

## 전자빔 가열로 발생시킨 Gd 원자증기의 속도에 관한 연구

정의창<sup>†</sup> · 권덕희 · 고광훈 · 김택수

한국원자력연구소 양자광학부  
(2003년 7월 18일 접수)

### Study on the velocity of gadolinium atomic vapor produced by electron beam heating

E. C. Jung<sup>†</sup>, Duck-Hee Kwon, Kwang-Hoon Ko, and Taek-Soo Kim

Laboratory for Quantum Optics, Korea Atomic Energy Research Institute  
(Received July 18, 2003)

#### 요 약

전자빔으로 증발시킨 gadolinium(Gd) 원자증기의 속도를 미량 저울(microbalance)을 사용하여 측정하였다. 증발 표면의 온도가 2400-2500 K인 조건에서 약 900 m/s의 속도가 측정되었다. 이 값은 단열팽창을 하는 이상적 단원자의 최대 속도에 비해 약 100 m/s 더 빠른 속도에 해당된다. 이 특이 현상의 원인을 고온에서 여러 개의 들뜬 에너지 준위에 분포한 Gd 원자의 내부 에너지가 단열팽창 중에 운동 에너지로 전환되는 것으로 설명하였다. 100개의 들뜬 에너지 준위를 원자증기의 엔탈피에 포함시켜 속도를 계산한 값이 실험 결과와 비교적 일치함을 보였다. 가열된 표면 온도의 변화에 따른 원자증기의 유동 특성에 대해서도 보고한다.

주제어 : 전자총, 원자증기, 증기속도, 단열팽창

#### Abstract

The velocity of gadolinium(Gd) atomic vapor vaporized by an electron beam was measured by a microbalance. The velocity of about 900 m/s was obtained at an evaporation surface temperature of 2400-2500 K. The measured value was approximately 100 m/s faster than the maximum velocity of an ideal monatomic gas in an adiabatic expansion. This phenomenon can be explained that the internal energy of Gd atoms populated in higher excited levels at the high temperature should be converted to kinetic energy during adiabatic expansion. The calculated velocity agrees with the measured one when 100 excited energy levels are included in an enthalpy term for the velocity calculation. The characteristics of vapor flow as a function of heated surface temperature are also reported.

Key Words : Electron beam gun, Atomic vapor, Vapor velocity, Adiabatic expansion

#### 1. 서 론

Gadolinium(Gd) 금속의 7개 핵종 중에서 Gd-152는 의료용 방사성 동위원소의 원료로, Gd-157은 핵연료의 가연성 독물질 (burnable poison) 재료로, Gd-160

은 태양의 중성미자 (solar neutrino) 검출기로 각각 이용될 수 있다 [1,2]. 이와 같은 산업적인 활용 가능성 때문에 Gd 핵종 추출에 관한 연구가 지난 수년간 여러 나라에서 진행되었다. Gd 핵종 추출 방법으로 칼루트론 (calutron)을 사용할 경우에는 비용

<sup>†</sup> E-mail : ecjung@kaeri.re.kr

이 많이 든다는 점이 단점으로 지적되며, 적당한 가스 화합물이 존재하지 않으므로 가스 원심분리기를 사용할 수가 없다. 따라서 레이저 광이온화 방법을 채택한 핵종 추출 연구가 시도되었고, 전자빔 가열 방식의 증발기술은 고융점 금속 원자증기를 대량으로 발생시킬 수 있기 때문에 레이저 광이온화 방법에서 필수적으로 사용되는 기술이다 [3].

핵종 추출에 사용되는 이온 추출기의 기하학적인 구조 설계 및 추출 효율 제고를 위해서는 원자증기의 증발률, 준위밀도, 속도 등의 특성이 기본적으로 조사되어야 한다. 이 논문에서는 상용의 전자총 시스템을 사용하여 발생시킨 Gd 금속 원자증기의 속도 측정 결과 및 원자빔의 유동 (flow) 특성을 조사한 결과를 정리하였다.

