

## 원심분무법에 의한 구형 U-Mo 분말 제조기술에 관한 연구

### (A Study on the Fabrication Technology of Spherical U-Mo Powders by Centrifugal Atomization Method)

한국원자력연구소 김기환\*, 장세정, 김용수, 이운상, 김창규

#### 1. 서 론

한국원자력연구소에서는 하나로 핵연료의 국산화 개발과정에서 기존의 제조방법을 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 구형 핵연료분말이 합금용탕으로부터 직접 제조되는 기술을 개발해 왔다[1-4]. 특히 원심분무 핵연료 제조기술은 고밀도 핵연료재료로 사용될 U-Mo 계 핵연료분말을 제조하는 데 있어서 기존의 파쇄공정에 비해 매우 우수한 생산성, 분말 회수율 그리고 핵연료 성능을 가지고 있기 때문에, 세계의 연구로 핵연료 그룹에서 원심분무 핵연료가 큰 관심을 모으고 있다. 이와 같은 원심분무 핵연료에 대한 본격적인 수출, 기술이전 그리고 국산화를 대비하여 원심분무 핵연료분말 제조에 대한 경제성, 품질, 안전성, 성능 등을 향상시키기 위해 원심분무 부품재료 개발, 원심분무조건 정립 및 생산용 원심분무 장치기술을 포함하는 원심분무 상용화기술에 대한 개발이 요구되고 있다.

#### 2. 연구방법

용해 도가니는 지르코니아 도가니, 알루미늄 도가니 및 고온 도포재로 도포한 흑연도가니를 사용하였다. Stopper는 도가니 종류와 상관없이 흑연봉을 고온 세라믹으로 도포하여 사용하였다. 회전 모터는 pulse motor를 사용하였다. 디스크는 흑연 및 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 디스크를 도포하여 사용하였다. U-Mo 합금은 고주파유도로에서 10<sup>3</sup> ~ 10<sup>2</sup> torr의 진공 분위기로 용해한다. 도가니에서 하주식으로 출탕된 용탕은 작은 노즐을 통과하여 고속으로 회전하는 흑연디스크에 용탕을 공급하여 원심력으로 분말을 제조하게 되었다. 이때 냉각기체는 Ar gas를 사용하였다. 원심분무후 도가니 및 회전 disk는 육안으로 관찰되었다. 제조된 원심분무분말은 분급을 통하여 입도분포를 조사하고, 화학분석을 통해 분말내 불순물원소 함량을 분석하였다. 원심분무부품은 metallography 시편을 절단, mounting 하여 SEM(scanning electron microscope) 및 EDX(Energy dispersive X-ray spectroscopy)를 사용하여 반응상태를 분석하였다.

#### 3. 연구결과

지르코니아 도가니를 사용하여 제조된 U-Mo 합금 분말의 입도 분포도는 핵연료로서 사용 가능한 크기 125 μm 이하의 분말수율은 제조된 총 분무분말의 95% 이상이었다. 원심분무 U-7Mo 분말 및 U-9Mo 분말의 누적분율 50wt.%이 되는 median size는 각각 약 58 μm 및 약 64 μm이었다. 응고개시전 분말형성과정에서 표면장력이 작용하여 분무분말은 대체로 표면상태가 매끈한 구형으로 제조되었다. 평균탄소함량은 460 ppm이었으며, 그 밖의 불순물 원소의 함량도 BWXT 요구사양을 만족시켰다. 원심분무상태 U-Mo

분말은 cell 크기 5  $\mu\text{m}$  이하의 감마상 cell 조직을 가지고 있다. 원심분무 U-Mo 분말은 결정립계에서 Mo 원소의 미소편석으로 인해 cell 조직을 나타낸다고 보고된 바 있다. EDS에 의한 원심분무분말의 조성분석은 cell 경계에서 Mo 함량은 cell 내부 보다 2-3 at.% 정도 낮다는 것을 보여주었다.

Holcote #110,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ , TiC,  $\text{Y}_2\text{O}_3$  + Holcote #110 및 TiC + Holcote #110 도포재를 흑연도가니에 slurry 도포하여 1600 $^\circ\text{C}$ 에서 U-7%Mo 합금과의 열적 양립성을 조사한 결과,  $\text{Y}_2\text{O}_3$  도포재와 TiC 도포재가 건전한 도포층 상태와 우수한 양립성을 보여 주었다.  $\text{Al}_2\text{O}_3$  도가니는 승온 및 냉각시 열충격성이 양호하여 U-7wt.%Mo 원심분무후에 열충격으로 인한 균열은 발생되지 않았으며, 도가니/U-Mo 용탕간 반응층도 형성되지 않았으나,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  도가니와 흑연 susceptor 간의 반응 및  $\text{Al}_2\text{O}_3$  도가니의 증발이 약간 발생하였다.  $\text{Si}_3\text{N}_4$  회전 원반은 3회까지 사용하여 U-7wt.%Mo 합금을 원심분무한 후에도 파손되지 않았으며, 1600 $^\circ\text{C}$  정도의 U-7wt.%Mo 용탕에 의한 침식도 발생되지 않았다. 원심분무분말 내에는  $\text{Si}_3\text{N}_4$  회전 원반으로부터 불순물이 거의 혼입되지도 않았다. 125 $\mu\text{m}$  이하의 적정크기 분말 회수율 96%의 미세한 구형분말을 제조할 수 있었다. 원심분무용 국산 고주파 pulse 방식의 전기모터를 설계, 제작, 시운전한 결과, 최대회전속도 38,000rpm까지 성공적으로 회전시험을 수행하였다. 가스냉각식 유도코일로 모델링하여 유도코일의 온도상승을 예측한 결과, 유도코일 냉각재로 He 가스 사용시 승온온도 ( $\Delta T$ )를 적정 이하로 제어하기 위한 공급속도가 계산되었다. 상용화용 원심분무장치의 기본설계를 수행하여, 원심분무장치의 고성능화 및 안전성이 향상되도록 설계하였다.

#### 4. 결 론

원심분무법으로 제조된 연구로용 U-Mo 핵연료분말의 제조기술에 관한 연구가 수행되었다. 원심분무 U-Mo 핵연료분말은 높은 수율을 가졌으며, median size가 약 60 $\mu\text{m}$ 이었으며, 대체로 표면상태가 매끈한 구형으로 제조되었다. 재사용 가능한 우수한 성능을 가지는 원심분무부품 기술을 개발하기 위해, 흑연도가니 slurry 도포법,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  도가니 재료,  $\text{Si}_3\text{N}_4$  회전 원반재료 및 고속회전 전기모터기술에 관한 연구가 수행되었다. 그리고 상용화용 원심분무장치의 기본설계를 수행하여, 원심분무장치의 고성능화 및 안전화가 이루어지도록 하였다.

#### 5. 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력중장기 연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

#### 6. 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).