

(U-10Zr)-Zr 분산형연료와 U-Zr 합금형연료의 열적특성

Thermal Properties of Dispersion Type (U-10Zr)-Zr Fuels and Alloy Type U-Zr Fuel

이봉상, 김용희, 박원석, 송태영
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

HYPER 블랭킷 금속연료의 최적 특성을 도출하기 위하여 모의핵연료를 제조하여 분산형 금속연료 및 합금형 금속연료 특성을 비교평가 하였다. 분산형 및 합금형 연료의 일반적 성능특성 중 기본적인 자료가 되는 열전도도, 열팽창계수를 측정하였으며, 운전온도 구간에서 열처리를 수행하여 연료의 열적 안정성을 조사하였다.

HYPER용 핵연료는 TRU 연료로서 자체의 재료특성은 거의 없는 실정이므로 모의핵연료인 U-Zr 합금형 연료 및 (U-Zr)-Zr 분산형 연료를 제조하여, 핵연료 성능분석을 위해 열전도도, 열팽창 등의 재료특성 데이터 자료를 측정하였다. 또한 연료의 운전온도 범위 내에서 열적안정성을 파악하기 위해 시간별로 열처리하여 조직의 열안정성을 조사하고자 한다.

Abstract

In order to derive the optimum conditions of HYPER blanket fuels, the material properties of dispersion fuels and alloy fuels were investigated. The basic data such as thermal conductivity and thermal expansion were analyzed, because they are essential in the analysis of the core and fuel system. Thermal stability was investigated through heat treatment.

Few data are available for the HYPER system fuel. Dispersion type (U-10Zr)-Zr fuels and alloy type U-Zr fuels, surrogate materials for HYPER fuels, were fabricated, and thermal conductivity and thermal expansion were measured. Additionally, thermal stability test was performed to find out the origin of swelling through heat treatment at the operation temperature.

1. 서론

HYPER용 블랭킷 연료에 있어 합금형 및 분산형 연료 성능분석을 위하여 MACSIS-H 코드와 DIMAC 코드가 개발[1,2]되고 있다. 그러나 HYPER용 핵연료는 TRU연료로서 핵연료 성능분석을 위해 기본적인 자료가 되는 열전도도, 열팽창 등의 TRU 물질 자체의 재료특성은 거의 없는 실정이므로 모의핵연료의 열전도도로부터 유추한 후 MACSIS-H 코드 및 DIMAC 코드 개발에 이용하였다. 수많은 U-Pu-Zr합금 또는 U-Zr합금 실험자료 데이터가 있지만, HYPER용 블랭킷 연료로 사용 가능한 30wt% 이상의 Zr함량을 함유한 금속연료 데이터자료는 없다. 따라서 모의 연료인 U-Zr 합금형 연료 및 (U-Zr)-Zr 분산형 연료를 제조하였고, 핵연료 성능분석을 위해 열전도도, 열팽창 등의 재료특성 데이터 자료를 측정하였다.

U-Zr 금속연료는 용점이 비교적 낮아서 원자로의 운전온도에서 고용점의 피복관에 비하여 변형되기 쉽다. 비상시 핵연료가 용융되어도 피복관이 강도를 유지하고 그 사이에 Pb는 연료에서 피복관으로 충분히 열전달을 하기 때문에 안전문제에 유리하다. 그러나 운전이 계속되면 금속연료가 팽창하여 피복관과 접촉하게 되고 계면에서 반응이 일어나게 되면 피복관의 파손이 진행된다. 이러한 금속연료의 팽창은 조사 초기에 급격하게 일어나 피복관과 접촉하게 된다. 핵연료와 피복관과의 접촉은 열전달에는 문제가 없으나 상호간의 계면반응이 일어나서 종국에는 피복관의 파손을 초래하게 되는 것이 문제이다. 핵연의 팽창과 관련이 있는 연료 미세조직의 열적안정성을 실험하기 위해 로 운전온도 범위 내에서 시간별로 열처리하여 조직의 열안정성을 조사하고자 한다.

2. 실험방법

U-10Zr 분말 및 U 분말은 원심분무 장치로 제조되었으며, Zr분말은 hydriding-dehydriding 방법으로 제조된 분말을 구입하여 사용하였다.

분산형 연료는 U-10wt%Zr분말과 Zr분말은 목표조성 (U-10wt%Zr)-xZr(x=50,55,60 wt%)의 비율로 혼합, 압분한 후 860°C에서 1시간 동안 가열 한 후 간접압출기를 이용해 압출비 13:1로 핵연료봉 제조하였다. 한편 합금형 연료는 U 분말과 Zr 분말을 혼합소결한 후 압출온도 760°C, 압출비 13:1로 봉상의 압출재를 얻었다.

열전도도를 측정하기 위해 열확산도 시편으로 직경 6.35mm, 두께 2mm인 디스크를 채취하여 Laser flash method로 측정하였으며, 열용량 시편은 직경 4.5mm, 두께 2mm인 시편을 준비해 DSC장비를 이용해 열용량을 측정하였다. 또한 열전도도는 조직의 기공도에 영향을 받기 때문에 밀도를 아울러 측정하였다.

또한 연료심을 직경 5mm, 길이 20mm의 원통형으로 가공한 후 열팽창계를 사용하여

1100°C까지 열팽창계수를 측정하였다.

로 운전 중 연료봉 조직의 열적 안정성을 조사하기 위하여 연료봉을 일정길이로 절단하여 석영관에 넣어 진공 봉입한 다음 box furnace에서 운전온도인 630°C 및 700°C에서 1500시간 열처리를 수행하였다. 열처리 후 부피변화율 및 밀도를 측정하였으며 SEM으로 미세조직을 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 1은 원심분무장치로 제조된 구형의 U분말 및 hydride-dehydride 방법으로 제조된 불규칙한 형상의 Zr 분말을 나타내고 있으며 각각의 평균입도는 55, 60 μ m이다.

