

## 모의 DUPIC 핵연료의 소결 특성 연구

강권호 · 배기광 · 박희성 · 송기찬 · 문재선  
한국원자력연구소

## A Study on the Sintering of Simulated DUPIC Fuel

Kweon Ho Kang, Ki Kwang Bae, Hee Sung Park, Ki Chan Song and Je Sun Moon  
Korea Atomic Energy Research Institute, Yusung, Taejon 305-353, Korea  
(Received April 17, 2000)

**Abstract** The simulated DUPIC fuel provides a convenient way to investigate fuel properties and behaviours such as thermal conductivity, thermal expansion, fission gas release, leaching and so on. Several pellets simulating the composition and microstructure of the DUPIC fuel were fabricated from resintering powder through the OREOX process of the simulated spent fuel pellets, which were prepared from the mixture of stable forms of constituent nuclides. This study describes the powder treatment, OREOX, compaction and sintering to fabricate simulated DUPIC fuel using the simulated spent fuel. The homogeneity of additives in the powder was observed after attrition milling. The microstructure of the simulated spent fuel was in agreement with the previous studies. The densities and the grain size of simulated DUPIC fuel was pellets are higher than those of simulated spent fuel pellets. Small metallic precipitates and oxide precipitates were observed on matrix grain boundaries.

### 1. 서 론

DUPIC(Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors) 핵연료는 사용후 경수로 핵연료를 직접 재 가공하여 중수로에 다시 사용하고자 하는 자원 재활용 개념의 핵연료이다. 1993년도까지 수행한 타당성 연구의 결과로서 OREOX(Oxidation and Reduction of Oxide fuel)가 가장 바람직한 제조공정이라는 결론<sup>1)</sup>을 바탕으로 OREOX 공정을 이용한 핵연료 제조 및 이의 성능검증 연구를 수행 중에 있다. DUPIC 핵연료의 특징은 일반 핵연료와 달리 약 0.6%의 Pu를 비롯한 다양한 핵분열 생성물을 포함하고 있다. 이에 따라 핵연료의 물성, 핵분열기체 방출 및 입자성장 등이 일반 핵연료와 다를 것으로 예상되므로 이러한 물성의 확보와 노내 거동 및 핵연료로서의 성능을 분석하기 위한 기초자료를 확보하는 것이 중요하다. 그러나 사용후 핵연료를 이용한 연구는 높은 방사선량 때문에 실험실 규모의 연구에는 방사선 차폐 등 많은 어려움이 따른다. 모의 핵연료는 이러한 어려움을 해결하면서 사용후 핵연

료에 관한 연구를 수행할 수 있도록 한다. 사용후 핵연료의 주요 특징은 핵분열 생성물과 핵분열기체의 방출이다. 핵분열기체는 핵연료 밖으로 방출되므로 사용후 핵연료에는 진존하지 않는 것으로 간주하고 천연우리늄에 핵분열 생성물을 첨가하여 모의 사용후 핵연료를 만들 수 있다. 사용후 핵연료에 존재하는 핵분열 생성물은 다음과 같다.<sup>2)</sup>

- 기지내에 용해된 원소 : Sr, Zr, Nb, Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm;
- 금속 석출물 : Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In, Sb, Te;
- 산화물 석출물 : Ba, Zr, Nb, Mo, (Rb, Cs, Te);
- 기화성 물질 : Kr, Xe, Br, I, (Rb, Cs, Te).

이중 Rb, Cs는 I, Te<sup>2-</sup>와 결합하여 Cs<sub>2</sub>O, CsI 및 Cs<sub>2</sub>Te를 형성하며, 산소 포텐셜, 핵연료의 온도 및 연소도에 따라 휘발성 물질 또는 석출물로 나타난다.

이러한 안정된 핵분열 생성물을 천연 우리늄에 혼합하여 모의 사용후 핵연료를 제조하는데,<sup>3-5)</sup> 모의 사용후 핵연료의 matrix 및 석출상<sup>6-8)</sup>과 결정구조에서 산소 포텐셜의 영향<sup>9)</sup>에 대한 연구도 수행되었다.

