

천공장치를 사용한 고출력 핵연료의 EPMA 시편제작

Fabrication of Irradiated fuel EPMA specimen by punching system

정양홍, 유병옥, 주용선, 송웅섭, 홍권표

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

고출력 핵연료의 EPMA 시험시 시험 시편의 이송 및 기기 장착과정에서 시험자의 과 피폭과 방사선 조사 효과에 따른 이차전자상의 산란 등 여러 가지 제약조건을 가진다. 본 연구는 고연소도 핵연료의 EPMA 분석시 수반되는 상기 조건들을 감쇄시키기 위해 핵연료 시편을 최소화 할 수 있는 방법을 개발하였으며, 그 시험과정을 기술하였다. 또한 핵분열시 발생하는 핵분열 생성물(fission product)의 정량시험을 위해 인위적으로 비 방사성 핵분열 생성물을 첨가한 모의 핵연료(simulated fuel)에서 분석한 조성과 ORIGEN Code에 의해 계산된 핵분열 생성물의 조성을 비교하여 이로부터 얻은 자료를 근거로 고연소 핵연료의 핵분열 생성물을 분석하였다.

Abstract

Samples from the HANARO fuel with average burn-up rate of 70 at% in the maximum liner power of 66.97 kW/m were examined. Electron probe microanalysis (EPMA) was used to study the fission product material in the mini-plate fuels matrix. The fuel punching system developed by Irradiated Materials Examination Facility(IMEF) was used to make these samples for EPMA. Through this system the very small and thin specimen which is 0.51 mm in diameter and 1.3 mm in thickness respectively was made to protect the EPMA operator from high radioactive fuel and to minimize the absorbed dose rate less than 150 mSv/h. It is not easy to make this small EPMA specimen in the hot cell by manipulators but this kind of sample fabrication system through fuel punch system is succeeded and established.

1. 서 론

고 방사능을 띤 핵연료를 조사재시험시설에서 운영중인 EPMA(Electron Probe Micro Analysis)를 이용하여 분석을 하기 위해 일차적으로 요구되는 조건은 방사선 선량은 수 Sv/h 이하로 제한하여야 한다. 기기의 제한 선량은 1 Ci 이지만 산화물 핵연료의 전기전도

도가 매우 낮아($3 \times 10^{-1} \sim 4 \times 10^{-8} \text{ /ohm.cm}$)[1] 시료에 입사된 전자가 이동하지 못해 생기는 charging 현상을 방지하기 위해 부가되는 선행작업은 작업자의 손으로 직접 이루어 행하여 한다. 또한 시편을 기기에 장착하기 위해 요구되는 작업을 수행할 때 핵연료 시편의 방사선량이 과다할 경우 시험자의 과 피폭을 방어하기가 어렵다. 본 연구에서는 고연소 핵연료를 상기 조건에 부합하는 시료의 크기로 제작할 수 있는 장치의 개발과, 개발한 장치를 이용하여 채취한 시편으로 시료의 파단면 분석 및 연마면의 정량분석 시험을 동시에 수행할 수 있는 기술 개발에 그 목적을 두었으며 시험결과를 제시하였다.

