2003 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

저에너지 감마선원용 Yb-168 안정 동위원소 분리

Isotope Separation of Yb-168 for Low Energy γ-Ray Sources

박현민, 권덕희, 차용호, 이기태, 남성모, 김선국, 유재권, 한재민, 이용주
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

레이저를 이용하여 저융점 중금속 원소의 희귀 동위원소를 분리하는 시스템을 개발하였다. Yb-168을 저 에너지 감마선원으로 활용되는 Yb-169의 표적 동위원소로 이용하기 위해서는 동위원소 성분비를 자연 성분비인 0.135 %에서 15 %이상 올려야 한다. 레이저에 의한 동위원소 분리 시스템을 레이저 시스템, 원자 증기 발생 시스템, 광 이온 추출 시스템으로 구성하였다. 레이저 시스템은 고반복율 다이오드 여기 고체 레이저와 3대의 색소 레이저로 구성되었고, Yb 원자 증기 발생을 위해서 1m의 길이를 갖는 저항 가열형 원자화 장치를 개발하였으며, 레이저에 의해 생성된 광 이온을 회수하기 위해서는 중성 원자가 차단될 수 있도록 밀폐형 이온 추출기를 개발하였다. 연구 결과 Yb-168 구성비를 0.135 %에서 25.3 %까지 올려 성분비를 190 배 이상 증가시켰고, 20.5 mg의 추출물을 얻는데 성공하였다.

Abstract

We developed laser isotope separation technology of stable isotopes of low melting point metals. Yb-168 can be effectively used in non-destructive testing (NDT) after it is transformed to Yb-169 by neutron irradiation in a nuclear reactor. For this application of Yb-168, the isotope purity of it should be enhanced to more than 15 % from the natural abundance of 0.135%. Our isotope separation system consists of laser system, Yb vapor generating system, and photoionized particle extraction system. For the laser system, we developed a diode-pumped solid-state laser of high-repetition rate and 3-color dye lasers. Yb vapor was generated by heating solid Yb sample resistively. The photo-ion produced by resonance ionization were extracted by a devised extractor. We produced enriched Yb metal more than 20 mg with the abundance of 25.8% of Yb-168 in the form of $Yb(NO_3)_3$.

1. 서 론

원자번호 70인 Yb 원소는 표 1과 같이 자연계에 7개의 안정 동위원소를 가지고 있다. 이중 Yb-168은 원자로에서 중성자가 조사되면 방사성 동위원소인 Yb-169로 변환된다.

표 1. Yb의 안정 동위원소들

동위원소	168	170	171	172	173	174	176
성분비(%)	**0.135**	3.03	14.31	21.82	16.13	31.38	12.73

Yb-169는 반감기가 32시간이고 평균 에너지가 93 keV인 저 에너지 감마선을 방출하여 비파괴 검사등에서 매우 우수한 특성을 가지고 있는 것으로 알려져 있다. 특히 스테인레스 스틸이나 지르코늄에 대해 높은 감약율을 보이며, 소형으로 운반성이 뛰어나 유럽등에서 핵연료 재처리 공장에서 사용되는 얇은 연결관의 비파괴 검사 등에 활용되고 있다[1]. 그러나 Yb-169의 표적동위원소로 이용되는 Yb-168은 표 1에서 볼 수 있듯이 자연 성분비가 0.135 %로 낮아 고 품질의 방사선원 개발을 위해서는 15 %이상으로 농축된 Yb-168 동위원소가 필요하다. 농축된 Yb-168은 여러 화학 공정을 통해 융점이 높은 산화물 Yb_2O_3 로 변환되고, 다시 일정 (8 mg) 규격을 갖는 펠릿으로 가공된 후 원자로 내부에서 중성자를 조사할 경우 Yb-169로 핵변환 된다.

이러한 배경에서 본 연구에서는 레이저를 이용하여 중성 Yb 원자 시료에서 Yb-168 동위원소를 분리하는 연구를 수행하였다. 우선 Yb-168 동위원소를 선택적으로 이온화 시키기 위한 최적 광 이온화 구도를 확립하였고, Yb 광 이온 추출용으로 좁은 선폭을 갖는 색소 레이저 시스템을 개발하였다. 또한 Yb 원자를 증기화 시킬 수 있도록 저융점 원자 발생기를 개발하였으며, 최종적으로 레이저빔에 의하여 생성된 광 이온을 최대한 수집하면서도 중성원자 부착은 최소한으로 할 수 있는 밀폐형 이온 수집기를 개발하여 동위원소 분리에 이용하였다.

