2001 춘계 학술발표회 논문집
한국원자력학회

U-Zr 금속연료의 소결특성에 관한 연구

A Study on the Sintering Characteristics of U-Zr Metallic Fuel

조항식, 이종탁, 박종만, 송재숙, 김훈, 주근식, 손동성

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

분말형태의 U와 Zr를 압분, 소결하여 금속연료를 제조하였고 U의 함량을 10, 20, 30, 40 wt.%로 각각 변화시켜 나타나는 조직을 분석하였다. 압분압력이 증가함에 따라 U-Zr 분말의 압분밀도가 선형적으로 증가하였으며, 모든 소결온도조건에서 소결밀도 역시 선형적으로 증가하였다. 모든 시편에서 연속적인 δ-UZr_2상과 lath 형태를 가지는 α-Zr상으로 이루어진 조직을 나타냈으며 U의 함량이 증가함에따라 δ-UZr_2상의 분율이 증가하였다.

Abstract

The microstructure of metallic fuels which were fabricated by the powder sintering method were investigated. The sintering characteristics of U-Zr alloy fuel were investigated at the various weight percent of U; 10, 20, 30, 40 wt%. The green density of U-Zr powder compact increased linearly as the compacting pressure increased. Moreover, the sintering density showed a linear relationship with compacting pressure at all temperature. There were two kinds of phases in all specimen; δ-UZr_2 phase having a continuity and α-Zr phase showing a lath structure. As the fraction of U is increased, the fraction of δ-UZr_2 is also increased.

1. 서 론

U-Zr 합금 및 U-Pu-Zr 합금을 사용한 금속연료는 세라믹연료에 비하여 금속연료의 높은 열전도성, 높은 연소도, 우수한 증식성(breeding performance), 연료제조 방법의 편리성

및 사용후 연료를 전기분해를 통한 간편한 건식처리를 할 수 있는 장점들을 가지고 있어 새로운 반응로 개념인 IFR (Integral Fast Reactor)에 적용하려는 연구개발이 미국을 중심으로 진행되고 있다[1-4].

많은 연구들이 세라믹연료에 대한 연구들을 바탕으로 금속연료에 대해서 유사한 방법으로 진행되어 왔다. 하지만 금속연료는 세라믹 핵연료와는 몇가지 다른 특성들이 있다. 우선 grain-boundary 에너지와 표면에너지의 비율이 세라믹연료에 비해 작다는 것이다. 이것은 기공이 상호 연결되는 grain-boundary tunnel의 생성이 어려움을 야기한다. 또한 세라믹 핵연료에서는 찾아볼수 없는 결정의 조사성장과 같은 인자도 있다.

이러한 세라믹연료와는 다른, 금속연료의 거동을 보다 잘 이해하기 위해서 본 실험에서는 분말형태의 U와 Zr을 혼합, 압분, 소결하여 시편을 제조하고 미세구조를 관찰함으로서 금속연료에 대한 기본 데이터를 축적하고자 하였다. 또한 IFR에 사용되는 연료에 관한 연구가 U함량이 높은쪽으로 연구가 많이 진행됨에 따라 본 실험에서는 상대적으로 적은 연구가 이루어진 U함량이 낮은쪽의 연구를 수행하였다.

2. 실험방법

U분말은 0.4% 농축도 이하의 감손 우라늄을 사용하여 원자력연구소에서 개발하여 보유중인 원심분무 장치로 제조된 구형분말을 사용하였으며 이중 120mesh 이하만을 sieving 후 사용하였고 그 평균입도는 약 55㎛이었다. Zr분말은 hydriding-dehydriding 방법으로 제조된 분말 중 120mesh 이하만을 구입하여 사용하였으며 평균입도는 약 60㎛이었다. 사용된 분말들의 형상은 그림 1과 같다.

적절한 압분조건 및 소결조건을 찾기 위해 먼저 40wt% U의 혼합 조건으로 압분압력과 소결온도를 바꿔가면서 소결밀도를 측정하였다. 그 결과 우수한 밀도를 나타내는 압분조건과 소결조건 중 장비의 안전성 등을 고려하여 적당한 조건을 결정하고 다음과 같은 혼합비율에 따른 소결실험을 진행하였다.

