

'98 추계학술발표회 논문집  
한국원자력학회

## 고밀도 우라늄 합금 분산핵연료의 조사거동

### Irradiation Behavior of High Density Uranium Alloy Dispersion Fuels

박 종만, 김 기환, 이 윤상, 이 돈배, 김 창규

한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

#### 요 약

우라늄 고밀도 후보합금 핵연료에 대하여 ATR에서의 micro-plate 조사시험을 한 결과 U-10Mo, U-6Mo-0.6Ru 및 U-6Mo-1Pt 합금들은 40 % 연소도 까지 비교적 우수한 조사안정성을 보였다. 그러나 U-Nb-Zr 합금은 Al 기지와 반응이 상당히 진행되었고 큰 size의 pore가 많이 생성되었다. 이와 함께 U-10%Mo 합금 분산 핵연료는 합금분말 제조 방법 차이에 따라 다른 조사거동을 보였다. 파쇄분말로 제조된 핵연료는  $U_3Si_2$ 와 비슷한 조사거동을 보였으며 전체적으로 많은 수의 작은 pore가 핵연료 입자내에 고르게 분포하였다. 그러나 원심분말 핵연료는 파쇄분말 핵연료에 비해서 pore의 수가 현저히 적으면서 입계에 주로 분포하였다. 전반적으로 원심분말 핵연료의 조사성능이 파쇄분말 핵연료에 비해서 우수한 것으로 평가되었는데 합금분말 제조방법에 따른 조사거동의 차이에 대한 정확한 원인은 아직 알 수 없으나 분말제조과정에서 수반되어 형성된 핵연료 입자내의 결합종류 및 조성의 불균일이 주된 요인이라고 추측된다.

#### Abstract

The screening irradiation test of high density uranium alloy dispersion fuels up to 40 % burn-up at ATR revealed that U-10Mo, U-6Mo-0.6Ru and U-6Mo-1Pt alloys possess stable irradiation performance but the U-Nb-Zr alloy dispersion fuel showed an extensive reaction with aluminum matrix as well as a lot of large pores. There appeared to be some difference in irradiation swelling behavior between the comminuted and the atomized U-10Mo alloy dispersion fuels. In the case of the comminuted dispersion fuel, a large number of fine pores were distributed

homogeneously in the fuel particles which is similar to the irradiation behavior of the  $U_3Si_2$  fuel. However, in the atomized dispersion fuel, a few irradiation pores were observed mainly at grain boundaries. It is evaluated that the atomized dispersion fuel has better irradiation performance than the comminuted fuel. The difference in the irradiation performance between the comminuted and the atomized U-10Mo dispersion fuels, even though it is still unclear, might be related to the various defects in particles and inhomogeneous chemical composition generated during fuel powder fabrication.

## 1. 서론

1978 년이래 핵비확산 정책의 일환으로 전세계 모든 연구용 원자로에서 사용되어온 고농축 우라늄 핵연료를 저농축 우라늄 핵연료로 전환하는 노력이 진행되어왔다. 이에 따라 RERTR program은 1 차로 저농축 우라늄으로 우라늄을 고밀 화시킨 핵연료로 대체하고자 연구개발을 착수하였다[1]. 현재까지 약  $5 \text{ g-U/cm}^3$  정도의 우라늄장입 밀도를 요구하는 핵연료로서  $U_3Si_2$  분산핵연료가 보편적인 재료특성 및 조사안정성을 나타내어 그 동안 대상 원자로의 약 90 %를 성공적으로 전환하였다[1-2]. 그러나 프랑스 RHF 및 Ophree, 벨기에의 BR-2 등과 같은 고성능을 요구하는 원자로에는 우라늄 실리사이드 분산핵연료로 전환할 수 없는데, 이의 해결을 위해서는 U loading  $8\sim 9 \text{ g-U/cm}^3$ 의 핵연료가 필요하기 때문이다. 이에 따라 우라늄 고밀도합금의 개발이 최근에 추가로 시작되었고(2 차 RERTR 계획), 핵연료의 우라늄 밀도와 조사안정성을 고려하여 우라늄화합물 보다는  $\gamma$  상 안정성이 있는 고밀도 우라늄합금에 초점을 맞추어 개발을 시작하였다[3].

