2001 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

연구로 흑연의 안전처리를 위한 Wigner 에너지 특성에 관한 연구

Study on the Wigner Energy for the Safe Treatment of KRR 1&2

김희령, 박승국, 정운수, 백삼태, 정기정
한국원자력연구소

요 약

온도변화와 중성자 조사량에 따른 흑연의 Wigner 에너지 특성이 검토되었다. 중성자 조사량이 증가할수록 흑연에 저장되는 총에너지는 증가하나 저장에너지 증가율은 감소하였다. 10^{18} ~ 10^{20}n/cm^2 order의 중성자 플루언스로 30°C에서 중성자 조사된 Hanford cooled test hole 흑연에 대한 Wigner 에너지 방출값은 200°C 부근에서 최대가 되는 것으로 나타났다. 그리고 흑연에 대한 중성자조사 온도가 높을수록 Wigner 에너지 최대방출값은 감소하였다. 한편, 80°C에서 4×10^{17}n/cm^{2}의 중성자 플루언스로 조사된 흑연의 Heating rate를 1°C /min~100°C /min로 변화시켰을 때 Wigner 에너지 최대방출값은 Heating rate가 증가할수록 감소하는 것으로 나타났다. 이러한 연구결과는 추후 연구로 해체시, Thermal column을 구성하고 있는 흑연의 안전한 처리를 위한 기본적 자료로 이용될 것이다.

Abstract

The characteristic of Wigner energy was reviewed on the change of temperature and neutron irradiation. Total energy stored in the graphite increased as the neutron irradiation increased, but the rate of energy storage decreased. Wigner energy release was maximized near 200°C on the Hanford cooled test hole graphite which was neutron-irradiated to a fluence of order of 10^{18} ~ 10^{20}n/cm^2 at 30°C. And the maximum value of Wigner energy release decreased as neutron irradiation temperature on the graphite was higher. On the other hand, it was shown that the maximum value of Wigner energy release decreased as heating rate increased from 1°C /min to 100°C /min on the neutron-irradiated graphite to a fluence of 4×10^{17}n/cm^2 at 80°C. The present analysis will provide basic information for the safe treatment of the graphite of KRR 1&2(Korea Research Reactors 1&2).

I. 서 론

원자로에서 일어나는 우라늄 핵반응에서, 우라늄이 입사중성자를 맞아 핵분열하면 평균에너지가 2MeV 정도인 고속중성자가 발생한다. 이러한 고속중성자는 0.025eV(2,200m/s)의 열중성자로 Slowing down 된 후 다시 우라늄에 흡수된다.이렇게 함으로서 핵분열 과정은 지속되는데 이때 고속중성자를 감속시켜 열중성자로 만들어 주는 것이 감속재(Moderator)이다. 따라서 감속재는 고속중성자를 많이 흡수하지 않으면서 그것들을 열중성자로 바꾸어 줄 수 있고 고온에서도 사용할 수 있는 물질이어야 한다[1]. 이러한 성질을 만족시키는 물질 중에는 액체로는 경수, 중수, 나트륨 등이 있으며, 고체로는 베릴륨, 흑연 등이 있다[1,2].

이중 흑연은 기계적 성질이 좋고 2,000°C의 고온에서 내열성이 강하며 상대적으로 중성자흡수단면적이 작을 뿐만 아니라 비교적 비용이 저렴하여 대량 구입이 가능하다. 따라서, 흑연은 미국의 물리학자 Enrico Fermi에 의해 만들어진 인류 최초의 원자로 CP-1 이래 감속재로서 널리 이용되어 왔다[2]. 이와 같이 흑연을 감속재로 사용하는 원자로는 인류의 원자력 개발 초기인 1940년대에 군사적 목적으로 원자폭탄의 원료인 플루토늄-239를 생산하기 위해 미국을 주축으로 영국, 프랑스 등에서 건설되었다. 특히, 영국에서는 1940년대 후반 흑연감속공기냉각 방식의 180MW 열출력을 갖는 Windscale Piles 1&2을 건설하여 1950년에 No. 1 Pile의 임계를 달성하였다. 그런데 1957년 소위 “Wigner 에너지 방출”이라고 불리는 중성자조사된 흑연의 저장에너지방출에 의해 Windscale Pile No. 1의 Core가 Overheating되었다. 결과적으로 핵연료가 녹았으며 연료 Can이 타면서 Core의 1/4을 손상시키고 결국은 영국과 유럽을 오염시킨 화재로 이어졌다[3]. 이때 Pile No. 1의 Core에는 약 2,000톤의 흑연이 있었으며 화재시 온도는 섭씨 1,200도 이상 올라갔다. 이러한 Wigner 에너지 방출은 그 크기의 대소에 관계없이 그 존재가 바람직하지 못한 것이다.