우라늄 분말과 지르코늄 분말을 정해진 혼합비율(U : 10, 20, 30, 40 wt%)에 따라 30g씩 계량한 후 Off-Axis rotating drum Mixer에서 75 rpm으로 2시간 동안 혼합하였다. 건전한 압분체의 제작을 위해 double action press을 사용하여 4400kgf/cm^2의 압력을 가하여 20초간 유지시켰다.

압분체의 소결은 산화를 방지하기 위하여 고진공이 유지되는 진공소결로를 사용하였다. 알루미나(Al_2O_3) 도가니와의 반응을 막기 위하여 도가니 바닥에 이트리아(Y_2O_3) 분말을 도포한 지르코니아(ZrO_2) 판을 놓은 후 그 위에 시편을 올려놓고 소결하였다. 모든 시편의 소결조건은 1500℃에서 2시간으로 하였으며 600℃에서 가스 발생으로 인한 진공도 감소를 막기위해 8시간 유지한 후 소결 공정을 진행하였다.. 소결된 시편은 계량 및 밀도측정 후 절단

하여 연마 및 polishing 후에 SEM BE image로 관찰하였고 Oxford 사의 EDS를 사용하여 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 2는 압분압력에 따른 압분밀도의 변화와 압분압력과 소결온도에따른 소결밀도변화를 나타낸 그래프이다. 40wt% U의 혼합비율로 압력을 5단계로 나누어 압분하여 압분밀도를 측정하고 이 압분체들을 1400℃, 1450℃, 1500℃로 소결온도를 달리하여 소결후 밀도를 측정하였다. 그 결과 압분압력이 높을수록, 소결온도가 높을수록 소결밀도가 증가하였다. 특히 1500℃에서 2시간 소결한 시편의 경우는 4400kgf/cm^2의 압력을 가하여 20초간 유지시킨 것으로서 가장 밀도가 양호하였다. 또한 그림 3에서와 같이 일정한 3500kgf/cm2의 압력으로(holding은 하지 않음) 압분후 소결온도 1450℃에서 유지시간에 따른 소결밀도변화를 실험하였다. 그 결과 소결시간이 증가할수록 소결밀도 역시 증가하였다. 이러한 실험결과를 바탕으로 진공소결로의 안전을 고려하여 혼합비율에 따른 소결실험의 압분, 소결조건은 4400kgf/cm^2의 압력을 가하여 20초간 압분한 후 소결온도 1500℃에서 2시간으로 결정하였다.

위 조건에 따른 실험결과 모든 시편이 조성에 관계없이 압분후 밀도가 76%TD이상, 소결후 밀도가 98%TD 정도로 균일하고 양호하게 나타났으며 표 1에 그 결과를 나타내었다.

표 1. U함량에 따른 U-Zr 소결체의 압분 밀도와 소결 밀도

U함량(wt%)	압분밀도(g/cm^3)	상대압분밀도(%TD)	소결밀도(g/cm^3)	상대소결밀도(%TD)
10	5.31	76.2	6.85	98.3
20	5.78	77.1	7.36	98.2
30	6.27	77.3	7.99	98.5
40	6.84	77.4	8.65	97.8

표 2. U함량에 따른 U-Zr 소결체의 이미지분석 후 각 상의 면적 분율

U함량(wt%)	δ-UZr_2 (%)	α-Zr (%)	pore (%)
10	17.8	82.4	0.6
20	63.5	36.0	1.0
30	70.8	28.5	1.0
40	73.0	26.5	1.0

그림 2는 소결후 각 시편을 SEM BE image로 관찰한 것이다. 상태도에서 알 수 있듯이 평형상태에서는 UZr_2의 δ상과 Zr의 α상으로 2개의 상이 나타났다.[5] 모든 그림에서 공통적으로 흰색으로 나타나는 UZr_2의 δ상 기지조직에 회색으로 나타나는 Zr의 α상이 분포되어 있으며, 검은색으로 나타나는 기공들이 .시편 전체에 걸쳐 약간씩 분포되어 있다. 세라믹에 비하여 기공의 상호연결이 적게 나타나는 금속연료임을 고려해 볼 때 압분 압력은 시편의 기공율을 결정하는 가장 중요한 요소이다. 이미지 분석 결과(표 2) 이 실험에서 기공의 면적비율은 1% 정도로 양호한 편으로 압분 압력은 적당한 것으로 생각된다. 약간 낮은 소결온도에서 소결한 조직과 비교해볼 때 Zr의 상에서 분말의 형태가 나타나지 않는 걸로 보아 1500℃에서 2시간의 소결조건은 충분한 것으로 여겨진다.

