

## 플라즈마 침적에 의한 핵연료 제조에 미치는 변수들의 영향

정인하·배기광

한국원자력연구소

### Parameters Effect on Fabrication of Nuclear Fuel by Plasma Deposition

In Ha Jung and Ki Kwang Bae

Korea Atomic Energy Research Institute, Taejeon 305-353

(1998년 5월 6일 받음, 1998년 6월 16일 최종수정본 받음)

**초 록** 용융점 및 물리·화학적 특성이  $UO_2$ 와 비슷한 yttria-stabilized-zirconia ( $ZrO_2-Y_2O_3$ ) 분말을 유도플라즈마(induction plasma)로 용융 침적시켜 원자력발전용 핵연료펠렛 제조공정에 응용하고자 하였다. 분말의 용융정도는 플라즈마동력 및 분말의 크기에 영향을 받는 것으로 나타났으며, 쉬스가스 조성, 분말분사관 위치, 입자크기 및 분사거리 등을 최적화 하여 Ar/ $H_2$ 유량 120/20  $\ell$ /min, 플라즈마 동력 80kW, 분사관의 위치 8cm, 챔버압력 200Torr, 분사거리 18cm에서 이론밀도의 97.91%, 침적속도 20mm/min의 최적조건을 도출하였다. 침적시험에서 도출된 최적조건으로 펠렛몰더에서 제조한 펠렛은 96.5%의 밀도를 나타내었으며, 균일도 및 외관도 우수하여 신기술에 의한 핵연료의 제조가능성을 확인하였다. 고밀도 침적에 영향을 미치는 각 변수들의 영향과 이들 변수들의 상호영향은 ANOVA (Analysis of Variance)를 이용하여 분석하였다.

**Abstract** New process development of nuclear fuel fabrication for nuclear power plant was attempted by induction plasma technology with yttria-stabilized-zirconia ( $ZrO_2-Y_2O_3$ ) powder, similar to  $UO_2$ , in the respect of melting point and physicochemical characteristics. Extent of powder melting was affected greatly by plasma plate power and particle size. Being optimized such as, sheath gas composition, probe position, particle size and spraying distance, dense deposit of 97.91% T.D. with deposition rate 20mm/min was attained at the condition of 120/20  $\ell$ /min of Ar/ $H_2$  flow rate, 80kW of plate power, 8cm of probe position, 200Torr of chamber pressure and 18cm of spraying distance. The pellet of 96.5% of theoretical density was formed with homogeneity and nice exterior view at the best condition of deposition experiments, and the possibility of new nuclear pellet fabrication process was confirmed. The main and interrelated effects on deposit density were assessed by ANOVA(Analysis of Variance).

### 1. 서 론

원자력발전에 사용하는 핵연료 펠렛의 제조는 분말처리, 압분, 소결 및 연삭의 공정을 거치게 되는데, 이 방법은 현재까지 사용되어온 가장 일반적인 방법이지만 하나 공정이 복잡하며 다양한 제조장비를 필요로 하고 제조시간도 많이 소요된다. 특히 원저적인 방법으로 제조해야 하는 DUPIC (Direct Use of Spent PWR Fuel In CANDU Reactors, 경·중수로 연계 핵연료주기) 핵연료의 경우 제조공정의 단순화는 큰 이점이 있다.<sup>1~4)</sup> 본 실험에서는 제조공정의 단순화를 위한 한가지 방안으로 분말을 플라즈마로 용융시킨 후 이를 펠렛몰더에 직접 침적시키는 방법으로 핵연료를 제조하고자 하였으며, 이로써 기존의 분말처리, 압분 및 소결공정을 단순화 또는 생략하고자 하였다. 분말을 용융시키는데 이용한 열원으로서의 유도플라즈마(Induction plasma)는 불순물의 혼입을 배제할 수 있어 순도를 중요시하는 공정에 적합하며 플라즈마 불꽃의 부피가 커서 분말처리량이 높고, 분말의 용융 분위기도 바꿀 수 있어 분사과정에서 화학적 반응을 유도할 수 있다.<sup>5)</sup>

본 연구에서는 기존의 연구결과<sup>6~9)</sup>로 도출된 침적물의 밀도에 영향을 미치는 변수인 쉬스가스 조성, 플라즈마 동력, 챔버내부압력 및 분말 공급량 외에 분말의 크기, 분사관의 위치, 분사거리 및 쉬스가스조성 중의  $H_2$ 유량 등이 침적밀도에 미치는 영향에 대해서 연구하였으며, 이를 바탕으로 펠렛을 제조하였다. 실험으로 얻어진 결과치는 ANOVA (Analysis of Variance)의 통계적 방법으로 각각의 인자가 밀도에 미치는 영향의 크기뿐만 아니라 두 가지 이상의 인자가 조합되어 나타나는 영향에 대해서도 분석하였다.<sup>10~13)</sup>

### 2. ANOVA (Analysis of Variance) 분석이론<sup>14,15)</sup>

ANOVA (분산분석)는 실험계획법에서 회귀분석(regression analysis)이나 상관분석(correlation analysis) 등과 함께 많이 사용되는 분석방법으로서, 특성값의 산포를 제곱합(sum of squares)으로 나타내고, 이 제곱합을 실험에 관련된 요인별로 분해하여 순수한 오차(error)에 의한 영향보다 큰 영향을 주는 요인(factor) 또는 인자가 어떤 것인가를 규명하는 분석방법이다. 즉, 평균에 대한 편차

(deviation)를  $y_i - \bar{y}$ 로 표시할 때, 편차의 제곱합은  $\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2$ 로 표시되며, 이를 요인별로 분해하면 다음과 같다(오차도 변동의 한 요인이 된다).

