

2004 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

Planar Flow Casting 법에 의한 저농축 우라늄박판의 제조에 관한 연구

An Investigation on the Fabrication of LEU Foils
by Planar Flow Casting Method

김기환, 엄지영, 김응수, 장세정,
오석진, 이돈배, 김창규

대전광역시 유성구 덕진동 150
한국원자력연구소

요 약

한국원자력연구소에서는 Planar Flow Casting(PFC) 법에 의한 우라늄박판 제조 장치를 이용하여, 저농축 우라늄박판을 프랑스 CERCA에 공급하고자 제조하였다. 우라늄박판은 너비 50mm 및 두께 $<122\mu\text{m}$ 로 길이 5m 이상 연속적으로 제조되었다. 우라늄 용탕으로부터 급속응고에 의해 우라늄박판이 직접 제조되기 때문에 박판두께와 두께 균일도를 조절하는 것이 용이하지 않았다. 우라늄의 표면상태를 관찰한 결과, 자유표면쪽은 다소 거칠었으며, 냉각롤쪽의 표면상태는 매끈한 편이었으나, 용탕 유동도가 부족하여 표면결함이 다소 존재하였다. 우라늄의 매우 낮은 열전도도로 말미암아, 결정립 크기는 위치에 따라 다소 차이가 났으나 $30\mu\text{m}$ 이하로 상당히 미세하였다. 우라늄박판이 조사 동안에 이방적 성장거동에 의한 과도한 팽윤이 발생하지 않도록 억제해줄 수 있을 것으로 기대된다.

Abstract

LEU foils have been fabricated to supply to CERCA in France, using Planar Flow Casting(PFC) apparatus in KAERI. Uranium foils have been fabricated continuously with the width of about 50mm and the thickness below $122\mu\text{m}$. As uranium foils were obtained directly from the melt, it was not so easy to control the thickness and the uniformity of the foils. The free surface of the LEU foils was somewhat rough, and the cooling roll side surface of the LEU

foils was smooth with some surface defects due to the lack of fluid flowability. The LEU foils showed a difference in grain size according the location of the foils, but fine grains below about 30 microns in size. It is expected to be able to prevent the uranium foils from excessive swelling by the an-isotropic growth behavior during irradiation.

1. 서 론

한국원자력연구소에서 우라늄을 가늘고 긴 slot이 있는 도가니에 진공분위기로 용해한 다음, 구멍 끝 부분을 회전하는 Cu 냉각롤 표면에 매우 근접시켜 액체금속을 높은 압력으로 분사하면서 응고시켜 얇으면서 넓은 우라늄 금속 박판을제조하는 기술을 창안하였다. 이 신기술은 우라늄 액체금속에서 박판이 바로 제조되기 때문에 생산성이 좋고, 제조 경비가 저렴할 뿐만 아니라, 급냉응고 효과로 인해 재료 특성이 매우 우수하다. 이는 종래의 박판 제조기술이 우라늄을 주조한 판이나 주괴를 절단한 판을 600℃ 이상으로 불활성인 분위기에서 가열한 상태에서 압연한 다음 내부 응력을 제거하는 진공 열처리를 반복적으로 여러 차례 수행하여 최종적으로 약 0.1mm의 얇은 우라늄 박판을 얻은 다음에 열처리 온도에서 급냉시키는 기술로써 이는 제조공정이 복잡하고 생산성이 낮았다 [1-2].

한국원자력연구소에서는 Planar Flow Casting(PFC) 법에 의한 우라늄박판 제조 기술을 2001년부터 개발에 착수, 우라늄박판을 시제조하였고, 미국, 일본, 프랑스, 인도네시아, 중국, 캐나다, 네델란드, 벨기에, 한국에 특허 출원하였으며, 현재 일본과 한국에서 특허를 취득하였다. 한국원자력연구소 「연구로개량핵연료개발과제」에서는 두께가 0.1 mm 까지 얇은 우라늄 금속 박판을 액체금속에서 바로 제조하는 기술을 개발하였다 [3]. 이 기술을 통해 의료 진단용 동위원소인 Tc-99m을 생산하기 위한 저농축 우라늄 Mo-99 조사표적에 사용되는 우라늄 박판 상용화 제조의 길을 열게 되었다. 본 연구에서는 Planar Flow Casting(PFC) 법에 의한 우라늄박판 제조장치를 이용하여, 저농축 우라늄박판을 프랑스 CERCA에 공급하고자 시제조하고, 그 특성을 조사하였다.