그림 2는 (U-10wt%Zr)-xZr(x=50,55,60wt%) 핵연료봉의 미세조직 사진을 나타낸다. Zr 기지 분말압출재의 경우 Zr 기지분말이 미세할수록 압출 제조에 유리하나 현재 쉽게 구입할 수 있는 Zr 분말은 그 평균입도가 약 60 μ m이다. 따라서 Zr분말과 원심분리법으로 제작된 평균입도 60 μ m의 U-10wt%Zr 분말을 혼합 압분 후 압출제조시 제조조건은 압출 온도 860°C, 압출압력 50kg/cm², 압출비 13:1로 봉을 제조하였다. 분산형 연료봉은 검은 부위의 α -Zr 기지 내에 흰 부위를 나타내고 있는 U-10wt%Zr 연료 입자가 압출 전 구형의 U-10wt%Zr 분말형상이 압출공정 수행으로 인한 소성유동에 의해 더 단단한 Zr 기지 분말입자에 찢겨져 분산되어 있음을 알 수 있다. 또한 Zr 함량이 증가할수록 검은 부위의 α -Zr 분율이 증가함을 알 수 있다.

그림 3는 열간압출한 합금형 연료심의 SEM 사진이다. 합금형 연료심의 압출온도는 760°C, 압출압력 80kg/cm², 압출비 13:1의 운전조건에서 압출을 수행하였다. 합금형연료는 소결 후에는 조직 내에 약간의 기공이 있었으나 압출 후 대부분 소멸되었다. 단면방향이 나 길이방향 모두 α -Zr상이 균일하게 분포되어 있으며, 연료봉의 길이방향의 경우 압출 방향에 따라 α -Zr상이 나란하게 배열되어 있다.

그림 4는 분산형 및 합금형 연료심의 열전도도를 나타내었다. 온도에 따른 열전도도는 분산형과 합금형연료가 유사한 추세를 나타낸다. 분산형 연료의 경우 600°C이하에서는 열전도도 값이 55Zr>60Zr,50Zr크기인 불규칙한 경향을 나타낸 반면 600°C이상에서는 열전도도 값이 50Zr>55Zr>60Zr 크기로 U함량이 많을수록 열전도도 값이 높게 나타난다. 1000°C이상에서는 열전도도 값이 다시 변할 것으로 예상된다. 즉 600°C이하에서는 δ U, α Zr상, 600°C이상에서는 ν U, β Zr, α Zr상, 1000°C이상에서는 ν U, β Zr이 존재하여 물질의 특성이 변하기 때문일 것으로 예상된다. 분산형 연료와는 달리 합금형 연료의 경우 조성변화에 따른 열전도도 차이가 거의 없어 전체적으로 균질한 δ -UZr₂상이 형성된 것을 알 수 있고, 조성 차이가 크지 않아 각 조성 간에 뚜렷한 차이는 없다.

그림 5는 분산형 및 합금형 연료심의 열팽창을 나타내었다. 온도에 따른 열팽창도 분산형연료와 합금형연료의 열팽창값이 유사한 추세를 보이며, 기지의 건전성도 유지되는 것

으로 분석된다. 분산형연료의 경우 δ -UZr₂의 상변화가 일어나는 617°C부근에서 급격한 열팽창계수가 관찰됨으로 미루어 δ -UZr₂상이 일부 형성됨을 알 수 있다. Zr함량이 커짐에 따라 617°C 부근에서의 급격한 열팽창계수 변화가 둔화되어 열전달계수 측정결과에서 나타난 바와 같이 α -Zr이 열팽창계수 변화에 큰 영향을 미친 것으로 판단된다. 합금형 연료의 경우 617°C 부근에서 전 조성에 걸쳐 급격한 열팽창계수를 보여 δ -UZr₂상으로부터 γ U, β Zr으로 변태됨을 확인할 수 있다. γ U, β Zr으로 변태함으로 인하여 불연속적인 열팽창계수의 변화를 보이며 급격히 증가하는 양상을 보인다. 분산형과 합금형연료의 열팽창계수를 비교할 경우, 분산형의 열팽창계수가 온도의 증가에 따라 증가함을 관찰할 수 있는데, 이는 조직관찰 결과 U-10Zr과 Zr의 계면 접촉상태가 불량하며, 부위에 따라 미량이지만 기공이 관찰되어 열팽창계수의 증가를 일으킨 것으로 판단된다.

그림 6,7,8,9는 핵연료심을 일정길이로 절단하여 석영관에 넣어 진공봉입한 다음 box furnace에서 핵연료 운전온도인 630, 700°C에서 300시간, 600시간, 900시간, 1200시간, 1500시간 열처리 후 부피변화율 및 밀도변화를 나타내었다.

시간변화에 따른 연료심의 부피변화율은 점점 증가하고, 합금형 연료심 보다 분산형 연료심의 부피증가율이 더 크다. 또한 시간 변화에 따른 연료심의 밀도변화율 역시 부피증가에 따라 밀도의 감소를 초래하였고, 감소 폭은 분산형의 경우 더 크다. 700°C에서 열처리 후 결과를 외삽하여 약 1년 후 부피변화를 예측한 결과 합금형은 0.4~0.5% 그리고 분산형은 약 0.6~0.7%의 부피변화가 나타났으며, 이에 대한 추가적인 측정과 이론적인 분석이 요구된다.

그림 10,11은 분산형 연료심을 630, 700°C에서 열처리한 시편의 미세조직을 나타내고 있다. 열처리 전 검은 부위의 α -Zr 기지 내에 흰 부위의 α -U와 δ -UZr₂상으로 존재하고 있는 연료심은 열처리가 진행되는 동안 Zr 기지와 U-10%Zr 연료심의 상호반응에 의해 시간이 경과 됨에 따라 α -Zr 기지는 분해되어 갈라지며 δ -UZr₂상을 형성한다. 또한 열처리 온도가 높고 시간이 경과함에 따라 기공이 생성됨을 관찰할 수 있다.