또한, 금속석출물의 화학적 상태 및 기화압력에 관한 연구<sup>10,11)</sup>도 수행되었으며, simulated mixed (U, Th)O<sub>2</sub> 핵연료에 대한 연구결과<sup>12-14)</sup>에 의하면 UO<sub>2</sub>의 것과 유사하다는 것도 알려지게 되었다. 또한, 기체 및 기화성 원소를 이온주입방법<sup>15-18)</sup>로 모의 사용후 핵연료에 주입하여 온도에 따른 핵분열 생성기체 방출의 거동을 연구하기도 하였다. 그리고, 연소도에 따른 핵연료의 열전도도를 평가하기 위한 연구<sup>15,18,19)</sup>도 수행되었다.

이와 같이 모의 사용후 핵연료는 조사된 사용후 핵연료를 대신할 수 있는 유일한 비 방사능 물질이다. 따라서 모의 사용후 핵연료는 사용후 핵연료의 열전도도, 비열, 핵분열생성기체 이동, 산화거동, 용해시험, 전기화학, 핵연료-피복관 상호거동, 조사손상 연구 등에 널리 이용되고 있다. DUPIC 핵연료의 물성예측을 위하여 모의 DUPIC 핵연료가 이용될 수 있으나, 이의 제조 관한 연구는 아직 발표되지 않았다. 모의 DUPIC 핵연료는 모의 사용후 핵연료를 이용하여 DUPIC 핵연료 제조공정에 따라 제조할 수 있다. DUPIC 핵연료 제조공정은 그림 1과 같다. 사용후 핵연료의 탈피복 공정(decladding)과 OREOX 공정 중 핵연료는 산화/환원 전후 생성물의 밀도차에 의한 부피팽창으로 내부의 응력을 견디지 못하고 분말로 깨어진다. 이런 분말을 소결하여 DUPIC 핵연

료를 제조한다.

모의 DUPIC 핵연료는 모의 사용후 핵연료를 OREOX 공정을 거쳐 소결하여 제조한다. 이러한 모의 DUPIC 핵연료는 실제 DUPIC 핵연료의 열전도도, 열팽창율, 비열, 크립, 경도 등의 물성 연구에 이용될 수 있다.

본 연구에서는 모의 사용후 핵연료를 이용하여 모의 DUPIC 핵연료를 제조하기 위한 분말처리, OREOX, 성형, 소결공정 및 소결체의 특성 분석을 수행하였다.

## 2. 실험방법

### 2.1. 재료

모의 DUPIC 핵연료 제조를 위하여 천연 이산화우라늄(UO<sub>2</sub>)은 ADU (ammonium diuranate)공정으로 제조된 분말을 이용하였다. 가압 경수로에서 33 MWd/kgU 까지 연소된 사용후 핵연료를 모사하기 위하여, 첨가될 핵분열 생성물을 ORIGEN-2 코드를 이용하여 계산하였으며, 휘발성 물질은 배제하고 함량이 높은 15개 원소를 선정하여 첨가하였다. 이중에서 확보가 힘든 Pr, Sm, Pd는 특성이 비슷한 Nd로 대체하여 첨가하였으며, 첨가된 핵분열 생성물의 양은 표 1에 나타내었다.