2. 실험방법

우라늄박판 제조장치는 그림 1에서 보여지는 바와 같이 Planar Flow Casting(PFC) 법으로 우라늄박판을 제조하였다. 우라늄 금속원료를 석영관 도가니에 장입하여 불활성분위기에서 유도가열에 의해 우라늄을 용해하였다. 우라늄 용해된 다음, 노즐팁을 Cu 냉각롤에 1mm 이하로 매우 근접시킨 상태에서 용탕을 고속으로 회전하는 냉각롤에 분사시켜서 급속응고 시키면서 저농축 우라늄금속 박판을 제조하였다. 프랑스 CERCA에서 요구한 우라늄박판 사양인 너비 50mm, 길이 90mm, 두께 $<122\mu\text{m}$ 및 1개당 U-235 mass 1.76~2.07 g을 충족하기 위해, 공정변수

인 노즐 slot 두께 및 높이, 출탕온도, 냉각물의 회전속도, 분사압력, 노즐팁과 냉각물과의 간극거리 등을 적절히 조정하여 우라늄박판을 건전하게 제조하고자 하였다.

냉각물법으로 제조된 우라늄박판은 먼저 육안검사를 수행한 다음, 너비와 두께 등 치수를 검사하였다. 제조과정에서 혼입된 불순물 원소를 습식 화학분석에 의해 조사하였다. 우라늄 박판의 표면상태는 자유표면과 냉각물 접촉면에 대해 전자현미경을 사용하여 검사하였으며, 박판단면에 대한 미세조직은 emery paper로 grinding 하고 polishing cloth로 polishing 한 다음, chemical etching 하여 주사식 전자현미경을 사용하여 분석하였다.

3. 실험결과 및 검토

제조된 저농축 우라늄 박판은 그림 1에서 보여지는 바와 같이 길이 5m 이상 연속적으로 제조되었다. 프랑스에 공급된 우라늄박판의 평균두께 및 평균너비는 각각 $109\mu\text{m}$ 및 53.5mm 이었으며, 최대두께 및 표준편차는 각각 $122\mu\text{m}$ 및 $7.3\mu\text{m}$ 이었다. 이는 냉각물 주조방법에 의해 우라늄 박판의 너비는 제조공정변수인 분사온도 및 압력, nozzle slot 길이 그리고 nozzle tip 예열온도를 조정하여 부합되도록 하였고, 우라늄박판의 두께는 제조공정변수인 냉각물의 회전속도에 의해 민감하게 영향을 받았으며, 두께 균일도는 분사온도 및 압력을 조정하여 부합되도록 한 결과 이었다. 그러나, 우라늄 용탕, 즉 액체상태에서 급속응고에 의해 우라늄박판이 직접 제조되기 때문에 박판두께와 두께 균일도를 조절하는 것이 그렇게 용이하지만은 않았다. 이를 개선하기 위해서는 석영관 노즐에 stopper를 설치하여 일정한 분사온도에서 박판을 제조하는 것이 필요하다고 생각된다. 우라늄은 열전도도가 $0.071\text{cal} \cdot \text{cm}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot ^\circ\text{C}$ 로서 낮은 열전도도를 가지기 때문에 회수용기 길이가 6m 이상임에도 불구하고, 우라늄박판이 회수용기 끝에 도달하는 순간에 자유표면쪽은 600°C 이상의 고온에서 고속으로 추돌하여 변형되었다. 그러나, 저농축 우라늄박판은 양호한 연성을 가지고 있기 때문에, 회수된 박판을 straightening을 통해 우라늄박판을 펴더라도 균열이 크게 발생되지 않았다. 우라늄박판을 수차례에 걸쳐 재용해하는 경우에는 표 1에서 나타낸 바와 같이, Cu, Si, O 등의 불순물이 냉각물, 석영관노즐, 용해분위기 중에서 우라늄박판이 혼입되어 경화되면서 straightening 도중에 우라늄박판이 쉽게 cracking 되었다. 이와 같이 우라늄 원료를 과도하게 재용해하여 우라늄박판을 제조하는 경우에는 우라늄박판이 경화되어 쉽게 파손되므로, 과도한 재용해는 바람직하지 않다고 생각된다. 그림 2에 나타낸 바와 같이 저농축우라늄 박판은 많은 hole 들을 포함하였다. Virgin LEU 원료를 사용하여 제조한 우라늄박판에서는 다소 큰 hole 들이 많이 존재하였다. 그러나 재용해 LEU 주괴 원료를 사용하여 제조한 우라늄박판에서는 다소 미세한 hole들이 존재하였다.

