Journal of Radiation Industry 9(2) : 91~102(2015)

Ir-192 밀봉선원의 표면오염 방지

국일현[1,*] · 박춘득[1] · 구자호[1]

[1]호진산업기연(주) 부설연구소

Microscopic Examination of Fracture Particles on the Surface of Ir-192 Sealed Source and Ultrasonic Cleaning

Il Hiun Kuk[1,*], Chun Deuk Park[1] and Ja Ho Koo[1]

[1]*Research Lab., Hojin Industirial Co. Ltd.*

Abstract - The iridium disc, generally used in industrial radiography, is examined to find the fracture morphology and fine particles remaining on the shear blank surface. Randomly selected 1,200 discs were observed under a scanning electron microscope tilted more than 45°. Fracture surfaces are classified into three groups: (1) surface fall-out, (2) fracture on the edge and (3) multi-step brittle fracture, which shows the mutual relationship between the fracture morphology and remaining particles. Fracture particles were removed by cleaning the discs in a ultrasonic bath with acetone and collected at the bottom. Removed number of the particles were counted for each different group of fracture surfaces. Followings are conclusions: (1) About 80.5% of discs (966/1,200), have sound plastic shear surfaces with particles remained. (2) About 2% discs accompany surface fall-out's having large particles tens of μm, which is stable not to be pulled out even after the considerably long time of ultrasonic cleaning. (3) About 5% discs contain the fractures on the edge and the particles are removed thoroughly within 30 minutes. (4) 234 discs out of 1,200 discs have multi-step fracture surfaces whose particles never removed in a short period of time but come out very slowly. Such a disc having multiple-step fracture is attributed to the promate cause to the 'leaker'. It is noted here that the discs having mutiple-step fractures should be treated separately with special care, and it is need to study how to treat them.

Key words : Fracture surface, Gamma radiography, Iridium-192, Punch blank, Sealed source, Surface contamination

서 론

산업용 비파괴검사 감마 래디오그라피에서는 주로 ^{192}Ir 밀봉선원이 사용된다(Peter Hayward *et al*. 2006). 2012년도 전 세계 비파괴장비 시장은 총 15억 달러로 추산되고, 그중 30.3%가 래디오그라피 시장 수요로 계상되고 있다(Frost and Sullivan 2013). 호진산기연(주)은 전 세계 ^{192}Ir 선원 수요의 20%를 충족시키면서 산업용 비파괴 투과검사기를 생산 공급하는 기업체이다(한국동위원소협회 2013).

이리듐은 백금족으로 9대 희귀금속이고 자연계에서 두 가지 동위원소로 존재하며 그 존재비는 ^{191}Ir이 37.3%, ^{193}Ir이 62.7%이다. 이를 중성자로 방사화시키면 ^{194}Ir은 반감기 19.3시간으로 단 시간 이내에 안정화되고, 반감기 73.9일인 ^{192}Ir가 주로 남아 방사능을 발생하여 이것을 비파괴검사 선원으로 사용한다.

* Corresponding author: Il Hiun Kuk, Tel. +82-42-868-8423, Fax. +82-42-862-6658, E-mail. ihkuk@hanmail.net

이리듐광은 주로 러시아, 남아프리카가 주산지이며 대부분 러시아가 이리듐 금속을 생산하고 우리나라는 성형금속을 수입하여 사용한다(Han *et al*. 2002; Frost and Sullivan 2013). 특히 이리듐 금속은 전성이 낮아 금속가공이 어렵고 래디오그라피용 원판은 소결 판재를 천공하여 만든 제품으로 얻는 것이 일반적이다. 그런데 이리듐은 인성이 낮고 취약한 특성을 갖고 있기 때문에 판재를 천공하고 난 제품의 전단면에 μm 크기의 미세입자가 잔류하는 경우가 자주 발생한다(Ohriner 2008). 이 미세입자가 이리듐을 감마 래디오그라피 선원으로 사용할 때 오염원으로 작용하여 그 존재형태와 제거 방법에 대하여 연구하였다.

호진산기연(주)는 수입 이리듐 원판(3.05 mmϕ×0.25 mmt)을 원자로에서 방사화하여 얻은 ^{192}Ir 원판을 스테인레스강으로 만든 캡슐(3.5 mmϕ*I.D.*×5 mml) 속에 장입하여 밀봉 용접하여 선원으로 제조하고 있다. 원자로에서 방사화된 이리듐 원판은 높은 방사선을 발생하므로 일반 환경에서는 작업이 불가능하다. 방사선안전관리 측면에서 보면, 납으로 차폐된 감마 셀에서 작업을 하여 작업자를 보호해야 하며, 방사성 물질이 외부 환경에 노출되지 않도록 하는 것이 매우 중요하다. 특히 용접이 완료된 완제품은 밀봉이 완전하여 제품 사용을 사용하는 중 오염이 발생하지 않도록 하여 사용자와 환경을 보호하는 것도 매우 중요하다. 이러한 이유 때문에 캡슐 표면을 문질러서 표면오염 방사능의 검출 여부로 밀봉을 확인한다. 이때 방사능이 검출되면 '*leaker*'라고 부른다(Dicharry 2005).

과거 1990년대까지는 '이리듐-*leaker*'에 대하여 보고된 경우가 흔하게 일어났다. 보고된 *leaker* 결과를 종합해 보면, '부착성 표면 오염'이 대부분이었고, 밀봉 결함에 의하여 누설된 경우는 거의 없었다. 최근에 *leaker*에 대한 발표가 거의 없는데, 그 원인은 몇 가지로 요약된다. 첫째, 과거에는 선원을 한 개의 캡슐로 밀봉하였지만, 2000년대 이후에는 1차 밀봉한 캡슐을 다시 2차 캡슐에 넣고 용접하여 1차 캡슐에 의한 오염을 재차 차단하였다. 둘째, 방사선안전관리규정과 검사를 강화하여, 침수시험, 방사선 누설검사 등 국제규정과 검사 및 측정을 강화하고 보완하였고, 측정 기술의 발달로 측정 정밀도도 크게 상향되었다. 셋째, 선원을 사용하는 도중에 누설이 발견되면 제조사는 즉시 이를 회수하고 공정을 보완하였다. 이와 같이 많은 과정을 거치면서 이제는 거의 '*leaker*'가 논의의 대상에서 제외되었다(Dicharry 2005).

호진산기연(주)은 불행히도 2014년에 2회에 걸쳐서 연속으로 *leaker*를 경험하고 약 9개월간 조업과 판매를 중단하는 경험을 하였다. 국내 비파괴검사자로부터 *leaker* 통보를 받은 후에 회사는 즉시 생산라인을 중단하고 누설 경로 파악과 방지 대책을 모색하였다. 본 회사는 제품에서 *leaker*가 재발하지 않도록 보다 효율적으로 품질을 관리하고자 본 연구를 진행하였다.

원자력법에 의하면, *leaker*를 '밀봉선원의 표면을 문질러서 표면 방사능이 4 KBq cm^{-2} 이상을 초과하는 것'으로 규정하고 있다(원자력법 6조 1항). 선원 취급 과정에서 *leaker*가 발생할 수 있는 가능성은 (1) ^{192}Ir 선원의 미세 입자가 캡슐 외부에 묻은 경우, (2) 밀봉 용접에 결함이 발생하여 내부 선원이 새어나오는 경우, 두 가지로 요약된다. 과거에 발생한 *leaker*가 주로 미세입자가 캡슐 표면에 묻은 오염으로 판명되었고 용접 결함에 의한 경우는 극히 드물었다(Dicharry 2005). 본 연구에서는 공정 내에서 발생하는 오염 입자와 확산에 초점을 맞추어 검토하였고, 그 결과를 바탕으로 오염입자 발생과 확산을 제어하고자 하였다.

예비실험을 통하여 표면 오염 입자는 주로 원료 원판에서부터 발생하는 것을 알았고 이후 계속 떨어져 나오는 것으로 확인되었다. 공정의 원료인 이리듐 원판은 미국 및 러시아에서 수입한 것이다. 따라서 본 연구에서 원판을 제조하는 방법을 취급할 수는 없지만 원판에 잔류한 입자를 제거하는 방법을 도출할 수는 있다고 본다.

Fig. 1은 호진산기연(주)가 ^{192}Ir 밀봉선원을 제조하는 공정 흐름도이다.

