

Analysis of High Radioactive Materials in Irradiated DUPIC SIMFUEL Using EPMA

EPMA를 이용한 DUPIC 사용후 핵연료 핵분열 생성물의 특성 분석

**Yang-Hong Jung, Bang-Ok Yoo, Yong-Sun Joo, Hee-Mun Kim, In-Ha Jung*
and Myung-Han Kim****

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yuseong-gu, Daejeon
Chungbuk University, San 48, Gaesin-dong, Hongduk-gu, Cheongjo-city, Chungbuk
nvhiung@kaeri.re.kr

정양홍, 유병옥, 주용선, 이종원, 정인하*, 김명한**

*한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

**충북대 학교, 충북 청주시 흥덕구 개신동 산48

(Received April 20, 2004 / Approved June 7, 2004)

Abstract

Fission products of DUPIC (Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors) fuel, irradiated in HANARO research reactor with 61 kW/m of maximum linear power and 1,770 MWd/tU of average burn-up, was characterized by EPMA(Electron Probe Micro Analyzer). In order to find accurate characterization, the analysis results by EPMA of fresh simulated DUPIC fuel containing fission products as chemicals were compared with that of wet chemical analysis. The metallic precipitates observed at the center of the fresh simulated DUPIC fuel were about 1 μm in size and their major components by EPMA were Mo-53.89 at.%, Ru-37.40 at.%, and Pd+Rh-8.71 at.%. Established procedure through the fresh simulated DUPIC fuel was applied to the irradiated DUPIC fuel.

Observed size of metallic precipitates were 2~2.5 μm and their compositions were Mo-47.34 at.%, Ru-46 at.%, and Pd+Rh-6.65 at.%.

What are uncommon things for this experiment, special treatment for improving the conductivity was attempted to the specimen and the conditions of exact irradiation of electron beam to small metallic precipitate were suggested.

Key Words : EPMA, nuclear fuel, post irradiation examination, DUPIC

요약

최대 선출력 61 kW/m 및 평균 연소도 1,770 MWd/tU의 조건으로 하나로에서 조사한 DUPIC(Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors) 핵연료를 EPMA (Electron Probe Micro Analyzer)를 이용하여 핵분열 생성물을 분석하였다. EPMA의 정확한 분석 방법을 확립하고자, 핵분열 생성물 대신 시약을 첨가하여 제조한 모의 DUPIC 핵연료로 EPMA 분석을 수행하였고, 그 결과를 습식 화학 분석의 결과와도 비교하여 평가하였다.

모의 DUPIC 핵연료 중심부의 금속 석출물은 약 1 μm 정도의 크기로 관찰되었으며, 이들의 조성은 Mo-53.89 at.%, Ru-37.40 at.% 및 Pd+Rh-8.71 at.%이었다. 모의 DUPIC 핵연료 시험에서 정립한 시험 방법으로 조사한 DUPIC 핵연료 시편의 금속 석출물 특성을 분석하였다. 핵연료 중앙부에서 관찰된 금속 석출물들의 크기는 2~2.5 μm 정도이었으며, Mo-47.34 at.%, Ru-46 at.%, Pd+Rh-6.65 at.%의 조성임을 확인하였다. 이 실험을 위하여, 특별히 시료의 전도성을 향상시키기 위한 처리를 하였으며, 작은 금속 석출물에 EPMA의 전자빔을 정확히 조사할 수 있는 실험조건을 제시하였다.

중심단어 : 핵분열 생성물 분석, 사용후 핵연료, DUPIC 핵연료, EPMA 성분분석

I. 서론

UO₂ 핵연료가 조사되면 30개 이상의 핵분열 생성물이 생성된다. 각 생성물의 종류 및 농도는 여러 가지 조건에 의하여 변화되지만 주로 핵분열 원소, 임계 출력, 중성자 에너지, 조사 기간과 냉각 시간 등에 기인된다[1]. 그러나, 핵분열 생성물 측정, 핵연료 성능 평가, 열 또는 기계적 물성 등을 직접 측정하는 것은 사용후 핵연료의 고 방사선량 때문에 용이하지 않으므로 모의 핵연료를 이용하여 왔다[2]. 실험실적으로 모의 사용후 핵연료는 핵연료의 연소도에 따라 생성되는 핵분열 생성물을 시약으로 대체하여 제조하며, 핵연료의 물성, 핵분열 기체 방출 및 입자 성장 등의 연구에 활용하며, 핵연료의 노내 거동 및 성능 분석 등을 위한 기초 자료로 사용한다.

사용후 핵연료에 분포되어 있는 핵분열 생성물은 다음과 같이 알려져 있다[3]:

- 매질내에 용해된 원소 : Sr, Zr, Nb, Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm
- 금속 석출물 : Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In, Sb, Te
- 산화 석출물 : Ba, Zr, Nb, Mo, Rb, Cs, Te
- 휘발성 원소 : Kr, Xe, Br, I

핵분열 생성물 중 금속 석출물은 핵연료의 전기 및 열 전도도 등에 큰 영향을 미치며, 다량의 금속 석출물 생성은 고 연소도 핵연료의 성능을 변화시키는 주요 인자이므로 조사후 시험에 있어서 금속 석출물의 특성을 분석하는 것은 매우 중요하다.

