

연구로용 원심분무 U-Mo 핵연료분말의
상용화 제조기술에 관한 연구

A Study on the Commercialized Fabrication Technology of
Centrifugally Atomized U-Mo Fuel Powders for Research Reactors

김기환, 권희준, 장세정, 김응수, 안현석, 이윤상, 김창규

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

연구로용 원심분무 U-Mo 핵연료분말의 상용화 제조기술에 관한 연구가 수행되었다. 재사용 가능한 우수한 성능을 가지는 원심분무부품 기술을 개발하기 위해, 흑연도가니 slurry 도포법, Al_2O_3 도가니재료, Si_3N_4 회전 원반재료 및 회전 전기모터기술에 관한 연구가 수행되었다. 또한 저농축우라늄 합금분말을 제조하는 원심분무장치의 임계 안전성을 향상시키기 위해, 가스 냉매 사용시의 핵임계도를 계산하여 냉각수 사용시와 비교 검토하였으며, 가스냉각식 유도코일로 모델링하여 가스 사용시 유도코일 온도 상승을 예측하였다. 그리고 상용화용 원심분무장치의 기본설계를 수행하여, 원심분무장치의 고성능화 및 안전화가 이루어지도록 하였다.

Abstract

A study on the commercialized fabrication technology of centrifugally atomized U-Mo fuel powders for research reactors has been performed. In order to develop economical and high-performance atomization parts technology, studies on the slurry coating method of graphite crucible, the Al_2O_3 crucible materials, the Si_3N_4 rotating disk materials and the high-frequency pulse motor were carried out. In order to improve critical safety of centrifugal atomizer used in producing reduced enrichment uranium alloy powders, nuclear criticality in case of using gas coolant was calculated and compared with the case of water coolant, and the increase of the induction coil temperature was predicted

with modelling the gas-cooled induction coil. The conceptual design of commercialized centrifugal atomization equipment was also performed to attain high performance and high safety of the atomizer.

1. 서론

한국원자력연구소에서는 하나로 핵연료의 국산화 개발과정에서 기존의 제조 방법을 개량하여 원심분무에 의한 구형 핵연료분말을 제조하는 연구로용 개량핵연료 기술을 창안, 개발하여, 1990년대 초에 한국, 미국, 독일 및 캐나다에 상기 기술에 대한 특허를 등록하였다. 이 원심분무기술은 우라늄합금을 주조후 균질화 열처리, 파쇄 및 분쇄공정을 거치지 않고 원심분무공정을 통해 미세한 핵연료분말이 합금용탕으로부터 직접 제조되는 기술로써, 종래의 핵연료 제조방법에 비해 ① 핵연료 제조공정이 단축되었고, 핵연료 분말제조 수율과 생산성이 향상되었으며, ② 고순도의 구형우라늄합금 분말을 제조하여 핵연료분말의 품질이 향상되었으며, ③ 열반응에 의한 핵연료팽윤이 감소되었으며, ④ 핵연료봉의 열전도도가 향상되었으며, ⑤ 핵연료 성형시 성형압력이 감소되었으며 연성이 향상되는 장점을 가져왔다[1-4].

이와 같은 원심분무 핵연료기술이 RERTR 국제회의를 통해 세계적으로 알려지게 되면서 1996년 12월부터 미국 ANL 국립연구소와 공동연구를 수행하게 되었다. 고성능 대형 연구로용 고밀도 핵연료를 개발하기 위해 1997년 8월부터 1998년 8월까지 ANL에서 수행된 제1차 미소시편 연소시험에 한국원자력(연)의 원심분무 U-10%Mo 및 U_3Si_2 핵연료시편이 포함되었다. 시험결과, U-10%Mo 핵연료 조사시편은 70at.% 연소후 평가에서 파쇄분말 핵연료에 비해 알루미늄 기지와 핵연료간 반응층의 두께가 작았고, 핵분열개스에 의해 생성된 기포는 미세하면서 균일하여 우수한 노내거동을 보여주었다.