그림 12,13은 합금형 연료심을 630, 700°C에서 열처리한 시편의 미세조직을 나타내고 있다. 합금형 연료심을 열처리한 경우 열처리가 진행되면 2상 구역이 아니고 1상 구역이므로 α -Zr 상과 δ -UZr₂상이 분해되어 고용체를 이루며 1상으로 되어 압출한 조직특성이 없어지며, 열처리 후 냉각되면서 고용체인 1상이 상변화가 일어나 2상인 α -Zr 상과 δ -UZr₂상이 생성된다[3]. 연료심은 열처리 후 냉각되면서 상변화에 의해 생성된 α -Zr상은 열처리 온도가 높고 시간이 증가할수록 더 구형화가 나타남을 발견할 수 있다.

4. 결론

- (1) 분산형 연료는 검은 α -Zr 기지 내에 흰 U-10wt%Zr 연료 입자가 압출공정 수행으로 인한 소성유동에 의해 더 단단한 Zr 기지 분말입자로 구형의 분말의 구형입자가

찢겨져 분산되어 있으며, 합금형 연료는 소결공정에 의한 U분말과 Zr분말의 상호 확산 작용으로 흰 부위의 δ -UZr₂ 기지에 α -Zr상이 분포한 형태를 이룬다.

- (2) 분산형 연료는 600°C이하에서는 열전도도 값이 $55Zr > 60Zr, 50Zr$ 크기인 불규칙한 경향을 나타낸 반면 600°C이상에서는 열전도도 값이 $50Zr > 55Zr > 60Zr$ 크기로 U함량이 많을수록 열전도도 값이 높게 나타나고, 합금형 연료는 조성변화에 따른 열전도도 차이가 거의 없어 전체적으로 균질한 δ -UZr₂상이 형성된 것을 알 수 있다.
- (3) 분산형과 합금형연료의 열팽창계수를 비교할 경우, 분산형의 열팽창계수가 온도의 증가에 따라 증가함을 관찰할 수 있는데, 이는 조직관찰 결과 U-10Zr과 Zr의 계면 접촉상태가 불량하며, 부위에 따라 미량이지만 기공이 관찰되어 열팽창계수의 증가를 일으킨 것으로 판단된다.

참고문헌

1. W. Hwang et al., "Preliminary Analysis on the Temperature Profile of Blanket Rod for HYPER" Proceedings of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting, Seoul, Korea, Oct 1999
2. B. Champagne et al., "Size Distribution of Powders by the Rotating Electrode Process", Modern Developments in Powder Metallurgy, Vol. 12, 1980
3. H. Okamoto, J. of Phase Equilibria, 13(1), 1992