원자증기의 속도를 측정하기 위해서는 좁은 선폭의 연속발진 레이저빔을 사용하여 흡수 스펙트럼의 도플러 이동 (Doppler shift)을 측정하거나, 이온의 비행 시간 (time of flight)을 측정하는 방법을 채택하는 것이 일반적이다 [4]. 그러나 대량의 원자증기를 발생시키는 대용량 진공용기에 이러한 방법을 사용하는데는 현실적인 어려움이 따른다. 진공용기 내부 또는 외부에 설치한 거울, 프리즘, 광흡수 및 이온 검출기 등의 부품에 대량으로 발생된 원자증기가 부착되거나, 전자빔 가열로 인한 고온 분위기에서 부품에 열적 손상이 생기기 때문이다. 이 연구에서는 이러한 단점을 보완하기 위해 미량 저울 (microbalance) 과 셔터를 사용하여 증기속도를 측정하였다 [5].

고온의 가열 표면에서 증발된 원자증기는 단열 팽창을 한다. 즉, 증기속도가 가속됨과 동시에 증기 온도는 낮아진다. 전자빔의 출력 변화에 따른 가열 표면의 온도와 원자증기 속도 변화를 측정하였고, 이를 이론적으로 계산한 결과와 비교하였다. 측정된 최대 속도는 약 900 m/s이며, 이론적으로 계산한 최대 속도에 비해 약 100 m/s 큰 값에 해당된다. 이러한 특이 현상을 여러 에너지 준위에 분포한 Gd 원자의 들뜬 에너지가 단열팽창 과정에서 원자증기의 운동 에너지로 전환된다는 것으로 분석하였다.

## 2. 실험장치

진공용기는 5 mm 두께의 스테인리스 스틸로 제

작되었고, 안지름은 600 mm, 길이가 800 mm, 부피는 약 0.3 m<sup>3</sup>이다. Turbo-drag 펌프와 rotary vane 펌프 시스템(Balzers, Inc., Model TP 1500)을 설치했으며, 펌핑 속도는 각각 1500 l/s와 65 m<sup>3</sup>/hr이다. 4-8×10<sup>6</sup> Torr의 진공 환경에서 실험이 수행되었다.

사용한 전자총은 출력이 20 kW 급인 상용의 제품 (Airco Temescal Co., Model SFIH-270-3)이며, 도가니 (crucible), 필라멘트, 전자빔 궤적 유도용 자석 등이 한 몸체로 구성되어 있다. 도가니의 재질은 구리이며, 약 150 cc 용량의 도가니에는 1 kg의 Gd 금속 시료를 담을 수 있다. 전자총의 상세 사항을 표 1에 정리하였다. 전자빔의 허용 출력은 도가니의 용량과 증발 금속의 물리적, 화학적 성질에 따라 다르다. Gd 금속을 150 cc 용량의 도가니에 담은 경우, 사용할 수 있는 전자빔 허용 출력은 최대 7 kW이며, 약 200 g/h의 증기 증발률 (evaporation rate)이 측정되었다. 이보다 더 큰 출력의 전자빔을 사용하면 Gd 금속 덩어리가 불꽃 형태로 튀어 오르는 spattering 현상 및 액체 상태의 표면에서 증기가 도가니 밖으로 흘러 넘치는 splashing 현상이 발생하는 것이 관측되었다 [6].

증기속도를 측정하기 위해 상용으로 구입할 수 있는 미량 저울 (CAHN Instruments Inc., Model D-101) 을 이 실험에 적합한 고진공 (10<sup>6</sup> Torr)용으로 개조하여 사용하였다. 그림 1에 미량 저울이 설치된 상태의 전체 실험장치를 보였다. 그림의 왼쪽에 표시한 측정용 원판 (disk 1, 직경 24 mm, 무게 5 g)은 직경 0.1 mm의 니크롬선에 매달려 있으며, 시료의 표면에서 14 cm 높이에 위치하고 있다. 그림의 오른쪽에 표시한 기준 원판 (disk 2)은 측정용 원판과 같은 모양이지만 원자증기가 부착되지 않도록 밀폐되어 있다. 미량 저울은 최대 100 g의 무게를 측정 할

표 1. 전자총의 상세 사항.