그림 4-a)와 같이 U함량이 10wt%인 시편은 Zr의 함량이 상대적으로 높기 때문에 다른 시편에 비해 대부분이 α-Zr으로 채워져 있으나 여전히 δ-UZr_2가 연속적인 조직을 유지하고 있다. 그림에서와 같이 α-Zr상의 크기가 다른 것을 알 수 있는데, 이 중 크게 나타나는 상이 상태도에서 알 수 있듯이 냉각시에 610℃ 이상의 온도에서부터 정출된 상(이하 초정α-Zr)으로 추정되며 작게 나타나는 상은 610℃ 이하의 온도에서 δ-UZr_2와 같이 형성된 상으로 추정된다.

그림 4-b)에서 U함량이 20wt%인 시편은 앞의 시편에 비해 Zr의 함량이 줄어듦에 따라 α-Zr상의 양이 약간 줄어들었으며 특히 저온 정출상으로 보이는 α-Zr상이 눈에 띠게 줄어들었다. 그림 4-c),d)와 같이 U함량이 30wt%, 40wt%로 증가함에 따라 이 현상은 더욱 두드러지게 나타나서 U-40wt%의 경우에는 저온 정출된 α-Zr상이 거의 보이지 않는다.

4. 결 론

U-Zr 합금의 소결특성을 조사한 결과 압분시 holding시간이 있고 압분압력이 높을수록, 소결온도가 높고 소결시간이 길수록 소결후 밀도는 증가하였다.

U와 Zr분말의 의한 소결방법을 이용한 금속연료 합금의 제조 측면에서 보면 본 실험의 결과, 대부분의 시편에 소결온도에서 전율 고용체를 이루는 것으로 보이며, 소결후 밀도가 98%TD를 얻어 비교적 기공을 줄인 상태로 매우 균질하게 제조가 가능한 것으로 보인다. 이미지 분석 결과 기공의 면적 비율은 1% 내외이며, 잔류한 기공을 줄이는 방법에 대해서는 더 많은 연구가 필요할 것으로 보인다.

U의 함량이 증가할수록 δ-UZr_2의 면적비율이 증가하는 것으로 나타났으며 α-Zr의 비율은 감소하는 것으로 나타났다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행 되었음.

참고문헌

1. G.L.Hofman, L.C.Walters, and T.H.Bauer, Progress in Nuclear Energy, Vol.31, No.1/2, pp.83-110,1997
2. C.E. Till, I. Chang Y. and W.H. Hannum, Prog. in Nucl. Energy, Vol. 31, 1997, pp. 3-11.
3. D.D. Keiser, Jr. and M.A. Dayananda, Metallurgical Transaction A, 25A, 1994, pp. 1649.
4. G.L. Hofman, L.C. Walters and T.H. Bauer, Prog. in Nucl. Energy, Vol. 31, 1997, pp. 83-110
5. H.Okamoto, Journal of Phase Equilibria, 13(1), 1992

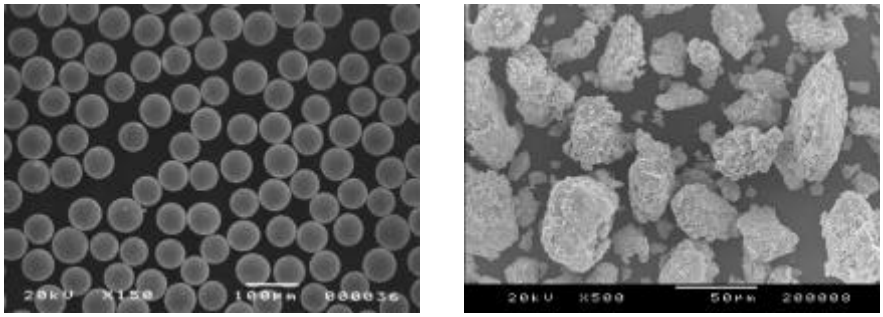


그림 1. 실험에 사용된 U와 Zr 분말 사진 (왼쪽 : U, 오른쪽 : Zr)