특히 원심분무 핵연료 제조기술은 고밀도 핵연료재료로 사용될 U-Mo 계 핵연료분말을 제조하는 데 있어서 기존의 파쇄공정에 비해 100배 이상의 생산성을 차지하고 있기 때문에, 세계의 연구용 원자로 핵연료 생산 및 연구그룹에서 한국원자력연구소의 원심분무 분산핵연료가 큰 관심을 모으고 있다. 따라서 U-Mo 합금계 원심분무 분산핵연료가 전 세계적으로 수출 또는 기술이전을 통해 확산될 것으로 예상된다. 현재 기관고유사업으로 “핵연료 기술연구개발동”의 건설이 추진되고 있고 2003년경부터 U_3Si 분산핵연료를 국산화하기 위한 핵연료분말 생산용 원심분무장치 제작도 예정되어 있다. 하나로 핵연료의 국산화를 완료하면 연구용 원자로 기술자립을 이룰 수 있어 연구로 관련 기술 수출 가능성이 보다 가시화될 것으로 기대된다.

그러나 현재 보유하고 있는 원심분무장치는 실험용 규모의 one batch 형의 원심분말 제조장비로서 분말 수출용 및 핵연료 국산화용 분말제조장비로는 미흡한

실정이다. 따라서 본격적인 핵연료분말 수출과 국산화 제조를 하기 위해서는 two batch 이상의 연속 원심분말제조를 가능하게 하는 등 생산용 원심분무장치로 scale-up 하기 위한 설계기술 개발이 선행되어야 한다. 뿐만 아니라 원심분무장치를 포함한 U-Mo 핵연료분말 제조기술을 외국에 기술이전하기 위해서는 비수냉식 유도코일 사용, 임계관리차원의 핵연료분말 loss 관리 등 외국의 핵연료 제조장치 안전기준에 부합하는 새로운 개념의 원심분무장치 설계가 요구되며, 안전분석을 포함한 제반 장치사양을 미리 품질문서로 규격화하는 것이 필요하다. 이와 함께 본격적인 원심분무 핵연료 생산을 대비하여 분말제조에 소요되는 원가를 절감하기 위해 용해부품에 대해 경제성을 고려하여 2회 이상 재사용이 가능한 도가니 재료, nozzle 재료 및 회전디스크재료 등 원심분무 상용화기술에 대한 개발이 요구되고 있다.

2. 연구방법

2.1. 원심분무부품 시험

흑연도가니 slurry 도포시험은 내경 10mm 정도의 도가니 내벽에 ① Holcote #110, ② Y_2O_3 , ③ TiC, ④ Y_2O_3 + Holcote #110, ⑤ TiC + Holcote #110 도포재를 각각 도포하여, 우라늄과 Mo 원료를 U-7%Mo 합금조성을 가지도록 장입하였다. 진공중에서 승온하여 진공유도 용해로체에서 1600°C까지 가열, 유지한 후 로냉하였다. 등온유지후 채취한 흑연도가니 시편을 절단, mounting하여 metallography 시편을 준비하였고, SEM(scanning electron microscope) 및 EDX(Energy dispersive X-ray spectroscopy)를 통해 반응층 형태, 치수 및 조성을 조사하였다.

Al_2O_3 도가니 원심분무시험은 우라늄과 Mo 원료를 U-7%Mo 합금조성을 가지도록 장입후 흑연 susceptor 내에 설치되어 27°C/min의 승온속도로 가열하여 1600°C에서 등온 유지후 하주식으로 출탕하였다. 사용후 Al_2O_3 도가니는 육안으로 관찰되었으며, metallography 시편을 절단, mounting 하여 SEM(scanning electron microscope) 및 EDX(Energy dispersive X-ray spectroscopy)를 사용하여 반응상태를 분석하였다. Si_3N_4 원반 원심분무시험은 Si_3N_4 회전원반을 나사식으로 직경 40mm 흑연 원반과 거의 동일하게 설계, 제조하였다. 지르코니아 도가니내에 우라늄과 Mo 원료를 U-7%Mo 합금조성을 가지도록 장입후 흑연 susceptor 내에 설치되어 1600°C에서 등온 유지후 고속으로 회전하는 원반 위에 하주식으로 출탕하였다. 원심분무후 Si_3N_4 원반은 육안으로 파손상태 및 침식상태 등을 관찰되었고, 제조된 원심분무분말은 분급을 통하여 입도분포를 조사하고, 화학분석을 통해 분말내 불순물원소 함량을 분석하였다.

