

원심분무 U-Mo 및 U₃Si 분산핵연료의 열적 양립성에 관한 연구

A Study on the Thermal Compatibility of Centrifugally Atomized U-Mo and U₃Si Dispersion Fuels

오석진, 김기환, 이윤상, 안현석, 김창규

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

봉상 U-Mo 및 U₃Si 분산핵연료의 열팽윤을 평가하기 위해, 원심 분무법으로 핵연료 분말을 제조하고, 400°C 및 450°C에서 등온유지 열처리를 실시하여 치수 변화와 미세구조를 평가하였다. U-(7, 8)wt.%Mo 양립성시편은 400°C에서 1,000시간 유지 후에 체적 팽창율이 10% 이하로 비교적 안정하였다. U-6wt.%Mo 및 U₃Si 양립성시편은 400°C에서 1,000시간 유지 후에 체적 팽창율은 25% 이상으로 불안정하였으며, 450°C에서 등온 유지한 결과, 핵연료 조성에 관계없이 모든 U-Mo 양립성시편은 1,000시간 유지 후에 체적 팽창율은 25% 이상으로 불안정하였다. 이는 Mo 함량이 증가할수록, 고온에서의 U-Mo 분말입자의 준안정 감마상 안정성이 우수하기 때문이라고 생각된다. U₃Si 양립성시편은 1,000시간 유지 후에 U-Mo 양립성시편과 마찬가지로 체적 팽창율이 25% 이상으로 불안정하였다.

Abstract

In order to investigate the thermal swelling of rod-type U-Mo and U₃Si dispersion fuels, the thermal compatibility specimens prepared by centrifugally atomization method were annealed at 400°C and 450°C, and then the dimensional change and the microstructure of the specimens were examined. U-(7, 8)wt.%Mo compatibility specimens showed a relatively stable volume change less than 10%, after annealing at 400°C for 1,000 hrs; however, U-6wt.%Mo and U₃Si compatibility specimens exhibited an unstable volume increase more than 25%. All U-Mo and U₃Si compatibility specimens showed an unstable volume increase more than 25%, after annealing at 450°C for 1,000 hrs. It is considered that the possible reason why U-Mo alloys with higher Mo content have more

stable thermal compatibility with Al matrix results from a better γ -U phase metastability at high temperature.

1. 서론

연구로용 핵연료로서 고농축 우라늄을 사용한 U-Al 합금이 주로 사용되었으나, 핵확산 방지를 위하여 1970년대부터 저농축 우라늄을 사용한 U-silicide 분산핵연료를 개발해 왔다[1-6]. 1995년경 이래로 우라늄 고밀도 핵연료로 개발되어온 U-Mo 분산핵연료는 봉상 U-Mo 분산핵연료에 대한 실용화 연소시험을 수행하기 위해, 2001년 상반기부터 하나로에서 조사시험이 수행될 예정이다. 고온에서 연소되는 U-Mo/Al 분산핵연료는 알루미늄 기지와 확산반응에 의해 핵연료분말 입자의 경계층에 uranium-aluminide로 이루어진 금속간 화합물 반응층이 형성된다. 이것은 낮은 열전도도를 가지므로 핵연료분말 입자와 알루미늄 기지간의 열전달을 차단시켜서 핵연료 중심부 온도를 연소가 진행됨에 따라 점점 승온시킨다. 또한 낮은 밀도를 가지는 uranium-aluminide 반응층은 핵연료 심재의 체적을 팽창시키고 피복재를 파손시켜서 핵연료 안전성에 큰 영향을 미칠 수 있다. 이와 같이 봉상 U-Mo 분산핵연료에 대한 실용화 연소시험 수행 시에 U-Mo/Al 분산핵연료의 양립성은 매우 중요하다.

