

알루미늄기지에 원심분무 U-(5.4~10wt.%)Mo 분말로
분산된 핵연료의 열적 양립성

Thermal Compatibility of Centrifugally Atomized
U-(5.4~10wt.%)Mo Powders with Aluminium
in a Dispersion Fuel

박수봉, 김기환, 안현석, 박순달, 이운상, 박종만, 김창규

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

알루미늄 기지에 원심분무한 U-Mo alloy 입자를 분산시킨 핵연료 심재에 대하여 열적 양립성이 연구되어 왔다. Al 기지에 45vol.% U-(5.4, 6, 7, 8, 9, 10)wt.% Mo powder를 혼합하여 압출 제조한 핵연료 심재들을 500°C에서 100시간동안 열처리한 결과 평균량은 27~34%이었으며, 평균량이 40~50%인 Al-50vol.% U₃Si₂ 핵연료와 비교할 때 같거나 조금 더 안정한 상태라고 할 수 있다. 평운시 나타나는 Al/U-Mo 사이의 반응은 알루미늄이 입자내의 grain boundary를 따라 확산하여 (U, Mo)Al₃ 상이라 생각되어지는 경계층을 형성하고 입자내의 미반응된 U-Mo는 island 형태로 된다.

Abstract

The thermal compatibility of fuel meats, which are centrifugally atomized U-Mo alloy particles dispersed in Al matrix, has been studied. The extruded fuel meats with spherical U-(5.4, 6, 7, 8, 9, 10)wt.% Mo powders of 45 volume % were annealed for up to 100h at 500°C. The U-Mo fuel meats increased in volume by 27%~34% after annealing for 100h at 500°C. The volume increases of U-Mo compatibility specimens were almost the same as or smaller than those of U₃Si₂. The reaction product (U, Mo)Al₃ is formed preferentially by diffusion of aluminum in the perimeter. A lamellar structure consisting of an α -U phase

and γ -phase was observed to nucleate at the grain boundaries and grow into the grain interiors.

1. 서론

핵비확산 정책의 일환으로 전 세계 모든 연구로용 원자로에서 사용되어온 고농축 우라늄 핵연료를 저농축 우라늄 핵연료로 전환하는 노력이 진행되어 왔다. 이에 따라 저농축 우라늄으로 우라늄을 고밀화시킨 핵연료로 대체하고자 연구개발을 착수하였다[1]. 현재까지 약 5 g-U/oxf 정도의 우라늄 장입 밀도를 요구하는 핵연료로서 U_3Si_2 -Al 분산핵연료가 보편적인 재료특성 및 조사안정성을 나타내어 그 동안 대상 원자로의 약 90%가 핵연료를 전환하였다[1-2]. 그러나 프랑스 RHF 및 Ophree, 벨기에의 BR-2 등과 고성능을 요구하는 원자로에는 우라늄 실리사이드 분산핵연료로 전환할 수 없는 데, 이 해결을 위해서는 U loading 8~9 g-U/oxf의 핵연료가 필요하다. 이에 따라 우라늄 고밀도합금의 개발이 최근에 새로 시작되었고, 핵연료의 우라늄 밀도와 조사안정성을 고려하여 우라늄화합물 보다는 γ 상 안정성이 있는 고밀도 우라늄합금에 초점을 맞추어 개발을 시작하였다[3].

지금까지의 연구결과 γ 상 안정 후보합금으로 U-Mo 및 U-Nb-Zr 합금을 선택하였고 이에 따라 최적의 합금개발을 위하여 합금원소의 조성을 변화시키거나 제 3 원소를 소량 선정하는 micro-plate screening test를 미국 ATR 원자로에서 수행하고 있다[4].

U-Mo/Al 핵연료는 노내에서 연소될 때 팽윤이 발생하는데 그 원인으로는 대체로 핵분열생성물에 의한 부피증가와 U-Mo 입자와 알루미늄 기지와 화학반응에 의하여 저밀도의 U-Mo-Al 경계층이 형성됨에 기인한 부피증가인 것으로 알려지고 있다. 이러한 핵연료의 노외체적팽창 거동은 반응온도, 핵연료의 조성, 핵연료내의 우라늄 함량, 제조공정 중에 포함되는 수소와 같은 impurity gas 등 여러 인자에 의해서 매우 다른 특성을 나타내는 것으로 알려지고 있으나 정확한 기구규명은 현재 불분명한 상태이다.

