

2000 추계학술발표회 논문집

한국원자력학회

Attrition milling cycle 이 (U,Ce)O₂ 분말의

특성, 성형 그리고 소결에 미치는 효과

The Effect of Attrition Milling Cycles on Powder Characteristics, Compaction and Sintering of (U,Ce)O₂

나상호, 김시형, 이영우, 정창용, 김한수

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

Attrition milling 회수에 따른 혼합산화물[UO₂-5wt%CeO₂] 분말의 특성, 성형 그리고 소결에 미치는 효과를 조사하였다. 밀링회수가 증가할수록 분말의 겉보기밀도는 증가하는 경향을 나타내는 반면에 분말의 입자크기는 감소하는 경향을 보여주나 6회 이상에서는 약 0.4 μ m 으로 포화되는 것으로 나타났다. 밀링회수가 증가될수록 동일한 성형압력하에서 성형밀도와 소결밀도는 증가되는 경향을 나타내었다. 그러나 밀링회수가 많은 경우(8회), 성형압력이 증가할수록 성형밀도는 증가하나 소결밀도는 감소하는 경향을 보여주었다. 결정립크기는 밀링회수가 증가할수록 고르게 분포되는 경향을 보여주었다.

Abstract

The Effects of attrition milling cycle have been investigated on the change of powder characteristics, compaction behavior and sinterability of the mixed oxide powder[UO₂-5wt% CeO₂]. The apparent density of powder increased as the milling cycles increased. On the other hand, the particle size decreased as the milling cycles increased, but the decrease in particle size is saturated to about 0.4 μ m above 6 cycles. In the case of 8 milling cycles, it appeared that the green density increased with the compaction pressure, but the sintered density decreased. The size of grains is uniformly distributed as the milling cycle increased.

1. 서론

혼합핵연료용 소결체는 일반적으로 분말처리, 성형 및 소결공정으로 이루어진 분말야금방법으로 제조된다. 분말처리에 따른 분말의 특성, 특히 분말입자크기 및 형태는 분말의 성형성이나 소결성에 크게 영향을 미치는 것으로 잘 알려져 있다[1,2]

분말입자크기를 기계적으로 미분쇄시키는 방법에는 여러 가지가 보고되고 있으며, 이중에서도 attrition milling 은 2가지 이상의 산화물분말을 사용할 경우, 분말의 미분쇄 뿐만 아니라 산화물 분말을 효과적으로 균일하게 혼합시키는 것으로 알려져 있다[3-5].

본 실험에서는 경수로용 혼합산화물 핵연료인 [(U,Pu)O₂] 대신에 이와 고온 열적 성질이 유사한 모의 혼합산화물인 (U,Ce)O₂ [5wt%CeO₂] 를 사용하여 attrition milling 방법에 의한 밀링회수가 혼합산화물 분말의 특성, 성형 그리고 소결에 미치는 영향을 조사하였다.

2. 실험 방법

ex-DC 감손 UO₂ (BNFL)분말에 CeO₂를 5wt% 첨가하여 Tubula mixer에서 2시간 혼합한 후, attrition mill을 이용하여 매회 밀링 10분(ball size ; 8mm, 150rpm), sieving 15분(35mesh) 하여 이를 8회까지 반복하였다. 성형체는 유압프레스를 이용하여 제조하였으며, 소결은 수소분위기, 1700℃에서 6시간 하였다.

분말의 겉보기밀도는 ASTM B212-89 Hall flowmeter를 이용하여 측정하였으며, 분말의 입자크기는 Malvern Mastersizer/E(laser light scattering 방법)을 이용하여 측정하였다. 성형밀도는 기하학적 방법으로, 소결밀도는 수침법으로 측정하였다. 소결체의 결정립크기는 linear intercept method 로 측정하였다.

3. 결과 및 토의

가. 밀링회수에 따른 분말의 겉보기밀도와 평균입자크기

그림 1에 밀링회수에 따른 분말의 평균 겉보기밀도와 평균입자크기를 도시하였다. 그림에서 보는 바와 같이 밀링회수가 증가할수록 분말의 겉보기밀도는 계속 증가하는 경향을 보여주고 있는 반면에, 분말의 입자크기는 밀링회수가 증가할수록 감소하는 경향을 보여주지만 6회 이상의 밀링에서는 약 0.40 μ m 로 포화됨을 보여준다. 이는 밀링회수가 증가되어도 어느 회수 이상에서는 더 이상 분말이 미분쇄되기 어려움을 의미하며, 또한 밀링회수가 증가할수록 분말의 겉보기밀도가 증가하는 것은 미분쇄된 분말이 균집화(agglomerate)되는 현상에 기인되는 것으로 사료된다.