본 논문에서는 Yb-168 동위원소 분리를 위한 전체 시스템을 간략하게 기술하고, 개발된 시스템을 이용하여 현재까지 수행한 연구 결과를 발표하고자 한다.

2. Yb-168 동위원소 분리 시스템

레이저를 이용한 동위원소 분리 기술은 최적 광 이온화 구도 설정, 추출용 레이저 관련 기술, 대상 원소의 증기 발생 및 생성된 광 이온을 효율적으로 추출하는 기술로 분류된다 [2]. 각각의 기술에 대한 설명은 아래와 같다.

(1) Yb-168의 최적 광 이온화 구도 설정

Yb-168의 효율적 광 이온화를 위한 현재까지 확립된 최적 광 이온화 구도는 그림 1과 같다 [3]. 중성 원자의 기저준위는 J=0 인 $4f^{14}$ $6s^2$ $^1S_0$ 이고 이 준위에서 가시광선으로 여기가 가능한 준위는 파장이 555.648 nm인 $6s6p$ $^3P_1$ 준위이다. 이 여기준위는 삼중항 상태(Triplet State)로서 대부분의 원자에서는 준안정 준위(metastable state)로 존재하여 단일항 상태(Singlet State)인 기저준위에서는 전이가 불가능하나, 중금속 원자에서는 엄격히 그러한 원칙이 적용되지 않아 아주 큰 전이 단면적을 가지고 있다. 또한 여기준위의 여기수명은 840 ns [4]이고 전기 쌍극자 모멘트는 2.7 x 10^{-30} C.m 로서 충분히 커 1차 전이로서는 적당하다. 한편 그림에서 볼 수 있듯이 Yb-168에 가장 인접한 Yb-171의 동위원소 이동폭이 150 MHz 정도로서 아주 작아 분리용 레이저로 사용되는 300 MHz의 선폭을 갖는 펄스레이저로서는 높은 선택도를 기대할 수 없다. 2차 여기 준위로서는 1차 여기준위에서부터의 파장이 581.067 nm인 $4f^{13}$ $6s^2 6p$ $(7/2, 3/2)_2$ 준위가 선택되었다. $4f^{13}$ $6s^2 6p$ $(7/2, 3/2)_2$ 준위는 여기 수명이 1.2 us로서 충분히 길며 그림 1에 나타낸 것처럼 Yb-168과 인접 동위원소인 Yb-171과의 동이원소 이동량이 1.5 GHz 로서 펄스레이저의 선폭에 비해 충분히 커 2차 여기준위로서 적당하다. $6s6p$ $^3P_1$ - $4f^{13}6s^2 6p$ $(7/2, 3/2)_2$ 사이의 전기 쌍극자 모멘트의 크기도 4.3 x 10^{-31} C.m으로서 1차 전이보다는 작지만 레이저에 의해 여기시키기에는 충분하다.

마지막 전이는 최종적으로 Yb-168원자를 광이온화 시키는 단계로서 전체적인 분리 효율에 가장 큰 영향을 미친다. 여러 레이저 분광 연구를 통해서 52349.89 cm^{-1} 의 에너지를 갖는 자동 이온화 준위로의 전이가 가장 단면적이 크고 효율적임이 밝혀졌다[5]. 2차 준위로 부터의 여기 파장은 582.782 nm이고 여기 단면적은 6.7 x 10^{-16} cm^2 이다.