지금까지의 연구결과를 바탕으로  $\gamma$  상 안정 후보합금으로서 U-Mo 및 U-Nb-Zr 합금을 선택하였고 이에 따라 최적의 합금개발을 위하여 합금원소의 조성을 변화시키거나 제 3 원소를 소량 첨가한 여러 종류의 후보합금을 노내조사시험하여 가장 적합한 고밀도 우라늄 핵연료를 선정하는 micro-plate screening test를 미국 ATR 원자로에서 실시하고 있다[4]. 이와 함께 우리 연구소에서는 우수한 노외특성을 가진 국내창안 핵연료로서 원심분무 방법으로 제조한 U-10%Mo[5]와  $U_3Si_2$ [6]후보재료의 노내조사성능 시험을 위하여 원심분말을 제조한 후 미국 ANL에 제공하였고 ANL에서는 조사시편을 제조하여 screening test용 후보재료들과 함께 ATR에 장전, 시험하는 공동연구를 수행중에 있다. 1997 년 8 월에 총 12 종류의 후보재료에 대한 micro-plate 조사시험이 시작되었으며, 1997 년 11월에 1 차로 40 % 연소후 핵연료를 인출하여 일정기간 냉각후 1998 년 7 월부터 조사후 시험을 수행 중에 있다. 이와 함께 80 % 연소후의 핵연료 인출은 1998 년 8 월에 이루어졌으며 이에 대한 조사후 시험은 1999년 1 월부터 수행될 예정이다.

본 연구에서는 1 차로 40% 연소후 인출한 핵연료 후보재료중 파쇄방법 및 원심분무 방법으로 제조된 U-10%Mo 분산핵연료를 중심으로 조사후 시험에 공동연구로 참여하여

고밀도 우라늄 합금의 조사거동 결과를 분석하였다.

## 2. 조사시험

ATR에서의 screening 조사시험용 후보재료로서 표 1에 나타낸 바와 같이 3 종류의  $\gamma$  상 안정성을 갖는 합금군으로 구분된 10 가지의 우라늄 합금 핵연료와 조사거동의 기준 설정을 위한 2 가지의 금속간 화합물 핵연료를 선정하였다. 특히 U-10%Mo 및  $U_3Si_2$ 는 파쇄방법 및 원심분무법으로 제조된 핵연료를 동시에 선정하여 분말제조방법 차이에 따른 조사거동을 비교, 분석하고자 하였다.

표 1. Screening test용 대상재료

Alloys	Most $\gamma$ stable	Intermediate	Least $\gamma$ stable
	1. U-10Mo ※	5. U-6Mo	9. U-5Nb-3Zr
	2. U-10Mo-0.05Sn	6. U-6Mo-1Pt	10. U-4Mo
	3. U-8Mo	7. U-6Mo-0.6Ru	
	4. U-9Nb-3Zr	8. U-6Nb-4Zr	
Intermetallic Compound	Reference material		
	11. $U_2Mo$		12. $U_3Si_2$ ※

※ 파쇄방법 및 원심분무법으로 제조한 핵연료

20% 농축도의 LEU를 원료로 하여 제조된 우라늄 합금은 알루미늄과 25 vol%의 혼합비율로 핵연료심재로 가공한 후 76 mm x 22 mm x 1.3 mm 크기의 micro-plate를 제조하였다. 제조된 micro-plate는 open-basket type의 캡슐에 장착되어 25~30 MW로 운전하는 ATR의 시험공에 장착한 후 조사시험을 수행하였다. 캡슐전체에서 약 35 KW의 열출력이 예상되었으며 대상 조사공에서의 thermal flux는  $2.0 \sim 3.1 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>-s 이었다. 조사 중 핵연료 심재의 최대중심온도는 약 96℃로 예측되었다. 40 % 및 80 %의 목표연소도에 도달하기 위한 조사기간은 각각 38 및 108 EFPD(Effective Full Power Days)이었으며 목표연소도 후에 조사후시험을 위한 냉각기간으로는 각각 30 일 및 60 일로 설정되었다.

