

2002 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

개량형 가돌리니아 가연성 독물질 재료 제조용
레이저 분광기술 연구

Study on the Laser Spectroscopic Technique for the
Production of Improved Gadolinia Burnable Poison Material

정의창, 고광훈, 김택수, 노시표, 김철중

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

원자로 장주기 동작을 위해서는 높은 초기 농축도와 많은 양의 연료를 사용하는 고연소도 핵연료를 사용해야 한다. 따라서 초기의 잉여 반응도를 제어하기 위한 적절한 가연성 독물질의 개발이 필요하다. 가돌리늄 원자의 핵종에서 중성자 흡수 단면적이 큰 핵종의 성분비를 증가시킨 개량형 가돌리니아 제조에 필요한 기술을 소개한다. 금속증기 발생 기술, 레이저 분광기술, 이온 추출기술 등으로 구분되는 여러 기술 중에서 특히 레이저 분광기술에 대한 내용을 중점적으로 정리하였다.

Abstract

A longer cycle operation of a nuclear fuel is one of the ways to promote the economy of a nuclear power plant. For this purpose, high burn up fuel which has initial higher enrichment is required with higher loading of fuel. Therefore, adequate burnable poison material must be used to control peak fuel pin power. Technologies to manufacture the improved gadolinia burnable poison, which contains higher abundance of the preferred thermal neutron absorbers, are composed of metal vapor generation-, lasers spectroscopic-, and photoion extraction technology. In this paper, laser spectroscopic technology with a small scale metal vapor generator is reported.

1. 서 론

이 연구는 고연소도 핵연료에 적용이 가능한 개량형 가돌리니아(Gd_2O_3) 가연성 독물질 제조기술 개발을 목표로 한다. 가돌리늄(Gd) 원소의 Gd-155, Gd-157 핵종은 열중성자 흡수 단면적이 매우 크기 때문에 원자로의 가연성 흡수체로 사용되고 있다. 가돌리늄 금속은 산화물인 가돌리니아 형태로 이산화우라늄(UO_2) 분말과 혼합되어 가연성 독물질로 핵연료에 사용되며, 연소 초기에는 중성자 흡수체 역할을 하다가 Gd-155, Gd-157 핵종이 중성자 흡수 반응을 거쳐 Gd-156, Gd-158로 변환된 후에는 함께 섞은 이산화우라늄이 핵연료의 역할을 한다.

Gd-155, Gd-157 핵종이 자연성분비인 30.45% 보다 두 배 이상 함유된 가돌리니아를 '개량형 가돌리니아' 라고 한다. 장주기 운전용 고연소도 핵연료에 개량형 가돌리니아를 혼합하여 사용할 경우에는 크게 두 가지 효과를 기대할 수 있다. 첫째, 원자로의 잉여 반응도를 제어하기 위해 충분한 양의 가돌리니아가 핵연료에 혼합되어야 하는데, 가돌리니아를 섞은 핵연료는 열전도도가 떨어지는 단점이 있으므로 많은 양의 가돌리니아를 핵연료에 섞어 사용하는 데에 제약이 있다. 그러므로 잉여 반응도 제어에 필요한 Gd-155, Gd-157의 두 핵종 성분이 많이 함유된 개량형 가돌리니아를 사용할 경우, 열전도도를 유지하면서도 많은 양의 가돌리니아를 포함한 것과 동일한 효과를 얻는 것이 가능하다 [1]. 둘째, 연소 말기에 Gd-154, Gd-156의 핵종이 중성자를 흡수하여 Gd-155, Gd-157로 변환될 경우에 발생하는 기생 흡수(parasitic absorption) 현상 때문에 반응도가 떨어지는 잔존 가연성 독 반응(residual burnable poison reactivity)을 방지할 수가 있다 [2].

개량형 가돌리니아 제조에 필요한 기술은 금속증기 발생기술, 레이저 분광기술, 광이온 추출기술로 크게 구분된다. 이 논문에서는 전자빔으로 가열되어 발생된 가돌리늄 원자증기를 광이온으로 만드는 레이저 분광기술에 대해 중점적으로 설명한다. 가돌리늄 금속을 전자빔으로 녹여 원자증기를 발생시키고, 원자의 에너지 준위에 일치하는 파장의 레이저 빔을 입사시켜 중성원자를 이온으로 만든 후, 이온을 전극으로 추출하는 과정이 소개된다. 원자증기의 특성을 측정하는 연속발진(Continuous Wave, CW) 레이저 분광기술, 중성원자를 광이온으로 만드는 펄스 레이저 분광기술, 측정된 양에서 전체 시스템의 효율을 평가하는 방법 등에 관해 설명한다.

