

原子爐計測을 위한 薄膜中性子熱電對의 試作 및 特性

(Fabrication and Characteristics of Thin-film Neutron Thermopile for Reactor Instrumentation)

金 東 勳*

(Kim, Dong Hoon)

要 約

原子爐制御를 위한 中性子熱電對의 應答時間 短縮을 目的으로 眞空蒸着된 薄膜熱電對를 利用하여 中性子熱電對를 試作하였다. 이의 實驗結果를 線熱電對의 것과 比較하였으며, 熱中性子束範圍 $2 \times 10^8 \sim 8 \times 10^{13}$ neutrons/cm²/sec에서 좋은 線型特性을 가지고 있었다.

試作된 薄膜中性子熱電對를 使用하여 TRIGA MARK-II 原子爐 爐心에서의 熱中性子束分布를 測定하였다.

Abstract

In order to improve the response time of neutron thermopile for reactor control a neutron thermopile made use of a vacuum evaporated thin film thermocouple was fabricated and tested. The test results were compared with a wire-type neutron thermopile. Good linearities between the response of the neutron thermopile and the thermal flux has been shown in the ranges from 2×10^8 to 8×10^{13} n/cm²/sec.

Thermal neutron flux distributions in the core of TRIGA Mark-II reactor were measured using the fabricated neutron thermopile, and the results were compared with data obtained by the activation foil measurement.

1. 序 論

原子爐制御를 위하여 爐内の 中性子束를 測定하는것은 大端히 重要하며 特히 爐心 各位置에서의 出力分布를 正確히 把握하므로써 原子爐의 安全과 性能을 改良하는 過程에 많은 도움이 된다.

現在 原子爐의 中性子束測定에는 大概 電離函(ionization chamber)이 使用되고 있으나, 爐心の 細細한 中性子束分布測定에는 다음과 같은 不利點으로 因하여 거의 不可能하다. 即,

1) 크기가 커서 測定하고자하는 位置에 配置할 수 없으며, 測定器 自體가 複雜하고 脆弱하다는 點

2) 測定器에 高電壓이 要求되어 必然적으로 絶緣問題가 있다는 點

3) 附屬增幅器의 安定성이 문제가 된다는 點等이다.

따라서 이상과 같은 缺點들을 除去한 各種 方法이 開發되어 왔다. 그중 熱電對의 接點에 中性子和 反應斷面積이 큰 物質을 被覆하여 核反應時發生되는 에너지에 의한 溫度上昇으로 인어지는 熱電對의 起電力을 測定하도록 된 中性子熱電對^{1, 2, 3)}가 그 原理上 小型화가 可能하여 原子爐

* 正會員 原子力研究所 原子爐工學室
Reactor Engineering Division, Atomic Energy Research Institute

의 어떤 위치에서도 中性子束測定이 可能하며, 構造가 간단하고 低廉하고, 特히 機械, 化學 및 放射學的인 安定性等의 長點으로 因하여 各광을 받고 있다. 그러나 中性子熱電對의 原理上 그 應答速度(response time)가 늦다는 缺點이 있다. 現在 商品化되어 있는 中性子熱電對의 時定數는 10 sec 程度로서 原子爐의 制御系統에 使用되는 計測器가 必要한 應答速度인 100msec에 比하면 많은 改良이 要求된다. 이를 위하여 計測에 各種 時定數補償回路를⁴⁾ 使用하므로써 應答速度를 1/10程度로 短縮시켰으며, 其他 特別한 素子를 製作하므로써 時定數를 37msec로 낮춘 例도 있다.⁵⁾

本 研究은 應答速度가 빠른 中性子熱電對를 開發하는데 그 目的이 있으며 이를 위하여 熱負荷가 극히 작고 應答速度가 빠른 薄膜熱電對를 利用한 中性子熱電對를 試作하여 原子爐內에서 그 性能을 試驗하는 것이다.

2. 測定原理

熱電對를 利用한 熱中性子束測定은 熱電對接點에 被覆된 反應物質과 中性子와의 反應으로 因한 溫度上昇을 利用한 間接的인 方法이다. 反應物質의 選定要件에는 接點에 反應物質의 被覆이 容易하고, 中性子와의 反應斷面積이 크며, 入射中性子當 發生에너지가 充分히 크고, 反應時間이 짧아야한다는 點等을 들을 수 있다. 이들 條件에 一致된 物質로서는 보론-10과 우라늄-235 등이 있으며, 實際 利用되는 形態로서는 Nat. B, ¹⁰B, ²³⁵U, ²³⁵UO₂ 등의 物質이 있다.