## 3. 조사시험결과 및 고찰

### 3.1 광학현미경 조직검사

그림 1~2는 각각 파쇄방법 및 원심분무 방법으로 제조한 U-10%Mo 분산핵연료를 ATR에서 40 % 연소도 조사후에 micro-plate의 단면을 광학현미경으로 관찰한 결과이다. 분말제조 방법에 관계없이 핵연료 입자와 Al 기지물질 사이에 생성된 반응층이 약 2~3  $\mu$ m의 두께로 존재하였으며 반응층과 핵연료 기지 사이에 미세한 pore가 약간씩 생성되었다. 이와 함께 파쇄분말 입자내부에는 미확인 석출물이라고 예측되는 이물질이 약간 존재

하였으나 원심분말 핵연료의 경우에는 파쇄분말 입자보다 매우 깨끗한 분말입자의 단면을 나타내었다. 이로부터 40 %의 낮은 연소도 까지 조사시험된 핵연료로서의 조직은 전반적으로 양호한 결과라고 평가되어지고 있다.

그림 3~4는 U-6%Mo-0.6%Ru 및 U-6%Mo-1%Pt 분산핵연료의 조직관찰 결과이다. 대체로 U-10%Mo 분산핵연료와 유사한 형태의 반응층이 생성되었음을 알 수 있으나 Ru 첨가 핵연료는 입자 내에 이물질 또는 결함으로 보이는 반점이 약간 존재하였으며 Pt을 첨가한 핵연료에서는 기지와 반응층에 pore가 존재하는 것처럼 보였다. 따라서 제 3 원소가 첨가된 U-Mo 핵연료의 40 % 연소후 특성변화는 광학현미경 조직사진 결과만으로는 정확히 판단하기가 어렵지만 앞서와 마찬가지로 양호한 결과를 나타내었다고 추정된다.

그림 5는 우라늄 고밀도 후보재료중  $\gamma$ 상 안정성이 가장 낮은 U-5%Nb-3%Zr 합금 분산핵연료의 연소후 조직변화이다. 거의 전 영역에서 핵연료입자와 기지조직간의 반응이 상당히 진행되어 비정질이라고 추정되는 반응층이 모든 핵연료입자에 걸쳐서 생성되었다. 이와 함께 pore가 불균일한 크기의 분포로 존재하고 있다. 이러한 미세조직은 조사중에 비정질로 변태 되어 비교적 많은 swelling을 일으키는  $U_3Si$  핵연료와 비슷한 거동을 나타냄을 알 수 있다. 또한 작은 pore는 조사중에 합체(coalescence)되어 큰 size의 pore로 발전하고 있으며 연소도가 증가할수록 큰 pore의 합체현상이 촉진되어 핵연료의 과다 팽윤으로 인한 blistering의 발생이 예상되기 때문에 고밀도 핵연료 후보재료의 요건에서 벗어나는 특성을 나타내었다.

### 3.2 주사전자현미경 조직검사

전자현미경을 이용한 조사후 시험은 핵연료 인출후 Hot Cell에서 조직관찰까지 많은 준비과정을 거쳐야하기 때문에 일정상 먼저 파쇄분말 및 원심분말로 제조된 U-10%Mo 분산핵연료를 선택하여 집중적으로 분석하였다.

