'99 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

U_3Si분말의 크기와 형태가 U_3Si/Al 분산 핵연료의 균질도에 미치는 영향

The Effects of Particle Size and Shape of U_3Si on The Homogeneity of U_3Si/Al Dispersion Fuel

손웅희, 홍순형
한국과학기술원

김창규*, 김기환*, 박종만*,한영수*
한국원자력연구소

요 약

고성능 연구로에 필요한 8~9g-U/cm^3 정도의 uranium 충진밀도를 얻기 위해서는 Al기지내에 uranium silicide 핵연료 입자의 부피분율을 높이고, 핵연료봉의 Al 기지내에 핵연료 입자가 균일하게 분포되어야 한다. 균질한 핵연료 심재를 제조하기 위해서는 핵연료 입자와 알루미늄과의 균일한 혼합이 중요하다. 따라서 본 연구에서는 원심분무분말과 파쇄분말의 핵연료 분말 특성이 균질혼합에 미치는 영향을 분석하였다.

Abstract

In order to obtain uranium high-density of 8~9g-U/cm^3 for high performance research reactor the volume fraction of fuel particles in fuel meat is needed to increase and the fuel particles should be homogeneously dispersed. Accordingly the homogeneous mixing is required. In this study, the effects of fuel particle's characteristics on the homogeneous mixing were analysed for two kinds of atomized fuel powder and comminuted powder.

1. 서 론

연구로용 원자로의 핵연료로써 고농축 U-Al 합금이 주로 사용되었으나, 핵확산 방지를 위하여 미국의 DOE를 주축으로 하여 1978년부터 RERTR program을 구성하여 저농축우라늄 핵연료를 개발하기 시작하였다. 그러나 uranium silicide 분산 핵연료는 프랑스 RHF 및 Orphee, 벨기에의 BR-2등과 같은 고출력, 고중성자속을 요구하는 원자로에 대하여는 저농축 핵연료로 전환할 수 없는데 이러한 연구로를 완전히 저농축우라늄 원자로로 전환하기 위해서는 U-loading 8~9g-U/cm^3 의 핵연료가 필요하기 때문이다[1]. 보다 고연소도시 안정성을 나타내며 더 높은 우라늄 밀도의 LEU 분산핵연료 개발이 필요하고, 이에 대해 기본적으로 두 가지 방안을 생각해 볼 수 있다.

첫 번째 방안은 분산 핵연료로 제조될 수 있고 안정한 조사 거동을 가지는 우라늄 함량이 높은 안정한 우라늄 화합물을 개발하는 것이다. 두 번째 방안은 우라늄화합물 핵연료 분말

을 지기내에 균일하게 분포시켜 핵연료의 부피분율을 최대화하는 것이다. 따라서 핵연료 입자의 최대 부피분율을 얻기 위해서는 성형성이 우수하면서 핵연료봉 내의 핵연료 입자가 균일하게 분포되어야 한다. 균질한 핵연료 심재를 제조하기 위해서는 핵연료 입자와 알루미늄과의 균일한 혼합이 중요하며, 캐나다 등에서 사용되는 U_3Si 분말은 진공유도용해후 pressing을 통하여 제조되어 비정형 형태를 가진다. 그러나 uranium silicide 핵연료 제조시 힘든 파쇄공정을 제거하기 위해 한국원자력연구소에서 창안된 원심분무법을 적용하여 핵연료 제조공정을 간편하게 하고 구형분말 제조 및 급속응고 효과 등을 이용하여 핵연료 특성을 향상시킬 수 있다고 생각된다[2-4].

본 연구에서는 U_3Si 핵연료 분말의 충진밀도를 높이기 위한 균질혼합방법을 연구하였으며 혼합핵연료의 균질도를 정량적으로 평가할 수 있는 기법을 개발하고자 하였다.

