

최종연구보고서

원자력연구기반확충사업

다이오드 레이저를 이용한 가돌리늄의
광이온화 경로 연구

Investigation of Photoionization Pathways
of Gadolinium by Diode Lasers

연구기관
영남대학교

과 학 기 술 부

제 출 문

과 학 기 술 부 장 관 귀 하

본 보고서를 “다이오드 레이저를 이용한 가돌리늄의 광이온화 경로 연구” 과제의 최종보고서로 제출합니다.

2003. 6. 12.

연 구 기 관 명 : 영남대학교

연 구 책 임 자 : 이 종 훈

연 구 원 :

요 약 문

I. 제 목

다이오드 레이저를 이용한 가돌리늄의 광이온화 경로 연구

II. 연구개발의 목적 및 필요성

레이저 분광학은 원자력 산업의 여러 분야에서 활용되어왔다. 지금까지는 주로 Nd:YAG 레이저나 구리증기 레이저로 여기되는 색소레이저가 고출력의 특성이 있어서 사용되어져 왔다. 다이오드 레이저는 최근 10여 년 전부터 원자분광연구에 이용되기 시작했으며 원자광학 등의 분야에서 원자의 냉각에 주로 사용하고 있다. 최근에는 다이오드 레이저의 출력이 매우 증가하고 있으며, 수 kW급의 레이저도 시판되고 있다. 분광 연구에 사용이 가능한 선폭이 수 MHz 이하로 매우 좁은 다이오드 레이저는 테이퍼형(tapered) 증폭기를 사용하여도 아직은 출력이 1W 이하로 낮으나, 기술이 발전하면 이렇게 선폭이 매우 좁은 고출력 다이오드 레이저도 수 kW급의 고출력이 가능해 지리라 예측된다. 이 경우, 다광자 이온화나 비선형 분광학 분야에서의 다이오드 레이저 이용은 급격히 증가하고, 원자력 동위원소 생산, 방사성 원소의 검출 및 오염 측정 장치, 각종의 분광 분석 장치 등의 레이저 응용산업에서는 대폭적인 레이저의 세대교체가 일어나리라 생각된다. 이러한 기술의 진화추세를 예측하여 미리 다이오드 레이저를 이용한 분광기술을 개발한다면 미래의 주도 기술을 선점하는데 유리할 것이다. 원자력 산업에서 중요한 희토류나 란타넘계 원소의 경우 스펙트럼이 매우 복잡하고 폭이 넓어서 다이오드 레이저를 적용할 수 있는 전이선이 풍부하다. 따라서 원자력 산업 분야에서 다이오드 레이저를 사용한 분광 연구가 선도적으로 수행되어질 수가 있으며, 이 과정에서 개발된 기술은 타 산업 분야로의 다이오드 레이저를 이용한 분광 응용을 선도하게 될 것이다. 특히 희토류 원소중에서 가돌리늄(Gd)는 핵연소 독극물로 사용되어서 원자력 산업에서의 대규모 수요가 예상되고 있다. 따라서 다이오드 레이저를 이용하여 가돌리늄(Gd)의 동위원소를 광이온화 시킬 수 있는 여기 경로를 찾고 실험으로 검증함으로써 미래의 원자력 산업의 경쟁력을 갖추는 신기술을 개발하는 것이 목표이다.

III. 연구개발의 내용 및 범위

본 연구에서는 자외선 영역의 파장을 발생하는 다이오드 레이저를 개발하고 개발된 레이

저를 이용하여 가돌리늄 동위원소의 선택적 여기를 실증하는 것을 목표로 다음의 연구를 수행하였다.

1. 파장과 출력이 안정된 다이오드 레이저 장치 개발

가돌리늄의 동위원소를 선택적으로 여기시키는데 필요한 다이오드 레이저를 자체 기술로 개발한다. 다이오드 레이저를 구성하는 마운트를 비롯한 기계적 장치와 광학적 장치를 설계 제작하며 이 레이저를 구동하는 전원 장치 및 온도제어 장치를 개발하고 제작된 레이저가 단일모드로 안정되게 발진하도록 한다. 동위원소의 선택적 여기에 필요한 자외선 영역의 레이저는 발진 파장대가 400 nm 근처이며 선폭은 10 MHz 이하, 출력은 5 mW 이상, 수 GHz의 파장 영역을 미세하게 제어하는 것을 목표로 한다. 상위 준위로 여기하는데 사용하는 파장 800 nm 근처의 적외선 레이저도 개발한다.

2. 다이오드 레이저를 이용한 가돌리늄 동위원소의 선택적 여기 연구

가돌리늄의 일차 여기 전이 파장 중에서 자외선 영역 (370-450 nm)에서의 전이 파장을 조사하고 특히, 자외선 영역의 전이선 중에서 동위원소가 크거나, 각운동량이 $J=2$ 인 기저준위 (0 cm^{-1})와 $J=3$ 인 기저준위 (215 cm^{-1})에서 동시에 여기가 가능한 준위, $J=2-2-1-0$ 의 각운동량 변화를 이용한 홀수 동위원소의 100% 이온화가 가능한 경로 등을 중점적으로 발굴한다. 가돌리늄의 원자화 장치를 개발하고 이를 이용하여 다이오드 레이저의 파장 변화에 따라서 가돌리늄의 동위원소가 선택적으로 여기되는 것을 실증한다.

IV. 연구개발결과

본 연구에서 개발한 다이오드 레이저는 Littrow형 회절격자를 사용하며, 공진기 길이가 짧고 손실이 작아서 단일모드로 안정되게 작동하였다. 회절격자에 PZT를 부착하여 미세한 파장 변환도 가능하게 하였다. 이 레이저의 제작에 관련된 광학 설계도, 기계적 장치의 장치도 및 조립도면, 전자 제어 장치도 자체 개발하였다. 동위원소를 선택 여기하는 일차여기 과정에 사용할 파장이 400 nm대인 자외선 레이저를 개발하기 위하여 발진 파장이 800 nm 근처인 적외선 레이저의 2차고조파 변조 시키는 방법과 자외선 발진용 다이오드를 사용하는 두 가지 방법을 동시에 개발하였다. 제2고조파 변환 방법은 적외선 다이오드 레이저의 출력이 낮고 불안정하여서 실험에 필요한 5 mW의 안정된 출력은 자외선 다이오드 레이저를 사용하여 얻었다. 개발된 레이저는 선폭이 8 MHz로 파장 요동이 작은 매우 안정된 출력을 보여주고 있고 6 GHz 이상 주파수 주사가 가능하여 상용화 가능성이 높다.

개발된 레이저를 이용하여 가돌리늄의 동위원소를 선택적으로 여기하였다. 가돌리늄의 자

외선 영역의 전이 파장 중에서 파장이 400 nm 근처이며, 기저준위와 낮은 준안정준위에서 여기가 시작되는 전이선을 중점적으로 조사하여서 이중 약 22개의 전이선이 선택적 여기에 사용할 수 있음을 보였다. 이중에서 기저준위와 준안정 준위에서 출발하는 전이선을 골라서 선택 여기를 실증하였다. 가돌리늄의 원자를 만드는 방법은 공음극(hollow cathode) 램프와 진공 용기 내에서의 저항 가열 방식의 두 가지를 개발하였다. 저항 가열 방식은 고진공의 진공용기를 제작하고 이 속에 두고 설치된 탄소튜브와 탄탈륨 튜브에 고전류를 흘리며, 이온을 편향시키는 장치, 이온 증폭 검출장치도 제작하였다. 공음극 램프 방식에서는 기체 방전을 이용하므로 고진공 장치가 필요 없어서 매우 간편하여서 이를 이용하여 선택 여기를 실증하였다. 다이오드 파장을 변화시키면서 파장에 따라서 동위원소가 선택적으로 여기됨을 관측하였으며, 선택 여기된 원자는 다른 원자 및 전자와의 충돌로 이온화되었다. 본 연구에서 측정된 준위의 동위원소 이동으로 인한 스펙트럼은 최초로 측정된 것으로 학술적 의미가 크며, 측정 결과 이 값이 매우 커서 다이오드 레이저를 사용하여 홀수 동위원소만 분리하는 것이 공학적으로도 가능함을 보일 수 있었다.

V. 연구개발결과의 활용계획

다이오드 레이저는 소형이면서 경량, 저소비전력 등의 다양한 장점을 갖고 있다. 이 레이저를 과거의 대형 레이저를 사용하던 분야(가령, 극미량 분석, 흡광 분광기를 비롯한 각종 분석기기의 광원, 레이저의 파종 증폭기, 동위원소 생산 등)에 활용하면 장비의 소형화, 고효율에 의한 생산성 향상 등의 효과가 기대된다. 개발된 자외선 다이오드 레이저는 완전 국산기술로 이루어졌으므로 지금까지 수입만 하던 이 레이저 장치의 개발 결과를 활용하면 레이저의 국산화 및 수입 대체가 기대된다.

가돌리늄은 핵연료 독극물로 사용된다. 이 원소에 함유된 홀수 동위원소를 분리하여 독극물로 활용하면 핵연료의 사용시간 증가를 통한 경제성 향상 및 연료봉의 안정성 개선이 예측된다. 다이오드 레이저를 이용하여 가돌리늄의 특정 동위원소를 선택적으로 여기 가능함을 보인 본 연구에서의 결과는 동위원소의 대규모 양산에 이 레이저를 활용할 가능성이 충분함을 보여준다. 지금까지 다이오드 레이저는 파장이 특정 범위 이내로 한정되고, 출력이 낮아서 이러한 응용에 적합하지 않을 것이라는 예상이 지배적이었으나 최근 다이오드 레이저의 기술 발달로 자외선 파장이 발전되고, 수 kW에 이르는 고출력이 가능하게 되었기에 각종 분광연구 분야에서 기존의 레이저를 대신하는 신기술이 사용되게 될 것이 예상된다.

S U M M A R Y

I. Project Title

Study on the photoionization of Gadolinium by diode laser

II. Objective and Importance of the Project

Laser spectroscopy has been used in nuclear industry in various fields. Still, dye laser or Nd:YAG laser has been used due to their high power. The use of the laser in spectroscopy has been tried for last 10 years. This laser has been used for atomic cooling application where low power can meet the requirement. Recently, the power of the diode laser increase remarkably. Diode laser with several kW power was developed. Unfortunately, diode laser with narrow linewidth has relatively low power, less than 1 W. Judging from the advance of the related technology, this laser shall have power beyond several hundreds W in near future. Therefore development of spectroscopic technology using high power laser system is very important to meet the compatibility in future. Lanthanide elements has wide application in nuclear industry. The elements have many transition lines in the spectral range diode laser can cover. Therefore diode laser can be used to test the applicability of the method for nuclear industry and the result shall have impact on the other industry. Especially gadolinium (Gd) is currently used for burnable poison in nuclear power plant. Enriched gadolinium should enhance stability of the fuel cell and lower operation cost of the power plant. This study was carried out with the objective of examining the possibility of using diode lasers for isotope production.

III. Scope and Contents of Project

In his study the following research has been carried out to prove the selective excitation of gadolinium isotopes by using home made diode lasers, which can generate ultraviolet

wavelength.

1. Development of frequency and power stabilized diode laser system

Most of the key mechanical part as well as electronic part were designed and machined to acquire diode laser manufacturing technology. The laser was proved to operate in single longitudinal mode. The stability of the laser was improved by using well controlled TE cooler and current supply. The wavelengths around 400 nm, power more than 5 mW, and scan range larger than several GHz was final goals needed for the selective excitation. Lasers with lasing wavelength of near infrared range is also developed.

2. Selective excitation of gadolinium isotopes

The transition lines located in ultraviolet wavelength range (370–450 nm) were investigated. Especially the transition lines starting from the ground state (0 cm^{-1}) or low metastable state (215 cm^{-1}) and large isotope shifts are interested. Also excitation paths following $J=2-2-1-0$ sequences are investigated because it can be used for selective ionization of odd isotopes regardless of the isotope shift. Atomizer of gadolinium is developed and selective excitation of isotopes are demonstrated experimentally.

IV. Result of Project

The diode laser developed in this study use Littrow mounted diffractin grating and its short cavity length and low loss help single mode lasing. A PZT attached at the end of the grating mount enables precise tuning of the wavelength. All drawings, optical layout design and electronics are developed. Two methods are developed to generate UV wavelength near 400 nm. At first, frequency doubling of infrared laser was tried. This method was proved inefficient and power was quite sensitive to perturbation. Next method employs UV emitting diode laser. The UV diode provides stable output of 5 mW around 400 nm. The laser has very narrow bandwidth of 8 MHz and single mode frequency sweep range of 8 GHz, which allows commercial model.

The developed laser was used for the selective excitation experiment. About 22 lines were found to satisfy the requirement. Among these lines two lines starting from ground state and lowest metastable state were tested for the selective excitation. Atomic vapor of the gadolinium was generated by using two methods. The first use discharge in a Gd hollow cathode lamp and

the second method employs resistive heating of carbon tube. For the second one, high vacuum vessel was manufactured. By recording the current of the ions generated by ionization of the excited atoms by collision, while scanning the wavelength, we could observe the spectrum showing selective excitation of each isotopes clearly. The measured spectra of the investigated lines showing isotope shift of each isotopes are reported for the first time according to our knowledge. Large isotope shift of the line guarantees successful separation of odd isotopes.

V. Proposal for Application

Diode laser has many good points in high energy conversion efficiency and small volume. The use of this laser in conventional laser application area provides small size, highly efficient spectroscopic analysis equipment. The developed laser was purely home made and it will help to reduce trade deficit in laser industry. Odd isotopes of gadolinium is used for the burnable poison and it reduces operation cost of nuclear power plant and enhances stability of the fuel rod. From the result of this study, it is proved that the diode laser can be used for the mass production of odd isotopes. Unlike the usual expectation, diode laser shall take main position in many industrial areas of spectroscopy application.

CONTENTS

Chapter 1. Scope of the project -----	9
Chapter 2. Current status of the technology -----	12
Chapter 3. Contents and results of the research -----	13
3.1 Development of diode laser system -----	13
3.2 Generation of UV diode laser beam -----	24
3.3 Study of transition lines of gadolinium for diode laser spectroscopy -----	38
3.4 Development of spectroscopic device for gadolinium study -----	42
3.5 Selective ionization experiment of gadolinium -----	46
Chapter 4. Achievement of the project and contribution of the result in related fields --	54
Chapter 5. Proposal for application -----	56
Chapter 6. References -----	57

목 차

제 1 장	연구개발과제의 개요	9
제 2 장	국내·외 기술개발 현황	12
제 3 장	연구개발 수행 내용 및 결과	13
제 1 절	질 다이오드 레이저 장치 개발	13
제 2 절	질 자외선 다이오드 레이저빔 발생	24
제 3 절	질 다이오드 레이저로 광이온화 가능한 가돌리늄의 전이선 연구	38
제 4 절	질 가돌리늄의 분광 장치개발	42
제 5 절	질 가돌리늄의 동위원소 선택 여기 실험	46
제 4 장	연구개발 목표 달성도 및 관련 분야에의 기여도	54
제 5 장	연구개발결과의 활용계획	56
제 6 장	참고문헌	57

제 1 장 연구개발과제의 개요

다이오드 레이저는 1960년대 초에 개발된 이래 주로 광통신 소자, 광정보 저장 장치에 주로 이용되어 왔다. 최근에는 고체레이저를 여기하는 데에도 사용되고 있다. 한편 다이오드 레이저를 분광학에 이용하려는 움직임도 10여년부터 활발히 진행되어 왔다. 이 분야에서는 원자 광학 등의 연구에서 단일모드로 발전하는 다이오드 레이저를 이용하여 원자의 냉각에 사용하는 용도가 가장 활발하다. 그러나 다이오드 레이저는 출력이 작아서 광이온화 분광학이나 비선형 분광학과 같은 분야에서는 이용되고 있지 않았다. 그러나 최근에는 다이오드 레이저의 출력이 매우 증가하고 있으며, 비록 선폭이 2-3 nm로 넓지만 수 kW급의 레이저도 시판되고 있다. 선폭이 수 MHz 이하로 매우 좁은 레이저는 tapered 증폭기와 같은 출력 증폭 장치로 증폭하고 있으며 지금은 출력이 1W 정도로 낮으나, 기술이 발전하면 이렇게 선폭이 매우 좁은 고출력 다이오드 레이저도 수 kW급의 고출력이 가능해 지리라 예측된다. 이럴 경우, 다광자 이온화나 비선형 분광학 분야에서의 다이오드 레이저 이용은 급격히 증가하고, 이러한 분광학을 이용하는 원자력 신소재 제조 산업, LIDAR를 위시한 환경오염 측정 장치, 각종의 분광 분석 장치 등의 레이저 응용산업에서는 대폭적인 레이저의 세대교체가 일어나리라 생각된다. 이러한 기술의 진화추세를 예측하여 미리 다이오드 레이저를 이용한 분광기술을 개발한다면 미래의 주도 기술을 선점하는데 유리하게 될 것이다.

그러나 다이오드 레이저로 고출력이 가능한 파장 영역이 아직은 일부 구간에만 한정되어 있어서 다양한 원소에의 응용이 불가능하다. 다행히 원자력 산업에서 빈번히 사용되는 희토류나 란타계 원소의 경우 스펙트럼이 매우 복잡하고 폭이 넓어서 다이오드 출력이 큰 근적외선 영역에서의 전이선이 풍부하다. 원자력에서 사용되는 희토류 원소의 응용 예는 다양하다. 가령 원자력 산업에서 가돌리늄은 원자로에 들어가는 핵연료의 가연성 독극물로 사용되어진다.[1] 즉, 핵연료에 가돌리늄을 함유시키면 가돌리늄의 일부 동위원소 (^{155}Gd , ^{157}Gd)의 열중성자 흡수 단면적이 매우 크기 때문에 열중성자를 흡수하게 된다. 따라서 핵연료를 연소시키는 초기단계에서 과도한 연소를 억제하게 된다. 핵연료의 연소가 진행되면서 열중성자가 흡수된 가돌리늄의 양도 증가하여 열중성자를 흡수하는 정도가 감소한다. 이에 따라서 핵연료의 연소도가 증대한다. 그러나 핵연료는 이미 상당히 연소가 진행된 상태이므로 초기처럼 과도한 연소가 이루어지지 못한다. 이러한 과정을 이용하면 초기에 핵연료의 우라늄 농축도를 올리는 것이 가능해져서 핵연료의 연소 시간을 증가시킬 수가 있다. 핵연료의 교체에 상당한 비용이 소요되므로 연

소 시간을 증가시킨다면 발전 단가를 낮출 수가 있는 것이다. 그런데, 자연 상태의 가돌리늄에는 열중성자 단면적이 큰 홀수 동위원소는 약 30%정도를 차지하고 있으며 나머지는 짝수 동위원소로써 별 다른 작용을 하지 못하고 있다. 따라서 홀수 동위원소의 구성비를 증가시킨다면 핵연료에 첨가하는 가돌리늄의 양을 줄일 수가 있고 그 결과 더 많은 양의 우라늄 핵연료를 사용할 수가 있는 것이다. 또한, 가돌리늄의 양이 줄어들면 핵연료가 역학적으로 더 안정되어 저 연소도중에 연료가 깨어지는 사고를 방지할 수가 있다.[2]

홀수 동위원소만 걸러내는 방법으로 레이저 이온화법이 있다. 즉, 가돌리늄을 가열하여 원자 증기로 만들고 이를 이온화시켜서 홀수 동위원소만 전자기장으로 걸러내는 것이다. 이러한 이온화를 달성하려면 고출력 레이저가 필요하다. 현재는 다이오드 레이저의 출력이 낮지만, 장래에는 고출력이 가능해질 것이므로 미리 다이오드 레이저를 이용한 광이온화법을 연구해둘 필요가 있는 것이다. 가돌리늄은 핵의학 분야에서도 사용된다. 암진단 등에 사용하는 핵자기 공명장치의 영상촬영 해상도를 증가시키기 위하여 Gd-DTPA를 사용하며, 이 방법을 적절히 사용하기 위해서는 인체에 흡수되는 Gd의 양을 계측할 필요가 있는 것이다. 측정 감도가 가장 우수한 방법을 레이저 이온화를 이용한 검출법이다. 이 방법을 적용하려면 Gd의 이온화 경로를 밝혀야 한다. 특히 저가의 다이오드 레이저를 사용하여 이온화를 이룬다면 이 방법을 적용하는 검출장치의 보급을 넓힐 수가 있다. 이렇듯 Gd의 레이저 이온화는 원자력 산업의 각 분야에서 요긴하게 사용된다. 사마리움(Sm)이나 이테르븀(Yb), 유로피움(Eu) 등 다른 희토류 원소들 또한 원자력 산업에서 다양하게 활용된다. 이러한 원소들을 다이오드 레이저로 이온화시키는 기술을 개발하는 과정에서 개발된 분광 기술과 레이저 기술은 타 산업 분야로의 다이오드 레이저를 이용한 분광 응용도 선도하게 될 것이다.