본 논문에서는 화학적 조성을 알고 있는 모의 DUPIC 핵연료를 사용하여 EPMA의 분석 방법 및 측정의 정확도를 확립하였으며, 확립된 분석 방법으로 하나로에서 조사한 DUPIC 핵연료의 핵분열 생성물 및 금속 석출물의 특성과 조성을 분석하였다.

II. 실험 방법

2.1 시편 준비

2.1.1 모의 핵연료 제조

모의 DUPIC 핵연료는 경수로에서 35,000 MWd/tU burn-up 조건일 때의 핵분열 생성물을 ORIGEN code로 계산하여 약 14종의 대표 원소들을 첨가하였으며, 표 1에 그 조성을 나타내었다. 제조 방법은 3.2% 농축 우라늄과 천연 우라늄을 혼합한 분말 약 400 g을 dry attrition에서 150 rpm의 회전 속도로 약 15분간 혼합 및 분쇄하였으며, 이 공정을 5회 반복하였다. 초기에 분쇄되지 않은 분말의 입도가 3.28 μm

에서 1회 분쇄 후에는 입도 1.68 μm , 5회 분쇄 후에는 입도 0.5 μm 를 나타내어 분쇄 횟수가 증가할수록 입도는 작아지는 경향을 나타내었다. 성형 과정에서 다이 벽면과 성형체 간의 마찰을 막기 위해 Zn stearate를 벤젠에 녹여 벽면에 도포하였다. 약 1.65 t/cm^2 의 압력으로 성형하였으며, 1,800 $^\circ\text{C}$, H_2 (100%) 분위기에서 약 10시간 소결하였다. 소결 후 핵연료의 밀도는 이론 밀도의 약 96.6~96.9%으로 소결체의 기준을 만족하였다.

그림 1은 표면 연마한 시료의 광학 및 이차 전자상 사진으로, 1~1.5 μm 크기를 갖는 금속 석출물은 밝은 빛의 점들로 보이는데, 이는 첨가한 핵분열 생성물들이 metal precipitate나 oxide precipitate로 석출된 것들이다.

2.1.2 DUPIC 핵연료

경수로 사용후 핵연료를 분쇄하여 hot cell에서 제조한 DUPIC 핵연료를 최대 선출력 61 kW/m, 평균 선출력 53 kW/m, 평균 연소도 1,770 MWd/tU의 조

건으로 하나로에서 조사시켰다. DUPIC 핵연료를 내장한 Rig(그림 2(a))는 Al-6061의 재질이며 길이 960 mm, 직경 56mm, 무게 3.0 kg 이다. 핵연료 피복관은 Zr-4이며, 두께가 0.66 mm, 내경 10.8 mm, 길이 199 mm 이다. 또한 소결체의 길이는 10 mm, 직경 10.6 mm, 밀도는 10.07 g/cm^3 이다. 하나로에서 조사 후, 미세조직의 관찰용 시편은 핵연료봉 상단으로부터 100 mm의 지점을 diamond wheel을 사용하여 두께 5 mm의 크기로 절단하여 가공하였다.

2.1.3 조사한 DUPIC 핵연료의 시편 제조

조사된 DUPIC 핵연료의 조성을 EPMA로 분석하기 위하여는 방사능 강도가 $3.7 \times 10^{10}\text{Bq}$ 이하가 되도록 시험 시편을 최소화 하여야 한다. 고 방사능을 띤 핵연료 시편을 핫셀(hot cell)에서 작은 크기로 만들기 위하여, diamond wheel을 사용하여 시편을 원격조작기(manipulator)로 집을 수 있을 만큼의 크기로 절단한 후, 전도성 레진으로 hot press mounting(150 $^\circ\text{C}$, 0.6 Mpa) 하였다. 시료의 두께가 너무 얇을 경우 고압의 핫 마운팅시 시편이 부서질 수 있기 때문에 5 mm 정도의 두께로 절단하였다. 이어서, 미세 절단 및 마운팅 과정을 반복하여 시료의 크기 2.5 \times 5 \times 1.5mm 3 (W \times L \times D)로 제작하여 방사선 세기를 최소화 하는 시편 제작 작업을 수행하였다. 최종 미세 연마까지 완료한 시편은 침윤법에 에칭하였다. 에칭 용액은 중류수, 질산, 불산 및 citric acid를 각각 163 ml, 72 ml, 1 ml 및 3.4 g을 혼합한 것으로 상온에서 약 40~45초 동안 에칭하였다. 산화물 핵연료는 전기 전도도가 낮아 ($3 \times 10^{-1} \sim 4 \times 10^{-8}/\text{ohm}\cdot\text{cm}$) 시료에 입사된 전자와 이동이 부족하여 발생하는 charging 현상 때문에 이차 전자상의 관찰이나 성분 분석이 불가능하다. 일반적으로 핵연료 시편 분석시 시편에 입사된 전자빔의 전자 흐름을 위하여 전도성 재료를 증착 시키는 방법을 사용하지만, 본 시험에서는 전도성 레진으로 마운팅한 시편에 silver paint (Leistsilver 2000 silver paint, TED PELLA, INC.)를 도포하는 방법으로 전도성을 향상시켰다. 이 방법은 고 방사능을 띤 시료를 핫셀에서 증착하여야 하는 어려운 작업 과정을 피하고도 비 전도성 물질에서 발생하는 charging 현상 없이 시