편차의 제곱합 = (A요인에 의한 제곱합) + ... + (A 및 B의 2요인에 의한 제곱합) + ... + (A, B 및 C 3요인에 의한 제곱합) + ... + (오차에 의한 제곱합)

여기에서 오차에 의한 제곱합(error sum of squares)을 제외한 각 요인들에 의한 제곱합을 처리제곱합(treatment sum of squares)이라 하고, 이는 요인의 변화에 따른 반응(response)의 차에 의한 제곱합을 의미하며, 오차에 의한 제곱합 또는 잔차제곱합(residual sum of squares)은 아직 원인이 규명되지 못한 요인에 의한 제곱합을 뜻한다. 한 요인의 변화를 관측하기 위해서는 요인별 실험점을 가지게 되는데, 이를 수준이라 한다. 실험의 조건은 요인들의 각 수준에서의 조합이며, 각 요인의 효과(effect)는 관심의 대상이 되는 어느 한 요인의 수준변화에 기인한 반응치(response) 변화를 평균한 값이며 이를 주효과(main effect)라고 한다. 또, 요인B의 한 수준에서 관측한 요인A의 수준간 관측치의 변화가 요인B의 다른 한 수준에서 관측한 관측치의 변화와 다른 값을 나타내면 요인A와 B간에 어떤 관계가 존재하는 것으로 유추할 수 있는데 이를 조합효과 또는 교호작용(interaction between factors)이라고 한다.

다음으로, F값을 이용한 ANOVA 분석을 위하여는 제곱합(sum of square, SS)을 구해야 하는데 요인A에 대하여는 다음과 같이 계산한다.

$$SS_A = \frac{1}{bcdn} \sum_{j=1}^a y_{j...}^2 - \frac{y^2}{abcdn}$$

여기서 이탤릭체  $a, b, c, d$ 는 각 요인의 수준의 수이며  $n$ 은 반복 실험횟수이다.

$$\text{마찬가지로, } SS_B = \frac{1}{acdn} \sum_{j=1}^b y_{.j..}^2 - \frac{y^2}{abcdn}$$

A 요인과 B요인이 조합된 경우, 2인자 조합효과의 제곱합은

$$SS_{AB} = \frac{1}{cdn} \sum_{j=1}^a \sum_{k=1}^b y_{jk.}^2 - \frac{y^2}{abcdn} - SS_A - SS_B$$

$$= SS_{\text{SUBTOTAL}(AB)} - SS_A - SS_B$$

오차에 의한 제곱합 (Error sum of squares)은

$$SS_E = SS_T - SS_{\text{SUBTOTAL}(ABCD)},$$

$$SS_{\text{SUBTOTAL}(ABCD)} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^a \sum_{j=1}^b \sum_{k=1}^c \sum_{m=1}^d y_{ijkl}^2 - \frac{y^2}{abcdn}$$

총제곱합 (Total sum of squares)은

$$SS_T = \sum_{i=1}^a \sum_{j=1}^b \sum_{k=1}^c \sum_{m=1}^d \sum_{l=1}^n y_{ijkl}^2 - \frac{y^2}{abcdn} \text{ 와 같다.}$$

이상의 내용을 정리한 것이 ANOVA표이며, 여기서 제곱합의 자유도(Degree of Freedom) = (제곱을 한 편차의 개수) - (편차들의 선형제약조건의 개수) 이고, 평균제곱합 (Mean Squares) = (Sum of Squares) / (Degree of Free-

dom)이다.

이와 같이 구한 각 요인들의 제곱합을 각각의 자유도로 나누어 평균제곱합을 구하며, 각각의 평균제곱합을 오차의 평균제곱합으로 나누어 F값을 구한 다음, 각 요인들이 실험의 결과에 미치는 영향의 유의수준(significance)을 통계표로부터 구한다. 이들 F값 및 유의수준은 각각의 효과 및 조합효과가 결과치에 미치는 영향의 정도를 판단하는데 이용된다. 또, 실험방법의 오차 또는 측정오차 등을 감안하여 결과에 미치는 영향의 비율인 R-Square 값으로 실험오차 또는 실험에 미쳐 반영되지 못한 다른 요인의 유무를 알 수 있다.

ANOVA에 의해 분석된 결과를 이용하여 요인처리의 강도에 대한 오메가제곱값(omega-square:  $\omega_A^2 = \frac{SS_A - DF_A \times MS_E}{SS_T + MS_E}$ )을 통하여 전체결과에 각 요인이 미치는 영향을 백분율로 나타낼 수 있다. 또, 각 요인의 두 수준간 평균의 차이나 분산의 동일성은 T 검정으로 조사할 수 있으며, 세 가지 이상의 실험조건간 표준화 범위는 Duncan 검정을 이용한다.

### 3. 실험 방법

핵연료 분말의 모사물질로서 20%의 yttria가 함유된 yttria stabilized zirconia (YSZ, AMDRY 146, SULZER, Wohlen, Switzerland, sintered and crushed, -106+10  $\mu\text{m}$ )를 사용하였으며 입자의 크기가 침적물의 밀도에 미치는 영향을 분석하기 위하여 -90, -75 및 -45  $\mu\text{m}$ 으로 분별하여 실험하였다.

