

2004 춘계학술발표회 논문집

한국원자력학회

CAM 처리가 ex-ADU UO_2 분말의 소결성에 미치는 효과
The Effect of CAM Treatment on the Sinterability of ex-ADU
 UO_2 Powder

김연구, 나상호, 김시형, 김동주, 이영우

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

김근민, 김진묵, 양창목, 유호식, 유명준

한전원자력연료(주)

대전광역시 유성구 덕진동 493

요 약

CAM(Continuous Attrition Mill) 처리가 ex-ADU UO_2 분말의 소결성에 미치는 영향을 조사하였다. CAM 횟수 증가에 따라 분말의 겉보기 밀도, 비표면적 그리고 O/U 비는 증가하였으며, 반면에 입자크기는 감소하였다. 그리고 CAM 횟수 증가에 따라 소결밀도는 감소하였다. 소결밀도 감소의 원인은 분말의 분쇄과정에서 야기된 O/U 비 증가가 주된 영향을 미친 것으로 사료된다.

Abstract

The effect of CAM(Continuous Attrition Mill) treatment on the sinterability of ex-ADU UO_2 powder was investigated. As the cycles of CAM increased, apparent density, specific surface area and O/U of the milled powder increased, while particle size of milled powder decreased. And the sintered density of UO_2 pellet decreased as the cycles of CAM increased. It is considered that the decrease of sintered density is attributed to the excess oxygen(higher O/U ratio), which produces pores in the matrix of UO_2 pellet, during CAM.

1. 서론

최근에 고연소도·장주기 추세에 따라 방출되는 기체 핵분열생성물의 원소를 가능한 한 작게 하기 위하여 UO_2 펠렛의 미세구조 제어에 대한 연구가 많이 이루어지고 있다. 이와 같은 미세구조의 제어 및 소결성 향상 방법의 하나로 분말을 미분쇄시키는 방법이 있다.

일반적으로 분말의 특성은 분말입자 크기에 크게 의존하며, 분말의 성형성이나 소결성에 크게 영향을 미치는 것으로 잘 알려져 있다[1]. 분말입자 크기를 미분쇄시키는 방법에는 볼밀[2], 다이 나믹 밀[3], 햄머밀[4] 그리고 연속형 아트리션 밀(CAM ; Continous Attrition Mill)[5-6] 등이 있다. 특히 다이 나믹 밀, 햄머 밀 그리고 연속형 아트리션 밀 장치는 혼합 분말의 균질화 및 분쇄화에 효과가 큰 것으로 알려져 있다. 그러나 혼합 분말이 아닌 단일 성분의 UO_2 분말을 CAM 처리한 결과 소결밀도가 감소하는 경향을 보였다.

본 연구에서는 CAM 처리된 분말의 소결성이 저하되는 원인을 찾기 위하여 CAM 횟수에 따른 분말의 특성을 조사하여 규명하고자 하였다.

2. 실험 방법

2.1 시료준비 및 실험조건

시료는 캐나다에서 ADU 공정으로 제조한 (ex-ADU) 천연 UO_2 를 사용하여 이들을 CAM 횟수[6조건; 0, 3, 5, 7, 10 그리고 15회]를 변화시켜 분쇄시켰다. 본 실험에 사용된 장치는 CAM(Continous Attrition Mill)의 회전날개의 회전수는 150rpm, 장입되는 볼은 직경이 8mm인 지르코니아볼이며, 볼 장입량은 70vol.%, 시료의 양은 20vol.% 이다. 분쇄된 분말의 성형성을 좋게 하기 위하여 acrawax를 0.3wt% 첨가하여 30분간 Tubular mixer에서 혼합한 후, 유압프레스를 이용하여 성형하였다. 성형압력은 150과 300MPa으로 하였으며, 제조된 성형체는 수소분위기하에서 1750℃, 4시간 소결하였다.

2.2 측정 방법

시료분말의 평균 입자크기는 레이저 회절법(Model : CILAS 1064 Granulometer)으로 하였으며, 시료분말의 비표면적 및 O/U 측정은 각각 BET 방법(Model : Gemin 2375)과 산화중량법으로 하였다. 시료분말의 bulk density 는 ASTM-B329 에 기술된 측정기기를 사용하여 측정하였으며, 성형밀도와 소결밀도는 기하학적 방법과 수침법(immersion method)으로 각각 측정하였다. 시료분말의 상태를 추가적으로 확인하기 XRD(RIGAKU Rint 2000)를 사용하였다.

