

UO₂ 소결체에 대한 XRD 측정면적 한계분석

Limit of the measurement area for sintered UO₂ using the XRD of general optics

박양순 · 김종구

한국원자력연구소, 원자력화학연구팀
대전광역시 유성구 덕진동150

요 약

특별한 X선 집광 optics(X선 concentrator)를 사용하지 않은 일반 optic조건 (X-ray tube: 40 kV, 40mA; aperture diaphragm: 1mm; detector diaphragm: 0.1mm; scintillation counter)에서 UO₂ 소결체의 측정면적의 한계를 평가하였다. X-ray diffractogram의 분별정도(resolution) 및 검출세기를 고려하여 UO₂ 소결체 측정을 위한 최적의 aperture, detector slit의 크기를 결정하였다. 측정면적을 4.85x6, 4.85x3, 4.85x1.5, 4.85x0.75 (mm x mm)으로 감소시키면서 X선 검출세기를 측정하였다. 0.04° /sec의 scanning 조건에서 측정면적 한계값은 1.62 mm² 이었다.

Abstract

Limit of the measurement area for sintered UO₂ using X-ray diffraction(XRD) of general optics without any special beam collimator was investigated. Optimum slit widths of the aperture (divergence) and detector was determined considering the peak resolution and intensity of X-ray diffractogram. The intensities were measured depending on the area of sintered UO₂: 4.85x6, 4.85x3, 4.85x1.5, 4.85x0.75 (mm x mm). The limit of the measurement area was 1.62 mm² (S/N = 3).

1. 서론

최근의 고연소핵연료에 대한 ceramography에 의하면 저연소에서 나타나지 않는 특이한 미세구

조의 변화가 측정된다[1]. 핵연료의 고연소구조(High burn-up structure)의 규명을 위해서는 10 ~ 20 μm 범위의 좁은 영역에 대한 측정방법이 요구된다. ITU(Institute for Transurium, JRC, EU)에서는 이러한 고연소핵연료의 미세구조 규명을 목적으로 Micro X-선 회절(XRD) 기술을 개발하여 rim 형성과 관련된 격자상수변화를 측정하였다[2]. Micro XRD 기술을 위해서는 X선의 beam 크기가 10 μm 내외이고 UO_2 소결체의 좁은 영역에서 회절된 X선 photon수가 검출한계 이상이 되도록 충분히 강한 X선 (beam)이 필요하다. 따라서 최근 X-ray tube로 부터의 X선을 집광하고, 작은 beam 크기를 제공하는 Micro-beam collimator의 개발이 활발하다[3~5]. 국내에서도 현재 고연소핵연료 개발이 진행 중에 있고 향후 이에 따른 PIE 시험을 위하여 많은 준비를 하고 있다.

본 논문은 고연소핵연료 국부 연소도와 직접적으로 관련이 있는 미세부위의 격자상수 변화의 측정이 가능한 XRD의 Micro beam collimator 개발을 위해 수행한 기초실험의 결과이다. 이 실험은 특별한 X선 집광 optics (X선 concentrator)를 사용하지 않은 일반 optic조건 (X-ray tube: 40 kV, 40mA; aperture diaphragm: 1mm; detector diaphragm: 0.1mm; scintillation counter)에서 UO_2 소결체의 측정면적의 한계를 평가하였다. 이 평가 결과는 조사핵연료에 적용하기 위해 필요한 Micro beam collimator의 성능(집광비) 결정에 중요한 자료이다.

2. 실험

2.1 UO_2 소결체

U_3O_8 분말을 직육면체형의 틀(die)에서 압분한 후 1700 $^\circ\text{C}$, 순수 H_2 흐름의 분위기에서 환원처리한 직육면체형 UO_2 소결체(10.22x4.85x3.0 mm)를 사용하였다.

2.2 실험방법

2.2.1 Diffractogram의 분별정도(resolution) 및 검출세기를 고려할 때 XRD에 의한 UO_2 소결체 측정을 위한 최적의 divergence 및 detector slit의 크기를 결정하기 위하여 CuK_α (40 kV, 40 mA), Ni filter, 0.02 $^\circ$ /sec의 scanning 조건으로 Fluorite 구조의 주 피크가 나타나는 $2\theta = 27.5^\circ \sim 29.5^\circ$ 에서 다음의 측정을 실행하였다.