수입 원료 이리듐 원판은 소결 이리듐 판을 규격에 따라 천공 전단하여 만든 것이다(Ermakov and Naboichenko 2012). 천공 제품 전단면에는 많은 미세입자가 붙어있는데 취약한 이리듐의 인성 때문에 발생한 파괴입자들이다. 많은 파괴입자를 포함한 수입 원판을 그대로 원자로에 장입하면 미세한 파괴입자까지 방사화된다. 이러한 파괴입자가 핫셀에서 선원을 조립하는 과정에서 떨어져 나오면 오염은 확산되고 장비와 선원뿐만 아니라 선원을 밀봉하는 캡슐 표면도 오염시킨다.

앞에서도 언급하였지만 방사화된 원판은 한 장당 약 1*Ci* 이상 높은 방사능을 가진 상태이므로, 납으로 차폐된 감마 셀 내에서 철저한 방사선안전관리 규정에 따라 원격 조정을 통하여 제조한다. 원자로에서 꺼낸 조립체를 해체하여 원판을 회수하고, 원판을 캡슐에 장입하여 용접밀봉하고, 세척, 검사 및 시험 등 모든 작업을 핫셀 내부에서 원격조작기를 이용하여 취급한다. 폐쇄된 핫셀이 방사화된 미세입자로 오염되면 내부에서 공정에 사용되는 캡슐, 원판, 공구, 핫셀 내부에 확산될 수 있다. 다행히 ^{192}Ir이 비교적 무거운 물질이므로 비산의 위험은 크지 않다. 호진산기연(주)는 조립 과정에서 입자가 떨어져 나오도록 충격을 줄 가능성과 떨어져 나온 입자가 확산되는 경로를 확인하기 위하여 제조 공정 흐름을 분석하였다. Fig. 1은 호진산기연(주)가 ISO2919에 따라 내열시험, 충격시험, 문지름 시험, 누설 시험과 방사능 측정 품질검사 흐름도 포함하고 있다(ISO 2919, 2012; Safety Standards Series 1966).

이 과정에서 미세입자가 떨어져 나오거나 확산되는 공정은 공구나 원격조작기로 직간접적으로 원판을 만지거나 충

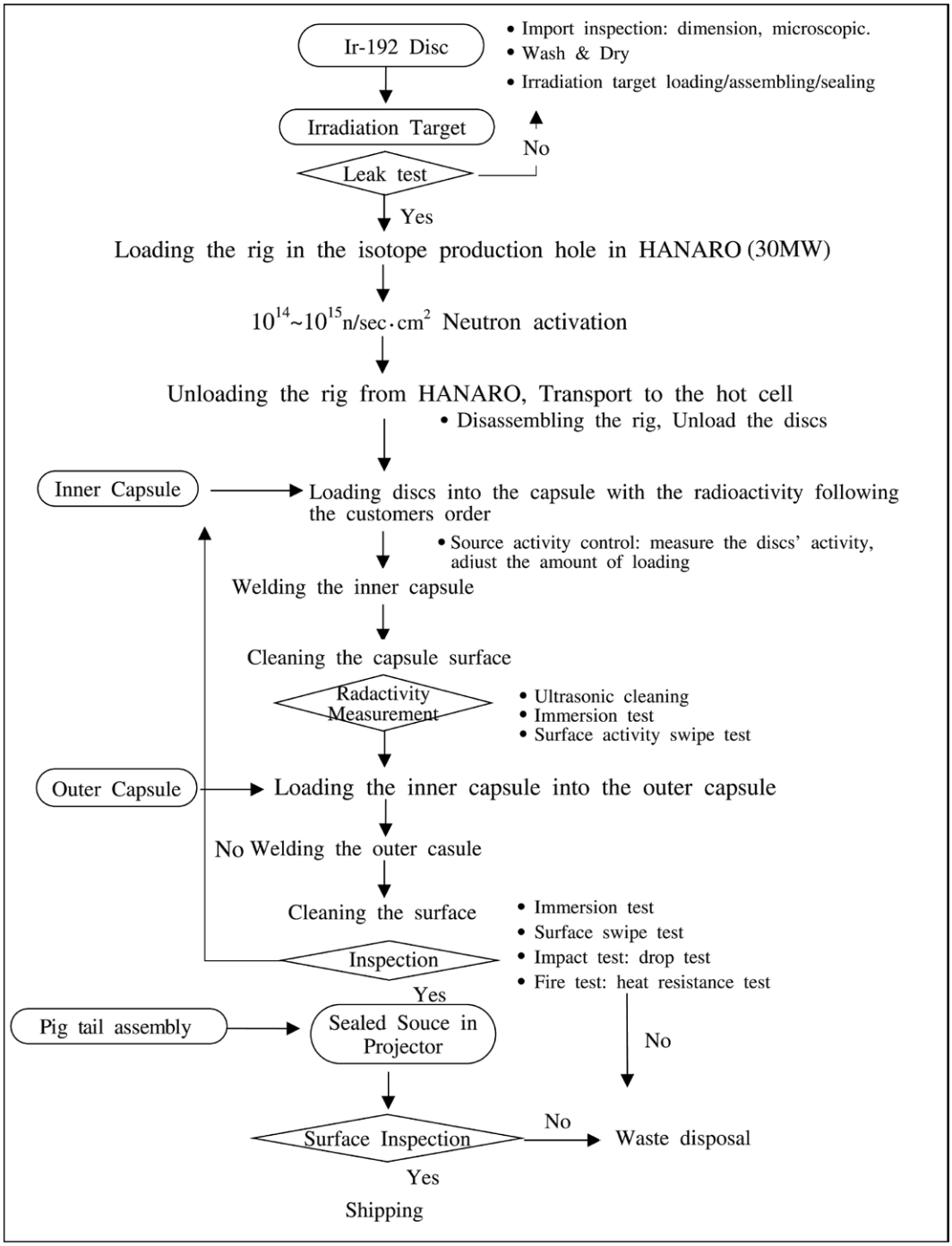

Fig. 1. Production process flow of ^{192}Ir sealed source.

격을 줄 수 있는 공정이다. 조사집합체 해체 및 원판 이동, 원판을 캡슐에 장입하는 3개 공정이 이에 해당한다.

*leaker*를 제어하는 방법은 (1) 미세 입자를 사전에 제거, (2) 원판에 취급으로 인한 충격을 차단, (3) 방사능 측정을 통하여 오염 여부를 확인, (4) 완제품의 철저한 밀봉을 포함하여 4가지 방법을 동원해야 한다.

여기서는 원자로 장입 이전에 미세 입자를 제거하기 위하여 미세 입자의 발생 경위와 존재/상태를 분석하여 가장 효율적인 제거 방법을 도출하는 데에 도움이 되고자 한다.

1. 원료 원판 제조 이력 중에서 debris (이하 '가공편'이라 함)가 발생하는 이력 추적

대부분의 미세입자는 이미 수입원료 원판에 포함되어 도

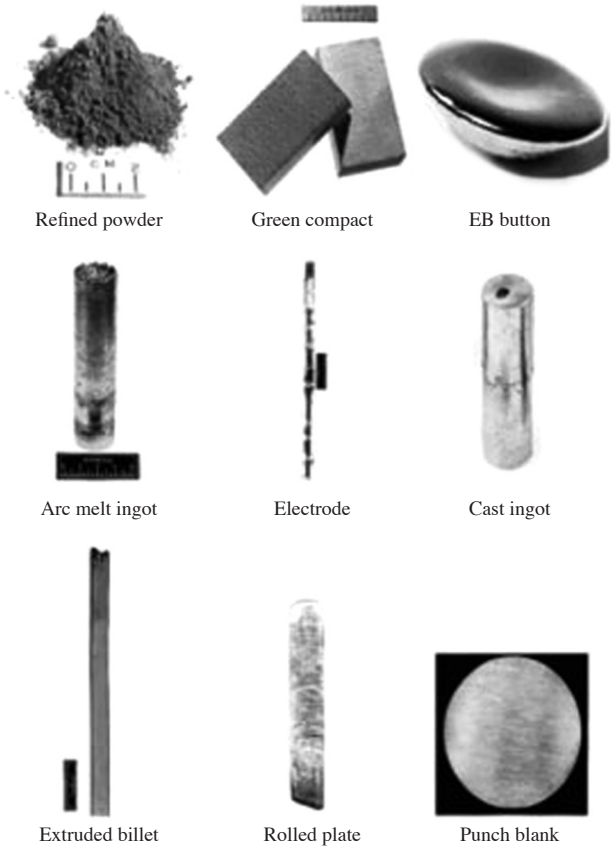

Fig. 2. Production history of iridium disc prior to neutron activation.

Fig. 3. The imported irridium discs.