그림 6~7은 각각 파쇄방법 및 원심분무 방법으로 제조된 U-10%Mo 분산핵연료의 40 % 연소후 관찰한 SEM 조직을 나타낸다. 모두 ductile rupture로 보이는 파단면을 나타내고 있으며 입자 주위에 약 2~3  $\mu m$  정도의 Al 기지 조직과의 반응층을 보이고 있다. 또한 원심분무 핵연료 입자의 반응층 경계부에 pore라고 예측되는 결함이 드물게 존재하고 있음을 알 수 있다. 그러나 핵연료 입자 내부를 자세히 관찰한 결과 그림 8~9에서 알 수 있듯이 핵연료 제조방법에 따른 조사거동이 다르게 나타났다. 파쇄방법으로 제조된 U-10%Mo 분산핵연료에서는 전체적으로  $U_3Si_2$ 의 조사거동과 비슷한 형태로 pore가 균일하게 분포하는 미세구조를 나타내었다. 평균 pore의 크기는 약 0.2~0.3  $\mu m$  정도이고 최대 약 0.5  $\mu m$  이었다. 그러나 특정한 파쇄분말 핵연료에서는 같은 입자 내에서도 pore가 국부적으로 집중하여 분포하는 불균일 영역이 관찰되었다. 이러한 국부적인 pore 분포의 불균일성은 핵연료의 조사시에 swelling이 특정부위에 집중되어 발생되어 핵연료의 성능저

하를 유발하는 요인이 될 수 있다.

이에 반하여 원심분말 핵연료는 파쇄분말 핵연료에 비하여 월등히 우수한 연소성능을 나타내었다. 원심분말 핵연료의 40% 연소후에 나타난 대표적인 미세조직 변화는 다음과 같다.

- 1) 파쇄분말 핵연료에 비해서 핵연료 입자 내에 생성된 pore의 수가 매우 적다.
- 2) 발생한 pore는 핵연료 입자내의 결정립 계면에 주로 분포한다.
- 3) 초기 3~5  $\mu\text{m}$  크기의 cell 구조를 갖는 grain이 조사되면서 grain growth가 발생하여 약 10  $\mu\text{m}$  정도의 크기로 성장하였다.
- 4) Grain growth가 진행되면서 초기 cell 구조의 Mo 편석층이 소멸하여 조성의 균질화가 진행되었다.

Rest 등[7]은 기존의 금속연료의 swelling 해석 model을 이용하여 조사중 발생한 pore가 주로 grain boundary에 분포하기 때문에 원심분말 핵연료와 같이 grain size가 작을수록 irradiation swelling이 클 것이라고 예측하였으나 원심분말 핵연료의 조사거동은 그들의 이론으로는 해석이 불가능한 매우 안정적인 특성을 나타내었다.

이러한 조사거동의 차이에 대한 근본적인 원인은 아직 밝혀지지 않고 있다. 우선 일부의 파쇄분말 핵연료가 국부적으로 집중된 pore 분포를 나타낸 원인으로 기존의 용해방법으로 제조되는 과정에서 발생한 국부적인 조성의 불균일성으로부터 pore의 형성분포가 다르게 나타난 것이라 생각될 수 있다. 이와 함께 파쇄 핵연료 분말로의 기계가공중에 dislocation 또는 twin과 같은 많은 defect가 입자내부에 잔류하면서 sub-grain을 이루거나 입자의 특정 부위에 deformation zone을 형성하고 이러한 defect들이 조사중 pore를 형성하는 핵분열 생성 gas의 주된 nucleation site로 작용하였다고 추측된다. 반면에 원심분말 핵연료는 용탕에서 직접 급냉응고하여 제조된 특성을 지니고 있기 때문에 분말입자 내에 합금조성이 비교적 균일한 반면 vacancy와 같은 point defect가 주된 결함의 형태로서 과포화 상태로 존재한다고 추측된다. 따라서 균일하게 분포하는 많은 수의 vacancy는 조사중 발생하는 핵분열 생성 gas의 accommodation site로 작용하게 되어 파쇄분말 핵연료에 비해 irradiation pore가 발생하지 않는 잠복기간이 40 %의 연소도 근처까지 증가하였다고 생각된다.

