

'2000 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

원심분무 U-7wt.%Mo 분산핵연료의 열적 양립성에 미치는 체적분율의 영향

Effect of Volume Fraction on the Thermal Compatibility of Atomized U-7wt.%Mo Dispersion Fuel

권희준, 김기환, 안현석, 박순달, 장세정, 김응수, 김창규

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

원심분무 U-7wt.%Mo 분산핵연료시편을 5~45vol.%까지 체적을 변화하여 핵연료입자와 알루미늄기지 사이의 상호반응이 조사되었다. 원심분무 U-7wt.%Mo 핵연료시편은 체적분율이 5~45 vol.%까지 높아짐에 따라 높은 체적증가를 나타내 보였으며 300시간 이상 경과함에 따라 일정해짐을 보였다. 이것에 대한 원인으로 다음과 같이 추정된다. 1) 체적분율에 비례하여 알루미늄기지와의 반응면적이 높아졌기 때문이며, 2) 열처리 시간을 길게 함에 따라 알루미늄기지의 결핍으로 인한 체적팽창율의 감소로 생각된다.

ABSTRACT

Interaction behavior between U-7Mo fuel powder and the Al matrix with increasing the volume fraction of atomized U-7Mo fuel powder from 5 to 45vol% was investigated. The volume expansion of U-Mo/Al dispersion fuels increases as the volume fraction of atomized U-7Mo fuel powder increases and the volume expansion reaches a plateau after holding for 300 hours. These results show that the interaction between fuel powders and the Al matrix is proportional to the volume fraction of atomized U-Mo fuel powders and a prolonged annealing time results in a decrease in volume expansion due to the depletion of the Al matrix.

1. 서론

연구로용 원자로의 핵연료로서 고농축 U-Al 합금이 주로 사용되었으나, 핵확산방지를 위하여 저농축 우라늄 핵연료를 개발하기 시작하였다. 저농축 핵연료개발의 후보 소재로서 U_6Fe , U_6Mn , U_3Si_2 , U_3Si , U_3SiAl 합금등을 선정하여 성능을 검토한 결과 U_6Fe , U_6Mn 합금은 uranium 밀도가 높은 반면 고 연소도 시 안정성이 부족하여 부적합한 것으로 판명되었다. 특히, U_3Si_2 분산핵연료는 uranium 밀도가 높을 뿐만 아니라 노내 안정성이 최고로 우수한 핵연료로서 인정되어 미국, 유럽 등 세계적으로 널리 사용되고 있다. 이와 같은 핵연료물질로서 U_3Si_2 를 사용하는 Al 기 분산형 핵연료의 개발로 인해 $\sim 5 \text{ g-U/cm}^3$ 까지 핵연료 심재의 loading을 필요로 하는 연구로를 90% 정도 성공적으로 전환해 왔다. 그러나, 비핵확산을 위해 연구용 원자로의 고농축 핵연료를 저농축 핵연료를 개발하여 전환하는 RERTR program을 전세계적으로 추진중이나 일부 고성능 연구로에서는 현 개발 핵연료로 대처할 수 없어 우라늄밀도가 더 높은 핵연료가 요구된다. 이에 한국원자력(연)에서 원심분무방법을 U-Mo 합금 제조 시에 적용하여 급속응고 효과를 이용한 상온에서 등방적인 γ -U(cubic) phase를 가지는 분산핵연료 소재 U-Mo 합금을 제조하였다. U-Mo/Al 핵연료는 노내에서 연소될 때 팽윤이 발생하는데 이는 반응온도, 핵연료의 조성, 핵연료내의 우라늄함량, 제조 공정중에 포함되는 수소와 같은 impurity gas 등 여러인자에 의해 매우 상이한 특성을 나타내는 것으로 알려지고 있으나 정확한 기구규명은 현재까지도 불분명한 상태이다. 따라서 본 연구에서는 U 함량을 5~45 vol.%로 변화하여 핵연료분말을 제조하고 500°C에서 열처리하여 부피팽창 및 조직을 조사하여 분산된 핵연료의 열적 양립성 평가를 실시하였다.