2. 실험장치

원자증기 발생장치로는 사진 1(a)에 보인 상용의 15 kW급 출력의 전자총(Airco Temescal Co., model SFIH-270-3)을 사용하였다. 7-10 kW 출력의 전자빔으로 시간당 약 220 g의 Gd 금속을 증발시켜 원자증기로 만들 수 있다. 사진 1(b)는 증발시키고 남은 Gd 금속을 보이고 있다. 10 kW 이상의 출력을 사용할 경우에는 금속덩어리가 불꽃 형태로 튀어 오르는 spattering 현상이 발생하고, 시료의 표면이 사진 1(b)에 보인 것과 같이 균일

하게 녹지 않고 부분적으로 도랑(trench)이 형성되기 때문에 장시간 동안 균일한 증발을 시킬 수가 없다는 것이 확인되었다.

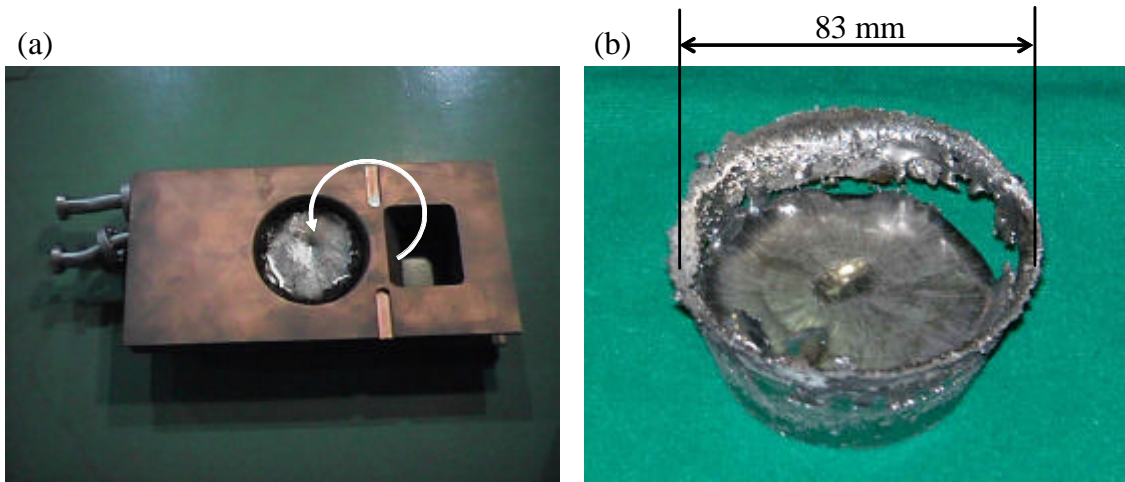


사진 1. (a) 15 kW급 상용 전자총 및 전자빔 제적, (b) 증발 후 꺼낸 Gd 시료.

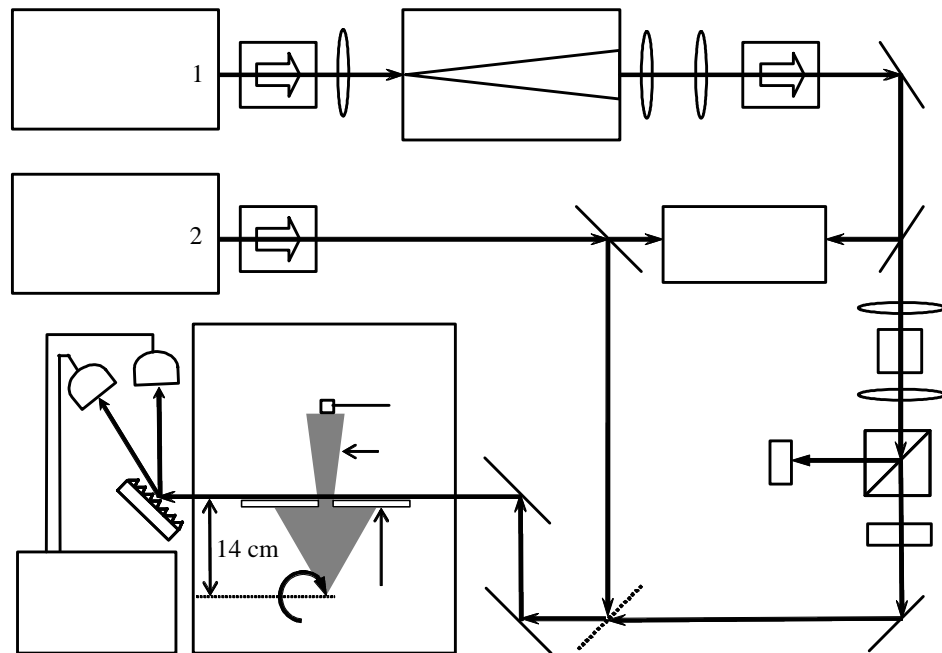


그림 1. 연속발진 반도체 레이저를 이용한 원자증기 준위밀도 측정장치. 근적외선 파장과 자외선 파장을 동시에 사용하며, 반도체 증폭기와 비선형 결정을 사용하여 근적외선 파장을 자외선 파장으로 변화시키는 장치가 포함되어 있다.

