

EPMA를 이용한 사용후 PWR 핵연료 PCI 영역 분석

정양홍, 유병옥, 백승제, 안상복, 류우석

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Ducjin-dong, Yuseong-gu, Daejeon 305-353, Korea
nyhiung@kaeri.re.kr

1. 요약

가압 경수로에서 53,000 MWd/tU으로 연소된 사용후 핵연료의 PCI 영역에 대해 방사선 차폐형 성분 분석기기(Shielded EPMA)를 사용하여 반경방향에 대한 성분분포를 분석하였다. PCI 영역에서 산화층의 두께는 13um이었으며, 핵분열생성물의 침투 두께는 시료에서 약 10 um 이내로 나타났다. 이 두께에 침투된 핵종의 총 농도는 1~2 wt%로 관찰되었다. 주요핵종은 Cs 0.5~0.7 wt%, Mo 0.2~0.3 wt%, Pd, Ru, Nd, Ce등이 0.1~0.2 wt%로 관찰되었다.

2. 시험 결과

사용후핵연료봉의 폐 피복관(Hull)에는 핵연료 용해과정에서 미 용해된 핵연료 잔재가 묻어 나오게 되는데, 이 양은 원래 핵연료의 약 0.1% 정도인 것으로 알려져 있다[1]. 또한 이 hull에는 우라늄이나 플루토늄 외에도 피복관 원료 금속중에 포함되어 있는 원소의 방사화로 생성되는 방사화 생성물 및 핵분열 생성물 등이 다량 포함되어 있어 고준위방사성 폐기물로 분류되고 있다. 그림 1은 PCI 시험시편의 광학사진으로, 중앙부위에 전자빔이 입사된 영역에 대해 시험을 수행하였다. Hull 내부에 존재하는 산화층의 두께를 측정하기 위하여 산소포텐셜을 측정하여 나타내었다. 그림 2에서 Zr과 산소의 포텐셜이 같은 지점의 거리는 15 um로 확인되었다. Restani[2]등은 SIMS를 사용하여 hull 내부 표면 상태를 분석하였는데, 핵분열생성물 중 가장 가벼운 원소인 Sr이 recoil등의 현상으로 표면으로부터 가장 깊은 곳(약 12um)까지 침투하며, Cs은 약 10 um까지 침투된다고 확인하였다. 본 시험에서 EPMA를 사용하여 hull 내부로 침투한 핵분열생성물의 분포를 그림 3와 4에 나타내었다. 그림 3는 PCI 영역 50 um 거리를 정량 분석한 결과로서 산화층의 두께가 시험지점 17-30까지 약 13 um였고, 시험지점 32에서 50까지의 fuel영역에 대한 정량시험 결과 65.697 at% O, 33.913 at% U의 평균값을 나타내었다. 그림 4은 cladding에서 PCI 영역으로 25um 거리에 대해 핵분열 생성물의 분포를 정량분석한 시험 결과로서, Cladding 내부로 침투된 핵분열생성물의 침투깊이는 Restani등이 확인한 10 um정도임을 알 수 있었다.

지르코늄은 고온에서 산소, 질소 등과 같은 기체 원소와 쉽게 반응하며, 고온의 냉각수에서도 부식이 잘 일어난다. 특히 내식성이 미치는 질소의 영향이 커서 함유량이 0.02% 이상이면 내식성의 저하가 심하게 일어난다. 지르코늄은 내식성과 강도개량을 위해 Sn, Ni, Cr, Fe등 여러 합금 원소를 첨가한다. 합금원소 중 Sn의 첨가량이 증가하면 Zr₄Sn의 석출물을 만들며 Fe, Cr, Ni은 소량이 첨가되어도 금속간 화합물로 석출되므로 석출경화를 일으킨다. 그림 5와 6은 그림 1의 중앙시험 부위에 대해 Sn, Fe에 대한 Image Mapping한 결과로 산화층의 분포 및 PCI 영역의 상태를 보여주고 있다. 그림 5에서 Sn의 Image Mapping한 결과로 산화층 끝단 부위에 Sn의 농도가 부분적으로 높게 나타남을 알 수 있다. 이는 Sn의 양이 증가하면 Zr₄Sn의 금속간 화합물로 석출되었기 때문으로 사료된다. 그림 6은 Fe, Cr, Ni의 원소 중 대표적인 Fe에 대한 그림으로서 수 um 크기의 석출상을 나타내고 있으며, 그림 7은 첨가량이 증가하면 내식성을 악화시키는 불순물 원소 중 N에 대한 시험 결과로서 비교적 균질한 분포를 나타내고 있음을 알 수 있다.