우리나라의 경우, TRIGA형 연구로에 있는 흑연 폐기물은 모두 13.7 톤 가량이며 약 50,000여 시간의 운전동안 총 10^{15}n/cm^2 정도의 중성자조사를 받았다[4, 5]. 비록 그 양은 외국의 것과 비교하여 상대적으로 작지만 중성자조사 흑연에 대한 기본적인 지식을 축적함으로서 연구로 흑연에 대한 안전한 처리기술을 확보할 필요가 있다. 따라서, 본 연구에서는 이처럼 화재로까지 이어지게 한 중성자조사된 흑연의 “Wigner 에너지”에 관하여 그 기본적인 특성을 검토하여 추후 연구로 흑연처리에 적용하고자 한다.

II. Wigner 효과 및 Wigner 에너지[6]

흑연이 상대적으로 낮은 온도에서 중성자조사 될 때 팽창되는 현상이 나타나는데

이를 처음 발견한 사람의 이름을 따라 “Wigner effect”라 부른다. 그림 1에 흑연이 중성자조사 될 때 중성자조사량에 따른 팽창을 나타내었다. 그림 1에서 보면 중성자 조사량에 따라 팽창은 선형적으로 증가함을 알 수 있다. 비록 성장의 절대값은 아주 작지만 이 값 정도로도 Reactor channel을 Line 밖으로 충분히 밀어 낼 수 있으며, 이로 인해 핵연료나 실험장비를 장전 또는 제거하는데 문제를 일으킨다.

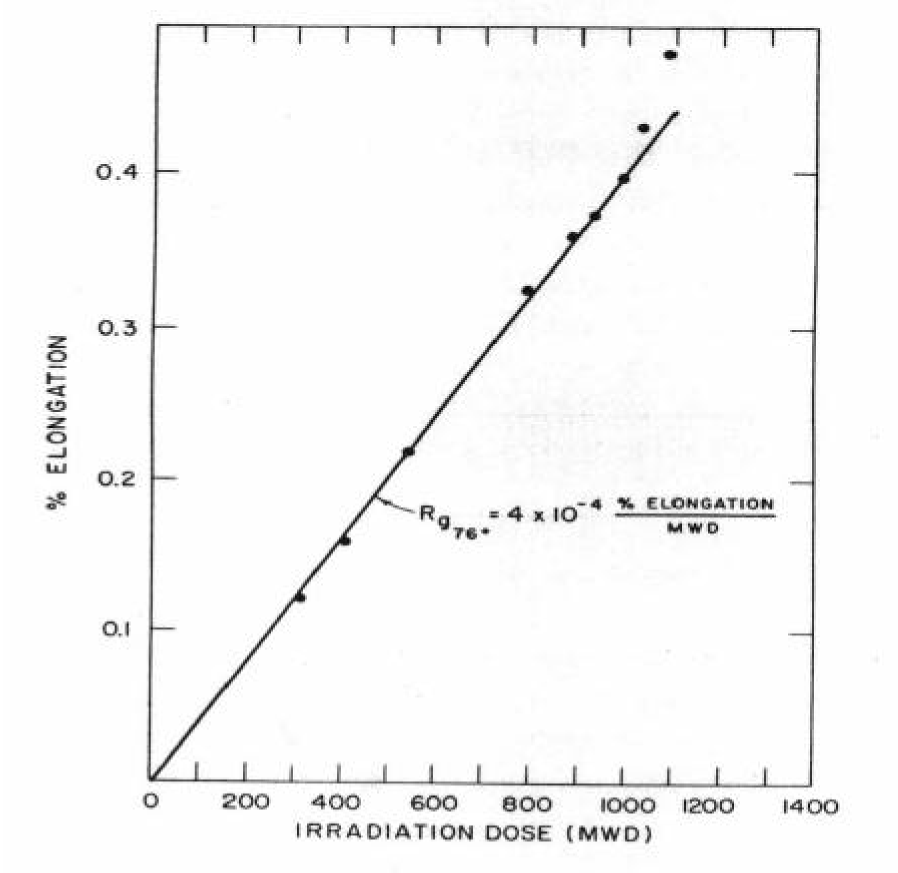

그림 1. 76°C에서 중성자 조사변화에 따른 AGOT 흑연의 성장률
(1MWD=7×10^{16}n/cm^2 for neutrons with energies>0.6 MeV)

흑연의 이러한 방사선적 특성 변화는 중성자조사 온도에 의존하는데 이를 그림 2에 나타내었다. 한편, 우라늄 핵반응시 나오는 고속중성자는 그 에너지를 감속재인 흑연의 탄소원자에게 전달하고 Slowing down 된다. 이중 전달된 에너지의 일부는 열로 방출되고 또 일부는 흑연 결정 격자 내 탄소원자의 Displacement를 야기한다. 즉, 탄소 원자의 격자구조에 Interstitial과 Vacancy가 생성된다. 흑연은 이러한 중성자조사에 의하여 형태가 변화하고 충돌에너지의 일부를 저장(Lock up)한다. 이러한 방식으로 흑연은 중성자조사에 의해 에너지를 저장하게 되는데 이것이 Wigner 에너지이다. 문제는 이러한 저장에너지가 열의 형태로 자발적으로 방출된다는 것이다. Wigner 에너지는 상대적으로 낮은 온도에서 매우 급격하게 방출되는 특성을 갖

고 있다. 200°C에서 방출된 에너지의 양은 흑연의 온도를 현저히 증가시키기에 충분한 것으로 알려져 있다. 따라서 이러한 "Wigner 에너지 방출" 때문에 원자로 Core의 온도가 올라가고 Overheating이 일어나 궁극적으로 화재를 일으킬 수 있는 것이다.