한편, 저온($\sim 65^\circ\text{C}$)과 고온($\sim 200^\circ\text{C}$)에서 각각 수행된 미국 ATR에서 수행된 제 1차 및 제 2차 조사시험에서, U-Mo 분산핵연료는 핵분열 생성기체에 의해서 생성되는 기포는 핵연료 중심부 온도에 크게 영향을 받지 않을 뿐만 아니라 매우 미세하다고 알려져 있다[7-8]. U-Mo 핵연료분말 입자는 U-silicide 핵연료분말 입자에 비해 높은 밀도를 가지므로, 낮은 밀도를 가지는 uranium-aluminide 반응물이 생성되면 그 밀도 차이에 의해서 발생하는 핵연료의 팽윤에 보다 큰 영향을 미친다. 그러므로 핵분열 생성기체에 의해서 생성되는 기포에 의해 야기되는 체적 팽윤 보다도 핵연료분말 입자와 알루미늄 기지간의 확산반응에 의한 체적 팽윤이 분산핵연료의 팽윤에 오히려 큰 영향을 미친다는 조사후 시험에 대한 해석결과가 나왔다[8]. 그래서 본 연구에서는 봉상 형태를 가지는 U-Mo 및 U_3Si 분산핵연료의 열팽윤을 평가하기 위해, 원심 분무법으로 핵연료분말을 제조하고, 400°C 및 450°C 에서 등온유지 열처리를 실시하여 치수 변화와 미세구조를 통해 열적 양립성을 평가하고자 하였다.

2. 실험 방법

U-(6, 7, 8 wt%)Mo 및 U_3Si 분말은 감손우라늄 lump(99.9 wt%), Mo lump(99.7 wt%) 및 Si(99.9999%)을 사용하여 원심 분무법으로 제조되었다. 합금원소는 지르코니아 도가니에서 진공유도 용해하였으며 합금분말에 대한 적합한 크기분포를 얻기 위해 용탕공급 온도 및 디스크 회전속도와 같은 원심분무 변수를 조절하였다. U-Mo 및 U_3Si 합금분말의 크기 분포는 분급에 의하여 측정되었으며, 합금분말의 형태와 미세조직은 SEM(scanning electron microscope)을 사용하였다. 조성분석은 SEM에 부착된 EDX(Energy Dispersive X-ray Spectrometer)로 시행하였다. 400°C 및 450°C 에서 등온유지 열처리를 실시하여 치수

변화와 미세구조를 관찰하였다. 이때, 열처리 시간은 각각 100, 200, 500 및 1,000 시간으로 하였다.

3. 실험 결과 및 고찰

그림 1은 등온유지 온도별 봉상 U-Mo 및 U_3Si 핵연료 심재의 열팽윤을 나타낸 것이다. 400°C에서 등온 유지한 결과(그림 1-(a)), U-7wt.%Mo 및 U-8wt.%Mo 양립성시편은 등온유지 초기에 알루미늄 기지의 sintering 현상으로 말미암아 약간 수축이 발생한 다음, 1,000시간 경과 후에는 체적 팽창율이 각각 4% 및 6%로 나타났다. 그러나 U-6wt.%Mo 및 U_3Si 양립성 시편은 400°C에서 1,000시간 유지후에 체적 팽창율은 25% 이상으로 나타났다. 450°C에서 등온 유지한 결과, 그림 1-(b)에서 보여지는 바와 같이, 핵연료 조성에 관계없이 U-Mo 양립성시편은 1,000시간 경과 후에는 체적 팽창율은 25% 이상이었다.

그림 2는 400°C에서 500시간 등온 유지후 U-Mo 및 U_3Si 양립성시편의 조직사진이다. 그림 2에서 나타난 바와 같이, U-6wt.%Mo 양립성시편에서 알루미늄기지와 U-6Mo 입자간 반응층은 대체로 균일하며, 그 두께는 약 6~10 μm 정도이었다. 그러나 U-8wt.%Mo 양립성시편에서 핵연료입자 경계부위에 알루미늄기지와 U-Mo 입자간의 반응층은 확인되지 않았다. U-7wt.%Mo 양립성시편에서 일부 핵연료입자들은 U-6wt.%Mo 양립성시편과 같이 균일한 반응층이 형성되었으나, 일부 핵연료입자들은 U-8Mo 양립성시편 처럼 핵연료입자 경계부위에 반응층이 나타나지 않았다. 이처럼 Mo 함량이 증가할수록, 알루미늄기지와 U-Mo 분말입자간의 반응층 성장속도가 크게 증가하였다. 이것은 고온에서의 U-Mo 분말입자의 준안정 감마상 안정성이 우수하기 때문이라고 생각된다. U_3Si 양립성시편에서는 U-6Mo 양립성시편 보다 얇은 반응층이 불균일하게 형성되어 있었다. 그림 3은 450°C에서 500시간 등온 유지후 U-Mo 및 U_3Si 양립성시편의 조직사진이다. 그림 3에서 보여진 바와 같이, 합금 조성과 관계없이, 핵연료분말 입자는 알루미늄에 의한 침투반응이 상당히 진척되어 있었다. 알루미늄 기지와, U-6wt.%Mo 및 U-7wt.%Mo 핵연료입자간 반응은 불균일하게 반응하였으며, U-8Mo에 비해 국부 침투 분말(several unreacted islands)이 다량 존재하였다. 그러나 알루미늄기지와 U-8wt.%Mo 입자간에 반응은 특정 외주부에서의 편중반응에 의한 불균일 반응이었으며, U-6Mo 및 U-7Mo 양립성시편처럼 several small unreacted islands는 아니었다. 일부 핵연료분말입자는 경계부위에 반응층이 확인되지 않았다. U_3Si 핵연료분말 입자는 알루미늄에 의해 거의 대부분 확산반응이 된 것처럼 나타났다.

