

## EPMA를 이용한 U<sub>3</sub>Si/Al 조사 핵연료의 반응층 분석

정양홍<sup>★1</sup> · 유병옥 · 김희문 · 박종만 · 김명한<sup>2</sup>

<sup>1</sup>한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

<sup>2</sup>충북대학교, 충북 청주시 흥덕구 개신동 산48

(2004. 4. 19 접수, 2004. 6. 11 승인)

### EPMA Analysis of Inter-reaction Layer in Irradiated U<sub>3</sub>Si-Al Fuels

Yang-Hong Jung<sup>★1</sup>, Byung-Ok Yoo, Hee-Moon Kim, Jong-Man Park and Myung-Han Kim<sup>2</sup>

*Korea Atomic Energy Research Institute, 130 Duck-Jin Dong, Yuseong-Gu, Daejeon*

*Chungbuk University, San 48, Gaesin-Dong, Hongduk-gu, Cheongju-city, Chungbuk*

(Received Apr. 19, 2004, Accepted Jun. 11, 2004)

**요 약 :** 하나로 원자로에서 조사된 최대 선출력이 121 kW/m이고, 63 at%의 평균 연소도를 갖는 U<sub>3</sub>Si-Al 원심 분무 고출력 핵연료를 EPMA를 이용하여 파단면 관찰 및 반응층에 대한 핵분열 생성물을 분석 하였다. 조사된 고출력 U<sub>3</sub>Si-Al 핵연료를 EPMA로 화학 조성을 분석하기 위해 선행 조건은 방사능 허용 한도가 3x10<sup>10</sup> Bq 이하로 제한되는 EPMA 기기에 부합 될 수 있게 시험 시편을 최소화 하기 위한 작업이다. 시험 조건에 부합될 수 있는 시편의 제조를 위해 핵연료 천공 장치를 제작하였으며, 천공 장치를 사용하여  $\Phi$ 1.57×2 mm의 크기를 갖는 시료를 만들었다. 천공 된 시료를 파단 시편과 연마 시편으로 제조하여 파단면의 관찰 및 반응층(Inter-reaction layer)과 산화층에 대한 EPMA 분석을 수행하였다. 두께가 16  $\mu$ m인 반응층에 대한 평균값은 UO<sub>2</sub>를 표준 시편으로 calibration한 경우의 조성은 U<sub>2.84</sub> Si Al<sub>1.4</sub> 이였으며, 시험 시편으로 calibration한 경우의 조성은 U<sub>3.24</sub> Si Al<sub>1.41</sub> 였다. 또한 반응층에서 핵분열 생성물의 조성을 분석하였으며, 반응층에서의 금속 석출물(metallic precipitates)의 생성은 확인할 수 없었다. 시험 시편의 산화층 조성은 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 임을 확인했다.

**Abstract :** Fission products and Inter reaction layer of U<sub>3</sub>Si-Al dispersion fuel, irradiated in HANARO research reactor with 121 kW/m of maximum liner power and 63 at% of average burn-up, was characterization by EPMA (Electron Probe Micro Analyzer). The fuel punching system developed by Irradiated Materials Examination Facility (IMEF) has used to make these samples for the EPMA. With this system a very small and thin specimen which is 1.57 mm in diameter and 2 mm in thickness respectively has been fabricated to protect the EPMA operator from high radioactive fuel and to mini-

★ Corresponding author

Phone : +82+(0)42-868-8459 Fax : +82+(0)42-868-8420

E-mail : nyhjung@kaeri.re.kr

mize the equivalent dose rate less than 150 mSv/h. EPMA was performed to observe layers of sectional, Inter-reaction and oxide with specimens of cutting and polished. Stoichiometry in the Inter-reaction layer with 16  $\mu\text{m}$  of thickness was  $\text{U}_{2.84} \text{Si Al}_{14}$  with calibration of  $\text{UO}_2$  and  $\text{U}_{3.24} \text{Si Al}_{14.1}$  with calibration of standard specimen. metallic precipitates in this layer were not observed using fission products examination.