본 연구에서는 원자력 산업에서의 레이저 이용을 위하여 자외선 영역의 파장을 발생하는 다이오드 레이저를 개발하고 개발된 레이저를 이용하여 가돌리늄 동위원소의 선택적 여기를 실증하는 것을 목표로 한다. 이를 위하여 파장과 출력이 안정된 다이오드 레이저 장치를 자체 기술로 개발한다. 또한, 다이오드 레이저를 구성하는 마운트를 비롯한 기계적 장치와 광학적 장치를 설계 제작하며 이 레이저를 구동하는 전원 장치 및 온도제어 장치를 개발하고 제작된 레이저가 단일모드로 안정되게 발진하도록 한다. 개발된 레이저를 이용하여 가돌리늄의 일차 여기 전이 파장 중에서 자외선 영역 (370-450 nm)에서의 전이 파장을 조사하고 특히, 자외선 영역의 전이선 중에서 동위원소가 크거나, 각운동량이 J=2인 기저준위 (0 cm^{-1})와 J=3인 기저준위 (215 cm^{-1})에서 동시에 여기가 가능한 준위, J=2-2-1-0의 각운동량 변화를 이용한 홀수 동위원소의 100% 이온화가 가능한 경로 등을 중점적으로 발굴할 것이다. 또한 가돌리늄의 원

자화 장치를 개발하고 이를 이용하여 다이오드 레이저의 파장 변화에 따라서 가돌리늄의 동위원소가 선택적으로 여기되는 것을 실증함으로써 다이오드 레이저가 가돌리늄의 동위원소 분리에 사용가능함을 실증한다.

제 2 장 국내·외 기술개발 현황

국내에서의 공명이온화 분광학 연구는 한국원자력연구소의 양자광학팀이 유일하게 독자적으로 개발하여 왔다. 이 그룹에서는 10년 동안 관련 기술을 개발하여 란탄계 원소의 광이온화 기술을 축적하였으며, 현재 상당한 수준에 도달한 상태이다. 그러나 지금까지의 공명이온화 연구에서는 색소 레이저만 주로 사용하였다. 레이저에 따라서 효율이 좋은 파장 영역이 다르므로 새로운 레이저를 사용하면 새로운 분광 연구가 필요하다. 다이오드 레이저는 흡수 분광법을 이용한 원자 밀도의 측정, 초미세구조 측정 등 저출력 레이저로도 활용이 가능한 분야에서만 이용되어 왔다. 아직까지는 여기뿐만 아니라 이온화까지의 전 단계에서 다이오드 레이저를 사용하고자하는 연구는 다이오드 레이저의 출력이 현재의 기술 수준으로는 너무 작아서 실현성이 없으므로 관련 연구도 없었다. 이러한 기술은 현재까지는 기술적으로 실현성이 작으므로 연구소에서 수행하기는 부적합하고 학계에서 미리 인력 양성 측면에서 사전 연구를 수행하고 개발하는 전략이 국가적으로 필요하다고 생각된다.

여기에서 이온화까지 모든 단계를 다이오드 레이저를 사용하는 연구를 수행하는 그룹은 독일의 Mainz 대학의 K. Wendt 그룹이 대표적이다. 미국의 Pacific Northwest National Lab. 의 Bushaw 그룹도 이들과 공동으로 연구를 수행하고 있다. 현재 이 두 그룹에서는 3대의 다이오드 레이저를 사용하여 칼슘과 가돌리늄의 미량 성분을 분석하는 연구를 맹렬히 수행하고 있다. 희토류 원소들의 복잡한 에너지 준위 구조를 감안할 때, 이들의 연구는 아직도 초기 단계라 판단되며, 최적의 전이선을 찾는 연구는 상당기간 계속되리라 본다. 이들은 방사성 핵종인 스트론튬도 다이오드 레이저만을 사용하여 이온화시키는 연구를 수행하였다.^[3] 그러나 스트론튬은 적외선 다이오드 레이저를 사용함에 비해 가돌리늄은 자외선이 필요한 점에 어려움이 있다.

제 3 장 연구개발 수행내용 및 결과

제 1 절 다이오드 레이저 장치 개발

다이오드 레이저는 1960년대 초에 개발되었으며, 효율이 매우 우수하고 규모가 아주 작으며, 저가이고, 파장을 가변할 수 있어서 이를 분광학 연구에 이용하고자 하는 시도가 1980년대 초 이래 꾸준히 지속되어 왔다. 특히 원자광학에 대한 연구가 활발해지면서 이를 사용한 분광 연구가 지난 10년간 매우 많이 이루어 졌다. 다이오드 레이저는 GaAs계, AlGaAs계, InP계, GaSb계 및 InAs계 등의 III-V족의 화합물 반도체 재료에 따라서 0.8 μm 부터 $\sim 20 \mu\text{m}$ 까지 발진 파장영역을 가지고 있다. 근 적외선 영역에 집중되어 있으므로 이 파장대의 전이선을 가진 세슘(Cs) 등의 원소들에 대하여 주로 연구가 이루어져 왔다. 원자력 산업에 사용되는 원소의 경우 우라늄이 근적외선 영역 전이선이 많아서 이에 대한 연구가 가장 많았다. 그러나 대부분의 희토류 원소의 경우, 적외선 파장은 상위준위 사이에서 일어나는 전이에 해당되어 기저 준위의 여기에 사용할 수가 없다. 기저준위에서 상위 여기준위로 올리기 위해서는 가시광 혹은 자외선 영역의 파장을 가진 레이저를 사용하여야 한다.

본 연구에서는 가돌리늄을 공명 여기 및 이온화시킬 수 있는 자외선 레이저 장치를 개발하였다. 특히, 저가로 레이저를 제작하고 제작 기술을 독자적으로 개발하기 위하여 전원 장치부터 레이저 본체까지 기계적인 모든 것을 제작하였다. 설계에 앞서서 단일모드 레이저에 대한 제작 경험이 풍부하고 상용 제품도 구비되어 있는 표준연구원과 원자력연구소 등을 방문하여 유사한 기능의 레이저를 참조하여 설계하고 국내 업체에 의뢰하여 가공하였다. 다이오드 레이저를 구동하는 장치와 TE 냉각기 전원 장치도 핵심 부품은 수입하고 나머지는 직접 조립 제작하였다. 다음의 그림은 제작된 전원 장치를 나타낸다. 전원 장치는 하나의 상자에 같이 장착시켰다. 이 장치를 사용한 결과 다이오드 레이저의 전류를 0.02% 내로 안정화시켰으며, 레이저 기관의 온도를 0.005 $^{\circ}\text{C}$ 내로 안정화시킬 수 있었다. 아래의 그림은 제작된 장치의 사진을 보여준다.

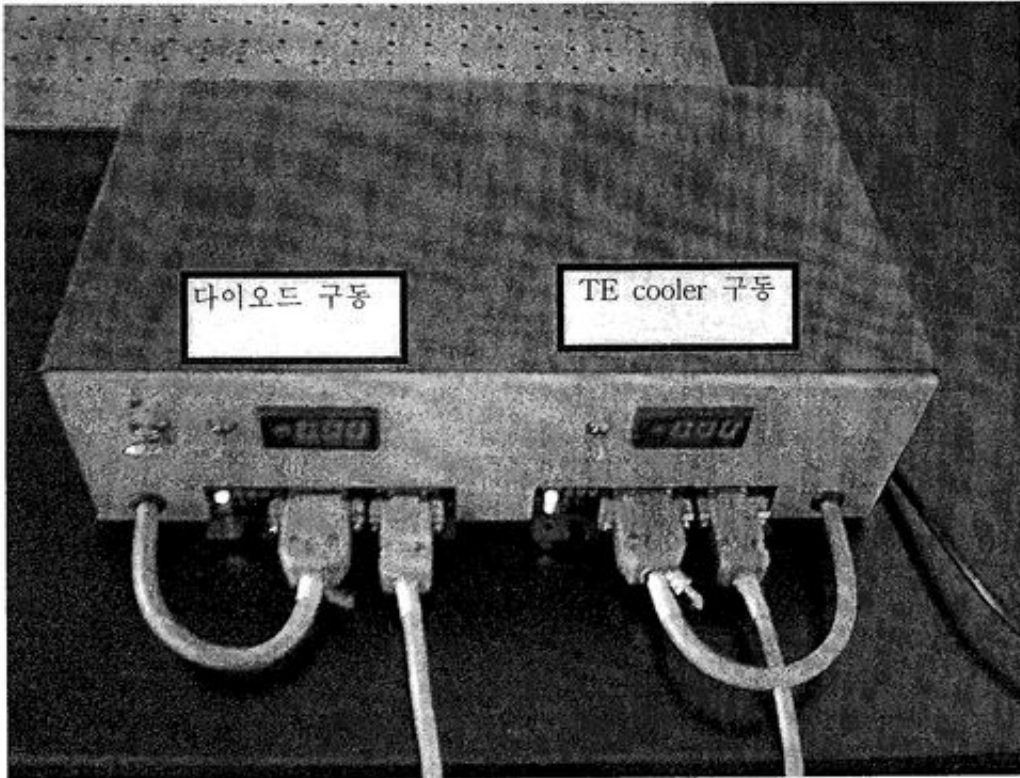
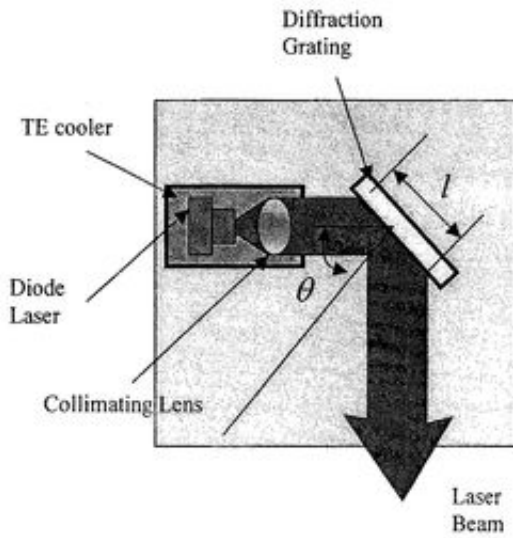


그림 1 전원 장치의 사진

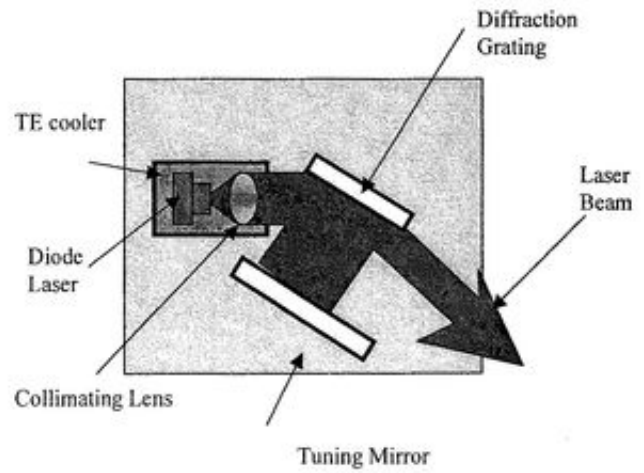
다이오드 레이저의 공진기 유형은 크게 Littrow 형과 grazing incidence (GI)형이 있다. Littrow 형은 아래의 그림과 같이 회절격자에서 바로 회절된 빛을 다이오드 레이저로 바로 되돌리는 구조이다. 반면에 GI 형은 1차 회절된 빛을 다시 회절격자로 되돌려 회절이 2번 일어나게 하는 구조이다. Littrow 형은 구조가 간단하여 제작이 쉽고 회절 효율이 우수하고, 공진기 길이가 짧아서 공진기의 모드 간격이 넓은 장점이 있다. Littrow 형 레이저의 파장 선택 대역 폭은 다음과 같다.^[4]

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \frac{\lambda}{\pi l \sin\theta} \quad (1)$$

이 식에서 아래 그림에서 보듯 l 은 회절격자 표면에 레이저가 조사된 길이이며, λ 는 레이저 파장, θ 는 레이저빔의 회절격자 표면에서의 입사각이다.



(a) Littrow type



(b) Grazing incidence type

그림 2 다이오드 레이저의 대표적 유형.

반면 GI형은 별도의 거울을 사용하여 회절된 빔을 회절격자로 되돌림으로써 회절이 2번에 걸쳐 생기게 한다. 따라서 파장 선택 대역폭은 아래식과 같이 되어서 Littrow형 보다 더 좁아진다.

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \frac{\lambda\sqrt{2}}{\pi l (\sin\theta + \sin\phi)} \quad (2)$$

또한 회전축을 적절히 조절하면 모드튕(mode hopping)이 없이 단일모드를 유지한 채 장파장을 이동할 수 있다. 거울이 회전하더라도 빔의 진행방향은 변화가 없다는 것도 장점이다. 단점으로는 회절 효율이 낮아서 동일한 다이오드를 사용하더라도 Littrow 형에 비하여 발진 가능한 파장의 폭이 좁고 발진 효율이 낮아지는 점 등이 있다. 현재 상용 모델로는 2가지가 모두 개발되어 있으며, 다음 그림에 공진기 구조에 따른 장점과 단점을 요약하였다.

Grazing incidence type

- ♣ Advantages
- Fixed laser beam direction
- High dispersion
- Wide single mode tuning range

- ♣ Disadvantages
- More complicated
- Difficult to align
- Low efficiency

Littrow type

- ♣ Advantages
- Simple and cheap design
- High efficiency
- Wide mode spacing

- ♣ Disadvantages
- Beam position change

그림 3 다이오드 레이저 공진기 유형에 따른 장점과 단점

우리는 이상의 장점과 단점을 비교한 다음에 본연구의 사용 목적에 더 부합하는 것은 Littrow 형이라는 결론을 내리고 이 레이저를 개발하였다. 그 이유는 간편하게 제작이 가능하며 조절이 쉽고, 파장 변환 영역이 넓기 때문이다. 이러한 레이저를 시험 제작해보고 발진을 시험하기 위하여 범용 마운트를 사용하여 제작한 레이저의 사진이 아래에 나와 있다. 사용한 다이오드는 Sharp 사의 LT024MD 이다. 이 레이저는 780 nm의 중심 파장을 갖고 있으며, 최대 출력이 30 mW이다. 1800 line/mm 회절격자를 사용하면 입사각 44.6도에서 1차 회절광이 다이오드로 되먹임 된다. Littrow 방식으로 설치하여 특정 파장을 가진 빛만 다이오드 레이저로 되돌림으로써 단일모드발진을 시켰다.

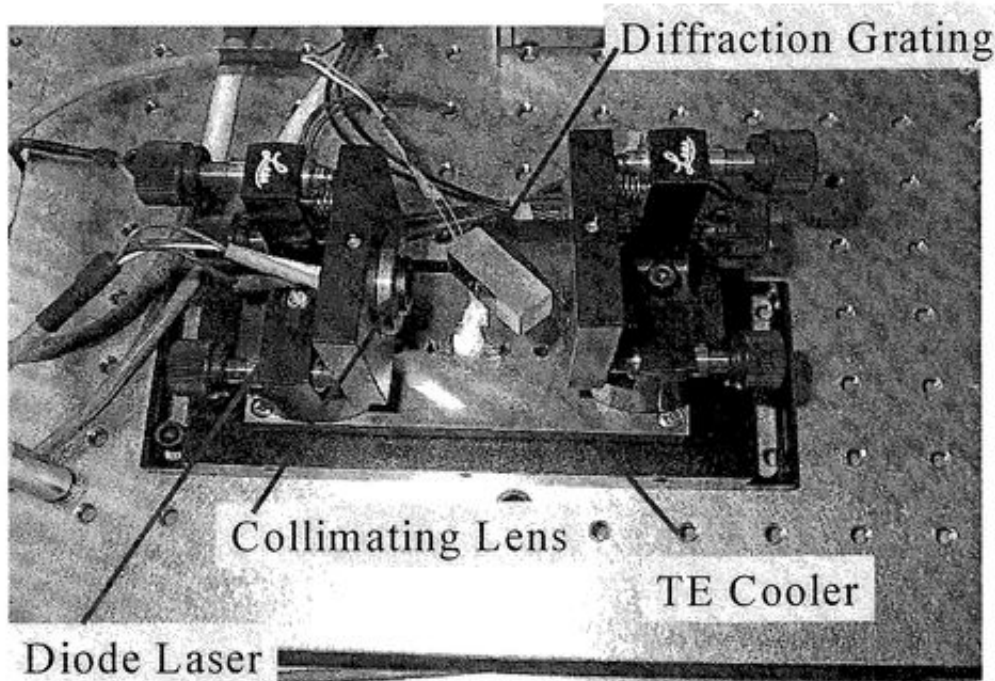


그림 4 범용 마운트를 사용하여 제작한 다이오드 레이저의 사진

이 레이저를 동작시키는 전자장치도 제작하여 케이스에 담기 전에 시험해 보았다. 장치의 사진은 아래에 나와 있다.

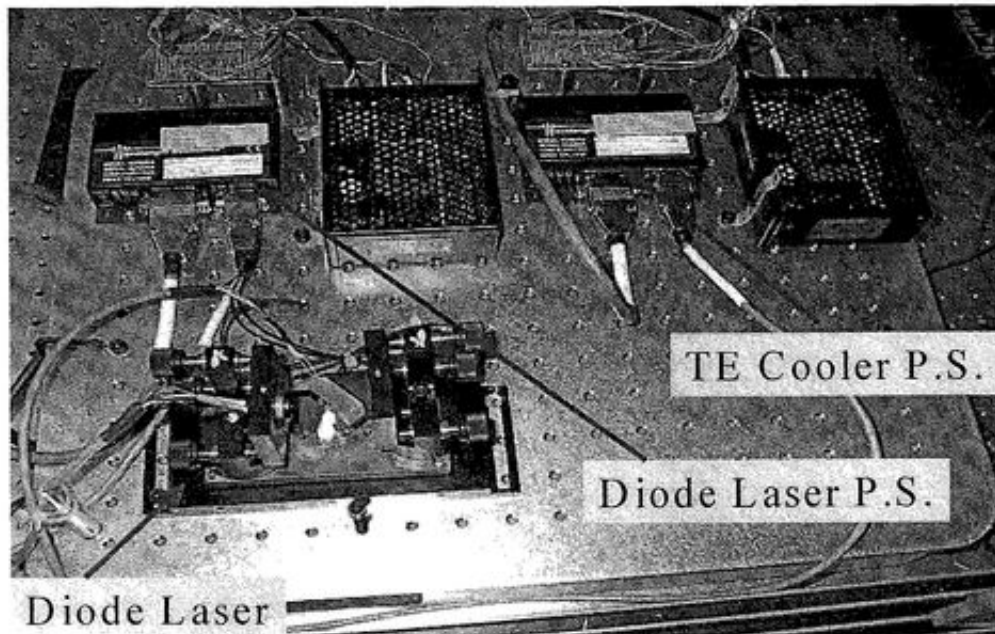


그림 5 다이오드 레이저 실험 장치

다이오드의 특성을 보기 위하여 회절격자에 의한 되먹임 없이 이 레이저에 전류를 흘리면 서 발전되는 레이저의 파장을 다채널분광기(Oriel, MS-257)에 보내서 분석하였다. 측정 결과는 아래 그림에 나와 있다.

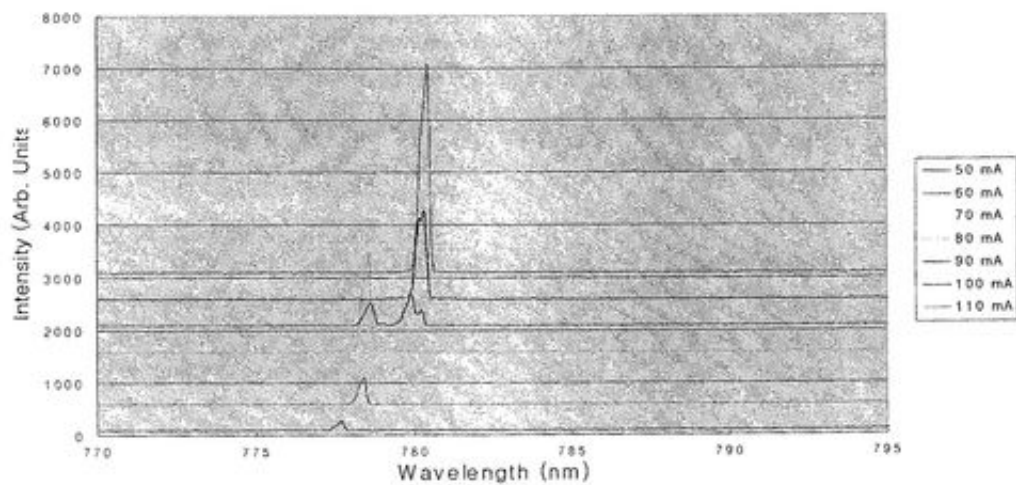


그림 6 구동전류에 따른 다이오드 레이저의 발전 파장

그림을 보면 전류가 증가함에 따라서 출력도 증가하지만 동시에 파장도 이동하는 것을 볼 수가 있다. 그러나 파장은 서서히 연속적으로 이동하는 것이 아니라, 하나의 모드에서 2개의 모드로 발전하다가 갑자기 다음 모드로 건너뛴을 보여준다. 이 것은 다이오드 칩에서의 크기로 결정되는 모드이어서 자유대역폭 (free spectral range)가 2 nm으로 매우 넓다. 아래 그림은 전류에 따른 다이오드의 출력을 나타낸다.