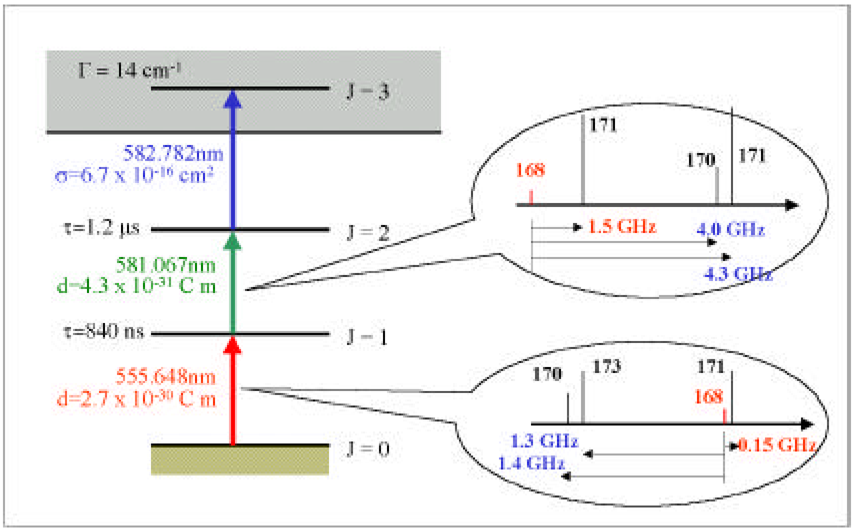

그림 1. Yb-168 동위원소 분리를 위한 최적 광 이온화 구도

(2) 동위원소 분리용 레이저

설정된 최적 광 이온화 구도에 따라 Yb-168을 광 이온화 시키기 위해서는 1차 여기과정에서 555.648 nm, 2차 여기과정에서 581.067 nm, 그리고 이온화를 위하여 582.782 nm의 파장을 갖는 레이저가 필요하다. 또한 Yb-168의 동위원소 선택도를 향상시키고 추출량을 최대로 하기 위해서는 각 레이저마다 적당한 출력과 선폭을 가져야 한다. 특히 일차 및 이차 여기준위에서 Yb-168에 근접한 동위원소인 Yb-171, Yb-173의 동위원소 이동값이 대략 1.5 GHz 정도로 매우 가까울 뿐만 아니라 자연상태의 성분비도 각각 14.3 %, 16.1 % 로서 Yb-168의 100배 이상이나 되어 원하는 Yb-168의 성분비를 얻기 위해서는 무엇 보다도 파장 선폭이 좁고 안정된 레이저가 필요하다. 이를 위해 그림 2와 같이 Yb 추출용 색소 레이저 시스템을 개발하였다.

