

고준위 방사성물질의 화학조성 분석기법

정양홍*, 유병옥, 안상복, 전용범

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*nyhjung@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 핵연료의 표면사진과 화학분석 및 특정물질의 분포도(Image map) 분석에는 차폐형 전자현미분석기(EPMA, Electron probe micro analyzer)가 주로 사용된다. 그러나 고준위 방사성물질의 γ -선의 에너지는 분석시료의 표면에서 획득되는 X-선 에너지에 영향을 주기에 만족스런 분석결과를 얻기 어렵다. 특히, U-Zr 금속핵연료의 화학조성 및 원소의 분포도를 분석할 경우 지르코늄 원소의 표준시편을 선택에 특별한 주의를 기울여야 한다. 본 논문은 하나로서 조사된 SFR 핵연료의 EPMA 분석시 일반적인 분석방법과 대치되는 기법과 그 결과를 기술하였다.

2. 본론

2.1 차폐형 전자현미분석기의 WDS 특성

본 시험에 사용된 EPMA는(JXA-8230R, JEOL, Japan) 고 방사능을 띤 조사 핵연료의 시험을 수행할 수 있도록 납과 텅스텐으로 차폐하여 시편의 방사능 세기가 3×10^{10} Bq 까지 분석할 수 있도록 개조한 기기이다. 전자현미분석기의 화학조성 분석은 입사된 전자와 충돌하여 발생하는 특성 X-선을 WDS (Wave Length Dispersive)로 확보하여 조성을 도출한다.

그러나 고방사성 물질에서 방사되는 γ -선의 영향을 최소화하기 위하여 Fig. 1과 같이 적절하게 차폐를 시켰지만, Fig. 2와 3에 나타내었듯이 고방사성 물질의 γ -선 영향은 억제하기가 어렵다. Fig. 2와 3은 SFR 핵연료의 조사 전, 후의 WDS 결과이다. Fig. 2에서 Ch2, TAP인 경우 비조사 시편일 경우 x-tal의 위치가 20~30 mm 근처에서 Zr의 특성 스펙트럼이 뚜렷하게 관찰되지만, 조사후 시편인 Fig. 3에서는 연속스펙트럼에 포함되어 분간이 어렵다. 이러한 경우 Zr원소의 정량분석은 TAP로는 불가능하다. 이와 같은 현상은 시험시료와의 거리에 따라 연속스펙트럼의 세기(X-ray count/sec)가 급격한 차이를 만들기 때문이다. 이러한 경우 Fig. 3의 PET x-tal 영역을 살펴보면 x-tal의 위치가 190 mm 정

도에서 Zr 특성 스펙트럼을 확인할 수 있다. 이러한 결과는 x-tal의 위치가 시험시편으로부터 상당한 거리에 위치하기에 γ -선의 영향을 받지 않았음을 의미한다. 그러므로 고준위 방사성시료를 분석할 경우 특성스펙트럼의 분포를 우선 확인하여야 한다.

2.2 고준위 고배율에서 Image Mapping 방법

Fig. 4는 조사후 SFR 핵연료의 이차전자상과 Image map 그림이다. Image map은 특정원소의 분포를 그림으로 표현하기에 특정부위의 현상을 확인하는데 유용하게 사용된다. 이와 같은 분석은 입사전자빔의 세기를 높여 시료에서 충돌되어 발산되는 X-선의 밀도를 크게 함으로서 세밀한 분포를 확인하는 분석방법이다. 그러나 Fig. 4와 같이 고준위 고배율(x15,000)에서 분석할 경우 가능한 입사전자빔의 세기를 줄여야 산란과 중첩으로 인한 해상도의 흐트러짐을 방지할 수 있다. 입사전자빔이 셀 경우는 반사되는 X-선의 밀도는 높아지지만, 고배율인 경우 시료에서 발산되는 특정원소의 X-선이 중첩 또는 충돌함으로서 또렷한 결과를 얻을 수 없다. 대개의 경우 25 kV, 100 nA 이상의 입사빔을 인가하지만, Fig. 4와 같이 고배율의 Image map을 분석 할 경우는 15 kV, 1 nA 정도의 극히 낮은 입사빔을 인가하여야 한다. 이는 일반적인 인가조건과 확연한 차이를 나타내지만 그림과 같이 또렷한 분포도를 확보할 수 있다.

2.3 정량분석시의 표준시료 선택

EPMA를 이용한 화학분석법은 화학조성을 알고 있는 표준시료에서 획득한 자료를 미지시험시편에서 도출된 신호의 세기를 비례적으로 계산하는 분석법이다. 그래서 미지시료의 화학분석을 수행하기 전에 필수적으로 표준시료에서 적절한 방법으로 자료를 확보하여 저장하는 과정을 거친다. 그러나 고준위 방사성시료인 경우, 표준시료에서 확보한 자료만을 이용하게 될 경우 고방사성 물질에서 발산되는 γ -선 영향을 고려하지 않았기에 Fig. 5와 같이 원소들의 경향만 확인 할 수 있는 결과를 얻을

수 있을 뿐이다. 이러한 정량분석 방법은 분석자료로 사용하기 불가할 만큼 큰 분석오차를 가진다. 이와 같은 고선량 핵연료의 화학조성 분석시에는 표준시편을 배제하고 시험시편을 표준시료로 사용하여 자료를 확보하는 방법을 사용하면 Fig. 6과 같은 결과를 얻을 수 있다. 사용후 핵연료의 분석시편은 제조과정에서 이미 각 원소의 함량을 알고 있다. 사용후 핵연료의 분석위치는 대개의 경우 경계면이거나, 화학조성의 변화가 큰 특정위치이다. 그러므로 시험시편을 표준시편으로 삼을 부위는 화학조성의 변화가 발생하지 않을 위치를 선정하여 자료를 확보하면 동일한 환경에서 획득한 자료이기 에 γ -선 영향등을 고려하지 않아도 된다.