그림 1의 유도플라즈마 분말분사 장치는 유도형 플라즈마 토치, 분말분사 챔버, 분말공급장치로 구성되어 있으며, 분말분사 챔버는 직경 1.1m, 길이 약 1.8m의 밀폐형으로서 이중벽 강제수냉식으로 제작하였다. 분말공급은 8 threads/inch의 driving screw가 장착된 CYLCO volumetric powder feeder (SYLVESTER company, Ohio, USA)를 사용하였으며 분말공급장치 내부에 Ar가스를 유입하여 분말의 공급이 원활하도록 하였다. 플라즈마 기체로 Ar를 사용하였으며, 쉬스가스는  $H_2$ 와  $N_2$ 를 Ar과 혼합하여 사용하였다. 분말용융과 관련된 영향 인자의 도출을 위하여 시편 holder 대신 챔버 바닥에 직경 280mm의 증류수를 채운 분말수집조를 설치하고 용융 분사된 분말을 수집하였다.

플라즈마 장치에서 사용한 시편 holder들을 그림 2에 나타내었다. Graphite로 제작한 "A"형 시편 holder는 침적 조건의 분석에 주로 이용하였으며, "B"형은 핵연료 크기의 구멍을 뚫어 펠릿을 제조하는데 사용하였고, 펠릿과의 열팽창 특성을 고려하여 몰리브덴으로 몰더를 제작하고 침적과정에서 구멍내부에 누적되는 기체방출을 촉진시키기 위하여 직경 약 0.5mm의 기체 방출구를 구멍내부에 여러 군데 설치하였다. 실험조건에 따라 20초 내지 1시간 동안 용융 분사하여 만들어진 침적시편 및 펠릿은 1시간 정도 Ar 분위기의 챔버 내에서 서서히 냉각시켰다.

시료표면 및 용융분말의 관찰은 광학현미경(Leitz METALLUX 3) 및 SEM(Jeol JSM 840A)을 이용하였

다. 밀도는 한 시료에 대하여 서로 다른 세 군데 부위를 임의로 선정하여 관찰하였으며, 이미지해석 소프트웨어 (Mocha image analysis, Jandel Scientific)를 이용하여 분석하고 이들의 관측치를 평균하였다.

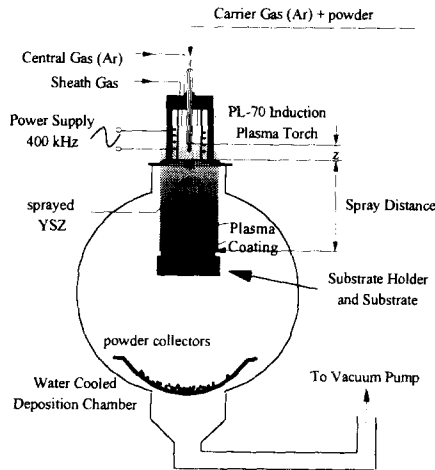


Fig. 1. Schematic drawing of the powder deposition equipment.

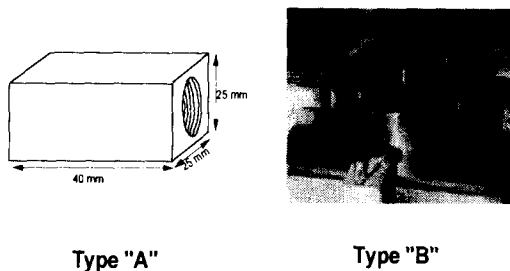


Fig. 2. Sample holder for deposition and mold for pellet.

#### 4. 결과 및 고찰

##### 분말의 용융실험

표 1은 분말의 용융에 인자들이 어떻게 영향을 미치고 있는지를 알아보기 위하여 플라즈마 동력 80kW, 챔버 내부압력 200Torr에서 쉬스가스 중의 H<sub>2</sub>유량 및 분말공급관의 위치를 각각 Ar/H<sub>2</sub>=120/20 ℓ/min 및 120/10 ℓ/min, Z<sub>p</sub>=8cm 및 4cm의 2수준으로 하고, 분말의 크기는 -45, -75 및 -90 $\mu$ m의 3수준으로 하여 각각의 조건에서 3회의 반복 실험을 하여 측정된 분말용융의 구형화 (spheroidization)