**Key words :** EPMA, nuclear fuel, post irradiation examination,  $\text{U}_3\text{Si}/\text{Al}$  fuel

## 1. 서 론

$\text{U}_3\text{Si}-\text{Al}$  핵연료는 노내에서 연소되면서 팽윤 (swelling) 을 일으키며, 팽윤 현상에서 가장 중요한 변수는 핵연료의 온도 및 연소도이다. 팽윤의 원인은 핵분열 생성물에 의한 체적 증가와  $\text{U}_3\text{Si}$  입자와 Al 기지와와의 화학반응으로 인한 체적 증가에 기인한다. 즉,  $\text{U}_3\text{Si}-\text{Al}$  핵연료심은 분산된  $\text{U}_3\text{Si}$  핵연료 입자가 Al의 기지와 반응하여  $\text{U}_3\text{Si}$  입자와 Al 기지 경계 부분에 핵연료 입자보다 밀도가 낮은 반응층 (Inter-reaction layer)을 형성하게 되며, 이로 인하여 핵연료의 부피 증가를 가져오게 된다.<sup>1</sup>  $\text{U}_3\text{Si}-\text{Al}$  핵연료는 450  $^{\circ}\text{C}$  이상에서 체적이 급격히 증가하는 과도 팽윤 (breakaway swelling) 현상을 보이나 250  $^{\circ}\text{C}$  이하의 온도에서는  $\text{U}_3\text{Si}-\text{Al}$  핵연료는 열안전성이 유지되어 팽윤 현상이 거의 발생하지 않는다.<sup>2</sup>

$\text{U}_3\text{Si}$  입자와 Al 기지 경계 부분에 형성되는 반응층 (Inter-reaction layer)의 정확한 화학 조성 분석은  $\text{U}_3\text{Si}-\text{Al}$  핵연료의 온도 및 연소도에 따른 화학반응으로 인한 체적 증가 및 핵연료의 건전성을 판단하는 척도가 된다. 조사된  $\text{U}_3\text{Si}-\text{Al}$  핵연료의 파단사진 및 분석은 조사재시험시설에서 운용중인 EPMA (Electron Probe Micro Analyzer. SX-50R, CAMECA, Paris, France)를 이용하였다. 또한 EPMA 기기의 방사능 제한 선량인  $3 \times 10^{10}$  Bq 이하로 시편을 제작하기 위한 과정을 기술하였다.

## 2. 실험 방법

### 2.1. 시편 준비

#### 2.1.1. 천공 장치를 사용한 고풍력 핵연료 시편 채취

조사된 고풍력  $\text{U}_3\text{Si}-\text{Al}$  핵연료에서 형성된 반응층 (Inter-reaction layer)을 EPMA를 사용하여 화학 조성을 분석하기 위한 선행조건은 방사능 허용 한도가  $3 \times 10^{10}$

Bq 이하로 제한되는 EPMA 기기에 부합 될 수 있게 시험 시편을 최소화 하기 위한 작업이다.

일반적으로 사용되는 EPMA 시료용 핵연료 시편의 제조는 핫셀 (hot cell)에서 원격조정기로 집을 수 있는 크기로 절단하여 전도성 레진으로 마운팅 작업을 행하고, 마운팅 된 시편을 다시 절단하여 마운팅 하는 반복 작업을 통하여 시편의 크기를 최소화 하는 작업을 해왔다. 이와 같은 시편의 제조 방법은 시험하고자 하는 부위를 정확하게 판단하기 어려울 뿐 만 아니라 레진으로 접착된 시편 조각이 시편 절단시에 떨어져 나가는 경우가 빈번하게 발생되어 미세 핵연료 시편의 제조에 상당한 어려움이 있었다.

제한된 크기의 시편을 제조하기 위해 미세 절단 및 마운팅 과정과, 전도성 레진을 주입하던 까다로운 종래의 시편 제조 과정과는 달리 시험자가 원하는 시편 부위를 단시간에 정확하게 채취 할 수 있는 핵연료 천공 장치를 개발하여 본 시험의 시편 제작에 이용하였다.

Fig. 1의 ①에 보인  $\text{U}_3\text{Si}$  원심 분말 고풍력 핵연료의 시험 부위를 선택하여 Fig. 1의 ④와 같이 diamond wheel을 사용하여 너비 10 mm, 두께 2 mm의 크기로 절단한다.

Fig. 1의 ③에서와 같이 핫셀 (hot cell)에서 원격 조종기를 사용하여 너비 10 mm, 두께 2 mm로 절단된 시료를 깊이가 각기 다른 천공 기구의 주입구에 밀어 넣고 (c)의 천공 기구 지지대 위에 올려 놓는다.

위의 선행 작업이 완료되면 핫셀 밖에 위치한 천공 장치 조절 버튼으로 천공 장치를 가동시키면 천공 장치의 구동 모터가 작동하면서 Fig. 1의 ②에 나타낸 1.57 mm의 직경을 가진 천공 핀이 천공 기구의 구멍을 통하여 천천히 내려가게 된다.

천공 핀이 천공기구에 인입된 시료를 관통되면  $\phi 1.57 \times 2$  mm로 천공된 시편이 천공 기구 지지대 아래에 위치한 천공 시료 채취통에 떨어져 내린다. 천공된 시료

의 크기가 극히 작으므로 핫셀 (hot cell)에서 원격 조종기를 사용하여 채취된 시료를 집거나 운반하기가 어렵다. 또한 채취된 시료의 작업은 핫셀 (hot cell)에서 진행할 수 없기 때문에 시료를 담을 수 있는 적당한 용기에 넣어 핫셀 천정에 설치된 glove box로 이송한다.