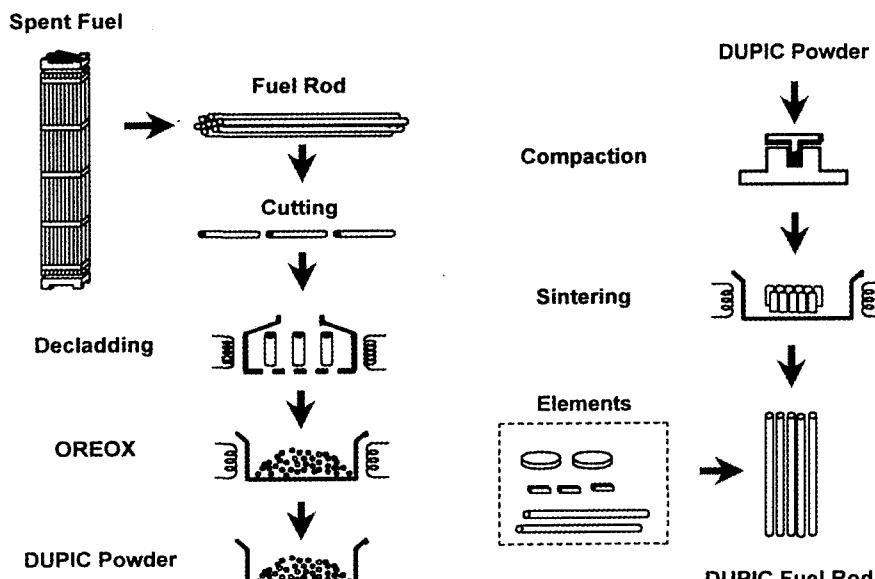


Fig. 1. Process of DUPIC Fuel Fabrication

**Table 1. Contents of fission products added to UO<sub>2</sub>**

Elements	Oxides	Oxides 량 g/100g U
Zr	ZrO <sub>2</sub>	0.606
Mo	MoO <sub>3</sub>	0.606
Ru	RuO <sub>2</sub>	0.375
Pd	PdO	0.221
Ba	BaCO <sub>3</sub>	0.323
La	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.173
Ce	CeO <sub>2</sub>	0.360
Pr*	Pr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	(1.575)
Nd	Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.571
Sm*	Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	(1.200)
Rb*	Rb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	(5.328)
Sr	SrO	0.103
Y	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.068
Rh	Rh <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.062
Te	TeO <sub>2</sub>	0.077

\* The contents of Pr, Sm, Rb are replaced by Nd

## 2.2. 분말처리

사용후 핵연료내의 핵분열 생성물을 핵연료 전체에 균질하게 분포되어 평형상태를 이루고 있다. 따라서 모의 사용후 핵연료 제조를 위하여 첨가된 핵분열 생성물을 UO<sub>2</sub> 분말에 균질하게 혼합하는 것이 중요하다. 인정된 형태의 핵분열 생성물을 유발에서 곱게 분쇄한 후 UO<sub>2</sub> 분말과 turbular mixer에서 약 12시간 혼합하였다. 또한 분쇄 및 혼합의 향상을 위하여 혼합 후 attrition 밀링과 습식 밀링을 수행하여 모의 사용후 핵연료의 원료분말을 제조하였다. 원료 분말을 1.3~1.65 ton/cm<sup>2</sup>의 압력으로 성형하여 1800°C 수소분위기에서 12시간 소결하여 모의 사용후 핵연료를 제조하였다. 소결된 모의 사용후 핵연료는 산화온도 400°C, 환원온도 600°C에서 3회의 OREOX 공정을 수행하였다. OREOX 공정을 거친 분말은 150 rpm의 arm 회전속도로 약 15분간 5회 반복하여 attrition 밀링을 수행하였으며, 습식 밀링은 같은 회전속도로 알콜내에서 24시간 수행하였다. 밀링된 분말의 유통성 및 충진율을 높이기 위하여 0.8 ton/cm<sup>2</sup>로 예비 압분 후 조립화(mesh 35)를 시켜 모의 DUPIC 핵연료용 원료분말을 제조하였다.

## 2.3. 성형 및 소결

모의 사용후 핵연료 및 모의 DUPIC 핵연료의 특

성을 비교하기 위하여 모의 사용후 핵연료의 제조과정과 같은 조건으로 제조하였다. 즉, 1.3~1.65 ton/cm<sup>2</sup>의 압력으로 성형하였으며, 1800°C, H<sub>2</sub>(100%) 분위기에서 약 10시간 소결하였다. 성형중 다이 벽면과 성형체 간의 마찰을 막기 위해 Zn stearate를 벤젠에 녹여 벽면에 도포한 상태로 성형하였다.