관측치이다. 실험의 모든 조건에서 -45 $\mu$ m의 크기가 작은 분말이 가장 용융정도가 높았으며, 분말의 크기가 클수록 용융정도는 감소하였다. 또 쉬스가스 중 H<sub>2</sub>가스의 유량이 높은 조건에서 용융정도가 높았으며 같은 쉬스가스 조성에서는 분사관의 위치가 높을수록 용융정도는 증가하는 경향을 나타내었다. 그림 3은 분말수집조에서 수집한 -45 $\mu$ m의 용융된 분말의 사진으로 대부분의 분말들이 완전구형을 나타내었다. 측정된 용융정도 결과를 통하여 이들 세 요인이 서로 어떻게 영향을 미치는지 분석하기 위하여 ANOVA 분석을 하고 출력한 결과의 일부를 표 2에 나타내었다. 분말의 크기, 분사관의 위치, 쉬스가스 조성 중의 H<sub>2</sub>유량을 나타내는 A, B, C 세 요인이 독립적으로 또는 상호조합하여 결과에 영향을 미치고 있다는 모델이 99.9% 신뢰성이 있음을 나타내었다. 또, A요인과 C요인은 99%의 신뢰수준에서 결과에 영향을 미치고 있으며 (C요인의 F값이 높아 결과에 미치는 영향이 큼), B요인은 결과에 영향을 미치고 있다고 신뢰할 수 있는 수준이 앞의 두 요인보다 낮았다. 또, 조합효과중 B와 C요인이 조합되었을 때 다른 조합효과들보다 큰 영향을 미치고 있음을 알 수 있었다. 즉, 결과는 C요인과 A요인에 따라서 달라지며 B요인과 C요인간에 상호작용효과가 있다는 것을 알 수 있었다. 따라서, 쉬스가스 중의 H<sub>2</sub>유량을 변경시키는 경우에는 분사관의 위치 영향도 함께 고려해야 할 것으로 판단되었다.

R-Square값이 높은 편이므로 세 가지 요인의 선택이 약 80% 정도 결과에 영향을 주는 요인임을 알 수 있었으며, 나머지 20%는 실험오차 또는 실험에 미처 반영되지 못한 다른 요인이 있음을 알 수 있었다.

ANOVA에 의해 분석된 결과표를 이용하여 요인처리의 강도에 대한 오메가제곱값 (omega-square:  $\omega^2$ )은  $\omega_a^2=0.253$ ,  $\omega_b^2=0.088$ ,  $\omega_c^2=0.319$ 로 나타나 전체결과에 대해서 쉬스가스 중의 H<sub>2</sub>유량을 나타내는 C요인의 영향이 약 32% 정도로 가장 높았으며 다음으로는 A요인, B요인 순으로 영향정도가 높았다. 또, 분말의 용융정도가 분말의 크기에 따라 차이가 있는지에 대하여 Duncan검정을 하였다. -45 $\mu$ m와 -90 $\mu$ m, -75 $\mu$ m와 -90 $\mu$ m의 분말간에는 용융정도에 차이가 있으나, -45 $\mu$ m와 -75 $\mu$ m 사이에는 용융정도에 서로 차이가 없는 것으로 분석되어 이 실험조건에서는 -75 $\mu$ m 이하의 분말을 사용하는 경우 분말크기로 인한 용융정도의 차이는 없음을 알 수 있다. 각 요인의 두 수준간 평균

Table 1. Spheroidization experiments with different size of the powder.

Condition		Powder Size											
(80kW, 200Torr)		replicate No.(-45 $\mu$ m)				replicate No.(-75 $\mu$ m)				replicate No.(-90 $\mu$ m)			
G <sub>comp</sub>	Z <sub>p</sub> , cm	1	2	3	Avg.	1	2	3	Avg.	1	2	3	Avg.
120/20	8	97.85	96.81	100	98.22	99.26	98.34	96.22	97.94	96.94	93.55	95.45	95.31
120/10	8	94.50	91.46	88.89	91.61	92.15	93.325	86.12	89.72	83.33	87.93	89.19	86.81
120/20	4	98.17	96.75	97.59	97.50	91.195	92.33	93.195	92.24	89.69	79.63	91.57	86.96
120/10	4	91.18	90.12	91.57	90.95	90.645	89.935	88.705	89.76	86.96	82.93	84.09	84.66

Table 2. ANOVA result of the spheroidization experiment.

-General Linear Procedure						
Dependent Variable: Spheroidization %						
Source	DF	Sum of Squares	Mean Square	F Value	Pr>F	
Model	11	688.87478056	62.62498005	8.46	0.0001	
Error	24	177.74093333	7.40587222			
Corrected Total	35	866.61571389				
R-Square		C.V.	Root MSE	Mean of Spheroidization%		
0.794902		2.961976	2.72137322	91.87694444		
Source	DF	Type I SS	Mean Square	F Value	Pr>F	
A	2	235.78453889	117.89226944	15.92	0.0001	
B	1	84.21121111	84.21121111	11.37	0.0025	
A * B	2	31.39840556	15.69920278	2.12	0.1420	
C	1	286.23000278	286.23000278	38.65	0.0001	
A * C	2	4.25150556	2.12575278	0.29	0.7530	
B * C	1	31.24810000	31.24810000	4.22	0.0510	
A * B * C	2	15.75101667	7.87550833	1.06	0.3610	
-Duncan's Multiple Range Test for variable: Spheroidization %						
Alpha=0.05 df=24 MSE=7.405872						
Number of Means	2	3				
Critical Range	2.293	2.408				
Means with the same letter are not significantly different.						
Duncan Grouping	Mean	N	A			
A	94.574	12	1			
A	92.618	12	2			
B	88.438	12	3			
- T TEST PROCEDURE						
Variable: Spheroidization %						
B	N	Mean	Std Dev	Std Error	Minimum	Maximum
1	18	93.40638889	4.77353113	1.12513208	83.33000000	100.00000000
2	18	93.34750000	4.82049737	1.13620213	79.63000000	98.170000000
Variances	T	DF	Prob>   T			
Unequal	1.9130	34.0	0.0642			
Equal	1.9130	34.0	0.0642			
For HO: Variances are equal, F' = 1.02 DF=(17.17) Prob>F' = 0.9683						
Variable: Spheroidization %						
C	N	Mean	Std Dev	Std Error	Minimum	Maximum
1	18	94.69666667	4.80492976	1.13253281	79.63000000	100.00000000
2	18	89.05722222	3.32460313	0.78361647	82.93000000	94.500000000
Variances	T	DF	Prob>   T			
Unequal	4.0949	30.2	0.0003			
Equal	4.0949	34.0	0.0002			
For HO: Variances are equal, F' = 2.09 DF=(17.17) Prob>F' = 0.1388						