2. 실험방법

연구로용 핵연료의 균질혼합에 미치는 분말특성을 살펴보기위해, U_3Si 분말의 입자형태 및 입자크기에 따른 균질 혼합도를 측정하기 위하여 원심분무방법으로 제조한 후 열처리된 U_3Si분말과 합금 주괴를 열처리하여 선반에서 drilling방법으로 chipping하고 shatter box로 분쇄하여 제조된 U_3Si분말을 준비하여 각각의 분말크기로 sieve analysis를 실시하였다.

균질한 분말혼합체를 얻기 위하여 본 연구에서는 off-axis rotating drum mixer, Spex mixer 및 V-shape tumbler mixer를 사용하여, 평균입도 20㎛의 알루미늄 분말과 핵연료 분말을 혼합하고, 겉보기 밀도 측정법에 의하여 균질도를 측정하고, 혼합시간에 따른 핵연료 분말입자의 형태와 입도 변화가 균질도에 미치는 영향을 조사하였다. 균질도의 일정한 부피의 용기에 대해 무게측정을 통하여 조성을 측정하는 방법으로 혼합시간에 따라 시료를 샘플링 하였다. 각각의 샘플링 하여 겉보기 밀도를 측정하여 혼합시간에 따른 조성의 표준편차를 측정하여 균질도를 측정하고자하였다. 이때 물리적인 방법으로 조성을 측정하기 위하여 분말혼합체의 조성변화에 따른 겉보기 밀도를 측정하였다. Hall flow meter장치를 이용하여 샘플을 채취하였으며, 샘플링은 혼합체 전체에 대하여 실시하였다.

3. 결과 및 고찰

균질도 평가를 위한 방법으로 겉보기 밀도 측정법을 사용하였다. Fig. 1(a)는 겉보기 밀도 측정법에 의해 측정된 혼합장치에 대하여 혼합시간에 따른 샘플간의 표준편차를 나타내었다. Fig. 1(b)에 나타내었듯이, 혼합과정은 모든 경우에 대하여 혼합 초기에 빠른 혼합이 이루어지고, off-axis rotating drum mixer의 경우에는 모든 혼합시간에 대하여 표준편차가 다른 두 혼합장치에 비하여 높다. 그리고 Spex mixer와 V-shape tumbler mixer는 거의 같은 수준의 낮은 표준편차를 보여주고 있으나, Spex mixer의 경우에는 혼합하는 batch의 양이 작아 핵연료 봉을 제조하는데 많은 혼합시간이 필요하고 또한 분말을 다루는 도중에 편석이 일어날 가능성이 있다. 따라서 본 실험에서는 한 batch의 양으로 핵연료 봉을 제조할 수 있는 부피를 가지면서 상대적으로 균질혼합이 가능한 V-shape tumbler mixer를 사용하여 균질 혼합 방법을 개선하고자 하였다.

Fig. 1(b)는 입자크기에 따른 균질도 평가결과를 나타내고 있다. 입자크기가 45㎛이하의 U_3Si분말들에 의한 혼합이 45-150㎛크기의 U_3Si분말들에 의한 혼합보다 더 균질 혼합이 이루어지고 있음을 알 수 있다. 핵연료 입자의 형태에 의한 균질혼합 특성을 살펴본 결과 Fig. 1(c)에서 나타난 것처럼 파쇄분말에 의한 혼합에 원심분무법에 의하여 제조된 구형분말에