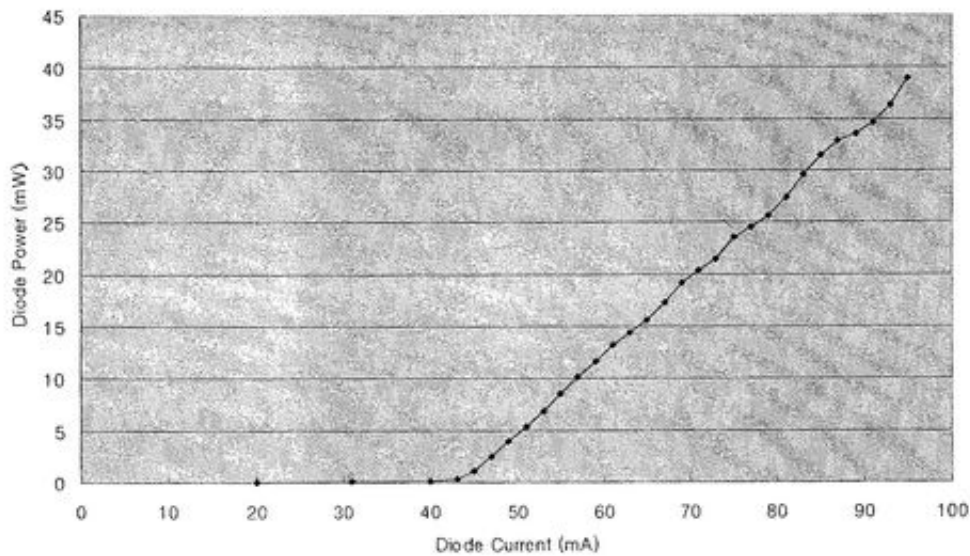
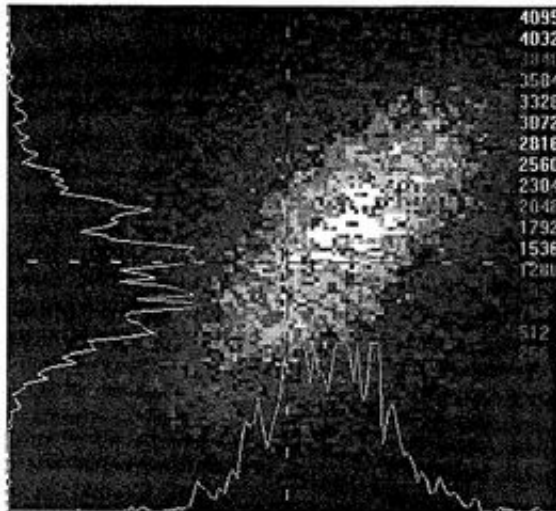


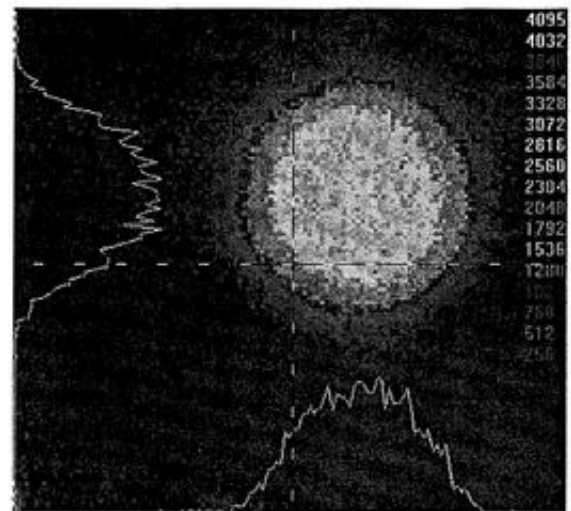
그림 7 전류에 따른 자유 발진 다이오드 레이저의 출력 특성

다이오드 레이저의 공간분포는 아래의 그림에서 보듯 타원형이다. 다이오드 발광면의 모양이 직사각형이므로 수평방향으로는 10도 수직 방향으로는 30도의 발산각을 가져서 서로 다르기 때문에 생긴 결과이다. 이러한 분포를 원형으로 바꾸어주기 위해서는 발산이 빠른 축에 대하여 광속확대기를 사용하여 주어야 한다. 배율이 3~6배인 프리즘 광속확대기는 한 방향으로만 확대시키므로 이런 목적에 매우 적합하다. 또 다른 방법으로는 레이저가 광섬유를 통과하게 하여 원형의 분포를 갖게 하는 것이다. 아래의 그림은 이 같은 방법을 사용하여 얻은 분포이다. 분포가 매우 우수함을 알 수 있다. 프리즘을 이용하면 이 같은 정도의 우수한 분포를 얻기는 힘들다, 프리즘 투과 효율이 95% 이상으로 광섬유를 사용하는 경우의 20~50%에 비하여 매우 높고, 광섬유를 사용하면 레이저 편광이 변함에 비하여 프리즘의 경우는 변함이 없다는 장점이 있다. 한편 프리즘을 사용하면 레이저 빔이 나오는 위치가 이동하나 광섬유를 이용하면

레이저의 이동에도 출력 방향은 변함이 없다는 장점이 있다. 이상의 장단점을 비교해보면 파종 증폭형 Ti:Sapphire 레이저 공진기와 같이 정열에 민감하고 약간의 레이저 출력만 필요한 경우는 광섬유를 사용하는 것이 유리하고, 본 연구와 같이 다이오드 레이저의 제2고조파변환을 하는 경우는 가능한 큰 출력이 필요하므로 손실이 없는 프리즘을 사용하는 것이 유리하다고 판단된다.



(a) Beam profile near diode laser



(b) Beam profile after optical fiber

그림 8 (a) 다이오드 레이저 출구 근처에서 측정된 출력의 공간분포와

(b) 광섬유를 통과한 다음의 출력의 공간분포

다이오드 출력을 회절격자를 이용하여 되먹인 다음에 나오는 레이저의 출력을 측정한 결과는 다음 그림에 나와 있다. 앞에서의 자유 발진하는 다이오드 레이저의 측정 결과와 비교하면 동일한 전류에서 약 50%의 출력이 나온다. 이는 일차회절 효율이 높기 때문이며, 이 효율을 높이면 출력은 안정되나 효율은 감소하고 이것을 낮추면 출력 안정도는 감소하나 효율은 증가하는 경향이 있다.

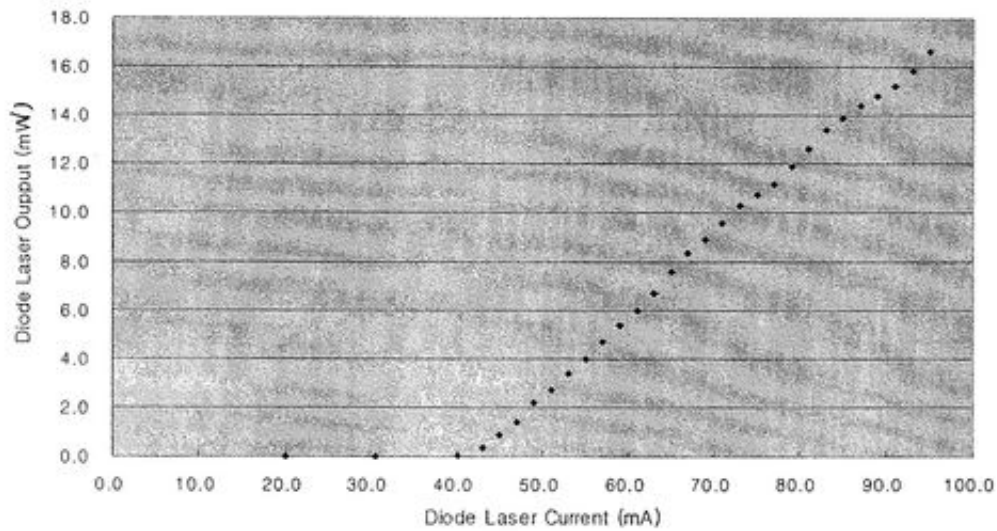


그림 9 회절격자로 되먹임 하면서 측정한 다이오드 레이저의 출력

이상의 측정에서 다이오드 레이저의 기본적인 특성을 측정하였으므로 이를 바탕으로 하여 안정된 다이오드 레이저를 개발하였다. 이 레이저를 제작함에 있어 단일모드 다이오드 레이저를 제작한 경험이 풍부한 독일의 Mainz 대학에서도 제작된 모델을 관찰하고, 관련 기술 자문을 받았으며, 일부 제작 도면과 필수 부품의 구입처, 제작된 레이저의 사진 등도 이전 받았다. 이 도면을 참조로 독자적인 재설계를 실시하였다. Mainz 대학의 설계에서는 다이오드 레이저와 정준 광학계가 분리되어 있으나, 실험 결과 이로 인한 불안정성이 있어서 다시 일체형으로 제작하여 안정성을 증가시켰다. 기계적 진동에 안정적인 레이저 동작을 위하여 빔의 높이를 낮추고 판스프링 구조를 도입하였다. 레이저 파장은 예비 실험과 동일하게 1800 line/mm 회절격자를 사용하여 Littrow 방식으로 되먹임 하여 변화시켰다.

다이오드 레이저, 정준 광학계, 회절격자를 부착하고 오려둘 수 있는 장치를 설계 및 제작하였다. 아래의 그림은 autocad로 설계하여 조립한 도면을 나타낸다. 그림에 다이오드 레이저의 빔을 정준 하는 것은 단일 비구면 렌즈 (C220TM-B)이며, 렌즈의 중심 위치를 좌우 및 상하로 미세하게 조절하게 제작하였다. 사용한 렌즈는 초점거리가 11 mm이고, 개구수 (Numerical Aperture)는 0.25이다. 또한, 600-1000 nm의 파장에서 무반사 코팅이 되어 있어 반사로 인한 레이저의 불안정한 파장 요동을 방지하게 하였다. 진후 방향의 조절은 렌즈 마운트에 가공된 미세 나사톱을 이용하여 회전함으로써 이동하게 하였다.

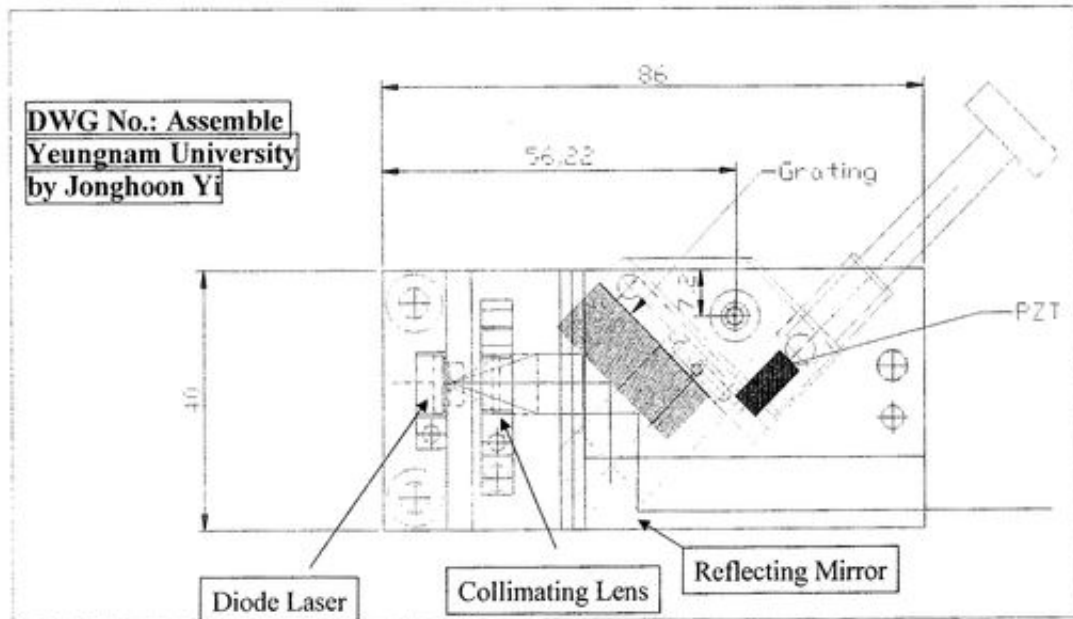


그림 10 다이오드 레이저의 조립된 모습을 나타내는 설계도면

이와 같은 구조를 사용하여 실험한 결과, 렌즈의 중심을 다이오드 레이저의 중심에 정확히 일치시키기가 매우 힘들었다. 이를 해결하기 위하여 렌즈 튜브에 다이오드를 삽입하면 자동적으로 중심이 일치하는 마운트(Thorlab, LT 220P-B)를 사용하였다.

그림에서 반사거울 (reflecting mirror)는 0차 회절된(반사된) 빛을 진행시키는 기능을 하며, 파장변화를 위하여 회절격자의 각도를 돌리더라도 빔의 방향을 일정하게 유지시키는 기능을 수행한다. 파장은 PZT를 조절 나사의 끝단에 부착하여 전압을 가하여 미세하게 변화시켰다. 아래의 그림은 제작된 레이저 장치의 사진을 보여준다.

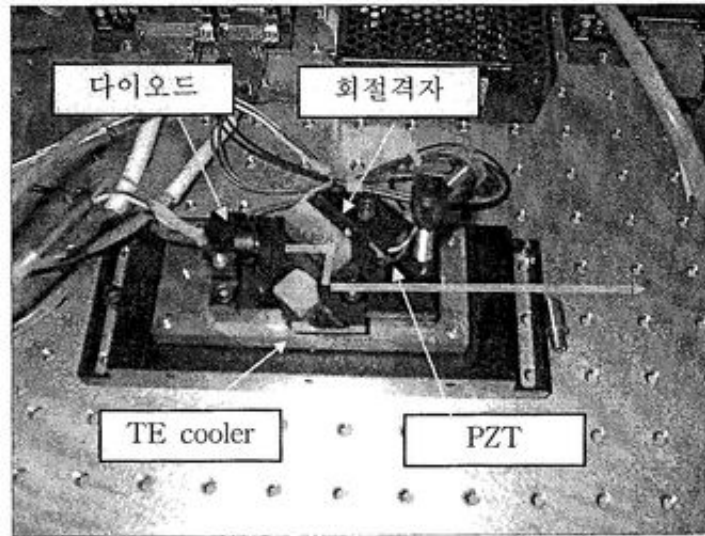


그림 11 제작된 레이저 장치의 사진

공진기의 길이를 약 3 cm 정도로 축소하여 종모드 사이의 간격을 5 GHz로 매우 넓힘으로써 단일모드로 발진하는 것이 용이하도록 하였다. 회절격자로 인한 파장 분해능은 사용한 회절격자의 넓이와 단위 길이 당 격자의 수에 비례한다. 또한, 회절격자는 빛을 분산시킴과 동시에 0차 회절 광을 공진기 외부로 보내는 출력경의 역할도 수행한다. 따라서 적절한 분해능과, 회절 효율, 회절 각을 가져야 한다. 이러한 점을 고려하여 780 nm에서 1800 line/mm 회절격자를 선택하였으며, 이 때, 입사각이 45도 근처이어서 진행방향에 대하여 약 90도로 빔의 방향이 꺾이게 되고 단일모드로 발진하므로 방향과 효율, 분해능이 모두 적절하다.

가돌리늄 동위원소에 레이저 파장을 일치시키기 위해서는 파장을 미세하게 변화시켜야 한다. 이를 위하여 회절격자의 회전각을 미세하게 조정할 PZT를 부착하였다. PZT는 구동전압 150V에 $4.6\mu m$ 이동한다. 이동거리가 최대 $5\mu m$ 이므로 약 60 GHz 이상의 레이저 파장 이동이 가능하다. 다이오드 레이저의 표면에 무반사 코팅을 하면 다이오드 레이저 면에서의 발진으로 인한 영향이 사라지므로 다이오드 레이저의 파장 가변 영역이 증가한다. 60 GHz 정도의 넓은 영역을 모드 텅이 없이 단일모드를 유지한 채 파장을 이동시킬 수 있게 하기 위하여 다이오드 레이저의 보호 창을 제거하고 국내의 광학회사(한국전광)에서 무반사 코팅을 입혔다.

제 2 절 자외선 다이오드 레이저빔 발생

가돌리늄의 일차 전이선은 400 nm 근처에서 가장 전이 확률이 크다. 이 파장을 다이오드 레이저를 사용하여 발생시키는 방법은 두 가지가 있다. 첫째는 UV (ultra violet) 다이오드를 사용하는 것이다. 두 번째는 적외선 영역의 다이오드 레이저를 파장배가(frequency doubling) 하는 것이다.

첫 번째 방법은 일본의 Nichia사에서 개발한 400 nm 근처의 파장으로 발진하는 GaN 계열의 다이오드 레이저를 사용하는 것이다. 이 다이오드를 사용하면 별도의 주파수 배가 장치가 필요 없으므로 자외선 파장을 매우 간단하게 발생시킬 수가 있다. 출력도 수십 mW나 된다. 그러나 하나의 다이오드에 있어 최대 파장 변환 영역이 2 nm에 불과하고, 시판되는 레이저의 발진 파장 영역이 370~380, 400~415, 435~445 nm에 한정되고 있으며, 가격이 개당 2,000~3,000 US\$의 고가이며, 수명이 적외선 다이오드에 비하여 아주 짧다는 단점이 있다.

두 번째 방법은 760~900 nm까지 발진하는 다이오드 레이저를 주파수 배가하면 380~450 nm 영역의 파장을 거의 모두 발생시킬 수 있으며, 수명이 매우 길고, 저가의 다이오드 레이저를 사용할 수 있고, 주사할 수 있는 영역이 10 nm 가까이 매우 크고, 단일모드로 주사가 되는 영역이 수십 GHz 이상으로 넓다는 장점이 있는 반면에 개당 수천 불의 매우 고가인 고효율을 가진 비선형 결정이 필요하고, 변환 효율이 수 % 이하로 매우 낮고, 수십 mW의 출력이 필요한 경우 고가의 테이퍼형 증폭기 (tapered amplifier)가 필요하며, 주파수배가 공진기를 다이오드 레이저 공진기에 항상 공진상태를 유지시켜주는 파장 안정화 장치가 별도로 필요하다는 단점이 있다. 따라서 연구 목적과 사용 파장에 따라서 적합한 공진기 유형을 개발하여야 한다.

특정한 파장 근처만 주로 사용하고 사용하는 파장이 GaN 계열의 UV diode 영역에 있으며 출력이 30 mW 이하라면 UV diode가 편리하다. 넓은 파장 범위를 주사해야하고, UV diode 레이저로 접근이 불가능한 380~398, 415~435 nm 사이의 파장이 필요하며, 수십 mW 이상의 고효율이 필요하다면 외부 공진기를 이용한 주파수 배가 방법이 유리하다. 우리는 두 가지 유형의 공진기를 모두 개발하고 비교하여 보았다.

먼저 파장 가변 영역이 100 nm 으로 아주 넓은 파장을 주사할 수 있는 외부공진기를 이용한 주파수 배가 방식을 개발하였다. 대개의 다이오드 레이저 출력은 수십 mW 이므로 비선형 계수가 큰 결정을 사용하더라도 제2고조파 변환 효율이 매우 낮다. 따라서 공진기에 레이저

를 가두어서 최대 출력을 상승시킨 다음에 제2고조파 변환을 시켜야 효율이 상승한다. 또한, 공진기에 가두어지는 빔의 모드 직경을 가능한 축소하여 레이저 강도를 증가시켜야 한다. 이를 위하여 2개의 곡면경과 2개의 평면경으로 2중 고리형 공진기를 구성하였다. 제작에 있어서 독일의 Mainz University에서 개발한 고효율 파장 변환 장치를 직접 방문하여 샘플을 보며 제작 기술을 협의하고 이전 받은 기술 자료를 참조하며, 제작 중에도 지속적으로 협의하였다. 제작에 있어 국산 부품을 구입하고 마운트를 제작하여 연구실에서 조립하였다. 또한, 독일의 Mainz University에서 개발한 레이저 공진기의 안정화 기술을 이전 받아 활용하였다.

고리형 공진기에서는 모드 간섭이 없고 한 방향으로만 출력이 나오므로 고효율이 얻어진다. 곡면경은 공진기의 빔직경을 최소화하는데 이용되며 곡률 반경을 10 cm으로 매우 짧게 선택하여 공진기를 구성하고 ABCD 행렬로 TEM_{00} 모드의 빔직경을 계산하였다. 빔의 반경은 23 μm 로 매우 좁힘과 동시에, 자오면과 구결면의 빔직경이 비슷하게 되도록 공진기 거울 사이의 간격을 조절하여 원형의 제2고조파 빔이 발생하도록 하였다. 즉, 제2고조파 발생용 공진기가 빔의 공간여과기 역할도 수행하게 한 것이다. 다이오드 레이저를 공진기내로 유입시키는 결합용 거울의 반사율은 96%로 설계하였으며, 이때, 레이저 강도 증가는 30배에 달하였다. 비선형 결정으로는 넓은 파장 가변 영역을 가지고 습기나 레이저에 의한 손상에 매우 강한 LBO를 선택하여 안정되게 다양한 종류의 다이오드 레이저를 사용할 수 있도록 하였다. 비선형 계수가 더 큰 KNbO_3 , LiIO_3 등은 400 nm 파장 발생이 힘들고 습기에 약하다.