한편, 캐나다 AECL의 설계지침서에 따르면, 특정 핵연료 중심부온도에서 체적 팽윤량 허용치는 20% 이하이며, 이것은 하나로 핵연료의 설계기준으로도 활용되고 있다. 하나로에서 사용되는 U_3Si 분산핵연료에서도, 봉상 U_3Si 분산핵연료의 열적 양립성 시험 연구 결과를 토대로 하여, 장시간 등온 유지한 후 20% 이하로 안정한 열팽윤을 나타내는 350°C를 U_3Si 분산핵연료의 중심 온도 제한치로 설정해 왔다. 본 연구에서, 6 g-U/cc의 uranium loading을 가지는 봉상 U_3Si 분산핵연료는 400°C 이상에서 20% 이상의 체적팽창이 발생하였다. 그러나 7wt.%Mo 이상의 봉상 U-Mo 분산핵연료는 400°C까지는 체적팽창율 20% 이하의 안정한 열적 양립성을 나타내 보여주었다.

4. 결 론

원심분무법으로 U-(6,7,8)wt.%Mo 및 U₃Si 핵연료분말을 제조하고, 400℃ 및 450℃에서 1,000시간까지 등온유지 열처리를 수행하고, 치수 변화 및 미세조직을 조사하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

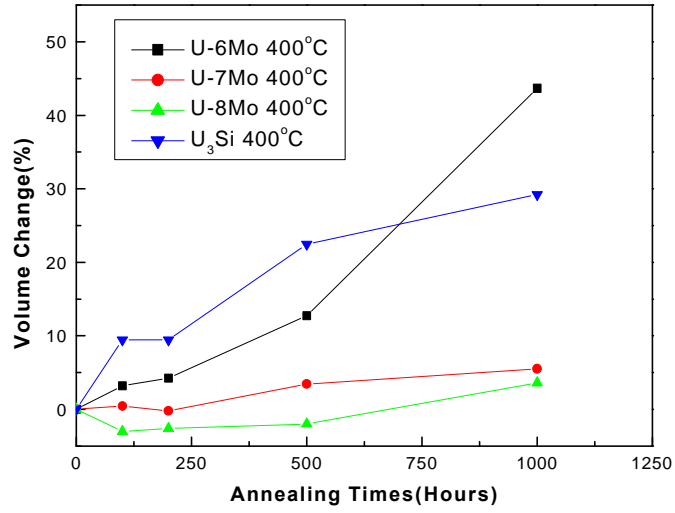
- (1) U-(7, 8)wt.%Mo 양립성시편은 400℃에서 1,000시간 유지 후에는 체적 팽창율이 10% 이하로 비교적 안정하였다. 그러나 U-6wt.%Mo 및 U₃Si 양립성시편은 400℃에서 1,000시간 유지 후에 체적 팽창율은 25% 이상으로 불안정하였다.
- (2) 450℃에서 등온유지후에는 핵연료 조성에 관계없이 U-Mo 및 U₃Si 양립성시편은 1,000시간 유지 후에 체적 팽창율은 25% 이상으로 불안정하였다.
- (3) Mo 함량이 증가할수록, 알루미늄기지와 U-Mo 분말입자간의 반응층 성장속도는 크게 증가하는 것으로 나타났다. 이는 Mo 함량이 증가할수록, 고온에서의 U-Mo 분말입자의 준안정 감마상 안정성이 우수하기 때문이라고 생각된다.

