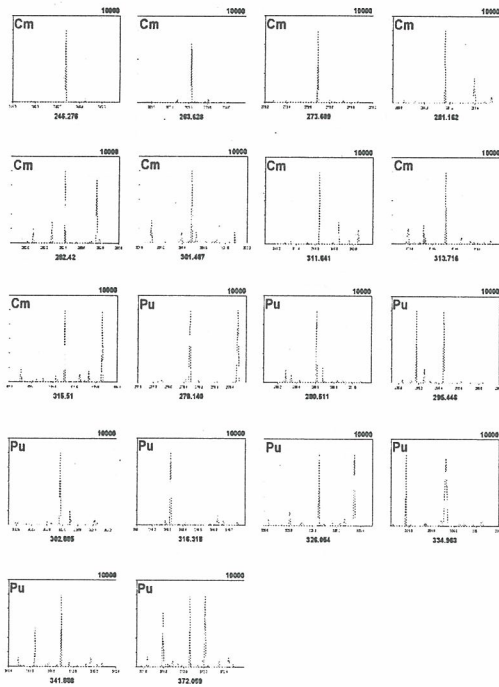


Fig. 2. Individual spectral line selection. (ROI-region of interest)

각 원소의 발광선이 높은 신호 세기를 가지며 다른 원소들의 발광선과 중첩이 되지 않아야 한다. 또한 각 원소들의 함량과 발광선의 세기가 비례적이지는 않지만 대략적으로 원소의 함량이 높을수록 신호의 세기가 증가함을 고려하여 다른 원소에 의한 간섭이 없는 파장을 선택하는 것이 중요하다.

Table 4. Cm and Pu element analysis of electrowinning, spectral line selections

S IV 246.265	Cm II 246.276	Pr III 246.290
S II 263.624	Cm II 263.628	Tm III 263.668
S IV 273.650	Cm II 273.689	S II 273.7243
Ho II 281.136	Cm II 281.162	Eu II 281.175
Pr II 282.414	Cm II 282.420	Er III 282.475
Tm II 301.465	Cm II 301.487	Pr III 301.513
Th I 311.626	Cm I 311.641	Yb II 311.670
Yb II 313.676	Cm I 313.716	Nd II 313.724
Ac II 315.441	Cm I 315.510	Yb II 315.518
Tb II 316.293	Pu II 316.318	Pr II 316.373
Lu III 278.116	Pu II 278.14	S II 278.1546
Er III 280.587	Pu II 280.611	Ho II 280.672
Pr III 295.440	Pu II 295.446	S IV 295.5266
Er II 302.827	Pu II 302.885	Am II 302.886
Nd II 325.924	Pu II 326.054	Nd II 326.066
Tb II 334.942	Pu I 334.963	Tm I 334.999
Sm II 341.851	Pu II 341.888	Dy II 341.963
Th I 371.984	Pu I 372.059	Ho I 372.072

각 원소들의 스펙트럼 분석 후 얻은 큐륨과 플루토늄의 ROI 영역은 Table 4에 나타내었고, 이러한 연구를 통하여 LIBS를 이용한 전해제련 공정 과정에서의 Pu/Cm ratio 측정이 가능할 것으로 판단한다.

### 3. 결론

본 연구에서는 NIST atomic spectra database를 이용하여 파이로 공정 생성물에서의 플루토늄과 큐륨 분석에 적용할 수 있는 ROI(region of interest)를 선정하였다. ESA 4000 분광기를 이용할 경우에 큐륨과 플루토늄에 대해서 각각 9개, 9개의 측정 가능한 파장 영역을 설정하였다. 전해제련 공정 생성물에서의 플루토늄과 큐륨의 정량 측정이 가능한 것으로 판단된다.

향후 ROI 분석용 전산 프로그램을 개선하여 보다 정밀한 ROI 분석이 되도록 할 것이다.

### 4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

### 5. 참고문헌

- [1] 김승현 외, 측정 정확도 향상을 위한 진공분위기에서의 레이저유도파열분광분석법 확립, 한국원자력연구원 보고서 KAERI-TR-3783/2009
- [2] 한국방사성폐기물학회, 2010년 학술논문요약집, Vol.8, No.1 273p~274p
- [3] www.nist.gov
- [4] www.la.de