\* A = Particle size, B = Probe position, C = gas composition

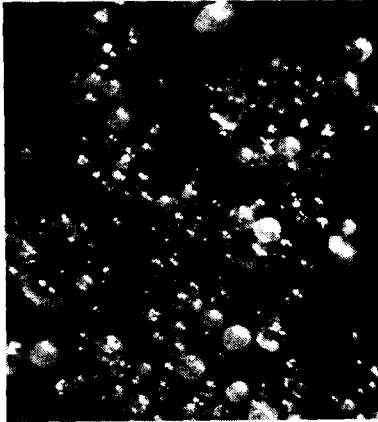


Fig. 3. Spheroidized powder.

의 차이나 분산의 동일성을 확인하기 위하여 T 검정을 한 결과 약 93.6%의 신뢰수준에서 B요인의 두 수준간 차이가 있었으며, 요인C는 99.97% 신뢰수준에서 분말의 크기에 따라 결과에 영향을 미쳤다. 즉, H<sub>2</sub>의 유량을 증가시켜 분말의 용융을 효과적으로 향상시킬 수 있을 것으로 판단되었다.

침적밀도 영향 분석

표 3, 4 및 5는 쉬스가스 조성(A), 분말분사관의 위치(B), 분말의 크기(C) 및 분사거리(D)의 요인수가 4이고 수준이 2인 각 실험조건에 대하여 3회 반복실험을 한 침적밀도 결과이며, 표 6, 7 및 8은 ANOVA 분석을 하고 그 결과를 요약한 표이다. 표 3과 6은 -45 $\mu$ m과 -90 $\mu$ m의 두 가지 크기 분말의 침적밀도를 비교한 표로서 단일변수의 영향 중 입자크기(C)가 밀도에 미치는 영향이 가장 큰 것으로 나타나, 입자의 크기 차이가 있는 경우 작은 입자가 밀도

Table 3. Powder deposition experiments and result between -45 and -90 $\mu$ m particle.

At 800kW 200torr	Sheath gas AR/H <sub>2</sub> ( $\ell$ /min)	Z <sub>p</sub> (cm)	particle Size, $\mu$ m	Z <sub>s</sub> (cm)	Average Density
I	120/20	8	-45	30	95.70
a	120/10	8	-45	30	94.14
b	120/20	4	-45	30	95.57
ab	120/10	4	-45	30	91.66
c	120/20	8	-90	30	86.67
ac	120/10	8	-90	30	82.54
bc	120/20	4	-90	30	84.72
abc	120/10	4	-90	30	80.04
d	120/20	8	-45	22	97.17
ad	120/10	8	-45	22	96.33
bd	120/20	4	-45	22	96.88
abd	120/10	4	-45	22	95.54
cd	120/20	8	-90	22	94.80
acd	120/10	8	-90	22	89.15
bcd	120/20	4	-90	22	93.70
abcd	120/10	4	-90	22	87.50

Table 4. Powder deposition experiments and result between -45 and -75 $\mu$ m particle.

At 800kW 200torr	Sheath gas AR/H <sub>2</sub> ( $\ell$ /min)	Z <sub>p</sub> (cm)	particle Size, $\mu$ m	Z <sub>s</sub> (cm)	Average Density
I	120/20	8	-45	30	95.70
a	120/10	8	-45	30	94.14
b	120/20	4	-45	30	95.57
ab	120/10	4	-45	30	91.66
c	120/20	8	-75	30	95.51
ac	120/10	8	-75	30	93.27
bc	120/20	4	-75	30	94.49
abc	120/10	4	-75	30	89.76
d	120/20	8	-45	22	97.17
ad	120/10	8	-45	22	96.33
bd	120/20	4	-45	22	96.88
abd	120/10	4	-45	22	95.54
cd	120/20	8	-75	22	97.11
acd	120/10	8	-75	22	94.64
bcd	120/20	4	-75	22	96.60
abcd	120/10	4	-75	22	94.25

Table 5. Powder deposition experiments and result between -75 and -90 $\mu$ m particle.

At 800kW 200torr	Sheath gas AR/H <sub>2</sub> ( $\ell$ /min)	Z <sub>p</sub> (cm)	particle Size, $\mu$ m	Z <sub>s</sub> (cm)	Average Density
I	120/20	8	-75	30	95.51
a	120/10	8	-75	30	93.27
b	120/20	4	-75	30	94.49
ab	120/10	4	-75	30	89.76
c	120/20	8	-90	30	86.67
ac	120/10	8	-90	30	82.54
bc	120/20	4	-90	30	84.72
abc	120/10	4	-90	30	80.04
d	120/20	8	-75	22	97.11
ad	120/10	8	-75	22	94.64
bd	120/20	4	-75	22	96.60
abd	120/10	4	-75	22	94.25
cd	120/20	8	-90	22	94.80
acd	120/10	8	-90	22	89.15
bcd	120/20	4	-90	22	93.70
abcd	120/10	4	-90	22	87.50