Table 1. Composition of simulated DUPIC fuel

Element	g/kg U	Element	g/kg U
Zr	0.606	Pr	0.158
Mo	0.606	Nd	0.571
Ru	0.375	Sm	0.120
Pd	0.221	Rb	0.533
Ba	0.323	Sr	0.103
La	0.173	Y	0.068
Ce	0.360	Rh	0.062

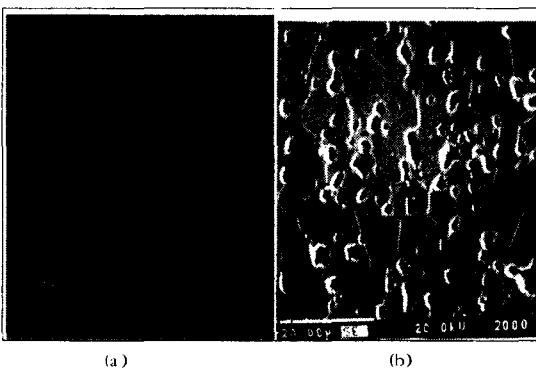


Fig.1. Cross section of SIMFUEL(x400) (a) and image of secondary electron(b).

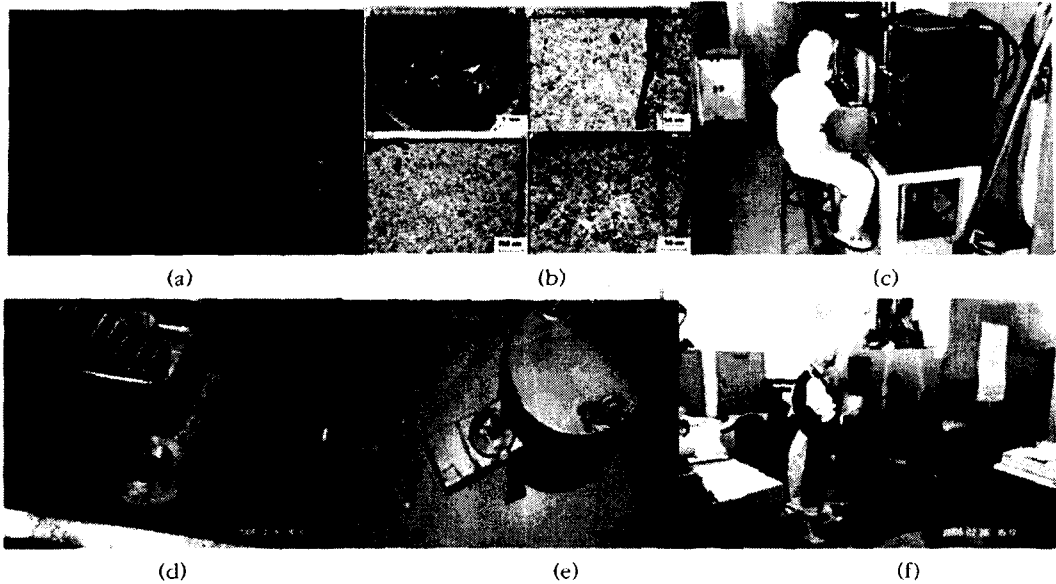


Fig.2. Specimen preparation and mounting to the EPMA

(a) Dismantled rig and fuel elements, (b) Metallography of the irradiated DUPIC fuel, (c) Specimen preparation in a glove box, (d) Mounted specimen in a specimen holder, (e) Lead cask for transferring the specimen, (f) Mounting the specimen to EPMA.

료를 분석할 수 있는 편리한 방법이다[5]. Silver paint는 모세관 활성(capillary active)현상을 일으켜 시료 내부로 침투하여 들어가므로 시료 표면에 입사된 빔의 전도체 역할을 하는 것으로 믿어진다[6].

Silver paint가 시료 내부에 충분히 침투되도록 silver paint를 바른 시료를 진공 챔버에 넣고 약 30분간 방치하였다. 완료된 시편은 그림 2의 (e) 및 (f)와 같이 시편 이송 장치를 이용하여 납 차폐 벽이 설치되어 있는 EPMA실로 옮겨 tung 기구를 이용하여 시편을 기기에 장착했다.