그림 1에 연속발진 레이저 분광장치를 그렸다. 원자증기의 흡수스펙트럼을 측정하기 위해 단일 종모드(single-longitudinal mode)의 반도체 레이저가 사용되었다. 측정된 흡수스펙트럼에서 원자증기의 밀도를 산출할 수 있으며 Gd 원자의 여러 준안정 에너지 준위 (metastable energy level)에 대한 흡수스펙트럼을 분석하여 원자증기의 준위밀도를 구할 수 있다.

그림 2에는 광이온을 발생시키기 위한 펄스 레이저 분광장치의 구성을 보였다. 중성원자를 광이온으로 만들기 위해 세 대의 파장가변 색소레이저 시스템이 사용되었다. Gd 원자의 이온화 에너지는 6.15 eV (49603 cm^{-1})이고, 색소레이저의 세 파장은 각각 575.19 nm (2.15 eV), 581.04 nm (2.13 eV), 623.35 nm (1.99 eV)로서 총 6.27 eV 의 에너지에 해당되므로 세 레이저빔을 흡수한 중성원자는 이온이 된다. 펄스 레이저빔의 직경은 각각 9 mm 이고 전반사 거울 등을 사용한 광학계를 구성하여 세 레이저빔을 공간적으로 중첩시켰다. Gd 원자의 핵종 중에서 원하는 핵종을 선택하기 위해 중첩된 레이저빔 중 일부는 시간비행(time of flight) 질량분석기에 입사되어 레이저 파장의 미세 조정용 미세 조정용 질량분석기에 입사되며 나머지 레이저빔은 그림 1에서 보인 진공용기에 입사되어 광이온을 발생시킨다. 각각의 레이저 시스템은 회절발(grating)과 전반사 거울로 구성된 주공진기에서 레이저빔의 파장 및 선폭을 조정한다. 레이저빔 출력을 증가시키기 위해 각 시스템마다 3-4개의 증폭기가 설치되었다.

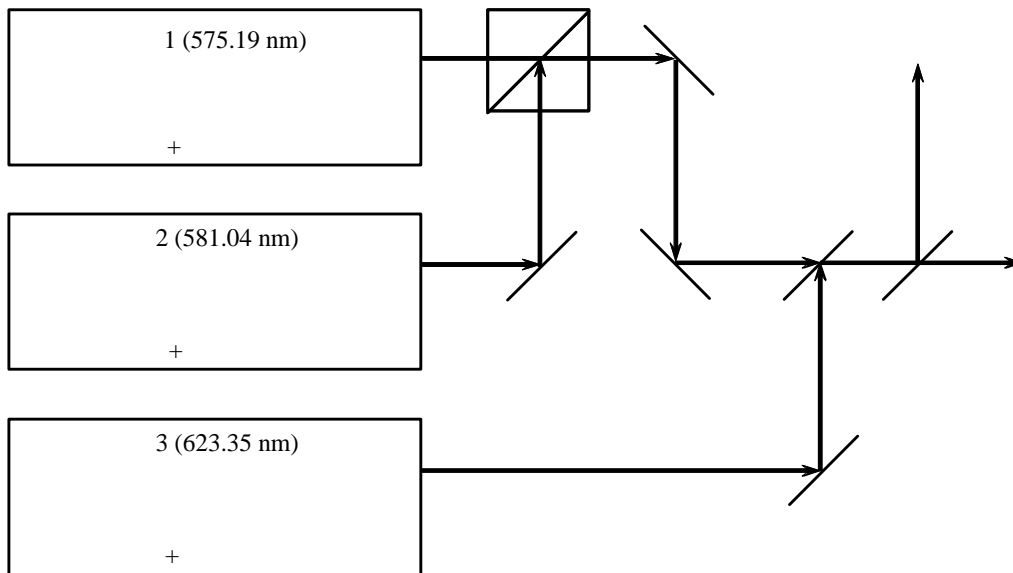


그림 2. 펄스 색소레이저를 이용한 광이온 발생 분광장치. 3-색 3-광자 광이온화 경로를 채택하였다. 공간적으로 중첩된 세 파장의 레이저빔 중에서 10% 정도는 파장 미세 조정용 질량분석기에 입사된다. 나머지 레이저빔은 사진 1에서 보인 전자총이 설치된 증기 발생기에 입사되어 광이온을 발생시키는데 사용된다.