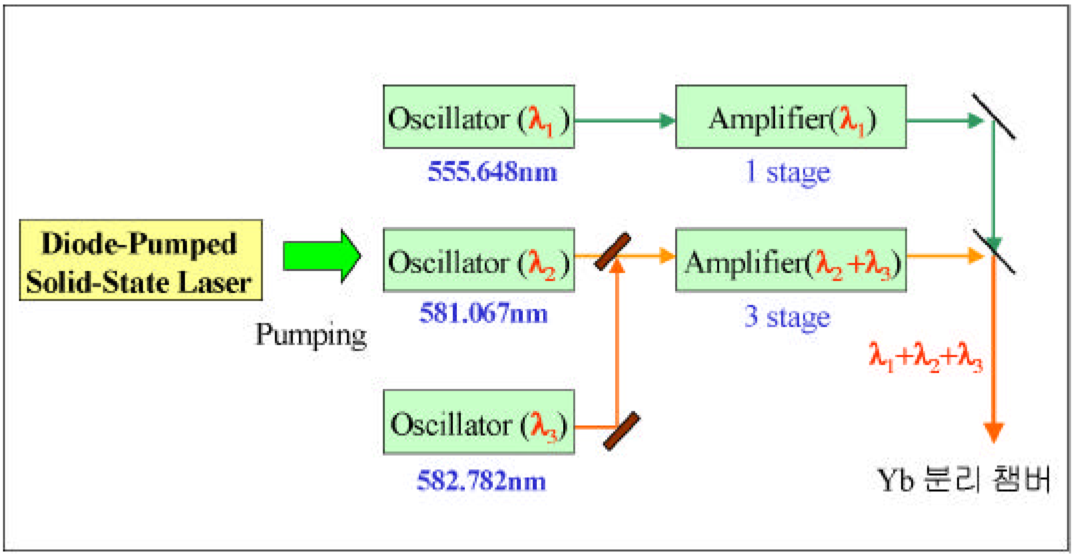

그림 2. Yb-168 분리용 레이저 시스템

모든 색소 레이저는 10 kHz의 반복률을 갖는 다이오드 여기 고체 레이저(Diode-Pumped Solid-State Laser, DPSSL)로 펌핑되었다. 레이저 다이오드로 펌핑되는 DPSSL은 모든 능동 소자가 고체이므로 유지보수 및 안정성이 타 기체 레이저 보다 뛰어날 뿐만 아니라, 소형으로도 고출력을 낼 수 있다는 장점이 있어 색소 레이저용 펌핑 레이저로 채택되었다.

색소레이저는 Littrow 형태의 공진기를 선택하였고[6] 공진기 내부에 빔 확대기로서 multiple-prism을 설치하였다. 1차와 2차 레이저의 경우 레이저의 선폭을 축소하기 위하여 공진기 내부에 FSR (Free Spectral Range)가 약 10 GHz이고 Finesse가 약 20 정도인 에탈론을 설치하였다. 그 결과 그림 3처럼 1차와 2차 여기 레이저의 선폭을 220 MHz 이내로 줄일 수 있었으며 시간의 경과에 따라서도 안정되어 있음을 볼 수 있다. 측정된 220

MHz의 선폭은 2차 전이에서 Yb-168과 Yb-171사이의 동위원소 이동값 1.5 GHz에 비해 아주 작아 고 선택도의 Yb-168 추출을 위해서 적합하였다.

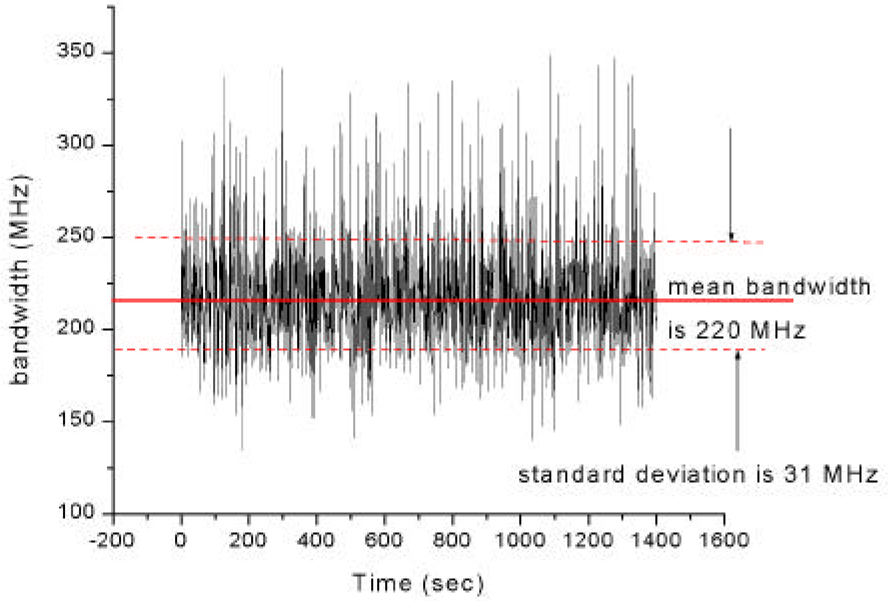

그림 3. 색소레이저의 선폭 측정 결과.

한편 1차 색소 레이저(λ_1)는 Yb의 1차 여기 전이의 여기 효율이 좋기 때문에 작은 출력으로도 충분하여 공진기에 하나의 증폭기만을 추가하여 출력을 증대 시켰다. 2차 여기 레이저(λ_2)와 이온화용 레이저(λ_3)는 파장이 각각 581.067 nm, 582.782 nm 로서 매우 근접하여 있기 때문에 두 빔을 합성할 때의 손실이 매우 크다. 이러한 합성시의 손실을 줄이기 위하여 공진기에서 출력된 두 레이저빔을 합성한 후에 동시에 증폭시키는 방법을 이용하였다. 그 결과 증폭 전에 일부의 손실이 있어 초기 증폭이 어려웠지만 최종 증폭 결과 손실을 최대한 줄일 수 있었다. 분리 챔버에 입사하기 전 1차 여기 레이저와 2차 및 이온화 레이저의 합성은 Dichroic Mirror를 사용하였다. 합성된 3색 색소 레이저는 분리 챔버내에서 다중 통과가 가능하도록 여러 광학계를 이용하여 최대한 전파하면서 빔 크기가 유지되도록 하였다. 또한 증폭기를 통과한 후 공간적으로 합쳐진 2차 레이저와 3차 레이저의 출력을 분리하여 측정할 수 있도록 회절격자 (2400 lines/mm)와 프리즘을 이용하여 두 빔을 분리하고 각 출력을 측정할 수 있는 장치를 개발하였다.