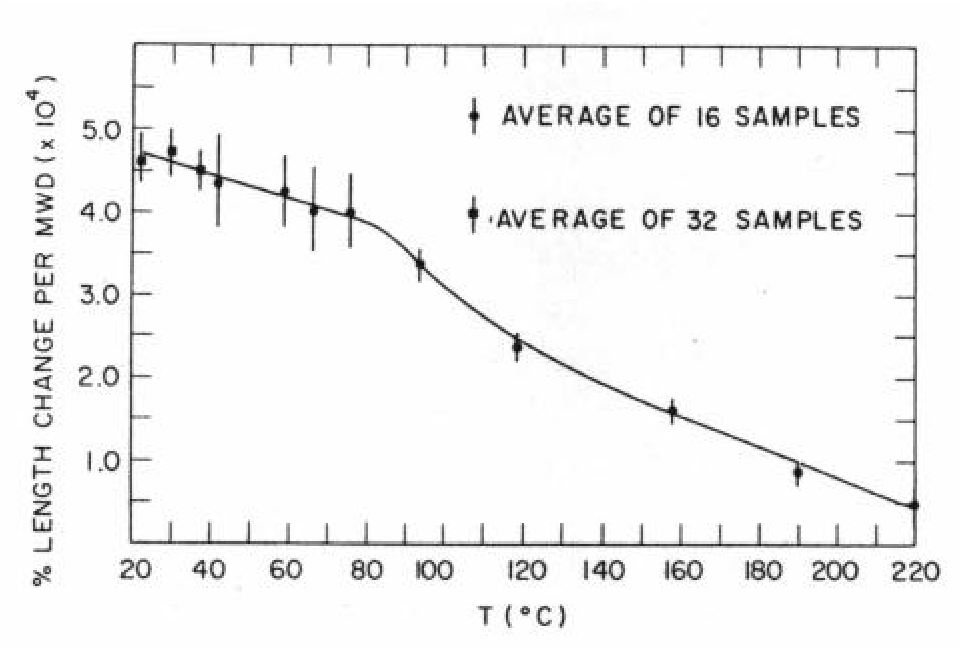

그림 2. 중성자조사 온도 변화에 따른 흑연의 성장율

중성자조사에 의한 Wigner 에너지 방출 특성을 알아보기 위하여 200°C를 유지하는 Furnace 안에 중성자조사되지 않은 흑연과 조사된 흑연을 넣어두었을 경우의 시간에 따른 흑연 온도 변화를 그림 3에 나타내었다. 그림 3에서 보면 중성자조사되지 않은 흑연은 시간에 따라 증가하다가 Furnace 온도인 200°C로 포화된다. 반면 55°C에서 중성자조사된 흑연은 Wigner 에너지 방출로 인한 열때문에 시간이 지남에 따라 Furnace의 온도인 200°C를 넘어 최고 280°C까지 급격히 상승됨을 알 수 있다. 에너지 방출이 완료되어 더 이상의 방출이 없어 지면 궁극적으로 흑연은 Furnace 온도인 200°C로 평형을 이룬다.

따라서, 이러한 Wigner 에너지가 자발적으로 방출되는 것을 막는 것이 중요한데 이때 적절한 방법으로서 도입되는 것이 Annealing에 위한 Wigner 에너지 방출 과정이다. Annealing은 일반적으로 금속을 서서히 가열한 후 식힘으로서 금속의 Stress를 경감시켜 물성을 좋게 하는 기법이다. 흑연의 경우 Thermal annealing 방법은 방사선 Field에 의한 흑연의 급격한 에너지 방출을 막기 위하여 중성자조사 온도 이상으로 흑연을 가열하는 것이다. 원자로내 흑연을 Annealing 하는 방법으로서 흑연의 온도가 Nuclear heating을 통하여 올라가도록 냉각을 차단(Switch off)

하는 행위가 있다. Windscale Pile No.1의 화재는 흑연이 지나치게 Heating 된 후 너무 빨리 에너지가 방출됨으로서 야기된 것이다. 그림 4는 서로 다른 온도에서 흑연의 저장 에너지를 중성자조사량 변화에 따라 나타낸 것이다. 같은 중성자조사량이라 할지라도 상대적으로 낮은 온도에서 중성자조사될 때가 저장에너지의 값이 더 크다. 또한 중성자조사 온도가 높을수록 중성자조사량에 대한 저장에너지의 증가율은 작음을 알 수 있으며, 300°C이상에서는 저장에너지가 더욱 낮아져 측정이 어려움을 보여준다.