2. 실험방법

본 시험에 사용된 시료는 하나로 원자로에서 최대 선출력이 66.97 kw/m이고, 70 at%의 평균 연소도를 갖는 U_3Si_2 판상 핵연료(그림 1)다. 핵연료 천공 장치를 (그림 2. 3) 이용하여 Al 판상에 U_3Si_2 로 원심분무 된 중심부위를 선택하여 미세 절단된 시편을 $\Phi 0.51 \times 1.3 \text{ mm}$ 의 두께로 천공하여 시험시편으로 채취하였다. 판상 핵연료가 아닌 일반 핵연료인 경우 미세 절단기로 가능한 얇은 두께로 시편을 절단하여 (2~3 mm 이하) 고 방사능에 의한 작업자의 피폭을 억제토록 하였다. 이 방법은 핫셀(hot cell)에서 원격조종기(manipulator)를 사용하여 제한된 크기의 시편을 제작하기 위해 몇 차례 미세 절단 및 마운팅 과정과, 전도성 레진을 주입하던 까다로운 종래의 과정과는 달리 채취하고자 하는 부위를 핵연료 편칭 장치에 인입하여 구동 모터를 기동하면 단 시간에 제한된 크기의 시료를 제작할 수 있는 장점을 갖고 있다. 제작된 시료를 파단면의 분석과 연마면의 정량분석을 위해 glove box로 이송하여 핀셋 및 절단기를 이용하여 시료를 $\frac{1}{2}$ 로 절단한다(그림3). Glove box 내에서 시료를 절단할 때 피폭되는 부위는 손목 부위에 집중되기에 작업자의 과피폭에 대한 위험부담을 덜 수 있다. 절반으로 절단한 시편 중 하나는 파단부위 관찰용 시편으로 사용하고, 나머지 하나는 다시 hot cell로 이송하여 전도성 레진으로 mounting 작업을 행한다. 파단면 관찰을 위한 시편인 경우, 기기의 시편 holder에 silver paint를 부어 silver paint가 응고하기 전에 시료를 붙인다 (그림 5). 이는 시편 홀더에 충분히 묻힌 silver paint가 표면활성(capillary active)현상을 일으켜 시료 내부로 침투하여 들어가므로 시료표면에 입사된 빔의 전도체 역할을 하는 것으로 믿어진다.[2] 연마시편의 제작은 silver paint를 충분히 묻힌 시료를 진공기에 넣고 시료 내부로 silver paint가 충분히 침투하게 하여 시료의 전도성을 보강시켰다. 진공장치를 거친 시료를 CH_4 의 조성을 갖는 전도성 레진으로 Hot press mounting(150°C , 6 bar) 장치로 mounting 한 후 연마하였다. 시편 이송장치를 이용하여 납 차폐 벽이 설치되어 있는 EPMA실로 옮겨 tung기구를 이용하여 시편을 기기에 장착했다.

3. 실험 결과 및 토의

그림 6은 핵연료 천공장치를 사용하여 제작된 핵연료 파단 시편의 개요를 나타낸다. 시편 홀더에 충분히 묻힌 silver paint가 표면활성(capillary active)현상을 일으켜 시료 내부로 침투하여 들어가 시료표면에 입사된 빔의 전도체 역할을 감당하므로 전기전도도가 지극히 낮은 핵연료의 이차 전자상에서 나타나는 charging현상은 보이지 않는다. 시편의 가장자리 일부분이 silver paint에 의해 침식되는 현상을 확인할 수 있었으나, 극히

미미한 상태이기에 핵연료시편의 파단 부위 관찰에서 만족할만한 결과를 얻을 수 있었다. 그림 7은 그림 6의 특정부위를 확대한 사진이다. 사진에서 판상 핵연료의 심재(U_3Si_2) 및 반응층(U_3SiAl_{15}) 부분을 관찰할 수 있었다. 반응층의 두께는 조직시험에서 관찰된 $1\sim 2\mu m$ 로 반응층의 경계를 뚜렷이 확인할 수 있었다. 그림 8은 천공된 시편을 연마한 사진이다. 핵연료의 심재에서 관찰되는 기공의 분포와 크기, 반응층의 조성 및 핵분열 생성물 등을 분석하기 위해 시료의 표면을 연마한 후 파단 시편과 같은 이송과정을 거쳐 시편을 관찰하였다. 파단 시편에서 관찰된 기공과 반응층의 두께는 파단면의 조건에 따라 다양한 형상을 나타내지만, 연마한 시편의 사진 8에서 관찰된 반응부위는 일정치 못하고 가장자리나 특정부위에 집중된 특성을 확인할 수 있었다. 사진 9는 심재의 조성을 분석하기 위한 선행작업의 하나로 U-Trace를 보여주고 있다. $60\mu m$ 크기의 전 영역에 비교적 균질한 분포를 나타내는 U의 조성을 확인할 수 있었던 것은 시료 표면이 균일하게 연마되었고, 또한 전기 전도도가 시험 조건에 충족할 수 있는 여건을 갖고 있음을 증명하는 결과로 간주된다.[3]

시편의 조건이 충족된 상태에서 심재 및 반응층의 조성을 분석하였고, 특히 이번 연구의 과제인 핵분열 생성물의 분석을 위해 표1에서 보여주듯이 선행 작업을 실시하였다. .

핵연료를 조사하면 30개 이상의 핵분열 생성물이 생긴다. 이러한 핵분열 생성물은 연료의 물성과 thermal conductivity, thermal diffusivity, gas release, leaching behaviour 등에 직접적인 영향을 미친다. 이번 연구에서는 핵분열 생성물 분석결과와 건전성을 확보하기 위해 생성물의 조성을 수치적으로 계산한 ORIGEN Code를 기준으로 천연우라늄에 인위적으로 핵분열 생성물을 첨가한 모의 핵연료(simulated fuel)의 분석을 선행하여 그 결과를 표1에 나타내었다. 표1에서 모의 핵연료의 핵분열 생성물의 조성은 상용발전소에서 사용되는 연료의 조성이며 그 분석 결과가 화학분석법에 의한 결과와 근사한 수치를 보여주고 있다.

