

Micro-XRD에 의한 UO_2 핵연료의 미세영역에서 회절패턴 측정

The diffraction pattern measurement in the micro area of UO_2 fuel by micro-XRD

박양순 · 하영경 · 박순달 · 한선호 · 지광용 · 김원호

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

구성한 micro-XRD 시스템(빔크기: $4,000 \times 20 \mu\text{m}$)을 사용하여 UO_2 의 회절패턴을 측정하였을 때 피크들의 세기가 250 - 3600 counts 범위로 나타나 피크세기가 약 1/10로 감소하는 조사핵연료의 경우에도 측정이 가능할 것으로 판단되었다. UO_2 시편의 같은 부위를 3회 반복 측정하여 얻은 피크 정밀도는 $\pm 0.01^\circ$ 이었고, 격자상수 정밀도는 $\pm 0.0001 \text{ \AA}$ 로서 시료의 회절패턴 측정에 대한 micro-XRD의 재현성이 매우 좋음을 알 수 있었다. 또한, 균일한 UO_2 시료를 경방향($500 \mu\text{m}$ 간격)에 따라 7개의 부위에 대하여 얻은 격자상수(a)는 모두 $5.4681 \pm 0.0009 \text{ \AA}$ 범위의 값을 나타냈다.

Abstract

The intensity of X-ray diffraction peaks obtained on a UO_2 pellet was in the range of 250 - 3600 counts by developed micro-XRD (beam size: $4,000 \times 20 \mu\text{m}$). The peak ($\pm 0.01^\circ$) and lattice parameter results ($\pm 0.0001 \text{ \AA}$) obtained repeatedly at a same position of UO_2 pellet appeared precise. The lattice parameters of the homogeneous UO_2 pellet showed the same value, $5.4681 \pm 0.0009 \text{ \AA}$, at seven radial position ($500 \mu\text{m}$ intervals).

1. 서 론

경수로 핵연료(LWR-fuel)의 고연소, 장주기에 관한 연구가 진행됨에 따라 고연소 사용후핵연료의 미세영역에서 구조변화가 관측되어왔다. 이러한 현상은 펠렛의 가장자리(rim)에서 두드러지게 나타나며, 연소도에 따라 바깥표면으로부터 안쪽으로 수십에서 수백 micrometer 두께에 이른다. 두께가 매우 얇음에도 불구하고 이 rim 영역은 핵연료의 열적거동(thermal behaviour)과 원자로 작동조건에서의 기계적 반응(mechanical response) 그리고 중-장주기 저장 시 부식저항성(corrosion resistance)에 영향을 준다.

고연소시 핵연료의 특성에 영향을 미치는 물리적인 과정을 이해하기 위해 핵연료의 고연소에 따른 rim 영역에서의 격자구조변화 측정이 요구되었다. 조사핵연료의 rim 영역에서 UO_2 결정구조는 local burn up과 rim structure formation 그리고 Xe-depletion 등의 요인에 의해 조사핵연료의 경방향에 따라 변화 경향을 나타낸다[1].

이러한 결정구조변화는 X-ray diffraction(XRD) 시스템을 사용하여 측정하며, 조사핵연료(펠렛)의 rim 영역이 수백 μm 로 매우 좁기 때문에 30 - 50 μm 간격으로 측정하는 것이 요구된다. 이를 위해 X-선 빔의 폭은 10 - 20 μm 가 적합하다. X-선 미세빔을 생성하는 방법 중 capillary를 사용하여 바늘구멍형 빔을 만들기도 하며[2] 금속거울을 사용하여 선형 빔을 만들기도 한다[3]. 본 연구에서는 금속거울을 사용하여 X-선 빔의 폭이 20 μm 인 집광기와 시편의 경방향 미세이동이 가능한 시편미세이동 장치를 구성하였고, 기존의 일반 XRD에 부착하여 micro XRD를 구성하였다.

본 논문은 구성된 micro-XRD의 재현성을 측정하였으며, UO_2 시편의 미세부위 구조변화를 측정하여, 사용후핵연료 시편의 rim 영역에서의 구조변화 측정을 위한 micro-XRD 적용성 여부를 평가하였다.