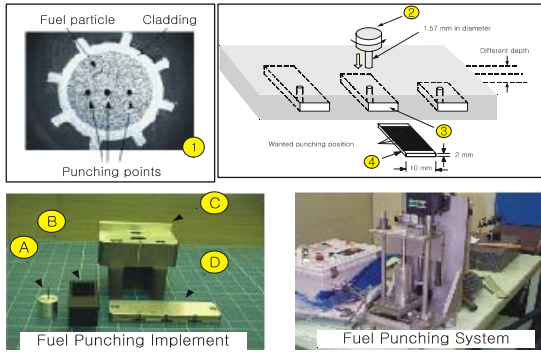


Fig. 1. Specimen preparation using fuel punching system.

2.2. 시편 준비 및 장착

핫셀 (hot cell) 지붕에 설치되어 있는 glove box로 이송된  $\Phi 1.57 \times 2$  mm 크기의 시료를 핵연료의 파단 부위 관찰과 정량분석을 위해 시편 표면이 연마된 시편을 제조하기 위해 두 개로 절단하여 사용하였다. Fig. 2의 (a)(b)에 glove box 에서 시료를 절단하는 작업 과정을 보여주고 있다.

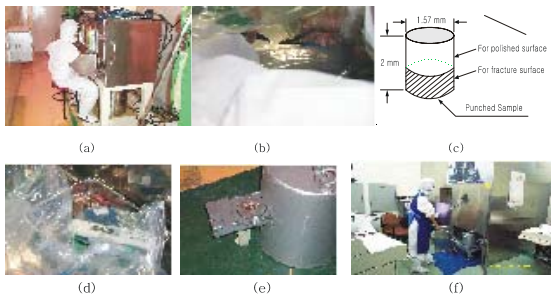


Fig. 2. Specimen preparation and mounting to the EPMA.

시료의 크기가 지극히 작기 때문에 시료의 절단은 (b)와 같이 핀셋으로 집어 니퍼에 장착한 뒤 2개로 절단하였다. 이때 피폭되는 부위는 손목 부위에 집중되며 또한 작업자의 과피폭에 대한 위험 부담이 있지만 시료의 파단면 관찰을 위해 절단면을 갖는 시편을 제조하기

위해선 반드시 수행되어야 할 작업이다. 시험자의 과피폭을 방지하기 위해 시편 절단용으로 다양한 기구들을 제작하여 수행하였으나 시료의 크기가 극히 작기 때문에 상기 방법 외엔 적절한 대안을 찾을 수가 없었다.

두 개로 절단한 시편 중 하나는 파단 부위 관찰용 시편으로 사용하고, 나머지는 다시 hot cell로 이송하여 전도성 레진으로 mounting 한 뒤 연마 및 에칭 작업을 한다. 파단면 관찰을 위한 시편인 경우, 기기의 시편 holder에 silver paint (Leistsilver 2000 silver paint, TED PELLA, INC.)를 부어 silver paint가 응고하기 전에 Fig. 2의 (d)와 같이 시료를 붙인다. 이는 시편 홀더에 충분히 묻힌 silver paint가 표면 활성화(capillary active)현상을 일으켜 시료 내부로 침투하여 들어가므로 시료 표면에 입사된 빔의 전도체 역할을 하는 것으로 믿어진다.<sup>3</sup> 연마 시편의 제조는 silver paint를 충분히 묻힌 시료를 진공기에 넣고 시료 내부로 silver paint가 충분히 침투하게 하여 시료의 전도성을 보장시켰다. 일반적으로 핵연료 시편의 분석시 시편에 입사된 전자빔의 집지를 위해 전도성 재료의 증착 작업이 되어야 하나 본 시험에서는 전도성 레진으로 마운팅 된 시편에 silver paint를 덧칠하는 방법으로 진행하였다. 이 방법은 고 방사능을 띤 시료를 핫셀에서 증착해야 하는 어려운 작업 과정을 피하고도 비 전도성 물질에서 발생하는 charging 현상 없이 시료를 분석할 수 있는 편리한 방법이다. 정량분석용 시료는 hot press mounting (150 °C, 6 bar) 장치로 mounting 한 후 연마하였다. 미세 연마한 시편은 침탄법 (immersion)으로 에칭 하였다. 에칭 용액은 증류수, 질산, 불산, citric acid를 각각 163 mL, 72 mL, 1 mL, 3.4 g을 혼합한 것으로 상온에서 약 40 - 45초 에칭 하였다. 준비된 시편은 Fig. 2의 (e), (f)와 같이 시편 이송 장치를 이용하여 납 차폐 벽이 설치되어 있는 EPMA실로 옮겨 tung 기구를 이용하여 시편을 기기에 장착했다.