3. 결과 및 토의

3.1 CAM 횡수에 따른 성형밀도 및 소결밀도 미치는 영향

그림 1에 CAM 처리 횡수에 따른 ex-ADU 천연 UO_2 분말의 성형밀도와 소결밀도를 도시하였다. 그림에서 보는 바와 같이 성형압력이 증가하면 성형밀도와 소결밀도는 증가하는 일반적인 경향을 보여준다. 그러나 CAM 처리 횡수가 증가할수록 성형밀도는 증가하지만 소결밀도는 감소하는 경향을 보여준다. 이와 같이 감소하는 원인은 후술하겠지만 분말의 특성에 기인되는 것으로 설명된다.

3.2 CAM 횡수에 따라 제조된 펠렛의 미세구조

그림 2에 CAM 처리 횡수에 따라 제조된 ex-ADU 천연 UO_2 펠렛(성형압력 ; 300MPa)의 결정립 크기 사진을 도시하였다. 그림에서 보는 바와 같이 CAM 횡수가 증가할수록 미세한 기공이 많이 존재함을 보여준다. 그리고 CAM 처리횡수가 증가할수록(5회까지) 결정립 크기는 감소하는 경향을 보이지만 5회이상에서는 다시 증가하는 경향을 보여준다. 그러나 CAM 처리를 하지 않은 분말의 결정립 크기에는 미치지 못하는 것으로 사료된다.

3.3 CAM 처리 횡수가 분말의 특성에 미치는 영향

1) 분말의 겉보기 밀도

그림 3에 CAM 처리 횡수에 따른 분말의 겉보기 밀도를 도시하였다. 겉보기 밀도는 CAM 처리한 분말과 CAM 처리한 후의 분말에 윤활제인 acrawax를 0.3wt% 첨가하여 30분간 혼합한 것을 각각 측정하였다. 그림에서 보는 바와 같이 CAM 처리 횡수가 증가할수록 분말의 겉보기 밀도는 증가하는 경향을 보여주며, 윤활제를 첨가한 경우에는 그 증가 경향이 현저함을 보여준다. 즉 CAM 처리 횡수를 적절히 선택할 경우 펠렛 제조공정에서 예비성형과 같은 공정의 생략이 가능함을 시사해준다. 그리고 겉보기 밀도 증가는 동일한 성형압력하에서도 성형밀도를 증가시킬 수 있어 결과적으로 소결밀도 증가에 바람직한 영향을 미치는 것으로 알려져 있다.

2) 분말의 입자크기와 비표면적

그림 4에 CAM 처리 횡수에 따른 분말의 평균 입자 크기와 비표면적을 도시하였다. 그림에서 보는 바와 같이 CAM 처리 횡수가 증가할수록 입자크기는 감소하고 비표면적은 증가하는 일반적인 경향을 보여주며, 이러한 현상은 소결밀도를 증가시키는 것으로 알려져 있다.

3) 분말의 O/U 비

그림 5에 CAM 처리 횡수에 따른 분말의 O/U 비를 도시하였다. 그림에서 보는 바와 같이

CAM 처리 횟수가 증가할수록 O/U 비는 증가하는 경향을 보여준다. 시료의 원료분말(CAM; 0 cycle)의 O/U비가 높지만 CAM 7회 이상에서는 O/U=2.25를 초과하는 것으로 나타났다. 즉 CAM의 충격과 전단 분쇄 메커니즘에 의해 분말 일부분의 상 상태가 변한 것으로 보인다. 이를 확인하기 위해 XRD를 이용하여 측정한 결과를 그림 6에 도시하였다. 그림에서 보는 바와 같이 CAM 횟수가 증가하면 U_3O_8 peak가 좀더 뚜렷하게 나타나는 경향을 보여준다. 이는 미세구조로도 확인된다. 즉 CAM 처리 횟수가 증가할수록 작은 기공들이 균집된 것들이 많이 나타난다(그림 참조).

4. 결론

CAM 처리 횟수에 따른 분말의 특성과 그 특성이 소결성에 미치는 영향을 조사하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

- 1) CAM 처리 횟수 증가에 따라 분말의 겉보기 밀도, 비표면적 그리고 O/U 비는 증가한 반면에 입자크기는 감소하였다.
- 2) CAM 처리 횟수가 증가할수록 UO_2 펠렛의 소결밀도는 감소하였다. 그 원인의 가장 큰 인자는 O/U비로 사료된다. 즉 과잉 산소로 인해 기공이 많이 나타났다.
- 3) O/U 비 증가는 CAM 처리된 분말의 일부가 U_3O_8 화 된 것으로 XRD 분석결과 나타났다.

Acknowledgement

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었음.