2.2. 가스냉각식 유도코일로 모델링하여 온도상승 예측

수냉식 유도코일 및 유도로체의 승온시험은 원심분무장치에서 냉각시키면서 흑연도가니를 정상전력 또는 full power로 1900℃까지 승온하였다. 가열시 도가니 승온속도는 정상출력시 28℃/min, full power시 68℃/min이었다. 가열시 냉각수 평균유속은 정상출력시 64 ℓ/min, full power시 45 ℓ/min 이었다. 냉각수 온도는 유도코일 냉각수 in-let 부분과 냉각수 out-let 부분, 그리고 유도로체 냉각수 in-let 부분과 냉각수 out-let 부분에 열전대를 삽입하여 측정하였다.

냉각수 대신에 Ar 및 He를 사용하는 경우의 유량은 냉각관내에서 ① 정상상태의 유속이며, ② 일의 량은 0 이고, ③ 입출구의 운동에너지 및 위치에너지의 차이는 무시할 수 있고, ④ 사용온도범위에서 냉매의 밀도 및 비열은 일정하다는 가정하에서 계산하였다.

2.3. Freon을 냉각제로 사용한 경우의 원심분무장치에 대한 핵임계도 계산

원심분무장치의 냉매가 냉각수(H₂O) 대신 프레온 가스를 사용할 경우에 대해 핵임계도 계산을 수행하였다. 가능한 사고의 가정은 냉각제 배관의 파손사고로 용기내로 프레온이 침투되는 사고로 하였다. 프레온(HCF-134a)은 수소와 탄소 등 중성자의 감속능력이 뛰어난 원소들로 구성된 화합물이므로 핵임계 사고의 위험이 있다고 생각되어 아래와 같은 모델에 대하여 계산을 수행하였다.

원심분무장치는 수집기, 용융기, 운반용기의 세부분을 나누어지나, 모델링 계산에서는 프레온과 냉각수의 감속능력을 비교할 목적으로 그림 1과 같이 운반용기만을 모델링하고 나머지 부분들은 모델링에서 제외하였으며, 임계계산 입력자료는 표 1과 같이 하였다. 경우 1로는 냉각제로 프레온을 사용한 경우, 용기내부로 프레온이 침투하고, 용기외부로도 새어나간 사고로 가정하였으며, 경우 2로는 냉각제로 물을 사 사용한 경우, 용기내부로 수분이 침투하고, 용기외부로도 새어나간 사고로 가정하였다.

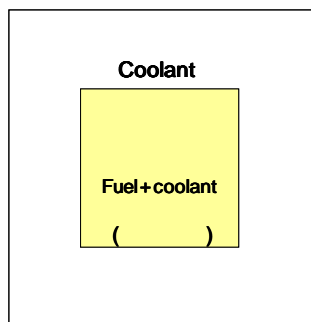


그림 1. 원심분무장치의 임계계산 모델링.

표 1. 원심분무장치의 임계계산 입력자료.

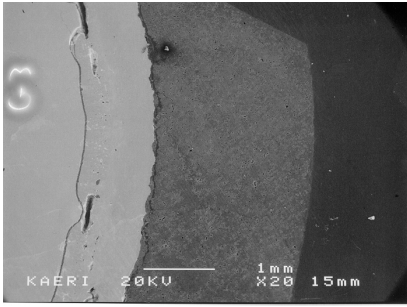
Coolant	Mass density (g/cm ³)	Number Density(#/cm ³)
Freon(HFC-134a)	1.026	N(H)=1.9297E22 N(C)=1.9297E22 N(F)=1.9297E22
H ₂ O	1.0	N(H)=7.0816E22 N(O)=3.5408E22