(3) Yb 증기 발생 및 광 이온 추출 시스템

Yb 금속은 녹는 온도가 1097 °K로 다른 희토류 금속에 비해 상당히 낮기 때문에 전자

빔이 아닌 저항 가열 방식을 사용하여 원자 증기를 발생하였다. 사용한 원자증기 발생장치의 전체 길이는 1 m 정도로 개략적인 단면 구조는 그림 4와 같다.

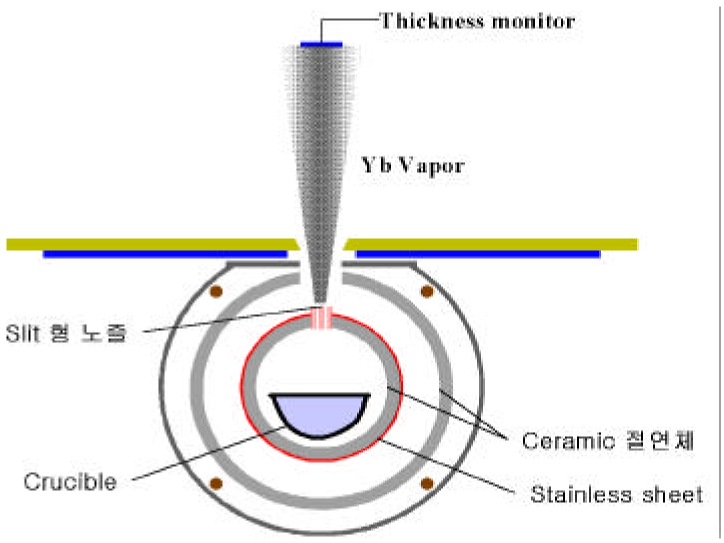

그림 4. Yb 증기 발생용 원자화 장치

Yb 금속 조각을 담은 도가니가 가장 안쪽에 ceramic tube에 둘러 싸여 있으며, 스테인레스 sheet에 고 전류를 인가하여 가열하였다. 제작된 원자화 장치는 최고 1000 °C까지 가열 가능하도록 설계되었고 분리 실험시 500 °C에서 최적화되도록 설계되었다. 고지향성의 원자 증기빔을 얻기 위해서 그림 5와 같이 도가니가 들어 있는 ceramic tube의 출구 부분에 슬릿형 노즐을 설치하여 가열을 시킬 수 있도록 하였고, 아울러 원자빔의 발산각을 최소화하고 증기량을 최적화 할 수 있도록 슬릿의 길이를 조정하였다. 또한 PIC (Particle-In-Cell) 모델을 이용한 전산 시뉼을 하여 원자 증기의 공간 분포 및 발산각을 계산하였다.

한편 발생된 Yb 증기량을 측정하기 위하여 진공 챔버 내부에 수정 진동자를 이용하는 thickness monitor를 활용하여 간접적으로 원자 밀도를 측정하였고, 직접적으로 근 자외선 영역에서 발진하는 다이오드를 레이저를 이용하여 원자 밀도를 측정하였다. 원자 밀도는 레이저와 상호 작용하는 영역에서 원자 발생기 온도를 520 °C로 가열했을 때 $2x10^{11}/cm^3$으로 측정되었다.