참고 문헌

- [1]나상호 외, 2000년 춘계학술대회, 한국원자력학회
- [2]Sang Ho Na et al., Journal of the Korean Nuclear Society, 34(1) (2002) 60-67
- [3]나상호 외, Journal of the Korean Ceramic Society, 40(6) 2003 (572-576)
- [4]일본 特開平9-15365 (1997), 藤野彰 外
- [5]나상호 외, 2003 춘계학술발표회 요약집 p.224, 원자력학회,
- [6]나상호 외, 2003 춘계학술발표회 요약집 p.268, 원자력학회

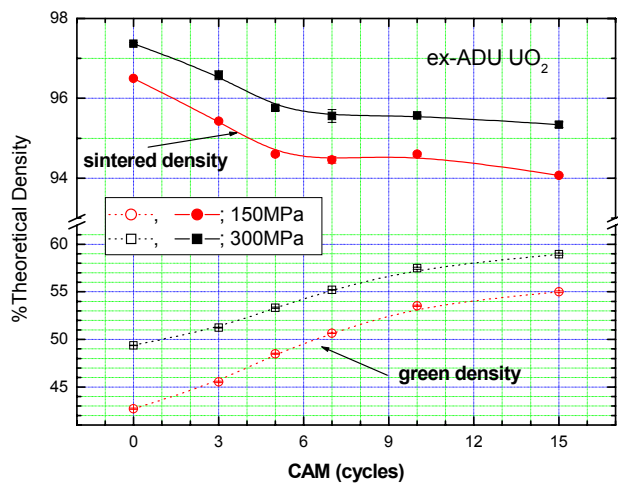


그림 1. CAM 횟수에 따른 성형 및 소결밀도

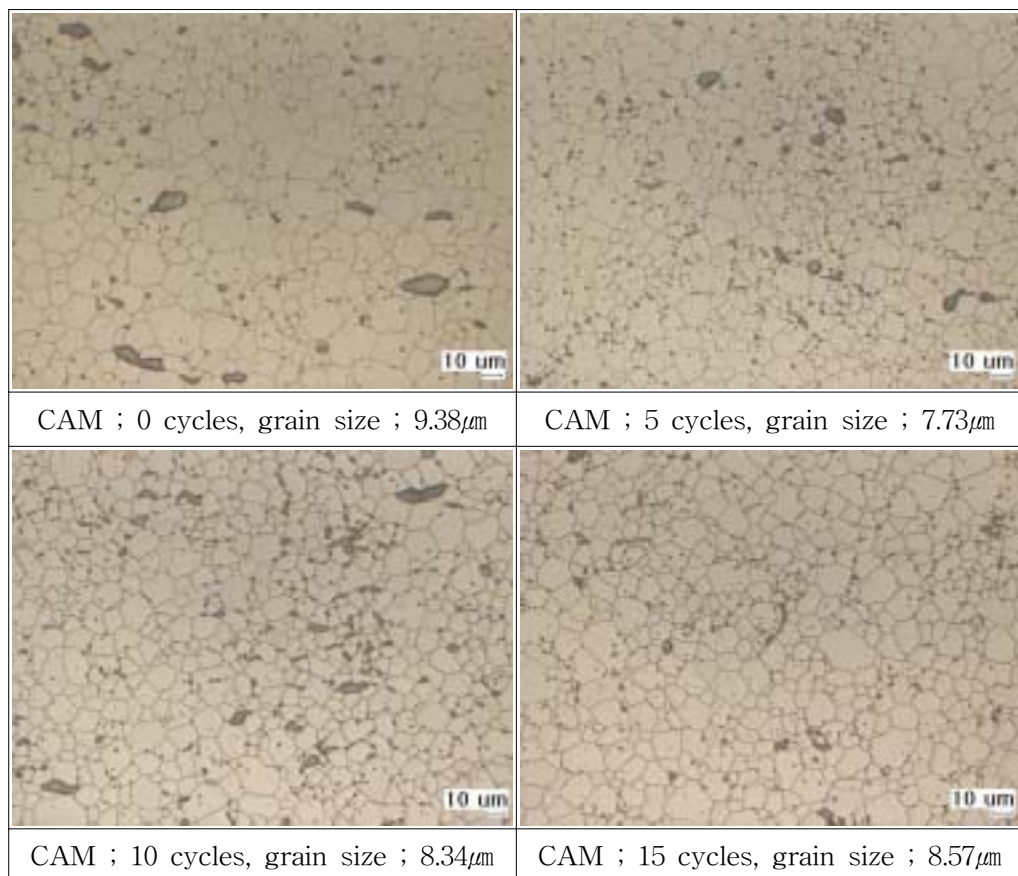


그림 2. CAM 처리 횟수에 따라 제조된 ex-ADU UO_2 펠렛의 미세구조
(성형압력 ; 300MPa)

