

2004 춘계학술발표회 논문집

한국원자력학회

CAM 처리가 두 종류의 (U,Gd)O₂ 분말 특성에 미치는 효과
The effect of CAM treatment on the characteristics of
two different (U,Gd)O₂ powder

나상호, 김연구, 김시형, 김동주, 이영우

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

김근민, 김진목, 양창목, 신현동, 유명준

한전원자력연료(주)

대전광역시 유성구 덕진동 493

요 약

습식 및 건식 공정으로 각각 제조된 ex-ADU(천연)와 ex-DC(농축) UO₂ 분말에 Gd 함유량(4~8wt%)을 변화시켜 연속형 아트리케이션 밀(CAM) 처리(5회)에 따른 분말의 성형성과 소결성을 조사하였다. 동일한 제조조건하에서 ex-DC UO₂의 densification parameter가 ex-ADU UO₂의 것보다 크게 나타났다. 이는 낮은 성형압에서 고밀도의 소결밀도를 얻을 수 있음을 보여준다. Gd 첨가함량이 증가하면 소결밀도와 결정립 크기가 증가하였다.

Abstract

The Effect of CAM(Continuous Attrition Milling) treatment(5 cycles) was investigated on the compacting and sinterability of two different UO₂ powders(ex-DC and ex-ADU) with varying Gd contents(4~8wt%). Under the same fabrication condtions, densification parameter of ex-DC UO₂ is larger than that of ex-ADU. Therefore ex-DC UO₂ pellet has a higher sintered density at the lower compacting pressure than ex-ADU pellet. As the Gd contents increased, sintered density and grain size of both ex-DC and ex-ADU pellet increased.

1. 서 론

UO₂ 분말 제조는 건식법과 습식법으로 대별된다. 건식법에는 IDR(Integrated Dry Route)이 있으며, 습식법에는 ADU(Ammonium Di-Uranate)와 AUC(Ammonium Uranyl Carbonate)공정이 있다. 각각의 공정에서 제조된 UO₂ 분말의 특성은 다르며, 이러한 특성은 성형성이나 소결성에 영향을 미치는 것으로 많이 보고되고 있다[1-2].

한편 산화 가돌리니움(Gd₂O₃)을 첨가한 UO₂ 소결체 즉, (U,Gd)O₂ 소결체는 가연성 독극물(burnable poison)로써 현재 가장 많이 사용되고 있으며[3], 핵연료의 고연소도·장주기 추세에 따라 그 첨가량이 증대되고 있다. 순수 UO₂의 경우에도 분말입자의 유동성을 향상시키기 위해 볼밀[4]과 같은 처리를 하지만, (U,Gd)O₂ 펠렛 제조에서도 균질한 혼합을 향상시키기 위해 햄머밀[5]을 사용하거나 연속형 아트리션 밀(CAM; Continuous Attrition Mill)[6-7]을 사용하여 제조한다.

본 연구에서는 UO₂-8wt%Gd₂O₃ 펠렛 제조할 때에 연속형 아트리션 밀 혼합분쇄기를 사용하여 ex-ADU UO₂ 분말과 ex-DC UO₂ 분말에 Gd₂O₃ 함량 변화[Gd ; 4~8wt%]에 따른 성형성과 소결성을 조사하고자 하였다.

2. 실험 방법

2.1 시료

시료는 2 가지 종류의 서로 다른 분말, 즉 하나는 한국전력원자력연료(KNFC)에서 건식 공정으로 제조한 (ex-DC) UO₂ 이며, 다른 하나는 캐나다에서 ADU 공정으로 제조한 (ex-ADU) UO₂ 를 사용하였다. 이들 분말에 Gd₂O₃ 분말을 각각 4, 6 그리고 8wt% 첨가혼합하여 Tubular mixer에서 1시간 예비혼합 시켰으며, 연속형 아트리션 밀(CAM)에서 5회 연속 반복시켜 분쇄혼합시켰다. 분쇄된 분말의 성형성을 좋게 하기 위하여 acrawax를 0.3wt% 첨가하여 30분간 Tubular mixer에서 혼합한 후, 유압프레스를 이용하여 성형하였다. 성형압력은 150과 300MPa으로 하였으며, 제조된 성형체는 수소분위기하에서 1750℃, 4시간 소결하였다. 성형밀도와 소결밀도와의 상관관계를 나타내는 것으로 densification parameter가 있다. Densification parameter, δ 는 다음과 같이 나타낸다[8].

$$\delta = \frac{(\rho_s - \rho_g)}{(\rho_{theo} - \rho_g)}$$

여기서 ρ_s , ρ_g , 그리고 ρ_{theo} 는 각각 소결밀도, 성형밀도 그리고 이론밀도이다.