3. 결과 및 검토

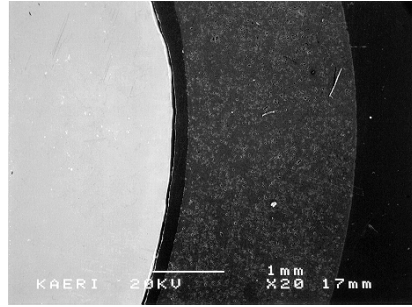
3.1. 원심분무부품

3.1.1. 흑연도가니 slurry 도포

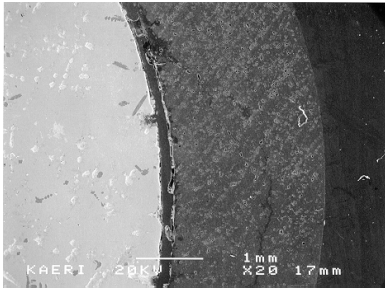
흑연도가니 내벽에 ZrO₂ · SiO₂가 주성분인 Holcote #110을 slurry 도포한 결과, 그림 2-(a)에 나타난 바와 같이, U-7wt.%Mo 용탕 사이 중간반응층은 t 2.2mm 정도로 균일하게 형성되었다. EDX로서 중간반응층의 조성을 point analysis한 결과, 42at.%U, 29at.%C, 14at.%O, 9at.%Si, 5at.%Mo, 0.3at.%Zr 이었다. Holcote #110 도포재층은 확인되지 않았으며, Holcote #110 도포재층에 우라늄과 탄소가 침투해 들어와 새로운 물질인 중간반응층이 형성된 것으로 추정된다. 흑연도가니 내벽에 Y₂O₃를 slurry 도포한 결과, 그림 2-(b)에 나타난 바와 같이, t 100 μ m 정도의 Y₂O₃ 도포재층이 존재하였으며, 도포재층으로 우라늄용탕이 침투되지 않은 상태이었다. 흑연도가니 내벽에 TiC를 slurry 도포한 결과, 그림 2-(c)에 나타난 바와 같이, TiC 도포층은 Y₂O₃와 외관상 거의 마찬가지로 존재하였다. 흑연도가니 내벽에 Y₂O₃ + Holcote #110을 slurry 도포한 결과, 그림 2-(d)에 나타난 바와 같이, 중간반응층이 t 100 μ m 정도 파손되어 있었다. EDX로서 point analysis한 결과, 중간층 조성은 85at.%C, 14at.%O, 2at.%Zr 이었으며, U, Mo, Si, Y은 확인되지 않았다. 흑연도가니 내벽에 TiC + Holcote #110을 slurry 도포한 결과, 그림 2-(e)에 나타난 바와 같이, 중간반응층은 t 300 μ m 정도 되었다. EDX로서 line scanning 결과, C, Ti, U이 크게 함유되어 있었으며, point analysis 결과, 42at.%Ti, 37at.%C, 15at.%O, 1at.%Si, ~1at.%Zr, 4at.%U, 2at.%Mo 이었다. SEM과 EDX 분석결과, 도포재층쪽으로 우라늄용탕이 약간 침투, 반응한 것으로 추정된다.



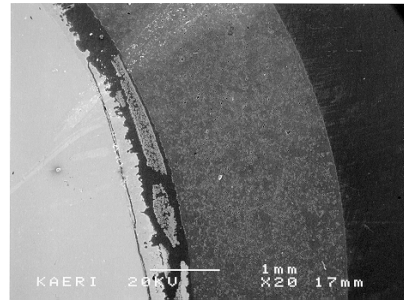
(a)



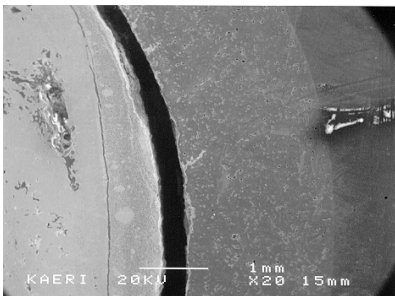
(b)



(c)



(d)



(e)

그림 2. 흑연도가니 내벽에 slurry 도포하여 U-7%Mo와 고온 반응시킨 단면의 주사식 전자현미경 사진; (a) Holcote #110, (b) Y_2O_3 , (c) TiC, (d) Y_2O_3 + Holcote #110, (e) TiC + Holcote #110.