주사식현미경으로 확대하여 관찰한 우라늄박판의 표면상태 사진을 그림 3~4에서 나타내었다. 그림 3~4에서 나타낸 바와 같이, 자유표면은 다소 거친 표면을 나타내었으나, 냉각물 접촉면은 자유표면에 비해서는 훨씬 매끄러운 표면상태를 나타내

보이고 있어나, 우라늄용탕의 유동도가 부족하였음을 물결무늬(wave pattern)에서 잘 나타내 보여주고 있다. 이는 용탕 유동도가 부족하여 냉각률쪽의 표면상태가 매우 매끈하지 않았으며, 표면결함이 다량 존재하는 것으로 생각된다. 우라늄박판의 미세조직을 보여주는 주사식현미경 사진을 그림 5에 나타내었다. 그림 5에서 오른쪽은 자유표면쪽이고, 왼쪽은 냉각률 접촉면쪽이다. 자유표면에서는 우라늄 결정립 크기가 $10\mu\text{m}$ 이하이었으나, 중심부로 갈수록 조대하여 $30\mu\text{m}$ 정도까지 증가하였다가 감소하였다. 특히, 냉각률 접촉면에서 $5\mu\text{m}$ 이하로 매우 미세하였다. 이와 같이 우라늄결정립이 위치에 따라서 결정립크기가 크게 차이를 나타내 보여주는 것은 우라늄이 매우 낮은 열전도도를 가지기 때문에 냉각속도 차이가 많이 나기 때문이라고 생각된다. 우라늄박판 중심부에서도 결정립크기가 $30\mu\text{m}$ 정도 밖에 되지 않은 미세한 결정립크기를 나타내 보임으로 인해, 우라늄박판은 결정립 미세화를 위한 열처리가 필요하지 않게 되었다. 게다가 특별한 방향성을 나타내 보이지 않음으로 인해, 원자로내에서 조사시 큰 이방적 조사 성장거동을 나타내지 않을 것으로 기대된다.

4. 결론

Planar Flow Casting(PFC) 법에 의한 우라늄박판 제조장치를 이용하여 저농축 우라늄박판을 시제조한 결과, 우라늄 용탕으로부터 급속응고에 의해 우라늄박판이 직접 제조되기 때문에 박판두께와 두께 균일도를 조절하는 것이 용이하지 않았다. 이를 개선하기 위해서는 석영관 노즐에 stopper를 설치하여 일정한 분사온도에서 박판을 제조하는 것이 필요하다고 생각된다. 또한 우라늄의 표면상태를 관찰한 결과, 용탕 유동도가 부족하여 냉각률쪽의 표면상태가 매우 매끈하지 않았으며, 표면결함이 다량 존재하였다. 우라늄의 매우 낮은 열전도도로 말미암아, 결정립 크기는 위치에 따라 다소 차이가 났으나 $30\mu\text{m}$ 이하로 상당히 미세하여 원자로내에서 조사시 큰 이방적 조사성장거동을 나타내지 않을 것으로 예상된다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 중장기사업인 "연구로용 개량핵연료개발" 과제의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사 드립니다.