핵분열 생성물 중 표준시편을 구할 수 없는 Pu, Am 등은 분석에서 제외하였으며, 산화물의 구조를 갖는다고 알려진 Nd는 pure Nd의 구조로 존재함을 증명하였다[4].

하나로에서 조사된 고출력 판상 핵연료 심재의 핵분열 생성물을 표2에 나타내었다. 표1과 표2의 조성을 비교하면 표2의 조성이 월등히 높은 것을 확인할 수 있다. 특히 시료의 전 영역에 골고루 분포되어 조사량의 기준이 되는 Nd의 경우 1.98 wt% / 0.48 wt%로 5배 이상의 차이를 갖는다. 이러한 조성 값들은 핵연료에 조사된 선출력과 평균 연소도 등을 유추할 수 있는 자료로 유용한 가치를 갖는다. 그림 10은 판상 핵연료의 원심 심재에서 반응층까지 $4\mu m$ 의 영역에 핵분열 생성물의 분포를 40 지점에 걸쳐 균일하게 분석하여 그 결과를 나타내었다[4]. $1\mu m$ 의 영역에 10 point씩 분석하였으며, 그림에서 12지점부터 40지점까지가 반응층 영역이다. 시험부위 37지점에서 나타난 핵분열 생성물의 밀집현상은 기지재료로 사용된 Al의 벽에 확산이 차단된 것으로 추정되며 추후 연구 및 검토하여야 할 과제이다.

4. 결 론

사용후 핵연료의 EPMA 시험시 작업자의 과 피폭을 방어하기 위한 시편제작에 많은 제약이 따른다. 특히 고 선량의 방사선이 방출되는 핵연료의 시편제작은 핫셀(hot cell)에서 원격조종기(manipulator)를 사용하여 수행하므로 작업에 많은 어려움이 따른다.

이에 본 연구는 핵연료 천공장치를 사용하여 $\Phi 0.51 \times 1.3\text{ mm}$ 의 두께의 시료를 천공하는데 성공하여 그 시험과정을 기술하였다. 지금까지 일반적으로 핵연료 시료를 제작하기 위해 복잡하고 어려운 과정을 수 차례 반복하여 제작된 시편조차 전기전도도의 불량과 고 방사선을

제어가 까다로웠고, 또한 연료의 파단면 관찰은 거의 불가능하였다.

핵연료 천공 장치를 사용하면 판상 핵연료 뿐 만 아니라 모든 핵연료의 시편을 편리하게 제작할 수 있다. 천공장치를 이용하여 상용 핵연료 시편을 제작할 경우, 시편의 두께를 미세 절단기로 절단하여 (2~3 mm 이하) 원하는 시험부위를 천공한 다음 시험용 시료를 채취하여 앞서 기술한 방법으로 시험하면 고 방사선량에 의한 작업자의 피폭을 제어할 수 있다. 핵연료 천공장치를 이용하여 채취한 시료의 파단시편을 관찰한 결과 선명한 이차 전자상을 얻을 수 있었다. 또한 상기 기술로 제조된 연마시편에서 심재의 정량분석과 반응층에서 핵연료 생성물의 조성을 정량화 하여 그 결과를 기술하였다.

본 연구에서 제시된 시험방법은 상용발전소의 사용 후 핵연료뿐만 아니라 고출력 핵연료의 EPMA 시료 제작시 유용하게 사용될 수 있을 것이다.

참고문헌

- [1] J. Belie. "Uranium Dioxide : Properties and Applications" , USAEC, 1967
- [2] IAEA, "Behavior of Spent Fuel and Storege Facility Component during Long-term Storage" . IAEA-TECDOC-637, 1991.
- [3] 유병옥, "Post Irradiation Examination of Mini-Plate Nuclear Fuel", KAERI-TR1896, 2001.
- [4] 정양홍, "U₃Si 조사핵연료의 EPMA분석" KAERI-MR-353, 2000.

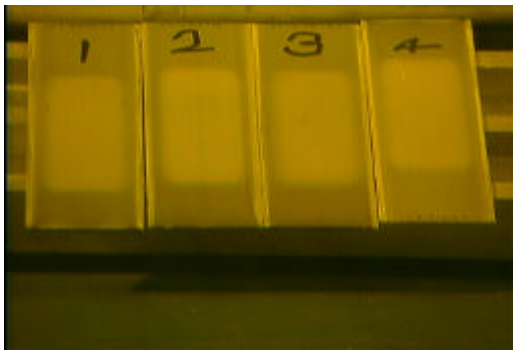


그림 1. 핵연료시편 제원 (130×35×1.3mm).