## 2.4. 특성분석

분말의 특성분석은 성형 및 소결에 영향을 미치는 입자크기와 비표면적을 중심으로 분석하였다. 입자크기는 Malvern Instruments 사에서 제조한 Laser Analyzer를 이용하였으며, 비표면적은 BET 법을 이용하여 측정하였다. 또한 분말의 형상은 주사 전자현미경(scanning electron microscopy, SEM)을 이용하여 파악하였다. UO<sub>2</sub>에 혼합된 핵분열 생성물의 균질도는 화학분석을 이용하여 확인하였다. 혼합 및 분쇄에 따른 균질도를 확인하기 위하여 혼합 및 분쇄 후 용기의 상, 중, 하 세 곳에서 시료를 채취하여 대표적인 원소를 대상으로 화학분석하였다. 소결체의 특성은 소결체의 결정립 크기, 침가한 불순물의 상태, 분말처리 및 성형압에 따른 소결체의 밀도 변화 그리고 크랙의 형성을 중심으로 분석하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. 분말특성

모의 DUPIC 핵연료 제조시 고려할 사항은 UO<sub>2</sub>와 핵분열생성물의 균일한 혼합과 핵분열 생성물의 열역학적 평형상태를 유지하는 것이다. 모의 사용후 핵연료를 제조하기 위하여 UO<sub>2</sub>와 핵분열 생성물을 혼합하여 모의 사용후 핵연료 분말을 제조하였다. 표 2는 turbular mixer에서 혼합 후와 attrition 밀링 후 UO<sub>2</sub>와 핵분열 생성물의 균질도를 나타낸 것이다. 핵분열 생성물 중 침가량이 많은 Mo, Zr, Nd를 대상으로 용기의 상, 중, 하에서 시료를 채취하여 화학분석하였다. Turbular에서 혼합 후 Mo의 농도는 약 ±10.2%, Zr의 농도는 약 ±8.2%, Nd의 농도는 약 ±7.1%의 편차를 나타냈으나, attrition 밀링 후에는 Mo는 약 ±1.6%, Zr은 약 ±3.5%, Nd는 약 ±1.8%의 편차를 나타내고 있어, attrition 밀링이 핵분열 생성물의 균질도를 향상시키는 것으로 나타났다.

표 3은 분말처리에 따른 입자크기 및 비표면적을

**Table 2. Contents of representative elements in UO<sub>2</sub> measured after turbular mixing and attrition milling**

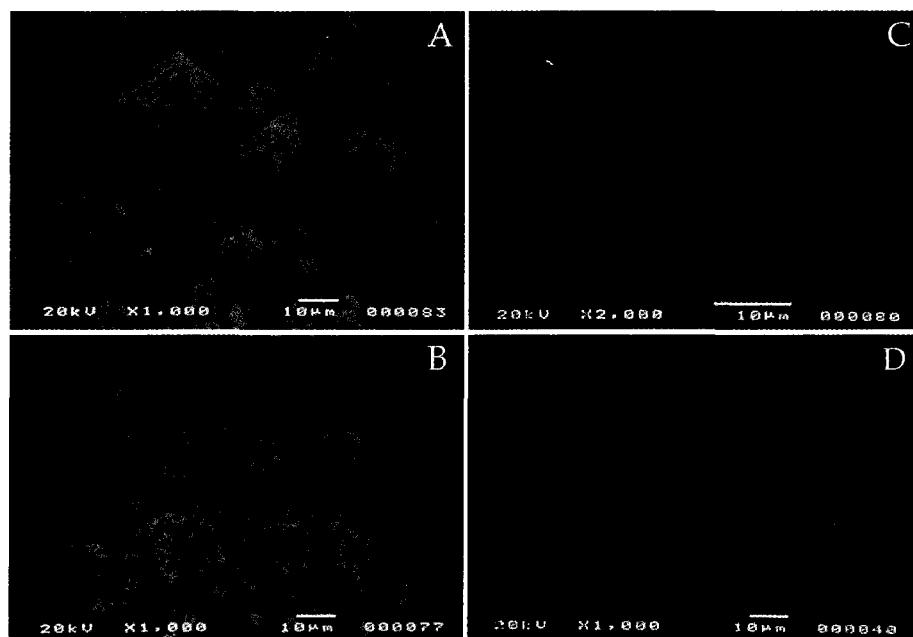
Powder	Sampling place	Mo	Zr	Nd
Turbular-mixed powder	Top	0.26	0.29	0.53
	Middle	0.30	0.29	0.55
	Bottom	0.32	0.34	0.61
Attrition-milled powder	Top	0.31	0.27	0.55
	Middle	0.31	0.29	0.56
	Bottom	0.32	0.29	0.57