2.3. Electron Probe Micro Analyzer

본 시험에 사용된 EPMA는 (Electron Probe Micro Analyzer, SX-50R, CAMECA, Paris, France) 고 방사능을 띤 조사 핵연료의 시험을 수행할 수 있도록 시편 장착 부위 및 WDS, Column에 방사능에 의한 영향을 감소시키기 위해 기기의 적절한 부위에 납과 텅스텐으로 차폐시킨 기기이다. 시편의 방사능 세기가  $3 \times 10^{10}$

Bq 까지 시험 가능한 구조로 설계되었다.

시험 시편인 U<sub>3</sub>Si-Al 핵연료에서 형성된 반응층 (Inter-reaction layer)을 분석하기 위해 인가된 전압은 15 kV 이며 인가 전류는 20 nA 였다. 인가 전압은 Montecarlo 프로그램을 이용하여 15 kV, 20 kV, 25 kV 등의 입사 전도를 도출하였다. 인가 전압이 15 kV 일 경우 전자가 시료에 투과 되는 깊이는 2 μm 이하이며, 인가 전압이 20 kV 일 경우 투과 깊이는 4-5 μm 이다. 심재 (U<sub>3</sub>Si)의 화학 조성 분석은 인가 전압 20 kV, 인가 전류 20 nA를 사용하여 분석하였다. U의 분석은 WDS-1의 PET X-tal의 Ma X-ray line을 이용하였으며, Al과 Si는 WDS-2의 TAP X-tal의 Ka X-ray line, O의 분석은 WDS-2의 PC1 X-tal의 Ka X-ray line을 이용하여 분석하였다.

반응층의 분석에 사용된 전자 빔의 크기는 1 μm인 집적 (fix mode) 방식이며, 핵연료 내부의 평균 화학 조성을 분석할 때의 전자 빔의 크기는 20 μm인 확장 방식 (TV mode)으로 사용하였다.

### 3. 시험 결과 및 토의

#### 3.1. 파면 부위 관찰

그림에서 시편 holder에 충분히 묻힌 silver paint가 표면 활성 (capillary active) 현상을 일으켜 시료 내부로 침투하여 들어가 시료 표면에 입사된 빔의 전도체 역할을 감당하므로 전기 전도도가 지극히 낮은 핵연료의 이차 전자상에서 나타나는 charging 현상은 보이지 않았다. 또한 시편의 가장자리 일부분이 silver paint에 의해 침식되는 현상을 확인할 수 있었으나, 극히 미미한 상태이기에 핵연료 시편의 파단 부위 관찰에서 만족한 결과를 얻을 수 있었다.

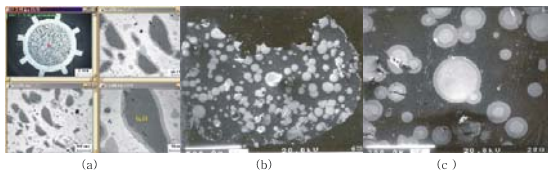


Fig. 3. Metallography(a) and Cross section of U<sub>3</sub>Si-Al irradiated fuel (b, c).

Fig. 3의 (c)는 (b)의 심재 부위를 확대한 그림이다. 그림에서 고출력 핵연료의 심재 (U<sub>3</sub>Si) 및 반응층 (Inter-reaction layer) 부분을 관찰할 수 있었다. 또한 비교적

균질하게 분포되어 있는 gas bubble을 확인할 수 있었다.

#### 3.2. 반응층의 화학 조성 분석

Fig. 4의 (a)와 (b)는 천공 장치를 사용하여 천공된 시료 Φ1.57×2 mm를 두 개로 쪼갠 시편 중 연마 시편의 그림이다. 핵연료의 심재 (U<sub>3</sub>Si) 에서 관찰되는 기공의 분포와 크기, 반응층의 조성 및 핵분열 생성물 등을 분석하기 위해 시료의 표면을 연마한 후 파단 시편과 같은 이송 과정을 거쳐 시편을 관찰하였다. 파단 시편에서 관찰된 기포와 반응층의 두께는 파단면의 조건에 따라 다양한 형상을 나타내지만, 연마한 시편에서 관찰된 반응 부위는 일정치 못하고 가장자리나 특정 부위에 집중된 특성을 확인할 수 있었다. (b)는 심재 (U<sub>3</sub>Si)의 조성을 분석하기 위한 선행 작업의 하나로 Al-Trace를 보여주고 있다. 60 μm 크기를 갖는 심재 (U<sub>3</sub>Si)의 전 영역에 비교적 균질한 분포를 나타내는 U의 조성을 확인할 수 있었던 것은 시료 표면이 균일하게 연마되었고, 또한 전기 전도도가 시험 조건에 충족할 수 있는 여건을 갖고 있음을 증명하는 결과로 간주된다.<sup>3</sup>