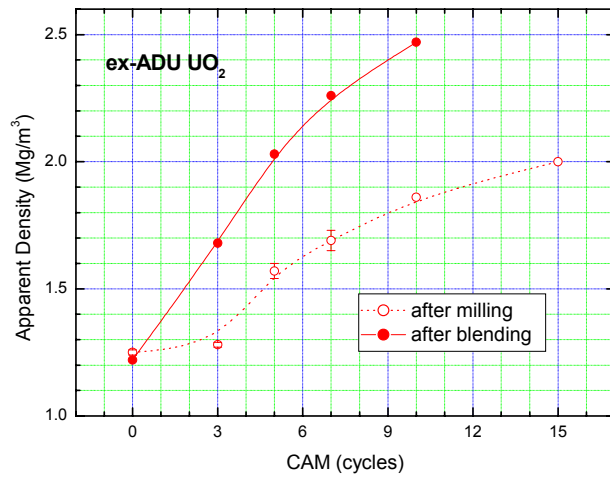


그림 3. CAM 처리횟수에 따른 분말의 겉보기 밀도

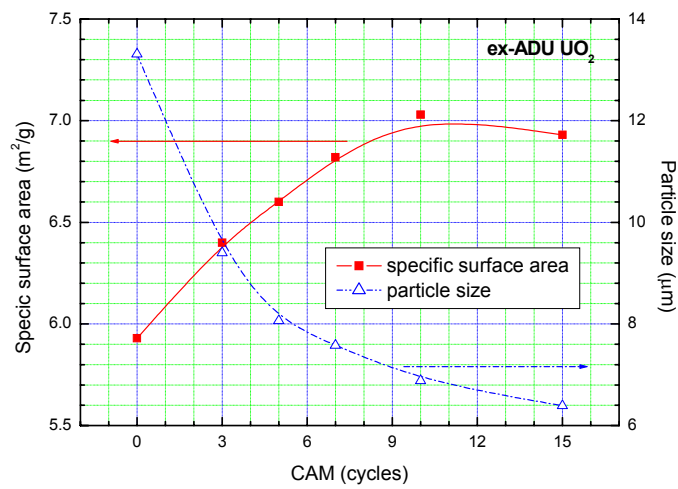


그림 4. CAM 처리에 따른 분말의 입자크기와 비표면적

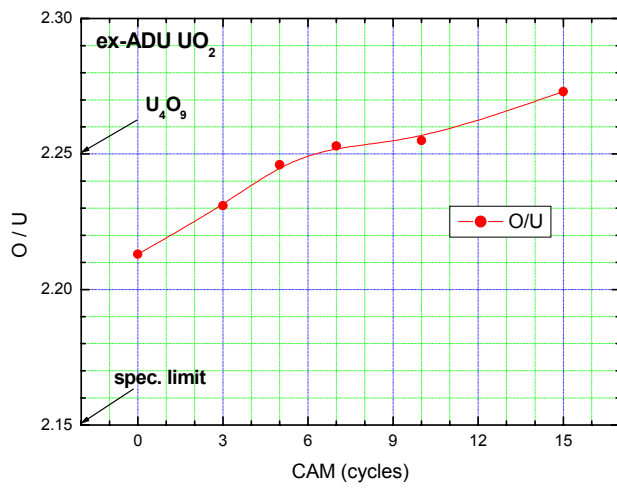


그림 5. CAM 횟수에 따른 분말의 O/U 비

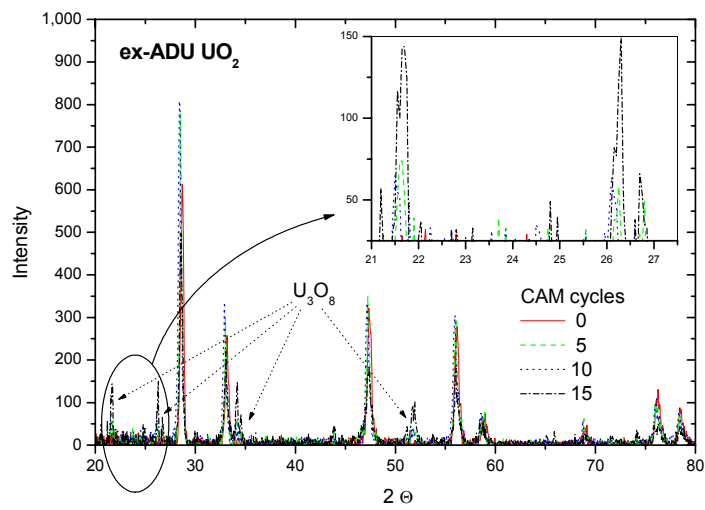


그림 6. CAM 횟수에 따른 XRD pattern