3. 결과 및 논의

3-1. 원자증기 준위밀도 측정

원자증기의 준위밀도는 증기 사용률을 제고하여 이온추출량을 증가시키기 위해 측정되어야 하는 값이다. 준위밀도 측정에 사용된 두 파장을 이용한 실시간 원자흡수 분광계의 구성은 그림 1에 보인 것과 같다. 실험에 사용된 레이저 파장 및 Gd 원자의 에너지 준위, 분광상수를 표 1에 정리하였다. 준위밀도를 측정할 때 반도체 레이저를 광원으로 사용하는 것은 여러 면에서 유리한 점이 있다. 소형의 반도체 레이저는 전력소모가 적어서 이동이 가능한 시스템으로 구성할 수 있을 뿐만 아니라, 단일 종모드 발진이 쉽고 파장을 빠른 속도로 흔들어 줄 수 있기 때문에 신호 대 잡음비를 증가시킬 수 있다. 뿐만 아니라, 표에서 보인 것과 같이 자외선 영역의 전이선은 가시광 또는 적외선 파장 영역의 전이선에 비해 10 배 이상 큰 전이확률을 가지고 있기 때문에 더욱 향상된 신호 대 잡음비를 기대할 수 있다.

표 1. 준위밀도 측정에 이용된 에너지 준위 및 전이확률(gA).

낮은 에너지 준위 (cm^{-1})	높은 에너지 준위(cm^{-1})	파장 (nm)	전이확률 [3] ($\times 10^8/\text{sec.}$)	전이확률 [4] ($\times 10^8/\text{sec.}$)
0	25403	393.54	0.431	0.75
215	25821	390.43	0.398	0.93
215	14669	691.66	-	0.026
533	25940	393.48	1.822	4.8
533	13434	774.93	-	0.0062
999	26615	390.27	0.963	1.5
999	13926	773.35	-	0.018
1719	27316	390.57	1.592	2.7

그림 3에 실험 데이터 중의 예로 393.48 nm 전이선의 원자 흡수스펙트럼을 보였다. 원자증기의 준위밀도는 식 (1), (2)를 이용하여 계산한다.

$$N = \left(\frac{8\pi}{\lambda^2}\right) \cdot \left(\frac{g_1}{g_2 A}\right) \cdot \int a_\nu d\nu \quad (1)$$

$$\alpha_{\nu} = -\ln(I/I_0)/L \quad (2)$$

식 (1), (2)에서 g_1 과 g_2 는 각각 낮은 에너지 준위와 높은 에너지 준위의 통계적 가중치이고, A 는 전이확률, α_{ν} 는 흡수계수, I 는 원자증기를 투과한 빛의 세기, I_0 는 입사되는 빛의 세기, L 은 레이저빔이 증기를 통과하는 길이를 의미한다. 그림 3에서 보인 흡수스펙트럼의 면적은 식 (1)의 적분에 해당되므로 흡수스펙트럼을 분석하여 준위밀도를 구할 수 있다. 표 1에서 정리한 여덟 개의 전이 파장에 대해 여덟 번의 측정을 반복했고, 그 평균값으로 준위밀도를 결정하였다. 그림 3의 흡수스펙트럼에서는 $1.12 \times 10^{12} / \text{cm}^3$ 의 준위밀도가 산출되었다. 흡수스펙트럼에 표시한 문자는 각 핵종을 의미하고 있으며, 2-3% 이내로 자연성분비와 일치하고 있다.