그림 2. 핵연료 천공장치.

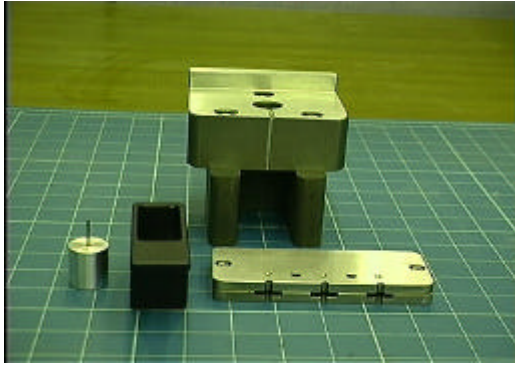


그림 3. 핵연료 천공기구.



그림 4. 시편절단 작업.



그림 5. 시편 이송장치.

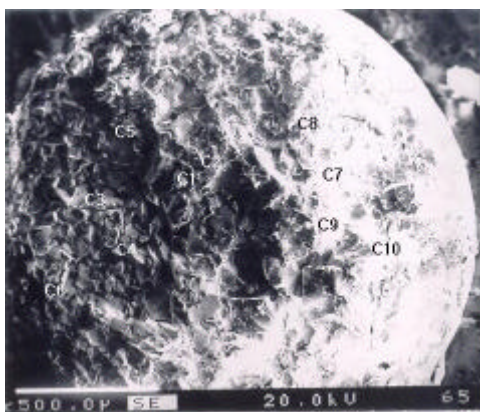


그림 6. 파단시편 개요.

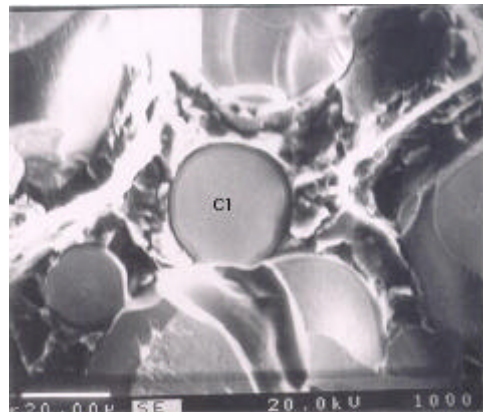


그림 7. 파단면 사진.

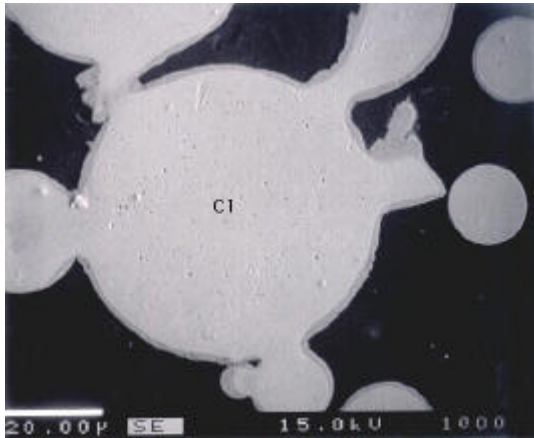


그림 8. 연마면 사진.

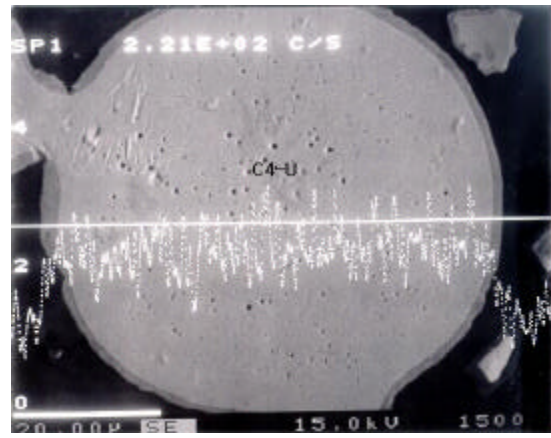


그림 9. U-Trace.