2) 실험방법

본 실험에 사용된 장치는 CAM(Continous Attirrtion Mill)이다. CAM의 회전날개의 회전수는

150rpm, 장입되는 불은 직경이 8mm인 지르코니아불이며, 불 장입량은 70vol.%, 시료의 양은 20vol.% 이다. 성형밀도는 기하학적 방법으로 그리고 소결밀도는 수침법으로 측정하였다. 제조된 소결체의 결정립 크기는 Heyn의 intercept 방법으로 측정하였다

3. 결과 및 토의

3.1 Densification parameter

ex-DC와 ex-ADU UO_2 분말에 Gd_2O_3 를 각각 4, 6 그리고 8wt% 첨가한 후 5회 CAM 처리하여 성형압력별(150과 300MPa)로 성형한 소결체의 densification parameter를 그림 1에 도시하였다. 그림에서 보는 바와 같이 ex-DC UO_2 분말이 ex-ADU UO_2 분말보다 Gd_2O_3 함량이 동일한 경우에 성형압력이 낮아도 densification parameter가 큼을 보여준다. 즉 ex-DC UO_2 분말이 ex-ADU UO_2 분말보다 낮은 성형압에서도 높은 소결성을 나타냄을 보여준다. 그리고 ex-DC UO_2 분말인 경우 성형압력(150과 300MPa)에 관계없이 densification parameter가 거의 비슷함을 보여준다. 이것은 ex-DC UO_2 분말인 경우 150MPa와 같은 낮은 성형압력으로도 고밀도의 소결 밀도를 가질 수 있음을 보여준다. 한편, ex-ADU UO_2 분말인 경우 성형압력이 증가할수록 densification parameter가 증가하지만 성형압력을 크게 증가하여도 ex-DC UO_2 의 것보다는 낮음을 보여준다. 결과적으로 ex-ADU UO_2 분말을 사용하여 소결체를 제조하는 것보다도 ex-DC UO_2 분말을 사용하여 소결체를 제조할 경우 낮은 성형압력으로 높은 소결밀도를 얻을 수 있다. 따라서 경제성과 기술적인 관점에서 ex-ADU UO_2 분말보다는 ex-DC UO_2 분말을 사용하는 것이 바람직한 것으로 사료된다.

3.2 Gd 함량에 따른 밀도

그림 2에 ex-DC UO_2 분말과 ex-ADU UO_2 분말의 Gd_2O_3 첨가함량별로 5회 CAM 처리한 것의 밀도를 도시한 것으로, ex-DC UO_2 의 경우에는 성형압력이 150MPa 이며 ex-ADU UO_2 의 경우에는 성형압력이 300MPa이다. 이와 같은 압력을 설정한 이유는 소결밀도가 적어도 95%T.D. 이상을 목표하였기 때문이다. 그림에서 보는 바와 같이 ex-DC UO_2 성형압력이 낮아 성형밀도가 낮지만 소결밀도는 높음을 보여준다. 반면에 ex-ADU UO_2 인 경우에는 성형압력이 높아 성형밀도가 크지만 소결밀도는 ex-DC UO_2 의 것보다 낮음을 보여준다. 한편 UO_2 분말의 종류에 관계없이 Gd_2O_3 첨가함량이 증가할수록 성형밀도는 거의 변화하지 않으나 소결밀도는 증가하는 경향을 보여준다.

3.3 Gd 함량에 따른 미세조직

그림 3에 ex-DC UO₂와 ex-ADU UO₂의 Gd₂O₃ 첨가함량에 따른 미세조직을 나타내었다. ex-ADU UO₂의 경우는 성형압력 300MPa이며 ex-DC UO₂의 경우에는 성형압력이 150MPa이다. 그림에서 보는 바와 같이 ex-ADU UO₂의 경우보다 ex-DC UO₂의 결정립 크기가 Gd₂O₃ 함량에 관계없이 큼을 보여준다. 이것은 소결밀도가 큰 원인과 관련될 것으로 판단된다. 참고로 순수 (pure) UO₂의 결정립 사진도 함께 도시하였다. 순수 UO₂의 결정립 크기가 가장 크지만 첨가량이 증가할수록 순수 UO₂의 결정립 크기에 접근함을 보여준다. 이는 Gd₂O₃ 함량이 증가할수록 CAM 처리가 좀더 효과적으로 두 성분을 미분쇄시키면서 균질하게 혼합시키는 것으로 사료된다.

4. 결론

건식으로 제조된 ex-DC UO₂ 분말과 습식으로 제조된 ex-ADU UO₂ 분말에 각각 Gd₂O₃ 함량을 4~8wt% 첨가혼합하여 5회 CAM 처리를 하여 소결한 결과 다음과 같다.