최대 출력(가속 전압)	20 kW(-10 kV)
출력밀도	2.8 kW/cm <sup>2</sup> (20 kW)
전자빔 크기	6.3 mm×12.7 mm
전자빔 궤적	270°
도가니 용량	약 150 cc
전자빔 허용 출력	최대 7 kW
전자빔 동작 조건	5×10 <sup>4</sup> Torr 이하

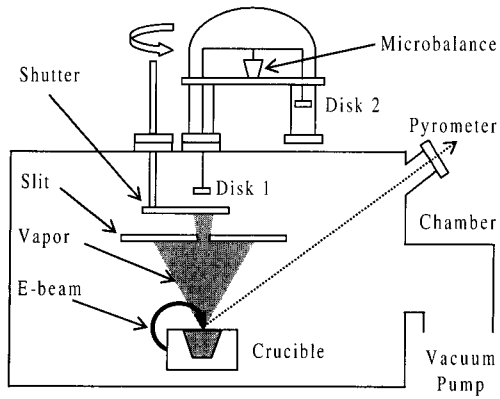


그림 1. 실험 장치 및 구조.

수 있으며,  $10^{-6}$  g의 분해능을 가지고 있다. 측정용 원판 아래에 설치한 셔터를 열면 원자증기가 원판에 부착되므로 전체 원판의 무게가 변한다.

### 3. 속도 측정 원리

미량 저울을 이용하여 속도를 측정하는 원리를 그림 2에 보였다. 그림 2(a)에 보인 것과 같이 질량  $m$ 인 원자증기가 원판에 부착되면 원판의 무게가 변한다. 원판의 무게 변화를 측정하여 속도를 계산하는 과정을 다음 식과 같이 표현할 수 있다 [5].

$$M = M_0 + N \cdot m - M^* \quad (1)$$

$$M = M_0 + \phi \cdot A \cdot t \cdot m - M^* \quad (2)$$

$$\frac{dM}{dt} = \phi \cdot A \cdot m \quad (3)$$

$$M^* = \frac{\phi \cdot A \cdot m \cdot v}{g} \quad (4)$$

$$v = \frac{M^* \cdot g}{dM/dt} \quad (5)$$

식 (1)에서  $M$ 은 미량 저울의 지시눈금,  $M_0$ 는 원판의 자체 질량,  $N$ 은 부착된 원자의 수,  $M^*$ 은 증기가 원판에 부착될 때 운동량의 변화에 기인한 원판의 질량 변화이다. 식 (2)에서  $\phi$ 는 원자증기의 선속 (flux),  $A$ 는 원판의 면적을 뜻한다. 식 (3)은 원판에 증기가 부착되는 동안 지시눈금의 변화율이다. 결

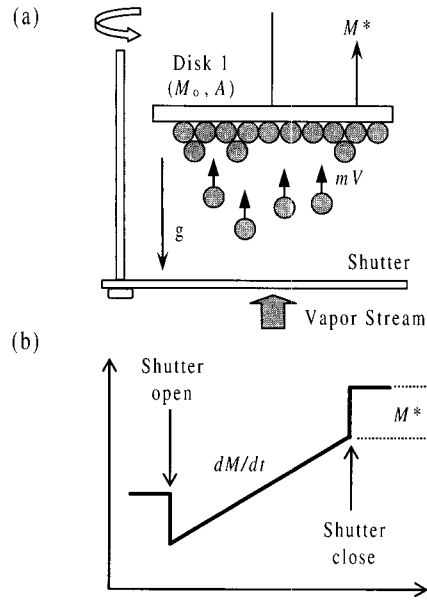


그림 2. (a) 속도 측정 원리, (b) 측정된 신호 모양.

과적으로 식 (5)에 표현한 것과 같이 증기속도를 결정할 수 있으며, 실험적으로 측정되어야 하는 양은  $M^*$ 과  $dM/dt$ 이고,  $g$ 는 중력 가속도를 의미한다. 그림 2(a)에 보인 것과 같이 원판 아래에 설치된 셔터를 열거나, 닫는 순간에 운동량의 변화로 인한  $M^*$ 을 측정할 수 있으며, 셔터가 열린 상태에서는 시간 경과에 따른 지시눈금의 변화율  $dM/dt$ 를 측정할 수 있다. 그림 2(b)에는 측정되는 신호의 모양을 나타내었다. 셔터가 열린 상태에서 증발률이 일정하다면 지시눈금의 기울기가  $dM/dt$ 에 해당된다.