2. 실험

2.1 Micro-XRD

기존의 활용중인 일반 XRD(D5000, BRUKER co.)에 미세빔 정렬장치와 시편 미세이동장치를 장착하여 micro-XRD를 구성하였다(그림 1). 측정조건은 divergence slit: $4,000 \times 20 \mu m$, detector slit: 1/Ni/0.6 mm, X-ray source: CuK_{α} (40 kV, 40 mA), measuring time/step: 40 sec. / 0.02° , 회절측정 범위(2θ): $20^\circ - 90^\circ$.

2.2 UO_2 핵연료 시편(8×3 mm)

실험에 사용된 시료는 조사전 UO_2 핵연료로서, 조사핵연료의 경방향 측정시 만들어질 시편 제조방법과 유사하게 제조되었다. 즉, 핵연료 펠렛을 수평방향으로 절단하여 두께가 3 mm인 디스크 형태로 만들고, 디스크의 중심을 지나도록 수직방향으로 절단한 후, 생성된 직사각형 면(8×3 mm)이 시편의 표면이 되도록 epoxy resin으로 몰딩하고, 핵연료 표면을 연마하여 실험에 사용하였다(그림 2).

2.3 실험방법

2.3.1 Micro-XRD 시스템의 재현성 측정

Micro-XRD 시스템의 측정재현성을 검토하기 위해 UO_2 시편의 같은 부위를 3회 반복 측정하여 피크 정밀도 및 격자상수 정밀도를 구하였다.

2.3.2 UO_2 핵연료의 경방향 이동 측정

UO_2 시편을 $500 \mu\text{m}$ 간격으로 이동하여 7개 부위에 대한 회절패턴을 측정하여 시편의 경방향에 따른 격자상수를 구하고 비교하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 Micro-XRD 시스템의 재현성 측정

미세빔($4,000 \times 20 \mu\text{m}$)을 사용하여 경방향 미세영역의 회절패턴을 측정하기 위한 최적 조건에서 UO_2 의 회절패턴을 측정한 결과가 그림 3에 나타나있다. 회절피크들의 세기는 250 - 3600 counts 범위이었다. 이 측정조건에서의 검출한계가 약 10 counts 이므로 피크세기가 약 1/10로 감소하는 조사핵연료의 경우에도 측정이 가능할 것으로 판단되었다. 'Powder' program을 사용하여 측정된 UO_2 의 회절패턴 값으로부터 격자상수(lattice parameter)를 구하였다.

Micro-XRD 시스템의 측정재현성을 검토하기 위해 시편의 같은 부위를 3회 반복 측정하여 UO_2 의 피크 정밀도 및 격자상수 정밀도를 구하였다. 피크 정밀도는 $\pm 0.01^\circ$ 이고, 격자상수 정밀도는 $\pm 0.0001 \text{ \AA}$ 로서 좋은 결과를 얻었으므로 시료의 회절패턴 측정에 대한 micro-XRD의 재현성이 매우 좋음을 알 수 있었다(그림 4).

3.2 UO_2 소결체의 경방향 이동 측정

균일한 결정구조를 갖는 UO_2 시편을 $500 \mu\text{m}$ 간격으로 7개의 부위에 대하여 micro-XRD(beam width: $20 \mu\text{m}$)를 사용하여 회절패턴을 측정한 결과, UO_2 의 격자상수(a)는 모두 $5.4681 \pm 0.0009 \text{ \AA}$ 범위의 값을 나타냈다(그림 5). 문헌상의 UO_2 격자상수(a) 값이 5.467 - 5.47 범위이므로 문헌 값

과 잘 일치함을 알 수 있었다.

