

연구로용 U_3Si/Al 핵연료 분말 혼합체의 균질도 평가 기술 개발

손용희, 홍순형

한국과학기술원

김창규*, 김기환*, 고영모*

한국원자력연구소

요 약

Uranium silicide는 우수한 조사안정성을 가지는 유망한 연구로용 저농축 분산형 핵연료 소재이나 상대적으로 낮은 uranium 함량으로 인해 고출력에 필요한 $8\sim 9g-U/cm^3$ 정도의 uranium 충전 밀도를 얻기 위해서는 Al기지내에 uranium silicide 핵연료 입자의 부피분율을 높여주는 것이 필요하다. 핵연료 입자의 부피분율을 높이기 위하여는 핵연료봉의 Al 기지내에 핵연료 입자가 균일하게 분포되어야 한다. 균질한 핵연료 심재를 제조하기 위해서는 핵연료 입자와 알루미늄과의 균일한 혼합이 중요하며 이러한 혼합체내의 분말에 대한 균질도를 정확히 평가하는 방법의 개발이 필요하다. 본 연구에서는 혼합분말의 충전시 겉보기 밀도 측정을 통한 조성의 표준편차를 구하는 방법과 X-ray image 분석법을 새로운 균질도 평가방법으로 제시하였다. 구형의 U_3Si 분말과 Al분말의 혼합시 drum 회전법의 경우에는 밀도차에 의한 segregation이 발생되고 있으나, Spex mill 혼합법의 경우에는 균질도가 향상되었다. $45\sim 150\mu m$ 의 분말크기 분포를 갖는 구형 U_3Si 의 경우가 작은 입자들이 큰 입자들 사이를 효과적으로 채울 수 있기 때문에 균일한 분포를 갖는 것으로 생각되며, 밀도차가 큰 U_3Si 의 경우는 밀도차가 작은 구형 Cu-Sn혼합체에 비해 균질도가 저하됨을 확인하였다. 겉보기 밀도 측정에 의한 균질도 측정평가와 X-ray image 분석법과의 관계에서는 같은 경향성을 찾을 수 있었다.

1. 서 론

연구로용 원자로의 핵연료로서 고농축 U-Al 합금이 주로 사용되었으나, 핵확산 방지를 위하여 미국의 DOE를 주축으로 하여 1978년부터 RERTR program을 구성하여 저농축우라늄 핵연료를 개발하기 시작하였다. 그러나 uranium silicide 분산 핵연료는 프랑스 RHF 및 Orphee, 벨기에의 BR-2등과 같은 고출력, 고중성자속을 요구하는 원자로에 대하여는 저농축 핵연료로 전환할 수 없는데 이러한 연구로를 완전히 저농축우라늄 원자로로 전환하기 위해서는 U-loading $8\sim 9g-U/cm^3$ 의 핵연료가 필요하기 때문이다[1]. 보다 고연소도시 안정성을 나타내며 더 높은 우라늄 밀도의 LEU 분산핵연료 개발이 필요하고, 이에 대해 기본적으로 두 가지 방안을 생각해 볼 수 있다.

첫 번째 방안은 분산 핵연료로 제조될 수 있고 안정한 조사 거동을 가지는 우라늄 함량이 높은 안정한 우라늄 화합물을 개발하는 것이다. 두 번째 방안은 우라늄화합물 핵연료 분말을 지기내에

균일하게 분포시켜 핵연료의 부피분율을 최대화하는 것이다. 따라서 핵연료 입자의 최대 부피분율을 얻기 위해서는 성형성이 우수하면서 핵연료봉 내의 핵연료 입자가 균일하게 분포되어야 한다. 균질한 핵연료 심재를 제조하기 위해서는 핵연료 입자와 알루미늄과의 균일한 혼합이 중요하다. 현재 캐나다 등에서 사용되는 U_3Si 분말은 진공유도용해후 pressing을 통하여 제조되어 비정형 형태를 가진다. 그러나 uranium silicide 핵연료 제조시 힘든 파쇄공정을 제거하기 위해 한국원자력 연구소에서 창안된 원심분무법을 적용하여 핵연료 제조공정을 간편하게 하고 구형분말 제조 및 급속응고 효과 등을 이용하여 핵연료 특성을 향상시킬 수 있다고 생각된다.