本 研究에 使用된 反應物質은 86%로 濃縮된 보론-10으로서 熱中性子와의 다음 反應을 일으킨다.



여기서 ¹⁰B의 熱中性子 吸收斷面積은 약 4000±10barn(1barn=10⁻²⁴cm²)으로서 보론層에서의 熱中性子 平均自由行程은 大略 0.02mm가 된다. 即 接點에 0.02mm 이성의 ¹⁰B을 被覆하면⁵⁾ 入射中性子の 全部를 吸收시킬 수 있다는 計算이다. 萬一 ¹⁰B에 入射된 熱中性子が 모두 吸收된다고 假定하면, 中性子捕獲率 R은,

$$R = \frac{m\sigma A}{10} \phi \quad (\text{n/sec}) \quad (2)$$

여기에서

$m = ^{10}\text{B}$ 의 무게

$A = \text{Avogadro's number}$

$\sigma = \text{中性子吸收斷面積}$

$\phi = \text{中性子束密度}$

이다. 이 反應에서 放出되는 α 粒子의 硼素層內에서의 平均自由行程은 약 $5 \times 10^{-3}\text{mm}$ 이며 ^7Li 核은 이보다 훨씬 짧다. 따라서 大部分의 에너지는 硼素層에 吸收된다. 單인 여기서 全에너지가 硼素層에 吸收되었을 때에 發生에너지를 Q watt-sec 라하면 熱에너지放出率은 RQ watt가 된다. 그러나 이 關係式은 理想的인 境遇이며, 實際는 다음과 같이 된다. 即

$$w = \eta_1 \eta_2 RQ \\ = 2.34 \times 10^{-11} m \phi \quad (3)$$

여기에서

$w = \text{熱에너지 發生率}$

$\eta_1 = \text{硼素層에 吸收되는 反應 에너지率} (\approx 79\%)^{3)}$

$\eta_2 = \text{硼素의 自己遮蔽에 依한 中性子捕獲率} (\approx 77\%)^{1)}$

가 된다. 勿論 이때에 硼素層의 表面對流와 輻射에 의한 熱損失과 熱電對物質의 熱傳導損失도 있으나 式 (3)의 線型特性에는 無關하다.

以上은 熱接點에 對하여 論하였으며, 上記의 反應外에 감마線에 依한 加熱과 주위溫度를 補償하는 冷接點을 必要로 한다. 理論적으로 보아 熱 및 冷接點은 同一한 形態와 같은 位置에 있어야 하지만 實際는 不可能하며, 따라서 冷接點에도 硼素層과 類似한 他物質을 被覆시켜 熱接點에 接近시키는 方法을 擇하고 있다.

3. 中性子熱電對의 製作

薄膜型과 線型的 두 種類의 中性子熱電對를 試作하였으며 熱電對物質로서는 아르멜과 크로멜을 使用하였다. 中性子와 反應物質은 鑛油에 混合되어 있는 濃縮度 86%인 ¹⁰B을 利用하였다. 製作된 이들 中性子熱電對는 反應物質이 被覆된 熱接點과 周圍溫度 및 감마線加熱을 補償하여주는 冷

接點으로 構成된 單位素子들의 直列連結로 만들었다.

3.1 線中性子熱電對의 製作

試作된 薄膜中性子熱電對와 特性을 比較하기 위하여 製作된 線中性子熱電對는 直徑 0.5mm의 Alumel-Chromel 線을 利用하여 Butt 溶接에 의하여 接點을 만들었다. Butt 溶接은 出力이 5.0 volt, 2.2Amp인 Leakage transformer를 使用하여 行하였으며, 熱電對의 溶解를 補償하도록 간단한 裝置를 製作하였다. 熱電對의 接點을 만든 후 전체를 高溫爐에서 약 1200°C로 Annealing 過程을 거친 다음 接點을 均一하게 加工하였다. 完成된 熱電對의 接點數는 모두 14個이었으며 이를 組立하기 위하여 一般熱電對의 誘導管으로 使用되고 있는 알루미늄管을 使用하였다. 알루미늄管은 原子爐內에서 높은 中性子束에서 使用可能하며 동시에 絶緣이 좋아 選定되었다. 製作된 中性子熱電對의 單位素子와 組立된 모양은 그림-1에서 보여주고 있다. 冷接點과 熱接點間의 長이는 組立上 難點과 兩接點間의 溫度勾配를 考慮하여 約 4cm로 하였다.