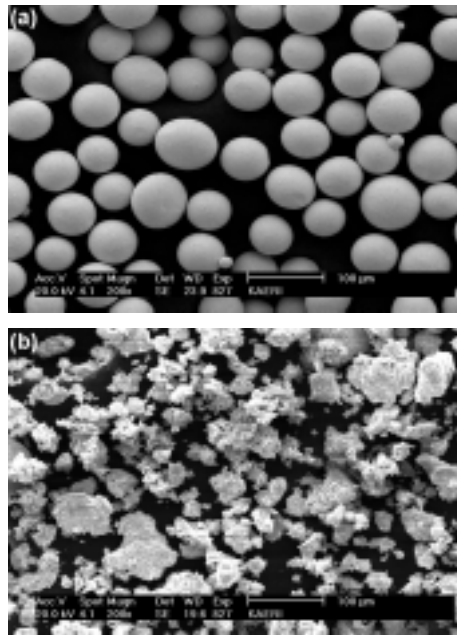


그림 1. U 분말과 Zr 분말 형상

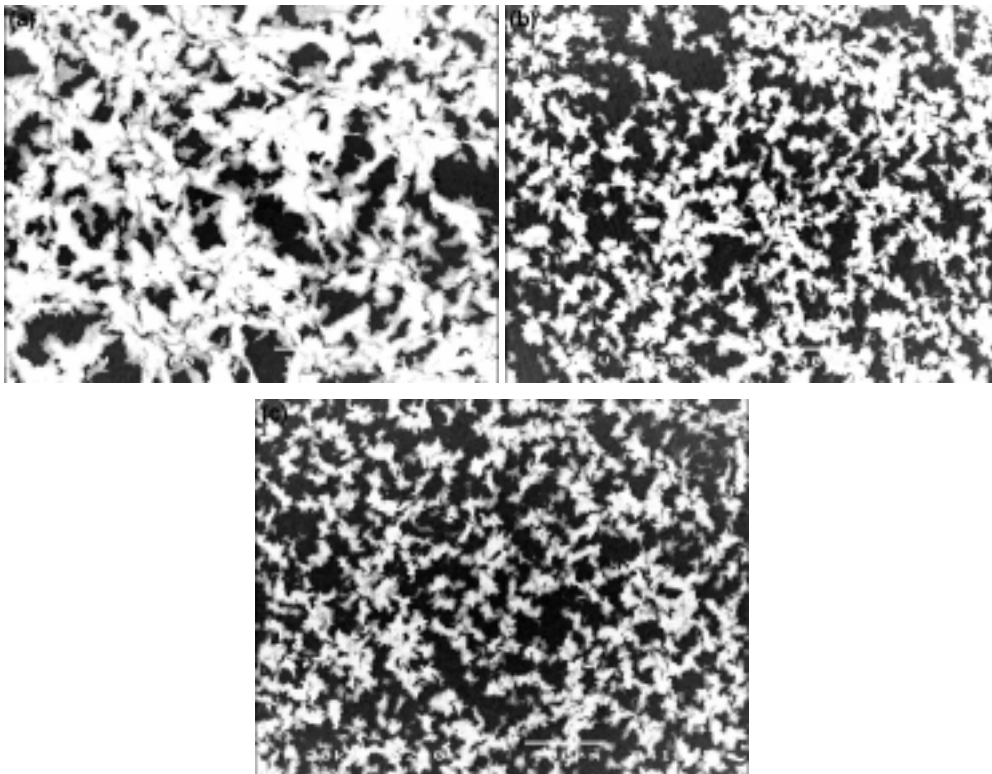
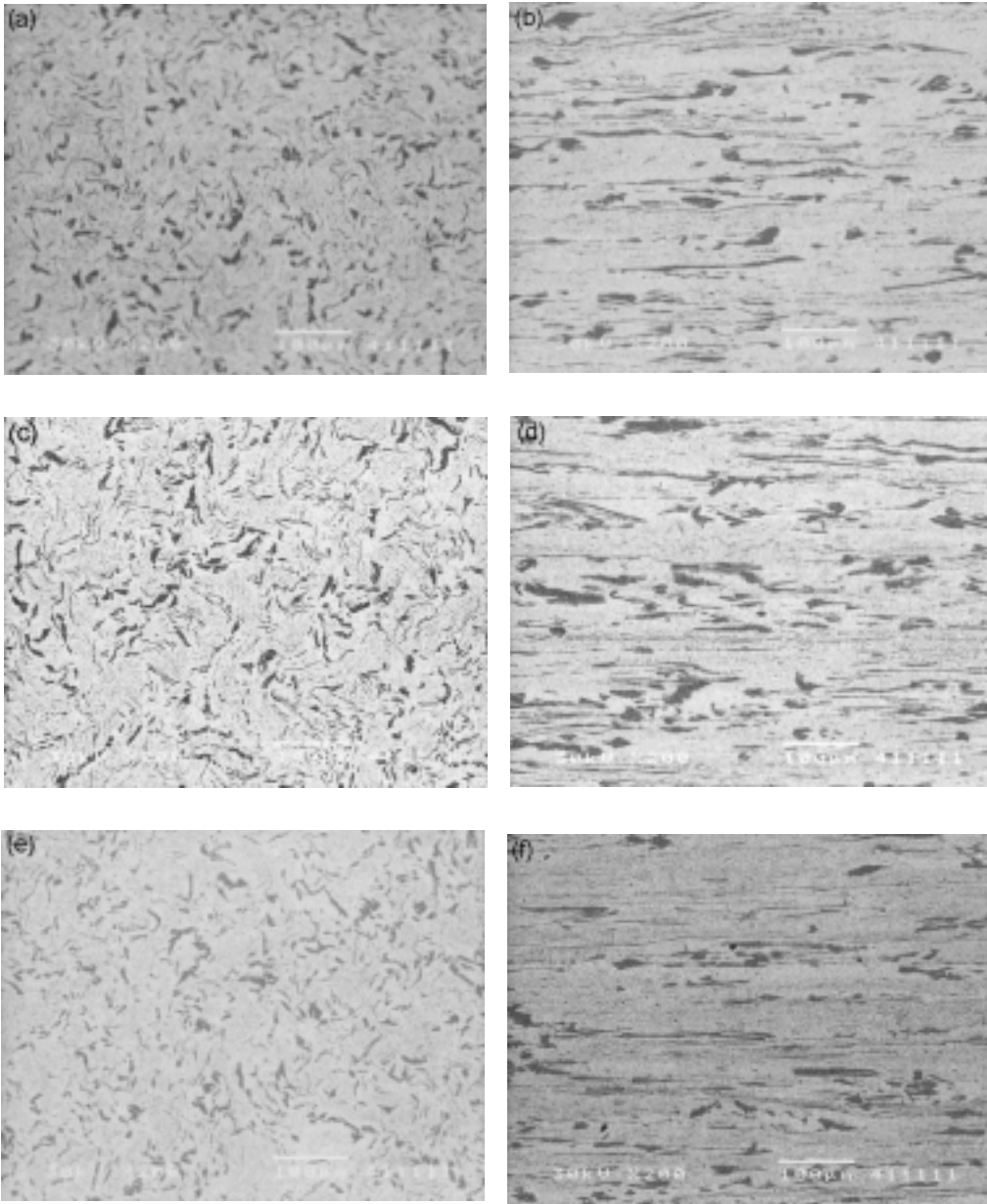


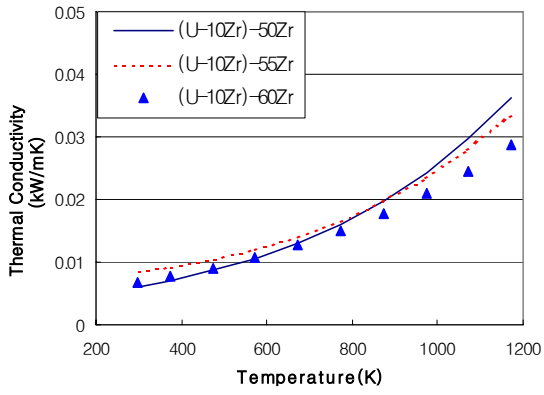
그림 2. (U-10wt%Zr)-xZr(x=50,55,60wt%) 핵연료봉의 미세조직 사진 : (a) (U-10wt% Zr)-50Zr, (b) (U-10wt%Zr)-55Zr, (c) (U-10wt%Zr)-60Zr