따라서 본 연구에서는 Mo 함량을 5.4~10wt.%로 하여 원심분무 핵연료 분말을 제조하고 500°C에서 열처리한 후 부피팽창 및 조직을 조사하여 기존의 U_3Si_2 분산핵연료와의 양립성 평가를 비교하였다.

2. 실험방법

U-(5.4, 6, 7, 8, 9, 10)wt.%Mo 분말들은 순도 99.9% 감손 우라늄과 99.7% Mo를

내고온성인 있는 세라믹으로 코팅된 흑연 도가니에서 원심분무법으로 제조되었다. 125 μm 이하의 핵연료 분말을 알루미늄과 함께 45vol%로 혼합하여 직경 6.5mm로 400°C에서 압출하여 각 Mo함량별로 길이 25mm로 시편을 가공하여 quartz tube에 진공봉입한 후, 500°C에서 열처리한 후 각 시료들의 부피 팽창량과 분말들의 형태 및 미세조직을 주사식 전자 현미경(SEM)으로 관찰하였다. Energy dispersive X-ray spectroscopy(EDX)를 사용하여 분산핵연료의 조성분석을 수행하였다. 또한 열처리된 핵연료의 상변화는 Cu K α 를 갖는 X-ray 회절 분석을 통해 결정하였다.

3. 결과 및 고찰

3-1. Al기지에 분산된 U-Mo 합금의 열적 양립성

Fig. 1에 나타낸 바와 같이 U-Mo 양립성 시편을 quartz tube에 vacuum sealing 한 후 500°C에서 각각 1, 4, 10, 20, 100시간 동안 유지후 시편의 치수측정을 통해 체적변화를 구했다.

분산된 시료들의 체적은 20 시간 이내 급속히 증가함을 보여준다. 500°C에서 각각의 시간 동안 열처리 한 후 체적 팽창량을 측정한 결과 각 Mo 함량에 따른 큰 차이를 보여주지 않았으며, 열처리 시간이 경과됨에 따라 체적 팽창량은 크게 증가하지 않았다. 이것은 U-Mo와 Al 간의 계면에서 존재하는 중간상층이 미반응 U-Mo의 중심부 쪽으로 Al 원자의 확산을 방해하므로, 그 결과 중간상층의 성장속도가 시간이 경과함에 따라 증가량이 점점 감소하였다고 생각된다. 또한 500°C에서 100시간 동안 열처리한 후 Al-45vol% U-(5.4, 6, 7, 8, 9, 10)wt.%의 체적 팽창량은 약 27~34% 정도로 나타내는데 이것은 예전 50vol% U₃Si₂ 원심분무 및 파쇄 분말의 U₃Si₂ 결과와 비교해 보면 각각 약 41%와 52%로 U-Mo alloy가 같거나 안정한 양립성 결과를 얻었다.

3.2. 미세 조직 분석

500°C에서 100시간동안 열처리한 각 시료에 대해 SEM을 이용하여 150 배로 촬영한 뒤 분산핵연료의 반응정도 및 분해 형태를 완전반응, one unreacted island 및 several unreacted island로 구분하여 Mo 함량별로 정리한 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 여기서 Mo 함량이 증가할수록 one reacted island의 형성 비율은 증가하였지만, 반응층의 두께는 Mo 함량에 따라 크게 영향을 받지 않고, 약 5 μm 로 일정하였다.

500°C에서 열처리된 분산핵연료의 X-ray 회절 분석결과 원심 분무된 상태의 단일 γ -U상에서 10시간 이후에는 모든 조성에서 α -U 상을 포함하는 열역학적으로 안정한 층상조직(lamellar structure)으로 분해되었다(Fig. 3).