5. 감사의 글

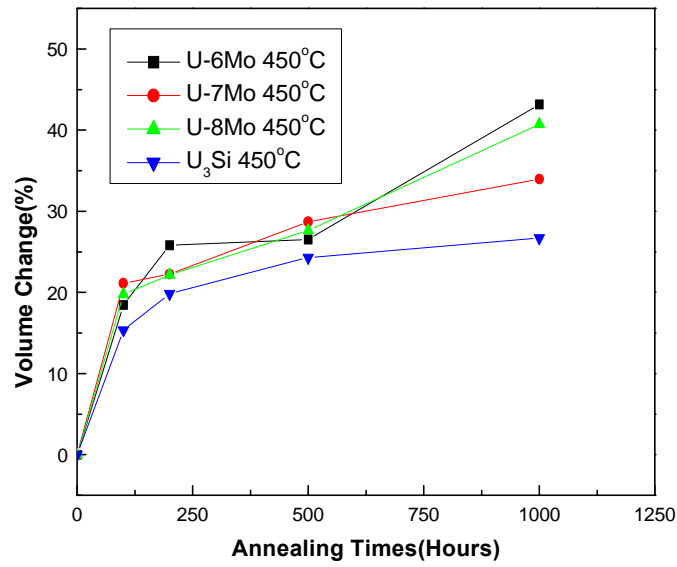
본 연구는 과학기술부의 원자력중장기 연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

6. 참고문헌

- [1] G. L. Hofman and L. C. Walters, *Materials Science and Technology*, Vol. 10A, Nuclear Materials, ed. B. R. T. Frost (VCH Publishers, New York, 1994).
- [2] S. Nazaré, *J. Nucl. Mater.*, 124 (1984) 14.
- [3] G. L. Hofman, *J. Nucl. Mater.*, 140 (1986) 256.
- [4] R. C. Birther, C. W. Allen, L. E. Rehn and G. L. Hofman, *J. Nucl. Mater.*, 152 (1988) 73.
- [5] W. Hwang et al., *J. the Korean Nuclear Society*, vol. 24, No.1 (1992).
- [6] J. P. Durand, P. Laudamy K. Richer, *Proc. of 17th International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors*, Williamsburg, USA, 1994.
- [7] M. K. Meyer et al., *Proc. of 22th International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors*, Budapest, Hungary, 1999.
- [8] M. K. Meyer et al., *Proc. of 23th International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors*, Las Vegas, USA, 2000.

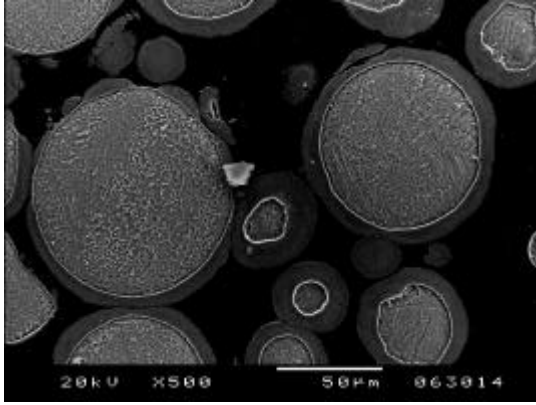


(a) 400°C

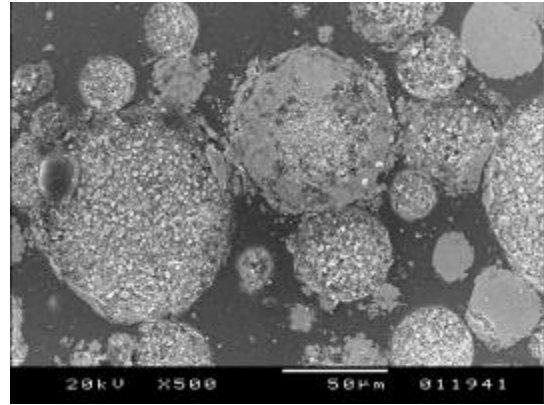


(b) 450°C

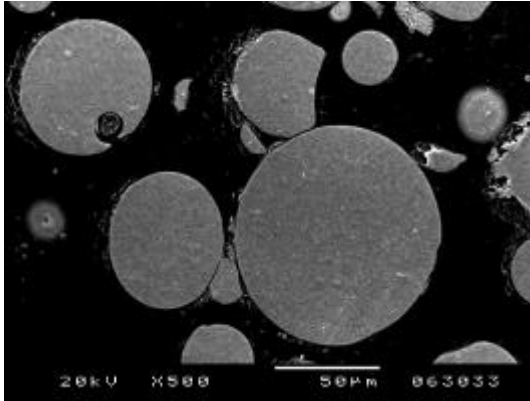
그림 1. 6 g-U/cc의 uranium loading을 가지는 봉상 U-Mo 및 U₃Si 분산핵연료의 노외 열팽윤 거동; (a) 400°C, (b) 450°C.