표 1. 상용핵연료의 생성물 조성

핵분열 생성물	화학분석 결과	EPMA 분석결과
Nd	0.480	0.476
Sr	0.076	0.084
Y	0.050	0.052
Zr	0.397	0.367
Pd	0.028	0.187
Cd	0	0
Ru	0.239	0.269
Rh	0.073	0.049
Ba	0.203	0.218
La	0.155	0.143
Mo	0.449	0.392
Ce	0.233	0.278

표 2. 관상 핵연료 심재 부위 핵분열 생성물

핵분열 생성물	Weigh %		Atomic %	
	aver	dev	aver	dev
Nd	1.908	0.057	5.244	0.172
Zr	1.88	0.079	8.163	0.181
Sr	0.431	0.024	1.949	0.097
Mo	1.816	0.074	7.501	0.219
Ru	0.97	0.024	3.805	0.125
Pd	0.299	0.043	1.112	0.151
Ba	0.56	0.053	1.617	0.145
La	0.381	0.047	1.086	0.136
Ce	1.05	0.035	2.97	0.113

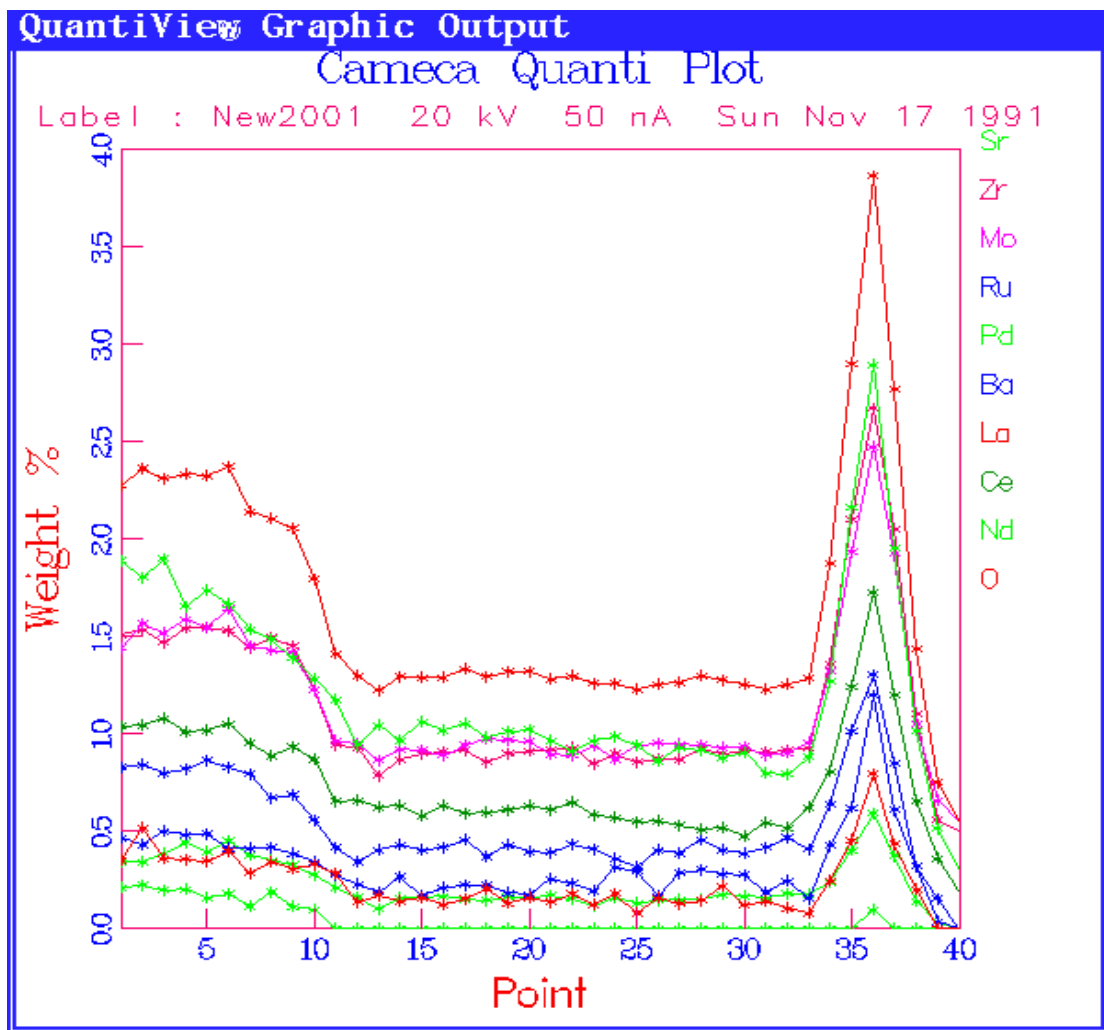


그림 10. 반응층의 핵분열 생성물의 분포도.