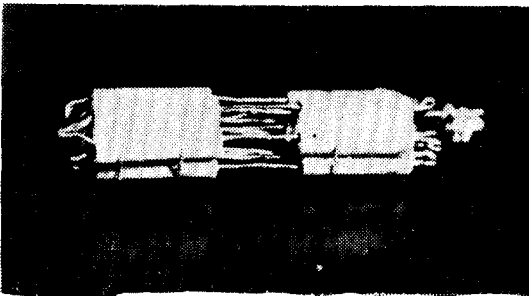
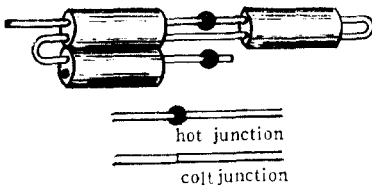


Fig. 1. Unit element of wire N.T.P. (above) and its assembly (below)

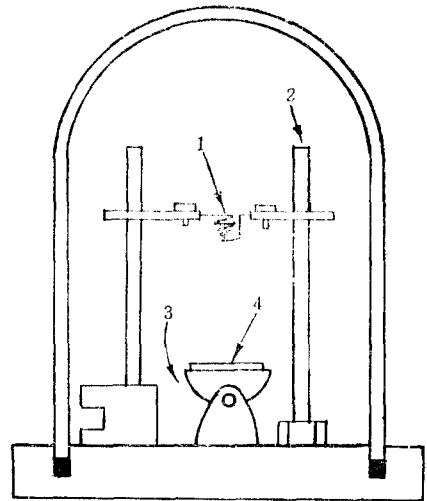
그림-1. 線中性子熱電對의 單位素子(上)와 集合體(下)

測定素子集合體를 製作組立한 다음에 硼素層을 被覆시켰다. 前述한 바와 같이 硼素는 鑛油에 混合되어 있으므로 이를 熱接點에 바른 다음 鑛油

를 蒸發시켰다. 過程은 熱電對에 15volt의 電壓을 加하여 長時間蒸發시키면서 차차 被覆두께를 增加시켜 硼素球의 直徑이 약 1mm가 될때까지 繼續하였다.

3.2. 薄膜中性子熱電對의 製作

本 研究에 利用된 熱電對는 線型中性子熱電對의 境遇와 같이 Alumel-Chromel이며, 薄膜熱電對는 얇은 Alumina板(10mm width×50mmLength×0.7mm Thick)에 熱電對物質을 各各 眞空蒸着시켰다. 使用된 眞空蒸着裝置는 JEOL model JEE-4C로서 眞空度는 3×10^{-5} Torr 程度였다. 眞空蒸着裝置와 熱電對素子の 位置를 그림-2가 보여주고 있다. 蒸着되는 薄膜熱電對의 두께는 2500°A以上일 경우에 bulk와 같은 特性을 나타



- 1. tungsten basket
- 2. high current leads
- 3. basement
- 4. substrate

Fig. 2. vacuum evaporator
그림-2. 眞空蒸着裝置

내며, 그 起電力에 있어서는 1μ程度가 適合하므로 大略 1μ에 되도록 數次 반복하여 蒸着시켰다. 同時에 薄膜의 두께와 時定數와 密接한 關係가 成立된다. 即 時定數 τ 는⁸⁾

$$\tau = \frac{Cpd^2}{k\pi^2} \quad (4)$$

여기서

C: 薄膜의 比熱

ρ : 薄膜의 密度

k : 熱傳導度

d : 薄膜의 두께

이며, 이를 Chromel-Alumel 熱電對에 對하여 整理하면

$$\tau = 0.512d^2 \quad (5)$$

가 된다. 即, 薄膜의 時定數는 그 두께에 直接關係가 된다. 試作된 薄膜의 時定數는 式 (5)에 의하여 約 5nsec가 되는 셈이다.

完成된 薄膜熱電對는 그림-3과 같으며 이는 全部 32個의 熱電對로 構成되어 있다. 熱接點에 硼素被覆은 鑛油에 混合된 硼素를 마르고 이를 高溫爐에서 約 200°C로 維持시켜 蒸發시켰다.

