중성자 회절 선폭 측정에 의한 핵연료 분말의 미세조직 해석
(Microstructural Analysis of Nuclear Fuel Powders by Neutron Diffraction Line Broadening Measurement)

한국원자력연구소 류호진*, 강권호, 문제선, 송기찬, 최용남, 한영수

1. 서론 :

UO_2 등 산화물 핵연료 분말의 미세조직은 분말 제조 공정과 밀링 등 분말 처리 공정에 따라 변화되며 핵연료 소결체 제조에 있어서 소결 밀도와 수축율 등을 제어하는 인자가 된다. 따라서 주사전자현미경(SEM) 및 투과전자현미경(TEM)을 사용한 직접 관찰법과 BET법을 사용한 비표면적 측정 및 Laser scattering법을 통한 입자크기분석법등이 널리 사용되고 있다.

X선 및 중성자 회절선폭의 분석을 통해 분말의 미세조직을 분석하는 방법은 Scherrer에 의해 미소결정(crystallite)의 크기를 구할 수 있는 방법이 이론적으로 제시된 이후[1], 현재까지도 분말재료와 박막재료를 포함한 재료공학 여러 분야에서 널리 사용되고 있으며 나노재료의 결정크기 측정에도 적용되고 있다.

반가폭(FWHM) 또는 적분폭(integral breadth)로 표현되는 회절선폭은 장치에 의한 영향과 시편의 미세조직 인자들의 영향을 받아 증가되며 각 영향들은 수학적으로 분리될 수 있다. Warren과 Averbach는 회절선의 강도를 Fourier 계수로 표현하여 결정 크기와 변형률의 영향을 분리하였으며[2], Williamson과 Hall은 회절선의 형상 함수를 Cauchy 함수로 가정하여 결정크기에 의한 선폭증가와 변형에 의한 선폭증가의 관계를 수학적으로 분리하였다[3]. X선 회절장비와 함께 제공되는 결정립-변형률 분석 프로그램에는 Warren-Averbach법 또는 Williamson-Hall법에 의한 해석이 주로 사용되고 있으며 결정크기에 의한 형상함수는 Cauchy 함수로, 변형률에 의한 형상함수는 Gaussian 함수로 가정하고 있다. Warren-Averbach법은 형상함수에 대한 가정이 포함되어 있지 않아 보다 실제와 가까운 분석이 가능하지만 Fourier 계수를 구하는 과정이 복잡하여 시편의 고유 특성을 고려하기 어려운 단점이 있다.

2. 실험방법 및 결과 :

한국원자력연구소에서 개발중인 DUPIC(Direct Use of Spent PWR Fuel In CANDU Reactors) 핵연료의 조성에 해당하는 모의 산화물 핵연료를 attritor를 이용하여 30분, 1시간, 2시간 동안 각각 밀링처리를 하였다. 연구용원자로인 HANARO의 고분해능 분말회절장치를 사용하여 각각의 분말에 대하여 중성자 회절도형을 얻은 후 각 회절선들을 ORIGIN6.1 프로그램을 사용하여 근사하고 그 적분폭과 반가폭을 구하였다. Warren-Averbach법, Williamson-Hall법, Voigt 함수법을 통하여 각각 결정 크기를 구하고 결과를 비교하였으며 NIST의 round robin 용으로 제공된 데이터를 분석하여 각 방법들의 정밀도를 비교하였다.

본 연구에서는 Langford[4] 및 Balzar[5] 등에 의해 제시된 방법과 같이 Voigt 함수를 사용하여 형상함수를 근사하고 장치에 의한 선폭증가, 결정크기에 의한 선폭증가, 변형률에 의한 선폭증가를 분리할 때 가장 높은 신뢰성을 얻을 수 있었으며 또한 기존에 제시된 방법에 적층결함(stacking fault), 쌍정(twin) 및 전위밀도의 영향을 고려할 수 있는 절차를 추가하였다.

3. 참고문헌 :

1) P. Scherrer, *Nachr. Gott.* **2** (1918) 98.

2) B.E. Warren and B.L. Averbach, *J. Appl. Phys.* **21** (1950) 595.

3) G.K. Williamson and W.H. Hall, *Acta Met.* **1** (1953) 22.

4) J.I. Langford, *J. Appl. Cryst.* **11** (1978) 10.

5) D. Balzar, *J. Appl. Cryst.* **25** (1992) 559.