2.2 EPMA (Electron Probe Micro Analyzer)

본 시험에 사용한 EPMA (Electron Probe Micro Analyzer, SX-50R, CAMECA, Paris, France)는 방사능을 띤 조사 핵연료를 시험할 수 있도록 시편 장착 부위, WDS 및 Chamber 등을 납과 텅스텐으로 차폐시켰으며, 시편의 방사능 세기가 3.7×10^{10} Bq까지 시험이 가능하도록 하였다. 핵분열 생성물인 Nd, Mo, Ru, Rh 와 Pd 등을 분석하기 위한 인가

전압은 20 kV, 전류는 20 nA로 하였다. Nd의 분석은 WDS-1의 PET X-tal의 L_{α} X-ray line을 이용하였으며, Mo는 WDS-1의 PET X-tal의 K_{α} X-ray line,

Ru, Rh, Pd는 WDS-2의 PET X-tal 의 L_{α} X-ray line을 이용하여 분석하였다. 그러나 핵분열 생성물 중 표준 시편을 구할 수 없는 Pu, Am 등은 분석에서 제외하였다.

금속 석출물의 화학 조성을 정확하게 분석하기 위하여는, 기기에서 출력된 전자빔이 석출물의 중앙 부위에 정확하게 입사되어야 하고, 또한 시편의 기울기와 stage의 미세한 진동이 없어야 한다. 본 시험에서는 측정 시간 동안 stage를 구동하는 모터를 정지시킴으로서 시편 스테이지의 진동을 완전히 제거하였다. 전자 빔은 1 μ m 크기의 집적(fix mode)방식으로 금속 석출물의 화학 조성을 분석하였다.

III. 결과 및 토의

3.1 미조사 모의 핵연료 분석

3.1.1 금속석출물

EPMA 분석 결과의 정확성 확인을 위하여 습식 화학 분석을 수행하였고, 그 결과를 표 2에 나타내었다[8]. 표 2에서 (a)는 모의 DUPIC 핵연료를 화학 분석한 결과인데, 이 조성은 핵연료 제조시 핵분열 생성물로 첨가한 화학 물질의 조성파 일치하였다. 표 2

에서 (b)는 20,000배의 배율에서 확대 주사 방식(TV mode)으로 넓은 영역에 전자 빔을 인가하여 분석한 모의 DUPIC 핵연료의 조성이다.

전자 빔은 집적(fix mode)방식을 이용하는 경우 입계나 시편의 공극 부위가 배제되어 부정확해 질 수 있으므로 넓은 면적의 조성을 분석하였다.

이 결과를 토대로 인가 전압과 전류 등 기기의 분석 조건을 확립한 다음, 모의 DUPIC 핵연료에 생성된 금속 석출물의 농도를 측정하였고, 그 결과를 표 2의 (c)에 나타내었다.

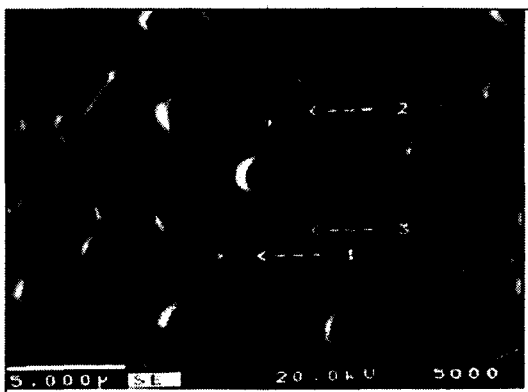
표 2에서 Metallic precipitates를 구성하는 원소인 Mo, Ru, Rh 및 Pd의 조성은 oxide precipitates를 구성하는 원소인 Ba, Zr 및 Mo 보다 상대적으로 낮게 나타남을 볼 수 있는데, 이는 시험 시편이 metallic

precipitates의 구조를 갖는 물질이 생성되지 않았기 때문으로 판단 할 수 있다. 그림 3은 금속 석출물의 사진(a) 및 석출물 한 개를 10point 정량분석한 결과 (b)를 나타낸다. 그림 3의 (b)에서 분석 지점 6은 금속 석출물의 중앙으로 추측되는 지점으로 석출물의 조성은 Mo-49.512 wt%, Ru-32.153 wt%, Pd-3.682 wt% 및 Rh-3.232 wt% 및 U-11.48 wt%을 각각 나타내었다.

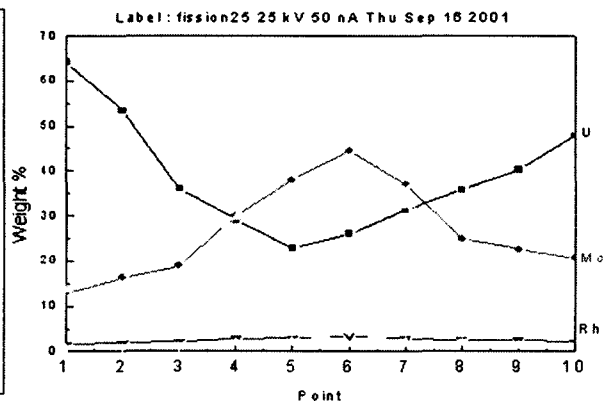
U의 조성을 제외한 금속 석출물의 원소를 at.%로 환산하면 Mo-53.89 at.%, Ru-37.40 at.%, 그리고 Pd+Rh-8.71 at.% 이었다. 이로써, 조사하지 않은 모의 DUPIC 핵연료의 금속 석출물은 Mo-Ru-Pd 합금에 대해 연구한 H.Kleykamp등[9]과 P.G. Lucuta등[10]의 결과를 보면 hexagonal p6/mmc의 격자구조

