

핵연료 미세구조 분석을 위한 차폐형 전자현미경

권형문, 김영민, 서항석, 주준식, 민택기, 전용범

한국원자력연구소

1. 서론

현재 한국원자력연구소 조사후시험시설에서는 <고연소도 핵연료 안전성 시험 및 평가 기술 개발 및 원전연료 사용후 시험용역>의 일환으로 고연소도 핵연료에 대한 전자현미경 분석을 수행하고 있다. 분석에 사용되고 있는 전자현미경은 방사능물질로부터 사용자를 보호하기 위해 탄소강으로 차폐 및 격납되어 있으며, 현미경의 내부구조물은 방사선의 영향을 받지 않도록 개조되어 있다.

수행 중인 전자현미경 분석은 디스크 형태의 연마된 소결체 표면, 소결체 파단면, 피복관 외면에 침착되어 있는 크러드 그리고 조사후 가열시편 등이 있다. 연마된 소결체 표면에 대한 전자현미경 분석은 기포의 형태와 분포, 기공을 평가를 위해 수행되었고, 디스크를 반으로 부러뜨린 반원(semicircle) 형태의 파단면 시편은 기포와 결정립의 형태를 관찰하기 위해 수행되었다. 특히 파단면 시편은 소결체 외곽부에 형성된 RIM 구조와 천이영역의 특징, 재결정 과정을 설명하기 위해 수행되었다. 크러드 시편은 디스크 형태의 시편과 피복관 표면 테이핑을 통해 채취한 시편, 두 가지 형태로 전자현미경 분석을 수행하였고, 피복관 외부에 침착된 크러드 층의 두께, 크러드 입자 크기 측정 및 성분분석을 수행하였다. 분말시편인 조사후 가열시편은 카본테입을 이용하여 채취한 다음, 브라스 마운트 위에 접착하고 골드 코팅하여 산화에 의한 결정립 분리를 확인하였다.

2. 차폐형 전자현미경

핵연료 시편 분석에 사용된 전자현미경은 LaB6 필라멘트가 장착되어 있는 Philips사의 XL-30으로 Be 윈도우 시준기를 부착한 Electron Dispersive X-ray Spectrometer (EDS)도 함께 설치되어 있다.

전자현미경 사용자의 방사능 피폭을 최소화하기 위해 설치된 차폐형 글로브박스(그림 1)는 시편실을 포함한 광학계 본체를 17cm 두께의 탄소강판으로 감싸고 있으며 25cm의 납유리창, 유지보수를 위한 3개의 문, 시편 운반용기 도킹파트, 시편저장 랙과 시편취급을 위한 2개의 원격조정기를 포함하고 있다. 또한 방사능 물질의 확산을 막기 위해, 알루미늄 프레임에 강화유리를 사용하여 내부를 밀폐하고 DUP(Deep Under Pressure) 라인과 연결하여 항상 부압을 유지하도록 하였다[1].

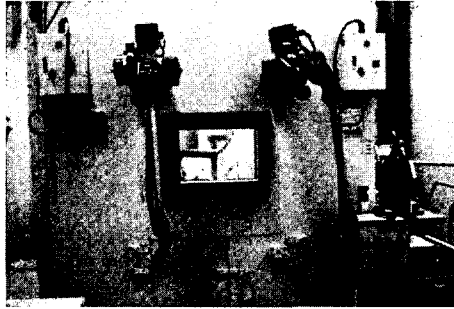


그림 1. 차폐형 글로브박스

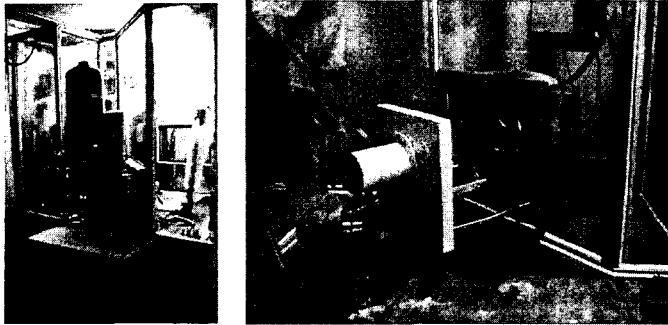


그림 2. Rear door 개방한 장면과 전자현미경 시편실 개폐 장면

분석 가능한 시편의 방사능 기준 선량률은 접촉표면에서 0.5 Sv/h로 제한되며 사용후핵연료의 경우 제한사항은 표1과 같다[2].