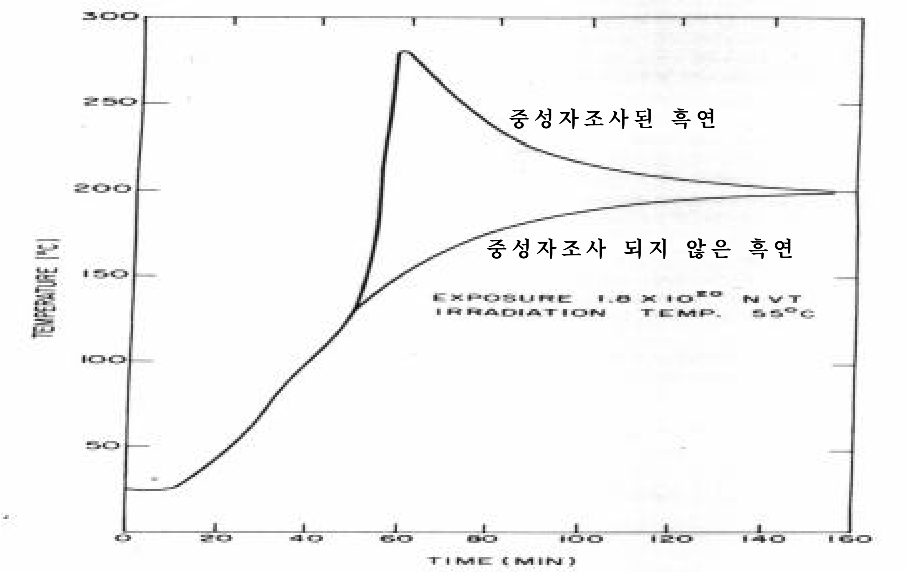

그림 3. 중성자 조사되지 않은 흑연과 조사된 흑연의 저온에서의 에너지 방출

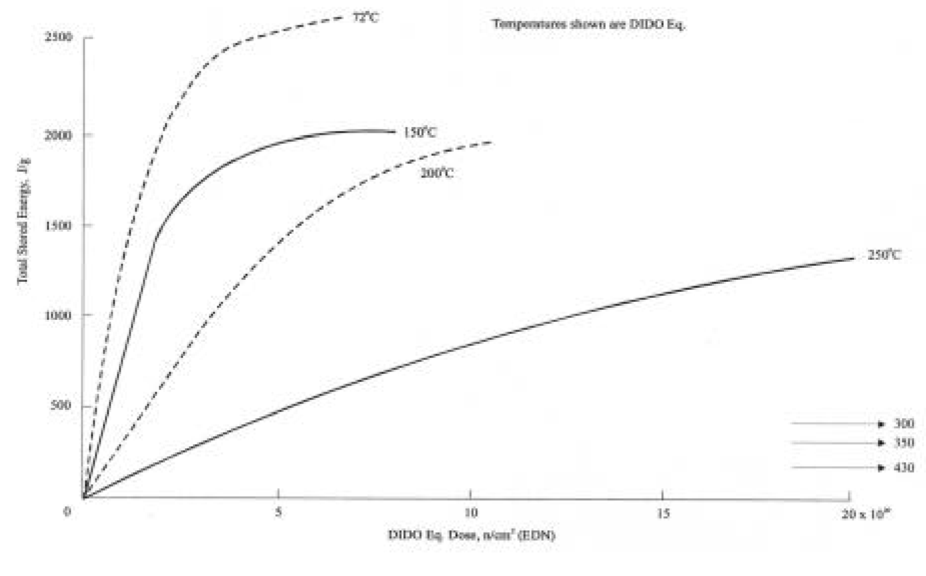

그림 4. 다양한 중성자조사 온도에서 중성자조사량 변화에 따른 흑연의 총저장 에너지

그림 5에는 1962년 Bridge, Kelly 그리고 Gray등이 US Production 원자로들 중의 한 원자로에 있는 Water cooled test hole을 이용하여 30°C에서 8개의 중성자 플루언스 값에 대하여 조사된 흑연의 단위 온도당 에너지방출율을 실험한 결과를 나타내었다. 이 경우 대략 200°C 부근에서 최대값을 보이고 있는데 저장에너지방출율은 급격히 증가하다가 최대값을 지나면서 상대적으로 완만히 감소한다. 특히, Annealing 온도가 300°C 이상에서는 중성자 플루언스가 클수록 저장에너지방출율도 증가함을 알 수 있다.