- 1) 분말 종류에 관계없이 Gd₂O₃ 첨가함량이 증가할수록 소결밀도와 결정립 크기는 증가하는 경향을 보여준다. 이는 Gd₂O₃ 함량이 증가할수록 CAM 처리가 좀더 효과적으로 두 성분을 미분쇄시키면서 균질하게 혼합시키는 것으로 사료된다.
- 2) 동일한 제조조건하에서 ex-DC UO₂ 분말이 ex-ADU UO₂ 분말보다 densification parameter 가 큼을 보여준다. 이는 낮은 성형압에서도 높은 소결밀도를 얻을 수 있음을 나타내준다.

Acknowledgement

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었음.

참고 문헌

- [1] Y.W. Lee and M.S. Yang, Journal of Nuclear Materials, 178(1991)217,
- [2] P. Das and R. Choudhury, *ibid.*, 170(1990)2866-8].
- [3] IAEA-TECDOC-844, "Characteristics and use of urania-gadolinia fuels"]
- [4] Sang Ho Na et al., Journal of the Korean Nuclear Society, 34(1) (2002) 60-67]
- [5] 일본 特開平9-15365 (1997), 藤野彰 外]
- [6] 나상호 외, 2003 춘계학술발표회 요약집 p.224, 원자력학회,]
- [7] 나상호 외, 2003 춘계학술발표회 요약집 p.268, 원자력학회,
- [8] Joel S. hirschhorn, Introduction to Powder Metallurgy, The Colonial Press Inc., 1969, p.206