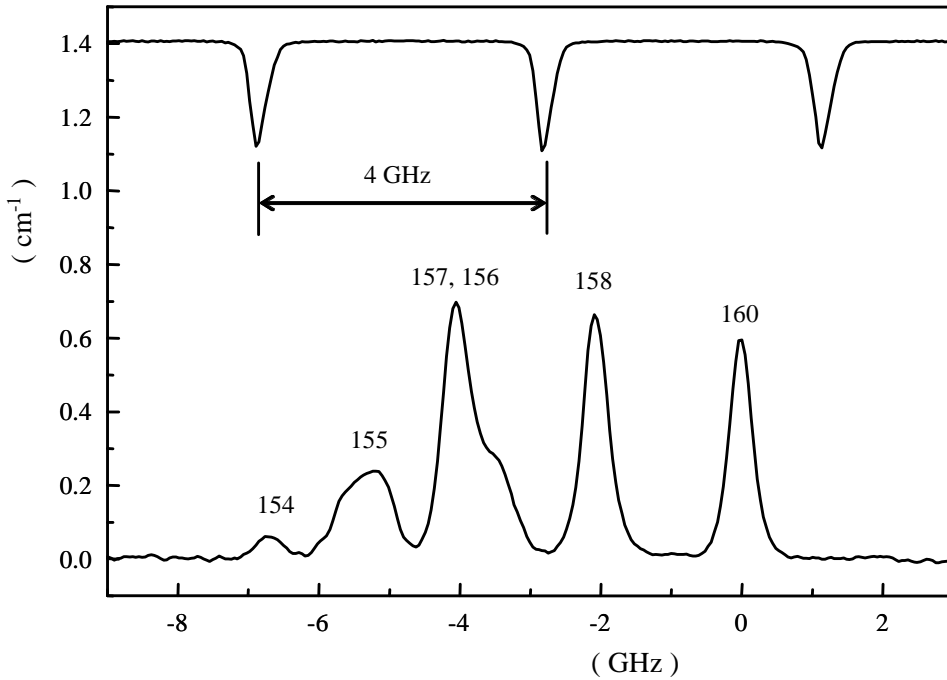


그림 3. 파장 393.48 nm($533-25940 \text{ cm}^{-1}$) 전이선의 흡수스펙트럼. 전자빔 출력은 7 kW, 증발률은 0.22 kg/h인 조건. 반도체 레이저 파장을 80 Hz의 속도로 흔들어 주는 조건에서 원자증기를 통과한 레이저빔 세기의 변화를 오실로스코프로 측정한 결과이다. 그림의 상단 부분은 레이저 파장의 변화 정도를 Fabry-Perot 에탈론으로 측정한 간섭무늬를 뜻한다. 그림의 아래 부분은 흡수스펙트럼이며 그림에 표시된 숫자는 각 핵종의 종류를 의미한다. 각 핵종의 성분비는 2-3% 이내로 자연성분비와 일치하고 있다. 흡수스펙트럼의 면적은 식 (1)의 적분 값에 해당되므로 식 (1), (2)를 이용하여 준위밀도를 산출할 수 있다.

전자빔에 의해 발생된 원자증기가 열적 평형(thermal equilibrium) 상태에 있을 경우에는 각 준위의 밀도는 식 (3) 과 같은 Boltzmann 분포로 표현된다.

$$\frac{N_i}{g_i} = \exp \left(- \frac{E_i}{kT_A} \right) \quad (3)$$

식 (3)에서 N_i 는 준위밀도, g_i 는 통계적 가중치, E_i 는 에너지 준위, k 는 Boltzmann 상수, T_A 는 원자들뜸온도(atomic excitation temperature)이다. $\text{Log} (N_i / g_i)$ 값을 E_i 에 대해 계산하면 그림 4에서 보인 것과 같이 직선이 되고, 직선의 기울기에서 원자들뜸온도를 계산할 수 있다. 그림 4는 표 1의 자외선 파장을 사용하여 측정된 원자들뜸온도를 보인 것이다. 준위분포 측정 결과(채워진 원 부호)는 613 K의 원자들뜸온도를 보이고 있으며, 직선의 기울기에서 발생하는 측정 오차는 10 K 미만이다. 결과적으로 전자빔에 의해 발생된 원자증기 중에서 40%가 바닥 에너지 준위(ground energy level)에 분포되어 있음을 알 수 있다.

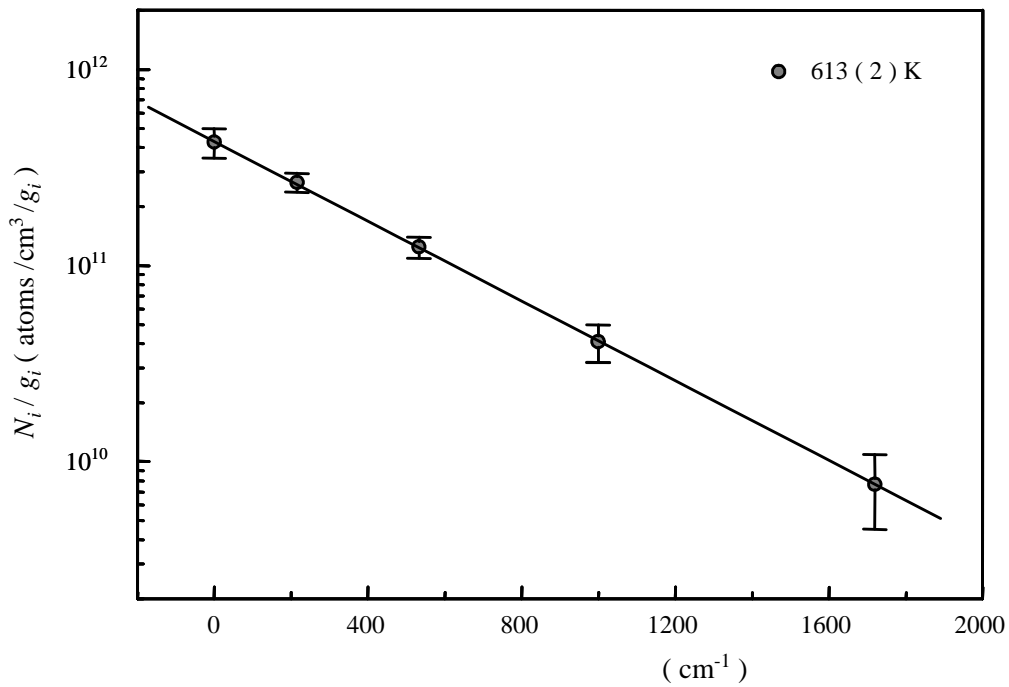


그림 4. 표 1의 자외선 파장 및 네 번째 열의 전이확률 값을 이용하여 준위밀도를 측정한 결과가 원 부호로 표시되었다 (0.22 kg/h 증발률 조건). 직선의 기울기에서 계산된 원자들뜸온도는 613 K이다. 이 온도 조건에서는 증발된 원자의 40%가 바닥 에너지 준위에 분포되어 있다.