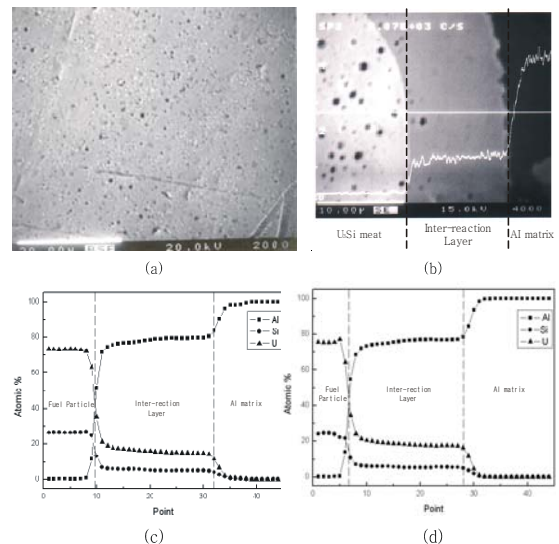


Fig. 4. Quantitative analysis at each beam point in Inter-reaction layer.

Fig. 4의 (b)에서 보는 바와 같이 16 μm의 크기를 갖는 고출력 핵연료의 반응층 (Inter-reaction layer)에 대한 화학 조성의 분석은 시험 거리 45 μm에 대해 각각 45 점씩 분석하였으며 그 결과를 (c)와 (d)에 나타내었다.

Table 1. Concentration of SIMFUEL, chemical results and concentration of U<sub>3</sub>Si by EPMA

Chemicals	Concen. wt. % <sup>①</sup>	Result by EPMA <sup>②</sup>	Concen of U <sub>3</sub> Si <sup>③</sup>	Chemicals	Concen. wt. % <sup>①</sup>	Result by EPMA <sup>②</sup>	Concen of U <sub>3</sub> Si <sup>③</sup>
Zr(ZrO <sub>2</sub> )	0.397	0.367	1.88	Ce(CeO <sub>2</sub> )	0.233	0.278	1.05
Mo(MoO <sub>3</sub> )	0.449	0.392	1.816	Nd(Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	0.480	0.476	1.908
Ru(RuO <sub>2</sub> )	0.239	0.269	0.963	Sr(SrO)	0.076	0.084	0.431
Pd(PdO)	0.028	0.187	0.299	Y(Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	0.050	0.052	.
Ba(BaCO <sub>3</sub> )	0.203	0.218	0.560	Rh(Rh <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	0.073	0.049	0.131
La(La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	0.155	0.143	0.381				

(c)의 그림의 분석 방법은 U 원소는 PET X-tal Ma line에서 UO<sub>2</sub> 표준 시편으로 calibration 하였으며, Al은 TAP X-tal Ka line에서 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 표준 시편으로, Si는 TAP X-tal Ka line에서 Si<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 표준 시편을 이용하여 calibration 하여 분석한 결과이다. 반면 Fig. 4의 (d)는 시험 시편을 calibration 물질로 선택하여 (c)와 같은 방법으로 calibration 하여 분석한 결과를 나타내었다. 이는 금속 U인 심재(U<sub>3</sub>Si)의 구조와 표준 시편으로 이용한 산화 우라늄인 UO<sub>2</sub>와의 calibration 자료를 비교하여 그 결과를 검증하기 위한 시험이며, 그 결과는 다음과 같이 비교적 큰 차이를 나타내었다.

UO<sub>2</sub>를 표준 시편으로 선택한 (c)와 시험 시편을 표준 시편으로 선택한 (d)에서 시험 지점 #1 ~ 4의 위치는 심재(U<sub>3</sub>Si)의 위치이며 각각의 조성은 U<sub>2.78</sub> Si, U<sub>3.02</sub> Si로 나타남을 확인할 수 있었다. 이 결과는 UO<sub>2</sub>를 표준 시편으로 선택한 (c)가 시험 시편을 표준 물질로 선택한 (d)의 결과에 미치지 못하는 결과를 보이고 있으며, 이는 금속 U이 갖는 구조가 UO<sub>2</sub>와 다르기 때문에 사료된다. 이 결과를 토대로 차후 금속 U의 화학 조성을 분석 할 경우 금속 U을 표준 시편으로 선택하면 좋은 결과를 생산할 수 있을 것이다.