2. 실험 방법

Al-(5~45vol.%)U-7wt.%Mo를 원심분무법으로 제조되었다. 125 μ m 이하의 핵연료 분말을 알루미늄과 함께 혼합하여 직경 6.5mm로 400°C에서 압출하였다. 고온 팽윤량을 측정하기 위해 직경 6.55mm의 Al-(5~45vol.%)U-7wt.%Mo시편을 약 25 mm 길이로 절단하였으며 양립성 시험온도는 500°C로 실시하였다. 핵연료제조 방법별로 준비한 시편을 quartz tube로 진공 sealing한 후 최대 300시간 동안 열처리하면서 일정한 시간마다 dimension 측정을 통하여 시편의 팽윤량을 측정하였다. 양립성 시험 후에 고온팽윤이 진행된 여러 종류의 시편에 대해서 광학현미경 및 SEM을 이용하여 미세조직 분석을 수행하였다[3]. 또한 Energy dispersive X-ray spectroscopy(EDX)를 사용하여 조성분석을 수행하였으며 열처리된 핵연료의 상변화는 Cu K_{α} 를 갖는 X-ray 회절 분석을 통해 결정하였다.

3. 결과 및 고찰

1) 열처리에 의한 체적변화

500°C에서 Al-(5~45vol.%)U-7wt.%Mo 핵연료 심재의 소둔시 유지시간에 따른 체적 변화율을 Fig 1. 에서 나타내었다. 팽윤량은 열처리 시간 및 U vol.%가 증가함에 따라 증가하였다. 분산핵연료 시편의 열처리 실험은 10wt.%Mo-Al 계면에서 Uranium-aluminide층의 성장은 고전적인 확산 반응속도, 즉 $Y=[K_0 \exp(-Q^h/RT)t]^{1/2}$ 를 따른다는 것을 보여주었다. 여기서 Y는 반응층의 두께, Q^h 는 Uranium-aluminide의 상호확산에 대한 활성화에너지, K_0 는 반응상수, t는 시간(초), T는 절대온도 그리고 R은 기체상수이다. 45vol.%U 핵연료시편의 부피변화는 5vol.% 핵연료시편의 체적증가보다 3배 가량으로 나타났다. 5vol.%U-Mo에서보다 45vol.%U-Mo에서 큰 체적 증가를 보여주었다. 알루미늄이 핵연료와 반응함에 따라, 핵연료 심재의 부피는 본래 입자와 반응 생성물간의 밀도 차이 및 Kirkendall effect에 의해 생긴 기공 때문에 증가한다.

2) 미세조직 분석

500°C에서 20시간 동안 소둔 후 원심분무방법으로 제조된 5vol.%U-7wt.%Mo 분말 핵연료 심재의 SEM사진을 Fig. 2.(a)에서 나타내었다. 분말전체가 거의 반응 상으로 되어 있었다. 초기 단계에서 알루미늄 원자의 침투는 10wt.%Mo 분말의 표면에서 주로 발생하였으나, 최종단계에서는 중간상의 형성은 분말의 중앙부 쪽으로 향해 발전하였다. 낮은 밀도를 가지는 취성적인 중간상층의 형성 때문에 많은 균열이 분말 외주부 영역에서 존재하였다.

500°C에서 20시간 동안 소둔 후 원심분무방법으로 제조된 25vol.%U-7wt.%Mo 분말 핵연료 심재의 SEM사진을 Fig. 2.(b)에서 나타내었다. 20시간 동안 소둔한 핵연료 심재는 분말이 Al로 침투되었거나, 또한 EDS 분석결과 상대적으로 Mo함량이 낮은 부분으로부터 알루미늄 원자가 우선적으로 침투가 일어남을 보여주었다.

500°C에서 300시간 동안 소둔 후 원심분무방법으로 제조된 5vol.%U-7wt.%Mo 분말 핵연료 심재의 SEM사진을 Fig. 3.(a)에서 나타내었다. 결국 핵연료분말의 모든 영역은 Uranium-aluminide로서 채워졌다. 300시간 동안 진공 열처리후 수행된 현미경검사는 크게 팽윤된 시편은 알루미늄기지와 U-7wt.%Mo 분말 사이 계면에 큰 crack을 가지고 있었다. 낮은 밀도를 가지는 취성적인 중간상층의 형성 때문에 많은 균열이 분말 외주부 영역에서 존재하였다.

