

층상형 모의 사용후핵연료의 결정구조변화

박양순, 한선호, 김종구, 하영경, 지광용

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150-1번지

nvspark@kaeri.re.kr

일본, 유럽 등 원자력 선진국은 물론 우리나라도 원전을 효율적으로 운영하기 위하여 고연소 핵연료 개발에 많은 노력을 기울이고 있다. 핵연료의 연소도가 증가함에 따라 사용후핵연료 펠렛의 가장자리(rim)에서 특이한 구조변화가 관측되는데, 이 영역은 연소도에 따라 그 두께가 변화하며 바깥표면으로부터 안쪽으로 수백 micrometer 두께에 이른다. 이 rim 영역은 두께가 얇음에도 불구하고 핵연료의 열적거동, 원자로 작동조건에서의 기계적 반응, 사용후핵연료 저장 시 부식저항성에 영향을 미치는 것으로 알려져 있다. 따라서 고연소 시 핵연료의 특성에 영향을 미치는 물리적인 과정을 이해하기 위하여 핵연료의 고연소에 따른 rim 영역 특성변화를 규명할 필요가 있다. 이와 관련하여 반경방향 미세부위 결정구조변화 측정을 위한 방사선 차폐 micro-XRD 시스템을 개발하였다. 본 실험실에서는 기존의 상용 XRD에 X-선의 선형 미세빔 집광기와 시편의 미세이동 장치를 장착하여 micro-XRD 시스템을 구축하였으며[1] 방사선차폐 설비를 완료하였다[2].

본 연구에서는 방사선 차폐 micro-XRD 시스템을 사용하여 결정격자변화가 예상되는 층상형 모의 사용후핵연료 시편을 제조하고 이에 대한 X-축 방향 결정구조변화를 분석하였다.

- 방사선 차폐 micro-XRD 시스템(그림 1)

측정에 사용된 X-선 미세빔 크기는 집광기의 exit slit을 조절하여 $4,000 \times 20 \mu\text{m}$ 로 제조하였고 이때 집광거울로 Ni 증착거울을 사용하였다. X-선($\text{CuK}\alpha$) 발생장치의 power는 40 kV - 40 mA로 조절하였으며 measuring time/step size는 10 sec./ $0.02^\circ(2\theta)$ 이었다. X-선의 $\text{CuK}\beta$ filter로 Ni film을 사용하였고 검출기는 scintillation counter를 사용하였다. 이때 receiving slit width는 1 mm이었고 anti scattering slit width는 0.6 mm이었다.

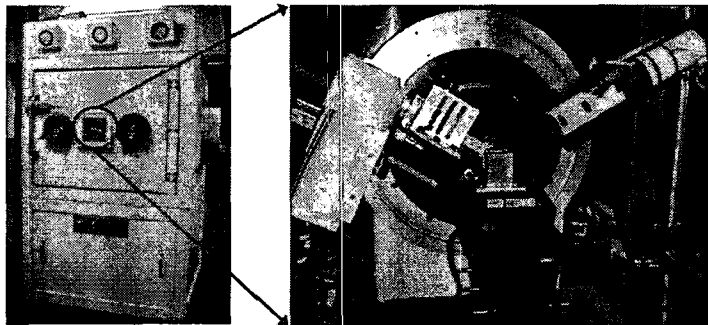


그림 1. 방사선 차폐 micro-XRD 시스템

- 실험

순수한 UO_2 분말과 UO_2 분말에 Gd의 함량을 각각 2 ~ 28% 범위 내에서 혼합한 8가지 다른 조성의 분말시료를 소결한 후 분말화하여 준비하고, 각각의 시료를 Gd 함량이 증가하는 순서로 쌓고 다지기를 반복하여 9개의 층을 이루도록 하여 압분체를 만들었다. 이 압분체를 1700°C 에서 재소결하여 UO_2 결정구조변화가 예상되는 층상형 모의 시편을 제조하였다(그림 2). 모의 사용후핵연료 시편을 홀더에 장착하고 컴퓨터로 미세 조정하여 시편의 측정위치를 맞춘 후, 시편의 Gd 함량이 낮은 층(a)에서부터 함량이 높은 층(c)을 향해 X-선 미세빔의 위치를 옮겨가며 UO_2 의 X-선 회절피크를 측정하였다.

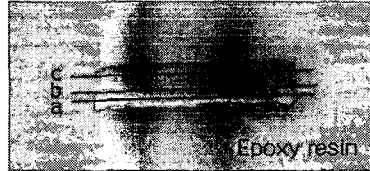


그림 2. 모의 사용후핵연료 시편

- 측정결과

검출된 X-선 회절피크(UO_2)의 2θ 값이 Gd 함량이 낮은 층(a)에서 높은 층(c)으로 갈수록 약간 큰 쪽으로 이동(shift)되는 것으로 나타났다(그림 3). 이것은 격자면간 거리(d)가 작아지는 것을 의미한다. 즉, Gd가 UO_2 의 결정격자 내에서 고용체를 형성하여 UO_2 (정방정계) 결정축의 길이를 감소시키며 함량이 증가함에 따라 그 정도가 커지는 것을 확인할 수 있었다.

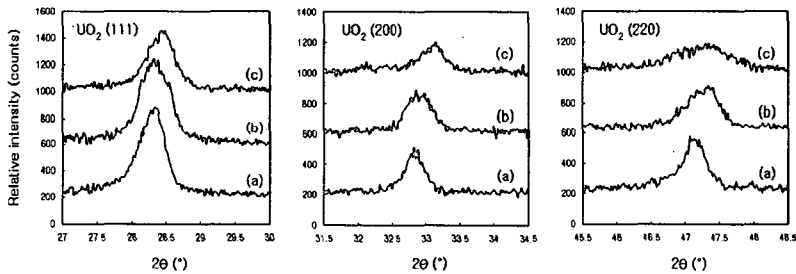


그림 3. 모의 사용후핵연료 시편의 위치에 따른 X-선 회절 스펙트럼

- 결론

본 연구에서 구성된 방사선 차폐 micro-XRD 시스템(미세빔 크기: $4,000 \times 20 \mu m$)을 사용하여 $300 \mu m$ 두께의 층상형 모의 사용후핵연료 시편의 표면에 조사시켜 약 $50 \mu m$ 폭의 좁은 부위에 대한 X-선 회절스펙트럼을 측정할 수 있었으며 Gd 함량변화(2 ~ 28%)에 따른 UO_2 결정구조변화 분석이 가능하였다.

- 참고문헌

1. Y.S. Park, S.H. Han, J.G. Kim, K.Y. Jee and W.H. Kim, *Analytical Science & Technology*, **19** (2006) 407.
2. Y.S. Park, S.H. Han, Y.K. Ha, and K.Y. Jee, KAERI/TR-3295/2006.