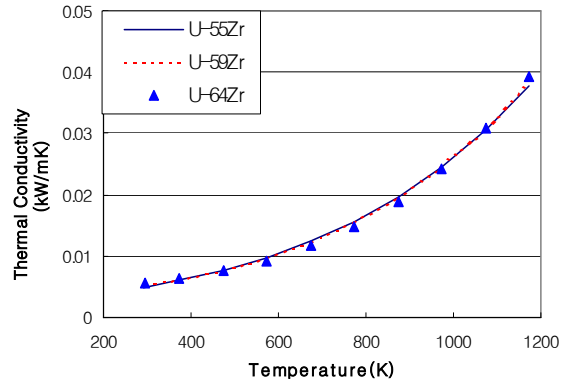
종방향

횡방향

그림 3. 열간압출한 연료심의 미세조직 : (a)(b) U-55Zr, (c)(d) U-59.5Zr, (e)(f) U-64Zr

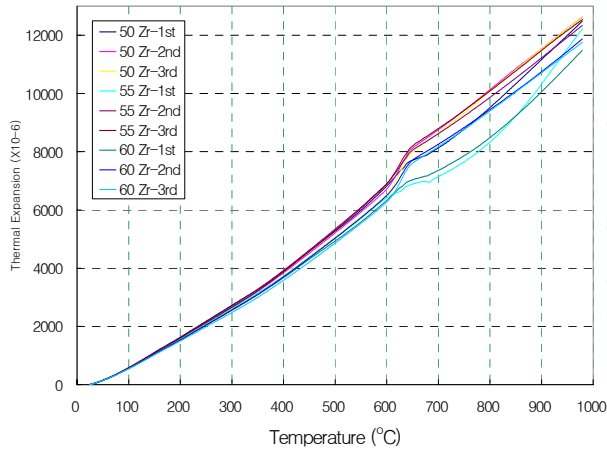


(a) 분산형 연료

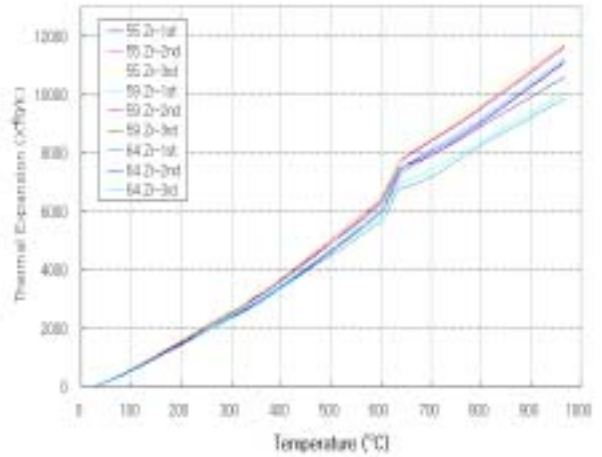


(b) 합금형 연료

그림 4. 분산형 및 합금형 연료심 열전도도

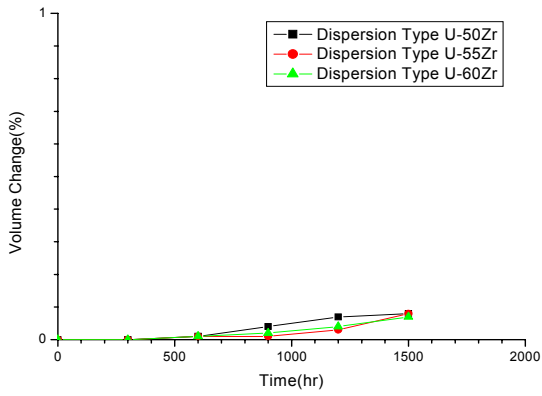


(a) 분산형 연료

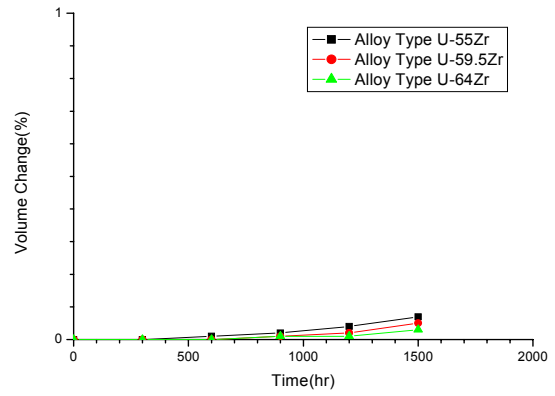


(b) 합금형 연료