3-2. 질량스펙트럼 측정

그림 5(a)는 색소레이저의 파장에 일치하는 Gd 원자의 에너지 준위를 나타낸 것이다. 575.19 nm 파장의 레이저빔은 Gd 원자의 바닥 에너지 준위에 분포한 원자들을 17380.8 cm^{-1} 의 에너지 준위로 들뜨운다. 동시에 입사되는 581.04 nm 파장의 레이저빔은 17380.8 cm^{-1} 에너지 준위로 올라간 원자들을 34586.7 cm^{-1} 의 에너지 준위로 다시 들뜨우고, 이 원자들은 623.35 nm 파장의 레이저빔에 의해 이온이 된다. 그림 5(a)에서 실선으로 표시한 에너지 준위에 레이저 파장이 정확하게 일치한 조건에서는 그림 5(b)에 점선으로 나타낸 것과 같이 Gd 원자의 6개 핵종이 동시에 관측된다. 서로 다른 핵종은 한 에너지 준위에서도 미세한 에너지 차이를 가지고 있으므로 원하는 핵종을 선택하기 위해서는 각 레이저빔의 파장을 정밀하게 변화시켜야 한다. 에너지 준위 그림에서 점선으로 표현한 것과 같이 각 레이저 파장을 미세하게 변화시킨 결과로 그림 5(b)의 실선으로 나타낸 것과 같은 질량스펙트럼을 얻을 수 있다. 이러한 결과는 레이저빔의 미세한 파장 변화뿐만 아니라 레이저빔의 선폭, 출력 등에도 영향을 받기 때문에 레이저빔의 여러 특성이 정밀하게 제어되어야 한다.

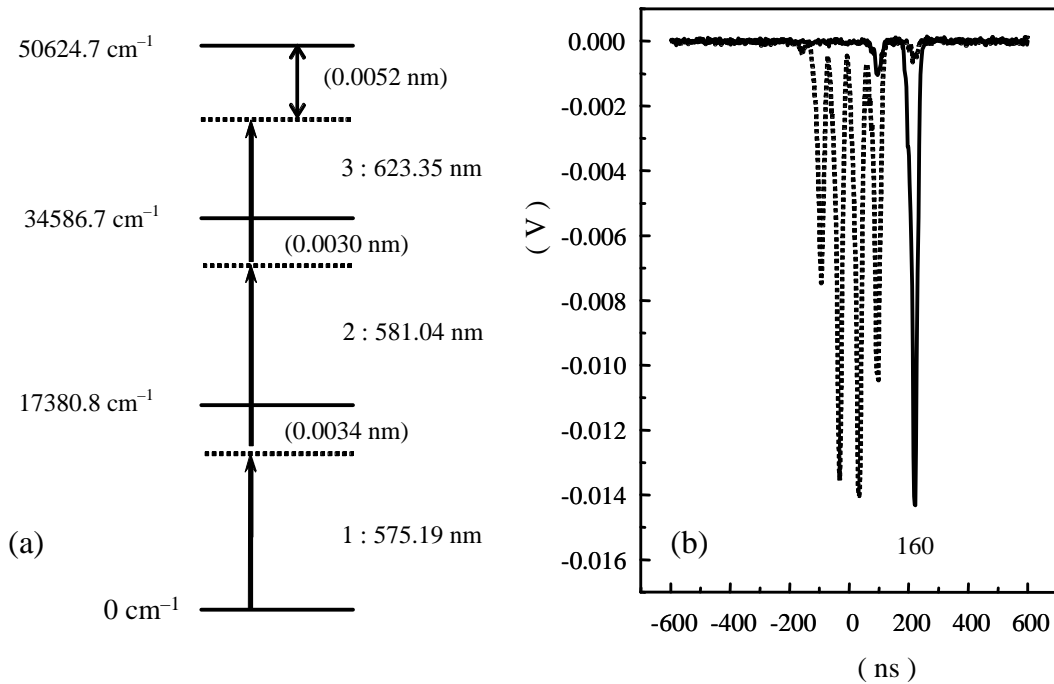


그림 5. 그림 2의 실험장치에서 질량 분석기로 측정한 Gd 원자의 질량스펙트럼. (a) 에너지 준위를 뜻한다. (b) 에너지 준위의 중심(그림 (a)의 실선)에 레이저 파장이 맞은 경우의 스펙트럼이 점선으로 표시되었다. 레이저 파장을 미세 조정하여 원하는 핵종을 선택한 경우(그림 (a)의 점선)의 스펙트럼을 실선으로 나타내었다.