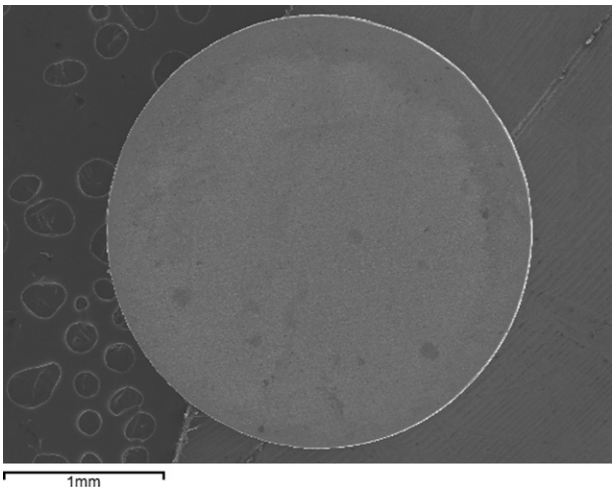

Fig. 4. A disc surface magnified at ×25.

입된다.

이리듐은 상온 인장강도 623 MPa, 항복강도 234 MPa으로 매우 강한 금속이고, 연성은 0.1~0.2로 거의 없으며, 인성은 120~150 MPa$\sqrt{m}$로 매우 낮다. 특히 고온에서도 금속성형이 어려운 재료이다. 일반적으로 이리듐 원판은 Fig. 2와 같은 제조이력을 거쳐 만든다.

이리듐 분말을 압분한 판상 소결판재, 또는 전자빔과 아크용해를 거쳐 주물봉을 만들고 주물봉을 압출하여 소성가공하는 것이 일반적이다. 소결체나 압출봉은 큰 치수변화 없이 압연하여 요구하는 두께(0.25 mm)의 판재로 만드는 것이 최종 수입제품이다.

Fig. 2의 판재는 최종 천공 직전의 두께를 가지고 있고, 밀봉선원으로 사용하는 원판은 천공 방법으로 만든 제품이다. 대부분 이리듐 원판은 러시아에서 생산하고 기타 가공품은 2차가공만 거친 것이다. 압연면에는 파괴입자가 없고, 천공 전단면인 측면에 파괴입자가 많이 붙어있는 것이 특징이다.

2. 원료 천공제품 원판의 가공 상태와 전단층의 미세형태(morphology)

수입한 원료 이리듐 원판은 Fig. 3과 같은 형상으로 직경 3 mmϕ와 두께 0.25 mmt의 치수를 가지고 있다. 원료 원판은 몇 가지 특징을 가지고 있다.

1) 천공이전 원재료는 소결판재이거나, 소결 후 매우 가벼운 압연을 거친 판재이다. Fig. 3의 좌측 원판 판재 표면에 보이는 결정입계는 선택 가공 방향성이 전혀 없고 등방성이다. 따라서 원판은 가벼운 가공으로 최종 성형된 판재임을 알 수 있다.

2) Fig. 3 좌측 원판의 원주에는 천공 시에 깨져 나간 표면 파괴 흔적이 남아있다. 취약한 소결 금속을 천공한 제품에 나타나는 파괴의 예이다.

3) 원주 방향의 선에 날카로운 기계가공에 의한 버(burr)가 거의 없다. 본 원판은 버가 제거된 제품이다.

Fig. 3 원판을 주사전자현미경으로 25배 확대하여 보면 Fig. 4와 같다. Fig. 4는 거의 흠이 없는 일반적인 원판의 표면을 보여준 것이다.

총 원판 1,200개를 관찰하여, 전체의 80% 966개는 Fig. 4와 같이 천공제품 원주에 흠이 없는 전단 측면을 가지고 있었다. 그러나 나머지 234개는 천공 전단면에 많은 파괴입자와 결함을 내포하고 있었다.

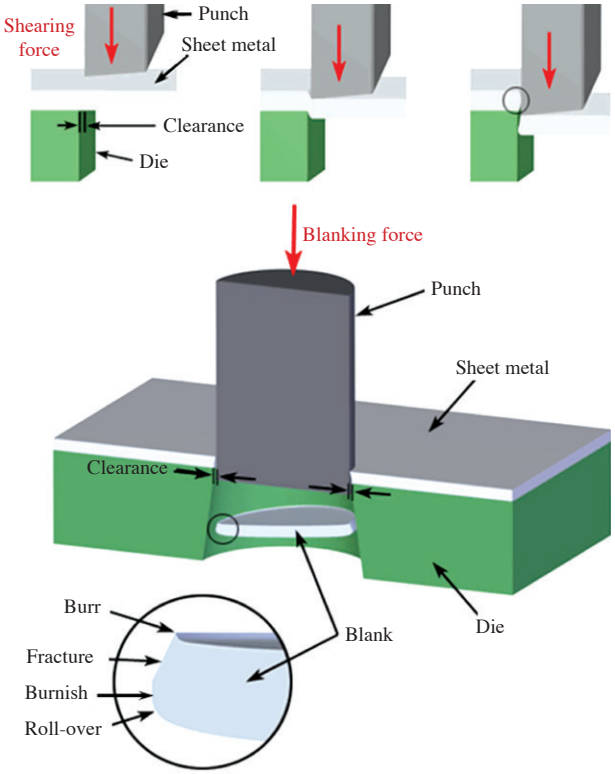

Fig. 5. Layers produced at a sheared blank. Top: Geometrical lay-out between the punch, blank and die, before, during and after punching. Bottom: the layers produced in the blank passed through a punch die.

Fig. 5 상부에는 천공 전, 도중, 이후 3단계에서 천공 판재-전단 천공-금형의 기하학적 상호관계를 보이고 있다. 아래 그림은 천공이 완결된 이후에 깊이에 따라 각각 다르게 나타나는 파괴전단 층의 종류를 표시하였다(Altan 2007; Tanaka *et al*. 2011).

1) 말림(Roll-over)층: 천공 초기에 펀치가 원판을 밀고 모서리를 지나면서 원판이 전단되기 시작한다. 금형 구멍을 지나 전단된 원판의 초기 모서리에는 소성변형으로 밀려들어가는 현상이 일어난다. 일반적인 재료에서 이 층은 절단면은 6~10% 정도 두께로 발생한다. 이리듐은 연성이 낮은 재료이므로 이 층이 매우 작다. Fig. 4의 천공제품을 보면 원주를 따라 가벼운 말림 층이 보인다.

2) 소성전단(Burnish)층: 천공 압력이 이리듐의 고유 전단응력에 도달하면, 펀치는 판재 상부를 통과하고 판재의 하부는 금형 상부를 통과한다. 이 층은 일반적으로 전단면의 30~60%를 차지하는데, 판재의 연성이 클수록 넓어진다. 이 부분이 넓을수록 전단면에서 발생하는 취성파괴 입자 조각이 줄어들고 우수한 품질의 절단면을 얻을 수 있다. 최근에는 미세천공(fine blanking) 방법으로 이 층을 거의 90% 이상으로 확대하여 거의 취성파괴 입자가 없는 전단을 하고 있다.

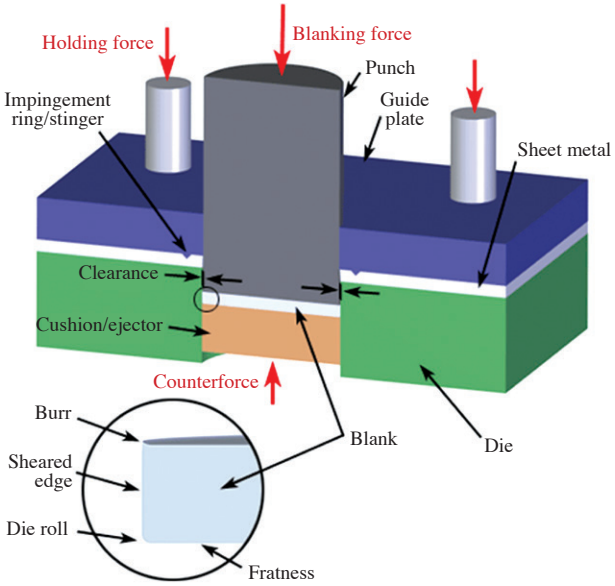

Fig. 6. Fine blanking minimizing the fracture layer.