500°C에서 300시간 동안 소둔 후 원심분무방법으로 제조된 25vol.%U-7wt.%Mo 분말 핵연료 심재의 SEM사진을 Fig. 3.(b)에서 나타내었다. 낮은 체적 분율에서 알루미늄원자의 침투경로와는 다르게 핵연료 표면으로의 침투가 어느정도 일어난 이

후에는 상대적으로 Mo가 poor한 지역으로 우선적인 Al 침투의 경향이 뚜렷하였다. 300시간 동안 소둔 후의 체적증가율이 점점 낮아짐을 알 수 있었다(Fig. 4). 이는 높은 체적 분율로 인한 상대적으로 낮은 Al의 원인으로 알루미늄의 결핍으로 인해 더 이상 핵연료와 반응하지 못한 원인으로 나타났다.

4. 결 론

본 연구에서는 U함량이 5~45vol.%를 갖는 U-Mo 핵연료 분말을 제조하고 500°C에서 300시간까지 열처리 후 부피 팽창 및 조직을 조사하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 500°C에서 300시간까지 열처리된 Al-(5~45)vol.%U-7wt.%Mo 핵연료의 팽윤량은 20~30%로 나타났다.

2) 열처리를 100시간 동안 실시하였을 때 U-Mo 핵연료 분말의 체적분율에 비례하여 알루미늄기지와의 접촉면적의 증가로 인해 체적증가가 높게 나타났다.

3) 원심분무 U-7wt.%Mo 핵연료시편은 체적분율이 5~45vol.%로 높아짐에 따라 높은 체적증가를 나타내 보였으며 시간이 경과함에 따라 일정해 짐을 보였다. 이는 열처리 시간이 길어짐에 따라 상대적으로 알루미늄기지의 결핍으로 인한 체적팽창율의 감소로 더 이상 체적증가가 일어나지 않은 것으로 생각된다.

감사의 글

본 결과는 과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 핵연료 설계 기술개발팀 연구로용 개량 핵연료 개발 과제에서 수행한 것으로 연구비지원에 감사를 드립니다.

참고문헌

- 1) G.I. Hofman, J. Nucl. Mater., 140(1986)256.
- 2) R.C. Birther, C.W. Allen, L.E. Rehn, G.L. Hofman, J. Nucl. Mater.,152(1988)73.
- 3) K. H. Kim et al., Proc. of 22th International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Budapest, Hungary, 1999.

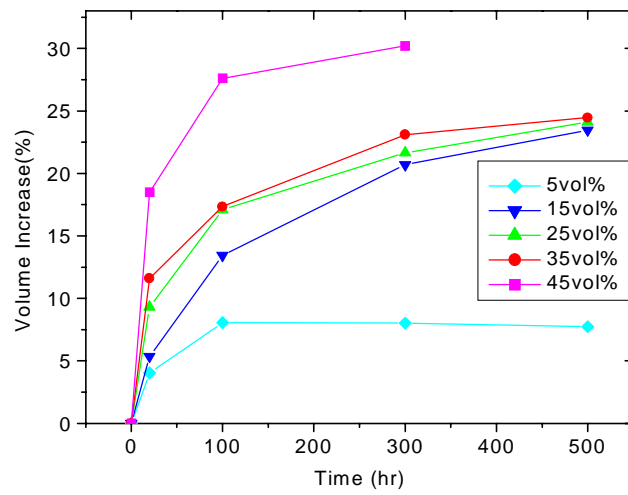
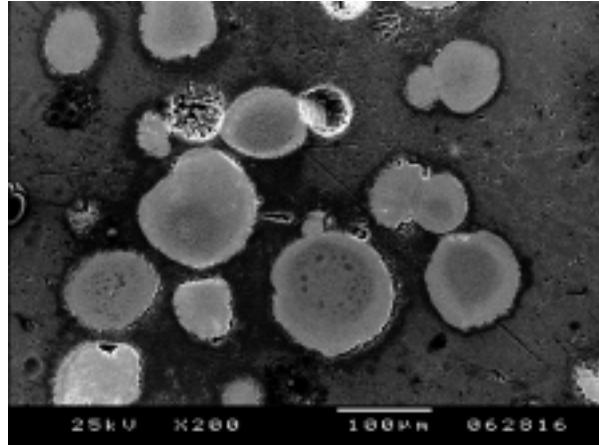
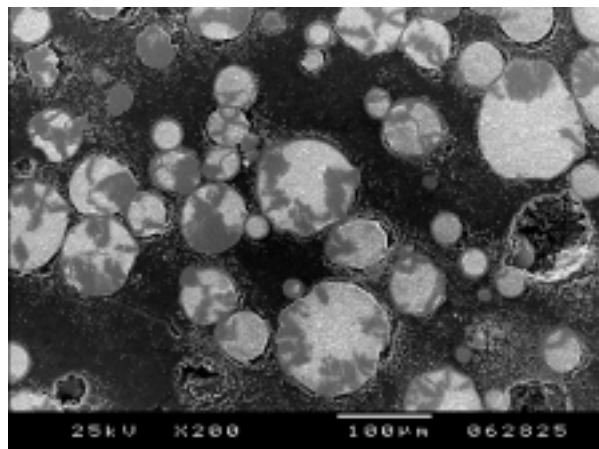