3. 결론

고 방사성물질의 Image map과 화학조성 분석 방법을 기술하였다. 일반적인 분석방법으로는 결과를 획득하기 어려운 고배율의 Image map 분석시 인가조건과 화학 분석시 표준시료를 시험시편으로 대체하는 기법은 원자력 분야에서 응용하여 적용할 수 있다.

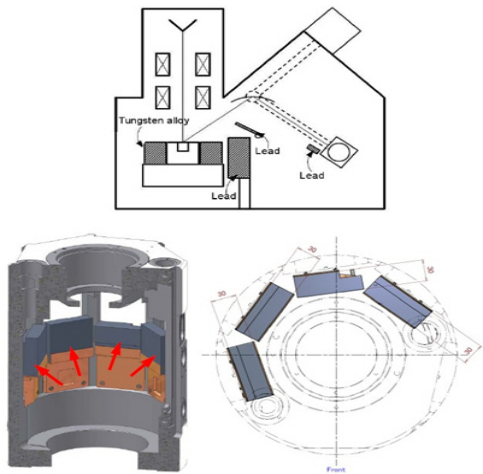


Fig. 1. Schematic of column shielding.

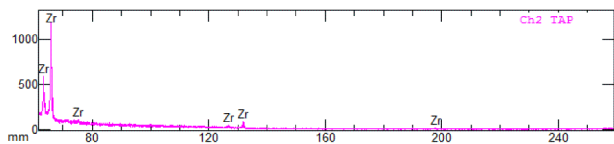


Fig. 2. WDS data before irradiation.

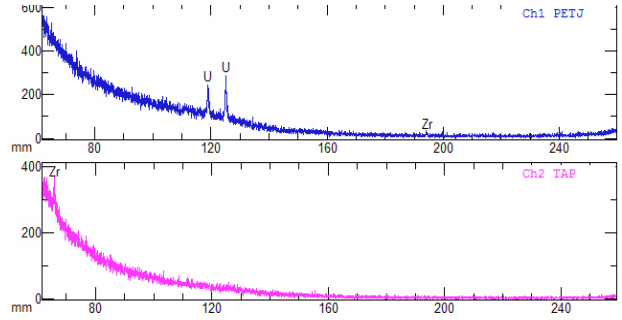


Fig. 3. Comparative WDS data before and after irradiation.

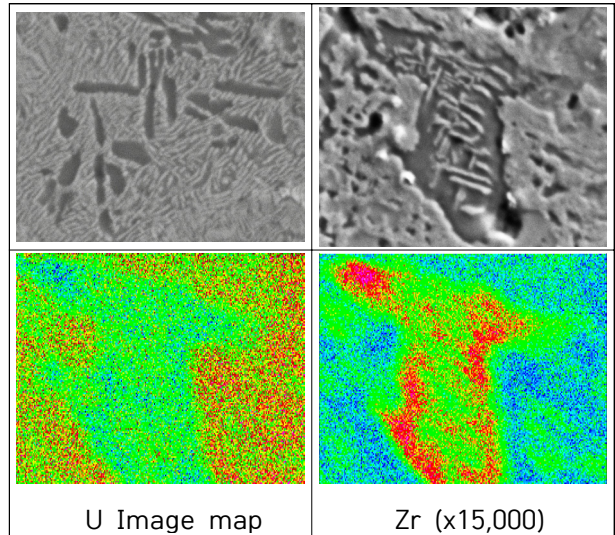


Fig. 4. SEM, Image map of SFR fuel.

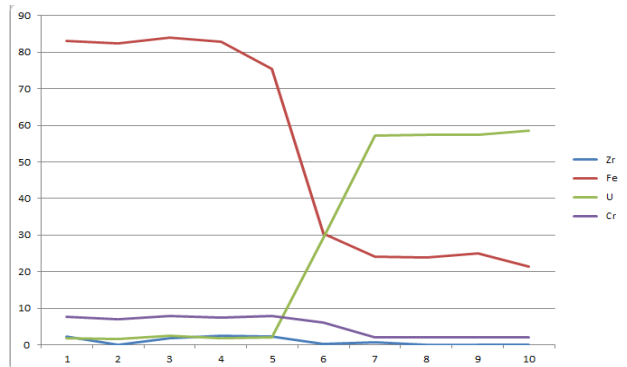


Fig. 5. Quantitative data using standard sample.



Fig. 6. Comparative Quantitative data using difference standard sample(wt%).