3) 취성파괴층: 펀치가 판재 깊이 15~60%를 통과하면서 남은 두께에 전달되는 응력이 증가한다. 전단 응력이 판재의 파괴강도를 초과하면 판재에 균열이 발생하고 파괴가 전파된다. 균열은 펀치의 반대편에서부터 시작하여 전단 반대방향으로 전파되고 파괴는 전단면과 약 7°~11°로 발생한다. 이 때문에 천공제품 내부로 깨져 파단면에 깊은 틈새가 발생한다(Figs. 11, 12).

4) 버 층: 펀치가 판재를 완전히 통과하면서 펀치 천공제품이 판재로부터 떨어져 나온다. 이렇게 떨어져 나온 천공제품이 밀봉선원의 원료인 원판이다. 천공제품이 판재를 떨어져 나오면서 제품 모서리에 버가 남는다. 버의 크기는(금형과 펀치의 간극), (전단 속도)에 의하여 달라지는데, 간극이 좁고 속도가 빠를수록 크기는 감소한다. 본 공정에서는 이미 '버가 제거된 원판'이었으므로 본 논문에서는 검토 대상에서 제외한다.

전단이 일어날 수 있도록 하기 위해서는 Fig. 5에서 보는 바와 같이 펀치와 금형 사이의 간극이 필요하다. 이 간극의 크기는(소성전단 층/취성파괴 층)의 비에 영향을 주고 절단면의 품질을 결정하는 매우 중요한 인자이다. 간극이 불안정하고 일정하지 않으면 절단은 불균일하게 발생한다.

펀치압력을 크게 증가시키고, Fig. 6과 같이 펀치-금형 간극을 최소화하면서, 펀치 판재가 쿠션에 밀착하여 절단하면 취성파괴층의 크기가 크게 줄어든다. 최근에 최소 취성파괴층을 형성하는 '미세천공' 방법이 개발되어 천공품의 품질이 크게 향상되었다. 그러나 펀치-금형 간극은(판재 두께)×(전단 응력)의 함수로서 재질에 따라 결정되는데, 이리

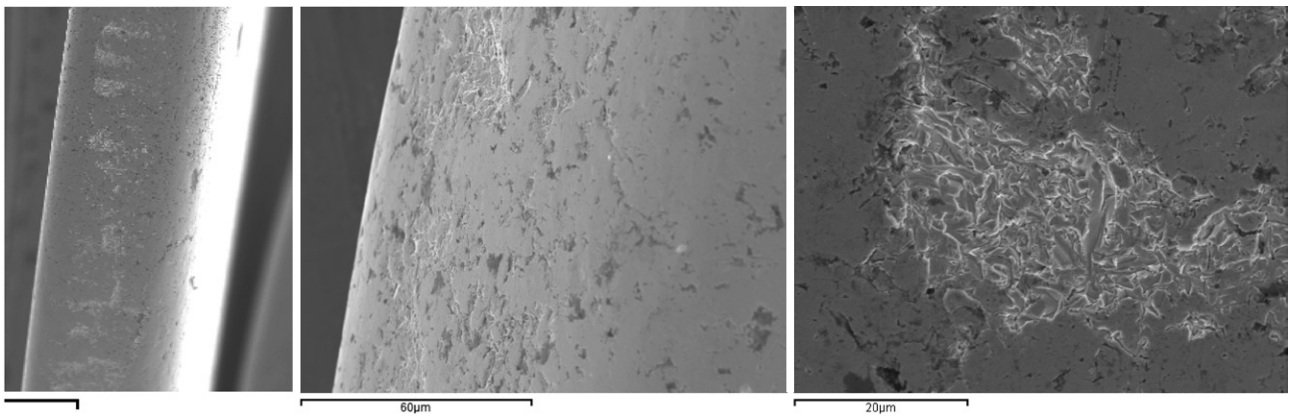

Fig. 7. (a) The SEM microsopy showing sound shear at ×75. (b) The SEM microsopy showing sound shear at ×400, showing the blank disc deburred. (c) ×1000. There are tiny microcracks with which no particle included in.

듐과 같이 취성이 큰 소재는 일정 크기의 간극이 있어야만 소성전단이 되며 미세천공이 불가능하다. 실제로 최대한 미세천공을 한 원판도 취성파괴입자를 보유하는 것은 이 때문이다.

이리듐 원판 원료가 제조 단계에서 불가피하게 취성파괴 입자를 동반할 수밖에 없다면, 잔류입자의 존재와 상태를 파악하고 제거 방법을 강구해야 한다. 따라서 생성된 균열 파편 입자의 취성파괴 미세형상을 확인하고 그 입자를 제거하는 방법을 도출하고자 한다. 많은 노력으로 원자로에서 장입하기 이전에 미세 파괴 입자를 제거했다하더라도 틈새 등에 강한 부착력으로 남은 입자는 중성자 조사로 취화되어 원자로에서 꺼내 핫셀 작업 중에 떨어져 나오는 경우가 발생한다. 이러한 입자가 실질적인 오염원으로 작용한다. 천공원판에 남아있는 미세 파괴입자도 원판 본체와 동일하게 ^{192}Ir으로 핵변환하므로 이후에 핫셀에서 떨어져 나오는 입자는 중요한 오염원으로 남는다.

원료의 파괴형태 관찰과 세척 방법

상기와 같이 제조된 천공제품 원판 1,200개를 주사전자현미경으로 관찰하여 (1) 미세천공품, (2) 표면 파괴 천공품, (3) 모서리 파괴 천공품, (4) 다층 취성파괴 천공품 그룹으로 구분하여 관찰하였다.

(2), (3), (4) 그룹의 천공품을 각각 아세톤에서 초음파로 30분씩 3회 세척하고 파괴 틈새 빠져나온 입자를 비교 분석하였다.

1. 미세천공품

이리듐 원판 천공품 총 1,200개를 관찰한 결과, 그중에서 966개 원판은 Fig. 7과 같은 전단면을 가지고 있었다. 제조 배치 별로 큰 차이는 없었으며 1200개의 원판은 총 31개 배치로부터 무작위 선정한 것이므로, 본 연구 결과가 보편성을 대표하는 데에 무리가 없다고 판단한다.

966/1,200개 원판은 Fig. 7과 같이 전단면에 소성전단 층과 취성파괴 층의 구분이 거의 없었다. 내부에는 파괴 입자가 잔류하는 것도 거의 없으므로 오염원이 생성될 가능성도 없다고 본다. 이런 원판은 중성자를 조사하여 선원으로 사용하는데 손색이 없다. Fig. 7(a)는 원판의 천공 전단면의 ×75배 주사전자현미경 사진인데, 천공 전단 방향으로 뜯겨져 나간 미세균열(사진에서 흰 자국)이 있는 것을 볼 수 있었다. 이들 미세균열을 확대하여보면 Fig. 7(c)와 같다. 대부분 미세균열 내부에 입자를 내포하지 않았다.

참고로 천공 전단면의 모양과 모서리를 확대해보면 Fig. 7(b)와 같이 나타나는데, 천공 원판에는 버가 없고 '버가 제거된' 상태이다. 천공 이후 원판은 Fig. 5의 원주 내에서 예시한 바와 같이 소성전단/취성파괴 층의 구분이 분명히 나타나야 하는데, Fig. 7(b)와 같이 '버가 제거된 상태'로 층 구분도 소실되어 확인할 수 없는 상태이다.

Fig. 7과는 달리 나머지 232/1,200개 원판의 전단면은 부분적 또는 전체적으로 취성파괴 층을 가지고 있었다. 특히 일부 취성파괴를 동반한 원판에는 아직도 많은 파괴 조각과 입자가 붙어있었다.

2. 표면 파괴 천공원판

대부분의 천공 원판은 거의 Fig. 4와 같이 흠이 없다. 그러나 일부 약 2%의 원판은 천공 원주 모서리 주변에 파괴균열을 가지고 있다. Fig. 8은 원판 표면을 관찰한 일반적인 주사전자현미경사진이다. 이리듐 특성 때문에 원판의 표면 조도는 거칠고 경면과 다르지만 미세균열 내부에는 파괴입자를 내포하지 않고 있다. 그러나 극히 일부 몇 개의 원판이 외곽에서 수백 μm 크기의 파괴균열 틈새를 가지고 있었다.