2.2.1.1 detector slit width를 0.1 mm로 고정하고 divergence slit width를 0.05, 0.2, 0.6, 1 mm로 바꾸면서 측정하였다.

2.2.1.2 divergence slit width를 0.05 mm로 고정하고 detector slit width를 0.1, 0.2, 0.6, 1, 2 mm로 바꾸면서 측정하였다.

2.2.2 divergence slit width: 1 mm, detector slit width: 0.1 mm (2.2.1 의 결과) 및 CuK_α (40 kV, 40 mA), Ni filter, 0.04 $^\circ$ /sec의 scanning 조건으로 UO_2 소결체를 18 μm 알루미늄 foil을 사용하여 측정면적 외의 부위를 차폐 조절하여 4.85x6, 4.85x3, 4.85x1.5, 4.85x0.75 (mm x mm)의 4각

형 window로 변화시키면서 X선 diffractogram을 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1.에서 divergence slit width가 커짐에 따라 UO_2 주 피크($2\theta = 28.45^\circ$)의 검출세기가 증가함을 보이고 있고 slit width, 0.1 ~ 1 mm 범위에서 일차관계로 비례하고 있음을 보인다(Fig. 2). 그리고 Fig. 3.은 detector slit width가 증가함에 따라 마찬가지로 $2\theta = 28.45$ 에서 UO_2 주 피크의 세기가 증가함을 보이고 있고 역시 0.1 ~ 1 mm 범위에서 일차관계로 비례하고 있음을 보인다(Fig. 4). XRD 스펙트럼의 분별정도 (resolution) 측면에서 보면 Fig. 1.의 경우 divergence slit width의 크기가 클수록 검출세기의 증가와 함께 resolution이 좋아지는 경향을 보였고, Fig. 3의 경우 detector slit width가 클수록 검출세기가 증가하는 반면 스펙트럼 resolution이 나빠지는 경향을 보였다. 결과적으로 UO_2 소결체의 측정면적 한계측정을 위한 최적조건으로 divergence slit width는 1 mm, detector slit width는 0.1 mm을 결정하였다. Fig. 5는 최적의 측정 조건에서 UO_2 측정면적에 따라 $0.04^\circ/\text{sec}$ 의 scanning 조건($2\theta = 10^\circ \sim 90^\circ$)으로 측정한 결과이다. 전형적인 UO_2 구조에 해당하는 피크는 측정면적의 감소에 따라 함께 감소하는 경향을 보였다. 전형적인 Fluorite 구조 피크 외에 측정면적에 관계없이 뚜렷하게 보이는 $2\theta = 45^\circ, 65.5^\circ$ 피크는 측정면적 변화를 위한 차폐체로 사용한 알루미늄 foil에 의한 것이다. 측정면적에 대한 검출세기의 관계를 도기한 결과(Fig. 6)에 의하면 정확하게 1차에 비례하였다($R^2 = 0.998$). 검출한계를 $S/N = 3$ ($N = 4 \text{ CPS}$)으로 설정할 때 검출 가능한 피크 $S = 12$ 가 산출되며 Fig. 6에서의 측정면적(X) - 검출세기(Y) 관계식, $Y = 7.403 X$ 을 이용하면 측정가능 면적 $\sim 1.62\text{mm}^2$ 을 예상할 수 있다. 이 값은 X-선원으로 $\text{CuK}\alpha$ (40 kV, 40 mA), divergence slit width: 1 mm, detector slit width: 0.1 mm 일 때 $0.04^\circ/\text{sec}$ 의 scanning 조건에서의 결과로 scanning time을 보다 길게 하는 경우 측정면적 한계를 보다 낮출 수 있을 것으로 예상된다. 그러나 최종 측정대상인 조사핵연료, 특히 고연소핵연료는 본 실험에서의 UO_2 소결체에 비하여 그 결정성이 현저하게 떨어질 것이고 따라서 시편에 입사된 X선 beam에 대해 Bragg 식을 충족하는 격자는 상대적으로 크지 못하여 detector에 검출될 확률은 더욱 떨어질 것이다. 이러한 점을 감안할 때 X선의 세기를 증가시키는 노력으로, 보다 높은 출력의 X선 tube의 사용 및 X선-집광 optics 기술의 확보가 중요하다.