500°C에서 100시간까지 열처리한 시편의 단면을 미세조직 분석한 결과, U-Mo 입

자 내에 α -U phase와 γ -U phase로 이루어진 lamellar 조직을 나타낸다. 이와 함께 U-Mo 입자와 Al 기지와 의 계면상태는 Fig. 4에서와 같이 Mo 함량에 따라 두 가지 형태를 보이고 있는데, 한 가지는 U-10wt.%Mo 처럼 U-Mo 분말의 외주부에 rim을 형성하면서 열처리 시간이 증가함에 따라 반응층의 두께도 점차 증가하면서 반응되어 one reacted island로 되는 것과, 다른 한가지는 U-6wt.%Mo 처럼 분말 내부의 Mo 결핍영역인 입계를 따라 aluminum diffusion effect가 지배적으로 일어나서 several reacted island가 되는 두 가지 양상으로 나눌 수 있다.

상기의 두 경우에서 보여 준 바와 같이, 미반응된 powder의 영역은 입자 표면으로부터 내부로 반응된 영역이 진행됨에 따라 줄어든다. 따라서 500°C에서의 평균 거동은 빠른 Al의 확산에 의한 (U, Mo)Al₃ 상이라고 생각되어지는 새로운 화합물이 형성된 결과라고 생각된다. 이것은 X-ray 회절 분석결과와도 일치함을 보여준다 (Fig. 5). 기존의 연구결과에 의하면 U-Mo 합금은 Al이 비교적 확산하기 쉬운 grain boundary나 subgrain boundary를 따라 확산이 진행되어 반응층이 성장하면서 미반응된 입자를 island 형태로 만들고 이에 따라 핵연료입자의 계면 부위에 Al 결합층이 형성되면서 반응이 진행된다고 보고되고 있다.[5]

4. 결 론

본 연구에서는 Mo 함량이 5.4, 6, 7, 8, 9, 10wt.%를 갖는 U-Mo 핵연료 분말을 제조하고 500°C에서 100시간까지 열처리한 후 부피팽창 및 조직을 조사하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 평균시험시 나타나는 Al/U-Mo 사이의 반응은 알루미늄이 확산하여 (U, Mo)Al₃ 상이라 생각되어지는 경계층을 분말기지에 형성하고 입자내의 미반응된 U-Mo 분말은 island 형태로 된다.
- 2) 500°C에서 100시간까지 열처리된 Al-45vol.% U-(5.4, 6, 7, 8, 9, 10)wt.%Mo 핵연료의 평균량은 27~34% 이었으며, 평균량이 40~50%인 Al-50vol.% U₃Si₂ 핵연료와 비교할 때 같거나 조금 더 안정한 상태라고 할 수 있다.
- 3) Mo 함량이 증가할수록 one large unreacted island의 발생분을 및 알루미늄 기지와 의 반응생성물 형성영역은 증가하는 경향을 보여 주었다. 이는 Mo 함량이 증가할수록, 준안정 감마상 안정성이 우수하여 알루미늄 기지와 우수한 양립성을 보여주었기 때문이라고 생각된다.

감사의 글

본 결과는 과학기술부의 원자력연구개발 중장기계획사업의 일환으로 연구로용 개발과제에서 수행한 것으로 연구비 지원에 대하여 감사드립니다.

참고 문헌

- 1) G.I. Hofman, J. Nucl. Mater., 140(1986)256.
- 2) R.C. Birther, C.W. Allen, L.E. Rehn, G.L. Hofman, J. Nucl. Mater., 152(1988)73.
- 3) J.L. Snelgrove, et. al., Pro. of 19th Intet. Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Seoul, Korea, 1996.
- 4) S.L. Haues, C.L. Trybus, and M.K. Meyer, Pro. of 21th Inter. Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Jackson Hole, WY, Oct. 5-10, 1997.
- 5) K.H. Kim, D.B. Lee, C.K. Kim, G. Hofmann, K.W. Paik, J.Nucl. Mater. 245(1997) 179.