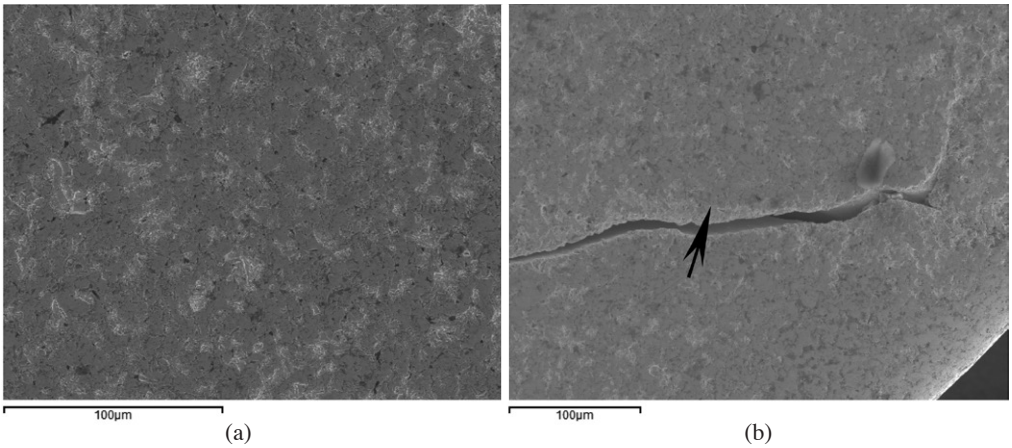

Fig. 8. (a) Ordinary disc surface (b) A crack on the disc Surface. (a) A sound disc surface. There are many fine microcracks but containing no appreciable fracture particles in. (b) Big cracks of hundred microns, whose presence is attributed to the rolling pressure or the impact in deburring, are found containing particles over 10 μm.

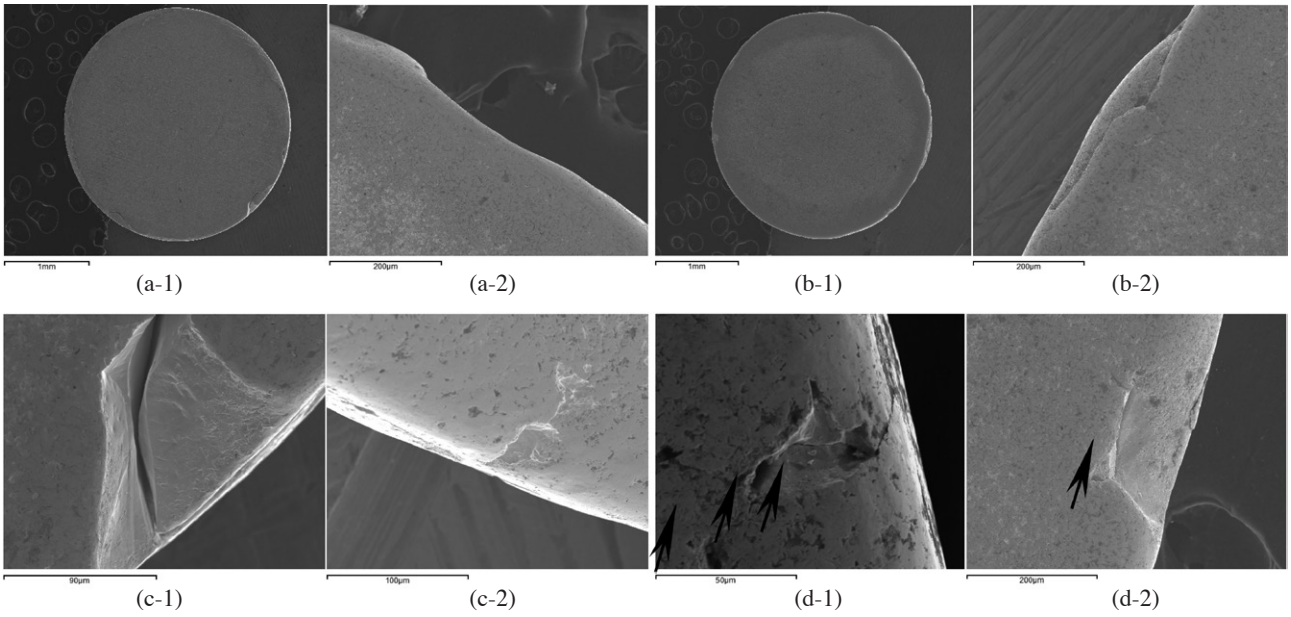

Fig. 9. Disc edges showing deburring. Some edges are broken parially in though-thickeness direction. (a) Small part of a circumference is broken while the rest in through-thickness left sound. (b) Some part of a circumference is torn all away through the thickness and the disc circle is distorted in its place with the as-deburred round curves. (c) Most cracks produced by deburring impact are free from the remaining fracture particles. (d) However some cracks are found to hold a small amount of particles within the hole.

또 그 파괴 균열 틈새 내부에 수십 μm 크기의 잔류 파괴 입자(Fig. 8(b) 화살표)를 내포하고 있었다. 이렇게 틈새에 끼어있는 큰 입자는 쉽게 제거되기 어렵고, 잔류된 채로 중성자 조사 후 빠져나올 가능성은 거의 크지 않다. 이렇게 큰 파괴 입자는 아세톤에서 30분씩 3번 초음파 세척한 이후에도 그대로 남아있다.

3. 원주 모서리가 깨져나간 취성 파괴

천공원판 제품의 약 5% 정도(1200개 중 50여 개)는 Fig. 9와 같이 충격에 의하여 원주방향으로 모서리가 떨어져 나가거나 파괴된 흔적을 가지고 있다. 이들 주사전자현미경사진은 충격으로 모서리가 떨어져 나간 원판의 측면이다. 천공 원판 전체를 관찰한 사진과 파괴된 모서리를 가진 부분만 확대한 사진을 포함한 두 가지 사진을 동시에 보면서 비교할 수 있다(Fig. 9(a, b)). Fig. 9(a-1)은 원판 전체에서 모서리 일부가 깨진 상태이고, Fig. 9(a-2)는 모서리가 깨진 부위를 확대한 상태를 보여주고 있다. Fig. 9(a-2)는 완만하게

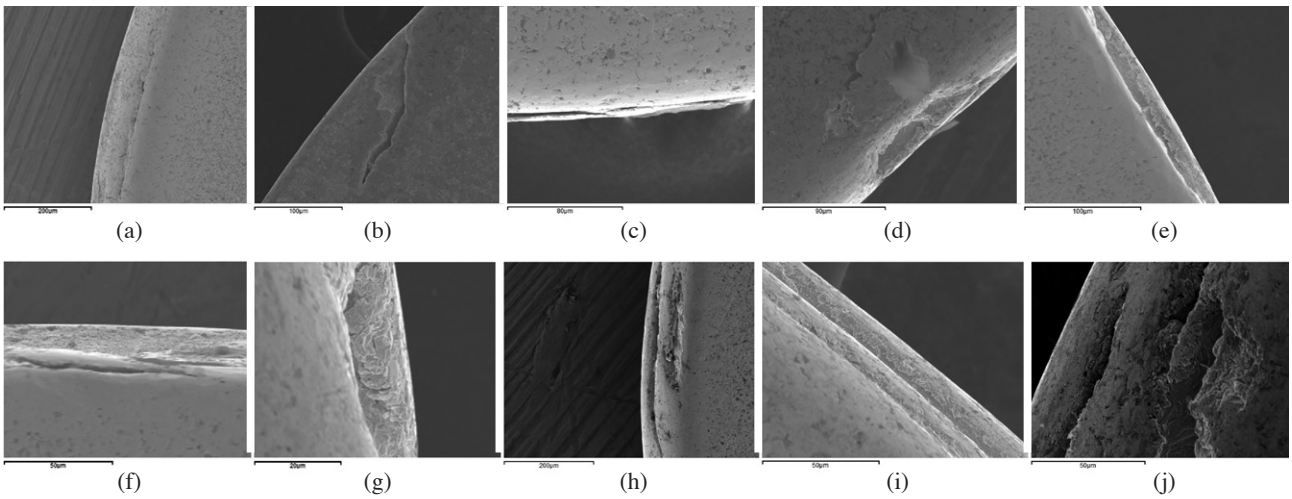

Fig. 10. The sheared surfaces seen from the punch direction.

디버링된 상태를 분명히 나타내고 있으나 모서리가 전단면의 일부만 깨졌고 두께 전체를 관통하지 못한 것을 확인할 수 있다. Fig. 9(b-1)은 원판 모서리 여러 곳이 깨져 있는데, Fig. 9(b-2)는 두께 방향으로 관통하여 깨져 원주 일부가 일그러진 상태를 보여주고 있다.