### 4. 결과 및 논의

그림 3에 전자빔의 출력을 변화시키면서 고온계 (pyrometer, IRCON Inc., Model ULTIMAX-20)로 측정할 시료의 표면 온도를 나타내었다. 0.5 kW의 전자빔 출력에서 증발이 시작되며, 3 kW 출력까지 온도가 급격히 증가됨과 동시에 증발을 또한 급격히 증가된다. 전자빔 출력이 5 kW 이상인 조건에서는 전자빔의 출력이 증가해도 표면 온도는 더 이상 증가하지 않고 포화되는 현상이 관측되었다. 이와 같은 표면 온도의 변화 양상은 전자빔의 출력밀도, 입사각 및 도가니의 냉각용량 조건에 따라 다를 수

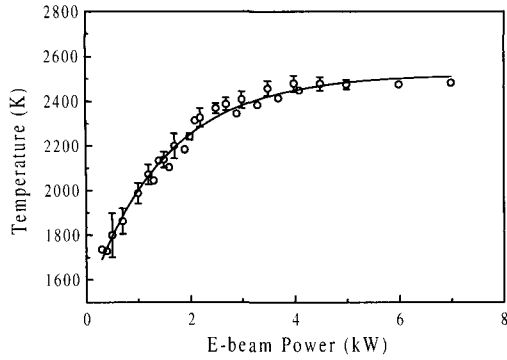


그림 3. 전자빔 출력 대 가열 표면의 온도 측정.

있으며, 그림 3에 보인 결과는 전자빔을 주사시키지 않은 상태에서 빔 초점 크기를 조절하여 증발률이 최대인 조건에서 측정한 것이다.

전자빔으로 가열된 시료의 표면에서 증발된 원자증기는 진공 중으로 퍼지는 과정에서 여러 유동 특성을 보이며, Knudsen 수 ( $Kn$ )의 크기에 따라 표 2에 나타난 것과 같이 구분된다 [7]. 증기밀도가 높은 가열 표면에서는 원자-원자 상호 충돌이 활발하므로 점성 상태이며, 표면에서 멀어질수록 이러한 충돌 현상이 미약해지므로 천이 상태를 거친 후, 결국에는 희박 상태가 된다.

표 2. Knudsen 수에 따른 증기 유동의 분류.

기체 상태	유동 영역	Knudsen 수
점성(viscous)	난류(turbulent flow)	
	층류(laminar flow)	$Kn^{-1} > 110$
천이(transition)	중간류(intermediate flow)	$1 < Kn^{-1} < 110$
희박(rarefied)	분자류(molecular flow)	$Kn^{-1} < 1$

Knudsen 수는 원자의 평균자유거리 ( $\lambda$ )와 가열 부위의 직경 ( $D$ )에 의해 결정되며, 평균자유거리는 표면 온도와 증기압 및 원자의 직경 ( $d$ )을 알면 아래의 식과 같이 계산할 수 있다 [8].

$$Kn = \frac{\lambda}{D} \tag{6}$$

$$\lambda = 2.33 \times 10^{-20} \cdot T_o \cdot \frac{1}{Pd^2} \tag{7}$$

시료의 표면 온도와 증기압에서 계산된 증기밀도는 다음 식과 같다.

표 3. 평균자유거리 및 Knudsen 수 계산 결과.

온도(K)	평균자유거리(cm)	$Kn^{-1}$
1900	2.1	0.47
2000	0.69	1.4
2100	0.25	4.0
2200	0.098	10.3
2300	0.042	23.9
2400	0.019	51.9
2500	0.0095	110
2600	0.0049	200

$$N = 9.656 \times 10^{18} \cdot \left( \frac{P}{T_o} \right) \tag{8}$$

식 (6)-(8)을 이용하여 원자증기의 평균자유거리 및 Knudsen 수를 계산한 결과를 표 3에 정리하였다. 계산에 사용한 원자의 직경은  $3.6 \times 10^{-8}$  cm, 전자빔 가열 부위의 직경은 1 cm이다. 표 3에서는 온도가 1900 K에서 증가함에 따라 평균자유거리가 급격히 감소함을 보이고 있다. Gd 금속은 1586 K에서 녹기 시작하며, 0.5-1 kW 범위의 전자빔 출력(표면온도가 1800-2000 K, 그림 3 참고)에서 원자증기의 증발이 관측되기 시작한다. 전자빔이 표면을 가열시키는 부위에서 원자증기의 밀도는 온도가 증가함에 따라 지수함수 꼴로 급격히 늘어난다.