**Table 3. The variation of particle size and specific surface area with powder treatment conditions**

Powder treatment	Particle size (μm)	Specific surface area (m <sup>2</sup> /g)
Raw material	3.28	5.33
Dry attrition milling	1st milling	1.68
	2nd milling	1.29
	3rd milling	1.11
	4th milling	0.70
	5th milling	0.50
Wet milling	0.37	6.15
After OREOX (simulated DUPIC powder)	0.35	5.23

나타낸 것이다. UO<sub>2</sub>와 핵분열 생성물을 turbular mixer에서 12시간 혼합한 후 분말의 입도는 3.28 μm

였으며, 1회 attrition 밀링 후 입자크기는 1.68 μm에서 5회 attrition 밀링 후 입자크기 0.5 μm까지 밀링 횟수가 증가할수록 입도는 작아지는 것으로 나타났다. 밀링하기 전 비표면적은 5.33 m<sup>2</sup>/g에서 5회 밀링 후 6.06 m<sup>2</sup>/g까지 밀링에 따라 증가하는 것으로 나타났다. 습식 밀링 후 입자크기 및 비표면적은 각각 0.37 μm와 6.15 m<sup>2</sup>/g으로 나타났다. 또한 모의 DUPIC 핵연료를 제조하기 위하여 모의 사용후 핵연료를 산화/환원시켜 모의 DUPIC 핵연료의 원료분말을 제조하였다. 산화/환원 후 분말의 입자크기와 비표면적은 각각 0.35 μm와 5.23 m<sup>2</sup>/g으로 나타났다. 모의 사용후 핵연료 원료분말을 제조하기 위한 건식, 습식 분말처리에 비해 산화/환원 후 분말의 입자크기와 비표면적이 작은 것으로 나타났다. 산화/환원 후 분말의 입자크기가 감소하는 반면, 비표면적도 작게 나타난 것은 건/습식 분말처리는 물리적으로 외부에서 힘을 가하여 분말을 분쇄하므로 입자에 많은 균열이 생겨서 비표면적이 상대적으로 증가했다. 산화/환원 분말처리는 산화초기에 U<sub>3</sub>O<sub>7</sub>, U<sub>4</sub>O<sub>9</sub> 등과 같은 중간상 형성으로 밀도차에 의한 응력이 결정립계에 작용하여 분말화 되므로 입자자체의 균열은 건/습식 분말처리에 비해 적게 나타난다. 또한 환원반응시 소



**Fig. 2. Microstructures of powder : A) before milling, B) simulated spent fuel powder after attrition milling, C) after OREOX process of simulated DUPIC fuel powder, and D) simulated spent fuel powder after wet milling**

결효과에 의해서도 비표면적이 줄어든다.<sup>1)</sup> 따라서 산화/환원처리된 분말의 비표면적이 전/습식 밀링처리된 분말의 비표면적보다 적게 나타났다.

그림 2의 (A), (B), (C) 및 (D)는 각각 밀링 전, 전식밀링, 산화/환원 및 습식 밀링 후 분말의 형상을 나타낸 것이다. 밀링 전 분말과 attrition 밀링 후 분말은 크기가 고르지 않게 나타났으나 산화/환원후 분말은 크기가 고르고 형상이 일정한 것으로 나타났다. 습식 밀링 후 분말은 솜 같은 형상을 나타내고 있다. attrition 밀링 후 분말의 형상이 고르지 않게 나타난 것은 밀링 후 약 10분내에 분말이 밀링 용기 벽에 들어 붙어 균일한 분쇄가 어려우며, 덩어리로 된 분말을 채에 담아 진동테이블에서 분말화 하기 때문에 분말의 응집화가 이루어졌기 때문으로 생각된다. 그러나 산화/환원 후 분말의 크기가 고르게 나타난 것은 산화/환원공정중에 화학적인 반응으로 산화물 또는 환원물이 생성되며, 생성물간의 밀도차이에 의한 응력 때문에 분말이 되므로 물리적인 힘에 의한 처리보다는 분말의 형상이 고르게 나타난 것으로 생각된다. 또한 습식 밀링처리에 의한 분말은 알콜매체내에서 분쇄되어 밀링 용기벽 또는 분말끼리의 응집화가 되지 않기 때문에 분말이 솜모양으로 나타난 것으로 생각된다.