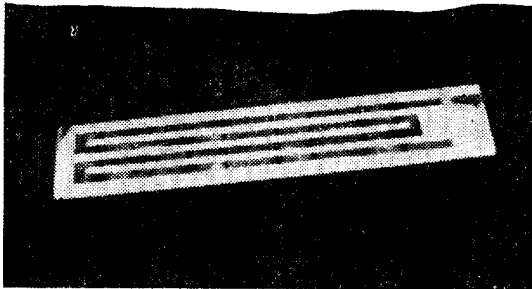


Fig. 3. Thin-Film Neutron Thermopile
그림-3. 薄膜 中性子熱電對

4. 實驗 및 結果

試作된 線 및 薄膜中性子熱電對는 알미늄容器 (內徑 12mmφ, 길이 50mm)에 密封放水시켜 길이 6m程度의 coaxial cable(impedance 93Ω)로 連結하였다. 測定에 利用된 計器는 Keithley model 153 microvolt-Ammeter 로서 本實驗에 利用된 測定範圍에서의 impedance는 200MΩ 으로서 試作된 線型中性子熱電對의 線抵抗 0.12Ω 및 薄膜型中性子熱電對의 線抵抗인 3.5KΩ에 比較하여 充分히 큰 impedance를 가지고 있다.

測定位置는 TRIGA MARK-II 原子爐心의 中心部인 Central thimble(C.T.)과 爐心의 最外測인 F-ring을 選擇하였다. 熱中性子束은 中心인 central thimble에서 가장 높으며 F-ring에서 가장 낮다. 實驗은 우선 C.T.의 中心에 中性子熱電對를 固定시키고, 原子爐의 出力을 10Watt에서 250KW까지 增加시키면서 各 出力準位에서 1분에 到達시키고 steady operation後 中性子熱

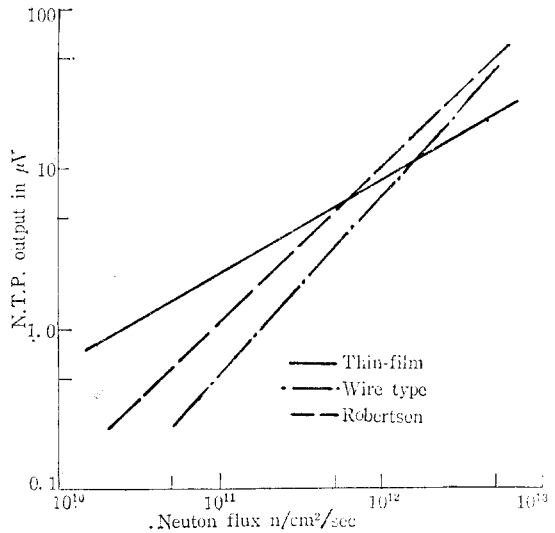


Fig. 4. Neutron flux vs. N.T.P. output
그림-4. 中性子束과 中性子熱電對의 出力關係

電對의 起電力을 測定하였다. 同時에 時間的인 變化는 Recorder를 利用 記錄하였다.

實驗結果는 放射化測定法에 의한 熱中性子束의 絶對測定資料⁷⁾를 利用, 中性子束에 다른 出力로 換算하여 그림-4에 圖示하였다. 그림-4의 熱電對出力은 單位素子의 平均値이며, Lapsley²⁾의 結果와 比較하였다. 또한 F-ring의 中心에 測定素子를 固定시켜 原子爐出力에 따른 起電力을 測定하였으며, 이들 結果를 그림-5에 圖示하였다. 그림-5에서 볼 수 있는 바와 같이 이들 中性子熱

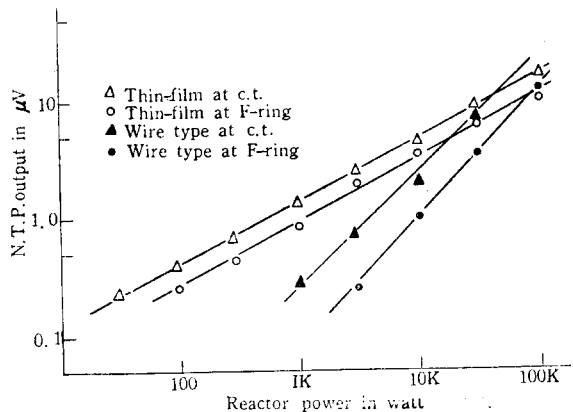


Fig. 5. Reactor power vs. N.T.P. output
그림-5. 原子爐 出力과 中性子熱電對出力과의 關係

5. 結 論

試作된 薄膜中性子熱電對를 利用하여 TRIGA MARK-II 原子爐에서 그 特性을 測定하고 아울러 熱中性子束分布를 測定하였다. 試作結果는 다음과 같다.