Fig. 9(c, d)는 충격으로 모서리가 깨진 상태이다. Fig. 9(c)는 디버링 이후에도 원주 모서리가 깨져나간 흔적이 남아있고, Fig. 9(d)는 여러 군데 깊이 방향으로 깨진 상태이다. 표면에서 전단 방향으로 수십~수백 μm 크기로 깊게 깨졌으나 잔류 입자를 거의 남기지 않은 상태이다(Fig. 9(c)). 전단 방향으로 표면만 깨진 이후에 깨진 틈새에 잔류입자가 많이 남아 지저분한 상태이다. 파면은 표면부터 깊이 깨진 틈새까지 벽개 파면을 보이고 있는 것이 특징이다(Fig. 9(d)). 다만 Fig. 9(d-1)과 같이 틈새 내부에 파괴 입자가 잔류한 것이 보이는데, 실제로 아세톤에서 초음파 세척을 하면 제거되고 여러 번 세척하면 남은 입자도 거의 제거된다.

4. 소성전단 층 쪽에서 관찰한 다층 취성파괴

일반적으로 천공 초기에는 원판이 금형을 빠져나오면서 말림 층과 소성전단 층이 형성된다. 완만한 말림 층이 지나간 이후 소성전단 층이 매끄럽게 형성된다. 전단면은 원판의 측면이므로 주사전자현미경의 주사 면과 직각을 이루기 때문에 관찰이 매우 힘들고 시편을 거의 90°까지 회전해야 한다. Fig. 10은 회전각 45° 이하에서 말림층과 소성전단 층 방향에서 관찰한 전단면이다.

Fig. 10(a)는 거의 층간 구분 없이 소성 전단이 이루어진 상태이고, Fig. 10(b)는 소성파괴 이후 단일 파괴 층을 포함한 상태이다. Fig. 10(c)는 Fig. 10(a)와 비교하면 깊고 뚜렷한 파괴층을 가지고 있다. Fig. 10(d-f)는 파괴 층의 폭이 더욱 넓어지고 파괴 층의 내부가 깊게 깨져 나간 상태를 보인다. 그런데 Fig. 10(f)는 전단 초기부터 취성파괴가 시작되어 멈추어 전단되다가 다시 넓은 파괴로 내부가 깨어져 나간 상태이다. Fig. 10(f)는 넓게 깨져 나온 틈새가 거의 불규칙적인 취성파괴를 보인다. Fig. 10(h)는 말림 이후 즉시 취성파괴가 나타났다가 전단되고, 또 다시 취성파괴가 나타났다가 전단된 상태이다. Fig. 10(h)는 원주의 일부가 이렇게 취성 파괴가 반복되어 나타나는 경우이고, Fig. 10(i)는 거의 전체 원주에서 이런 파괴가 반복되어 나타나는 경우를 보이고 있다. Fig. 10(j)는 매우 불규칙하게 전단, 취성 파괴가 다층으로 섞여서 원주 방향으로 위치마다 다르게 나타나는 모습을 보이고 있다.

5. 버 쪽에서 관찰한 전단면

펀치가 원판을 완전히 관통하면 천공 원판 후면에는 버가 남는다. 본 검토에서 관찰한 원판은 디버링된 상태이므로 버를 관찰할 수 없었지만, Fig. 11과 같이 버 형성 방향에서 전단 반대쪽으로 보면 취성 파괴 층의 단면과 파괴형태를 관찰할 수 있다. Fig. 11은 모두 전단 반대 쪽, 즉, 버 방향으로부터 관찰한 주사전자현미경 사진이다. Fig. 10과는 달리 파괴층에 벽개 파면이 뚜렷하게 나타나고 전단이 지면 위쪽으로 진행된 것을 알 수 있다.

Fig. 11(a, b)는 비교적 취성 파괴 층이 좁지만, Fig. 11(c)부터는 그 폭이 넓어지고 Fig. 11(d)부터는 여러 층이 떨어져 나오면서 폭도 넓어지는 것을 볼 수 있다.

Fig. 11(c-f, j) 등에서는 선명한 벽개 파면을 보이고, Fig. 11(g-i)에서는 입내파괴 파면을 보이고 있다. 파면의 구성을 좀 더 자세히 보면, Fig. 12와 같이 파면에 깨어져 나온 틈새가 있고 그 내부는 날카로운 벽개면으로 이루어져 있다. Fig. 12에서 보는 것처럼 틈새 벽개 파괴 시작 표면은 입내파괴 형태를 이루는 것이 일반적이다.

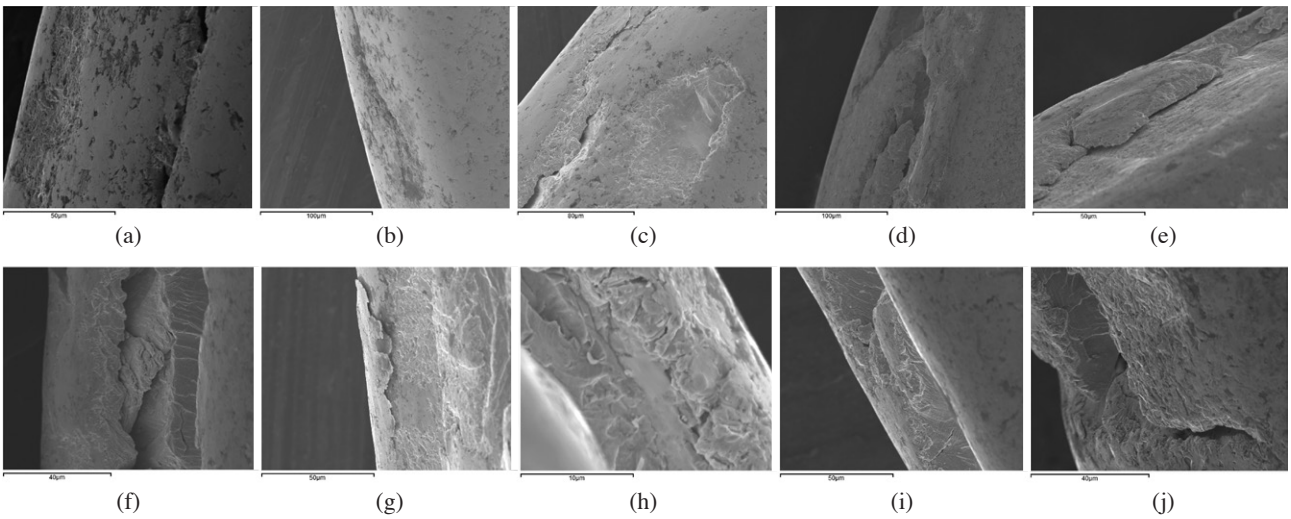

Fig. 11. The sheared surfaces seen from the fracture surface diraction.

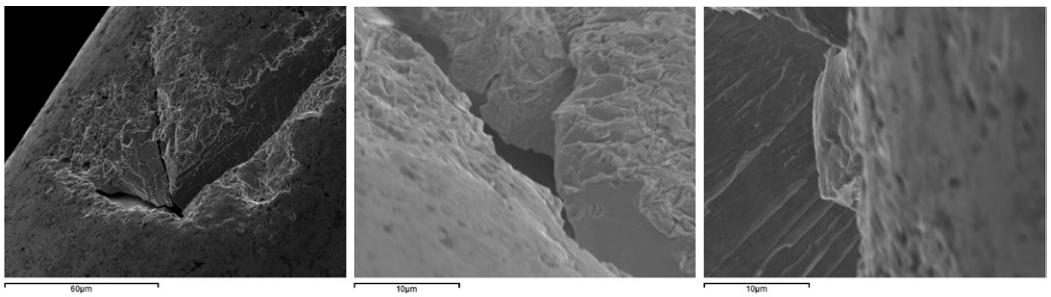

Fig. 12. The fractograph in the brittle fracture layer. (a) Fractures are found to be propagated being concentrated into a triple point leaving the cleavage surfaces. The other surfaces show transgranular fracture. (b) The cleavages are open and the transgranular crack is propagated into the crack leaving a sharp cleavage crack. (c) The crack propagated leaving the cleavage surface.

오염원-잔류 파괴입자

원자로에 장입하기 이전에 원판에 붙어있던 취약한 부스러기가 중성자를 조사한 이후에 떨어져 나오면 오염원으로 작용할 가능성을 가진다. 특히 원판을 캡슐에 장입, 밀봉하는 과정에서 떨어져 나오는 입자가 문제를 야기한다. 이렇게 분리된 입자는 핫셀과 캡슐 내부를 오염시키고, 핫셀의 강한 순환 공기에 휩쓸려 회전하다가 다시 캡슐 또는 조립 부품에 부착되어 오염 확산의 요인이 된다. 이렇게 캡슐 외부 또는 조사기 연결선에 붙어 그대로 소비자에게 전달되지 않도록 발생 근본 원인을 제거해야 한다.