다이오드 레이저를 2중 고리형 공진기에 가두고, 공진기의 모드 빔직경을 매우 축소하여 레이저 강도를 올려 제2고조파 변환효율을 상승시켰다. 레이저는 습기와 공기 흐름의 영향을 적게 받도록 완전히 밀폐가 되도록 하였다. 밀폐된 레이저 케이스에 입사되는 레이저는 브루스터(Brewster) 창을 통하여 지나가게 하여 손실이 없도록 하였다. 아래의 그림은 오토캐드 (autocad)로 설계한 제2고조파 변환용 공진기의 조립도를 보여준다.

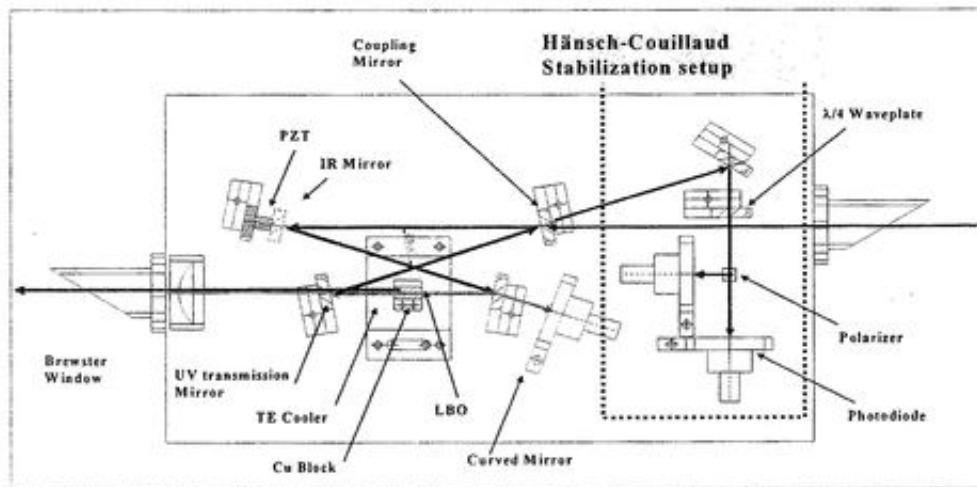


그림 12 Autocad로 설계한 제2고조파 변환용 공진기의 조립도

높은 효율의 제2고조파 변환 효율을 얻기 위해서는 레이저 강도가 커져야 한다. 최대 레이저 강도는 공진기에 가두어지는 다이오드 레이저의 세기에 비례하므로 공진기의 반사율은 매우 중요하다. 또한 공진모드의 빔직경을 축소하면서도 공간모드의 균일성이 좋아야 한다. 아래의 그림은 공진기 내부의 손실에 따른 레이저 강도의 개선 효과와 공진기 내부에서 위치에 따른 빔의 직경을 계산한 결과를 보여준다.

반사율이 96%인 결합거울과, 곡률이 100 mm인 곡면경, LBO 결정, 광검출기, 평면경 등으로 2중 고리형 공진기를 제작하였다. 사용한 광부품의 사양은 다음 그림에 정리하였다.

Coupling Mirror	Flat, R=96% @ 750-850 nm
IR Mirror	Flat, R>99% @ 750-850 nm
UV Trans. Mirror	R>99% @ 750-850 nm, T>80% @ 375-425 nm Radius of Curvature = 50 mm
Curved Mirror	R>99% @ 750-850 nm
Diode Laser	LT024MD, Sharp, 785 nm center, 30 mW
Nonlinear Crystal	LBO (5x5x10 mm ³) 750-850 nm, 375-425 nm AR coating

그림 13 사용한 광부품의 사양

비선형 결정은 제2고조파 변환효율에 가장 큰 영향을 준다. 여러 가지 비선형 결정에 대한 사용 사례가 보고 되어 있으며 다음 그림에 각종 결정의 특성을 요약하였다. $KNbO_3$ 가 가장 비선형 계수가 커서 효율이 좋다. 10 mm 길이의 결정을 사용한 때, 100 mW의 다이오드 레이저를 입사하면 10 mW 이상이 변환되어 나오는 것으로 알려져 있다. 하지만 파장 변환 범위가 418~3500 nm으로 자외선 영역에 한계가 있으며, 자외선으로 갈수록 결정의 온도를 영하 20도 이하로 저하시켜야 하므로 결정 셀을 N_2 가스로 밀봉해야 하는 불편함이 있다. $LiNiO_3$ 결정은 기계적인 강도와 광학적인 강도가 너무 약하여 쉽게 손상되는 단점이 있다. KTP 는 파장이 497 nm 이하로 변환되지 못한다. 내구성과 효율을 동시에 만족하는 것으로 LBO 가 적절한 것으로 생각된다.

Crystal	Nonlinear coefficient (d_{31})	Damage Threshold (GW/cm ²)	Refractive index (@532 nm)	SHG Wavelength range
BBO	0.161 pm/V	5.4	1.67	189-3500 nm
LBO	1.05 pm/V	4.1	1.58	160nm - 2600 nm
KTP	2.54 pm/V	1.0	1.78	497-1800 nm
KNbO3	-15.8 pm/V	8.0	2.17	418 - 3500 nm
LiIO ₃	-7.1 pm/V	0.25	1.85	310-5500 nm

그림 14 각종 비선형결정의 특성

기본파 P_w 에서 제2고조파 P_{2w} 로 변환시키는 효율은 다음 식과 같다.

$$P_{2w}/P_w = l^2 K \frac{P_w}{A} \frac{\sin^2(\Delta kl/2)}{(\Delta kl/2)^2} \quad (3)$$

위 식에서 결정의 길이는 l , 결정에서의 레이저빔 단면적은 A 이고 Δk 는 아래의 식으로 표현되는 위상비정합(phase mismatch)이다.

$$\Delta k = \frac{4\pi}{\lambda} (n_1 - n_2) \quad (4)$$

위 식에서 n_1 는 기본파 파장에서의 굴절률, n_2 는 제2 조화파 파장에서의 굴절률을 나타낸

다. 위의 식에서 결정에서의 레이저 단면적을 줄이면 강도가 세어져서 효율이 좋아짐을 알 수 있다. 따라서 제2고조파 변환 공진기는 가능한 빔의 반경이 최소가 되도록 설계해야 한다. 최적의 공진기를 설계하기 위하여 다음과 같은 2중 고리형 공진기에 대하여 고려하였다.

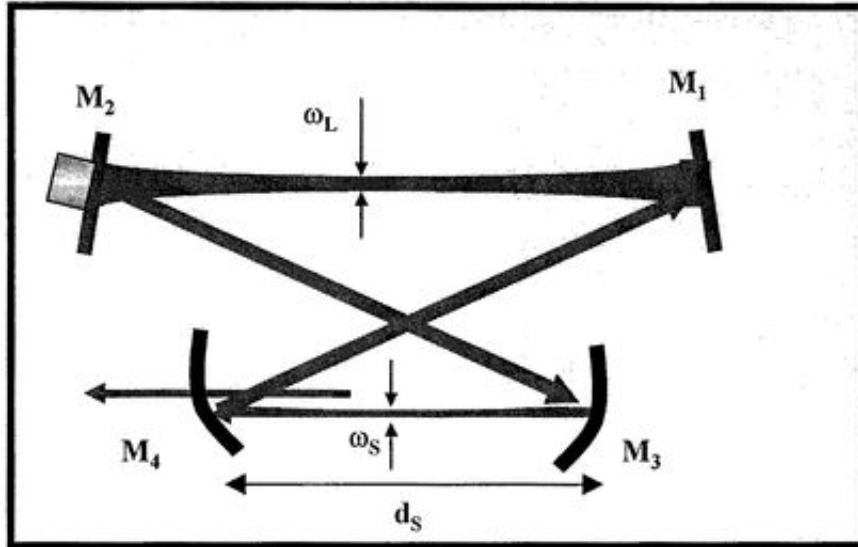


그림 15 제2고조파 변환을 위한 2중 고리형 공진기

그림과 같은 공진기에서는 아래의 식에서 보듯 팔의 길이가 긴 곳에는 아래 식의 w_L 로 주어지고 길이가 짧은 팔에는 w_S 로 주어지는 빔살 (beam)의 허리 (beam waist)가 있으며 이곳에서 빔의 반경이 가장 작다.

$$\begin{aligned} \omega_S^2 &= \frac{\lambda r}{2\pi} \sqrt{\frac{(1-d_S/r)}{(1-d_L/r)} [1-(1-d_S/r)(1-d_L/r)]} \\ \omega_L^2 &= \frac{\lambda r}{2\pi} \sqrt{\frac{(1-d_L/r)}{(1-d_S/r)} [1-(1-d_S/r)(1-d_L/r)]} \end{aligned} \quad (5)$$

위 식에서 d_S 는 팔길이가 짧은 곳의 팔길이를 나타내며, d_L 은 공진기 전체의 길이에서 짧은 팔길이를 뺀 길이이며, r 은 공진기 거울의 곡률반경이다. 공진기 길이와 d_S 에 따라서 w_L 이 달라진다. 아래 그림은 이를 계산한 결과이다. w_L 뿐만 아니라, w_S 도 달라진다. w_S 를 계산한 결과도 나타내었다.

빔반경을 작게 하는 것만이 중요한 것이 아니라, 자오면(tangential plane)과 구결면(sagittal plane)에서의 빔반경이 비슷하게 하는 것도 원형의 제2고조파를 얻는데 매우 중요하다. 공진기 길이가 짧고 공진기 거울의 곡률반경이 매우 짧아서 빔반경의 변화가 매우 급하다. 길이가 10 mm인 비선형 결정을 사용할 때, 결정의 끝단과 중심에서의 빔반경은 차이가 난다.

결정 내부의 모드 곳에 걸쳐 빔반경이 비슷해야 한다. 이를 살펴보기 위하여 공진기 내부에서 레이저 TEM_{00} 모드의 빔반경을 ABCD 행렬을 사용하여 계산하였다.

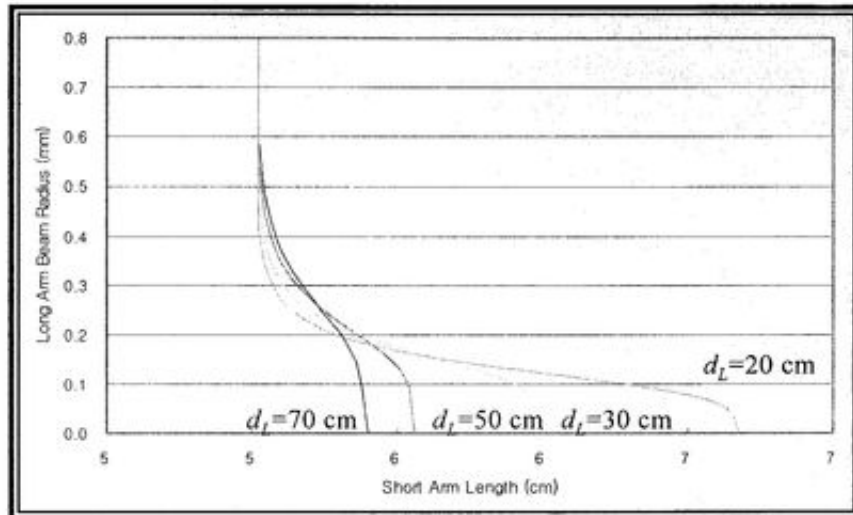


그림 17 주어진 공진기 길이에서 팔이 짧은 쪽의 팔길이에 따른 팔길이가 긴 쪽의 빔반경 변화

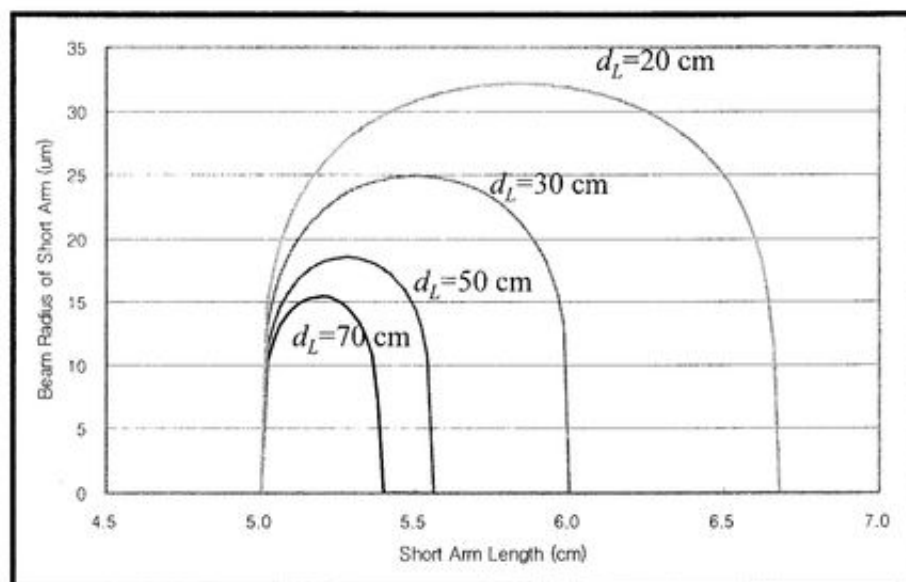


그림 18 주어진 공진기 길이에서 팔이 긴 쪽의 팔길이에 따른 팔길이가 짧은 쪽의 빔반경 변화

그림 20은 두 곳에서의 빔반경을 자오면과 구결면에 대하여 d_s 를 변화시키면서 계산한 결과이다. 그림에서 d_s 가 58 mm인 때, 자오면과 구결면에서의 빔반경이 결정의 중심에서 끝단에 걸쳐 비슷해짐을 알 수 있다. 이 경우 공진기 전체에 걸쳐 빔반경의 변화를 계산하였다.

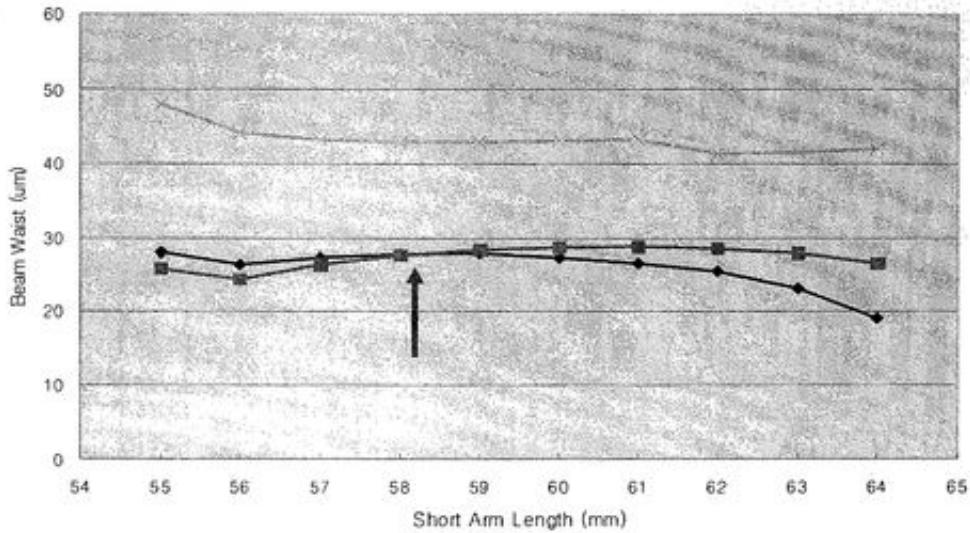


그림 19 주어진 공진기 길이에서 팔이 짧은 쪽의 팔길이에 따른 빔반경 변화 그림에서 아래의 그래프는 빔반경이 가장 작은 곳에서의 자오면과 구결면에서의 반경이고 위의 그래프는 길이가 10 mm인 결정 끝단에서의 자오면과 구결면에서의 반경

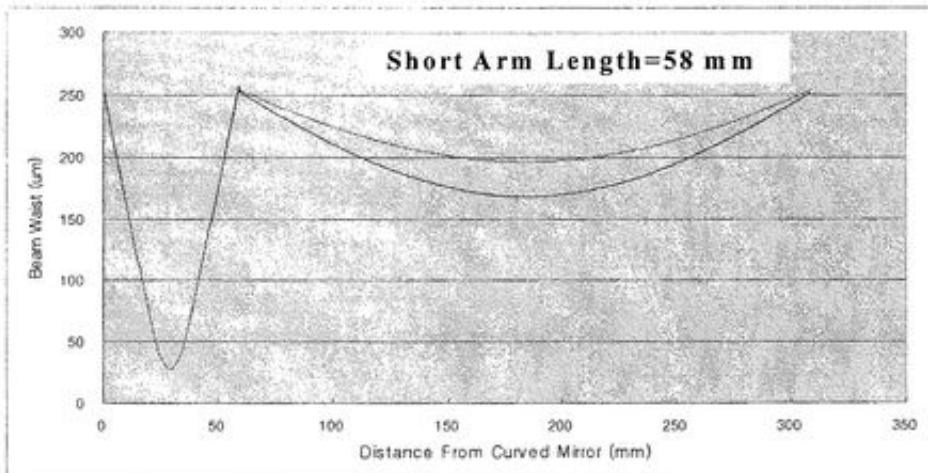


그림 20 공진기내에서 위치에 따른 구결면과 자오면에서의 빔반경 변화

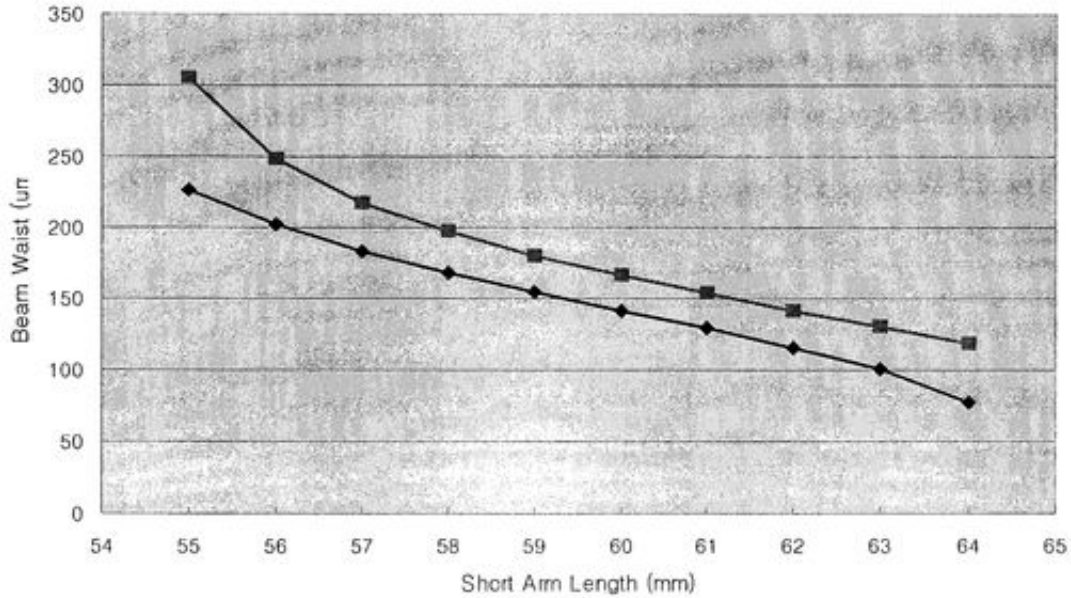


그림 21 공진기의 긴팔부위에서 짧은 팔의 길이 변화에 따른 최소 빔반경 변화

그림에서 기본파 다이오드 레이저가 입력되는 거울 M_1 의 반사율은 공진기 내부의 레이저 세기와 반사광의 세기를 결정하는 중요한 인자이다. 일반적으로 반사율이 올라가면 공진기 내부에 갇힌 레이저 세기는 증가하나, 너무 반사율이 증가하면 공진기에 에너지가 전달되지 못하여 오히려 감소한다. 입사하는 레이저의 세기 I_i 에 대하여 공진기 내부에서의 레이저 세기 증가로 인한 I_c 와의 비는 다음과 같이 주어진다.

$$\frac{I_c}{I_i} = \frac{T}{[1 - \sqrt{R_1 R_2 R_3 R_4 (1 - V)}]^2} \quad (6)$$

위 식에서 M_1, M_2, M_3, M_4 은 그림 15에 표시된 각 거울의 반사율을 나타내며, V 는 공진기 내부에서의 손실을 나타낸다. 여기에서 M_2, M_3, M_4 의 반사율은 1로 두고 공진기 손실을 변화시키면서 I_c/I_i 를 계산한 결과를 다음 그림에 나타내었다.