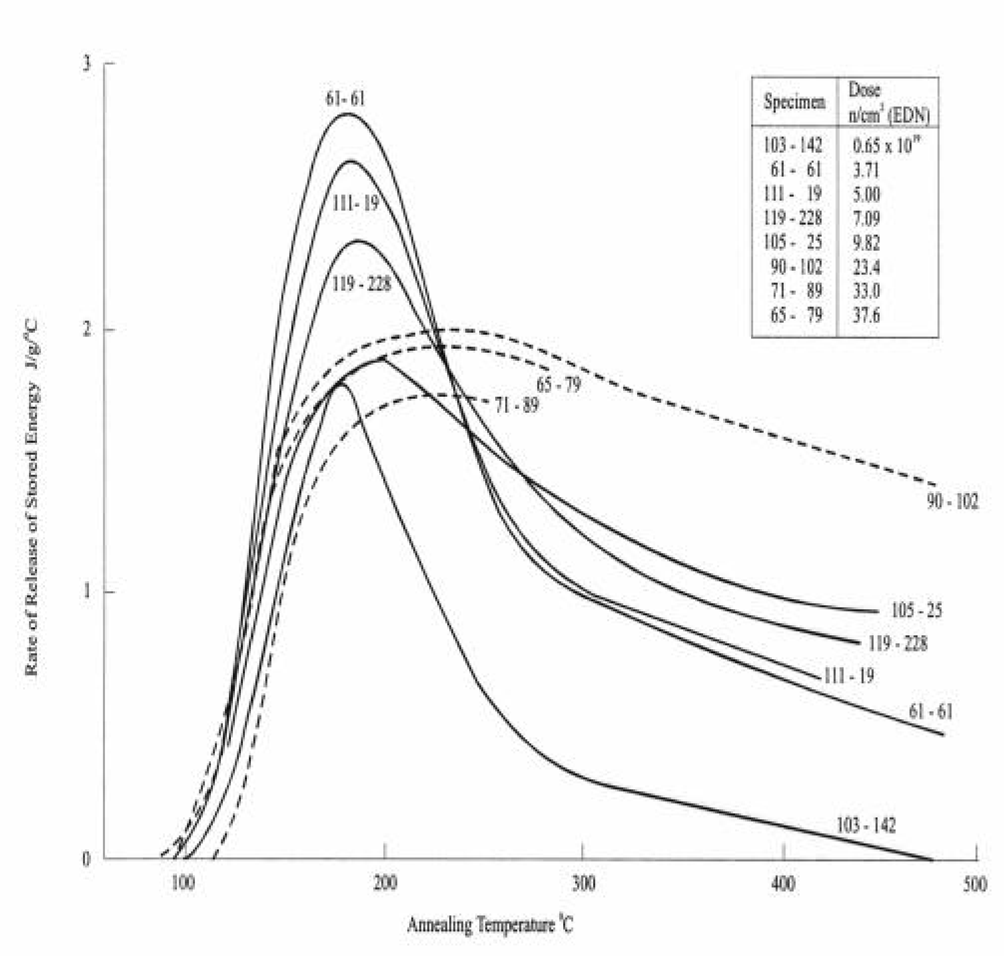

그림 5. 30°C에서 중성자조사된 Hanford cooled test hole 흑연의 저장에너지 방출율

그림 6과 그림 7에 중성자조사 온도가 150, 200, 250, 350 및 390°C일 때의 흑연 저장에너지 방출율을 도시하였다. 중성자조사온도가 증가할수록 저장에너지 방출율은 200°C 부근에서 최대값을 보이던 경향은 사라지고 특정 온도까지 급격히 증가하다가 그 이후부터는 일정한 양상을 보임을 알 수 있다.