시험 시편의 심재에 대한 조성 분석 결과를 토대로 반응층(Inter-reaction layer)에 대한 시험결과는 비교해보면 (c)에서 반응층의 중간 시험 지점인 #20에서의 화학 조성은 U<sub>2.9</sub> Si Al<sub>14.3</sub> 을 보인다. 이와 같이 (d)에서 반응층의 중간 지점인 #17에서의 화학 조성은 U<sub>3.4</sub> Si Al<sub>14.23</sub> 을 보인다. 두께가 16 μm 인 반응층(Inter-reaction layer)에 대한 평균값을 도출하면 (c)의 화학 조성은 U<sub>2.84</sub> Si Al<sub>14</sub> 이며, (d)는 U<sub>3.24</sub> Si Al<sub>14.1</sub> 을 나타내었다.

### 3.3. 반응층의 핵분열 생성물 분석

핵연료를 조사되면 30개 이상의 핵분열 생성물이 생긴다. 이러한 핵분열 생성물은 연료의 물성과 열전도도(thermal conductivity), 열 확산(thermal diffusivity), 가스 생성(gas release), 침출 특성(leaching behavior)등에 직접적인 영향을 미친다.<sup>4</sup> 본 시험에서는 핵분열 생성물 분석 결과의 신뢰성을 확보하기 위해 핵분열 생성물의 조성을 수치적으로 계산한 ORIGEN Code를 기준으로 천연 우라늄에 인위적으로 핵분열 생성물을 첨가한 모의 핵연료(simulated fuel)의<sup>5</sup> 분석을 선행하여 그 결과를 Table 1에 나타내었다. Table 1의 ①에서 모의 핵연료의 핵분열 생성물의 조성은 상용 발전소에서 사용되는 연료의 조성이며 그 분석 결과가 Table 1의 ②에서 보인 화학 분석법에 의한 결과와 근사한 수치를 보여주고 있다.

핵분열 생성물 중 표준 시편을 구할 수 없는 Pu, Am 등은 분석에서 제외하였으며, 산화물의 구조를 갖는다고 알려진 Nd는 pure Nd의 구조로 존재함을 증명하였다.<sup>6</sup>

또한 시험 시편의 심재(U<sub>3</sub>Si)의 핵분열 생성물을 Table 1의 ③에 나타내었다. Table 1의 ③에서 보는 바와 같이 시험 시편의 심재(U<sub>3</sub>Si)의 핵분열 생성물의 농도가 월등히 높은 것을 확인할 수 있다. 이러한 조성 값들은 핵연료에 조사된 선출력과 평균 연소도 등을 유추할 수 있는 자료로 유용한 가치를 갖는다. Table 1에서 검증된 핵분열 생성물 시험 결과를 토대로 시험 시편의 반응층(Inter-reaction layer)에 대한 핵분열 생성물의 조성을 분석하였다.

Fig. 5의 (a)는 고출력 핵연료의 심재(U<sub>3</sub>Si)에서 반응층(Inter-reaction layer)까지 20 μm의 거리에 대한 핵분

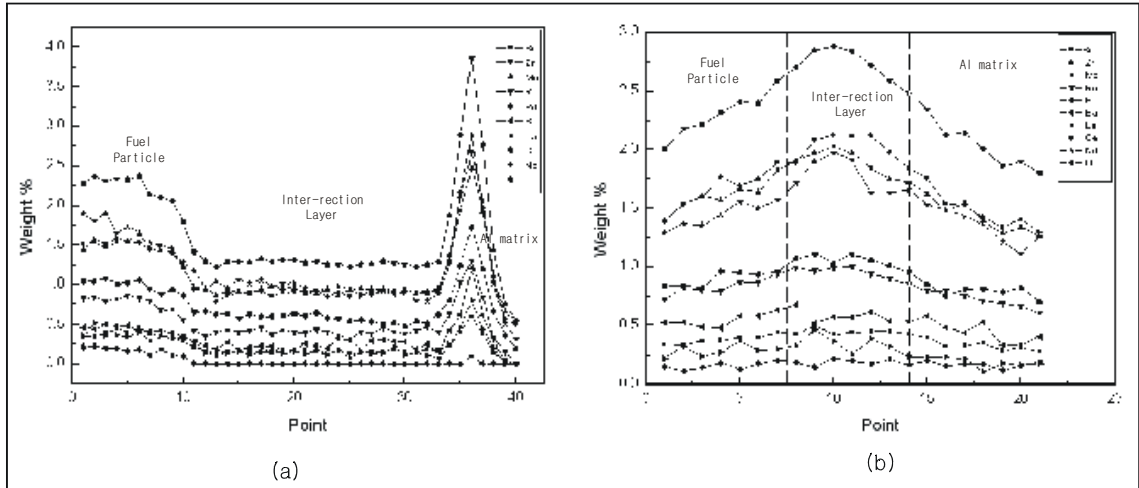


Fig. 5. Distribution of fission products in Inter-reaction layer.