의한 혼합보다 좀 더 균질 혼합이 발생함을 알 수 있다. 이러한 핵연료 분말 특성이 균질도에 미치는 영향을 분석하기 위하여 핵연료 분말 및 Al 기지재료의 유동속도(flow rate) 및 반응각(repose angle)을 hall flow meter를 이용하여 측정하였다. 핵연료 분말의 유동속도 측정은 U_3Si 분말이 15.3g/cm^{3}의 높은 밀도를 가지고 있어서, 정확한 유동속도를 측정하기 위하여 200g을 기준으로 실험을 실시하였다. Table 1은 핵연료 분말의 특성을 살펴보기 위해 분말의 유동속도 및 반응각 측정결과를 나타내고 있다. 파쇄분말의 유동속도는 구형분말보다 훨씬 느린 속도를 나타내고, 반응각 값도 높게 나타난다. 이러한 원인은 파쇄분말은 분말사이의 접촉면적 증가로 인하여 자유낙하하지 못하도록 하기 때문이다. 따라서 유동속도가 빠르거나, 반응각이 클수록 혼합 과정에서 자유로운 유동(free flow)의 경향에서 응집(cohesive) 특성으로 인한 균질혼합 과정으로 변화가 나타난다. 위의 결과로부터 45㎛이하의 입자들은 큰 입자들 보다 응집 특성을 더 잘 나타내므로 Al과 더 잘 결합하려고 한다. 따라서 작은 U_3Si 입자들과 Al 기지 분말은 결합하여 아치 하나의 분말처럼 움직이려고 하는 특성을 증가시키고, 작은 입자들의 응집 특성에 의하여 기인한 같은 분말들 사이의 결합은 V-shape tumbler mixer의 혼합장치에 의한 회전시에 의한 원심력과 충격 에너지에 의하여 서로 떨어지려고 한다. 이러한 동일 원자들 사이의 결합은 최소화하면서 이종입자들간의 결합이 증가하여 균질혼합이 일어날 수 있으며 이러한 경향성은 큰 입자의 경우에 비하여 더 큰 것으로 판단된다.

Fig. 3(a)는 원심분무법에 의하여 제조된 U_3Si 분말의 형태를 보여주고 있다. 약 100㎛크기의 구형분말은 이웃 입자와 결합하지않고 독립적인 입자로 존재하여 혼합시 자유로운 유동 특성을 나타내려고 한다. 그런데 45㎛ 크기 이하의 작은 입자들은 Fig. 3(b)에서 나타나듯이 작은 입자들끼리 서로 결합하고 있음을 나타내고 있다. 또한 파쇄분말의 경우 반응각은 구형분말에 비하여 상당히 크므로, 파쇄분말은 구형입자보다 더 Al 기지분말과 더 잘 결합한다고 할 수 있다. 따라서 파쇄 U_3Si 분말 입자들과 Al 기지분말은 결합하여 아치 하나의 분말처럼 움직이려고 하고, 파쇄분말들은 혼합장치에 의하여 뭉쳐있는 Al 기지분말들을 분리시켜 균일하게 파쇄분말에 결합할 수 있도록 하는 역할을 하게된다.

Fig. 4(a)는 분말혼합체내에서 구형 U_3Si 분말에 작은 Al 기지 분말들이 붙어있는 것을 나타낸다. 이것은 Al기지 분말의 cohesive한 특성으로 인하여 U_3Si분말과 서로 흡착층에의한 결합을 한 것으로 판단된다. 또한 작은 입자의 경우에는 그러한 경향성이 강해서 Al분말이 이웃 U_3Si 분말과 결합하도록 하는 특성을 나타내고 있다. 이러한 현상은 Fig. 4(b)에 나타나고 있다. Fig. 4(c)는 파쇄분말에 Al 분말이 붙어있는 것을 나타낸다. 따라서 분산핵연료의 혼합은 두 입자들 사이의 자유로운 유동 특성을 이용한 혼합과정이 아니고 두 입자들이 서로 결합하여 하나의 쌍으로 움직일 수 있는 응집 혼합에 의한 것으로 판단된다.

4. 결 론

1) 혼합장치 변화에 따른 균질혼합과정을 분석한 결과 V-shape tumbler mixer가 Spex mixer와는 비슷한 수준의 우수한 균질도를 얻을수 있었고, 기존의 off-axis rotating drum mixer의 경우에는 불균일한 특성을 나타내었다.
2) 평균 45㎛이하의 입자크기를 갖는 구형분말 혼합체 및 파쇄분말의 경우에는 평균입도 45-150㎛인 구형 U_3Si의 경우가 갖는 경우보다 더 균일한 분포를 갖는데, 이것은 작은 입자들의 응집특성으로 인해 Al분말과 더 잘 결합하고, 이러한 분말들 사이의 결합이

V-shape tumbler mixer의 혼합장치에 의한 회전 시에 의한 원심력과 충격 에너지에 의하여 서로 떨어지도록 하는 반복과정으로 인해 Al이 구형분말에 골고루 붙기 때문이다.