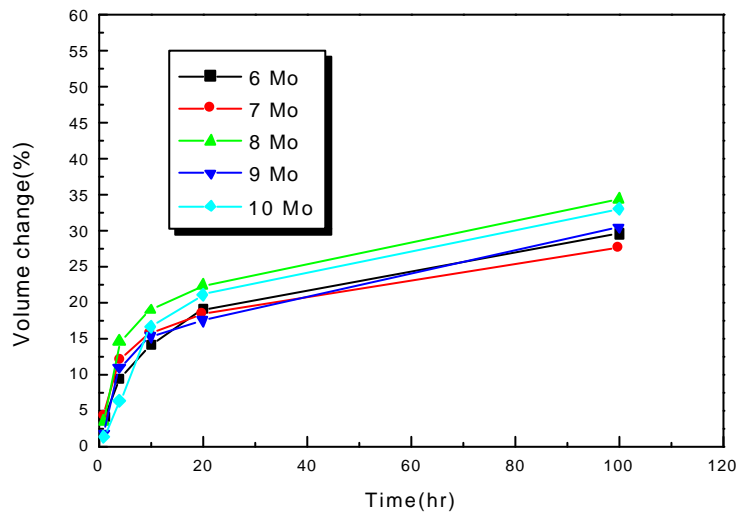
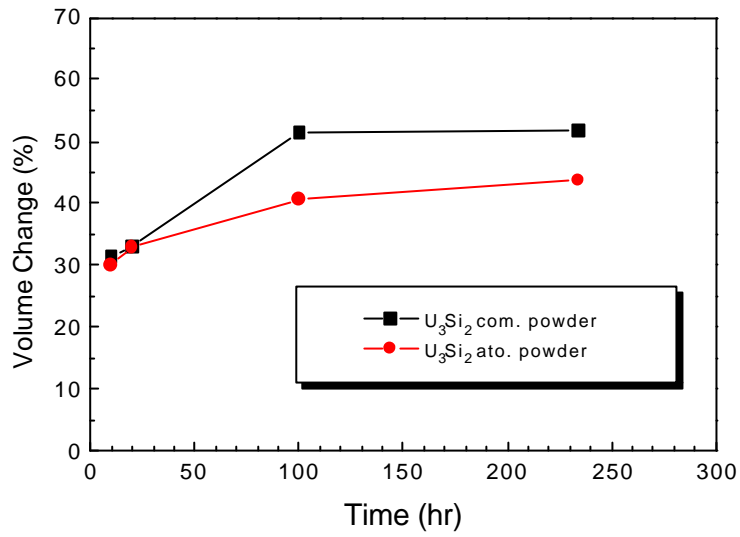


Fig. 1. U-Mo 분산핵연료의 열처리 시간에 따른 체적팽윤의 변화량

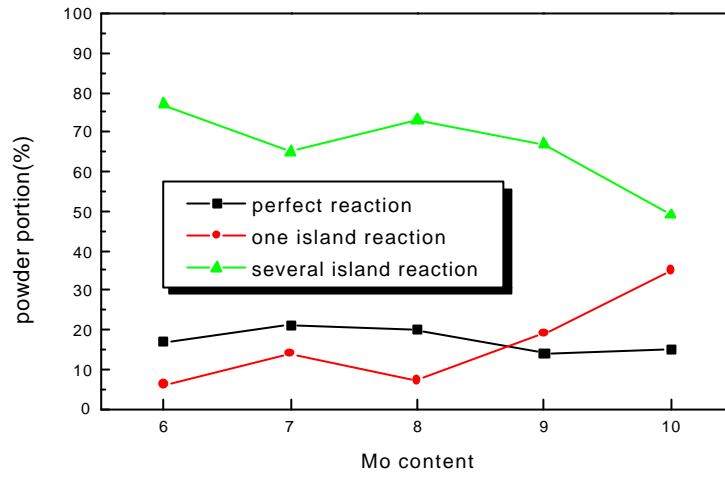
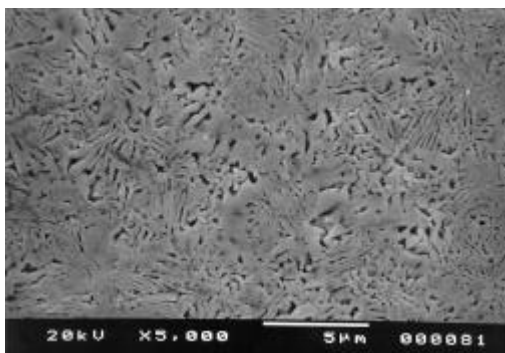
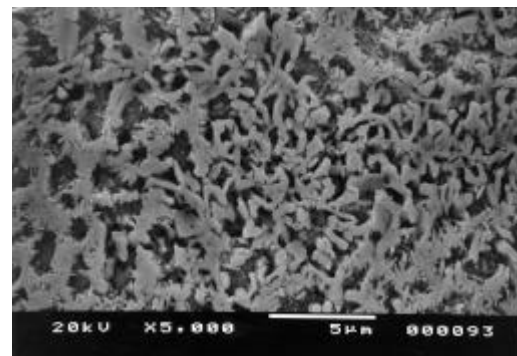