4. 결 론

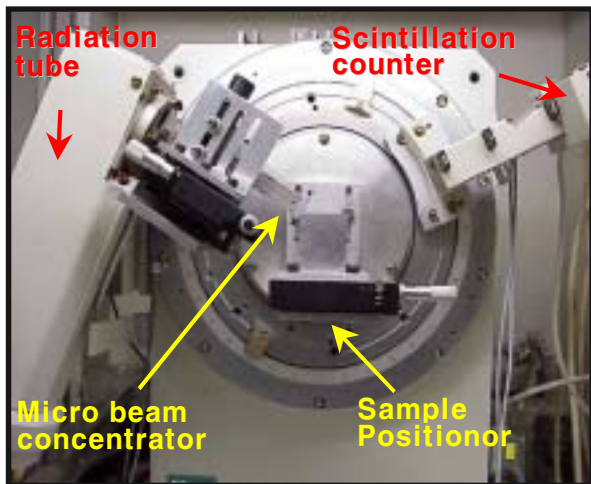
구성한 micro-XRD 시스템(빔크기: $4,000 \times 20 \mu\text{m}$)을 사용하여 UO_2 의 회절패턴을 측정하였을 때 피크들의 세기가 250 - 3600 counts 범위로 나타나 피크세기가 약 1/10로 감소하는 조사핵연료의 경우에도 측정이 가능할 것으로 판단되었다. UO_2 시편의 같은 부위를 3회 반복 측정하여 얻은 피크 정밀도는 $\pm 0.01^\circ$ 이었고, 격자상수 정밀도는 $\pm 0.0001 \text{ \AA}$ 로서 시료의 회절패턴 측정에 대한 micro-XRD의 재현성이 매우 좋음을 알 수 있었다. 또한, $500 \mu\text{m}$ 간격으로 7개의 부위에 대하여 회절패턴을 측정하여 얻은 UO_2 격자상수(a)는 모두 $5.4681 \pm 0.0009 \text{ \AA}$ 범위의 값을 나타내 경방향에 따른 구조변화가 없는 균일한 시료임을 확인할 수 있었다. 이상의 결과로부터 차폐시스템이 구성되면 사용후핵연료 시편의 rim 영역에서 구조변화 측정에 구성된 micro-XRD를 활용할 수 있을 것으로 판단하였다.


후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었음.

참고 문헌

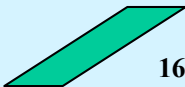
1. J. Spino, D. Papaioannou, "Lattice parameter changes associated with the rim-structure formation in high burn-up UO_2 fuels by micro X-ray diffraction", *J. Nuclear Materials*, 281, 146-172 (2000).
2. I.C. Noyan, P.C. Wang, S.K. Kaldor, J.L. Jordan-Sweet and E.G. Linger, "Divergence effects in monochromatic X-ray micro diffraction using tapered capillary optics", *Rev. Sci. Instrum.* 71, 5, 1991 (2000).
3. Dimitrios Papaioannou and Jose Spino "A microbeam collimator for high resolution x-ray diffraction investigations with conventional diffractometers", *Rev. Sci. Instrum.* 73, 7, 2659 (2002).



Beam size
Micro-XRD
 4 x 0.02 mm

(a) Micro XRD



Conv. XRD
 16 x 1 mm

(b) XRD

Fig. 1. Micro X-ray diffractometer apparatus with microbeam concentrator alignment system and sample micro translator system(a). Conventional X-ray diffractometer(b)