앞서 언급하였듯이 U-Mo 핵연료의 조사특성은 비록 40 % 연소도의 제한된 조사량에서 나온 결과이지만 원심분말 핵연료가 파쇄분말 핵연료에 비해 월등히 우수한 연소성능을 나타내었다. 향후 80 % 까지의 고연소도 조사후 시험이 내년 초에 계획되었고 저연소 시험결과를 바탕으로 원심분말 핵연료에 대한 2 단계 실크기 핵연료 조사시험을 추진할 예정이어서 보다 구체적인 성능비교가 있을 예정이지만 현재로서도 경제성이 우수한 원심분말이 우수한 노내조사성능을 나타낼 것이라고 예상되어 상용화 가능성이 매우 높은 것으로 인식되고 있다.

#### 4. 결론

우라늄 고밀도 후보합금 핵연료에 대하여 ATR에서의 micro-plate 조사시험을 한 결과 U-10Mo, U-6Mo-0.6Ru 및 U-6Mo-1Pt 합금들은 40% 연소도 까지 비교적 우수한 조사 안정성을 보였다. 그러나 U-Nb-Zr 합금은 Al 기지와 반응이 상당히 진행되었고 많은 pore가 생성되었다. 이와 함께 U-10%Mo 합금 분산 핵연료에 대한 SEM 분석결과 핵연료분말 제조방법 차이에 따라 다른 조사거동을 보였다. 파쇄분말로 제조된 핵연료는  $U_3Si_2$ 와 비슷한 조사거동을 보였으며 전체적으로 많은 수의 작은 pore가 핵연료 입자내에 고르게 분포하였다. 그러나 원심분말 핵연료는 파쇄분말 핵연료에 비해서 pore의 수가 현저히 적으면서 입계에 주로 분포하였다. 전반적으로 원심분말 핵연료의 조사능이 파쇄분말 핵연료에 비해서 우수한 것으로 평가되었는데 합금분말 제조방법에 따른 조사거동의 차이에 대한 정확한 원인은 아직 알 수 없으나 분말제조과정에서 수반되는 핵연료 입자내의 결함종류 및 조성의 불균일이 주된 요인이라고 추측된다.

#### 5. 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 사업의 일환으로 수행되었음.

#### 6. 참고문헌

1. G.L. 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 Inter. Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Seoul, Korea, 1996.
4. S.L. Hayes, 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.L. Hofman, and K.W. Paik, J. Nucl. Mater., 245(1997)179.
6. K.H. Kim, D.B. Lee, J.M. Park, H.D. Park and C.K. Kim, Pro. of 21th Inter. Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Jackson Hole, WY, Oct. 5-10, 1997.
7. J. Rest, ANL-95/36, Argonne National Laboratory, Aug., 1995.

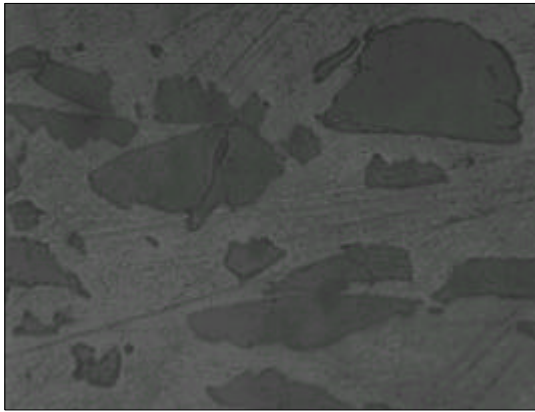


그림 1. 파쇄분말 U-10Mo 분산핵연료 (40%BU) 광학현미경 조직(X250)