본 연구에서는 U_3Si 핵연료 분말의 충전밀도를 높이기 위한 균질혼합방법을 연구하였으며 혼합 핵연료의 균질도를 정량적으로 평가할 수 있는 기법을 개발하고자 하였다.

2. 실험방법

균질한 혼합체를 얻기 위하여 off-axis rotating drum mixer, Spex mill의 두가지 혼합장치를 이용하여 평균크기 $20\mu m$ 의 알루미늄 분말과 원심분무법에 의해 제조된 구형의 U_3Si 분말을 사용하였다. Fig 1은 본 혼합실험에 사용된 분말의 형태를 보여주고 있다. Off-axis rotating drum mixer는 회전축에 40° 기울어진 drum으로 혼합시 50vol%의 U_3Si 를 전체 혼합체는 $50cm^3$ 부피를 기준으로 하여 50rpm의 속도로 전체 혼합을 실시하였다. 또한 Spex mill은 50vol%의 U_3Si 를 전체 혼합체는 $10cm^3$ 부피를 기준으로 하여 약 1700rpm의 속도로 전체 혼합을 하였다. 혼합시간은 1분에서 2시간까지 실시하였다. 균질도 측정을 위하여 두가지 방법을 실시하였는데 첫 번째는 균질도의 일정한 부피의 용기에 대해 무게측정을 통하여 조성을 측정하는 방법으로 혼합시간에 따라 시료를 샘플링 하였다. 이때 무게 측정을 위해 off-axis rotating drum mixer와 Spex mill의 경우 각각 $4.08cm^3$ 과 $1.00cm^3$ 의 부피를 갖는 용기를 사용하였으며, 각각의 샘플링하여 측정된 결과를 겉보기 밀도를 측정하여 혼합시간에 따른 조성의 표준편차를 측정하여 균질도를 측정하고자 하였다. 또 다른 방법은 혼합체 전체의 조성의 차이를 균질도의 강도로 표시하는 방법으로 혼합체로부터 샘플링을 한 후 각각에 대하여 X-ray투과실험을 하였다[2]. X-ray 촬영은 Rigaku사의 Redroflux 250EG장치를 사용하였으며 X-ray 발생원파 sample간의 거리는 60cm였으며, 이때 사용한 film은 Fuji #100을 사용하였다. 이후 본 연구실에서 개발한 투과사진의 contrast를 정량화할 수 있는 software를 이용하여 X-ray 사진의 contrast를 통한 균질도 평가를 하였다.

3. 결과 및 고찰

혼합체내에서 채취한 샘플이 다른 곳과 같은 성분이나 같은 특성을 나타낸다면 그 혼합체는 균질하다고 할 수 있다. 실제로 샘플의 수가 충분히 크다면 모든 혼합체에 위의 가정이 적용된다. 따라서 가장 높은 균질도를 얻는다는 것은 모든 샘플들에 대하여 같은 성분분율을 얻었을 때이다. 이러한 가정하에서 균질도를 측정하기 위해서 본 연구에서는 크게 두가지 방법을 사용하였다. 첫 번째 방법은 균질도의 조성을 정확히 측정하는 방법으로 혼합시간에 따라 시료를 일정한 부피로 샘플링하여 그 밀도를 측정하는 것이다. 이론적으로 생각해보면 A, B의 두 혼합체를 고려할 때, 각각의 부피분율은 다음과 같이 나타낸다.

$$X_A = \frac{V_A}{V_A + V_B} \quad (1-a)$$

$$X_B = \frac{V_B}{V_A + V_B} \quad (1-b)$$

$$W = W_A + W_B, \quad V = V_A + V_B \quad (1-c)$$

라고 놓는다. 이때 W , W_A , W_B 는 혼합체의 전체 무게 및 각각의 분말의 무게이고, V , V_A , V_B 는 전체부피 및 각각의 부피이다. 이때 부피가 v 로 일정한 용기에 w 만큼의 양을 샘플링을 하였을 때의 겉보기 밀도는 $\rho_i = \frac{w_i}{v}$ 이고 i 번째에서의 샘플링내에서 조성분율은 $X_{B,i} = \frac{\rho_i - \rho_A}{\rho_B - \rho_A}$ 이다.