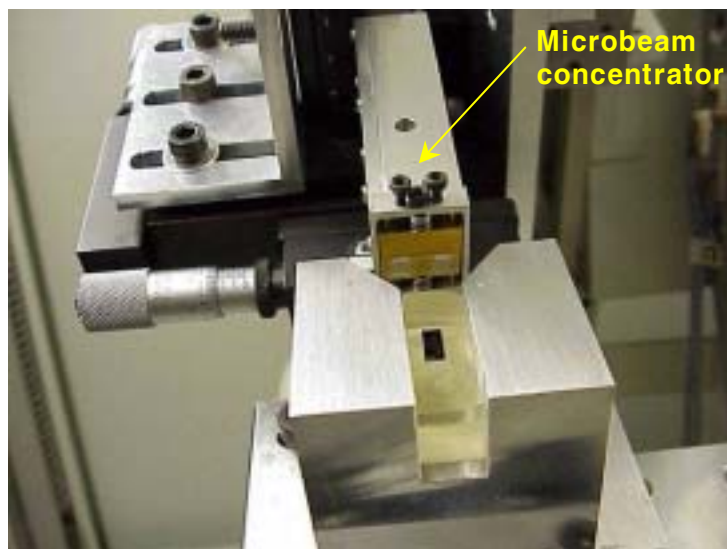
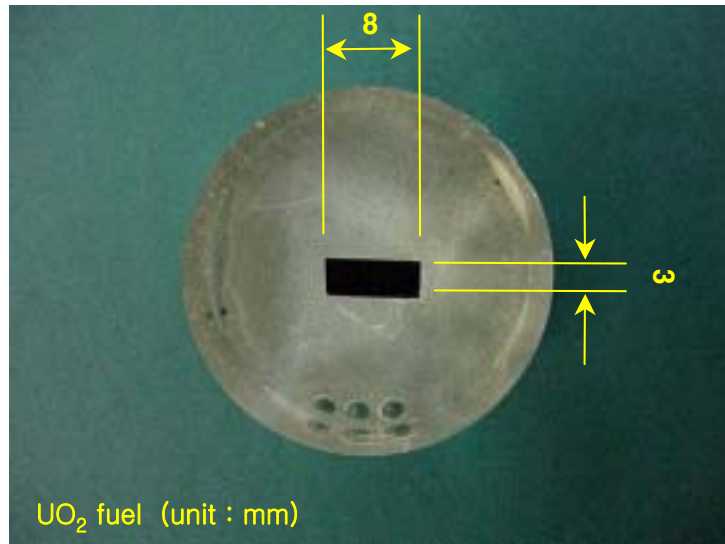
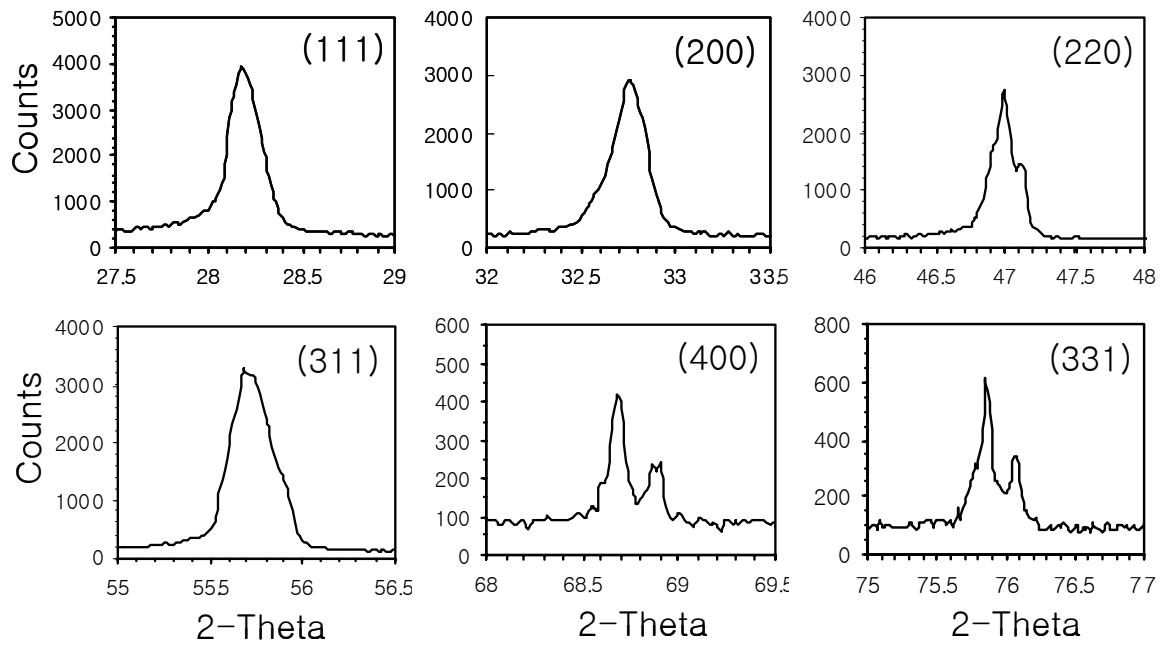


Fig. 2. UO₂ specimen on a sample micro translation system.