4. 결론

본 연구를 통하여 특별한 X선 집광 optics(X선 concentrator)를 사용하지 않은 일반 optic조건 (X-ray tube: 40 kV, 40mA; aperture diaphragm: 1mm; detector diaphragm: 0.1mm; scintillation counter; $0.04^\circ/\text{sec}$ 의 scanning 조건)에서 UO_2 소결체의 측정면적의 한계값은 1.62 mm^2 임을 알

았다. 최종 측정대상이 고연소 핵연료내에 수십 μm 이내의 미세구조임을 감안할 때 높은 X선 집광능(concentrator)을 갖춘 Micro beam collimator의 개발이 필수적이다.

후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었음.

참고 문헌

1. M. Coquerelle, J. Spino, "Limits and Prospects for High Burn-up LWR fuels", ITU Annual Report 1996, (EUR 17296) p29.
2. 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).
3. 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).
4. P. Dhez, P. Chevallier, and T.B. Lucatorto "Instrumental aspects of X-ray micro beams in the range above 1 keV", *Rev. Sci. Instrum.* 70, 4, 1907 (1999).
5. J.H. Underwood, A.C. Thompson, J.B. Kortright, K.C. Chapman, and D. Lunt, "Focusing X-rays to a 1 μm spot using elastically bent, graded multilayer coated mirrors", *Rev. Sci. Instrum.* 67, 9, 3359 (1996).

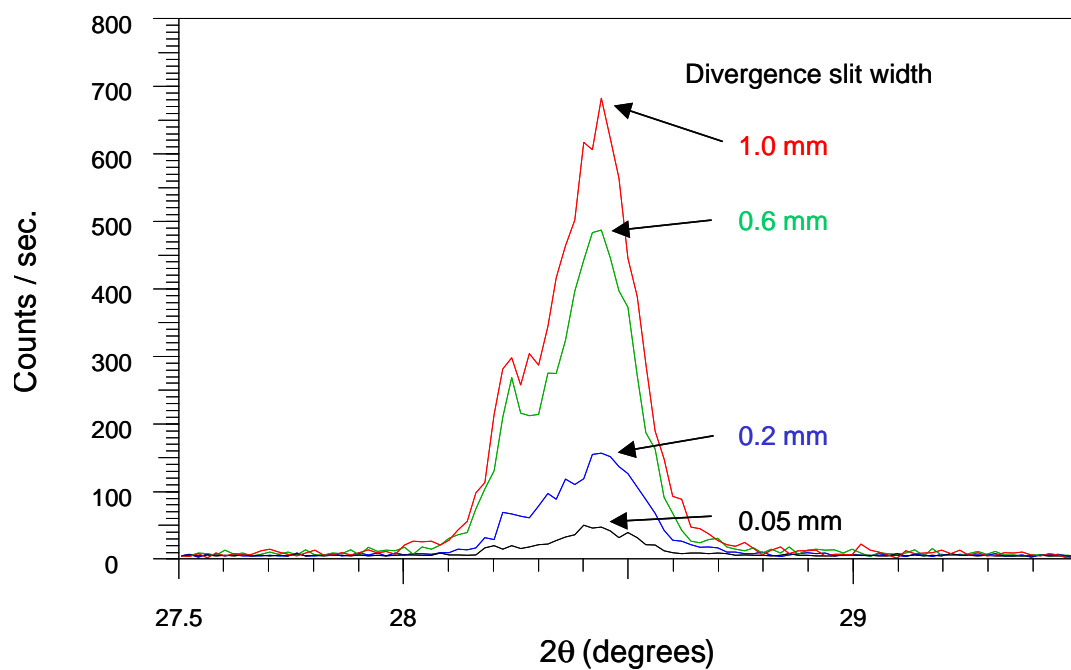


Fig. 1. XRD peak($2\theta = 28.45^\circ$) of UO_2 on various divergence slit width.

Divergence slit width : 0.05 mm - 1 mm; detector slit width : 0.1 mm;
 CuK_α source; 40 kV; 40 mA; scan rate : $0.02^\circ/\text{s}$