3.1.2. Al_2O_3 도가니

Al_2O_3 도가니는 승온 및 냉각시 열충격성이 양호하여 U-7wt.%Mo 원심분무 후에 열충격으로 인한 균열은 발생되지 않았다. 그림 3에서 나타내 보여 주는 바와 같이 도가니/U-Mo 용탕간 반응층이 형성되지 않았다. 승온시 2분 정도 소요된 $1550^{\circ}C \sim 1600^{\circ}C$ 구간에서 진공도가 1×10^{-2} torr에서 1.8×10^{-2} torr로 약간 하락하였으며, 도가니 경사부 외벽에 노란색을 띠는 반응생성물이 형성하였다. 이것은 Al_2O_3 도가니와 흑연 susceptor 간의 반응 또는 Al_2O_3 도가니의 증발에 기인한다고 생각된다. 제조된 U-7wt.%Mo 원심분무분말은 ZrO_2 도가니 사용시와 마찬가지로 구형의 미세분말이 제조되었다.

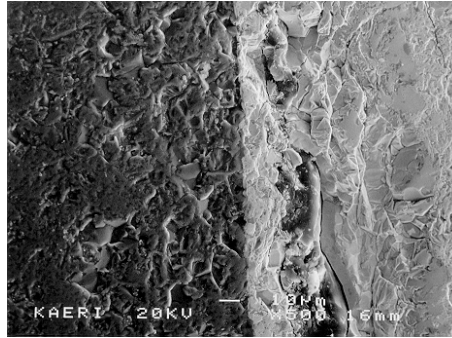


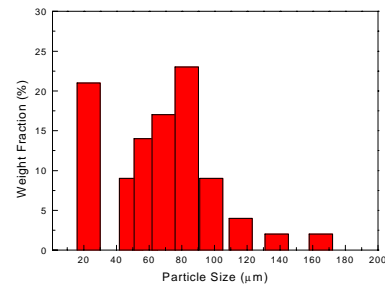
그림 3. 원심분무후의 Al₂O₃ 도가니와 U-7wt.%Mo 간의 계면에 대한 주사식 전자현미경사진.

3.1.3. Si₃N₄ 회전 원반

Si₃N₄ 회전 원반은 나사식으로 직경 40mm 흑연 원반과 거의 동일하게 설계, 제조되었다. 3회까지 U-7wt.%Mo 합금의 원심분무후에도 회전속도 25,000rpm 정도의 고속으로 사용되었음에도 불구하고, 원심분무중에 파손이 발생되지 않았다. 또한 1600℃ 정도의 U-7wt.%Mo 용탕에 의한 침식도 발생되지 않았다. 원심분무 분말내에 불순물 함량이 Si 283 ppm, N 5 ppm, C 145 ppm으로 불순물이 크게 혼입되지도 않았다. 물론 흑연디스크와 마찬가지로 125μm 이하의 적정크기 분말 회수율 96%로서 미세한 구형분말이 제조되었다.



(a)



(b)

그림 4. 원심분무후 Si₃N₄ 원반(a) 및 U-7wt.%Mo 분말의 입도분포도(b).

3.2. 회전 전기모터

원심분무용 국산 고주파 air bearing 전기모터를 그림 5와 같이 설계, 제작하여 시운전한 결과, 최대회전속도 38,000rpm까지 성공적으로 회전시험을 수행하였다. 국산 air bearing 전기모터의 주요 사양을 살펴보면, 치수는 Ø76mm-L433mm으로, 현재 영국 Westwind 회사 제품의 전기모터치수인 Ø90mm -

L435mm와 비교해 보면, 직경이 약간 작다. 회전력은 국산 전기모터는 2.2 kW로서 영국 Westwind 회사 제품의 회전력 2 kW와 거의 유사하다. 회전속도도 국산 전기모터는 30,000rpm로서 영국 Westwind 회사 제품과 동일하다. 공급 공기압력은 4.5 kg/cm^2 로서 영국 Westwind 회사 제품의 공기압력인 5.6 kg/cm^2 보다 약간 낮다. Radial failure load는 45kg 으로서 영국 Westwind 회사 제품의 failure load인 36kg 보다 약간 높게 설계되어 안전하게 설계되었다. 고온에서 원심분무함으로 특별사양으로 cooling fin을 설치하여 collet 부위가 과도하게 승온되지 않도록 하였다.