Table 2. Comparison the concentrations between wet chemical analysis and EPMA (unit: wt.%)

Chemicals	Chem. analysis, (a)	EPMA area scanning, (b)	Conc. of ppt. (c)	Chemicals	Chem. analysis, (a)	EPMA area scanning, (b)	Concen of PPT. (c)
Zr(ZrO ₂)	0.397	0.367	0.108	Ce(CeO ₂)	0.233	0.278	0.035
Mo(MoO ₃)	0.449	0.392	49.521	Nd(Nd ₂ O ₃)	0.480	0.476	0.055
Ru(RuO ₂)	0.239	0.269	32.153	Sr(SrO)	0.076	0.084	-
Pd(PdO)	0.028	0.187	3.682	Y(Y ₂ O ₃)	0.050	0.052	-
Ba(BaCO ₃)	0.203	0.218	-	Rh(Rh ₂ O ₃)	0.073	0.049	3.232
La(La ₂ O ₃)	0.155	0.143	0.09	U			11.48



(a)



(b)

Fig. 3. Metallic precipitates in the un-irradiated SIMFUEL(a) and its concentration(b).

를 갖는 phase로 추정된다.

3.1.2. Perovskite phase

UO₂ 핵연료 조사 과정에서 생성되는 barium과 zirconium은 주변의 산소농도에 따라 perovskite를 형성하기도 한다. 이들은 직경 약 0.1 μm의 작은 석출물이며 핵연료 전반에 균일하게 발생된다고 알려져 있다[11-13]. 이 시료에서도 perovskite 형태의 석출상이 그림 4(a)와 같이 관찰되었으며, 이 부분의 Ba 농도를 그림 4(b)에 나타내었다. 석출물 한 개의 크기가 약 0.1 μm라고 알려져 있는 perovskite의 석출상은 그림 4의 (a)와 같이 수 μm 크기의 균을 형성하고 있었다. 이 perovskite 균은 이차 전자상에서 열은 회색으로 관찰되었으며, 입계 뿐만 아니라 시편 전 영역에 걸쳐 분포되어 있음을 관찰 할 수 있었다. 표 3은 그림 4에서 나타낸 perovskite 석출상의 조성을 분석한 결과다.

표 3에서 보는 바와 같이, perovskite의 주요 성분은 Ba, Zr 및 O이었으며, 구성비는 Ba-18.96 at.%, Zr-17.27 at.% 및 O-60.17 at.%를 나타내었다. 이 원소들의 비율은 약 1:1:3으로, BaZrO₃에 해당되므로 perovskite로 정의 할 수 있으며, 다른 문헌에서 연구된 결과와 일치하였다[14]. Powder Diffraction Files[12]에 따르면 순수한 BaZrO₃ perovskite는 cubic 구조를 가지면 격자상수는 0.419 nm로 알려져 있다.

3.2 조사후 DUPIC 핵연료 분석

3.2.1. 광학 및 SEM관찰에 의한 조직특성

그림 5의 (a)는 하나로에서 조사한 DUPIC 핵연료

Table 3. Concentration of perovskite in the simulated DUPIC fuel

Element	Concen, wt. %	Normal, at. %	Compound	Concen, wt. %
Ba	43.114	18.96	BaO	48.136
Mo	0.108	0.07	MoO ₃	0.163
U	8.962	2.27	UO ₂	10.167
Zr	26.234	17.37	ZrO ₂	35.436
O	15.937	60.17		
Total	96.515			96.515

의 조사후시험 결과이다. 그림 5의 (b)는 r/r0 0 부근에 관찰한 핵분열 생성물 중 금속 석출물의 사진이다. 조사하지 않은 모의 DUPIC 핵연료에서 관찰된 금속석출물의 크기가 1~1.5 μm인데 비하여, 조사한 DUPIC 핵연료의 금속 석출물 크기는 2~2.5 μm 정도의 크기로 관찰 되었다. 이는 중성자 조사시 생성된 핵분열 생성물이 초기 핵연료 소결시 이미 생성되어 있던 핵분열 생성물들과 결합하였기 때문으로 판단된다. 금속 석출물들은 그림과 같이 입자의 경계에서 관찰 되었지만, 입자 내부에서도 관찰 되었다. EPMA로 분석한 결과, 입자 내부 또는 경계에 생성된 금속 석출물들 간에는 농도 차이가 없었다. 그러나 이들의 농도는 소결체의 반경 방향 위치에 따라 조성의 차이가 있는 것으로 관찰되었다.