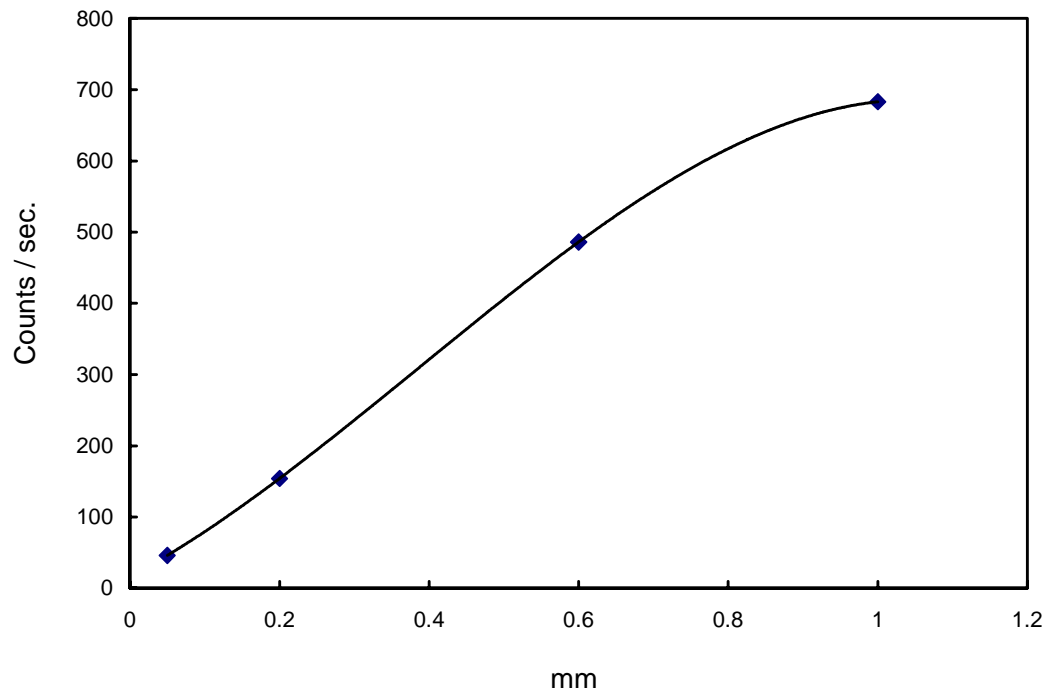


Fig. 2. XRD peak($2\theta = 28.45^\circ$) intensity of UO_2 on various divergence slit width.

Divergence slit width : 0.05 mm - 1 mm; detector slit width : 0.1 mm;
 CuK_α source; 40 kV; 40 mA; scan rate : $0.02^\circ/\text{s}$

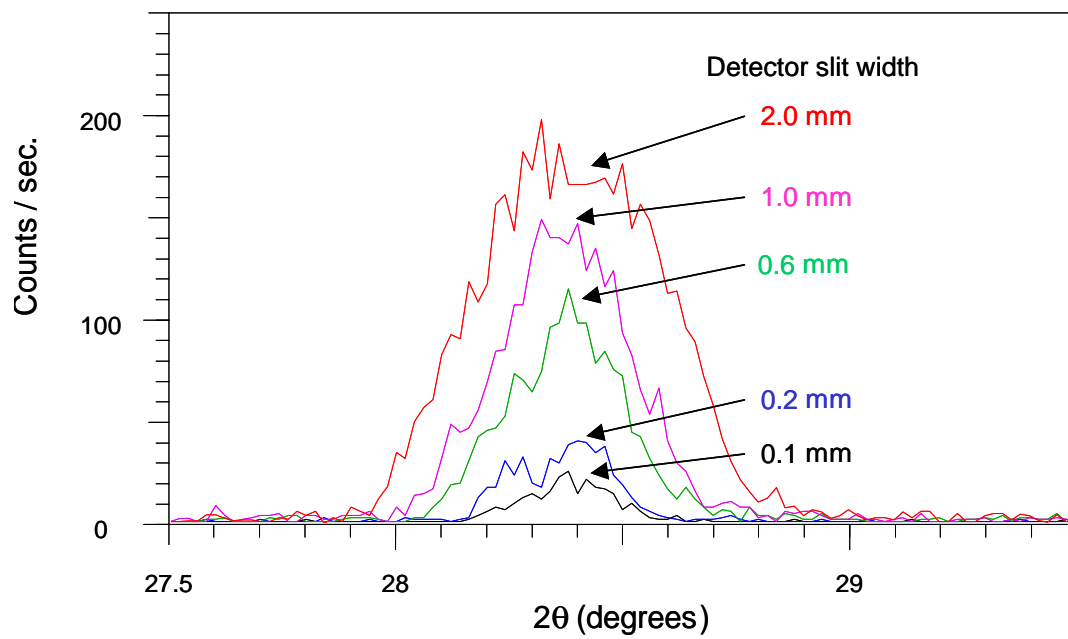


Fig. 3. XRD peak($2\theta = 28.45^\circ$) of UO_2 on various detector slit width.