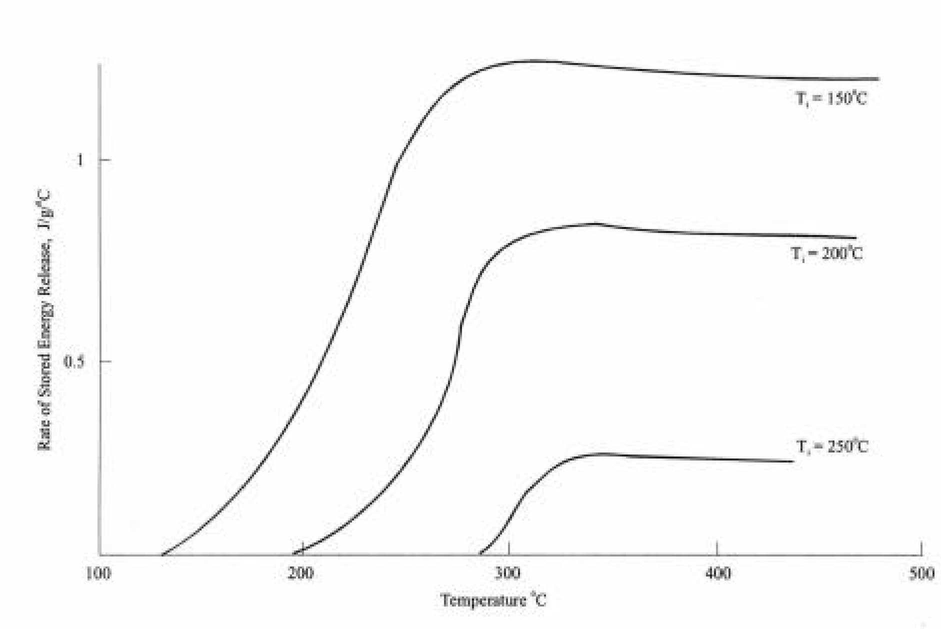

그림 6. 중성자조사 온도가 150°C ~ 250°C일 경우 5×10^{20} n/cm²의 중성자조사 시 저장에너지 방출율

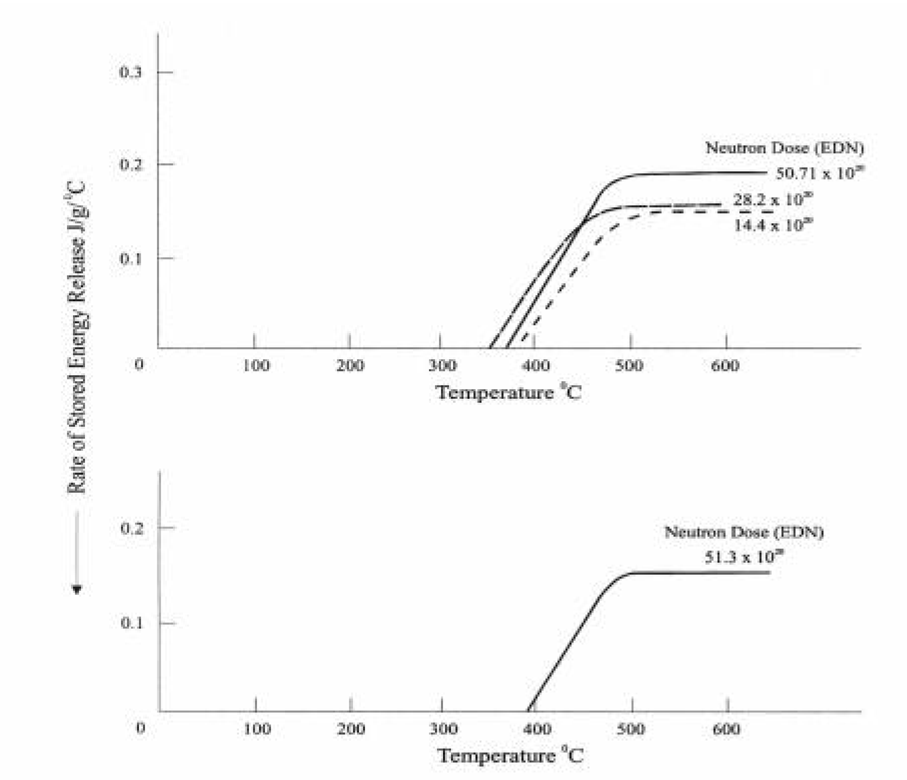

그림 7. 중성자조사 온도가 350°C와 390°C일 경우 저장에너지 방출율

III. Wigner 에너지 특성[7]

앞 절에서 온도 변화에 따른 흑연의 에너지방출 양상에 대한 실험 자료를 검토하였는데 본 절에서는 흑연의 온도변화가 흑연의 저장에너지 방출과 어떠한 관계가 있는지 좀더 수학적으로 살펴보기로 한다. 우선 중성자 조사 흑연의 Defect concentration에 대한 Annealing rate 방정식은 식 (1)의 형태로 주어진다.

$$\frac{dN(t)}{dt} = -nN(t)^g \exp(-E_0 / kT) \tag{1}$$

(단, $T = at$)

이때 식 (1)의 비동차 선형 미분방정식을 풀면 해는 g 의 값이 1일 경우와 그렇지 아니한 경우에 대하여 식(2a)와 식(2b)와 같이 나타난다.

(1) g =1 일 경우

$$N(T) = N_0 \exp[-\frac{nE_0}{ak} H(\frac{kT}{E_0})] \tag{2a}$$

(2) $g \neq 1$ 일 경우

$$N(T) = N_0 [1 + (g-1) N_0^{g-1} \frac{nE_0}{ak} H(\frac{kT}{E_0})]^{1/(1-g)} \tag{2b}$$

여기서,

$$H(x) = \int_0^x \exp(-\frac{1}{y}) dy$$

이다. 우선, 시간 또는 온도에 대한 저장에너지의 방출율은 Defect concentration 변화에 의존하므로 N이 아니라 $\frac{dN}{dt}$ 또는 $\frac{dN}{dT}$ 에 의해 결정된다. 저장에너지 방출율이 최대가 될 때, 즉, $\frac{d^2N}{dT^2}$=0을 만족하는 온도를 $T = T_m$ 이라고 하면 온도 T_m 과 Heating rate a 사이에는 식 (3)의 관계식이 성립한다.

$$\frac{a}{T_m^2} = C \exp(-\frac{E_0}{kT_m}) \tag{3}$$

여기서,

$$C = [g - (g-1)Q]\frac{k}{E_0} n N_0^{g-1},$$
$$Q = \frac{1}{x_m^2}\exp(\frac{1}{x_m^2}) H(x_m),$$
$$x_m = \frac{kT_m}{E_0}$$

이다. 식 (3)에서 Heating rate a와 온도 T_m의 값이 정해지면 E_0와 C의 관계가 도출된다. 또한 g와 n 값들이 C값으로부터 적절히 결정된다. 이때 E_0, C 및 n의 관계는 식 (4)와 같이 나타낼 수 있다.