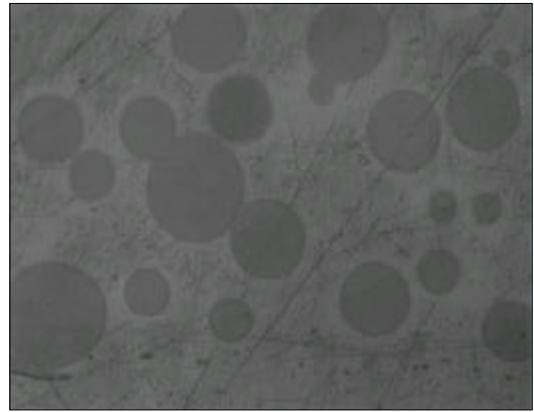


그림 2. 원심분말 U-10Mo 분산핵연료 (40%BU) 광학현미경 조직(X250)

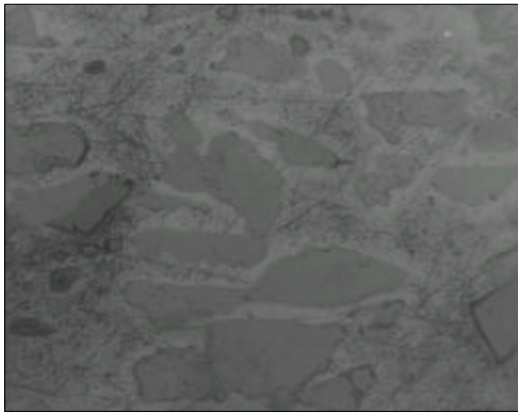


그림 3. U-6Mo-0.6Ru 분산핵연료 (40%BU) 광학현미경 조직(X250)

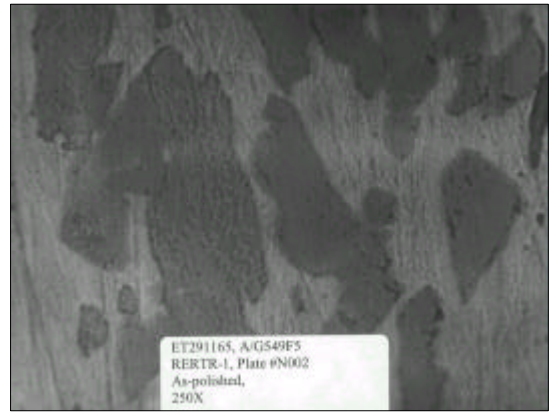


그림 4. U-6Mo-1Pt 분산핵연료 (40%BU) 광학현미경 조직(X250)

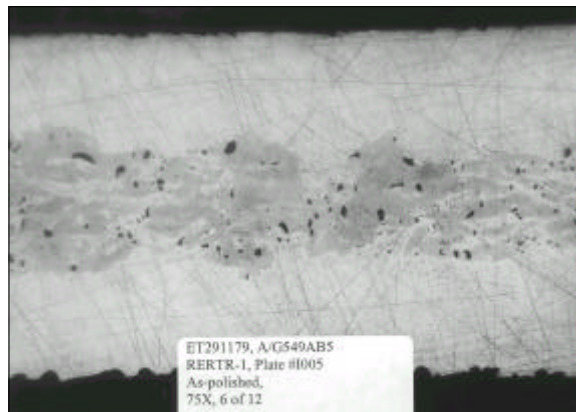


그림 5. U-5Nb-3Zr 분산핵연료 (40%BU) 광학현미경 조직(X75)