향상에 훨씬 유리함을 알 수 있었으며, 그 다음 분사거리, 쉬스가스 조성, 분사관의 위치순으로 나타났다. 이 실험에서 가장 높은 밀도를 보인 경우는 쉬스가스 조성, 분사관의 위치, 입자크기, 분사거리가 각각 120/20  $\ell$  /min, 8cm, -45 $\mu$ m, 22cm의 경우이었으며 이 조건에서 이론밀도의 97.17%를 나타내었고, 가장 낮은 밀도는 120/10  $\ell$  /min, 4cm, -90 $\mu$ m, 30cm에서 80.04%를 나타내었다. 2인자 조합효과 중에서는 입자크기와 분사거리가 상호조합되었을 때 (CD) 가장 크게 영향을 미쳤는데 -45 $\mu$ m의 입자가

Table 6. ANOVA for powder deposition experiment between -45 and -90 $\mu$ m.

Source	Effect	Sum of Squares	Degree of freedom	Mean Squares	F Value	Significance
A	3.538	150.238	1	150.238	31.100	0.000
B	1.362	22.250	1	22.250	4.606	0.040
AB	-0.492	2.901	1	2.901	0.600	0.444
C	7.983	764.803	1	764.803	158.316	0.000
AC	-1.627	31.753	1	31.753	6.573	0.015
BC	-0.438	2.306	1	2.306	0.477	0.495
ABC	-0.217	0.563	1	0.563	0.117	0.735
D	-5.003	300.300	1	300.300	62.163	0.000
AD	0.031	0.011	1	0.011	0.002	0.962
BD	0.404	1.960	1	1.960	0.406	0.529
ABD	-0.231	0.639	1	0.639	0.132	0.718
CD	2.792	93.576	1	93.576	19.370	0.000
ACD	0.791	7.505	1	7.505	1.554	0.222
BCD	-0.021	0.005	1	0.005	0.001	0.974
ABCD	-0.231	0.639	1	0.639	0.132	0.718
ERROR		154.588	32	4.831		
TOTAL		1534.038				

Table 7. ANOVA for powder deposition experiment between -45 and -75 $\mu$ m.

Source	Effect	Sum of Squares	Degree of freedom	Mean Squares	F Value	Significance
A	2.428	70.713	1	70.713	33.433	0.000
B	1.141	15.618	1	15.618	7.384	0.011
AB	-0.650	5.070	1	5.070	2.397	0.131
C	0.920	10.157	1	10.157	4.802	0.036
AC	-0.516	3.193	1	3.193	1.510	0.228
BC	-0.217	0.568	1	0.568	0.268	0.608
ABC	-0.058	0.041	1	0.041	0.019	0.890
D	-2.300	63.480	1	63.480	30.013	0.000
AD	0.679	5.535	1	5.535	2.617	0.116
BD	0.646	5.005	1	5.005	2.366	0.134
ABD	-0.557	3.719	1	3.719	1.758	0.194
CD	0.090	0.097	1	0.097	0.046	0.832
ACD	0.142	0.244	1	0.244	0.115	0.737
BCD	-0.262	0.827	1	0.827	0.391	0.536
ABCD	0.095	0.108	1	0.108	0.051	0.822
ERROR		67.682	32	2.115		
TOTAL		252.057				

22cm에서 분사되는 경우 평균 96.48%의 이론밀도를 나타내었고 -90 $\mu$ m의 입자가 30cm의 거리에서 분사되는 경우에는 평균 83.49%의 이론밀도를 나타내었으며, 입자의 크기에 관계없이 분사거리가 짧은 조건이 밀도 향상에 도움이 될 수 있는 것으로 판단되었다. 2인자 조합효과와 그 다음 영향은 쉬스가스 조성의 입자의 크기가 서로 조합되는 경우로서 입자의 크기가 큰 경우에는 보다 높은 엔탈피를 가지는 가스조성이 요구됨을 알 수 있었다.

표 4와 7에서 -75 $\mu$ m이하 크기의 두 종류 분말을 분사한 실험에서는 쉬스가스 조성(A)이 침적물의 밀도에 가장 큰 영향을 미치는 것으로 분석되었으며 그 다음으로 분말의 분사거리, 분사관의 위치, 분말입자의 크기 순으로 나타나, -75 $\mu$ m 이하 크기의 분말을 사용하는 경우 실험범위 내에서

는 분말크기의 영향은 거의 없는 것으로 나타났다. 2인자 조합효과 중에서 쉬스가스 조성의 분사거리가 조합되었을 때(AD) 가장 큰 영향을 미치는 것으로 나타나 높은 밀도의 침적물을 얻기 위해서는 무엇보다도 분말이 충분히 용융되어야 하며 이러한 조건에서는 분말의 분사거리가 짧은 조건 즉, 분말의 모멘텀이 커야 유리할 것으로 판단되었다.

표 5와 8은 -75 $\mu$ m과 -90 $\mu$ m의 두 가지 크기의 분말로서 침적실험을 한 결과로서, 단일효과의 영향은 입자크기(C)가 가장 큰 것으로 나타나(-45 $\mu$ m과 -75 $\mu$ m의 경우 분말크기가 밀도에 미치는 영향은 거의 없음) -75 $\mu$ m 보다 큰 입자는 실험범위 내에서의 조건으로는 높은 침적밀도를 기대하기 힘든 것으로 나타났으며, 그 다음으로는 분말분사거리(D)가 중요한 인자인 것으로 분석되었다. 이 실험에서 쉬

Table 8. ANOVA for powder deposition experiment between  $-75$  and  $-90\mu\text{m}$ .