열 생성물의 분포를 40 지점에 걸쳐 분석하였다. 각 지점간 거리는 0.5  $\mu\text{m}$  이며 시험 조건은 인가 전압 20 kV, 인가 전류 50 nA 이다. 그림에서 #12 지점부터 #40지점 까지가 반응층 영역이다. 시험 부위 #37 지점에서 나타난 핵분열 생성물의 밀집 현상은 기지 재료로 사용된 Al의 벽에 의해 핵분열 생성물의 확산이 차단된 것으로 추정되며 추후 연구 및 검토하여야 할 과제이다. (b)는 두 개의 심재 ( $\text{U}_3\text{Si}$ ) 결합된 형상을 나타내는 반응층 (Inter-reaction layer)에 대한 핵 분열 생성물의 조성을 분석한 결과다. 반응층이 결합된 두 개의 심재 간 거리 10.5  $\mu\text{m}$ 에 대해 21 지점을 분석하였다. 각 지점간 거리는 0.5  $\mu\text{m}$  이며 시험 조건은 인가 전압 20 kV, 인가 전류 50 nA 이다.

조사 후 핵연료 생성물은 다음과 같이 4개로 분류된다.<sup>7</sup>

- Oxides dissolved in the matrix : Sr, Zr, Nb, Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm
- Metallic precipitates : Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In, Sb, Te
- Oxide precipitates : Ba, Zr, Nb, Mo
- Gases and other volatile elements : Kr, Xe, Br, I

Fig. 5의 (a) 그림에서 37 지점과 (b)의 10 지점이 핵 분열 생성물의 조성이 가장 크며, 각 원소간 조성을 비교하면 Table 2와 같다.

Table 2의 조성을 비교하면 그림 (a)의 조성이 그림 (b)에 비해 높게 나타남을 볼 수 있다. 이는 그림에서 보는 바와 같이 그림 (a)는 오직 36 지점만 높게 나타나는 반면 그림 (b)는 10 지점을 중심으로 이웃한 지점이 비교적 높은 조성을 나타내기 때문이다.

위의 자료를 근거로 결과를 유추하면 그림 (a)는 기지 재료인 Al과 심재간의 벌어진 공간 때문에 핵분열 생성물의 이동이 구형인 심재의 최외각 부위에 밀집되었다고 볼 수 있다.

반면 그림 (b)에서는 두 개의 심재가 결합된 반응층에서  $\text{U}_{3.24}\text{SiAl}_{14.1}$ 와 같은 조성을 갖는 물질간의 이동이 그림 (a)보다 쉽게 발생할 수 있기에 그림 (b)와 같은 현상을 나타낸다고 사료된다.

Table 2에서 Metallic precipitates를 구성하는 원소인 Mo, Ru, Rh, Pd의 조성은 oxide precipitates를 구성하는 원소인 Ba, Zr, Mo 보다 상대적으로 낮게 나타남을 볼 수 있는데, 이는 시험 시편이 Metallic precipitates의 구조를 갖는 물질이 생성되지 않았기 때문으로 판단 할

Table 2. Compare to Inter-reaction fission products on fig(a) and fig(b)

구분	Sr	Zr	Mo	Ru	Pd	Ba	La	Ce	Nd
그림(a)	0.596	2.673	2.474	207	0.100	1.201	0.797	1.731	2.899
그림(b)	0.428	2.125	2.029	0.988	0.221	1.573	0.368	1.030	1.971



수 있다.

### 3.4. 산화층 (Oxide layer) 분석

U<sub>3</sub>Si-Al 고출력 핵연료는 Al-1060을 피복재의 재료로 사용하였다. 피복재로 사용된 Al의 부식은 산화층의 낮은 열 전도성으로 인해 핵연료심의 온도 및 열팽창을 증가시키는 것과 과도한 부식으로 인해 피복재에 구멍이 생겨 핵연료의 건전성을 해칠 수 있다. Al 피복재의 산화층이 어느 한도치에 도달하면 Al 산화층이 떨어져 나가는 소위 spallation 현상이 일어나며, spallation 현상이 일어난 부위에서는 그 후 국부적으로 심한 부식 및 변형이 일어나는 것으로 알려져 있다.<sup>8</sup> 이러한 이유로 Al 산화층의 조성을 정확히 분석하는 것은 핵연료심의 열팽창 및 열 전도도 등을 검증할 수 있는 자료로 이용되기에 중요시 된다. Fig. 6의 (a)는 시험 시편의 산화층에 대한 Al-tracing 이다. 산화층 시험을 위한 시편 제조는 고방사능을 띤 심재 (U<sub>3</sub>Si) 부분을 diamond cutter로 잘라낸 후 마운팅 및 연마 작업을 거쳤다. 산화층의 두께 분포는 위치에 따라 12 ~ 24  $\mu\text{m}$  임을 확인했다.