Divergence slit width : 0.05 mm; detector slit width : 0.1 mm - 2 mm;
CuK $_{\alpha}$ source; 40 kV; 40 mA; scan rate : $0.02^\circ/\text{s}$

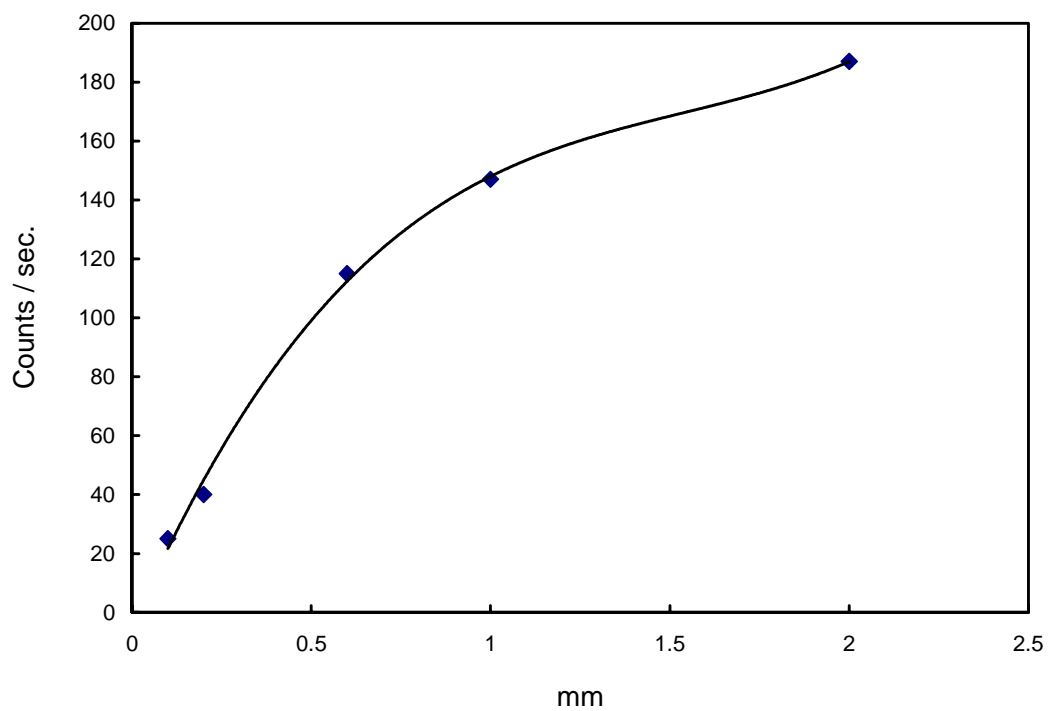


Fig. 4. XRD peak($2\theta = 28.45^\circ$) intensity of UO_2 on various detector slit width.

Divergence slit width : 0.05 mm; detector slit width : 0.1 mm - 2 mm;
 CuK_α source; 40 kV; 40 mA; scan rate : $0.02^\circ/\text{s}$