그림 5. 분산형 및 합금형 연료심 열팽창율

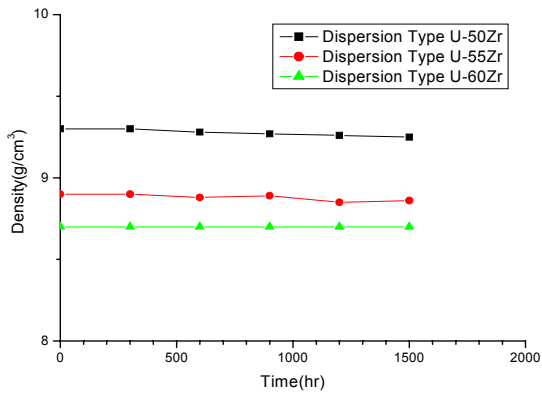


(a) 분산형 연료

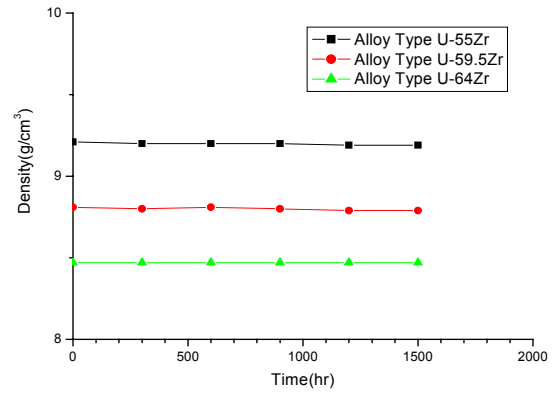


(b) 합금형 연료

그림 6. 분산형 및 합금형 연료심의 630°C에서 부피변화율

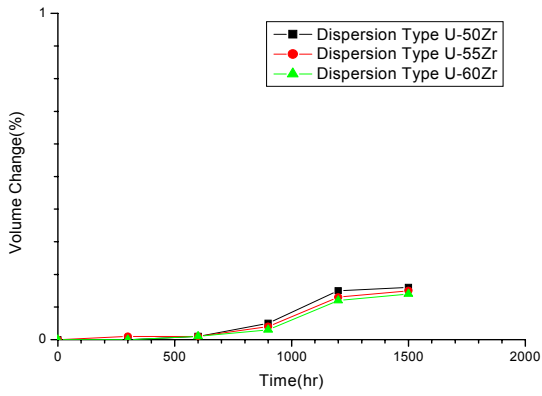


(a) 분산형 연료

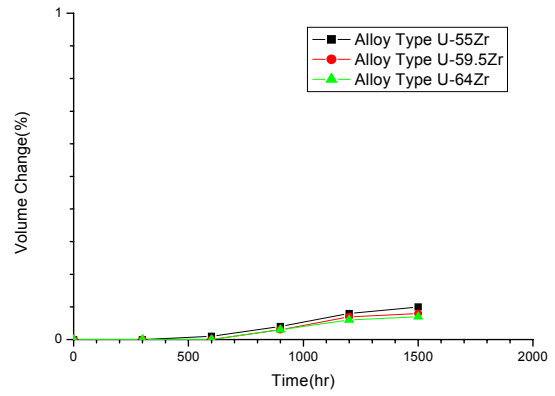


(b) 합금형 연료

그림 7. 분산형 및 합금형 연료심의 630°C에서 밀도변화

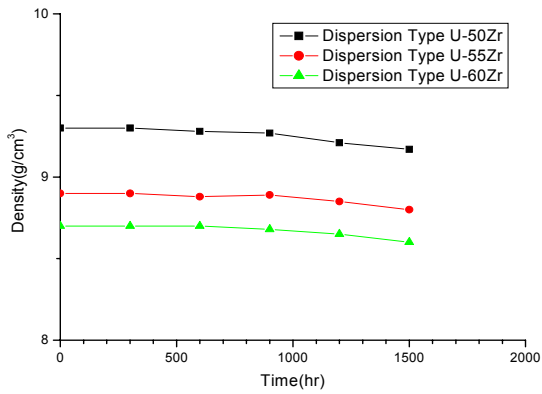


(a) 분산형 연료