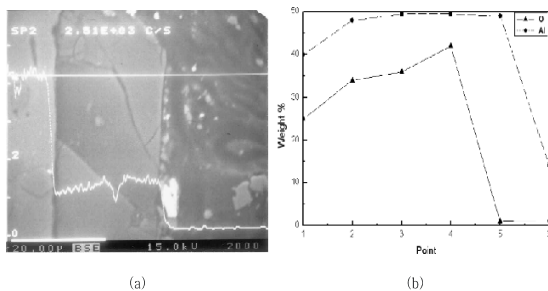


Fig. 6. Analysis in Al cladding.

Fig. 6의 (a)는 산화층의 두께가 24  $\mu\text{m}$ 인 부위를 관찰한 사진으로 그림에서 보는 바와 같이 시편 표면이 균질하지 못하다. 그림 (b)는 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 표준 시편으로 calibration한 후 정량 분석한 결과이다. (a)에서 보는 바와 같이 시편 표면의 불균질로 인해 그림 (b)에서 보인 시험 결과가 일정한 결과를 나타내지 못하고 있다. 본 시험에서는 그림 (b)의 시험 지점 4를 산화층의 대표 값으로 인정하며, 그 조성은 41.421 at% Al, 58.579 at% O의 값을 갖는다. 이상과 같이 시험 시편의 산화층은 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 조성임을 확인했다.

## 4. 결 론

하나로 원자로에서 조사된 최대 선출력이 121 kW/m 이고, 63 at%의 평균 연소도를 갖는 U<sub>3</sub>Si 원심 분무 고출력 핵연료의 반응층 (Inter-reaction layer)과 산화층에 대한 EPMA 시험을 수행하였다. 조사된 고출력 U<sub>3</sub>Si-Al 핵연료에서 형성된 반응층 (Inter-reaction layer)을 EPMA를 사용하여 화학 조성을 분석하기 위해 선행조건은 방사능 허용 한도가 1  $3 \times 10^{10}$  Bq 이하로 제한되는 EPMA 기기에 부합 될 수 있게 시험 시편을 최소화 하기 위한 작업이다. 시험 조건에 부합될 수 있는 시편의 제조를 위해 고출력 핵연료 천공 장치를 제작하였으며, 천공 장치를 사용하여  $\Phi 1.57 \times 2$  mm의 크기를 갖는 시료를 만들었다. 천공 된 시료를 파단 시편과 연마 시편으로 제조하여 파단면의 관찰 및 반응층 (Inter-reaction layer)과 산화층에 대한 EPMA 분석을 수행하였다. 두께가 16  $\mu\text{m}$ 인 반응층 (Inter-reaction layer)에 대한 평균값은 UO<sub>2</sub>를 표준 시편으로 calibration한 경우의 조성은 U<sub>2.84</sub> Si Al<sub>14</sub> 이었으며, 시험 시편으로 calibration한 경우의 조성은 U<sub>3.24</sub> Si Al<sub>14.1</sub> 였다. 또한 반응층에서 핵분열 생성물의 조성을 분석하였으며, 반응층에서의 금속 석출물 (metallic precipitates)의 생성은 확인할 수 없었다. 시험 시편의 산화층은 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 조성임을 확인했다.

## 참고 문헌

1. B. O. Yoo, Y. H. Jung, Y. S. Choo, K. P. Hong., "Post Irradiation Examination of Mini-Plate Nuclear Fuel", KAERI/TR-1896, KAERI, 2001.
2. B. O. Yoo, Y. S. Choo, K. P. Hong., "Post Irradiation Examination of HANARO Nuclear Mini-Element Fuel", KAERI/TR-1836, KAERI, 2001.
3. Y. H. Jung, B. O. Yoo, Y. S. Choo, K. P. Hong, "Irradiated U<sub>3</sub>Si Fuel EPMA Quantitative", KAERI, 2000.
4. P. G. Luctuta, R. A. Verrall, H. J. Matzke and B. J. Palmer., "Micro structural Features of SIMFUEL", J. Nucl. Mater. **178**, 48(1991).
5. I. H. Jung, K. C. Song, K. H. Kang, B. O. Yoo, Y. H. Jung, H. S. Park., "Characterization of Irradiated SIMFUEL", Metals and Materials International, **7**, 514(2001).

6. Y. H. Jung, K. P. Hong, D. G. Park, S. B. Ahn.,  
“EPMA Analysis of non-coated UO<sub>2</sub> pellet”,  
KAERI/TR-2579, KAERI, 2003.
7. H. Kleykamp, J. Nucl. Mater. **131**, 221(1985).
8. B. O. Yoo, Y. S. Choo, K. P. Hong., “Post  
Irradiation Examination of HANARO Nuclear  
Mini-Element Fuel”, KAERI/TR-1836, KAERI, 2001.