

## 소결시간이 (U,Ce,Gd)O<sub>2</sub>의 미세구조에 미치는 영향

### Effect of Sintering Time on the Microstructure of (U, Ce, Gd)O<sub>2</sub>

#### I. UO<sub>2</sub>-10wt%CeO<sub>2</sub>-4wt%Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

한국원자력연구소 나상호\*, 김연구, 김한수, 이영우  
한전원자력연료주식회사 유명준

#### 1. 서론

현재 이산화 우라늄(UO<sub>2</sub>)이 원자력 발전소의 핵연료의 주종을 이루고 있지만, 자원의 재 활용 측면에서 혼합산화물(MOX, Mixed OXide)인 (U, Pu)O<sub>2</sub>가 일부사용되고 있다. 장주기·고연소도를 지향하기 위해서는 비교적 높은 U-235 농축도 또는 PuO<sub>2</sub>의 함량 증대가 요구된다. 높은 농축도 등으로 인해 초기의 잉여 반응도를 제어하기 위해 여러 가지 독물질이 사용되고 있으며, 이 중에서 산화 가돌리니움(Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)이 많이 사용되고 있다[1]. 혼합산화물인 경우, 중공(annular) MOX 펠렛에 단원계(Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 혹은 2원계 산화물, ((Zr,Gd)O<sub>2</sub>)을 사용하고 있다[2]. 산화물 수와 첨가량 증대에 따라 균질하게 혼합된 소결체를 제조하는 데 어려운 것으로 알려져 있으며, 조사 중에 생성된 핵분열가스를 초기에 가능한 한 소결체 내에 보유하기 위해서는 결정립은 가능한 한 커야 한다.

본 연구에서는 PuO<sub>2</sub>와 핵화학적 성질이 유사한 CeO<sub>2</sub>를 사용하였으며, 첨가량은 현재 이용중인 5wt% 보다는 10wt%로 하였다. 그리고 Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량은 4 wt%이다. 3 종류의 산화물을 다이나믹 밀로 분쇄·혼합하여 제조한 성형체를 수소 분위기, 1750°C에서 소결시간을 변화시켜 소결밀도와 미세구조를 조사하였다.

#### 2. 실험 방법

UO<sub>2</sub> 분말에 CeO<sub>2</sub>와 Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 각각 10wt%(5 g)와 4wt%(4g) 첨가하여, 총 50g의 분말을 1시간 동안 1차 혼합하였다. 1차 혼합된 분말을 다이나믹 밀(그림 1 참조)에 장입하여 4시간 밀링하여 분쇄·혼합시켰다. 다이나믹 밀의 분말용기는 분당 25회 회전하며, 용기 안에는 직경 8mm의 지르코니아 볼이 70 vol.% 들어있다. 분쇄·혼합된 분말은 프레스에서 성형압력 300MPa로 성형되었으며, 제조된 성형체는 환원성 분위기(H<sub>2</sub>), 1750°C에서 소결시간을 4, 8, 12 그리고 16시간으로 변화시켰다. 소결밀도는 수침법으로 측정하였으며, 결정립 크기는 intercept 방법으로 측정하였다.

#### 3. 결과 및 고찰

그림 2에 소결시간에 따른 UO<sub>2</sub>-10wt%CeO<sub>2</sub>-4wt%Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 소결밀도를 도시하였다. 그림에서 보는 바와 같이 소결시간이 증가하면 소결밀도는 감소하는 경향을 보여준다. 그림 3에는 소결시간에 따른 UO<sub>2</sub>-10wt%CeO<sub>2</sub>-4wt%Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 결정립 크기를 도시하였다. 그림에서 보는 바와 같이 소결시간이 증가하면 결정립 크기는 증가하는 것으로 나타났다. 반면에, 16시간 이상에서는 거의 포화되는 경향을 보여주고 있다. 그림 4에 소결시간에 따른 UO<sub>2</sub>-10wt%CeO<sub>2</sub>-4wt%Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 결정립 사진을 도시하였다.

#### 3. 결론

3원계 산화물의 소결시간에 따른 밀도와 결정립 크기의 상관관계를 조사하여 다음과 같은 결론을 구하였다.