광 이온 추출 시스템은 레이저에 의해 생성된 광 이온을 이온 collector에 수집하는 장치로서, 동위원소 분리 효율을 결정하는 가장 핵심적인 요소이다. 또한 경제적 측면에서 판단할 때, 원자증기 발생장치로 원자빔을 만들고, 생성된 원자빔을 레이저에 의해 선택적으로 이온화시키는 과정에서 전 공정에 소요되는 에너지의 대부분을 소비하므로, 일단 생성된 대부분의 광 이온을 collector에 부착시켜 회수하는 것이 절대적으로 요구된다.

Yb-168의 자연 성분비는 0.135 %로서 비파괴 선원등 산업용으로 사용하기 위해서는 성분비를 15 % 이상으로 올려야 한다. 자연 성분비가 너무 작아 레이저에 의해 이온화되

는 원자의 개수도 다른 Yb 동위원소에 비해 매우 작으므로, 원자 발생 장치로부터 나오지만 레이저에 의하여 이온화 되지 않는 중성 원자의 부착을 최소화해야 한다. 이를 위해 본 연구에서는 밀폐형 이온 추출기를 사용 하였다. 추출 장치의 총 길이를 원자 발생기와 동일하게 1 m 로 하였으며, 부식 방지를 위해 전체적으로는 스테인레스(STS)를 사용하였다. 추출 순도의 주요 저하 원인인 중성 원자의 부착을 최소화하기 위하여 이온 collector를 외부와 차폐된 위치에 부착하였다. 또한 레이저에 의해 이온화된 Yb-168 이온을 추출기 내부로 유인하기 위하여 좁은 폭의 슬릿을 전면에 설치하였다. 광 이온의 입구로 이용될 슬릿의 폭이 작기 때문에 광 이온을 collector로 유인하기 위해서는 강한 전기장을 가해야 한다. 그러나 위와 같이 레이저에 의하여 생성된 광이온을 고 전압으로 유도할 경우, 다중 반사에 의한 손실이 커 추출 효율 및 분리계수가 감소하고, sputtering 효과에 의해 추출물의 순도가 나빠지는 문제가 발생하여, 최종적으로 빗살(comb) 형태의 추출판을 사용하였고, 인가 전압을 -5 kV 이하로 걸어 Yb 광 이온이 직접 부착되도록 만들었다.

3. Yb-168 동위원소 분리 실험 결과

앞에서 기술하였듯이 3색 색소 레이저 시스템, Yb 원자 증기 발생장치, 이온 추출기를 각각 개발한 후 전체 시스템을 통합하여 Yb-168 동위원소 분리 실험을 수행하였다. 추출 실험시 3 색 색소 레이저의 출력은 총 5 W 였고, 원자 증기 발생량은 시간당 50 g으로 유지되었다. 추출하는 동안에는 레이저의 파장을 Yb의 전이선에 일치시키기 위하여 Wavemeter를 사용하였고, Yb-168의 광 이온화 선택도를 최대로 하고, 계속적인 파장 이동을 감시하기 위하여 TOF 질량 분석기를 사용하였다. 추출하는 동안 TOF 질량 분석기에서의 선택도는 그림 5와 같이 80-92% 사이에서 유지되었다.

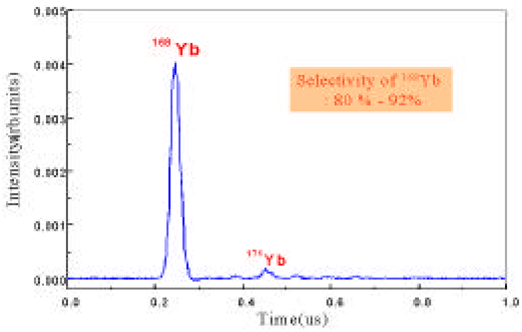

그림 5. 추출실험시 측정한 TOF 질량 스펙트럼.

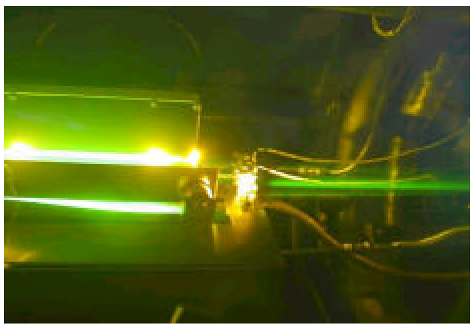

사진 1. 추출 실험시 관측한 레이저 유도 형광 모습.