1. 틈새에 잔류하는 파괴입자

Fig. 8(b)는 표면 균열에 끼어있는 파괴입자를 나타내고, Fig. 9(d)는 모서리가 깨져 내부에 파괴입가가 남아있는 것을 나타내고 있다. 표면 균열 입자(Fig. 8(b))는 대부분 수십 μm에 크기이므로 제거되지 않으며, 모서리 파괴입자는 대부분 개방이 되어 세척으로 제거된다. 따라서 오염원으로 남을 가능성이 매우 낮다.

반면에, 전단면에서 발생하는 취성파괴로 인하여 발생한 파괴 틈새에 잔류하는 파괴입자는 그 빈도수도 높고 양도 매우 많다. Fig. 13은 틈새에 잔류한 입자의 상태를 보여주고 있다. 일반적으로 표면에서는 Fig. 13(b)와 같이 입내파괴가 일어나고, 파괴응력을 초과하면 Fig. 13(c)와 같이 내부 틈새가 벌어지면서 벽개파괴로 전파된다. 표면의 입내파괴 형태에서 몇 개의 입자에 힘이 집중되고 그들 입자가 떨어져 나면 Fig. 13(b-e)와 같이 뜯겨 나온 상태가 된다. 이들 입자는 일부 빠져나오기도 하지만 틈새에 끼어 남아있기도 한다. Fig. 13(c, d, f)에는 많은 입자가 남아있는 것이 보인다. 이러한 파괴입자들은 쉽게 분리되기도 하지만 제거되지 않는 것도 많고, 제거되지 않는 것들이 원자로 중성자 조사 취화 이후에 떨어져 나오면 다시 부착되어 오염원으로 작용할 가능성이 매우 높다.

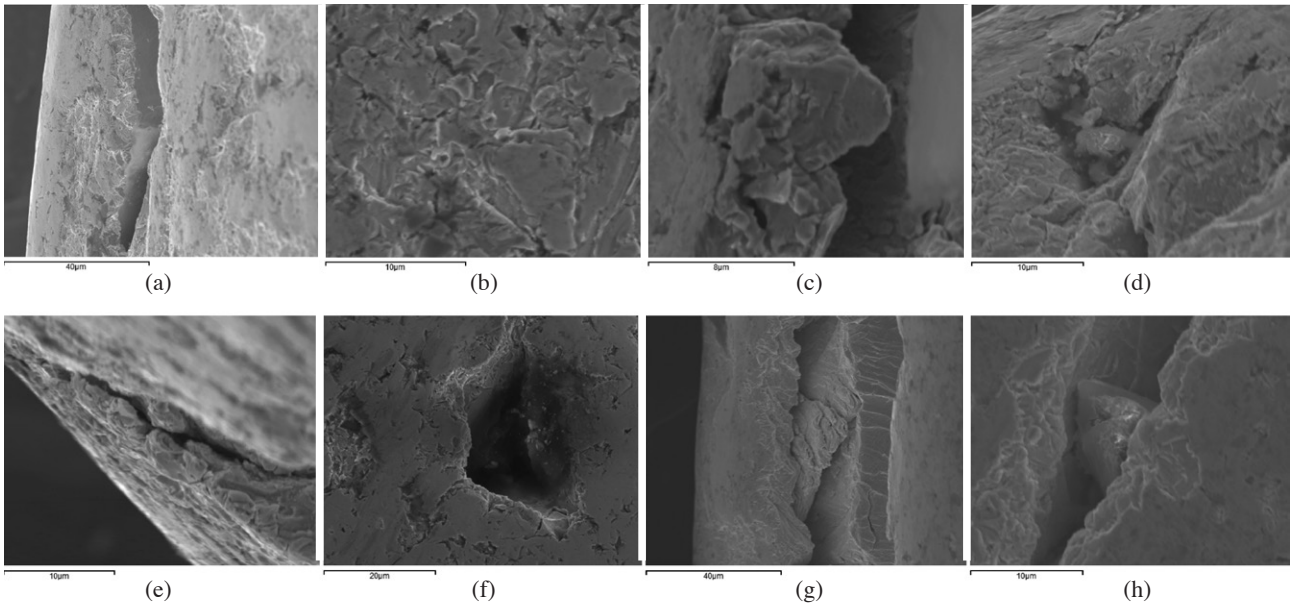

Fig. 13. Large amount fo tiny fracture particles left in the cracks.

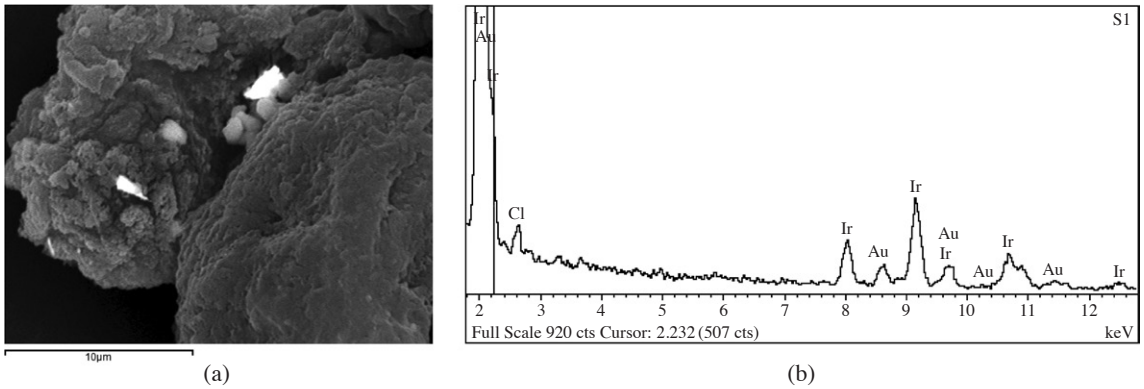

Fig. 14. (a) The irradiated ^{192}Ir particles collected in the hot cell are seen under the dark field of SEM. The bright particles of a micron size are ^{192}Ir. (b) The EDX spectrum identifies them to be ^{192}Ir.

벽개 파괴가 전파되어 내부가 깨어져 나온 파괴 틈새 끝 부위에 응력이 집중되고, 응력 집중 부위의 입자가 떨어져 나와 잔류하기도 한다. Fig. 13(f)에 틈새 깊은 부위에 응력 집중으로 파괴되고 남은 입자들이 보인다. 이렇게 틈새 내부에 남은 파괴입자들은 세척 또는 제거 공정을 통해서도 쉽게 제거되지 않는다. 이와 같은 미세한 입자는 오염원으로 남을 가능성이 매우 크다.

2. 확인된 오염원과 그 크기

Fig. 13(g, h)와 같이 틈새에 끼어있는 커다란 입자는 5 μm 이상으로 중성자조사 후에도 계속 틈새에 남아있고 떨어져 나오지 않는다. 반면에 대부분 1 μm 이하 미세한 입자들은 중성자조사 이후에 대부분 틈새를 빠져나와 오염원으로 작용하는 것이 확인되었다. Fig. 13(e)는 얇은 표면에 형성된 취성파괴 층인데 거의 나무 등걸처럼 벗겨진 수준이고 매우 많은 입자를 보유한다. 또한 Fig. 13(f)와 같이 단일 틈새 구멍에 남은 수많은 입자가 잔류한다.

실제로 Fig. 14와 같이 원자로에서 중성자를 조사한 이후에 떨어져 나온 오염 입자의 크기 분포를 분석한 결과, 5 μm 이상 오염입자가 떨어져 나온 경우는 전혀 발견되지 않았다. 중성자 조사 후 떨어져 나온 입자는 모두 5 μm 이하 크기였다. Fig. 14(a)에서 보면 주변의 물질은 이리듐 입자를 포획하기 위하여 사용한 레진인데, 화살표로 표시한 밝은 백색의 입자가 이리듐이다. 이들 입자의 위치에서 EDX 성분 분석한 결과를 Fig. 14(b)에 보여주고 있다. 여기서 금(Au)은 주사전자현미경 관찰을 위하여 사용한 도포 성분이고, 일부 불순물로 포함된 염소 성분도 보인다.

234장의 원판에서 떨어져 나온 미세입자를 관찰하였으나, 대부분 1 μm 이하의 입자였고 5 μm 이상 입자는 단 한 개도 발견되지 않았다.