$$\frac{CE_0}{k}\begin{cases} = n & g = 1 \\ \cong 1.06 n N_0 & g = 2 \\ \cong 1.12 n N_0^2 & g = 3 \\ \ldots\ldots & \ldots\ldots \end{cases} \tag{4}$$

한편, Defect concentration은 Activation 에너지에 따라서 그 분포가 다르게 나타난다. 즉, Annealing 과정이 Activation 에너지에 따라 분포되면 Annealing rate는 식 (5)와 같이 주어진다.

$$\frac{dn(E,t)}{dT} = -\frac{n}{a} n(E,T) N(t)^{g-1} \exp(-E/kT) \tag{5}$$

여기서,

$$N(T) = \int n(E,T)\,dE,$$
$$N_0 = \int n(E,0)\,dE$$

이다. 이때 식 (5)의 해는 식 (6a) 및 식 (6b)와 같이 주어진다.

(1) g =1 일 경우

$$n(E,T) = n(E,0)\exp[-\frac{nE}{ak} H(\frac{kT}{E})] \tag{6a}$$

(2) $g \neq 1$ 일 경우

$$n(E,T) \cong n(E,0)[1 + (g-1) N_0^{g-1}\frac{nE}{ak} H(\frac{kT}{E})]^{1/(1-g)} \tag{6b}$$

이때 식 (6a)와 식(6b)의 해를 얻기 위하여 초기 Activation energy spectrum

$n(E,0)$는 식 (7)에서 나타나듯이 Gaussian 분포를 가진다고 가정하였다.

$$\frac{n(E,0)}{N_0} = \frac{1}{\sqrt{2p} \cdot e} \exp\left(-\frac{(E-E_0)^2}{2e^2} \right) \tag{7}$$

식 (7)을 보게 되면 $e \to 0$가 될 때 델타 함수의 정의에 따라

$$\frac{n(E,0)}{N_0} = d(E-E_0)$$

가 된다. 따라서 $e << E_0$이면 식 (3)은 Activation energy 분포의 경우에 있어서 근사적으로 유효하다. 한편, $e \to 0$일 때 식 (5)와 식 (6a), 6(b)는 식 (1)과 식 (2a), 2(b)와 같아진다. 식 (1) ~ 식 (7)로부터 중성자 조사 흑연의 저장에너지 방출은 4개의 매개변수 g, n, E_0 그리고 e에 의존함을 알 수 있다. 그림 8에 식 (1) 또는 식 (5)를 이용하여 흑연 저장에너지의 방출값을 Heating rate가 각각 5, 20, 100°C/min에 대하여 계산한 결과를 도시하였다. 이 계산에 사용한 탄소 원자 Interstitial 한 개 당 방출 에너지는 14eV이며, 원자 한 개 당 Displacement concentration은 7×10^{-5}이다. 그림 8에서 흑연의 Heating rate가 클수록 방출에너지의 최대값은 작아짐을 알 수 있다. 한편 저장에너지 방출값은 온도변화에 따라 3개의 극점을 가지는데 그림 9의 측정값과 비교하면 다소 상이한 모양을 나타내고 있다. 이는 계산에 의한 해석시 초기 Activation energy spectrum $n(E,0)$가 $E = E_0$에서만 값을 가지는 것으로 가정하였기 때문이다. 즉, 식 (7)에서 $e = 0$라 두어 $n(E,0)$를 델타함수로 생각하였다. 실제적으로는 $E = E_0$에서만 Activation 되지는 않을 것이며 $E = E_0 \pm e$의 범위에서 Activation 될 것이다. 따라서 이와 같은 수학적 가정이 이러한 오차를 가져온 요인중의 하나로 생각된다.

IV. 결론 및 향후 계획

100°C 이하의 상대적 저온에서 중성자조사된 흑연은 150°C 이상의 고온에서 조사된 흑연에 비하여 Wigner 에너지 방출율의 최대값이 10배 이상 크게 나타나 실제적인 측면에서 저온에서 중성자조사된 흑연이 문제가 될 수 있음을 예측할 수 있었다. 그리고 10^{18} ~ 10^{20}n/cm^2 order의 중성자 플루언스를 변화시켰을 때 중성자 조사량이 증가할수록 흑연에 저장되는 총에너지는 증가하나 저장에너지 증가율은 감소함을 알 수 있었다. 또한 Annealing 온도가 증가하면 Wigner 에너지 방출율은 어느 특정 온도까지 함께 증가하다가 다시 감소 또는 일정하게 유지되는 경향을 보였고 흑연에 대한 Heating rate가 클수록 Wigner 에너지 최대 방출값은 감소함을 알 수 있었다. 따라서 흑연에 대한 고온 Annealing은 예기치 못한 Wigner 에너지 방출을 효과적으로 막을 수 있을 것으로 생각된다. 본 연구의 해석 결과는 추후 연

구로 흑연의 온도 변화에 따른 에너지 방출 측정 실험을 위한 유용한 자료로 사용될 것이다.