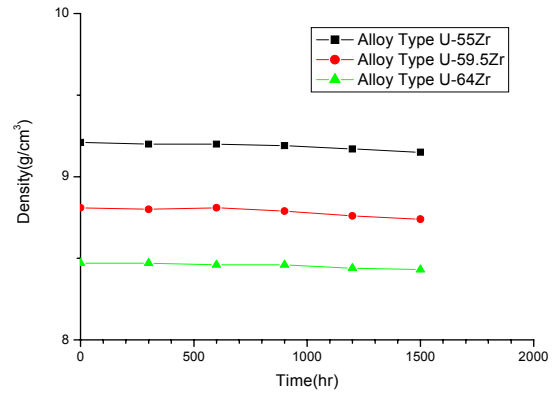


(b) 합금형 연료

그림 8. 분산형 및 합금형 연료심의 700°C에서 부피변화율

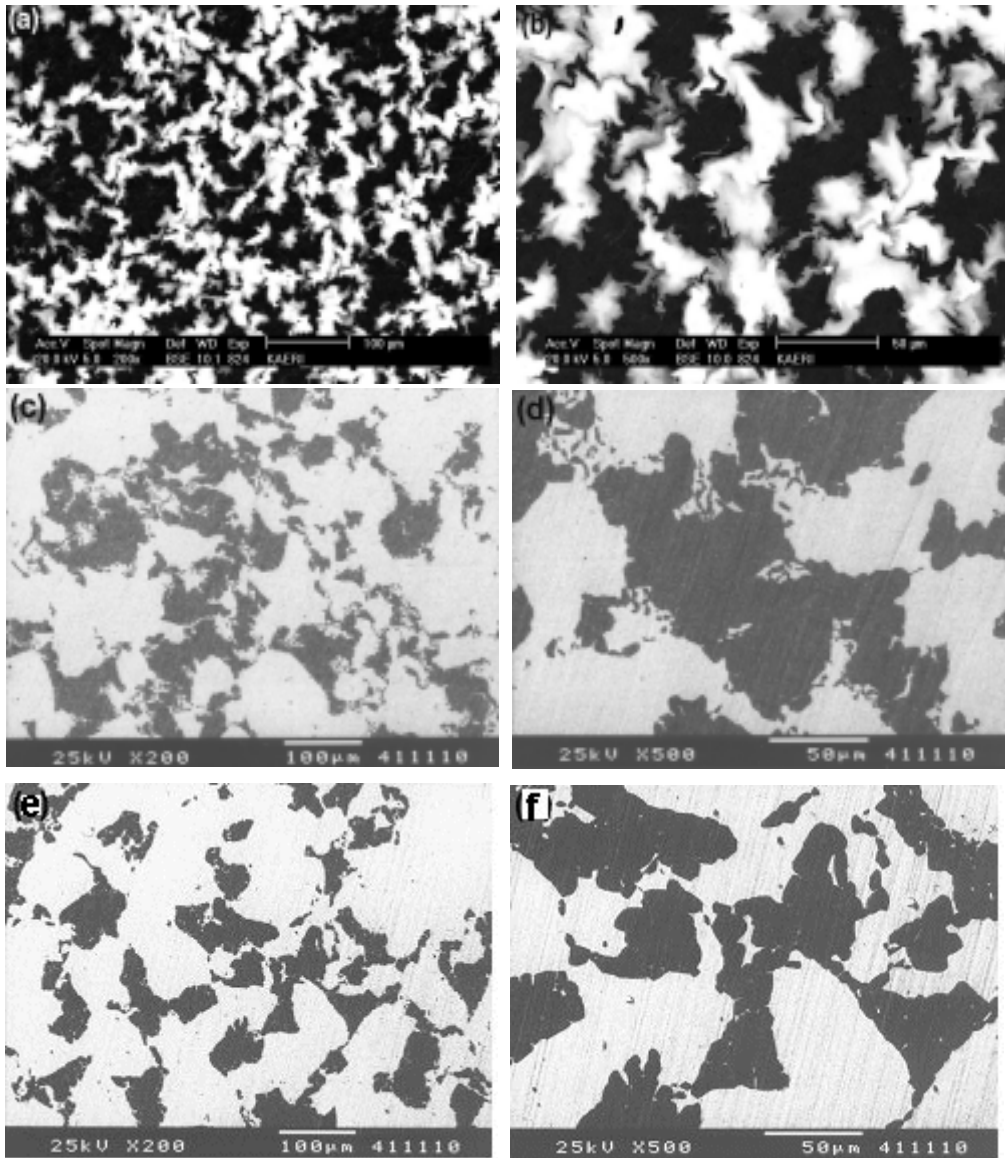


(a) 분산형 연료



(b) 합금형 연료

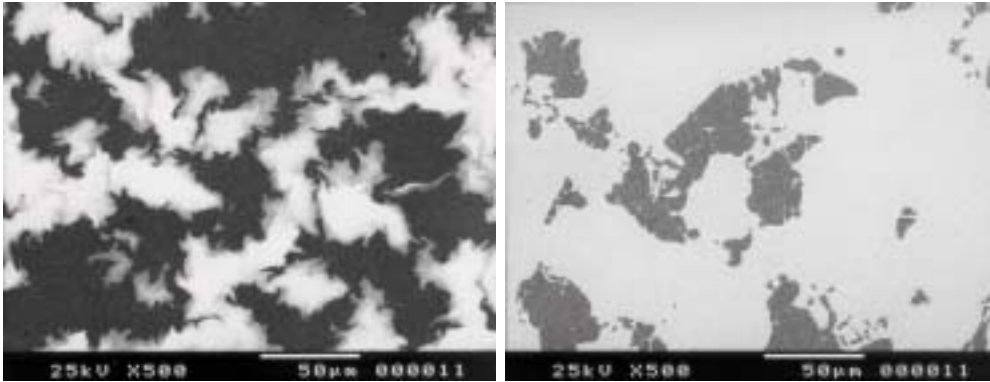
그림 9. 분산형 및 합금형 연료심의 700°C에서 밀도변화



x 200

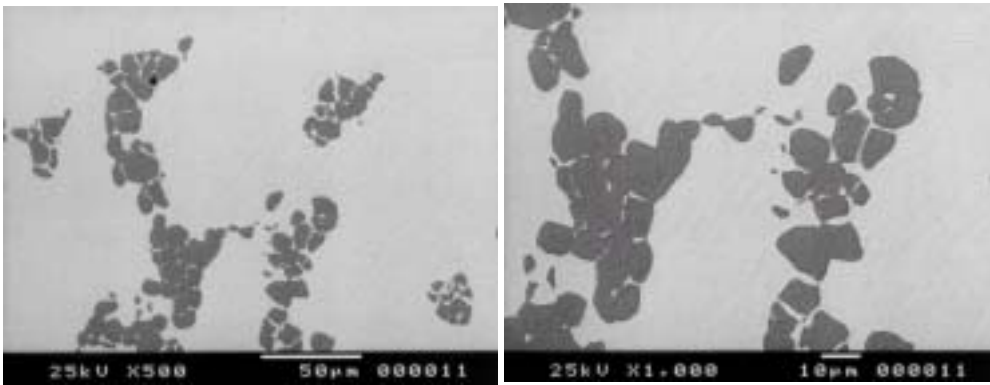
x 500

그림 10. 열처리한 (U-10Zr)-50Zr 분산형 연료의 미세조직
 (a)(b) 열처리전, (c)(d) 630°C, 1500시간, (e)(f) 700°C, 1500시간