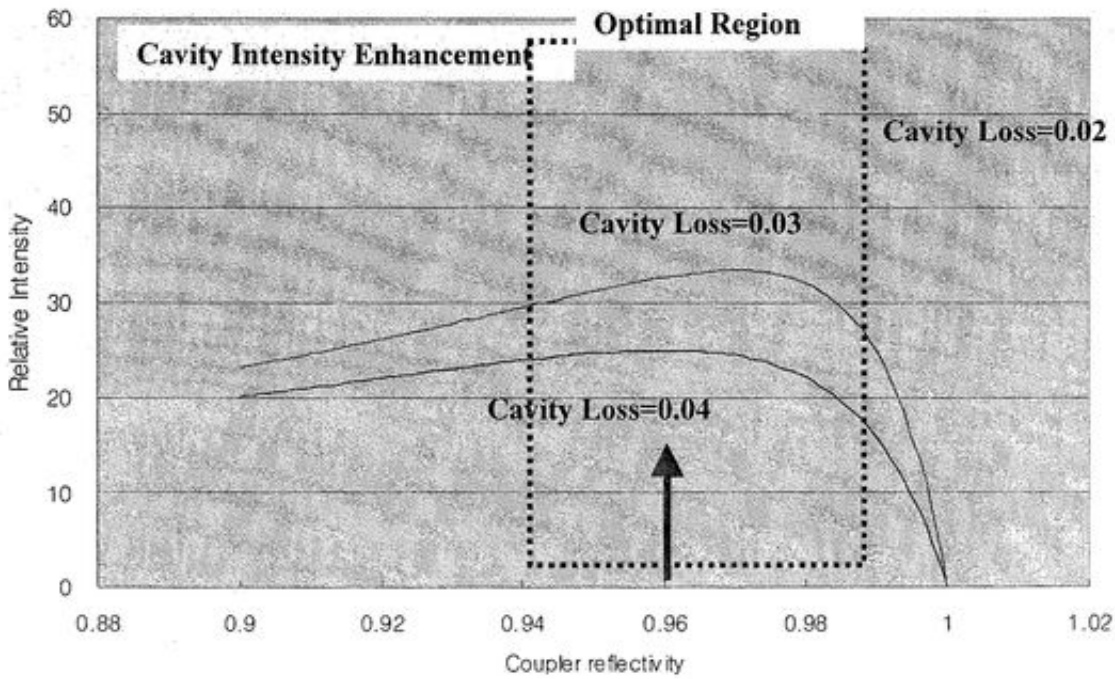


그림 23 각 공진기 손실에서 기본파 레이저가 입사되는 거울의 반사율에 따른 공진기 내부의 레이저 세기 증가

반사율이 올라가면서 레이저가 입력되는 곳의 거울 M_1 에 의하여 반사되는 양도 변화한다. 입사하는 레이저의 세기 I_i 에 대하여 공진기 거울에서의 레이저 반사로 인한 I_r 와의 비는 다음의 식으로 주어진다.

$$\frac{I_r}{I_i} = \frac{1 [R_1 - \sqrt{R_1 R_2 R_3 R_4 (1-V)}]^2}{R_1 [1 - \sqrt{R_1 R_2 R_3 R_4 (1-V)}]^2} \quad (7)$$

여기에서 M_2, M_3, M_4 의 반사율은 1로 두고 공진기 손실을 변화시키면서 반사율 I_r/I_i 를 계산한 결과를 다음 그림에 나타내었다.

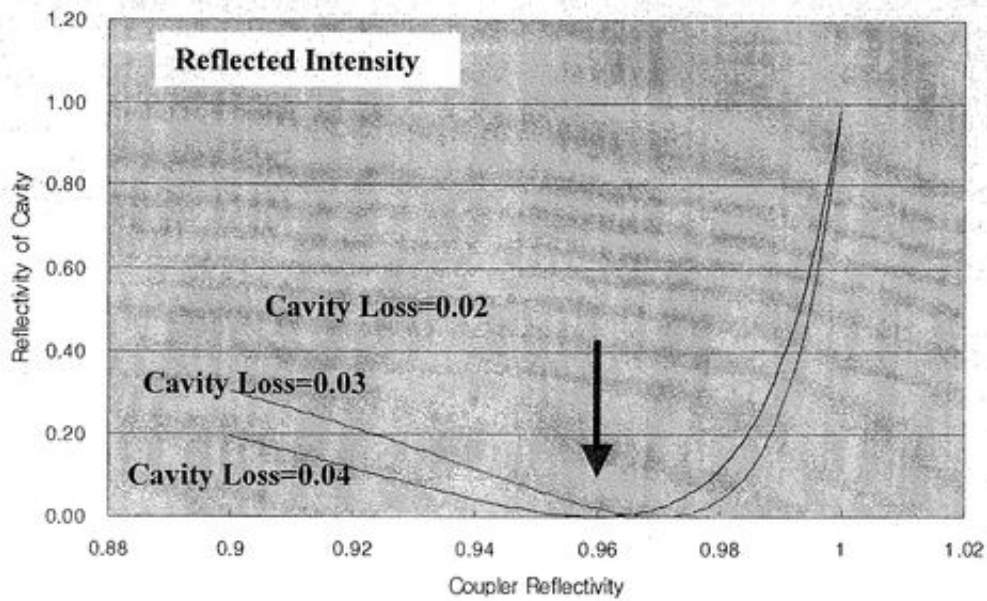


그림 24 각 공진기 손실에서 기본파 레이저가 입사되는 거울의 반사율에 따른 공진기 거울에서의 레이저 반사율 변화

반사된 레이저는 아래의 그림과 같은 Hänsch-Coillaud 공진기 안정화 장치에 사용한다.

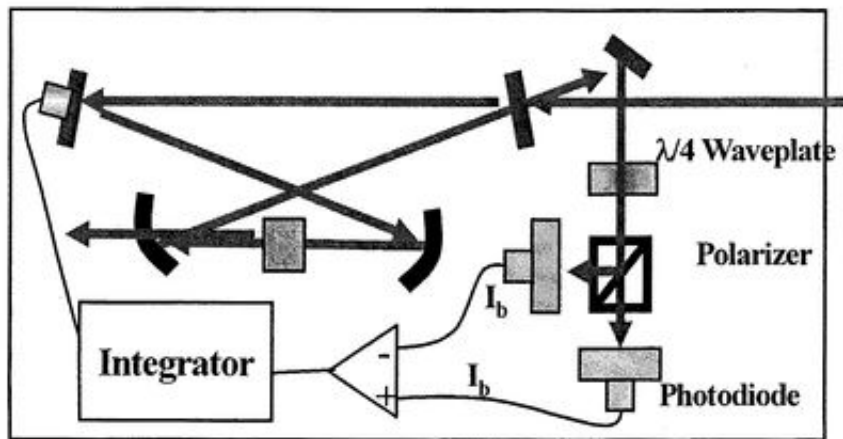


그림 25 Hänsch-Coillaud 공진기 안정화 장치도

공진기에 입사되는 레이저의 전기장은 전기장의 수직성분 E_{\perp}' 과 수평성분 E_{\parallel}' 는 다음과 같이 주어진다.

$$E_{\parallel}' = E' \cos \theta$$

$$E_{\perp}' = E' \sin \theta$$

(8)

공진기에서 반사된 레이저의 전기장의 수직성분 E_{\perp}' 과 수평성분 E_{\parallel}' 는 다음과 같이 주어진다.

$$\begin{aligned} E_{\parallel}' &= E_{\parallel} \left\{ \sqrt{R_1} - \frac{T_1 R}{\sqrt{R_1}} \frac{\text{Re}^{i\delta}}{1 - \text{Re}^{i\delta}} \right\} \\ E_{\perp}' &= E_{\perp} \sqrt{R_1} \end{aligned} \quad (9)$$

공진일 때, $\delta = 2m\pi$ 이며, 이 때의 입사광이 선편광 되어 있다면 반사된 레이저 빔은 완전히 선형 편광된다. 그러나 공명 조건을 벗어나면 반사된 레이저빔의 편광은 타원편광이 된다. 선형 편광된 경우(공명 상태인 경우), 반사된 빛이 $\lambda/4$ 편광자를 지나면서 원편광이 되고, 이것이 다시 선형편광자를 지나면 레이저의 에너지가 2개의 검출기에 동일한 양으로 나누어져 입사된다. 따라서 차등 증폭기에는 아무런 신호가 검출되지 않고, 공진기의 한쪽 거울에 부착된 PZT에도 되먹임 신호가 없다. 따라서 공진기의 길이 변화도 없게 된다. 그러나 공진 조건을 벗어나서 타원 편광이 되면 양쪽에 검출되는 신호의 크기에 변화가 생기고 그 양은 다음과 같다.

$$I_o - I_b = I' 2 \cos\theta \sin\theta \left\{ \frac{T_1 R \sin\delta}{(1-R)^2 4R \sin^2(\delta/2)} \right\} \quad (10)$$

이 때문에 PZT에 전압이 가해져서 되먹임신호가 0이 될 때까지 공진기 길이를 변화시키게 된다. 아래 그림에 주파수 변화에 따른 공진기 투과광과 편광자를 거쳐 검출되는 신호광의 세기가 입사광의 주파수에 따라 변하는 양상을 나타내었다. 이 같은 과정을 거쳐 제2고조파 변환 공진기는 항상 입사 레이저의 주파수에 공명 상태를 유지하게 되는 것이다. 이 방법은 주파수 변화에 대한 반응시간이 매우 빠르고 순간적으로 주파수 요동이 크게 되어도 반응 영역이 넓어서 공명 조건으로 되돌리게 된다.

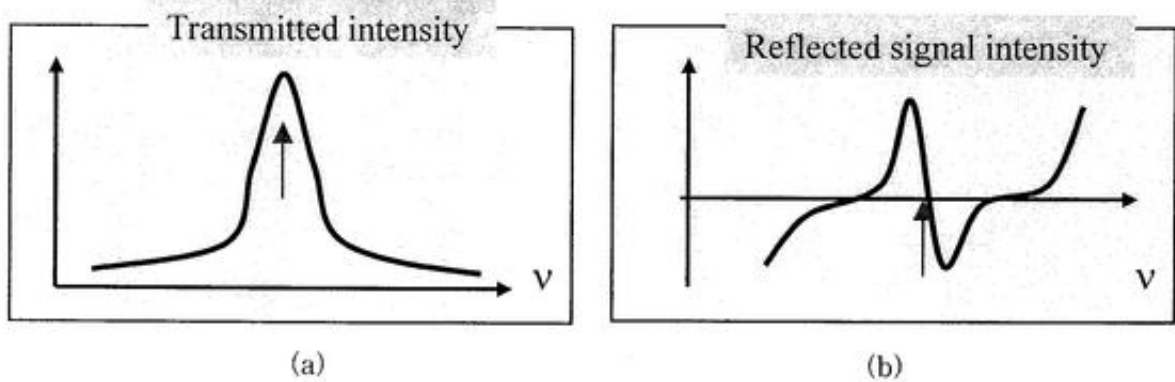


그림 30 (a) 제2고조파 변환 공진기를 통과하는 광의 세기와

(b)변광자를 지난 다음에 검출되는 광의 세기의 주파수에 따른 변화

이상의 방법을 적용하기 위하여 제작한 제2고조파 변환용 공진기의 모습은 다음의 사진에 나와 있다.

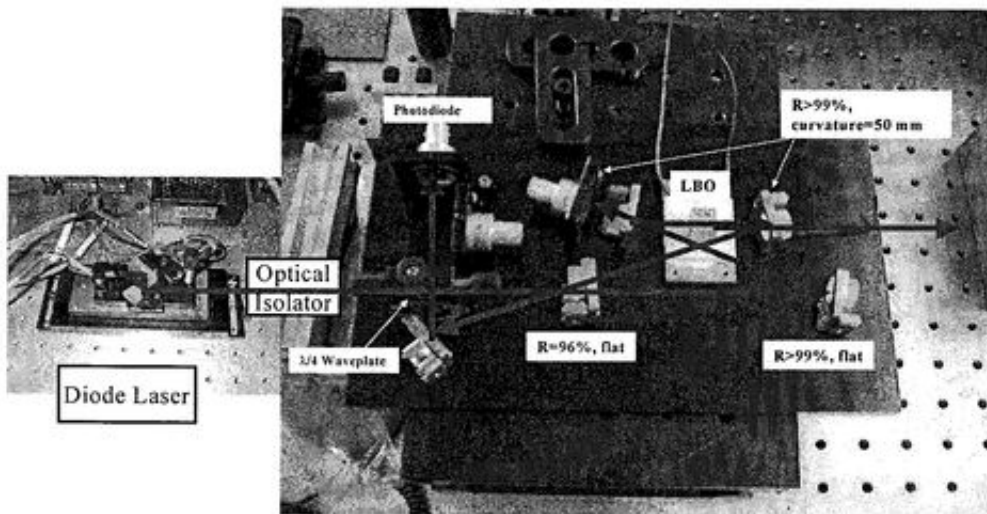


그림 31 제작된 제 2차 고조파 변환용 공진기의 모습

제2고조파를 이용하는 방법에서는 기본파의 출력이 커야 변환 효율이 좋다. 본 연구에서는 LBO를 사용하였으며, 기본파 다이오드의 출력이 100 mW에 불과하여 변환된 출력은 불과 수 μW 에 불과하여 실험을 수행하기가 힘들었다. 적어도 수 mW의 출력이 나와야 하나, 이 같은 출력을 얻기 위해서는 테이퍼형 증폭기를 사용해야 한다. 그러나 고가의 증폭기를 마련하기가 힘들었다. 이온화 실험을 위하여 가돌리늄의 대표적 파장이 있는 400 nm 근처의 UV 다이오드를 제작하였다. 아래 그림은 제작한 레이저의 모습이다.

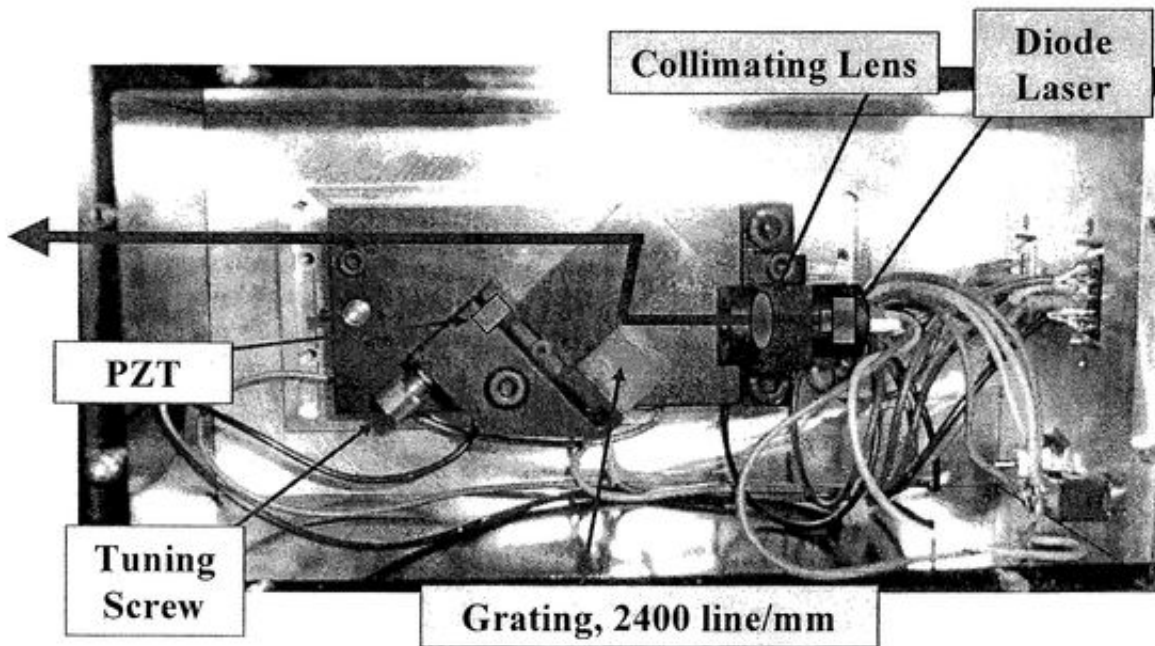


그림 32 자외선 다이오드 레이저의 사진

사용한 레이저 부품의 사양은 다음 표에 나와 있다.

Diode laser	- Nichia, Model: NDHV310ACAE1, 5.6mm can, Cathode ground - Peak wavelength:399 nm, Optical Power:30 mW - Threshold current:41.2 mA, Operating Voltage: 4.39 V - Operating current: 64.4 mA, Operating Temp:25 deg. - Beam divergence(FWHM): 8.2 deg(H), 26.6 deg(V)
Grating	American holographic, 2400 line/mm, 12.5X25 mm ²
Collimating lens	Thorlab, LT220P-A, 350-600 nm AR, NA=0.25, f=11 mm
Cooler	TE cooler, Melcor, 2A
PZT	Thorlab, AE0505D08, 9.1 $\mu\text{m}/150\text{V}$
Current driver	Wavelength Electronics, 250 mA

UV 다이오드 레이저의 파장과 출력특성을 측정하여 보았다. 다음은 회절격자를 통과하기 전에 측정한 결과이다.

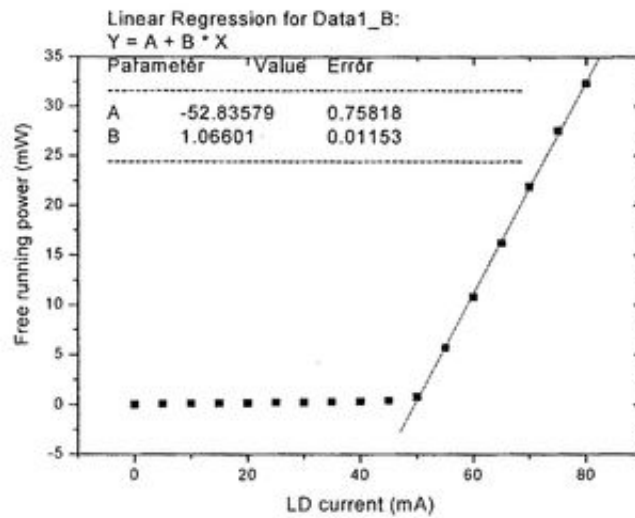


그림 34 자외선 다이오드 레이저의 구동 전류에 따른 출력 측정 결과

회절격자에서의 1차 회절효율은 35%에 달한다. 이렇게 회절된 빛이 너무 많아서 아래 그림과 같이 0차로 나오는 출력광의 세기가 작아진다.

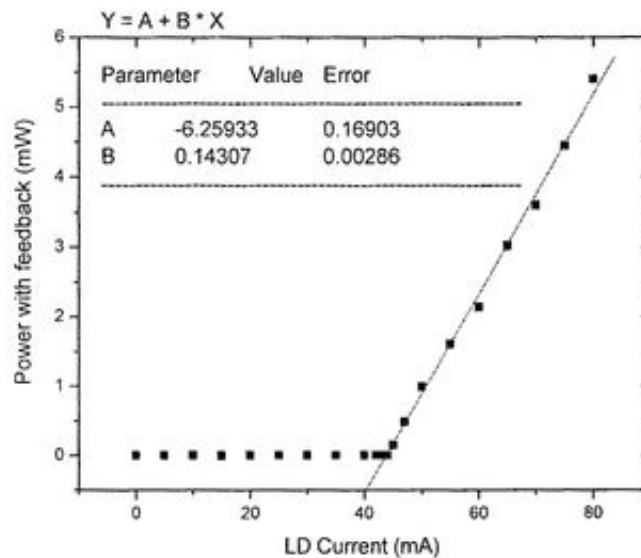


그림 35 회절격자를 지난 후의 자외선 다이오드 레이저의 구동 전류에 따른 출력 측정 결과

레이저의 선폭을 자유대역폭이 1 GHz인 고분해능 공초점 에탈론으로 측정한 결과는 다음에 나와 있다. 램프 전압을 올리면 에탈론 거울 사이의 거리는 변화하면서 투과하는 중심 파장이 변한다. 이렇게 중심 파장을 주사하면서 광검출기를 이용하여 동시에 투과광의 세기를 측정 한 결과가 아래 그림의 그래프이다.