3. 결론

53,000 MWd/t-U 연소한 경수로 핵연료의 PCI 영역에 대하여 EPMA를 이용하여 분석을 실시하였다. 피복관의 산화층 두께는 13 m 이었으며 지르코늄은 내식성과 강도개량을 위해 첨가한 Sn의 농도는 산화층 끝단 부위에 부분적으로 높게 나타남을 알 수 있었다.

또한 Cladding에서 PCI 영역으로 25um 거리에 대해 핵분열 생성물의 분포를 정량 분석한 시험 결과 cladding 내부로 침투된 핵분열생성물의 침투깊이는 Restani등이 확인한 10 um 정도임을 확인하였다.

4. 참고자료

- [1] I. L. Jenkins and R. F. Taylor, "Treatment of stainless steel and zircaloy cladding hulls", Pacific Northwest laboratory, Richland, Washington, PNL-2985(1979).
- [2] R. Restani et. al., "Characterization of PWR cladding hulls from commercial reprocessing " NAGRA Technical report 92-13(1992).

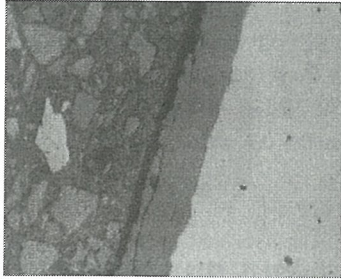


그림 1. PCI영역의 광학사진

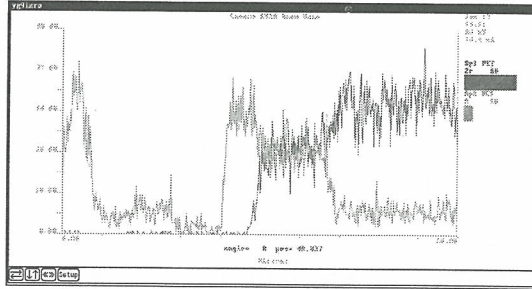


그림 2. PCI 영역의 Zr, O 분포도

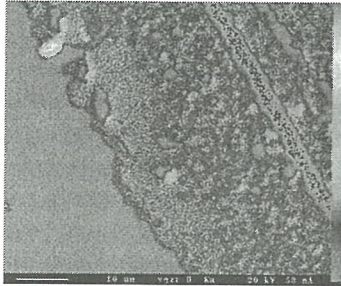


그림 3. O Image Map

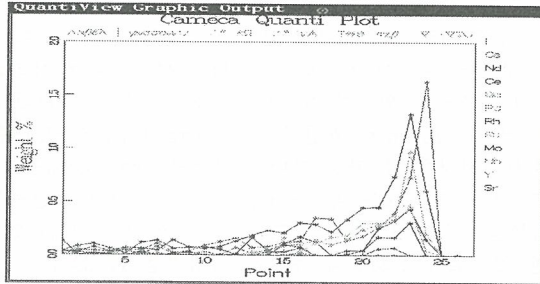


그림 4. PCI 영역의 핵분열생성물분포

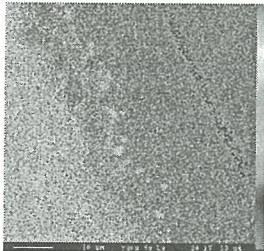


그림 5. Sn Image Map

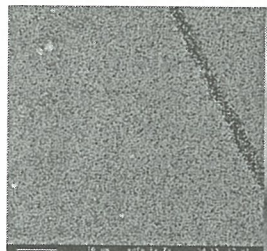


그림 6. Fe Image Map

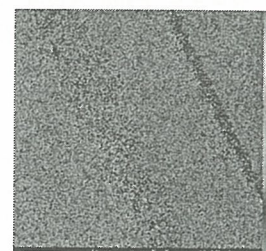


그림 7. N Image Map