Fig. 2. Mo 함량별 핵연료분말의 반응정도

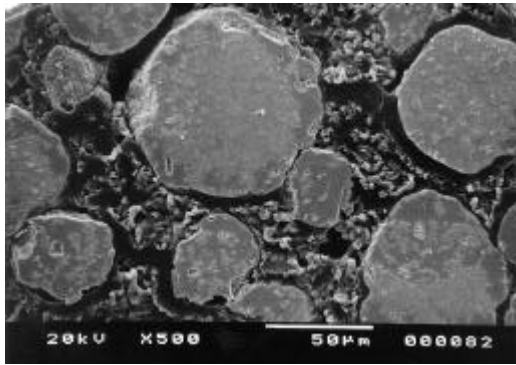


(a) U-6wt.%Mo

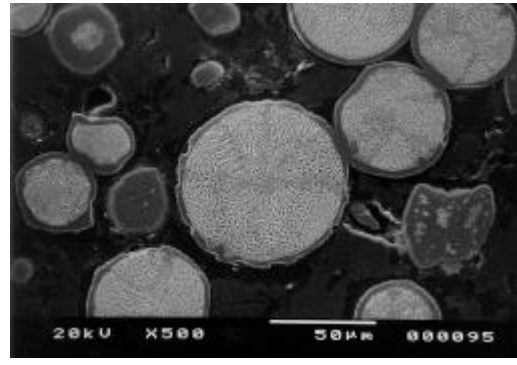


(b) U-10wt.%Mo

Fig. 3. 500°C에서 100시간 열처리 후 미세 조직



(a) several reacted island



(b) one reacted island

Fig. 4 핵연료분말에 Al의 침투 형태
(500°C-100시간 열처리 후)

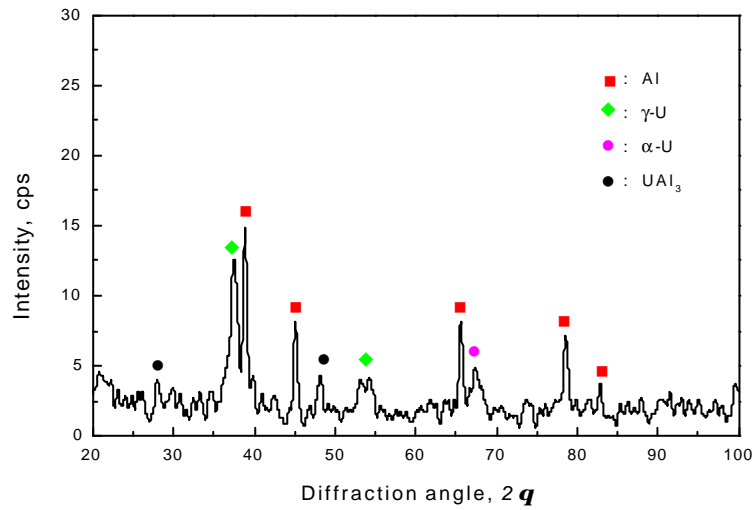


Fig. 5. 500°C에서 20시간 열처리 후의 U-10wt.%Mo의 X-ray pattern