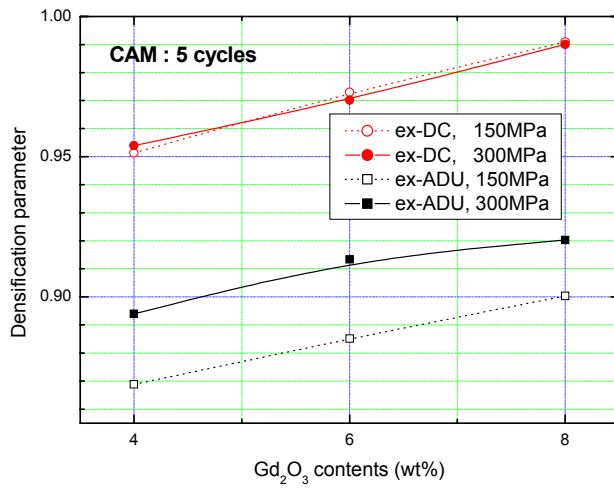


그림 1. Gd 함량에 따른 densification parameter

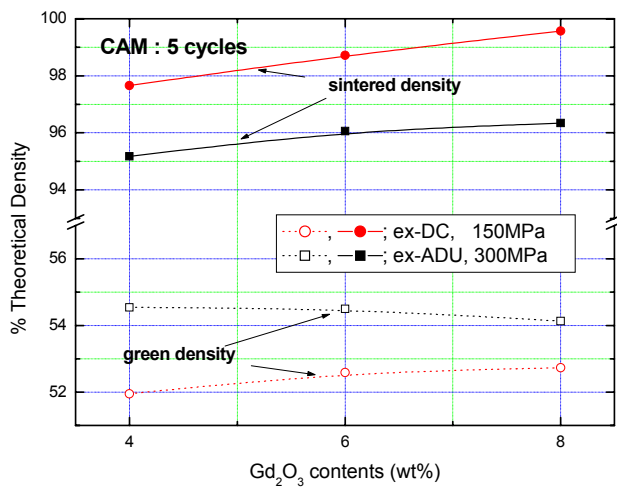


그림 2. Gd 함량에 따른 (U,Gd)O₂ 성형 및 소결밀도

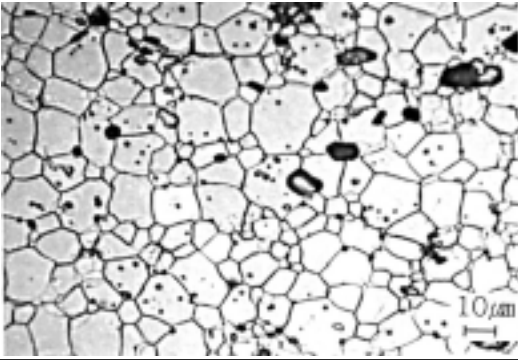
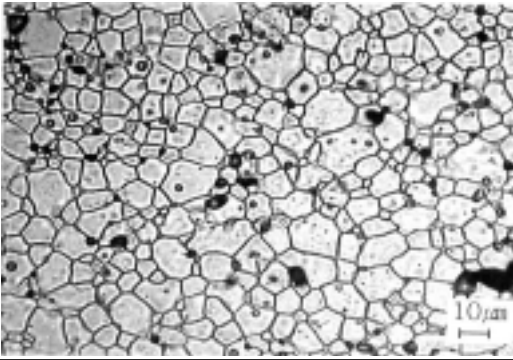
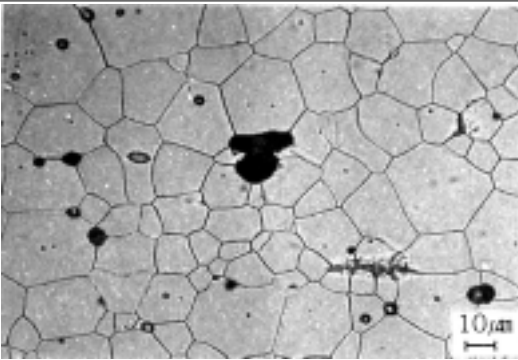
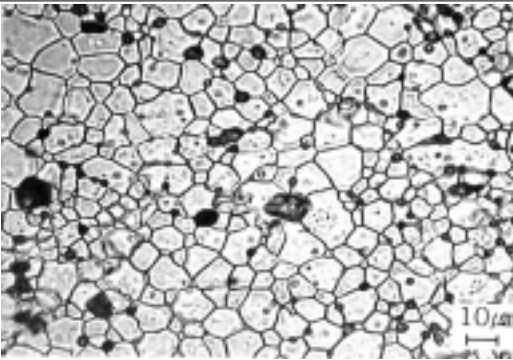
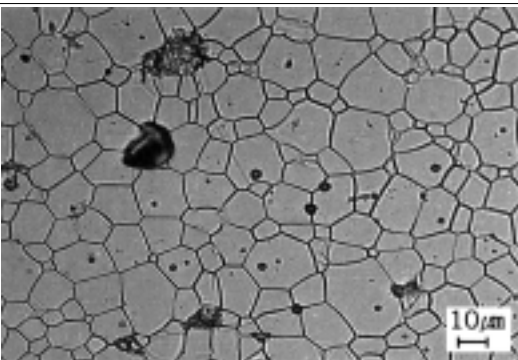
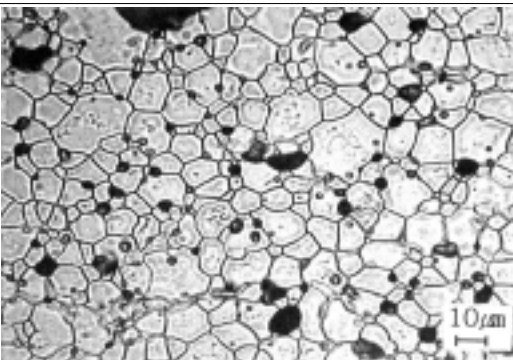
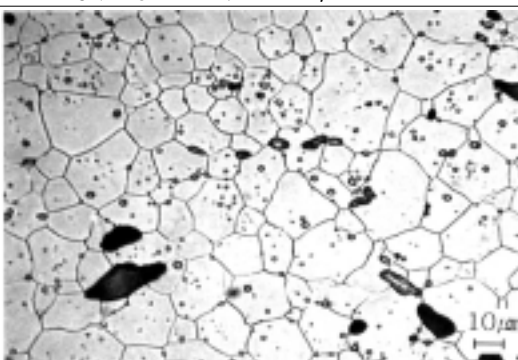
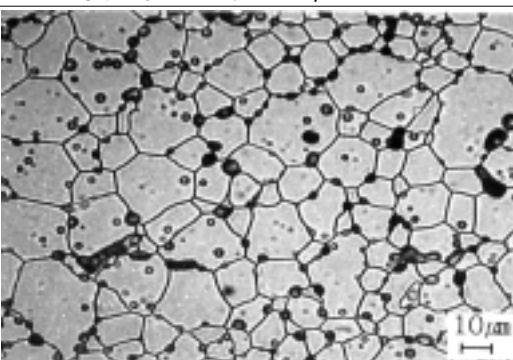
Gd ₂ O ₃ contents (wt%)	ex-DC UO ₂	ex-ADU UO ₂
4		
	결정립 평균 크기 ; 9.00 μ m(97.7%T.D.)	결정립 평균 크기 ; 7.52 μ m(95.2%T.D.)
6		
	결정립 평균 크기 ; 14.29 μ m(98.7%T.D.)	결정립 평균 크기 ; 8.01 μ m(96.1%T.D.)
8		
	결정립 평균 크기 ; 11.09 μ m(99.6%T.D.)	결정립 평균 크기 ; 8.52 μ m(96.3%T.D.)
0		
	결정립 평균 크기 ; 13.76 μ m(96.2%T.D.)	결정립 평균 크기 ; 11.88 μ m(93.9%T.D.)

그림 3. Gd 첨가함량에 따른 (U,Gd)O₂ 소결체 미세조직