감사의 글

본 결과는 과학기술부의 원자력연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 연구로용 개량핵연료 개발과제에서 수행한 것으로 연구비 지원에 대하여 감사드립니다.

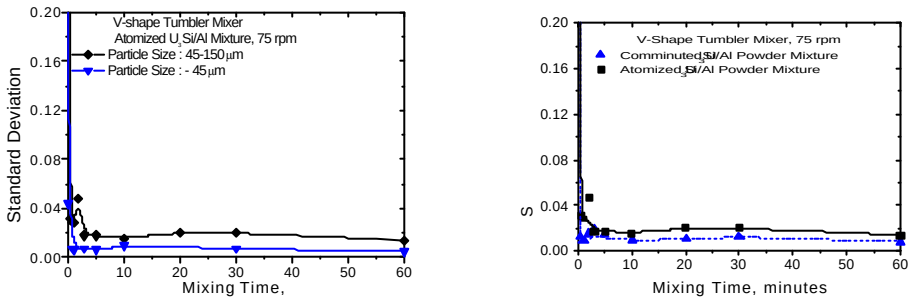
참고문헌

1). G. L. Copeland, G. L. Hofman, J. L. Snelgrove, in Proceedings of International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Gatlinberg, Tenessee, U.S.A., Nov. 3-6, 1986. ANL/RERTR/TM-9.

2) M.Akoso, M.Satoh and K.Miyanami, Powder Technology, Vol. 59, pp.45-52, 1989

3) 손웅희, 홍순형, 김창규, 김기환, 고영모, 한국원자력학회 98' 춘계학술발표회 논문집, pp. 256-261, 1998

4) C. K. Kim, K. H. Kim, J. M. Park, W. H. Sohn, S. H. Hong, Proc. of 21st International Meeting on RERTR, Oct. 18-23, Sao Paulo, Brazil, 1998



(a) (b)

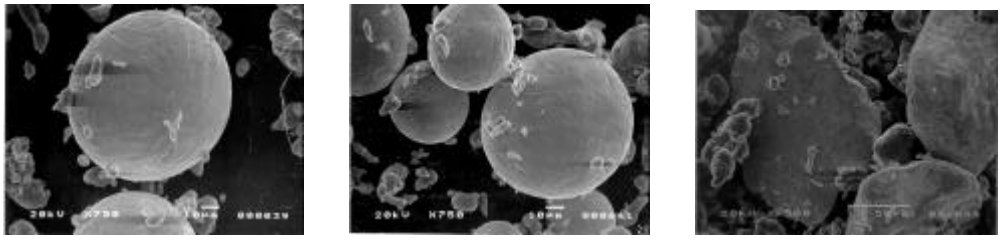
Fig. 1. (a) 핵연료 U_3Si 구형 분말입자의 크기변화에 따른 균질도 평가 및 (c) 핵연료 U_3Si 분말입자의 형태에 따른 균질혼합기술 개발

Table 1. 핵연료 분말 특성 변화에 따른 flow rate변화 및 angle of repose 변화

Powder Shape / Powder Size	Comminuted Powder		Atomized Powder	
	Flow Rate (s/50g)	Angle of Repose (°)	Flow Rate (s/50g)	Angle of Repose (°)
-45㎛	-	44.2	1.38	25.6
63-75㎛	-	-	1.19	21.1
125-150㎛	2.03	34.1	-	-

(a) (b)

Fig. 3. 원심분무법에 의해 제조된 U_3Si 분말의 형태 및 분말 특성. (a) 100㎛, (b) -45㎛.



(a) (b) (c)

Fig. 4. U_3Si와 Al 분말혼합체의 SEM을 통한 미세조직. (a) U_3Si/Al 분말혼합체, (b) U_3Si의 분말에 붙은 Al 분말입자, (c) Al입자에 의한 U_3Si 분말들간의 결합