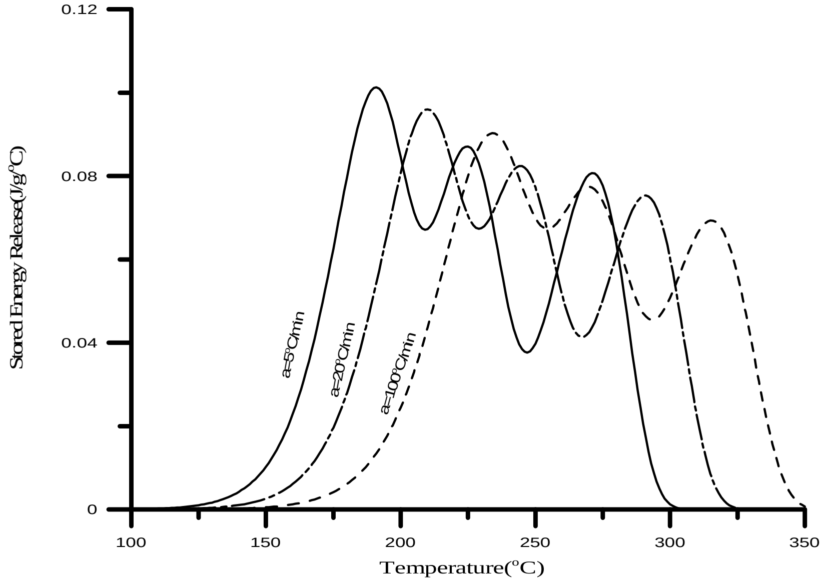

그림 8. 서로 다른 Heating rate에서 온도 변화에 따른 흑연 저장에너지 방출율 계산값(중성자플루언스: 4×10^{17} n/cm^2 (E > 1MeV), 중성자조사온도: 80°C)

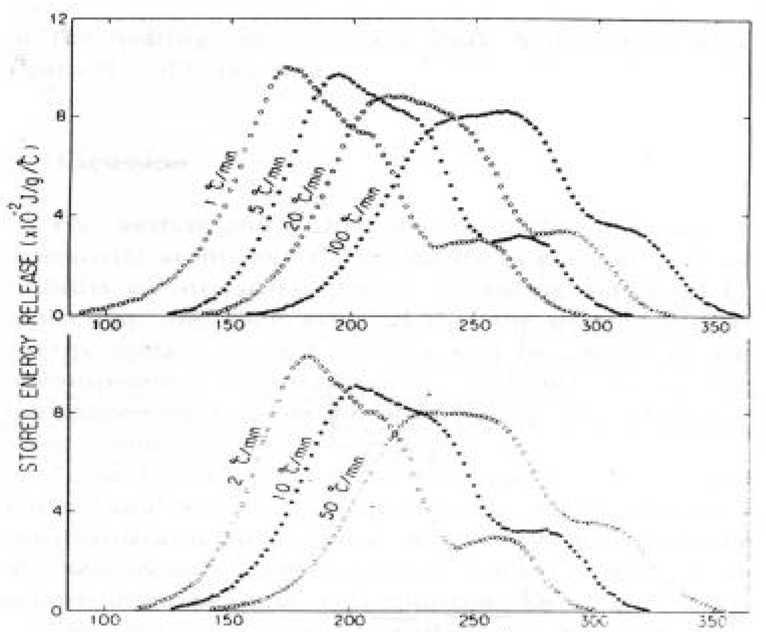

그림 9. 서로 다른 Heating rate에서 온도 변화에 따른 흑연 저장에너지 방출율 측정값(중성자플루언스: 4×10^{17} n/cm^2 (E > 1MeV), 중성자조사온도: 80°C)

Nomenclature

a	: Heating rate	k	: 볼쯔만 상수
E_0	: Activation 에너지	N_0	: 초기 Defect concentration
$N(t)$	: Defect concentration	t	: 시간
T	: 온도	T_m	: Peak 온도
e	: Activation 에너지 분포 폭	g	: Order of the reaction
n	: 주파수 인자		

후 기

이 연구는 기관고유사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

[1] Arthur R. Foster, *Basic Nuclear Engineering*, Allyn and Bacon, Inc., 1983.
[2] 일본원자력문화재단, 원자력발전, 2000.
[3] Donald G. Schweitzer, "Fundamental Studies of Radiation Damage in Graphite", Brookhaven Lecture Series, No. 16, April 17, 1962.
[4] 정기정 외, 연구용 원자로 폐로사업, 한국원자력연구소, 2000.
[5] 정기정 외, 연구용 원자로 폐로사업, 한국원자력연구소, 2001.
[6] Kelly, *Physics of Graphite*, Applied Science Publishers, 1981.
[7] Tadao IWATA, "Fine Structure of Wigner Energy Release Spectrum in Neutron Irradiated Graphite", J. of Nuclear Materials, 133&134, p. 361-364, 1985.