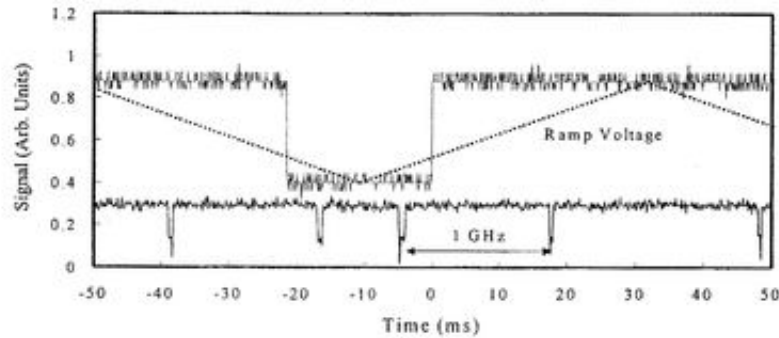


그림 36 중심 파장을 주사하면서 광검출기를 이용하여 에탈론을 투과한 광의 세기를 측정한 결과

위 그림에서 투과광의 그래프를 아래 그림에서 좀더 자세히 살펴보았다. 그림에서 보듯 레이저는 8 MHz의 매우 좁은 선폭을 보인다. 에탈론에서 나오는 피크는 파장이 요동하면 중심 위치가 흔들린다. 다이오드 레이저의 전류를 증가하면 파장은 이동하는데, 파장의 요동은 어느 전류 영역에서는 심하다가 어느 영역에서는 요동이 매우 작아진다. 이러한 요동을 줄여야 원하는 파장에 장시간 공조시키는 것이 가능해진다.

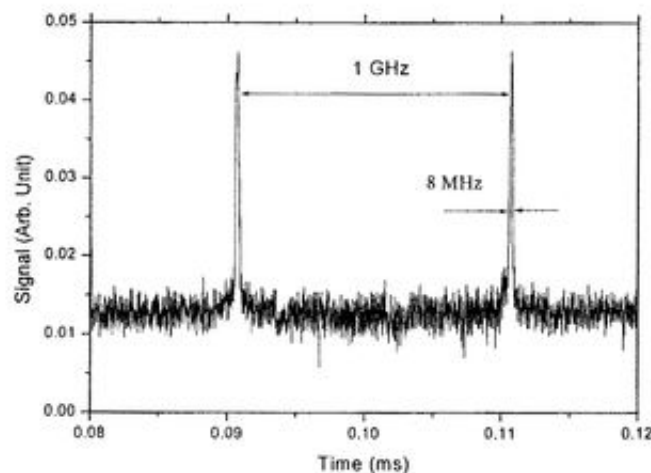


그림 37 다이오드 레이저의 선폭을 측정한 결과

이 레이저의 파장을 파수측정기(Burleigh)로 측정한 결과는 아래 그림에 나와 있다. 레이저의 중심 발진 파장은 398.964 nm으로 가돌리늄의 전이선 근처임을 알 수 있다.

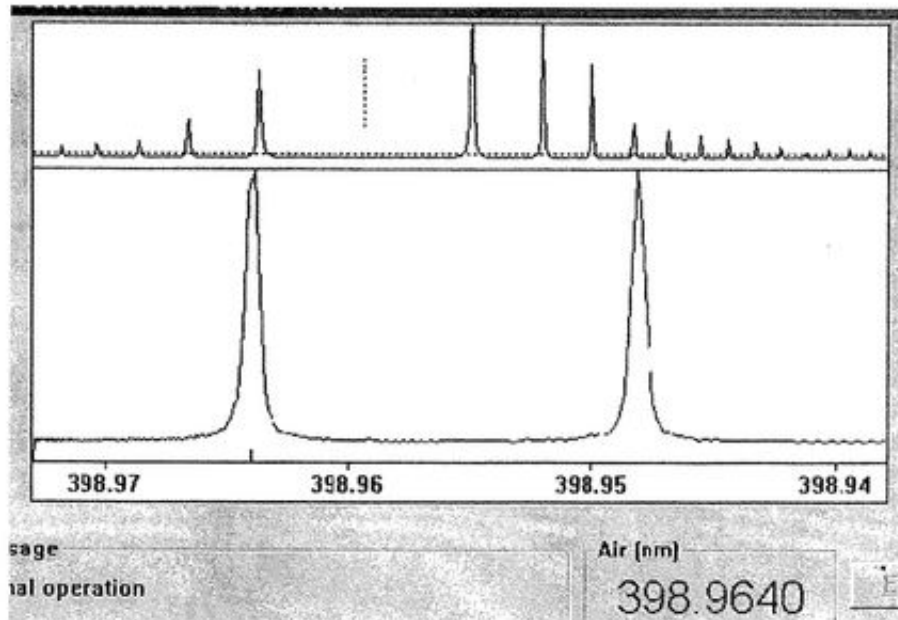


그림 38 파수측정기로 측정한 레이저의 파장

제 3 절 다이오드 레이저로 광이온화 가능한 가돌리늄의 전이선 연구

고출력 다이오드 레이저의 파장은 630-680 nm, 750-860 nm, 980 nm 근처이다. 이 중에서 400 nm 근처의 파장을 발생시키려면 750-860 nm 파장 대를 제2고조파 변환시키고 375-425 nm 대의 파장을 얻는다. UV 다이오드 레이저의 발진 가능 파장도 370~380, 400~415, 435~445 nm에 한정되어 있다. 따라서 이러한 파장 접근 영역을 이용할 수 있는 가돌리늄의 전이선을 찾아야 한다. 이를 위하여 database (미국 표준연구원 NIST의 공개 dB 자료와 한국원자력연구소의 AMODS 자료, Mainz의 자료를 활용)를 검색하여 에너지 준위 자료를 조사하였다. 전이선이 수백 개에 달하나, 각 전이선의 하부준위와 상위준위를 에너지 준위 테이블을 참조하여 다시 조사하여 이 중에서 기저준위에서 출발하는 준위만 골랐다. 그 이유는 레이저를 이용한 동위원소 분리에서는 전자총으로 가돌리늄을 가열하여 원자증기로 만드는 공법을 사용하며 이 과정에서 원자 증기의 단일 팽창이 발생하기 때문이다. 따라서 단순히 저항 가열하여 원자 증

기를 발생시키는 과정에서는 가돌리늄의 5개 하부 준위에서 각운동량이 큰 J=6 준위의 밀도가 가장 크지만, 단열팽창과정이 생기면 기저 준위의 원자 밀도가 가장 크므로 이 준위를 사용해야 한다. 낮은 전이선 중에서 다시 동위원소이동을 조사하였다. 가시광 영역의 파장에서는 가돌리늄의 홀수 동위원소를 레이저 공면이온화 방법으로 양산하려는 연구가 장기간 지속되어서 동위원소이동,[5] 형광수명,[6] 진동자세기,[7] 각운동량조사[8] 등에 있어 많은 결과가 보고되어 있다. 그러나 자외선 이 영역에서의 동위원소이동 값은 Mainz 대학에서 $KNbO_3$ 결정을 사용하여 변환할 수 있는 422-429 nm 파장으로 여기 가능한 전이선에 대한 연구 결과를 제외하고선 거의 나와 있지 않다.[9] 이들은 2광자 전이에서의 동위원소 이동으로 인한 스펙트럼도 정밀하게 측정하였다.[10]

다만 가돌리늄의 7가지 동위원소 중에서 질량수 160과 질량수 156만 농축된 시료를 이용하여 hollow cathode 램프를 만들어서 329 nm에서 498 nm 사이의 형광선을 초점거리 2 meter의 단색 분광기를 사용하여 분석한 자료를 참조하였다.[11] 이 결과를 이용하면 정확하진 않으나, 동위원소 이동이 어느 정도인지 짐작하는 것이 가능하다.[12]

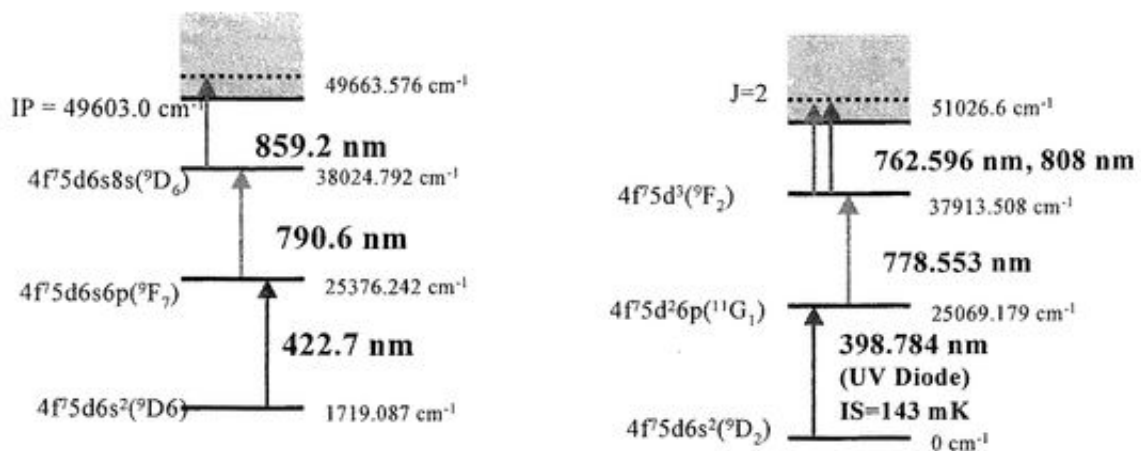


그림 39 기저준위에서 출발하는 자외선 영역의 전이선 중에서 동위원소 이동이 비교적 큰 전이선

기저 준위 근처에 있는 여러 개의 준안정 준위 중에서, J=3인 기저준위 (215cm^{-1})에서 동시에 여기가 가능하다면 이 준위에도 원자가 상당량 있으므로 이온화 효율을 대폭 상승시킬 수가 있다. 동위원소 이동이 크면서도 이러한 동시여기가 가능한 이온화 경로 13개를 찾았다. 다음 그림은 이들 중에서 대표적인 경로를 보이고 있다.

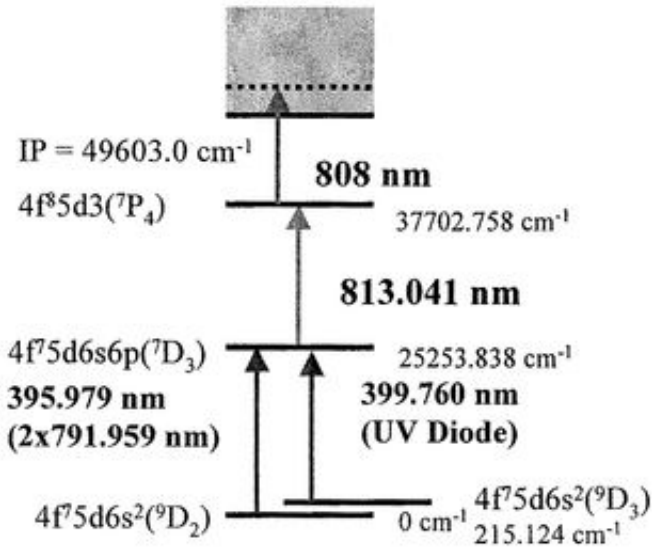


그림 40 기저준위와 J=3인 기저준위 (215cm^{-1})에서 동시에 여기가 가능한 이온화 경로

한편 가돌리늄의 홀수 동위원소의 스펙트럼 초미세 구조가 아주 복잡하고 짝수 동위원소와도 겹쳐 있으므로 홀수 동위원소만 추출하려면 레이저 편광을 사용하는 것이 매우 효과적이다. 이 경우 아래 그림과 같이 직선 편광된 레이저로 J=2->2->1->0의 순서를 따라서 여기서 키면 기저 준위의 홀수 동위원소는 100% 이온화된다.[13]

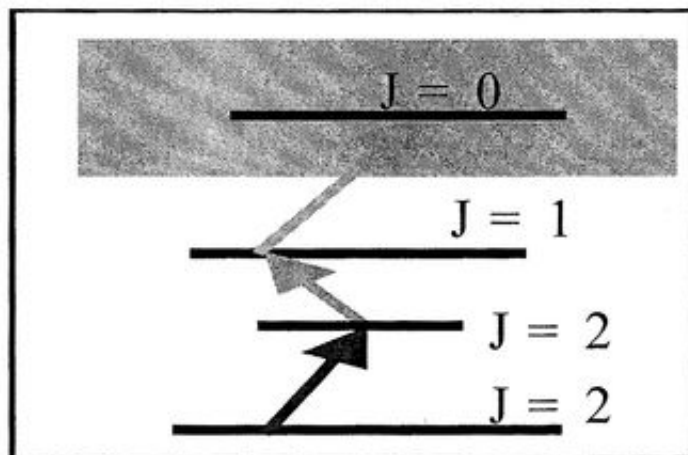


그림 41 편광만 이용하여 기저 준위의 홀수 동위원소를 100% 이온화 시키는 경로

이와 같은 여기 경로를 거치면 짝수 동위원소는 전기 쌍극자 선택률에 의하여 이온화 상태에 도달하지 못한다.

Even isotope (I = 0)			Odd isotope (I = 3/2)																	
Levels	Allowed transitions	Average population distribution (B=0)	Levels	Allowed transitions	Population flow relative distribution (B=0)															
Photoionization (J=0)		0 %	Photoionization (J=0)		70 %															
Second excited (J=1)		13 %	Second excited (J=1)		74 %															
First excited (J=2)		34 %	First excited (J=2)		87 %															
Ground (J=2)			Ground (J=2)		100 %															
m_j (electronic)	-2 -1 0 1 2	m_j	m_j (nuclear plus electronic)	<table border="1"> <tr> <td>-2</td><td>-1</td><td>0</td><td>1</td><td>2</td> </tr> <tr> <td>2</td><td>2</td><td>2</td><td>2</td><td>2</td> </tr> <tr> <td>2</td><td>2</td><td>2</td><td>2</td><td>2</td> </tr> </table>	-2	-1	0	1	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	m_j
-2	-1	0	1	2																
2	2	2	2	2																
2	2	2	2	2																
			m_j (electronic)	-2 -1 0 1 2	m_j															

그림 42 각운동량 J=2-2-1-0 경로를 거칠 때, 짝수 동위원소와 홀수 동위원소의 여기율 차이

이 같은 방법을 적용할 수 있기 위해서는 각운동량이 적절한 값을 갖는 준위가 다이오드 레이저로 여기가 가능한 에너지 위치에 존재해야 하며, 우리는 이 같은 조건을 만족하는 이온화 경로가 9개가 존재함을 밝혔다.

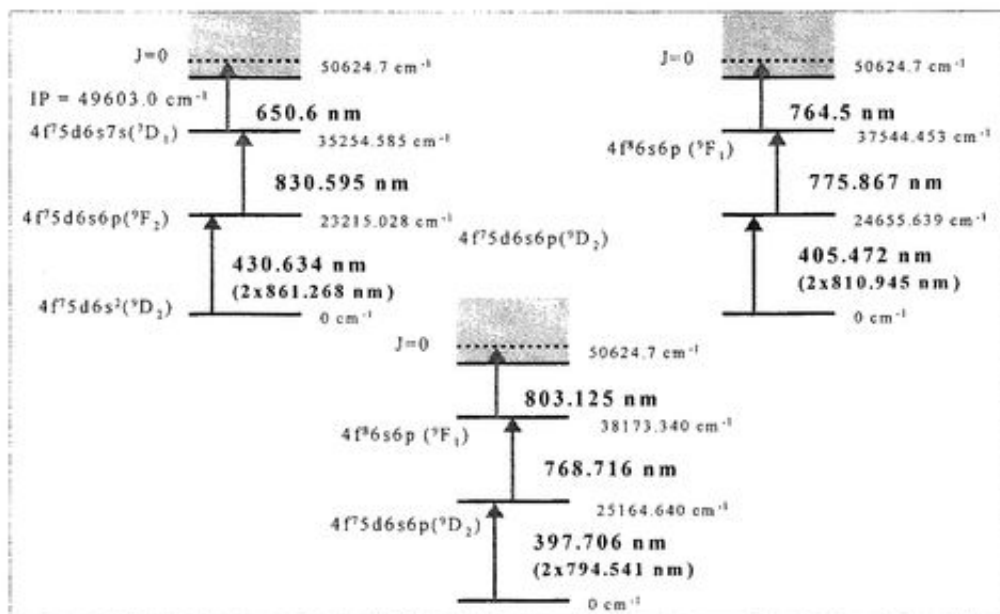


그림 43 각운동량 선택률을 이용한 홀수 동위원소 분리 이온화 경로

아래의 표는 수백 개의 전이선 중에서 기저준위에서 출발하는 자외선 파장의 전이선만을 나타낸 것이다. 음영이 표시된 것은 J=3인 기저준위 (215 cm⁻¹)에서 출발하는 전이선과 동일한 상위준위를 갖는 전이선을 나타내며, 동시에 여기할 수 있어 고효율 여기에 사용할 수 있어 * 표시를 해두었다. J=2인 상위 준위들은 각운동량 선택률을 적용할 수 있는 전이선을 나타낸다.

wavelength (A)	전이선의 세기 Intensity	Energy (cm ⁻¹)	classification J	electronic configuration	isotope shift (mK)	215cm ⁻¹ overlap
3382.228		29557	1	4f75d6s6p(9F1)	-123.7	
3684.130		27135	3	4f75d6s6p(9F3)	-64.3	*
3686.422		27118	2	4f75d6s6p(9F2)	-108.6	*
3759.980		26588	2	4f85d6s(9G2)	-120.6	*
3787.150		26397	2	4f75d6s6p(5D2)	-67.2	
3935.385	3	25403	3	4f75d6s6p(7D3)	-132.8	*
3943.236	6	25352	1	4f75d6s6p(7D1)	-79.1	
3945.541	4	25337	2	4f75d6s6p(7D2)	-92	
3958.680	4	25253	3	4f75d6s6p(7D3)	-86.8	*
3972.706	9	25164	2	4f75d26p(11G2)	-129.6	*
3987.835	10	25069	1	4f75d26p(11G1)	-142.8	
4045.009	15	24714	3	4f75d6s6p(9D3)	-105.5	*
4054.724	13	24655	2	4f75d6s6p(9D2)	-103.8	*
4087.325	10	24458	2	4f75d6s6p(7P2)	-60.6	
4274.167	16	23389	3	4f75d6s6p(9F3)	-112.3	*
4306.340	18	23211	2	4f75d6s6p(9F2)	-112.7	*
4327.125	14	23103	1	4f75d26p(11G1)	-117.3	
4430.630	15	22563	3	4f75d6s6p(9D3)	-77.4	*
4476.116	16	22334	2	4f75d6s6p(9D2)	-76.5	*
4573.809		21857	3	4f75d6s6p(9P3)	-62	
4640.543		21543	3	4f75d6s6p(7F3)	-78.7	*

표 1. 기저준위에서 출발하는 자외선 파장의 전이선

제 4 절 가돌리늄의 분광 장치개발

가돌리늄의 광이온화를 관측하기 위해서는 중성 원자를 발생시켜야 한다. 중성 원자를 발생시키는 방법으로는 Hollow cathode 램프에서의 방전을 이용하는 방법과 고진공 환경에서 전기로(oven)를 사용하여 가열 시키는 방법, 전자총을 사용하여 금속원소에 국부적으로 전자빔을 집속하여 가열하는 방법 등이 있다. 전자총을 사용하는 방법은 수십 kW에서 수백 kW의 출력을 가진 전자총을 사용하여 대용량의 중성 원자 빔을 발생시킬 수가 있으므로 공장 규모의 대

량 동위원소 생산 장치에 유리하다. 소량의 원자증기를 발생시키는 데는 전기로를 사용하는 방법이 간단한 구조를 가져서 유용하다. Hollow cathode를 이용하는 방법은 가장 간단하다. 대상 원소를 방전 과정에서 발생되게 하므로 별도의 진공 장치가 없이도 상당한 밀도의 원자 증기를 발생시킬 수가 있다. 그러나 방전을 유지하기 위한 버퍼(buffer) 가스를 사용하므로 충돌에 의한 스펙트럼의 확대가 생기는 것이 가장 큰 문제이다. 본 연구에서는 hollow cathode 방법과 전기로를 이용하는 방법을 모두 제작하여 사용하였다.

증기 상태의 중성원자는 레이저에 의하여 여러 차례의 여기과정을 거친 다음에 이온화 된다. 이 이온을 검출하는 방법은 전극에 전압을 걸어서 흐르는 전류를 관측하는 방법을 사용하거나 전자 증폭기를 이용하여 검출한다. 전극을 사용하는 경우에는 버퍼 가스가 있어도 무관하나 전자 증폭기를 사용하면 10^{-6} Torr 정도의 저진공 상태를 만들어야 한다. 이를 위하여 다음 그림과 같은 진공 용기를 제작하였다.