참고문헌

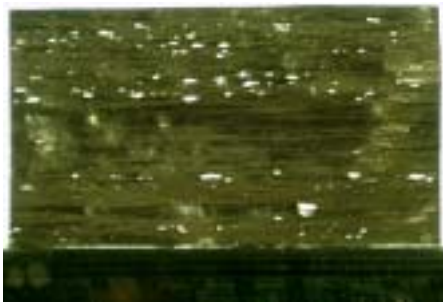
- [1] J. L. Snelgorve, et al., Proc. 22 nd International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Budapest, Tennessee, Hungary, Oct. 3-8, 1999.
- [2] G. F. Vandegraft, et al., Proc. 22 nd International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Budapest, Tennessee, Hungary, Oct. 3-8, 1999.
- [3] K. H.Kim, Hee-Jun Kwon, Jong-Man Park, Yoon-Sang Lee, and Chang-Kyu Kim, Journal of Korean Nuclear Society, Vol. 33, No. 4, pp. 365-374, Aug. 2001.



그림 1. 냉각롤 구조법에 의해 연속적으로 제조된 저농축 우라늄 박판.

표 1. 저농축 우라늄박판의 불순물 함량.

원료상태	Cu(ppm)	Si(ppm)	H(ppm)	O(ppm)	N(ppm)
Virgin LEU	58	8	5	140	70
Remelted LEU	114	95	5	243	30



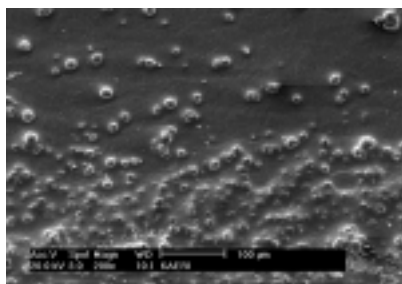
(a)



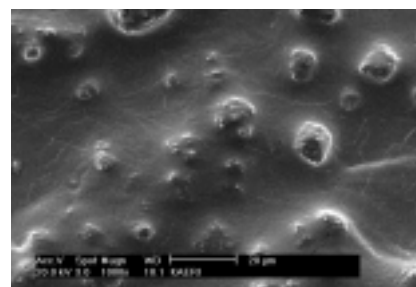
(b)

그림 2. 저농축 우라늄 박판내 hole을 보여주는 사진;

(a) Virgin LEU, (b) Remelted LEU.



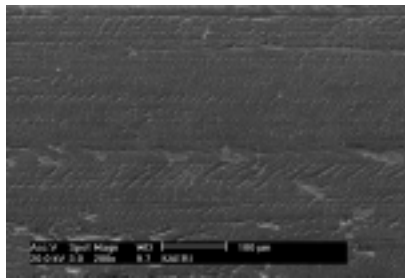
(a)



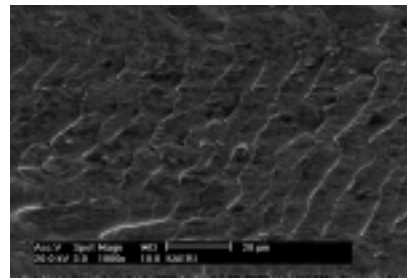
(b)

그림 3. 저농축 우라늄 박판의 전형적인 자유표면상태를 보여주는

주사식 전자현미경 사진; (a) x200, (b) x1000.



(a)



(b)

그림 4. 저농축 우라늄 박판의 전형적인 냉각물 접촉면 표면상태를 보여주는 주사식 전자현미경 사진; (a) x200, (b) x1000.

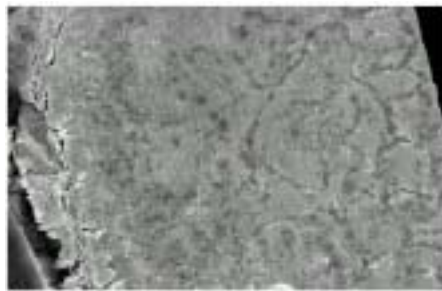


그림 5. 저농축 우라늄 박판단면의 미세조직을 보여주는 주사식 전자현미경 사진 (x1000).