3-3. 광이온 전류 측정

그림 6(a)에 -1 kV의 전압을 가한 추출전극에서 측정된 광이온 신호의 파형을 나타내었다. 색소레이저빔의 선폭은 2.5 GHz, 펄스폭은 25 ns, 반복률은 10 kHz인 조건이다. 반복률이 10 kHz 이므로 100 μ s 간격으로 광이온 신호의 파형이 측정된다. 파형의 면적은 이온의 전하량에 해당된다. 파형에서 계산된 평균 광이온 전류는 약 20 mA이고, Gd 이온의 경우 1 mA의 광이온 전류는 6 mg에 해당된다. 그림 6(b)에서 원 부호는 전자빔 출력에 따라 추출전극에서 측정된 광이온 전류와 기생이온(parasite ion) 전류를 뜻한다. 7 kW의 전자빔 출력에서 레이저빔의 출력 조합비를 변화시킴에 따라 최대 20 mA의 광이온 전류(사각형 부호)와 5 mA의 기생이온 전류가 측정되었다. 그림 5(b)의 점선은 전자빔과 원자증기의 충돌 때문에 발생한 기생이온이 추출전극에 도달하지 않도록 또 다른 전극(제거전극)을 사용하여 포획한 기생이온 전류를 뜻한다.

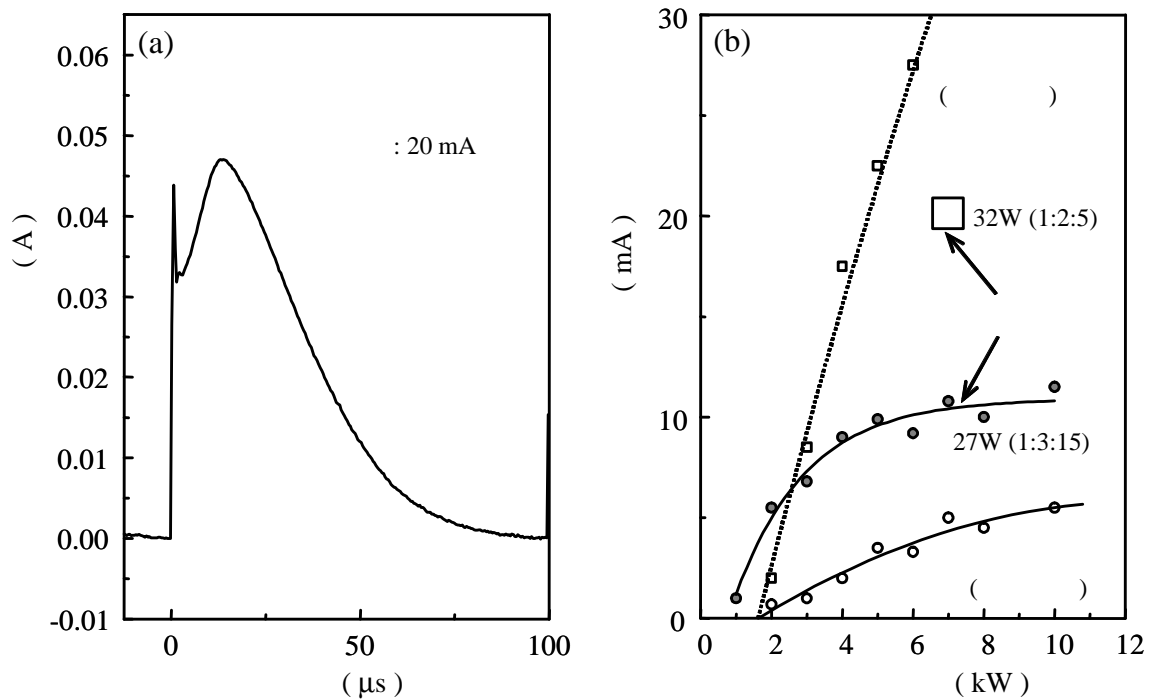


그림 6. 광이온 신호 파형 및 전자빔 출력에 따른 광이온 신호의 크기. (a) 광이온 신호 파형을 나타낸 것으로 파형의 면적이 광이온 전류에 해당한다. 1 mA의 광이온 전류는 6 mg의 Gd 금속을 뜻한다. 레이저 펄스 반복률이 10 kHz이므로 100 μ s 간격으로 광이온 신호가 측정된다. (b) 추출전극에서 측정된 기생이온과 광이온 및 제거전극에서 포획된 기생이온(점선). 그림의 광이온 곡선은 원자증기의 증발곡선과 같은 모양이다. 레이저빔의 출력비를 최적조건으로 맞추었을 때 최대 20 mA의 광이온 전류(그림에서 사각형으로 표시)가 측정된다.