나. 밀링회수에 따른 성형밀도와 소결밀도 그리고 결정립크기

그림 2는 밀링회수(5회와 8회)에 따른 동일한 조건(성형압력 ; 300 MPa, 소결조건 ; 1700℃, 수소분위기)하에서 제조한 펠렛의 성형밀도와 소결밀도의 상관관계를 도시한 것이다. 그림에 나타난 바와 같이 밀링회수가 증가할수록 성형밀도와 소결밀도는 증가하는 경향을 보여준다. 이는 앞에서 언급한 바와 같이 밀링회수증가에 따른 분말의 겉보기밀도와 분말의 입자크기가 영향을 미치는 것으로 사료된다.

그림 3은 밀링회수(5회와 8회)에 따른 미세조직사진을 나타낸 것이다. 그림 3-1, 2 그리고 3 은 5회 밀링하여 제조한 펠렛의 조직사진을 나타낸 것으로, 결정립크기가 균일하지 않으며, 일부의 결정립에서는 미세한 작은 결정립들이 군집되어 있음을 보여준다(그림 3-1). 또한, 일부에서는 미세한 결정립과 조대한 결정립사이에 균열이 존재함을 알 수 있다(그림 3-2와 그림 3-3(이 사진은 그림 3-2를 확대한 사진이다)). 반면에 8회 밀링한 경우에는 결정립크기가 약 4 μ m이며, 전반적으로 균일하게 분포되었음을 보여준다. 결과적으로 결정립크기를 균일화하기 위해서는 8회 정도의 밀링이 필요할 것으로 사료된다.

다. 일정한 밀링회수에서 성형압력에 따른 성형밀도와 소결밀도의 상관관계

그림 4는 8회 밀링한 분말을 성형압력변화(100, 200, 300MPa)에 따른 성형밀도와 소결밀도의 상관관계를 도시한 것이다. 그림에서 나타난 바와 같이 성형압력이 증가할수록 성형밀도는 증가하는 경향을 보여주는 반면에, 소결밀도는 감소하는 경향을 보여준다. 일반적으로 성형압력이 증가할수록 성형밀도와 소결밀도는 증가하는 경향을 나타낸다. 그러나 본 실험의 결과는 성형압력이 증가할수록 성형밀도는 증가하나 소결밀도는 감소하는 경향을 나타내었다. 이는 밀링회수가 증가할수록 분말이 과도한 stress를 받아 소결시에 영향을 주어 소결밀도에 영향을 미친 것으로 사료된다. 따라서 밀링회수가 증가할수록 성형압력은 가능한 한 낮추는 것이 바람직한 것으로 판단된다.

4. 결론

- 1) 밀링회수 증가에 따라 분말의 겉보기 밀도는 계속 증가하는 경향을 보여주는 반면에, 분말입자크기는 6회 이상에서는 약 0.4 μ m 정도로 포화되었다.
- 2) 8회 밀링한 분말의 성형밀도와 소결밀도는 5회 밀링한 것보다 크게 나타났다.
- 3) 5회 밀링한 펠렛의 결정립크기는 불균일한 분포를 보여주며, 또한 미세결정립과 조대 결정립사이에 미세한 균열이 발생하였다. 반면에 8회 밀링한 펠렛의 결정립 크기는 균

일하게 분포되었다.

- 4) 8회 밀링한 펠렛의 성형밀도는 압력이 증가할수록 증가한 반면에 소결밀도는 감소하는 경향을 나타내었다.
- 5) 결론적으로 최적의 크립시험용 시료를 제작하기 위해서는 8회정도의 밀링이 효과적이며, 성형압력은 가능한 한 작게 하는 것이 양호할 것으로 사료된다.

Acknowledgement

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었음.