Fig. 1. Al-(5~45vol%)U-7wt.%Mo 핵연료 심재의 소둔시 유지시간에 따른 치수 변화율

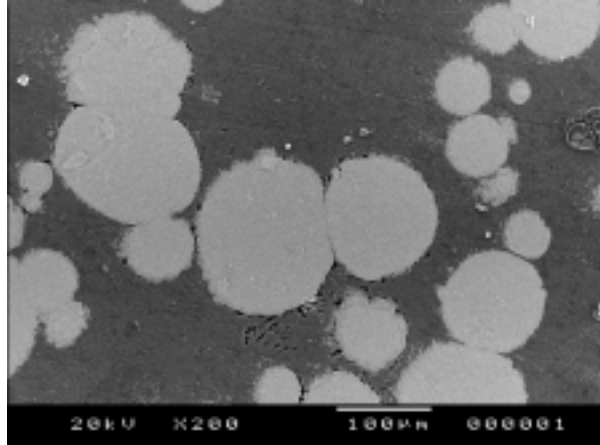


(a) 5vol.%U-7wt.%Mo

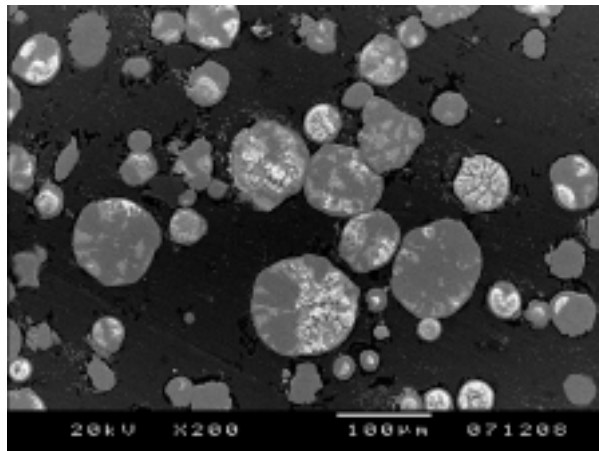


(b) 25vol.%U-7wt.%Mo

Fig. 2. 500℃에서 20시간 동안 소둔 후 원심분무방법으로 제조된 분말 핵연료 심재의 주사 전자 현미경 사진



(a) 5vol.%U-7wt.%Mo



(b) 25vol.%U-7wt.%Mo

Fig. 3. 500°C에서 100시간 동안 소둔 후 원심분무방법으로 제조된 분말 핵연료 심재의 주사 전자 현미경 사진

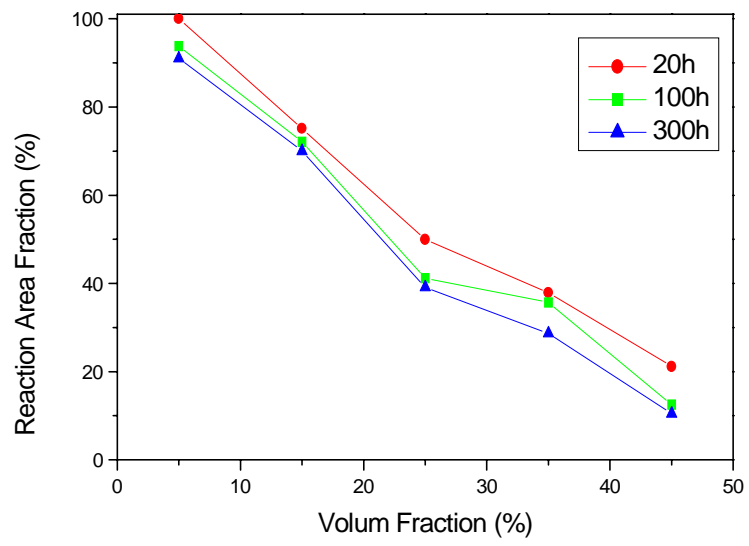


Fig. 4. 체적증가에 따른 반응층 두께변화