표 1. 전자현미경 시험 가능한 기준 시편

연소도	50 GWd/tU
냉각기간	3년
농축도	5%
방사능	7.4 GBq

글로브박스의 탄소강 차폐체는 제한기준에 해당하는 사용후핵연료 시편이 6개있을 때 적합한 두께로 결정되었으며, 방사능은 44 GBq에 해당한다.

3. 사용후 핵연료의 전자현미경 분석

연마된 핵연료 소결체 시편을 통해 Xe, Kr과 같은 핵분열기체 생성물로 이루어진 버블의 형태를 확인하였고 파단면 시편을 통해서 결정립의 형태 및 결정립계에 존재하는 버블과 결정립 내부에 존재하는 버블의 형태 및 양상을 확인하였다. 고방사능의 사용후 핵연료 소결체가 포함된 시편에 대한 EDS 분석은 불감응시간이 90% 이상 높아져 불가능했다. Nd, Xe, Cs 등과 같은 소결체 내부 핵분열 생성물의 분포는 핵연료 성능 평가의 중요한 요소가 된다. 이를 평가하기 위해서는 극소량 샘플링을 위한 장치나 감마선 분해가 가능한 Wavelength Dispersive Spectroscopy(WDS)가 필요할 것으로 생각된다.

핵연료 피복관에 침착되어 냉각수의 흐름을 방해하고 피복관 산화를 가속화시키는 크러드는 표면 테이핑에 의해 채취한 다음, 입자의 형태 분석 및 성분분석을 수행하였다. 크러드는 비교적 방사화된 성분이 적어 EDS 분석이 가능했다. 크러드 및 피복관 외면의 산화층 분석에 있어서 산소 성분에 대한 평가가 요구되지만 Be 윈도우의 특성상 측정이 불가능하였다.

분말시편인 조사후 가열시험 시편을 통해 산화에 의한 결정립 분리를 확인하였다. 이 시험은 어떤 온도에서 UO_2 산화가 결정립계를 따라 먼저 발생하고 이후 결정립 내부로 진행되는 특성을 이용하여 결정립계에 잔존하는 핵분열 기체와 내부에 잔존하는 핵분열 기체를 분리하여 측정하려는 시험으로 가열시험 이후 UO_2 의 결정립 분리를 전자현미경으로 관찰하였다. 산화를 방해하는 핵분열 생성물의 존재를 확인하기 위해서는 추가적인 성분분석이 요구된다.

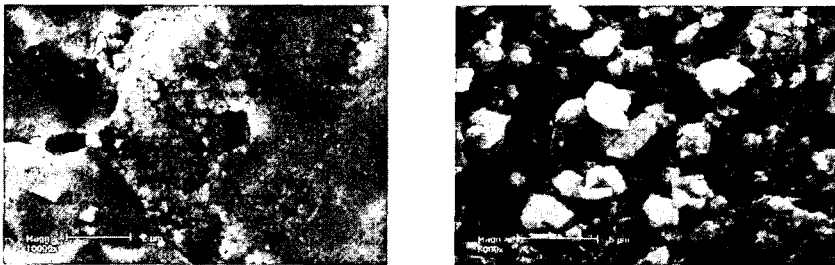


그림 2. 핵연료 소결체 파단면 사진과 크러드 시편 사진

4. 결론

한국원자력연구소 조사후시험시설에 설치되어 있는 국내 유일한 차폐형 전자현미경은 현재 고방사능의 핵연료 소결체 및 피복관에 대한 미세조직 시험에 이용되고 있다. 차폐형 전자현미경은 핵연료 미세구조 형태분석에 필요한 충분한 결과를 보여주고 있으나 Be 윈도우의 EDS 만으로는 성분분석의 한계를 지니고 있다. 또한 현재 글로브박스 내에 골드 코팅

장치만 설치되어 있어 성분분석에 적합한 코팅이 어려운 상황이다. 검출기 부분을 차폐한 WDS 설치, 원격조정기에 의해 탈부착이 용이하도록 개조된 카본 혹은 알루미늄을 코팅재로 사용하는 코팅장치의 설치와 방사능을 최소화하는 극소량 샘플링 기술이 요구된다.

참고문헌

1. 구정희 외, 차폐글로브박스 설계보고서, KAERI/TR-1320/99, 1999
2. 방경식 외, 방사성 물질의 미세 표면분석을 위한 주사전자현미경, KAERI/TR-1435/99, 1999