사진 1은 추출 실험시 챔버내부에서 발생한 형광을 찍은 모습이다. Yb-168 동위원소

추출 실험은 총 10여 차례이상 수행되었고, 각 추출 실험 후 레이저의 출력, 원자 증기량, 이온 수집기의 구조등을 변경하여 Yb-168의 성분비와 추출량을 증가 시키는 연구를 수행하였다. 그림 6은 최종적으로 측정한 광 이온 신호이다. 그림에 보인 평균 광이온 전류는 0.05 mA로서 시간당 추출량은 약 0.3 mg/hr 이다. 평균 추출 시간은 3 us 이내로서 개발된 광 이온 수집기에서 충분히 광 이온을 추출함을 알 수 있다.

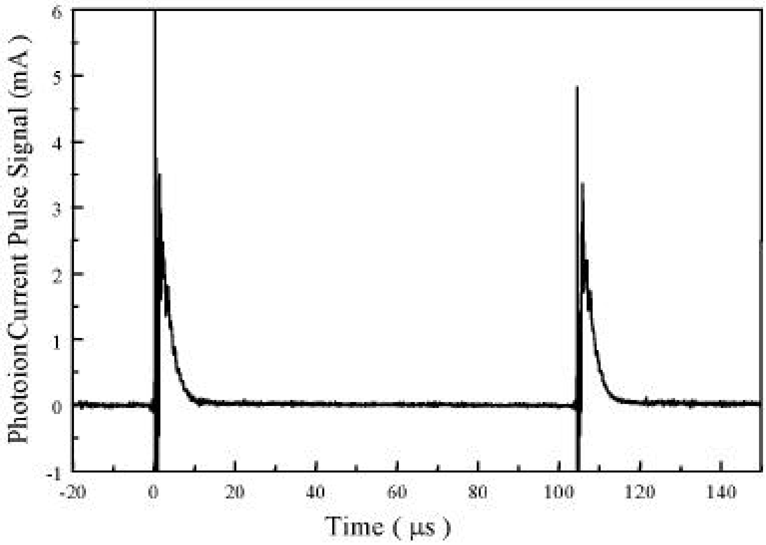

그림 6. Yb-168 동위원소 분리 실험에서 측정한 광이온 신호.

추출 실험 후에 collector에 붙어 있는 Yb 추출물을 10 % 질산에 녹인 후, Yb 각 동위원소의 성분비를 분석하였으며, 분석 결과를 표 2에 나타내었다.

표 2. Yb-168 동위원소 분리 최종 결과.

동위원소	168	170	171	172	173	174	176
성분비(%)	**25.3**	1.9	28.5	11.3	9.7	16.8	6.5

추출된 Yb-168의 성분비가 25.3%로 자연 성분비 0.135%에 비해 약 190 배 증가되었다. 동위원소 분리에서 자주 이용되는 분리 추출 계수(S)를 다음과 같이 정의하면 [7]

$$S \equiv \frac{X_{168}^{f}}{1 - X_{168}^{f}} / \frac{X_{168}^{i}}{1 - X_{168}^{i}}$$

$(X^{f}_{168}$ = 추출 후 성분비, X^{i}_{168} = 자연성분비 : 0.00135)

추출물의 평균 분리추출계수는 260 이 된다. 아울러 이 성분비는 현재 비파괴 선원 원료가 요구하는 15-20%를 초과 달성한 결과이다. 한편 추출한 Yb-168은 화학 처리후 질량을 측정한 결과 20.5 mg 으로 측정되었다. 총 추출 실험 시간이 70 시간이므로, 시간당 평균 추출량은 0.3 mg/h 이다. 이 결과는 이온신호로 예측한 결과와 일치한다. 최종적으로 총 70여 시간 동안의 실험 결과로 20.5 mg의 추출물 (Yb-168 동위원소 성분비 : 25.3 %)을 제조하는데 성공하였으며, 사진 2에 추출물의 사진을 나타내었고, 그림 7에 Yb-168의 추출 전후의 성분비를 도식화하였다.

사진 2. Yb-168 추출 후 회수된 추출물.