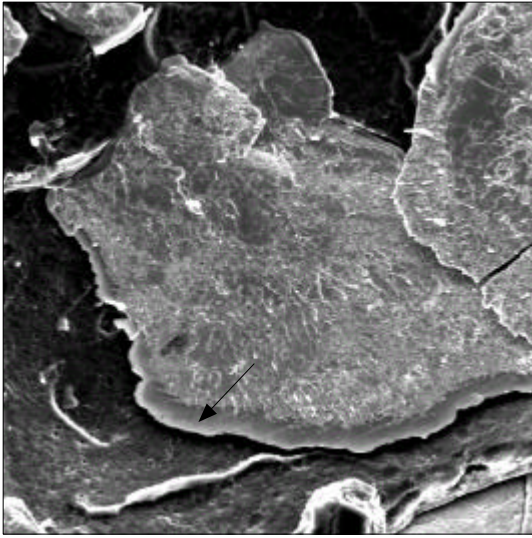


그림 6. 파쇄분말 U-10Mo 합금  
40% BU 후의 SEM 조직

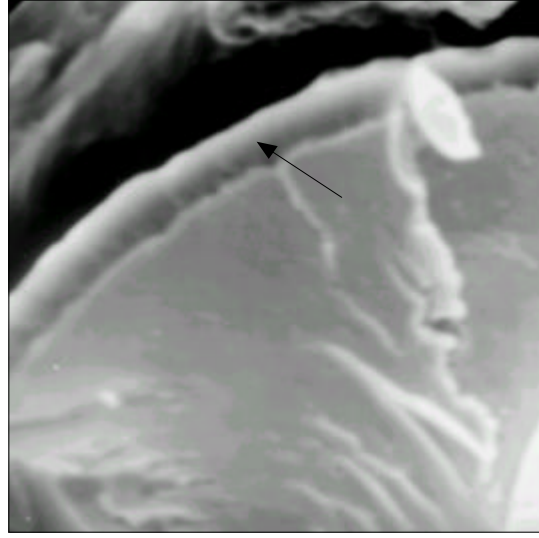


그림 7. 원심분말 U-10Mo 합금  
40% BU 후의 SEM 조직

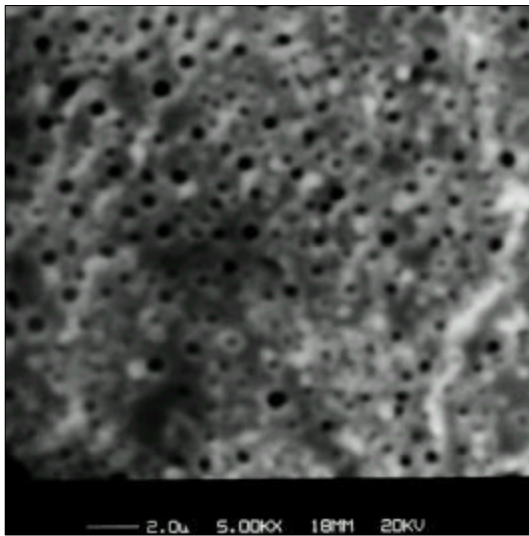


그림 8. 파쇄분말 U-10Mo 합금의  
40% BU 후의 입자내부 SEM 조직

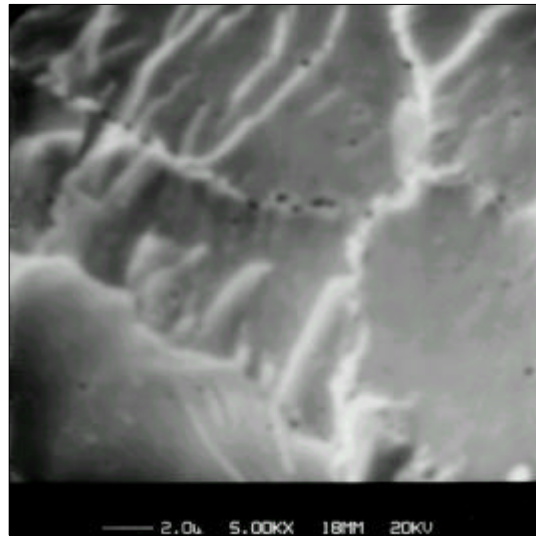


그림 9. 원심분말 U-10Mo 합금의  
40% BU 후의 입자내부 SEM 조직