Source	Effect	Sum of Squares	Degree of freedom	Mean Squares	F Value	Significance
A	4.054	197.235	1	197.235	39.531	0.000
B	1.579	29.925	1	29.925	5.998	0.020
AB	-0.433	2.253	1	2.253	0.452	0.506
C	7.063	598.688	1	598.688	119.993	0.000
AC	-1.111	14.807	1	14.807	2.968	0.095
BC	-0.221	0.585	1	0.585	0.117	0.734
ABC	-0.158	0.301	1	0.301	0.060	0.808
D	-5.092	311.203	1	311.203	62.373	0.000
AD	-0.112	0.150	1	0.150	0.030	0.864
BD	0.667	5.333	1	5.333	1.069	0.309
ABD	-0.326	1.274	1	1.274	0.255	0.617
CD	2.702	87.642	1	87.642	17.566	0.000
ACD	0.648	5.044	1	5.044	1.011	0.322
BCD	0.242	0.701	1	0.701	0.140	0.710
ABCD	-0.326	1.274	1	1.274	0.255	0.617
ERROR		159.660	32	4.989		
TOTAL		1416.076				

스가스의 조성, 분사관의 위치, 입자크기, 분사거리가 120/20 ℓ/min, 8cm,  $-75\mu\text{m}$ , 22cm일 때 이론밀도의 97.11%를 가진 침적물이 생성되었다. 2인자 조합효과로는 분말의 크기 인자와 분사거리가 조합되었을 때 (CD) 밀도에 가장 큰 영향을 미치는 것으로 분석되었으며  $-75\mu\text{m}$  크기의 분말이 22cm의 분사거리를 가질 때 평균 95.6%의 이론밀도를 나타내었다.

이상의 실험결과를 종합하면,  $-75\mu\text{m}$  이상 크기의 분말의 경우 단일변수로는 입자의 크기 (C), 분사거리 (D) 순으로 침적물의 밀도에 영향을 미치는 것으로 분석되었으며,  $-75\mu\text{m}$  이하 크기의 분말의 경우에는 쉬스가스 조성, 분사거리 순으로 나타나 분말의 완전용융과 더불어 분사거리가 침적 밀도에 중요한 인자인 것을 알 수 있었다. 이것은 침적되는 분말이 가지는 모멘텀이 침적밀도와 중요한 관련이 있음을 시사한다. 2인자 조합효과 중에서는  $-75\mu\text{m}$  이상 크기의 분말의 경우 입자크기와 분사거리가 조합된 효과 (CD)가 침적물의 밀도에 가장 큰 영향을 미치는 것으로 나타났고 그 다음으로는 쉬스가스 조성과 입자크기가 조합된 효과 (AC)로 분석되었다.  $-75\mu\text{m}$  이하 크기의 분말의 경우 쉬스가스 조성과 분사거리가 상호 조합된 효과 (AD) 및 쉬스가스 조성 분말 분사관의 위치가 상호 조합된 효과 (AB) 순으로 침적밀도에 영향을 미치는 것으로 분석되어 완전 용융된 분말의 경우 분사거리가 역시 중요한 인자임을 알 수 있었다.

#### 분말의 침적조건 최적화

ANOVA로 분석한 앞의 실험과 Jung<sup>9)</sup> 등이 실험한 결과를 바탕으로 중요하다고 분석된 인자 중에서 좀더 조절이 가능한 챔버압력과 분사거리를 각각 150Torr, 200Torr, 250Torr 그리고 18cm, 22cm, 26cm, 30cm로 실험점을 확대하여  $-75\mu\text{m}$ 의 분말을 "A"형 시편 holder에 침적실험을 하고 그 결과를 표 9에 나타내었다. 실험결과 Ar/H<sub>2</sub> 유량 120/20 ℓ/min, 플라즈마 동력 80kW, 분사관의 위치 8cm, 챔버압력 200Torr, 분사거리 18cm에서 이론밀도의

97.91%, 침적속도 20mm/min의 최적조건을 도출하였다. 플라즈마 동력을 100kW까지 증가시키고 나머지 조건은 동일하게 하여 침적실험을 한 결과 침적밀도는 약 98.04%로 향상되었으나 침적속도는 오히려 감소하였다. 그 이유는 높은 플라즈마 온도에서 분말의 일부가 증발하여 극미세 분말이 되고 이 분말은 침적에 참여하지 못하였기 때문인 것으로 판단된다.