이때 ρ_A 와 ρ_B 는 A와 B의 각각의 겉보기 밀도이다. 그러므로 N 번을 샘플링을 하여 혼합체 전체를 샘플링 하게되면 다음과 같은 식으로 표현할 수 있다.

$$\frac{\sum_{i=1}^N X_{A,i}}{N} + \frac{\sum_{i=1}^N X_{B,i}}{N} = X_A + X_B = 1 \quad (2)$$

그러므로 각각의 샘플링한 것의 조성을 측정함으로써 샘플전체에 대하여 샘플링을 하여 그 값들의 표준편차를 구한다. 이때의 표준편차는 다음과 같이 구할 수 있다.

$$s = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (X_i - X_A)^2} \quad (3)$$

따라서 균질도를 정량화하기 위해서는 샘플링한 시편의 표준편차에 대한 완전히 혼합된 혼합체의 이론적인 표준편차와의 비로 균질도로 표현할 수 있다[3].

Fig.2는 off-axis rotating drum mixer와 Spex mill의 혼합장치에 따라 밀도측정에 의해 원심분무에 의해 제조된 구형 U_3Si 입자와 알루미늄입자를 혼합한 후의 조성의 표준편차를 측정 결과를 나타낸다. Fig.2(a)는 구형 U_3Si 입자의 크기가 45-150 μm 의 크기분포를 가지는 경우의 혼합체의 균질도를 보여주고 있다. 두 혼합장치에 대하여 모두 혼합초기에 혼합체가 균질도가 급격히 향상되고 있음을 볼 수 있다. 그러나 Spex mill 장치가 off-axis rotating drum mixer에 비해 혼합효율이 더 우수함을 볼 수 있다. Fig 2(b)는 각각의 혼합장치에 대한 입자크기 효과를 보여주고 있는데 구형 U_3Si 가 단일크기의 입자보다는 입자크기분포를 갖는 경우가 균질혼합거동을 나타내고 있다. Fig 3은 도식적으로 입자의 분포를 갖는 경우의 혼합체와 단일크기의 입자를 가질 경우의 혼합체를 나타내었는데 혼합시 단일입자를 갖는 경우는 입자들 간의 접촉으로 인해 빈 공간을 효과적으로 채울 수 없는 반면에 입자크기분포를 갖는 경우는 큰 입자사이의 공간을 작은 입자들이 들어가 공간을 채울 수 있기 때문으로 생각된다[4]. Fig 2(b)는 평균입도 100 μm 인 구형의 Cu-11Sn과 U_3Si 분말을 각각 Al과 혼합하였을 경우의 혼합체의 혼합결과로 밀도차가 Al에 비해 더욱 큰 U_3Si 입자의 경우가 더욱더 혼합체의 segregation을 일으킬을 알 수 있는데 이때 Cu-11Sn은 겉보기 입도가 5.07g/cm³이었으며 U_3Si 분말은 8.84g/cm³이었다.