참고 문헌

- [1] Joel S. Hirshhorn, Introduction to Powder Metallurgy, 1st ed., p. 46, American Powder Metallurgy Institute, USA, (1969)
- [2] M.E. Fayed and L. Otten, Handbook of Powder Science and Technology, 1st ed. p. 563, Van Nostrand Reinhold Company, (1984)
- [3] H.S. Kim et al., Korean J. of Material Research, vol.3, No.3(1993)245
- [4] H.S. Kim et al., J. Korean Nucl., Soc., vol. 28, No. 5(1996)458
- [5] 김시형 등, '95춘계학술발표회, 한국원자력학회, 1995.5.26-27, 울산

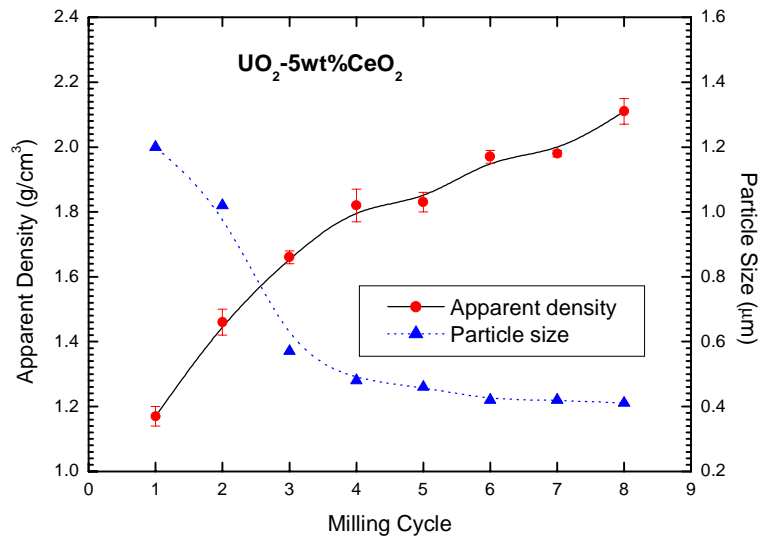


그림 1. 밀링회수에 따른 분말의 겉보기밀도와 입자크기

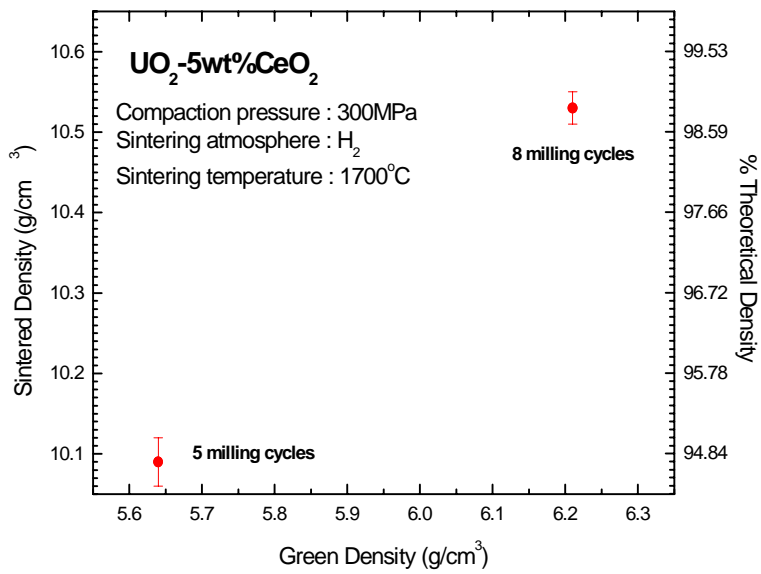


그림 2. 밀링회수(5회와 8회)에 따른 성형밀도와 소결밀도

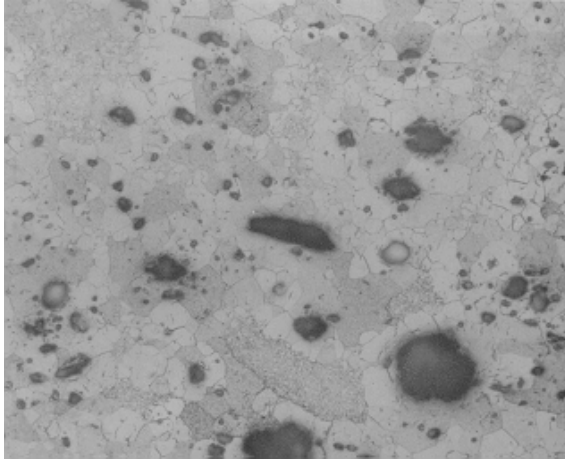


그림3-1. 5회 밀링한 펠렛의 조직사진(500×)