금속 석출물은 Mo, Ru, Rh 및 Pd가 주성분이었으며, 위치에 따른 금속 석출물의 구성비는 그림 5의 (c)와 같았다. 즉, Mo와 Ru의 경우 시편의 가장자리 지점인 r/r0의 값이 커질수록 감소하는 경향을 나타내었는데, 그 이유는 이들 두 핵종의 경우 주변의 산소 농도가 높을 경우 금속으로 존재하기 보다는 산화물로 존재하는 경향이 있기 때문으로 판단된다. 그림 5의 (d)는 핵연료 반경 방향으로 매질에 용해되어 있는 Mo의 농도를 측정된 결과인데 피복관 가까운 곳에서는 Mo의 농도가 다소 높은 것을 관찰 할

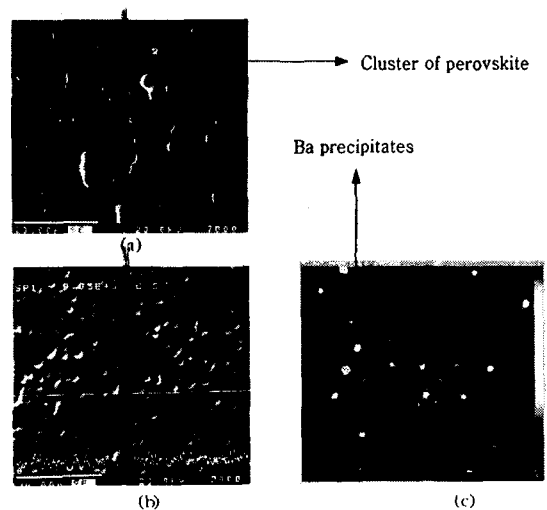
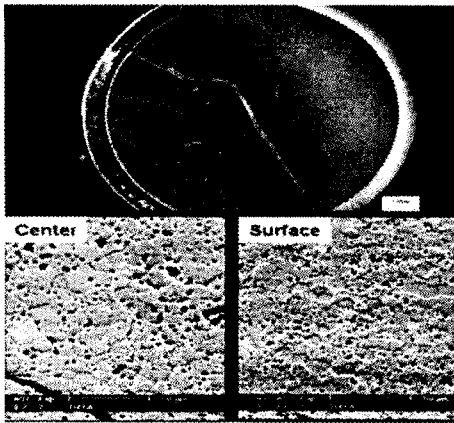


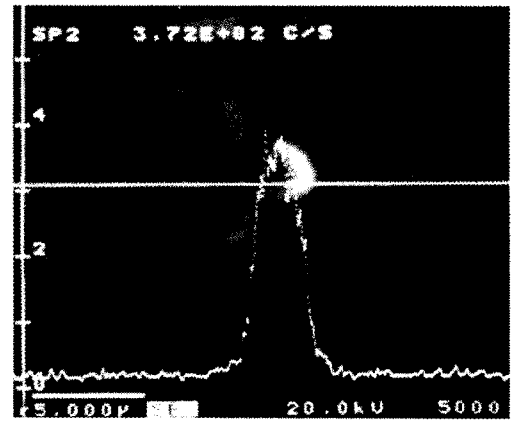
Fig. 4. Cluster of perovskite (a), Ba trace(b) and image map of Ba(c).

수 있다. 일반적으로 중성자의 흡수는 핵연료 피복 관 부위에 가장 많이 일어나며, 이 때문에 핵연료에

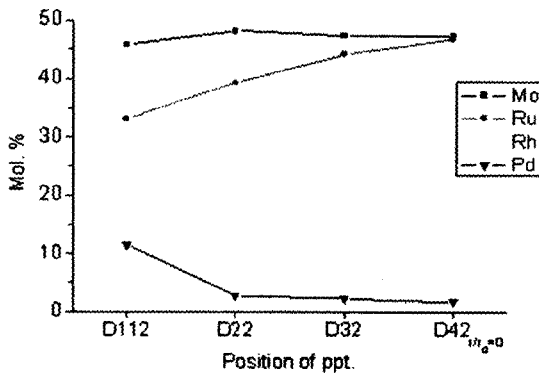
서 핵분열이 가장 많이 일어나는 곳이다. 즉, 피복관 가까운 곳에서는 핵분열 과정에서 우라늄으로부터



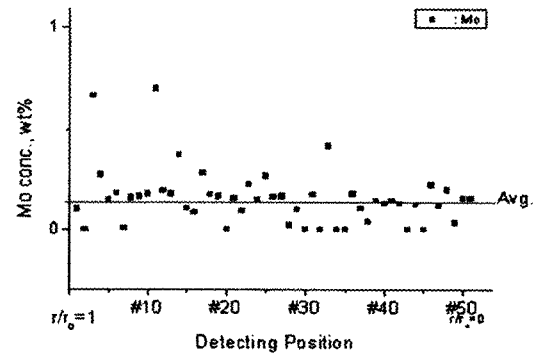
(a)