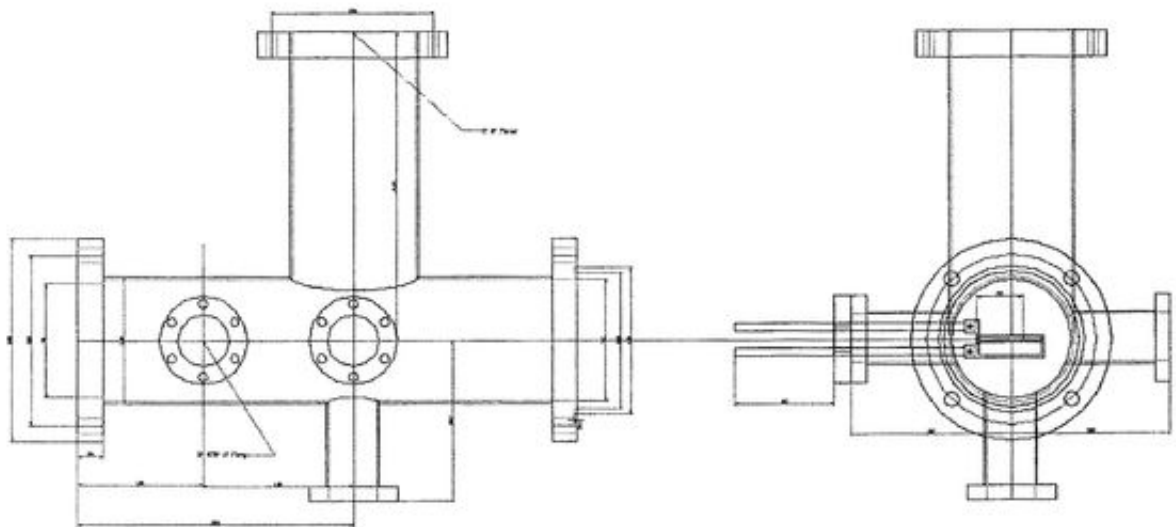


그림 45 Gd 이온화 실험용 진공 장치

진공 상태를 유도하기 위하여 로터리 펌프에 의하여 펌핑이 되는 3" 내경의 확산 펌프(diffusion pump)를 사용하였다. 진공 상태는 penning 게이지(gauge)를 사용하여 측정하였다. 제작된 진공 용기는 약 2시간 정도 펌핑한 후에 3×10^{-6} Torr에 도달하였다. 진공 용기의 6"

팔(port)은 이온 검출기가 부착되는 곳이다. 다음 사진은 제작된 진공 용기를 나타낸다.

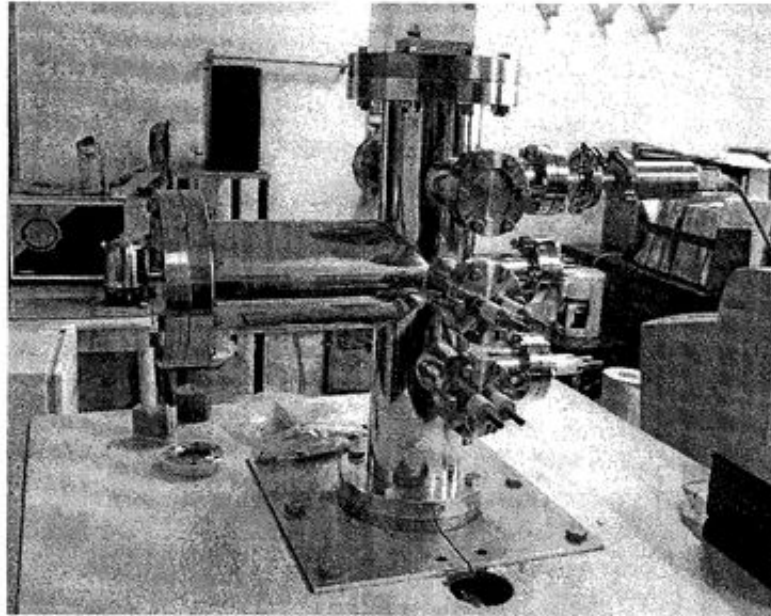


그림 46 제작된 고진공 용기의 사진

이온을 가속시키는 전극은 비행시간(time-of-flight) 이온 질량 측정기로 사용하기 위하여 추출판과 가속판이 연속적으로 결합되어 있으며, 최적 거리를 계산하여 제작하였다. 아래에 이온 추출 전극의 사진을 나타내었다.

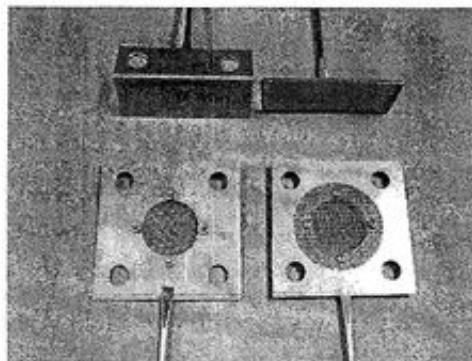


그림 47 이온 추출 전극의 사진

전극에 의하여 추출된 이온은 다음의 사진과 같은 MCP(micro channel plate)에 의하여 신호가 백만배 이상 증폭되어 검출된다.

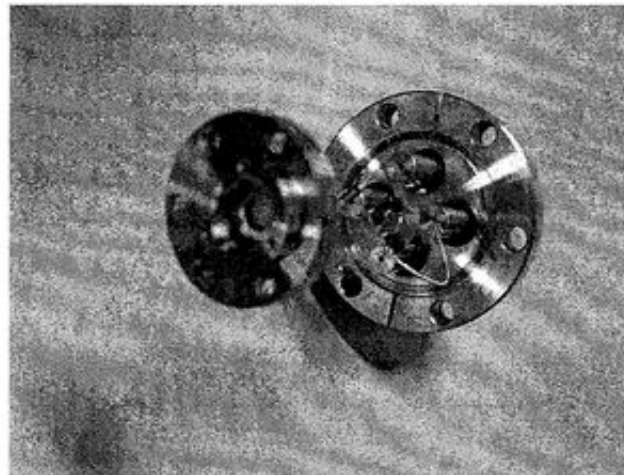
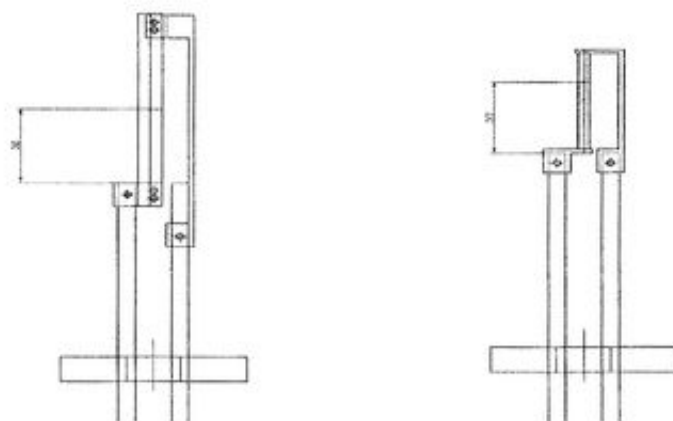


그림 48 이온검출장치의 사진

Hollow cathode lamp는 Cathodeon 사의 관통형(see-through) 모델을 사용하였다. 이 램프에 30 mA의 전류를 흘렸다. 소형 전기로를 이용하는 원자 발생장치도 위의 그림과 같이 2가지를 만들었다. 위 그림의 금속 전기로는 탄탈륨 재질로 이루어져 있다. 이 전기로에 전류를 흘리면 저항에 의하여 고온으로 상승한다.



(a) 금속 전기로

(b) 카본 전기로

그림 49 전기로를 사용하는 원자증기 발생장치

전원장치는 Hewlett Packard사의 HP5115A를 사용하였으며, 최대 20V에서 50 암페어의

전류를 흘릴 수 있다. 가돌리늄은 금속과 반응하여 부식현상을 일으키는 작용이 있다고 알려져 원자흡광분광장치에 사용하는 카본전기로도 시험하여 보았다. 이 전기로는 현재 Mainz 대학에서 사용하는 것과 동일한 것이다. 아래에 진공 용기에 장착된 전기로의 사진을 나타냈다.

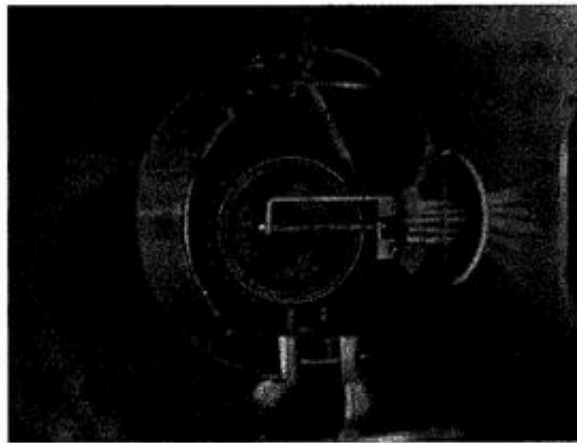


그림 50 진공용기에 장착된 전기로의 사진

탄탈륨의 경우 용융된 가돌리늄 금속이 전기로 표면에 용착되어서 표면의 부식을 직접 관찰할 수는 없었다. 카본 전기로는 시료를 보트처럼 담아서 감싸고 있다. 표면의 한곳에만 지름 1 mm인 구멍이 뚫어져 있어 원자증기가 발산되어 나온다. 카본전기로는 지름 5 mm의 튜브에 3mm 나사 탭이 나와 있어 전극에 고정된다. 중심 위치에 지름 1 mm의 구멍이 가공되어 있어 튜브 내부의 시료가 가열되면 원자 증기가 나온다. 카본의 경우 저항이 탄탈륨 전기로에 비하여 저항이 10배 정도 커서 전류를 적게 흘려도 된다.

제 5 절 가돌리늄의 동위원소 선택여기 실험

가돌리늄의 선택적 광이온화를 확인하기 위하여 먼저 실험 장치가 간단한 Hollow cathode lamp에서 실험을 하였다. 램프 안에서 원자의 전이선은 도플러(Doppler) 선포확대가 크게 생기므로 여러 동위원소의 전이선이 겹쳐서 구분이 곤란하다. 다음 그림은 UV 다이오드 레이저를 hollow cathode lamp를 통과시킨 다음, 파장을 주사하면서 파장에 따른 흡수도를 측정한 결과이다. 스펙트럼을 보면 흡수 피크가 어느 곳인지 구분이 힘들 정도로 동위원소 선택도가 떨어진다.

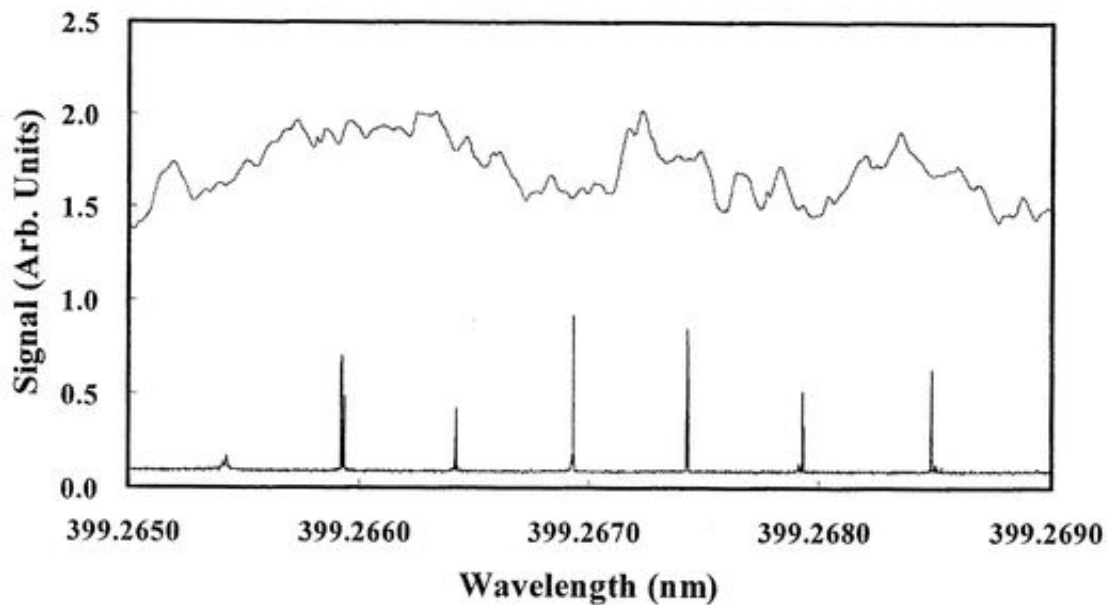


그림 51 Hollow cathode lamp에 UV 다이오드 레이저를 통과시킨 다음 파장을 주사하면서 측정한 흡수 스펙트럼.

실험에서 사용한 레이저는 다음의 가돌리늄 전이선에 파장을 맞추었다.

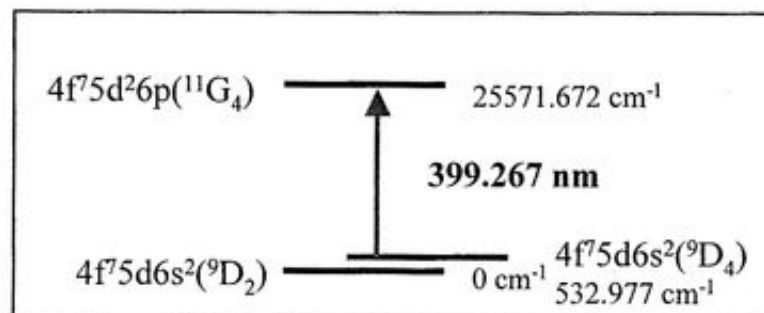


그림 52 공명 흡수 연구에 사용된 전이선

동위원소에 의한 신호를 구분하여야 선택적 광이온화가 가능하다. 이를 위하여 도플러 프리 포화 분광법을 시도하였다. 레이저를 둘로 나누어서 서로 반대로 보낸다. 두 레이저빔 중에서 한쪽 빔은 초핑(chopping)을 하여서 레이저가 규칙적으로 켜짐(on)과 꺼짐(off) 상태를 반복하도록 한다. 레이저가 공명 파장이 아닌 경우 원자가 도플러 선폭 확대를 하므로 동일한 원자에 조사되는 두 레이저는 진행 방향에 따라서 동시에 적색 편이와 청색편이를 느끼게 된다.

따라서 동일한 원자에 공명 전이 효과를 줄 수가 없다. 이 경우 레이저가 정지한 원자의 공명 주파수에서 벗어나면 양 방향으로 진행하는 레이저는 서로 다른 속도성분을 가진 원자들과 반응하므로 초핑을 하더라도 신호가 초핑에 영향을 받지 않는다. 이러한 특성을 이용하여 hollow cathode 램프를 투과하는 레이저를 lock-in 증폭기에 연결하여 초핑 신호와 같이 넣어주면, 초핑신호의 주기에 따라서 변하는 신호만 검출하게 된다. 다음 그림은 이러한 동위원소 이동 측정 장치의 구성도를 보여준다.

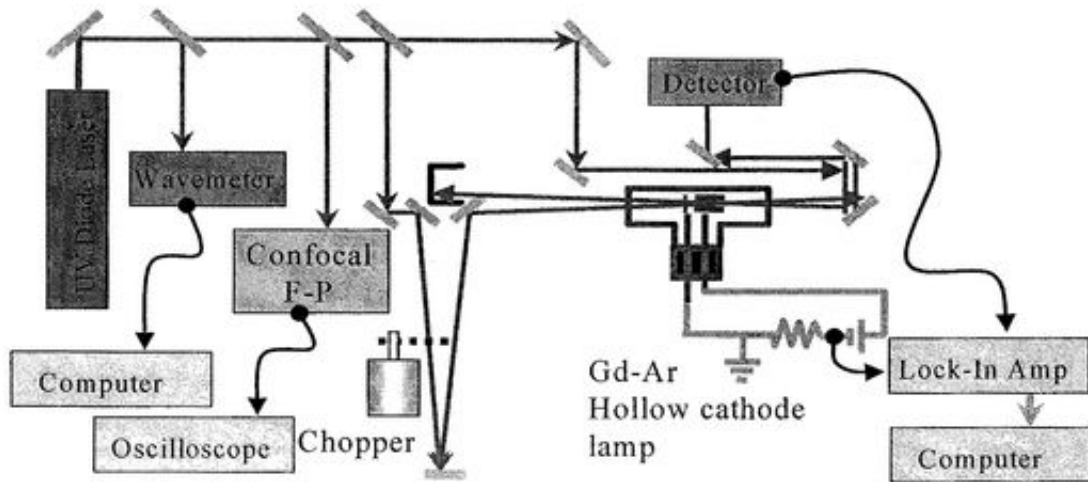


그림 53 Hollow cathode lamp를 이용한 원자의 동위원소 이동 측정 장치 구성도

실험을 수행하기 위하여 구성한 장치의 사진은 다음과 같다.

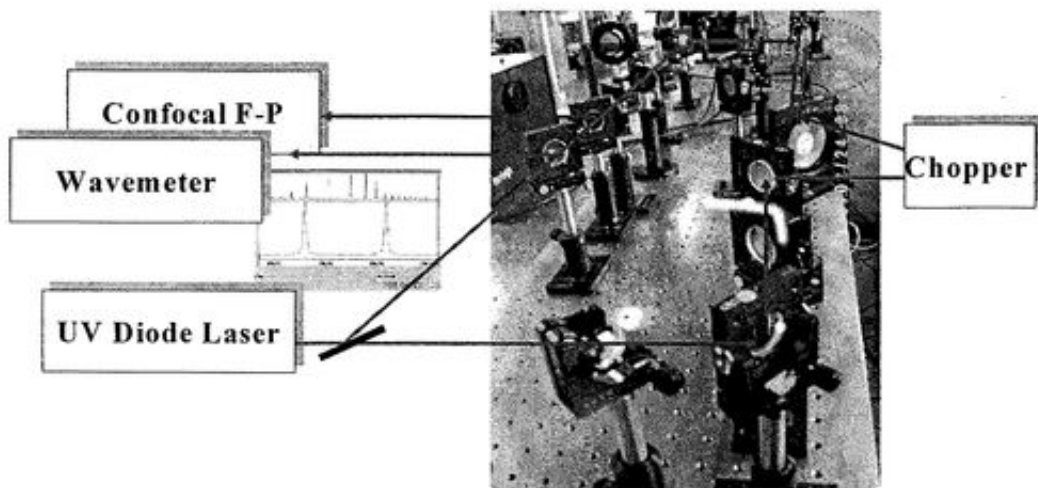


그림 54 동위원소 이동 측정 실험 장치의 사진

실험은 먼저 레이저의 파장을 먼저 파수 측정기를 이용하여 알려진 에너지 준위 근처로

조절하는 것부터 시작한다. 다음 Gd hollow cathode 램프의 전류를 30 mA 이상 증가시킨다. 다이오드 레이저의 출력을 약 3:7의 비로 나누어서 큰 출력은 그대로 보내서 램프를 우회하도록 한다. 우회한 레이저는 아래 사진과 같이 램프를 통과한다.

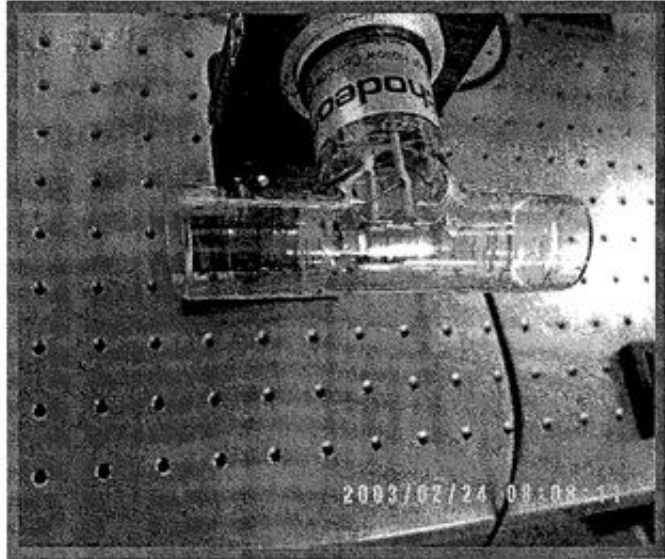


그림 55 가돌리늄 hollow cathode 램프를 통과하는 UV 다이오드 레이저의 모습

작은 출력은 초퍼를 거쳐서 램프를 지나가게 한다. 초퍼는 진동이 있기 때문에 이로 인한 영향을 줄이기 위하여 옆의 별도의 테이블에 고정시켜 두었다. 초퍼는 약 500 Hz의 주파수로 동작한다. 약한 레이저를 공명 주파수 근처에서 주파수를 주사하면서 투과하는 레이저의 출력을 지켜본다. 파장에 따라서 출력이 감소하는 위치가 관측되면 이곳이 바로 공명 파장이다. 이 파장을 기록해둔 다음, 주사 영역을 공명 위치에 일치하도록 조절하면서 좁혀 간다. 또한, 레이저의 일부를 공초점 에탈론으로 보내서 모드의 수를 항상 관측하면서 주사한다. 공초점 에탈론에서의 출력을 광검출기로 검출하여서 파장을 주사하면서 동시에 기록한다. 이 기록으로부터 주사 영역에서 단일모드를 유지한 채 주사가 되는지 확인한다. 그림 51의 하단에 보이는 일련의 피크들은 에탈론을 투과한 광의 세기를 기록한 것이다. 파장을 주사하는 영역에서 모드튕(mode hopping)이 발생하면 피크사이의 간격이 일정하지 못하다. 따라서 이 피크의 기록이 일정하게 기록된 데이터만 취하였다.