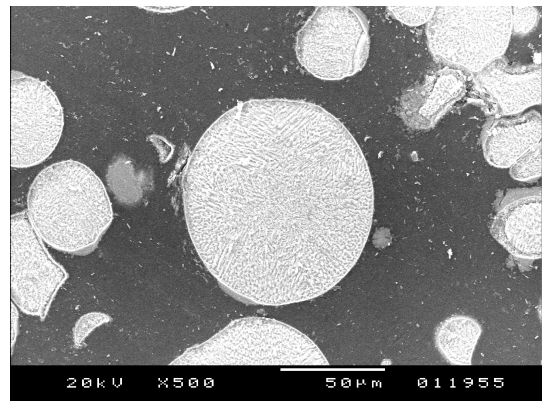
(a) U-6Mo



(b) U-7Mo

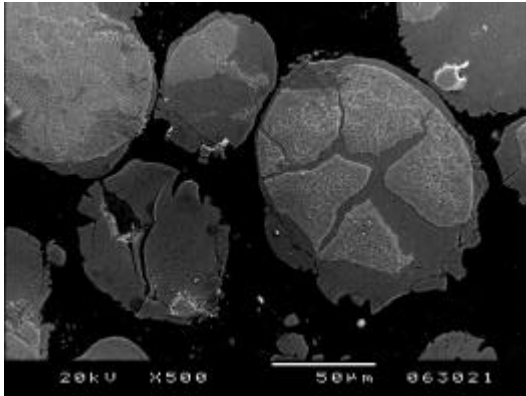


(c) U-8Mo

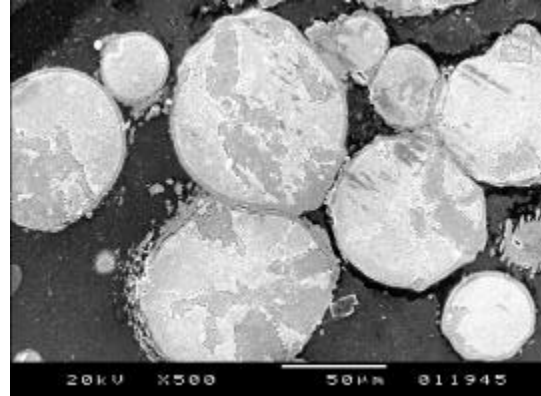


(d) U₃Si

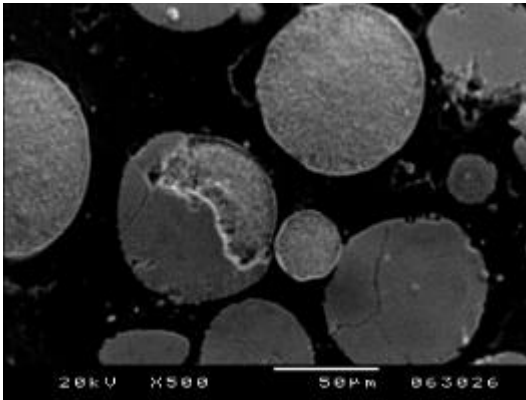
그림 2. 400℃에서 500시간 동안 등은 유지후 봉상 봉상 U-Mo 및 U₃Si 분산핵연료의 SEM 사진; (a) U-6Mo, (b) U-7Mo, (c) U-8Mo, (d) U₃Si.



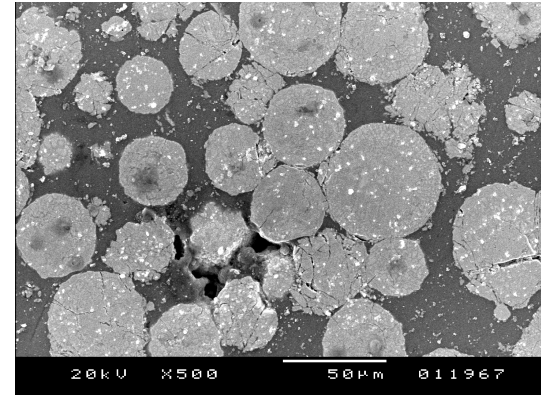
(a) U-6Mo



(b) U-7Mo



(c) U-8Mo



(d) U₃Si

그림 3. 450°C에서 500시간 동안 등온 유지후 붕상 U-Mo 및 U₃Si 분산 핵연료의 SEM 사진; (a) U-6Mo, (b) U-7Mo, (c) U-8Mo, (d) U₃Si.