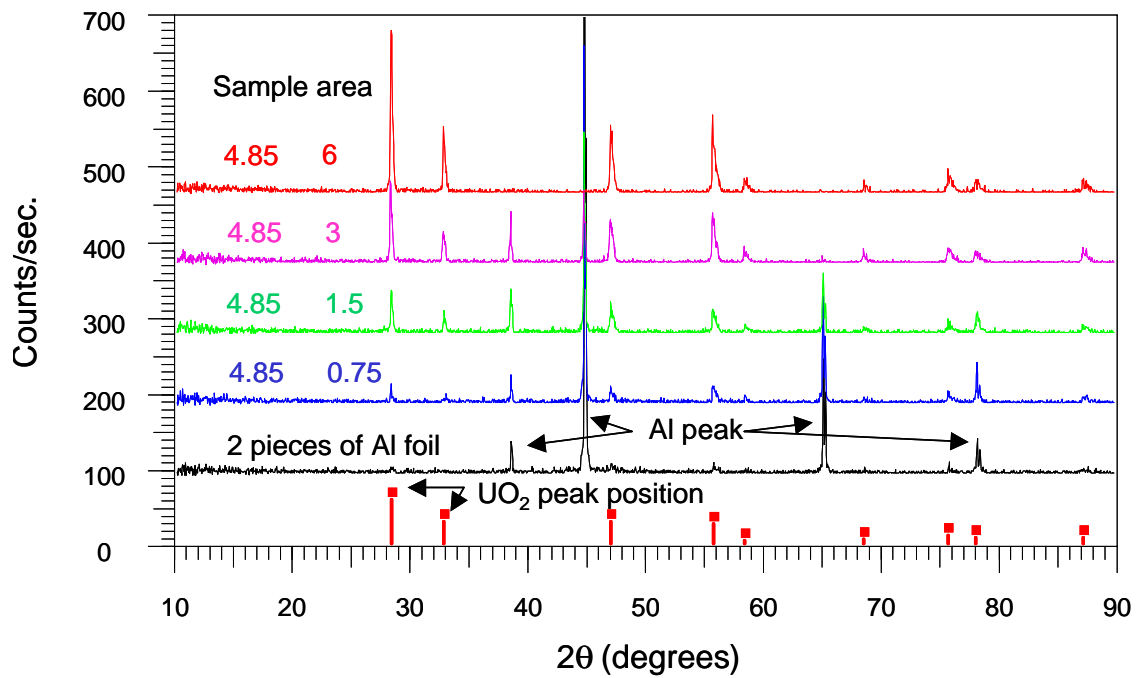


Fig. 5. XRD pattern of UO_2 pellet on various area.

Divergence slit width : 1 mm; detector slit width : 0.1 mm;
 $\text{CuK}\alpha$ source; 40 kV; 40 mA; scan rate : $0.04^\circ/\text{s}$

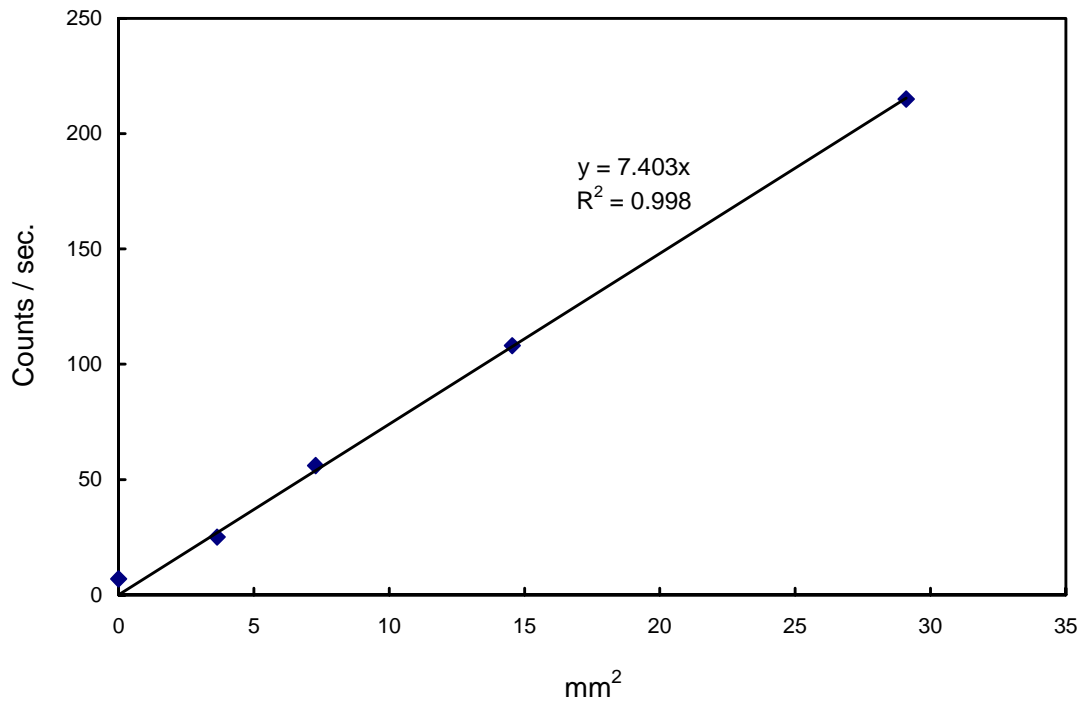


Fig. 6. XRD peak($2\theta = 28.45^\circ$) intensity of UO_2 on various area.

Divergence slit width : 1 mm; detector slit width : 0.1 mm;
CuK $_{\alpha}$ source; 40 kV; 40 mA; scan rate : 0.04 $^\circ$ /s