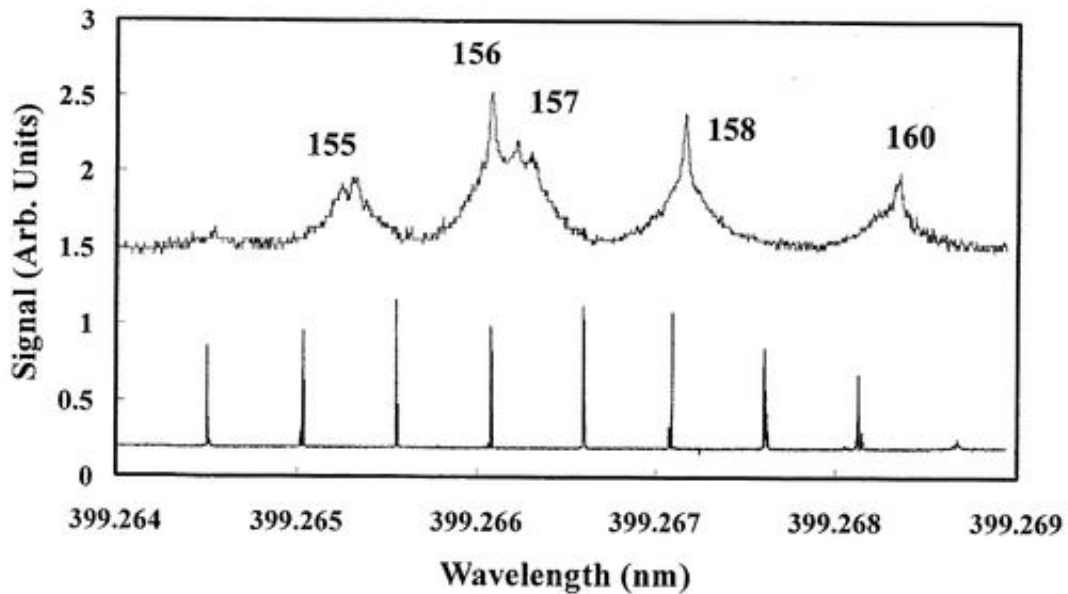


그림 56 가돌리늄의 동위원소에 따른 스펙트럼. 그림에서의 숫자는 가돌리늄의 질량 수를 나타냄

이상의 조건이 만족되면 반대방향에서 오는 두 레이저가 램프의 전후에서 완전히 공간적으로 일치하도록 정렬한다. 두 레이저는 1도 미만의 엇각을 가지고 있어 램프에서 1 meter 정도 진행하면 반대 방향에서 진행되는 레이저를 프리즘의 모서리를 거울로 사용하여 분리할 수가 있다. 분리된 빛은 광검출기로 보내서 강도를 기록한다. 이 상태에서 주파수를 주사하면서 파장에 따른 각 동위원소의 여기율의 차이를 관측한 것이 그림 56이다. 사용한 파장은 그림 52에 표시한 전이선이다. 공명 파장을 가진 레이저를 흡수한 가돌리늄 원자는 기저준위에서 여기가 되며, 여기된 원자는 램프에 같이 봉입되어 있는 완충가스와 충돌하여 이온화된다. 방전이 일어나는 과정에서 완충 가스는 전자에 충돌하여서 여기된 상태에 있으므로 다른 원자와 충돌하면 에너지를 전달한다. 이온화된 원자에서 나오는 전자는 방전전류를 변화시키고 이로 인하여 외부에서 램프와 직렬로 연결된 저항에서 전압강하가 발생한다. 이 전압을 lock-in 증폭기에서 검출하는 것이다.

가돌리늄의 동위원소는 모두 7가지이며, 구성비와 핵스핀은 다음 표2와 같다. 짝수 동위원소 신호는 초미세 구조가 없으므로 신호의 세기는 구성비에 단순 비례한다. 이 값을 참조하여 위 그래프의 각 피크위치에서의 동위원소 질량수를 부여하였다. 질량수 154와 152는 신호가 너무 작아서 잡음과 섞이므로 정확한 위치를 판별하기가 쉽지 않았다. 이 스펙트럼으로부터

측정한 동위원소이동 값은 다음의 표와 같다.

Mass number	152	154	155	156	157	158	160
Nuclear spin (I)	0	0	3/2	0	3/2	0	0
Abundance (%)	0.20	2.18	14.80	20.47	15.65	24.84	21.86

표 2. 가돌리늄의 동위원소 구성비와 핵스핀 값

Mass	Peak (nm)	I.S. (GHz)
160	399.2683	0.0000
158	399.2672	2.2349
156	399.2661	4.2710
157	399.2663	3.9159
	399.2663	3.8624
155	399.2653	5.6922
	399.2652	5.8358

표 3. 측정한 동위원소 이동값과 피크 파장 위치

측정된 동위원소이동 값은 질량수당 약 1 GHz 정도이다. 다이오드 레이저의 선폭이 8 MHz이므로 충분히 특정 동위원소만 구분하여 여기시키는 것이 가능하다 측정 스펙트럼에서 각 동위원소의 선폭은 약 120 MHz이다. 레이저의 선폭인 8 MHz가 아닌 것은 잔여 도플러 선폭 때문이며, 이는 양방향에서 진행하는 레이저가 완전히 일치하지 않기 때문이다. 스펙트럼을 자세히 보면 공명에서 벗어난 위치에서 그리 빠르게 신호가 감소하지 않음을 알 수 있다. 실제로 이것은 120 MHz의 좁은 선폭을 가진 신호에 약 500 MHz의 선폭을 가진 스펙트럼이 겹친 듯이 보이게 한다. 이 것이 생기는 이유는 램프 안에서 원자의 충돌로 인한 선폭확대 효과 때문이며, 편광포화분광법을 사용하면 제거할 수가 있다.

이상에서 측정한 것은 에너지가 533 cm^{-1} 인 준안정준위에서 여기된 원자에 대한 것이다. 다시 기저준위에서 $J=1$ 인 상위준위(에너지= 25069.2 cm^{-1})로 여기된 원자에 대하여 측정하여 보았다. 연구한 준위는 에너지 다이어그램 (diagram)은 다음과 같다.

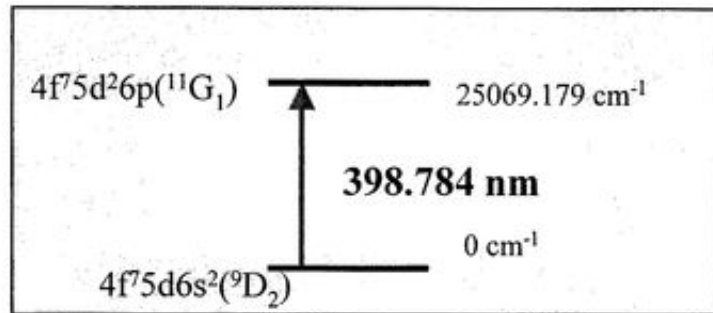


그림 57 기저준위에서 출발하는 다이오드에 의한 여기 경로

실험 방법은 동일하다. 다음 그림은 측정된 결과이다.

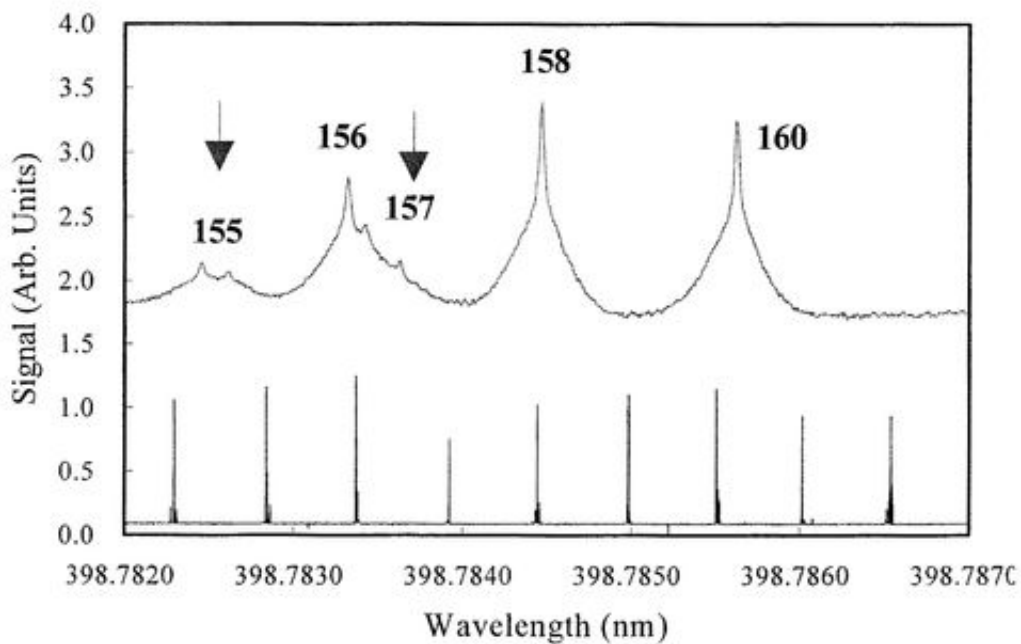


그림 58 기저 준위에서 출발하는 전이선에 대한 동위원소 이동 측정 결과

앞의 결과와 비교하면 신호가 2배 정도 증가하였음을 알 수 있다. 위 그림의 스펙트럼으로부터 측정된 동위원소이동 값도 다음의 표와 같으며 질량수당 약 1 GHz로 앞의 측정 결과와 비슷하다. 위 그림에서 화살표시를 한 위치에 레이저 파장을 고정시키면 열중성자 흡수 단면적이 매우 큰 흡수 동위원소만 여기된다. 여기된 원자는 그림 39와 40에서 보듯, 단일모드 적외선 다이오드에 의하여 다시 여기시키게 된다. 이 과정에서 동위원소의 순도는 더욱 증가한

다. 최종적으로 2차 여기준위에 있는 원자는 선폭이 수 nm으로 넓으나 출력이 kW급인 매우 강한 다이오드 레이저 (파장은 808 nm)를 사용하여 이온 상태로 유도한다. 이온 상태의 가돌리늄은 외부의 전기장에 의하여 전극으로 추출되고 전극에 부착된 홀수동위원소를 화학 처리하여 회수한 다음에 핵연료의 독극물로 사용하게 되는 것이다.

Mass	Peak (nm)	I.S. (GHz)
160	398.7856	0.0000
158	398.7845	2.1819
156	398.7833	4.3383
157	398.7836	3.7542
	398.7834	4.1402
155	398.7826	5.6512
	398.7825	5.9541

표 4. 측정된 동위원소 이동 값과 피크 파장 위치

제 4 장 연구개발 목표 달성도 및 관련 분야에의 기여도

본 연구에서는 자외선 영역의 다이오드 레이저를 이용하여 가돌리늄을 광이온화 시킬 수 있는 이온화 경로를 찾고, 선택적으로 특정 동위원소가 광이온화 됨을 실증하는 것이 최종 목표이다. 이를 위하여 일차년도에는 다이오드 레이저를 3대 개발하고 출력이 5 mW 이상 나오게 하였다. 또한 가돌리늄의 분광선을 분석하여 가능한 전이선들을 연구하였다. 이차년도에는 진공 용기를 비롯하여 램프형 원자발생장치와 저항 가열형 원자화 장치를 만들어서 선택여기 신호를 관측하였으며, 자외선 다이오드를 이용하여 가돌리늄의 동위원소가 선택적으로 여기됨을 보고 동위원소 이동을 측정하였다. 따라서 연구 목표는 계획대로 모두 달성되었으며, 연구 수행 결과 열중성자 흡수 단면적이 매우 큰 가돌리늄의 흡수 동위원소를 자외선 다이오드 레이저를 사용하면 선택적으로 이온화 시킬 수 있음을 보였다. 이러한 연구 내용을 요약하면 다음과 같다.

가돌리늄을 3개의 다이오드 레이저를 이용하여 이온화시키기 위해서는 일차여기에 자외선 다이오드를 사용하여야 한다. 본 연구에서는 자외선 다이오드 레이저를 두 가지 방법을 사용하여 개발하였다. 먼저, 제2고조파 변환용 공진기를 만들어서 단일모드 다이오드 레이저를 입사하여 주파수를 배가하는 방법을 사용하였다. 이를 위하여 먼저 Littrow 형 다이오드 공진기를 개발하였다. 이 방식은 공진기 길이가 짧고 효율이 좋으며, 반사 코팅이 없이도 단일모드 발진이 가능한 장점이 있다. 가돌리늄의 경우, 10 GHz 이하의 파장 영역을 주사하므로, Littrow 방식을 사용하였다. 이 레이저의 제작에는 Mainz 대학의 자문을 받았으며, Mainz 대학에서는 다이오드 레이저와 정준 렌즈가 분리되어 있으나, 우리는 이 부분을 일체형으로 제작하여 안정도를 더욱 높였으며, 구조가 간단하여 제작이 더욱 간편해지게 되었다. 제작된 부품은 오토케드를 이용하여 직접 설계하였으므로, 도면부터 원천적인 기술을 확보하여 차후 상용화의 터전을 준비하게 되었다. 다이오드 레이저의 전류제어회로와 레이저 몸체의 온도 안정화 장치도 직접 제작하였으며, 열전 냉각기를 사용하여 온도 안정화를 0.05 °C로 안정되게 하여 연구 목표를 성공적으로 달성하였다.

이 레이저 공진기 길이를 3 cm 정도로 축소하고, 빔의 높이를 매우 낮추며, 레이저 기판을 TE 냉각기를 이용하여 온도를 안정화시킴으로써 파장 요동이 수 MHz 이하인 매우 안정된 출력을 얻었다. 이 레이저를 보내는 제2고조파 공진기에는 비선형 계수가 매우 큰 $KNbO_3$ 결정을 사용하면 100 mW이하의 저출력의 다이오드 레이저를 사용하여도 10 mW의 고출력을 얻

을 수 있으나, 사용하는 파장이 400 nm 근처이어서 비선형 계수가 작은 LBO 결정을 사용했다. 그 결과 다이오드 레이저의 출력이 수 μW 에 불과하고 불안정하였다. 이 레이저의 출력을 올리기 위해서는 수만 불의 고가인 테이퍼형 증폭기를 사용해야 하는 단점이 있었다. 두 번째 방법은 발진 파장이 UV인 다이오드 레이저를 사용하는 것이다. 제2고조파변환 공진기가 없어도 되는 장점이 있으나, 주파수 변환 영역이 2 nm 이하로 매우 좁다는 단점이 있다.

가돌리늄의 분광선을 조사하여 다이오드 레이저를 사용하여 이온화시킬 수 있는 전이선을 22개 발견하였다. 이 전이선들 중에서 9개는 각운동량의 변화가 $J=2-2-1-0$ 인 경로를 통하여 가돌리늄을 이온화시키는 것으로, 단일모드 레이저가 아니어도 동위원소의 선택적 분리가 가능하다. 또한 동위원소 이동이 매우 큰 전이선 13개를 발견하였으며, 이것들은 $J=2$ 인 준위뿐만 아니라 $J=3$ 인 준위도 동시에 이용이 가능하여 효율의 큰 상승이 가능하게 한다. 이러한 전이선 중에서 2개에 대하여 이온화 경로로 사용하는 것이 가능함을 실증하였다.

가돌리늄 원자의 이온화를 실증하기 위하여 두 가지의 원자화 장치를 개발하였다. 먼저 hollow cathode 램프를 사용하였다. 이것은 방전을 이용하므로 구조가 매우 간단한 장점이 있으나 도플러 선폭확대가 있는 단점이 있다. 이를 극복하기 위하여 도플러 프리 포화흡수 분광법을 사용하였다. 그 결과 가돌리늄의 각 동위원소에 의한 신호를 확인하고 동위원소 이동을 측정하였다. 이 스펙트럼으로부터 다이오드 레이저를 사용하면 홀수 동위원소만 이온화시킬 수 있음을 확인할 수 있었다. 이 방법을 준안정 준위에서 출발하는 다른 전이선에 대해서도 적용하여 보았으며 기저준위에서 출발하는 전이선의 경우 준안정 준위에서 출발하는 전이선에 비하여 신호가 2배 정도 증가하였음을 알 수 있었다. 진공용기에서도 이온신호를 관측하기 위하여 탄소 튜브형 원자화 장치와 탄탈륨 튜브형 원자화 장치를 제작하였다. 탄소 튜브형 원자화 장치가 저항이 커서 고온에 쉽게 도달하였다. 또한, 원자화 장치를 넣고 고온으로 가열하여 원자를 발생시킬 진공장치를 제작하였다. 진공용기에는 MCP형 이온검출장치를 넣었다. 다이오드 레이저와 이온화용 레이저를 동시에 입사하여 이온신호를 관측하였다.

제 5 장 연구개발결과의 활용계획

본 연구에서는 자외선 영역의 파장을 가지는 다이오드 레이저를 제작하고 이를 이용하여 가돌리늄 원자의 동위원소를 선택적으로 여기 시켰다. 이러한 연구의 결과 출력과 파장이 매우 안정되며, 단일모드로 주사할 수 있는 레이저 장치를 설계하고 제어장치를 제작하는 기술을 개발하였다. 이러한 단일모드 레이저는 원자흡광 분광기, 원자의 레이저 냉각 장치, 고분해능 분광 장치, 심자외선 레이저의 파종 레이저 등의 각종 분광기와 분석기의 광원으로 활용되고 있다. 따라서 이러한 분야에서의 활용이 기대된다. 현재 국내에서는 이러한 분야의 연구에서는 외제 레이저 장비를 수입하고 있어서 레이저의 국산화가 이루어진다면 수입 대체의 효과가 있다.

아울러 본 연구에서 밝혀진 광이온화 구도를 이용하여 가돌리늄의 홀수 동위원소를 분리하여 핵연료에 첨가함으로써 원자력 발전소의 운영시간을 증가시킬 수 있다. 가연 독극물인 가돌리늄을 핵연료에 첨가하면 우라늄의 농도를 증가시킬 수가 있어 운영시간이 증가한다. 핵연료의 교체에 많은 경비가 소요되므로 교체사이의 운영시간을 증가시키면 발전 경비의 축소가 기대된다. 현재는 자연 구성비를 가진 가돌리늄을 일부 원자력 발전소에서 사용하고 있으나, 열중성자 흡수 단면적이 큰 홀수 동위원소만 농축하여 핵연료에 첨가한다면 소량의 가돌리늄만 사용하여도 되므로 보다 많은 양의 우라늄 원료를 사용할 수 있게 되고, 핵연료의 균열로 인한 사고위험도를 줄이게 된다. 본 연구에서 개발된 방법을 사용하여 원자력 발전소 연료에 첨가할 정도로 다량의 가돌리늄을 분리하려면 공장 규모의 레이저 장치가 필요하게 된다. 이러한 고출력 장치는 현재 전 세계적으로도 개발되어 있지 않다. 그러나 다이오드 레이저 기술이 나날이 발전하고 있어 조만간 고출력의 레이저 개발이 이루어 질것으로 생각되며 이러한 때, 이 기술의 산업적 활용이 기대된다.

제 6 장 참고문헌

- [1] M. I. K. Santala, H. M. Lauranto, T.T. Kajava, and R. R. E. Salomaa, Resonance Ionization Spectroscopy 1994, AIP Conf. Proc. 329, 237 (1995).
- [2] C. Haynam, B. Komiskey, J. Conway, J. Eggert, J. Glaser, J. Paisner, R. Solarz, and E. Worden, SPIE Vol. 1859, 24 (1993)
- [3] B. A. Bushaw and B. D. Cannon, Spectro. Chim. Acta B, 52, 1839 (1997)
- [4] T. W. Haensch, Appl. Opt. Vol. 11, 895 (1972).
- [5] M. Miyabe and I. Wakaida, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 30, 4193 (1997)
- [6] M. Miyabe and I. Wakaida, Z. Phys. D 39, 181 (1997); J. Mar다 and H. J. Stahnke, Z. Physik A, 298, 81 (1980)
- [7] A. Nishimura, H. Ohba, K. Ogura, and TY. Shibata, Opt. Comm., 110, 561 (1994)
- [8] M. Miyabe, I. Wakaida, and T. Arisawa, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 29, 4073 (1996)
- [9] K. Blaum, B. A. Bushaw, S. DFiel, Ch. Geppert, A. Kuschnick, P. Muller, W. Nortershauser, A. Schmitt, and K. Wendt, Eur. Phys. J. D11, 37 (2000)
- [10] W. Noertershaeuser, B. A. Bushaw, and K. Blaum, Phys. Rev. A, 62, 1050 (2000)
- [11] S. A. Ahmad, G. D. Saksena and A. Venugopalan, Physica, 81C, 366 (1976); S. A. Ahmad, A. Venugopalan, and G. D. Saksena, Spectroschimica Acta, 34B, 221 (1979);
- [12] S. A. Ahmad, A. Venugopalan, and G. D. Saksena, Spectroschimica Acta, 37B, 637 (1982); S. M. Afzal, A. Venugopalan, A. Ahmad, Z. Phys. D 41, 95 (1997)
- [13] E. Le Guyadec, J. Ravoire, R. Botter, F. Lambert, and A. Petit, Opt. Comm., 76, 34 (1990)