- 소결시간이 증가할수록 소결밀도는 감소하는 경향을 보이는 반면에 결정립 크기는 증가하는 것으로 나타났다.
- 3원계 산화물에서도 충분히 큰 결정립(17~23 $\mu$ m)과 소결밀도가 큰 소결체를 제조할 수 있는 것으로 나타났으며, 향후 3원계 산화물 제조에 충분하게 도움을 줄 것으로 사료되었다.

**Acknowledgement**

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었음.

**참고 문헌**

- [1] IAEA-TECDOC-844, "Characteristics and use of urania-gadolinia fuels"
- [2] M. Kato, S. Kohno and K. Kamimura, IAEA Tech. Committee Mtg on Advances in Pellet Technology for Improved Performance at High Burnup, paper No. 2-4 Tokyo, Japan, 28 Oct.-1 Nov., 1996

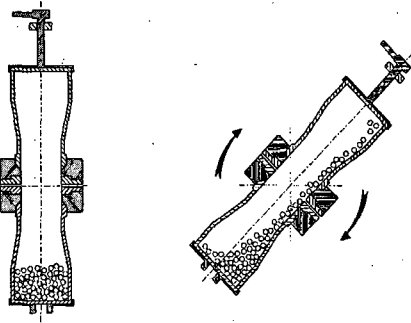


Fig. 1. Schematic diagram of a Dynamic Mill

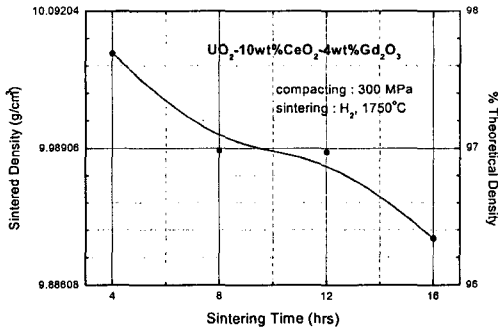


Fig. 2 % theoretical density of  $UO_2-10wt\%CeO_2-4wt\%Gd_2O_3$  as a function of sintering time.

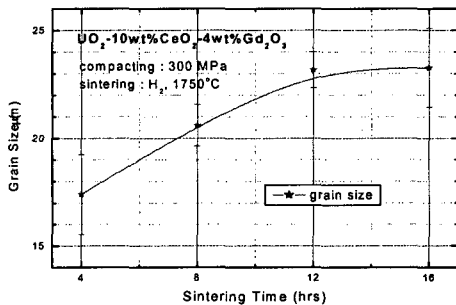


Fig. 3 Grain size of  $UO_2-10wt\%CeO_2-4wt\%Gd_2O_3$  as a function of sintering time.

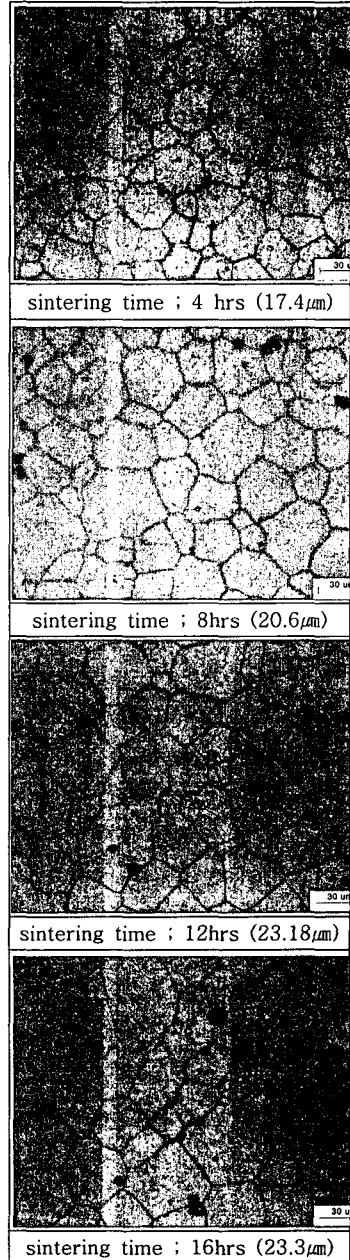


Fig. 4 Microstructures of  $UO_2-10wt\%CeO_2-4wt\%Gd_2O_3$  as a function of sintering time.