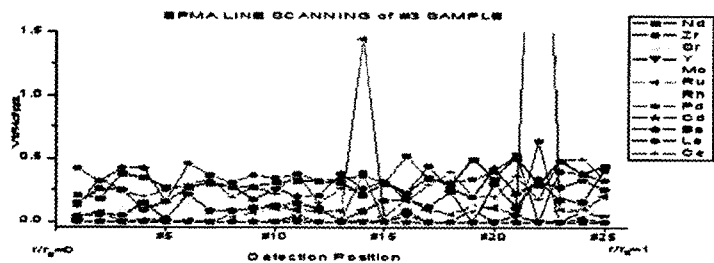
(b)



(c)



(d)



(e)

Fig.5. Results of post irradiation examination of the DUPIC fuel

- (a) Cross section of DUPIC fuel by optical microscope (TELATOM III, LAICA, Austria)
- (b) Metallic precipitate on grain boundary and trace of concentration of Mo
- (c) Concentration profile of the precipitates along the radius of the fuel
- (d) Concentration profile of Mo along the radius of the fuel
- (e) Concentration profile of fission products along the radius of the fuel.

이탈한 풍부한 산소 때문에 산소의 농도가 높은 곳이다. 피복관 부위의 Mo 농도가 낮은 것은 높은 산소 농도 조건에서 Mo가 MoO₂의 산화물을 이루기 때문이며, 이러한 성질은 Ru의 경우에도 마찬가지로 성질을 갖는 것으로 알려져 있다. 이 때문에 피복관 부위에 생성된 석출물 중 Mo 및 Ru의 농도가 핵연료 중앙보다 낮게 관찰된 것이다.

그림 5의 (e)는 핵분열 생성물의 농도를 EPMA로 측정된 결과이다. 모의 DUPIC 핵연료 시험에서와 같은 방법으로 1 μm 크기의 빔으로 핵연료의 중앙 부분에서부터 피복관 쪽으로 200 μm씩 이동하여 전체 길이 5,000 μm의 핵분열 생성물을 측정하였다. 그림 5의 (e)에서 위치 #14 및 #22에서 Mo 및 Ru의 농도가 높게 나타난 것은 측정 위치에서 금속 석출물이 측정되었기 때문이다.

3.2.2. Perovskite

본 연구의 3.1.2 절에 모의 DUPIC 핵연료에 대한 perovskite 석출상의 관찰 및 조성 분석의 결과를 기술하였으나, 조사한 DUPIC 핵연료에서는 barium-zirconate perovskite 석출물은 관찰할 수 없었다.

3.2.3. 금속 석출물의 분석

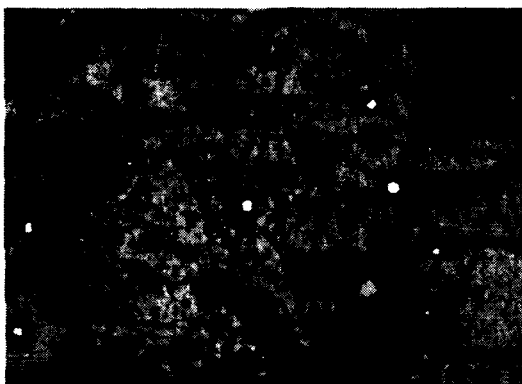
그림 6은 조사한 DUPIC 핵연료에서 관찰된 금속 석출물 및 이들의 농도를 정량 분석한 결과이다. 그림 6의 (b)는 약 2.5 μm의 크기를 갖는 한 개의 금속 석출물을 대각선 방향으로 5점 정량 분석한 결과이다. 2.5 μm 크기의 석출물을 1 μm 크기의 빔으로 5점 분석하므로 각 분석 지점의 빔은 중첩되어 분석

된다. 그림 6의 (b)에서 시험 부위 3과 같이 우라늄이 검출되지 않았다. 이 결과는 조사한 DUPIC 핵연료의 금속 석출물 조성을 대표하는 값이라고 할 수 있다. 표 4에 입자 내부 또는 경계에 생성된 석출물들의 농도를 나타내었다. 표 4에서 보는 바와 같이 이들의 농도는 큰 차이를 보이지 않았다. 그러나, 이들의 조성은 소결체 반경 방향으로 위치에 따라 차이가 있는 것으로 관찰되어 모의 DUPIC 핵연료의 분석 결과와 일치하였다.

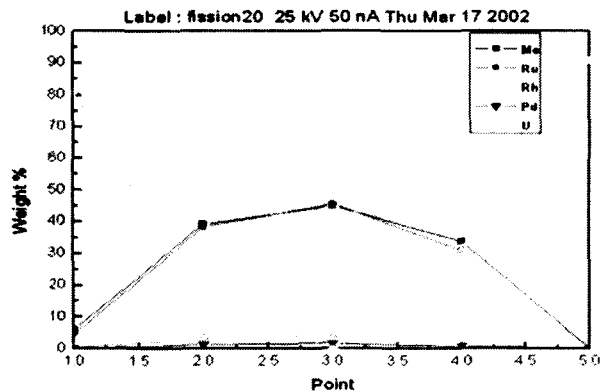
표 4에서 U의 조성을 제외한 금속 석출물의 원소를 at %로 환산하면 Mo-47.34 at%, Ru-46 at% and Pd+Rh-6.65 at% 이다. DUPIC 핵연료에서 생성된 이 금속 석출물은 이러한 조성의 금속 석출물은 Mo-Ru-Pd 합금에 대해 연구한 H.Kleykamp등[9]과 P.G.