혼합체의 균질도 평가를 위해 또 다른 방법으로 X-ray image 분석법을 실시하였다. Fig 4(a)-(e)는 X-ray image 분석법에 의한 균질도 측정을 위하여 50vol%의 구형 U_3Si 분말을

off-axis rotating drum mixer로 1분에서 60분까지의 시간변화에 따라 혼합한 후의 X-ray 사진 결과를 보여주고 있다. 이를 본 연구실에서 개발한 프로그램을 사용하여 15×15 개의 픽셀(pixel)로 나누고 각각의 색깔의 tone을 흑화도를 기준으로 0에서 255까지 세분화하였으며 색깔의 tone을 25 간격으로 나타낸 결과를 Fig 4(f)-(j)로 나타내었다. 색깔 tone이 0으로 갈수록 U_3Si 함량이 증가하는 것이고 255에 가까울수록 Al함량이 많은 것을 의미한다. 이렇게 수치화된 데이터들을 균질도 측정을 위하여 전체 흑화도에 대하여 각각의 pixel에 대하여 표준편차를 측정된 결과를 겉보기 밀도 측정에 의한 결과와 비교하였다. Fig 5에서 보듯이 겉보기 밀도에 의해 측정된 결과와 X-ray image 분석법에 의해 측정된 결과가 비슷한 경향성을 보이고 있다. 그러나 정확한 결과의 비교를 위해서는 X-ray 측정을 위한 샘플이 각각의 시간에서의 혼합체를 대표할 수 있는 샘플링 방법이 개선되어야 할 것으로 판단된다.

4. 결 론

- 1) 핵연료제조를 위해 분말 혼합체의 균질도를 정량적으로 평가하기 위하여 겉보기 밀도 측정에 의한 조성편차를 통해 평가하는 방법과 X-ray image processing을 통해서, 균질도를 평가할 수 있었다.
- 2) 혼합체의 $45-150\mu m$ 의 분말크기분포를 갖는 구형 U_3Si 의 경우가 평균 $100\mu m$ 의 입자크기를 갖는 경우보다 더 균일한 분포를 갖는데 이는 작은 입자들이 큰 입자들 사이를 효과적으로 채울 수 있기 때문으로 생각되며, 평균입자 $100\mu m$ 의 동일한 크기를 갖는 구형 Cu-11Sn과 비교한 결과 Al과 밀도차가 더 큰 U_3Si 의 경우가 불균일하게 나타났다.
- 3) 구형의 U_3Si 분말과 Al분말의 혼합시에는 밀도차에 의한 segregation이 발생되고 있으나 off-axis rotating drum 혼합법보다는 Spex mill 혼합법이 좀더 균일한 혼합체를 얻을 수 있었다.

5. 참고문헌

- 1) G. L. Copeland, G. L. Hofman, J. L. Snelgrove, in Proceedings of International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Gatlinberg, Tennessee, U.S.A., Nov. 3-6, 1986. ANL/RERTR/TM-9.
- 2) Dean Brone, Carolyn Wightman, Kevin Connor, Albert Alexander, F. J. Muzzio, Powder Technology, Vol.91, 1997, p.165-172
- 3) M. Poux, P. Rayolle, J. Bertrand, D. Bridoux and J. Bousquet, Powder Technology, Vol.68, 1991, p.213-234
- 4) Randall M. German and Matthew Bulger, International Journal of Powder Metallurgy, Vol. 28, No. 3, 1992, p.301-311

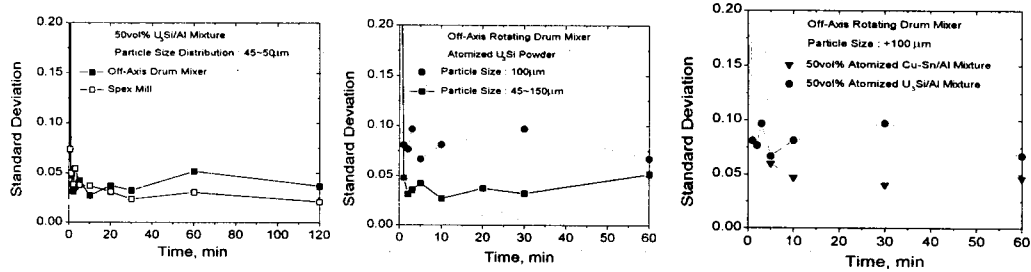


(a)

(b)

(c)

Fig. 1 The SEM micrographs show the (a) atomized U_3S powder, (b) Cu-11Sn powder and (c) Al powder.