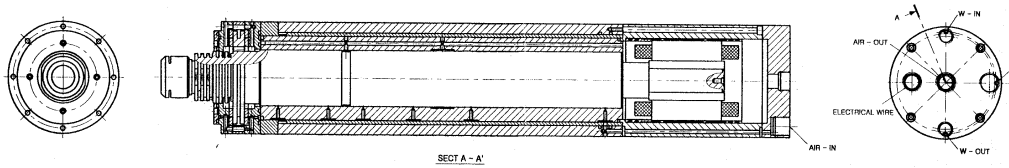


그림 5. 원심분무용 국산 고주파 air bearing 전기모터.

3.3. 가스 냉매 사용시의 핵임계도 및 유도코일 온도상승 예측

3.3.1. Freon을 냉각제로 사용한 경우의 원심분무장치에 대한 핵임계도 계산

경우 1에서는 $k\text{-eff} = 0.33001 \pm 0.01402$ 이었으며, 경우 2에서는 $k\text{-eff} = 0.59627 \pm 0.02937$ 이었다. 위의 결과와 같이 물에 의한 사고의 경우가 핵임계도 측면에서는 더 위험하게 나타났다. 프레온을 구성하는 물질(H,C,F)은 각각의 감속 능력은 뛰어나지만, 수밀도가 적어 중성자의 산란반응률에 물보다는 많은 영향을 못 미치는 것으로 판단된다. 따라서 핵임계 안전성 평가의 경우에는 수분의 침투 사고를 가정하여야 할 것으로 생각된다.

3.3.2. 가스냉각식 유도코일로 모델링하여 온도상승 예측

승온시험 결과, 유도코일 승온온도(ΔT)는 정상출력시 13°C , full power시 23°C 이었다. 유도용해로체의 승온온도 (ΔT)는 전력투입조건과 상관없이 1°C 이었다. 유도코일 냉각재로 He 가스 사용시 승온온도 (ΔT)를 50°C 이하로 제한하기 위해서는 그림 6에 나타낸 바와 같이 약 15 kg/min 의 기체공급속도가 요구된다.

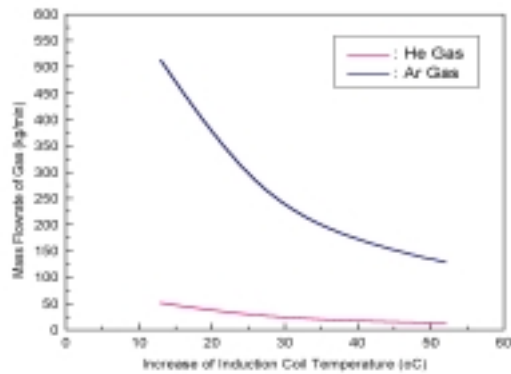


그림 6. 유도코일온도 상승에 따른 가스공급유량.