X-ray beam size : 4,000 X 20 mm
 Beam concentrator : Ni mirror
 Measuring time / step : 40 sec./ 0.02°
 Detector slit : 1 / Ni / 0.6 mm
 Tube power : 40 kV, 40 mA

Fig. 3. Diffracted peaks of UO_2 fuel specimen by micro-XRD system

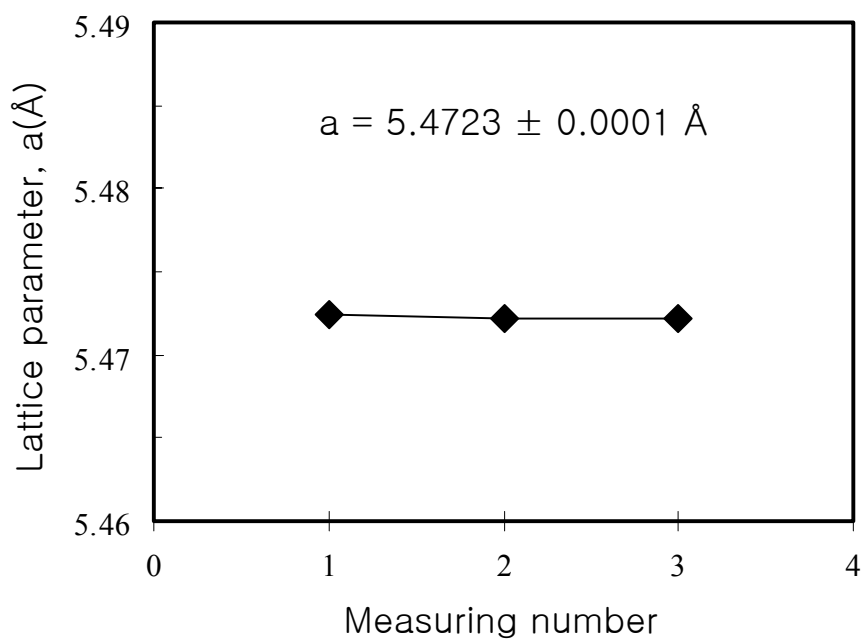


Fig. 4. Lattice parameters in a same position for UO₂ sample

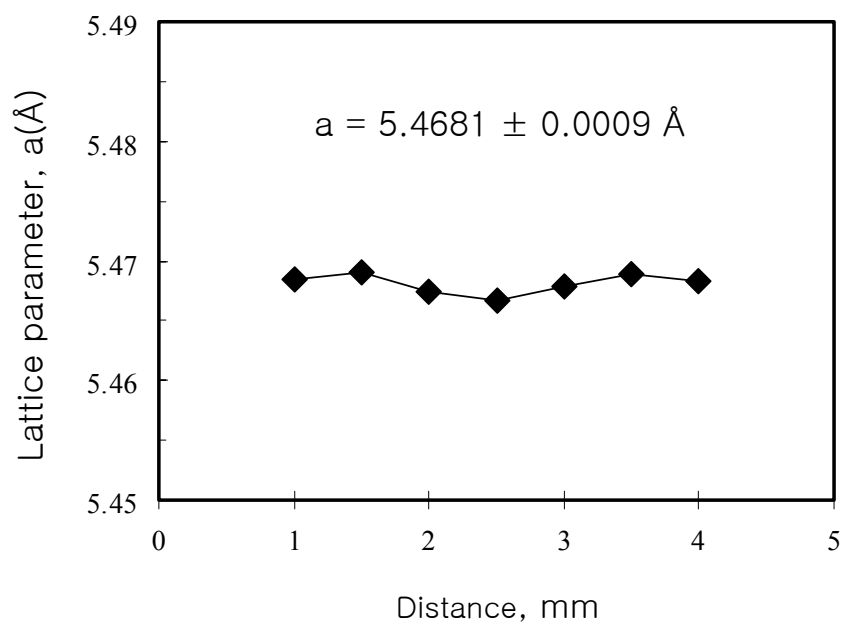


Fig. 5. Lattice parameters at various distances for UO_2 sample