Table 4. Concentrations of precipitates on grain boundaries and intra grains(wt.%)

원소	결정립 내부	결정립계
Mo	45	42.49
Ru	45.59	45.21
Rh	4.24	4.25
Pd	1.68	1.81
U	0	1.32
Total	96.63	95.17



(a)



(b)

Fig. 6. Metallic precipitates in the irradiated SIMFUEL(a) and their concentrations(b).

Lucuta등[10]의 결과로부터 추정하면 징방격자 구조를 갖는 ϵ -phase로 생각된다.

IV. 결 론

최대 선출력이 61 kW/m, 평균 선출력 53 kW/m 및 평균 연소도 1,770 MWd/tU의 조건으로 하나로에서 조사한 DUPIC 핵연료의 핵분열 생성물을 EPMA로 분석하였다. EPMA의 정확한 분석 방법을 확립하고자, 핵분열 생성물 대신 시약을 첨가하여 제조한 모의 DUPIC 핵연료로 EPMA 분석을 수행하였고, 그 결과를 습식 화학 분석의 결과와도 비교하여 평가하였다. 조사하지 않은 모의 DUPIC 핵연료 금속 석출물의 크기는 약 1 μ m 정도인 것으로 관찰되었으며, 이들의 조성은 Mo-49.512 wt%, Ru-32.153 wt%, Pd-3.682wt%, Rh-3.232 wt%이었다. Barium과 zirconium의 산화물인 Perovskite 상을 관찰하였으며, 그 조성은 Ba 18.96 at.%, Zr 17.27 at.%, O 60.17 at.%임을 확인하였고, 이들의 화학식은 BaZrO₃인 것으로 추측되었다. 조사한 DUPIC 핵연료의 금속석출물은 크기가 2~2.5 μ m 정도인 것으로 관찰되었고, 이들의 조성은 Mo-47.34 at.%, Ru-46 at.% 및 Pd+Rh-6.65 at.%를 나타내었다.

참고문헌

1. P.G.Lucata, B.J.Palmer, H.J.Matzke, D.S.Hartwig., "Preparation and Character of SIMFUEL" Proc. And Int. Conf. on CANDU Fuel, CNS, Toronto, 1989.132
2. P.G. Luctuta, R.A. Verrall, H.J. Matzke and B.J. Palmer., " Micro structural Features of SIMFUEL", J. Nucl. Mater. 178 (1991) 48
3. H.Kleykamp H., "The Chemical State of the Fission Products in Oxide Fuels.", J. Nucl. Mater, 131, (1985), 221-246
4. J.Belle. Uranium Dioxide : Properties and Application, USAEC(1961)
5. Y.H. Jung, B.O. Yoo. Y.S. Choo, K.P. Hong., "Irradiated U₃Si Fuel EPMA Quantitative", KAERI/MR-353, 2000
6. Y.H. Jung, K. P. Hong, D.G. Park, S.B. Ahn., "EPMA Analysis of non-coated UO₂ pellet", KAERI/TR-2579, KAERI, 2003
7. M. S. Yang. J.J. Park, H.S. Park, K.K. Bae, J.S.Lee, I.H. Jung., 11th pacific basin Nuclear Conference, Penbrooke, Canada(1998)
8. IN-Ha Jung. K.C. Song, K.H. Kang, B.O. Yoo, Y. H. Jung, H. S. Park M. S. Yang., "Characterization of Irradiated SIMFUEL", Metals and Materials International, 7 (2001) 514
9. H.Kleykamp "Constitution and Thermodynamics of the Mo-Ru-Pd Systems", J. Nucl. Mater. 167 (1989) 49-63
10. P.G. Luctuta, R.A. Verrall, H.J. Matzke and B.J. Palmer., " Micro structural Features of SIMFUEL", J. Nucl. Mater. 178 (1991) 53
11. T. Muromura, T. Adachi, H. Takeishi. Z.Yoshida, T. Yamamoto and K. Ueno. J. Nucl. Mater. 151(1988) 318
12. SARI C., WALKER C.T., SCHUMACHER G., "Sdlubility and Migration of Fission Product Barium in Oxide Fuel" J.Nucl.Mater., 79, (1979), 255-259
13. Koizumi M., Satih M., Noro K.. "Phase Study on Solid Fission Products, Ba,Sr, and Zr in Oxide Fuel", J. Nucl. Mater. 51 (1974) 90-94
14. Powder Diffraction Files, Inorganic materials, JCPDS, Inter. Center for Diffraction Data, Penn., Vol. 6, Card No.-139, Barium Zirconium Oxide BaZrO₃