3.4. 생산용 원심분무장치 기본 설계

생산용 원심분무장치는 ① atomizing chamber, ② melting and pouring system, ③ evacuation system, ④ cooling gas system, ⑤ disk driving system, ⑥ control system, ⑦ powder collection system 으로 크게 구성되어있다. Atomizing chamber 부에서는 유도가열로 도가니를 가열하고, 핵임계관리를 고려하여 냉매로는 flour gas를 사용하도록 하였다. Melting 및 pouring system 부에서는 batch type 원심분무시는 하주식, 연속 원심분무시는 경동식으로 출탕하도록 하였다. Evacuation system 부에서는 rotary pump와 mechanical booster pump를 사용하여, 최대 도달진공도는 5×10^{-4} torr가 되도록 하였다. Cooling gas system 부에서는 냉각재로 Ar or He를 사용하며, 균일하게 분사되도록 하였다. Disk driving system에서는 회전력 2 kW 및 최대회전속도 40,000 rpm을 가지는 전기모터를 설치하며, 회전원반 교체 및 모터 수리 시에는 하부방향으로 이동되도록 하였다. Induction power supply 부에서는 발진 주파수를 약 3 kHz를 가지며, 유도코일에 대한 냉매는 flour gas를 순환하여 사용하도록 하였다. Control system 부에서는 (1) vacuum control, (2) disk driving control, (3) crucible 및 tundish에 대한 가열 control, (4) cooling gas control, (5) melt pouring control이 되도록 하였다. Powder collection system 부에서는 다단계 cyclone을 사용하여 hefa filter를 통과 하는 분말방출율이 0.001% 이하가 되도록 하였다.

4. 결 론

- 1) Holcote #110, Y_2O_3 , TiC, Y_2O_3 + Holcote #110 및 TiC + Holcote #110 도포재를 흑연도가니에 slurry 도포하여 1600°C에서 U-7%Mo 합금과의 열적 양립성을 조사한 결과, Y_2O_3 도포재와 TiC 도포재가 건전한 도포층 상태와 우수한 양립성을 보여 주었다.
- 2) Al_2O_3 도가니는 승온 및 냉각시 열충격성이 양호하여 U-7wt.%Mo 원심분무 후에 열충격으로 인한 균열은 발생되지 않았으며, 도가니/U-Mo 용탕간 반응층도 형성되지 않았으나, Al_2O_3 도가니와 흑연 susceptor 간의 반응 및 Al_2O_3 도가니의 증발이 약간 발생하였다.
- 3) Si_3N_4 회전 원반은 3회까지 사용하여 U-7wt.%Mo 합금을 원심분무한 후에도 파손되지 않았으며, 1600°C 정도의 U-7wt.%Mo 용탕에 의한 침식도 발생되지 않았다. 원심분무분말 내에는 Si_3N_4 회전 원반으로부터 불순물이 거의 혼입되지도 않았다. 125 μ m 이하의 적정크기 분말 회수율 96%의 미세한 구형분말을 제조할 수 있었다.
- 4) 원심분무용 국산 고주파 pulse air bearing 방식의 전기모터를 설계, 제작, 시운전한 결과, 최대회전속도 38,000rpm까지 성공적으로 회전시험을 수행하였다.
- 5) Freon을 냉각재로 사용한 경우의 원심분무장치에 대한 핵임계도 계산한 결과, 냉각수 사용시 사고의 경우 보다 오히려 핵임계도 측면에서는 더 안전한 것으로 나타났다.
- 6) 가스냉각식 유도코일로 모델링하여 유도코일의 온도상승을 예측한 결과, 유도코일 냉각재로 He 가스 사용시 승온온도 (ΔT)를 적정 이하로 제어하기 위한 공급속도가 계산되었다.
- 7) 상용화용 원심분무장치의 기본설계를 수행하여, 원심분무장치의 고성능화 및 안전성이 향상되도록 설계하였다.

감사의 글

본 결과는 과학기술부의 원자력연구개발 중장기계획사업의 일환으로 연구로용 개발과제에서 수행한 것으로 연구비 지원에 대하여 감사드립니다.

참고 문헌

- 1) C. K. Kim et al., Proc. 14th International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Jakarta, Indonesia, November 4-7, 1991.
- 2) W. S. Ryu, J. M. Park, C. K. Kim, I. H. Kuk, Proc. of the 17th International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Williamsburg, Virginia, USA, September 18-23, 1994.
- 3) K.H. Kim, D.B. Lee, C.K. Kim, G. Hofmam, K.W. Paik, J. Nucl. Mater. 245 (1997) 179.
- 4) W. Hwang et al., J. the Korean Nuclear Society, vol. 24, No.1 (1992).