3-4. 시스템 성능 평가

앞에서 설명한 측정 결과를 근거로 이온추출 시스템의 추출용량에 대한 성능을 평가한 결과를 표 2에 정리하였다. 사진 1에 보인 Gd 시료의 경우, 7 kW의 전자빔 출력 조건에서 1시간 동안 220 g이 원자증기로 증발된다. 이 연구에서 대상 핵종으로 선정한 Gd-160은 자연성분비가 21%이므로 결과적으로 46 g의 Gd-160이 증발되는 것이다. 금속표면 위 13 cm 높이에 1 cm 넓이의 슬릿을 설치했고, 금속증기의 공간분포($\cos^4(\theta)$)를 고려했을 때 슬릿을 통과하는 Gd-160은 10%이고 추출장치 내에서 레이저빔이 차지하는 용적률은 24%이다. 그림 4에서 보인 결과는 발생된 원자증기의 40%가 바닥 에너지 준위에 분포되어 있다는 것을 의미하므로 레이저빔과 상호작용 할 수 있는 원자증기의 양은 시간당 0.44 g이다. 바닥준위에 분포된 원자증기의 광이온화률은 30%이고 생성된 이온 중에서 90%가 추출전극에 수집되므로 추출된 광이온의 양은 시간당 0.12 g이다.

한 개의 추출전극에 대해 2-column의 레이저빔을 사용할 수 있고 상호작용 부피를 두 배 증가시킬 수 있음을 감안하면 이 논문에서 소개한 시스템의 추출용량은 시간당 약 0.5 g이 된다. 표 2에 정리한 양 중에서 광이온화률(30%)과 이온 수집률(90%)은 최적조건에 근접한 양이다. 따라서 이온추출 효율을 증가시키기 위해서는 슬릿을 통과하는 증기의 양 및 레이저빔과 원자증기의 상호작용 용적을 증가시켜야 함을 알 수 있다. 이를 위해서는 추출기 수량을 증가시킬 수 있는 기하학적인 설계 능력 및 레이저빔이 원자증기를 여러 번 통과할 수 있도록 적절하게 구성된 다중통과 광학계 개발 등이 요구된다.

표 2. 이온추출 시스템의 성능 평가표.

원자증기 증발률	시간당 220 g	전자빔 출력 : 7 kW
대상 핵종의 양	시간당 46 g	자연 성분비 21%
슬릿을 통과한 양	시간당 4.6 g	10% (슬릿넓이 : 1 cm)
상호작용률	24%	용적률 : 30% 증기진행효과 : 80%
바닥준위에 분포된 양	40%	원자들뜸온도 : 600 K
레이저빔 속의 증기 양	시간당 0.44 g	
광이온화률	30%	
이온 수집률	90%	
추출된 광이온 양	시간당 0.12 g	0.44 (g) x 0.3 x 0.9
추출용량	시간당 0.5 g	0.12 (g) x 2 x 2

4. 결 론

평균출력이 15 kW급인 상용의 횡단 방식 전자총이 설치된 Gd 금속이온 추출장치의 성능을 평가하기 위한 레이저 분광기술에 대해 설명하였다. 단일 종모드의 연속발전 반도체 레이저를 사용하여 Gd 금속 원자증기의 특성을 측정하였다. 레이저빔이 지나가는 위치(금속표면에서 14 cm 높이)에서 바닥 에너지 준위에는 $2.1 \times 10^{12} / \text{cm}^3$ 의 원자가 존재하고, 이는 발생된 원자증기의 40%에 해당하는 양이다. 1 cm 넓이의 슬릿을 통과한 후 레이저빔과 만나는 원자증기의 양은 시간당 0.44 g이다. 32 W의 출력을 가진 세 파장의 펄스 레이저빔에 의해 생성된 광이온 전류는 20 mA로서 시간당 약 0.12 g에 해당된다. 세 파장의 레이저빔 출력비를 분배하는 정도에 따라 광이온 전류가 크게 변화됨이 밝혀졌으며, 20 mA의 광이온 전류는 32 W의 출력을 1 : 2 : 5의 비율로 분배했을 경우에 측정된 결과이다. 기생이온 전류가 5 mA임을 감안하면 대상 핵종의 성분비는 약 68%로서 자연 성분비에 비해 세 배 증가된 양이다. 표 2에 정리된 여러 변수들을 분석한 결과로 이온 추출용량을 제고하기 위해 가장 개선되어야 할 부분은 원자증기와 레이저빔이 상호작용할 수 있는 기하학적인 용적 증가를 위한 추출장치 설계기술 분야임이 밝혀졌다.

5. 참고문헌

- [1] 이정찬 외, KAERI/RR-2155/2000 (2001).
- [2] J.-P. A. Reiner and M. L. Grossbeck, ORNL/TM-2001/238 (2001).
- [3] V. A. Komarovskii, Opt. Spectrosc. **71** (1991) pp. 322.
- [4] C. H. Corliss and W. R. Bozman, NBS Table (1962) pp. 112.