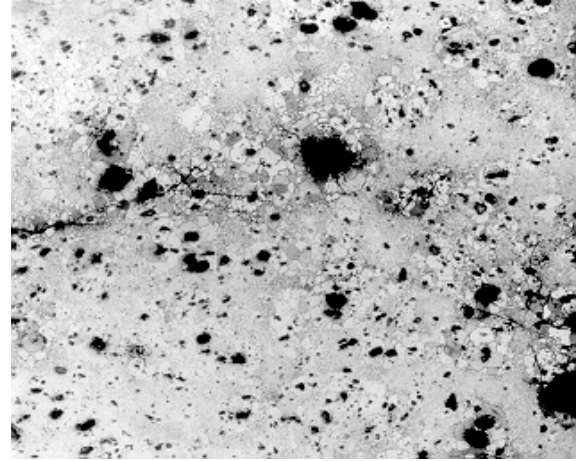


그림3-2. 5회밀링한 펠렛의 조직사진(200×)

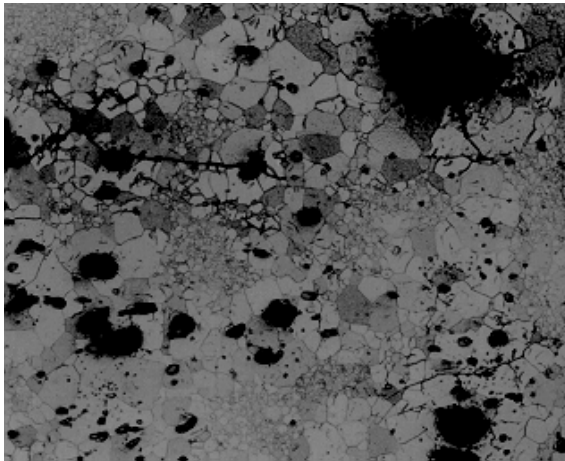


그림3-3. 5회밀링한 펠렛의 조직사진(500×)

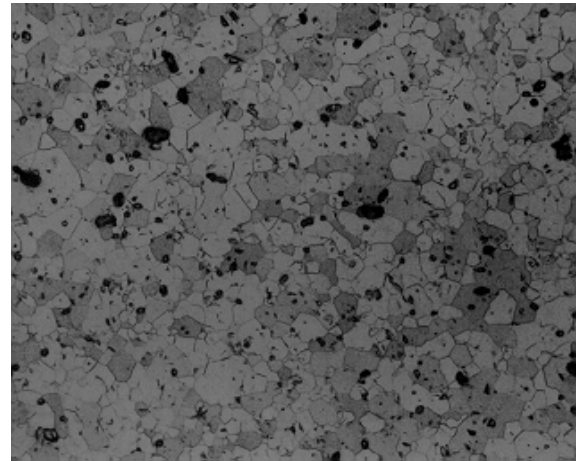


그림3-4. 8회 밀링한 펠렛의 조직사진(500×)

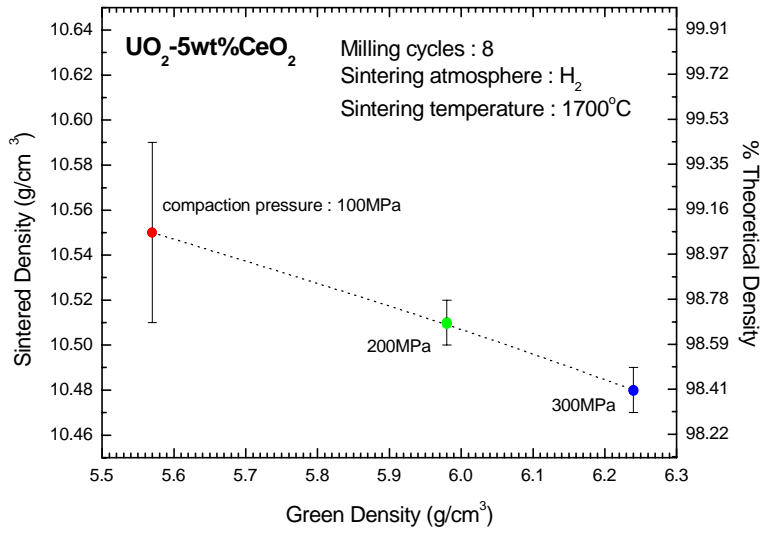


그림 4. 성형압력변화에 따른 성형밀도와 소결밀도