Table 9. Influence of the spraying distance and chamber pressure on deposit density (Ar/H<sub>2</sub>=120/20 ℓ/min, Power=80kW, Z<sub>p</sub>=8cm, Feed rate=16.8g/min.)

experimental conditions		AMDRY146( $-75\mu\text{m}$ )	
		Density (% TD)	Growth rate (mm/min)
150Torr	Zs=18cm	96.32	15.60
	22	97.58	12.60
	26	96.76	9.60
	30	96.68	6.00
200Torr	Zs=18cm	97.91	20.00
	22	97.11	10.80
	26	96.14	10.30
	30	93.27	6.00
250Torr	Zs=18cm	95.01	10.50
	22	95.97	7.20
	26	95.58	6.70
	30	94.92	5.00
200Torr	Zs=18cm	98.04	7.20
	22	97.71	6.70
	26	97.34	5.20
	30	97.12	5.00

#### 펠렛의 제조

고밀도 침적물 제조와 관련된 인자들을 최적화 한 후 핵연료와 동일한 크기의 구멍(직경 10mm, 길이 10mm)이 뚫린 "B"형 펠렛몰더를 이용하여 펠렛을 제조하였다. 그림

4에 펠렛의 사진을 보였고 그림 5에 시편의 철단면을 2000 배로 촬영한 SEM 사진을 나타내었다. 이 펠렛은 이론밀도의 96.5%를 나타내었으며 성형성도 우수하였고 위치에 따라서도 균일한 밀도를 나타내었다.

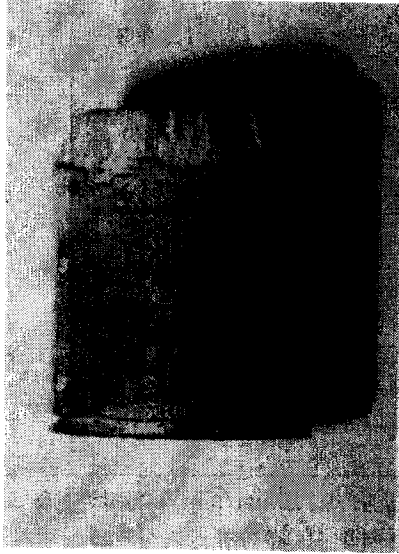


Fig. 4. Pellet sample.



Fig. 5. SEM Pellet cross section.

## 5. 결 론

유도 플라즈마로 용융점이 높은 YSZ 분말의 용융 및 침적실험을 통하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

분말의 용융은 입자크기 및 쉬스가스 조성이 영향을 크게 미쳤다.

침적시편의 밀도를 분석한 결과  $-75\mu\text{m}$  이상 크기의 분말의 경우, 단일변수로서는 입자 크기, 분사거리 순으로 침적물의 밀도에 영향을 미쳤으며,  $-75\mu\text{m}$  이하 분말의 경우에는 쉬스가스 조성, 분사거리 등의 순으로 침적밀도에 영향을 미쳤다.

Ar/H<sub>2</sub>유량 120/20 l/min, 동력 80kW, 분사관의 위치

8cm, 챔버압력 200Torr, 분사거리 18cm에서 이론밀도의 97.91%의 침적물을 제조하였고 이 조건에서의 침적속도는 약 20mm/min이었다.

침적실험에서 도출된 최적조건으로 펠렛몰더를 이용하여 96.5% 밀도의 펠렛을 제조하였다.

## 참 고 문 헌

1. M.S. Yang, B.G. Kim, K.W. Song, K.K. Bae, S.S. Kim, W.K. Kim, I.H. Jung and H.S. Park, International Symposium on Nuclear Fuel Cycle and Reactor Strategies: Adjusting to new realities, June 2-6, Vienna, Austria (1997).
2. H.S. Park, Proceedings of the 10th PBNC, Kobe, Japan (1996).
3. J.S. Lee, H.S. Park, R.D. Gadsby, J. Sullivan, Global '95 Conference, Sept 11-14, Versailles (1995)
4. J.S. Lee, M.S. Yang, H.S. Park, P. Boczar, J. Sullivan, R.D. Gadsby, International symposium on nuclear fuel cycle and reactor strategies: Adjusting to new realities, June 2-6, Vienna, Austria (1997).
5. M.I. Boulos, Thermal plasma processing, IEEE Tran. Plasma Science, **19**(6), 1078 (1991).
6. T. Ishigaki, J. Jurewicz, and M.I. Boulos, ISPC-10, Bochum, Germany, August 14-18, 1 (1991).
7. T. Ishigaki, and M.I. Boulos Ceramic Transactions, **22**, 139 (1991).
8. X. Fan, Ph. D. Report, Universit de Sherbrooke, QC, Canada (1994).
9. 정인하, 배기광, 이정원, 이재설, 양명승, 97추계학술 발표회 논문집, 한국원자력학회, **2**, p62 (1997).
10. R. Kingswell, D.S. Rickerby, S.J. Bull, K.T. Scott, Thin Solid Films, **198** (1-2), 139 (1991).
11. T.J. Steeper, A.J. Rotolico, J.E. Nerz, W.L. Riggs, D.J. Varacalle, G.C. Wilson, American Society of Mechanical Engineers, Materials Division Ceramic Coatings Proceedings of the 1993, ASME Winter Annual Meeting, Nov. 28-Dec. 3, New Orleans, L. A., USA, p133 (1993).
12. J. Nerz, B. Kushner, R. Kaufold, A. Rotolico, ASME, Power Division PWR Advances in Steam Turbine Technology for Power Generation, International Joint Power Generation Conference Oct. 21-25, Boston, M.A., USA, p31 (1990).
13. K. Mailhot, F. Gitzhofer and M.I. Boulos, 10th NTSC, Indianapolis, USA, Sep. 7-16 (1997).
14. D.C. Montgomery, Design and Analysis of Experiments, 290, John Wiley & Sons, N.Y. (1997).
15. 조중재, 한정혜, 박병선, SAS통계자료분석, 150, 교우사 (1996).