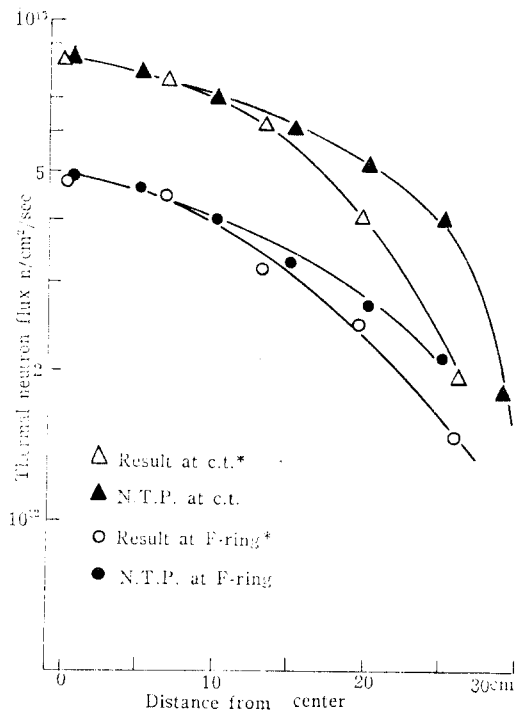
1. 中性子熱電對의 크기는 2mm×10mm×50mm이며 防水를 위한 容器는 16mmφ×100mm이다. 그러나 熱電對의 크기를 줄이므로서 全體 크기를 훨씬 작게 製作이 可能하다.

2. 原子爐의 出力에 對한 中性子熱電對의 出力은 넓은 範圍에서 좋은 線型特性을 보여 주고 있으며, TRIGA MARK-II에서 얻을 수 있는 熱中性子束인 $8 \times 10^{13} \text{m/cm}^2/\text{sec}$ 까지는 測定素子の 出力飽和現狀은 없었다.

3. 熱中性子束과 測定素子들의 出力關係曲線에서 그 기울기가 薄膜型이 線型보다 낮은을 發見하였다.

參考文獻

1. 久保盟唯, 國産ニユトロン サーモパイル, 原子力工業, 第5卷, 第12號, 1965
2. A.C. Lapsley, AECU-2406, Jan., 1953
3. D. Robertson, AECU-3416, Dec., 1956
4. 片岡治雄, 中性子 熱電對의 第一次 原子爐計裝系への活用, 應用物理, 第38卷 第七號, p.634-644, 1969
5. T.S. Gray & A.B. Van Rennes, AIEE comm, & Elect, July, 1957
6. K.P. chopra et. al., Thermopower in Thin-film copper-constantan couples, J of Appl. Phys. vol. 39, No. 3, p 1525, Feb, 1968
7. 김동훈 외, TRIGA Mark-II의 250KW 출력증강 후 중성자속 분포측정, 연구연보 제9권 2호, 원자력연구소, 1969
8. D.D. Thorhburg, The Thermoelectric power of Au-Ni Thin-film Thermocouples, Uni of Illinois, Oct, 1968



* Activation Analysis result⁷⁾

Fig. 6. Aial distribution of Thermal neutron Flux
 그림-6. 垂直方向의 熱中性子束分布

電對의 起電力은 原子爐出力, 即 熱中性子束에 對하여 좋은 線型特性을 보여주고 있으며, 特히 薄膜中性子熱電對의 경우에 線熱電對에 比하여 낮은 出力에서도 좋은 感度를 보여 주었다.

薄膜中性子熱電對를 使用하여 Central Thimble 과 F-ring에서 垂直方向의 熱中性子束分布를 測定하였다. 實驗은 測定素子를 爐心 各位置에서 最低端部로부터 2.5cm 간격으로 測定하였으며, 이때 얻은 結果와 放射化法에 의하여 얻은 結果⁷⁾를 그림-6에 圖示하였다. 두가지 結果를 中心에서 規格化시켰으며, 爐心 兩端으로 갈수록 두 結果가 相異함은 主로 測定位置가 다르기 때문이다.