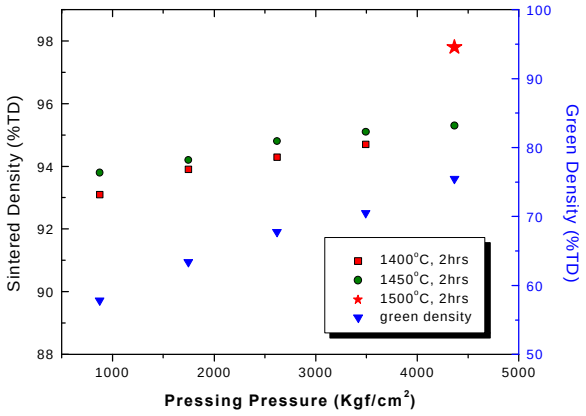


그림 2. 압분압력에 따른 압분밀도의 변화와
압분압력과 소결온도에따른 소결밀도변화

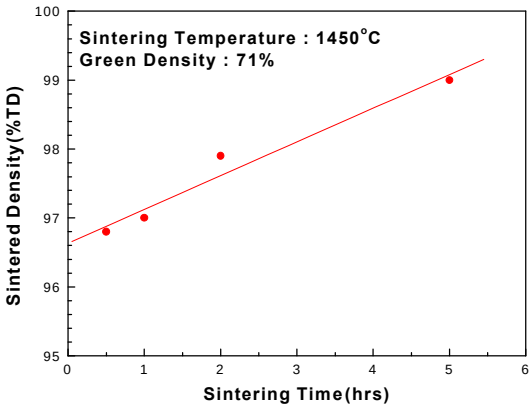
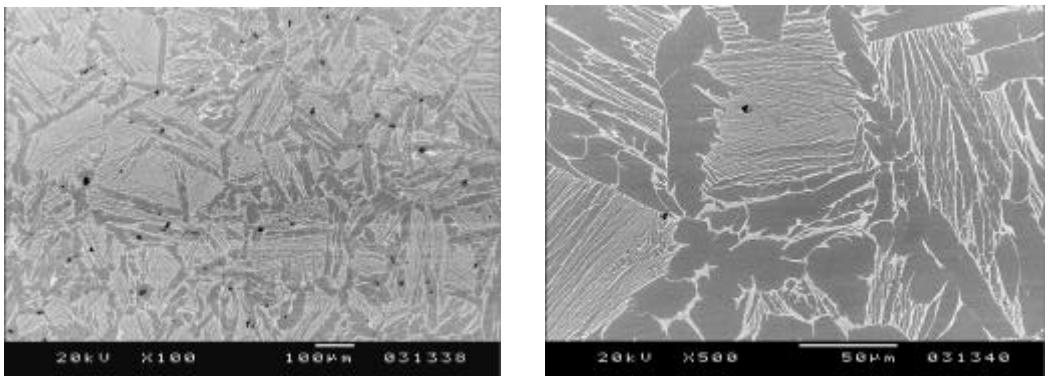
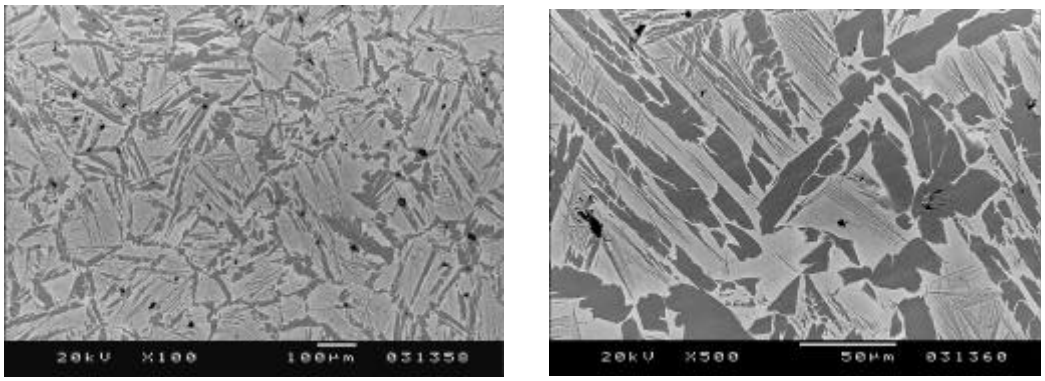