따라서 표 3의 계산 결과는 가열 표면의 온도가 증가할수록 원자밀도가 급격히 증가하기 때문에 원자끼리의 충돌 현상이 활발해지며 결과적으로 원자의 평균자유거리가 짧아진다는 물리적 의미를 보이고 있다. 이러한 충돌 현상은 로켓의 수축-확대 (converging-diverging) 노즐에서 발생하는 것과 같은 원자의 되튐 (recoil) 현상을 유발시킨다. 결과적으로 점성 상태의 가열 표면에서 멀어지면서 희박 상태로 변하는 유동은 수축-확대 노즐에서 확대 부분을 제거한 free-jet 형태의 빔 특성으로 설명된다. 여러 특성 중에서 가장 두드러진 것은 가열 표면에서 멀어질수록 속도가 증가되는 것이며, 다음의 수식을 이용하여 계산할 수 있다 [9].

$$H_o = H + \frac{1}{2} m v^2 \tag{9}$$

$$H_o = C_p T_o, (H = C_p T) \tag{10}$$

$$C_p = \frac{\gamma}{\gamma - 1} R \quad (11)$$

$$M = \frac{v}{(\gamma R T / m)^{1/2}} \quad (12)$$

$H_0$ 와  $H$ 는 각각 단열팽창 전, 후의 mole당 엔탈피,  $C_p$ 는 일정한 압력에서 mole당 비열(specific heat),  $R$ 은 가스 상수,  $m$ 은 원자량을 의미한다. 이상기체의 경우, 비열은 식 (11)의 값을 가지며, Mach 수는 식 (12)로 표현된다. 이 식들을 이용하여 단열팽창을 하는 증기의 온도와 속도를 계산하면 식 (13), (14)와 같다.

$$T = T_0 \left[ 1 + \frac{(\gamma - 1)}{2} M^2 \right]^{-1} \quad (13)$$

$$v_a = \frac{M(\gamma R T_0 / m)^{1/2}}{[1 + (\gamma - 1) M^2 / 2]^{1/2}} \quad (14)$$

증기의 온도가 충분히 냉각된 조건 ( $T \rightarrow 0$ )에서 최대 속도( $v_m$ ) 및 Mach 수( $M_m$ )는 식 (15), (16)과 같이 표현된다.

$$v_m = \left[ \frac{2\gamma R T_0}{m(\gamma - 1)} \right]^{1/2} \quad (15)$$

$$M_m = \alpha K_n^{-\beta} \quad (16)$$

식 (16)에서 최대 Mach 수는 Knudsen 수와 관계가 있으며, 동역학적으로 계산된 상수  $\alpha$ ,  $\beta$ 는 각각 0.527, 0.545의 값을 가진다. 한편 단열팽창을 고려하지 않은 경우에 표면 온도에 해당하는 증기의 열적 평균 속도 ( $v_t$ )를 식 (17)에 나타내었다.

$$v_t = \left( \frac{8R T_0}{\pi m} \right)^{1/2} \quad (17)$$

그림 4에 미량 저울로 측정된 신호의 전형적인 모양을 보였다. 식 (5)에서 보인 것과 같이  $dM/dt$ 와  $M^*$ 을 측정하여 속도를 계산할 수 있으며 충분히 긴 시간 동안 셔터를 열어둠으로써 선형적인  $dM/dt$ 을 얻을 수 있다. 속도를 계산할 때 증발된 모든 원자 증기가 측정용 원판 (disk 1)에 부착되지 않고 일부 반사되어 나오는 양이 있다면 식 (5)의  $M^*$  값은 반사되는 양만큼 보정되어야 한다. 반사되어 나오는

양을 알기 위해서는 끈적 계수 (sticking coefficient)의 측정이 필요하다. 이 실험 조건에서는 정밀한 끈적 계수의 측정이 어려우며 그 이유는 약 10-15%의 범위에서 증기 증발률이 요동하기 때문이다. 증기 증발률을 일정하게 유지시키기 위해 능동적으로 전자빔 출력을 제어할 수 있는 안정화 장치의 제작 및 운용이 요구된다 [10].