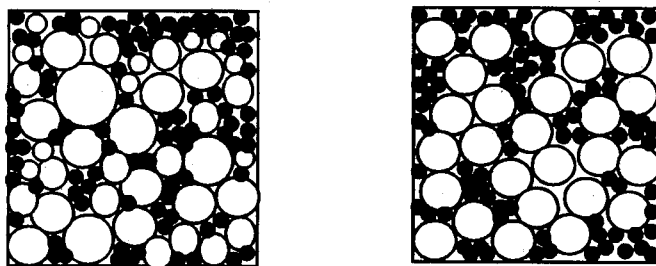


(a)

(b)

(c)

Fig. 2. Variation of the standard deviation is shown by measuring apparent density with varying the mixing time. Note that the effects of (a) mixer type, (b) particle size and (c) density difference of particles are shown.



(a)

(b)

Fig. 3 This figure shows the schematic diagram for powder packing of homogeneous mixture. The particle size distribution is 45-150µm(a) and average particle size is 100µm(b).

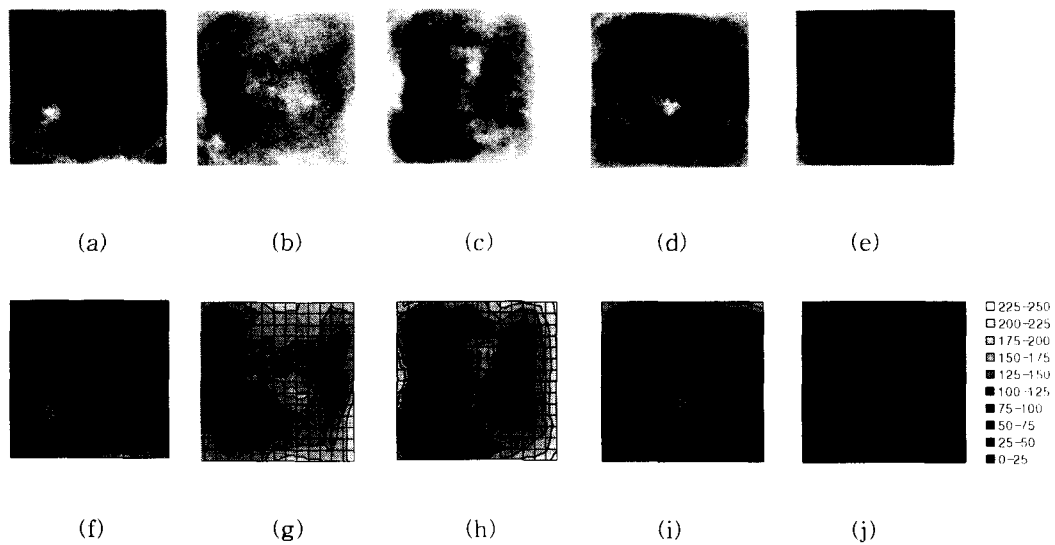


Fig. 4. The X-ray micrographs of U_3Si and Al mixture is shown to (a)-(e) and the X-ray image processing results is shown to (f)-(g) with varying the mixing time. (a) 1min, (b) 2min, (c) 5min, (d) 30min and (e) 60min.

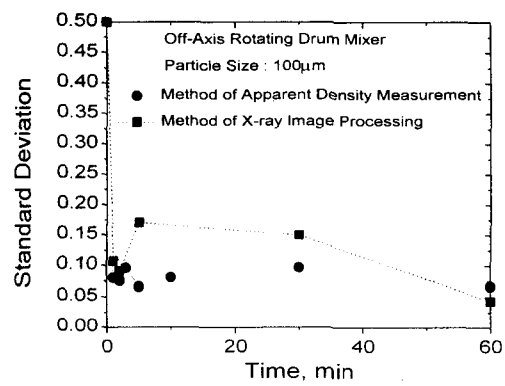


Fig. 5. Variation of the standard deviation is compared with the results by (a) measuring apparent density and (b) X-ray image processing with varying the mixing time.