결과 및 논의

밀봉선원으로 사용하는 이리듐은 분말을 압분하여 판상 소결한 후 미량 압연한 판재를 원료로 펀치한 천공 원판이다. 전자현미경으로 전단면을 관찰한 결과, 대부분(966/1,200)이 소성전단만으로 된 건전한 천공제품으로서 최대 미세천공이 이루어져 있었다. 그러나 234개의 원판은 전단면에 취성파괴층을 보유하였고 많은 파괴입자를 보유하였다.

취성 파괴를 포함한 천공판은, 표면 파괴 천공판, 모서리 파괴 천공판, 다층 취성파괴 천공판, 3가지 형태로 구분된다.

(1) 표면 파괴 천공판: 약 2%의 원판은 천공 원주 모서리 주변에 수백 μm 크기의 표면 파괴 균열을 가지고 있고 내부에 수십 μm 크기의 파괴 입자를 보유하고 있다. 이런 파괴입자는 세척으로 제거되지 않으며 중성자 조사 후에도 이탈되지 않으므로 문제의 대상에서 제외한다.

(2) 모서리 파괴 천공판: 약 5% 정도(1200개 중 50여개)의 천공판 원주방향으로 모서리가 파괴된 흔적을 가지고 있다. 벽개면을 갖고 깨끗하게 파괴된 경우와 틈새(cleavage) 내부에 파괴 입자가 잔류한 경우가 있는데, 실제로 아세톤에서 초음파 세척을 하면 제거되고 여러 번 세척하면 남은 입자도 거의 제거된다.

(3) 다층 취성파괴: 대부분 표면 파괴는 입내파괴를 보인다. 응력이 집중되고 파괴응력을 초과하면 틈새가 벌어지고 파괴 층의 폭이 더욱 넓어지고 내부가 깊게 깨져 나간다. 파괴는 원주 방향으로 불균일하게 전파되어 여러 층의 파괴가 전파되기도 한다. 전파된 파괴 틈새에는 수 μm 또는 그 이하의 입자들이 모여 있다. 이런 파괴입자는 장시간 세척을 거쳐도 제거되지 않는다.

1,200개의 천공판을 아세톤에 넣어 초음파로 세척하고 이탈되어 나오는 이리듐 파괴입자를 회수하여 제거 상태를 확인한 결과 Fig. 15와 같았다.

(1) 소성전단 원판 966개는 파괴입자가 수거되지 않았으므로 이 그림에서는 나타나지 않았다. 수거된 숫자가 전혀 없다.

(2) 표면 파괴입자는 거의 제거되지 않은 채 남아 수거되지 않았다. 수거되는 숫자가 전혀 없었으므로 그림에 나타난 숫자는 전자현미경으로 관찰한 숫자로 대체하였다.

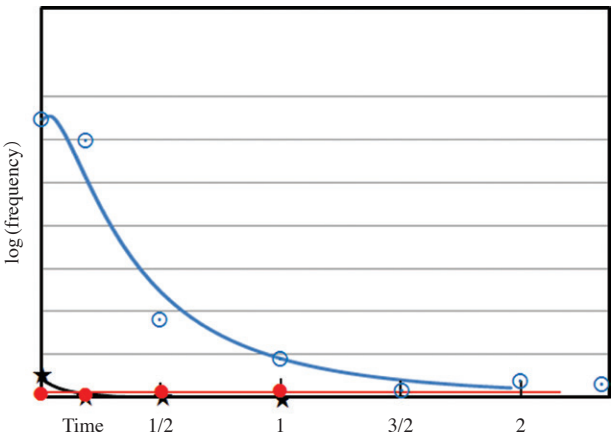

Fig. 15. The amount of particles collected at the bottom of the beaker with the collapsed washing time from three different kinds of blanks. ⊙: the fracture particles from multi-fracture surface. ●: From surface crack blanks. ★: From the blanks with broken edges.

(3) 모서리 파괴입자는 30분 이내에 완전히 수거되어 더 이상 발견되지 않았다. 그림에 나타난 빈도수는 수거된 숫자를 표시한 것이다.

(4) 다층 취성파괴입자는 시간이 가면서 제거 빈도수가 줄어들지만, 장시간 반복하여도 계속 잔류하고 있었다. 그림에 나타난 빈도수는 수거된 입자수를 표시한 것이다.

오염원 제거 측면에서 상기 결과를 보면, 다층 취성파괴입자를 중점으로 제거해야 된다는 결론을 얻게 된다. 다층 취성파괴입자가 틈새에 잔류한 것을 제거해야 한다. 향후 틈새입자를 제거하는 효율적인 방법을 도출하고, 제거 조건별로 잔류입자의 양을 파악하고자 한다. 또한 잔류입자를 보유한 원판을 취급할 경우에 오염을 확산하지 않고 캡슐에 안전하게 봉입하는 방법도 강구하고자 한다.

결 론

산업용 비파괴검사에 사용하는 이리듐 원료 원판 전단면의 파괴 형태와 미세입자 잔류 상황을 분석하였다. 무작위로 선택한 1,200개 원판의 전단면을 45° 이상 경사각으로 기울여 주사전자현미경으로 관찰하였다. 전단면의 punch blank (이후 '천공제품'이라고 칭함) 취성파괴 형태를 (1) 표면파괴, (2) 모서리 파괴, (3) 다층취성파괴를 가진 3가지 전단면으로 구분하여 파괴면의 양상과 잔류 파괴입자의 관계를 파악하였다.

원료 원판에 붙어있는 미세입자를 제거하는 수단으로 원판를 아세톤에 넣어 초음파로 세척하였다. 원판에서 떨어져 나오는 미세파괴입자를 수거하여 파괴 유형별로 입자의 수

와 제거 속도를 분석하였다.

전단면의 관찰 결과는 다음과 같다. (1) 약 80.5%의 원판(966개/1,200개)에서는 주로 소성전단만 일어났고 파괴입자가 거의 없다. (2) 약 2% 원판은 표면파괴를 동반하지만, 표면파괴 틈새의 수십 μm 크기의 입자는 장시간 세척을 해도 이탈되지 않는 안정한 것이다. (3) 약 5% disc는 모서리 파괴입자를 보유하고 있으며 30분 이내의 세척으로 거의 완전히 수거된다. (4) 234개/1,200개 원판은 다층 취성파괴입자를 보유하고 있고 장시간 반복하여 세척해도 취성파괴입자는 계속 떨어져 나온다. 이러한 다층 취성파괴입자들이 쉽사리 제거되지 않는 오염의 주원인으로 보아야 한다. 따라서 다층 취성파괴입자를 보유한 원판을 집중 분석하고, 그 원판을 대상으로 별도의 입자 제거 방법을 강구해야 한다고 판단된다.

참 고 문 헌

방사선 이용통계, 한국동위원소협회. 2013.

원자력법 6조 1항.

Altan T. 2007. Blanking developments, Fineblanking process and tool des 8:2120-2032.

Dicharry RD. 2005. The heart of the matter. In: The NDT Technician, American Society for Nondestructive Testing, 4(4):1-3. Hollis Humphrises. Columbus.

Ermakov AV and Naboichenko SS. 2012, Iridium: Production, Consumtion, and Prospects. Russian Jounal of Non-Ferrous Metals 53:292-301.

Frost and Sullivan. 2013. Emerging Growth Markets for Non-destructive Test (NDT) Inspection Services. 5～30NBE0-30, 1-26.

HAN HS and CHO WK. 2002. Development of Radioisotopes and Radiation Sources. Korea Atomic Research Institute. KAERI/RR-2349/2002.

Hayward P, Hera NZ and Dean C. 2006. Radiography of Welds Using Selenium 75, Ir 192 and X-rays. SGS New Zealand, 12th A-PCNDT 2006-Asia-Pacific Conference on NDT. 12pdf.

ISO 2919. 2012. Radiation protection- Sealed radioactive sources- General requirements and classification. ISO 2919.

Ohriner EK. 2008. Processing of Iridium and Iridium Alloys. PMR 52(3):186-197.

Safety Standards Series, REQUIREMENTS, No. ST-1. 1966. Regulations for the Safe Transport of Radioactive Materials. International Atomic Energy Agency (IAEA), 109-115.

Tanaka T, Hagihara S, Tadano Y and Yoshimura S. 2011. Plasticity Analysis of Shear Droop on Cut Surface of High-Tensile-Strength Steel in Fine-Blanking Process. Mater. Trans. 52:447-451.

Received: 30 April 2015
Revised: 20 May 2015
Revision accepted: 21 May 2015