그림 5에 표면 온도의 변화에 따른 원자증기의 속도 측정값을 이론적인 계산값과 비교한 결과를 보였다. 측정값은 세 번의 실험에서 얻은 평균값과 표준편차를 나타낸 것이다. 증발된 증기가 측정용 원판에 모두 부착된다고 가정하고 속도를 계산하였다. 이 가정은 Gd 금속의 경우, 미량 저울을 사용하여 속도를 측정된 결과와 Langmuir 탐침을 사용하여 속도를 측정된 결과가 동일한 값을 보이고 있다는 참고문헌의 결과에 근거한 것이다 [11]. 그림 5의 두 점선은 각각 식 (15)와 식 (17)을 이용하여 계산한 최대 속도 ( $v_m$ ) 및 열적 평균 속도 ( $v_t$ )를 의미

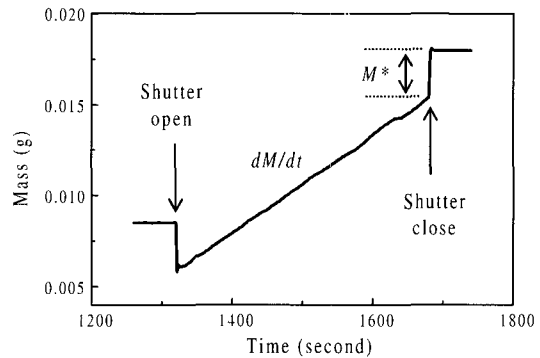


그림 4. 미량 저울로 측정된 신호 유형.

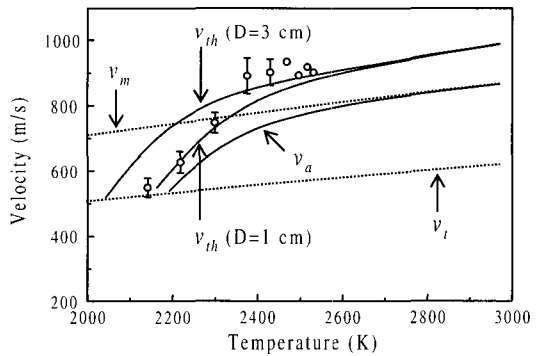


그림 5. 증기 속도의 측정 및 계산 결과.

한다. 2400-2500 K의 온도 조건에서 측정값이 최대 속도를 계산한 결과(그림에서  $v_m$ 으로 표시한 점선) 보다 약 100 m/s 큰 값을 보이고 있다는 점과 2300 K 이하의 온도 조건에서 측정값이 식 (14)를 이용하여 계산한 단열팽창 중의 속도(그림에서  $v_a$ 로 표시) 보다 크다는 점이 두드러지게 눈에 띈다.

이러한 특이 현상을 해석하기 위해 고온의 조건에서 들뜬 에너지 준위를 점유한 Gd 원자의 내부 에너지 ( $E_{el}$ )를 식 (9)의 오른쪽 항에 다음과 같이 포함시킬 수 있다.

$$H(T) = \frac{\gamma}{\gamma-1} RT + E_{el}(T) \quad (18)$$

$$E_{el}(T) = \sum_i E_i N_i(T) \quad (19)$$

식 (19)에서  $E_i$ 와  $N_i$ 는 각각 원자의 준위 에너지와 그 준위를 점유하고 있는 원자 수를 뜻한다. 그림 6에 내부 에너지를 고려한 조건에서 식 (20)을 이용하여 계산한 비열을 보였다.

$$C_p(T) = \frac{\partial H(T)}{\partial T} \quad (20)$$

그림 6에서 표시한 N의 수는 식 (19)에서 에너지 준위의 수를 뜻한다. 온도가 증가할수록 Boltzmann 분포 식에 따라 높은 에너지 준위를 점유하는 원자 밀도가 증가하므로 내부 에너지 또한 증가한다는 것을 알 수 있다.