그림 3. 3500kgf/cm2의 압력(holding하지 않음)으로 압분후
소결온도 1450℃에서 유지시간에 따른 소결밀도변화

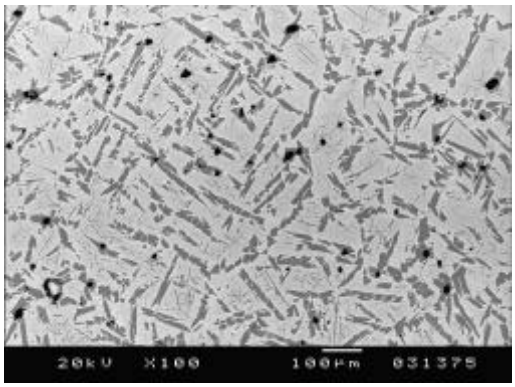


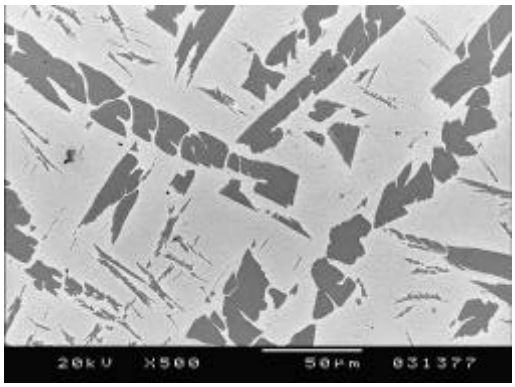
a) 10wt% U-Zr 소결조직 (왼쪽: x100, 오른쪽 : x500)



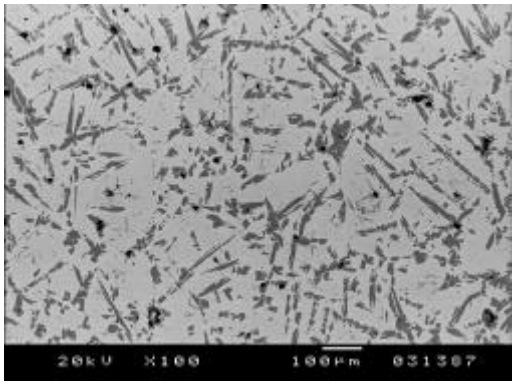
b) 20wt% U-Zr 소결조직 (왼쪽: x100, 오른쪽 : x500)

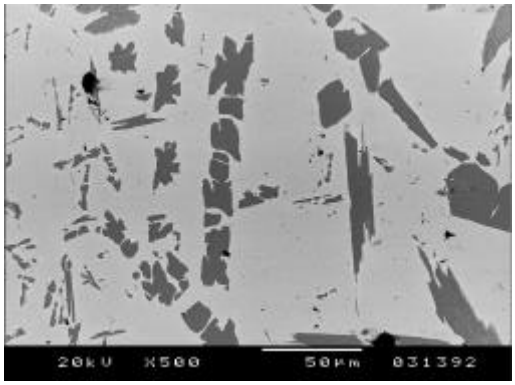
그림 4. U-Zr 소결조직의 SEM BE image (continued)





c) 30wt% U-Zr 소결조직 (왼쪽: x100, 오른쪽 : x500)





d) 10wt% U-Zr 소결조직 (왼쪽: x100, 오른쪽 : x500)

그림 4. U-Zr 소결조직의 SEM BE image