(a) 열처리 전

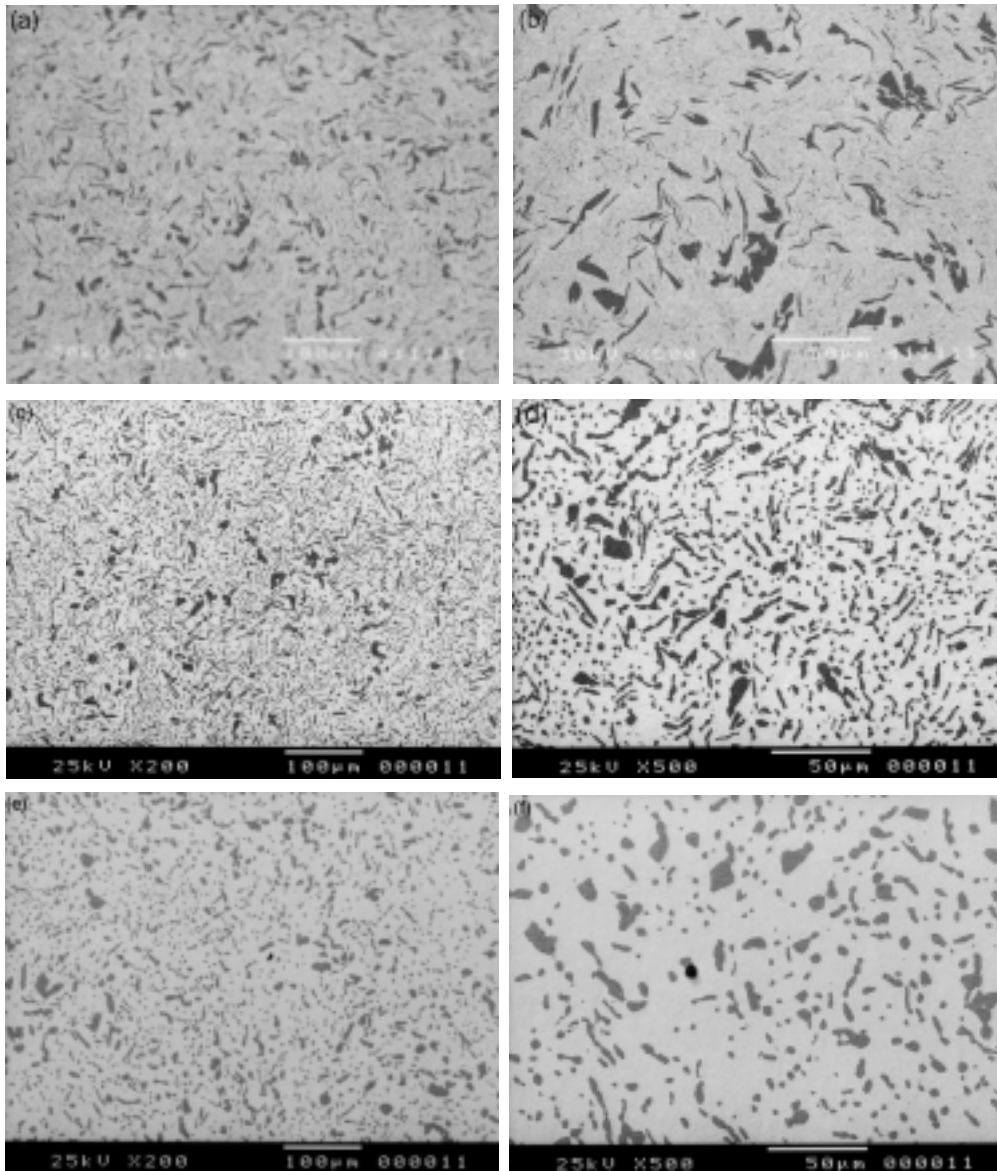
(b) 900시간 열처리



(c) 1500시간

(d) 1500시간 (x1000)

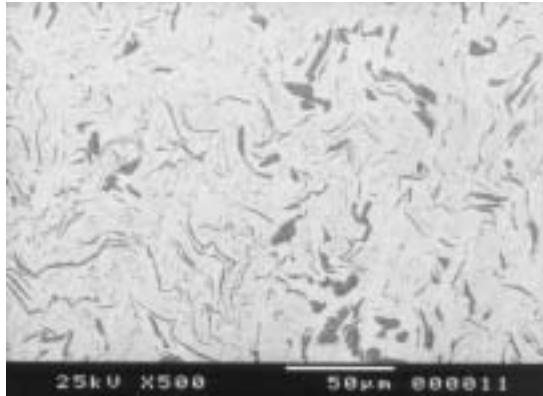
그림 11. 700°C에서 열처리 시간변화에 따른 (U-10Zr)-50Zr 분산형연료의 미세조직



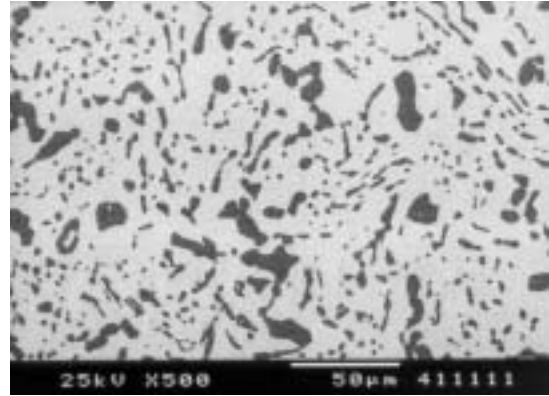
x 200

x 500

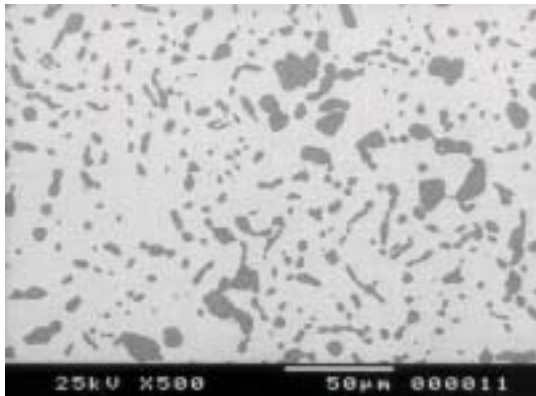
그림 12. 열처리한 U-55Zr 합금형 연료의 미세조직
 (a)(b) 열처리전, (c)(d) 630°C, 1500시간, (e)(f) 700°C, 1500시간



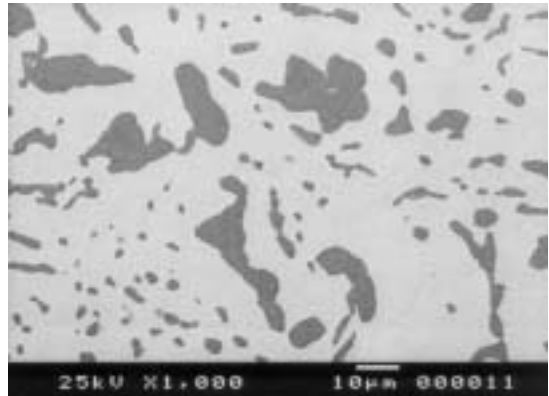
(a) 열처리 전



(b) 900시간 열처리



(c) 1500시간



(d) 1500시간 (x1000)

그림 13. 700°C에서 열처리 시간변화에 따른 U-55Zr 합금형연료의 미세조직