그림 5에는 100 개의 들뜬 에너지 준위에 분포한 원자의 내부 에너지를 고려하여 속도를 계산한 결과(식 (21) 및 그림 5에서  $v_{th}$ 로 표시한 실선)를 함께 보였다.

$$v_{th} = \sqrt{\frac{2}{m} [H(T_0) - H(T)]} \quad (21)$$

전자빔으로 가열된 부위의 직경 ( $D$ )은 식 (6)과 식 (16)에 나타낸 것처럼 Knudsen 수와 Mach 수에 영향을 주므로 결과적으로 증기의 속도에도 영향을 줄 수 있다. 그림 5에서는 2300 K 이하의 온도 조건에서는  $D=1$  cm, 그 이상의 온도 조건에서는  $D=3$  cm인 경우에 계산과 실험 결과가 비교적 일치한다는 것을 보이고 있다. 이 현상은 가열 표면의 온도를

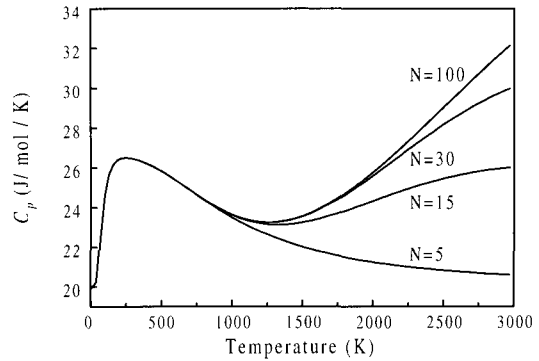


그림 6. 온도 변화에 대한 비열 계산 결과. N은 에너지 준위의 수를 의미한다.

증가시키기 위해 전자빔의 출력을 증가시키면 전자빔이 직접 표면을 때리는 부위 주변으로 금속 액체 풀(liquid pool)이 번져나가기 때문인 것으로 해석할 수 있다.

## 5. 결 론

미량 저울을 사용하여 전자빔으로 증발시킨 Gd 원자증기의 속도를 측정하였다. 가열 표면의 온도를 증가시키기에 따라 증기의 속도가 증가하는 것이 관측되었다. 2400-2500 K의 온도 조건에서 약 900 m/s의 속도를 보이며, 이 값은 단열팽창을 하는 증기가 가질 수 있는 최대 속도에 비해 약 100 m/s 더 빠른 값이다. 이 현상을 Gd 금속의 들뜬 에너지 준위에 분포한 원자의 내부 에너지가 단열팽창 과정에서 운동 에너지로 전환된다는 것으로 설명하였다. 100 개의 들뜬 에너지 준위를 고려하여 계산한 증기 속도가 실험 결과와 비교적 일치하고 있다는 것을 보였다.

## 참 고 문 헌

- [1] Y. Izawa, C. Lim, H. Ohara, H. Niki, and M. Hashida, J. Nucl. Sci. Technol. **39**, 426 (2002).
- [2] R. S. Raghavan, Phys. Rev. Lett. **78**, 3618 (1997).
- [3] P. T. Greenland, Contemp. Phys. **31**, 405 (1990).
- [4] U. Hefter and K. Bergmann in *Atomic and Molecular Beam Methods*, edited by G. Scoles(Oxford University Press, N.Y., Oxford, 1988) Chapt. 9.
- [5] N. Uetake, T. Asano, and K. Suzuki, Rev. Sci.

- Instrum. **62**, 1942 (1991).
- [6] S. Schiller, U. Heisig, and S. Panzer, *Electron Beam Technology* (Wiley, New York, 1982) Chapt. 3.
- [7] A. Roth, *Vacuum Technology* (3rd updated and enlarged edition, Elsevier, 1989) Chapt. 3.
- [8] A. Roth, *Vacuum Technology* (3rd updated and enlarged edition, Elsevier, 1989) Chapt. 2.
- [9] D. Miller in *Atomic and Molecular Beam Methods*, edited by G. Scoles (Oxford University Press, N.Y., Oxford, 1988) Chapt. 2.
- [10] W. Wang, R.H. Hammond, M.M. Fejer, and M. R. Beasley, *J. Vac. Sci. Technol. A* **17**, 2676 (1999).
- [11] K. Ogura and T. Shibata, *Rev. Sci. Instrum.* **65**, 3455 (1994).