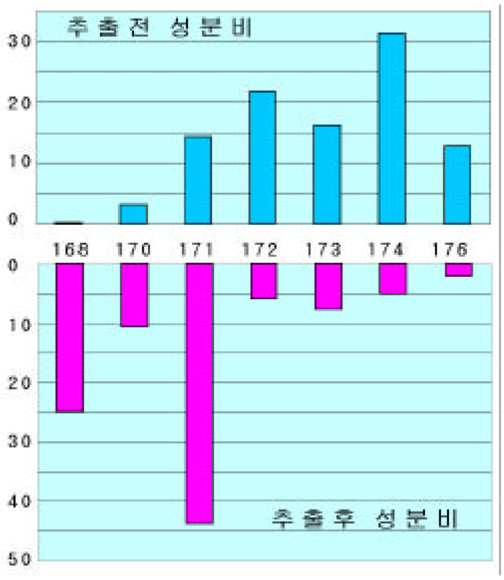

그림 7. Yb-168 추출 실험 전, 후의 성분비 비교.

4. 결 론

본 연구에서는 비파괴 검사 등에서 활용되는 저 에너지 감마선원 제조를 위해, 자연성분비가 0.135%인 Yb-168을 레이저 법을 이용하여 동위원소를 분리하는 연구를 수행하였다. 이를 위해 Yb 추출용으로 선폭이 좁은 색소 레이저 시스템을 개발 하였으며, 저융점 금속을 균일하게 원자화 시킬 수 있는 원자 증기 발생기를 개발하였고, 레이저빔에 의하여 생성된 이온을 최대한 수집하면서도 중성원자 부착은 최소화 할 수 있는 밀폐형 이온 추출기를 개발하였다.

시스템을 구성한 후 동위원소 분리 실험을 수행한 결과 Yb-168의 성분비를 25.3%로 향상 시킬 수 있었으며 이는 자연 성분비 0.135%에 비해 약 190 배 증가된 결과이다. 또

한 평균 광이온 전류를 측정한 결과 0.05 mA로서 시간당 추출량이 약 0.3 mg/hr이었다. 최종적으로 총 70여 시간 동안의 실험 결과 20.5 mg의 질화이터븀(Yb-168 동위원소 성분비 : 25.3 %)을 제조할 수 있었다. 현재 시간당 2mg/h의 추출 효율을 달성하기 위한 연구를 진행하고 있다.

또한 추출된 Yb-168에 중성자를 조사시켜 비파괴 선원인 Yb-169를 제조하는 연구도 계획중에 있다. 현재는 20% 정도로 농축된 Yb-169 가 비파괴 검사용으로 요구되며, 생산비용이 높아서 Ir-192와 같이 넓은 시장을 가지고 있지는 못하지만, 향후 본 Yb-168 동위원소 분리 연구 결과로서 생산 단가가 낮아지는 경우, 작업자 및 주변 환경에 대한 방사선 동위원소의 안전성 향상을 고려할 때, Yb-169의 수요는 증가할 것으로 예측된다. 특히, 방사선안전에 관한 규정이 강화되고 있는 현실을 감안하고 비교적 짧은 반감기를 고려할 때, 저 감마선을 이용하여 피폭위험을 감소시킬 수 있는 Yb-169의 수요가 증가될 것으로 판단된다.

5. 참고문헌

[1] Hisamichi Yamabayashi, Radioisotopes, **43**, 296 (1994)

[2] S.I. Yakovlenko, Lasers and Particle Beams, **16**, 541 (1998)

[3] Hyunmin Park, Jongmin Lee, Jai-hyung Lee, and Joon-sung Chang, Phys. Rev. A 53, 1751 (1996)

[4] M. Gustavsson, H. Lundberg, L. Nilsson, and S. Svanberg, J. Opt. Soc. Am. **69**, 984 (1979).

[5] B. B. Krynetskii, V. A. Mishin, and A. M. Prokhorov, Zh. Prik. Spektro. **54**, 558 (1991). [J. Appl. Spectrosc. **54**, 338 (1991)]

[6] T. W. Haensch, Appl. Opt. **11**, 895 (1972).

[7] V. S. Letokhov, *Laser Photoionization Spectroscopy* (Academic Press, 1987).