### 3.2. 소결체의 특성

그림 3은 모의 사용후 핵연료와 모의 DUPIC 핵연료의 미세구조를 나타낸 것이다. 모의 DUPIC 핵연료의 결정립은 약  $4.6\text{ }\mu\text{m}$ 이며, 모의 사용후 핵연료의 결정립은  $3.5\text{ }\mu\text{m}$ 로서 산화/환원공정을 거친 모의 DUPIC 핵연료의 결정립이 크게 나타났다. 이런 현상은 두 번의 소결공정과 한번의 산화/환원공정을 거치면서 고온에서 기지에 고용되어지는 첨가물들이 충분한 온도와 시간을 확보하여 고용되어 지기 때문에 모의 사용후 핵연료보다는 입자성장을 저해하는 석출물들이 결정립 계에 적게 존재하기 때문으로 생각된다. 여기서 결정립 계에 하얀 알갱이와 다른 색의 결정립이 발견되었다. EPMA 결과 그림에서 하얗게 나타난 부분이 금속 석출물로서 Mo, Ru, Pd, Rh가 주를 이루고 있으며, 결정립 계와 기지내의 검은 부분은 연마중 시편이 떨어져나간 것으로 생각되나 기지내에 어둡게 보이는 부분은 산화 석출물로서 Zr과 Ba가 주를 이루는 것으로 나타났다. Lucuta등은 금

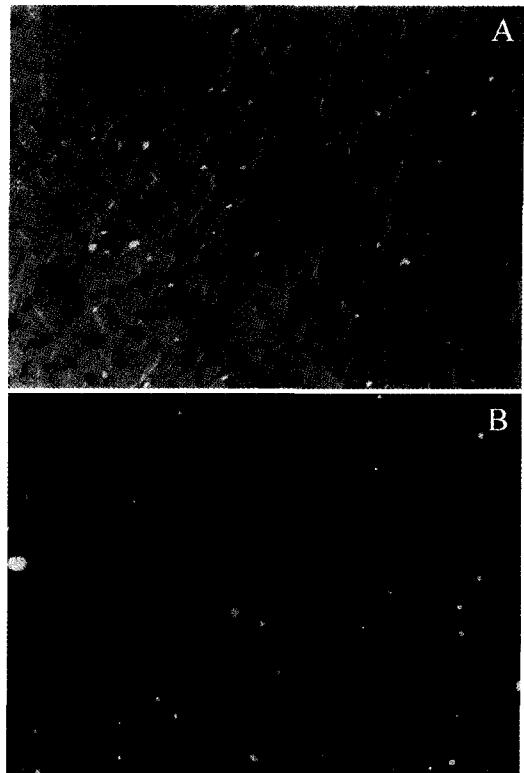


Fig. 3. SEM image of a polished and etched surface of pellets showing equiaxed matrix grains and precipitates :  
A) simulated spent fuel( $\times 1000$ )  
B) simulated DUPIC fuel( $\times 1000$ )

속 석출물은  $\text{Mo}_{0.7}\text{Ru}_{0.3}$ 의 금속간 화합물을 이루고 있으며, 산화 석출물은  $\text{BaZrO}_3$ 의 perovskite 구조를 이루는 것으로 발표했다.<sup>14)</sup>

그림 4는 성형압에 따른 소결체의 밀도를 나타낸 것이다. 전식 밀링 처리된 분말을 이용하여 제조한 소결체의 경우 성형압이  $1.3\text{ton}/\text{cm}^2$ 에서  $1.66\text{ton}/\text{cm}^2$ 로 증가함에 따라 모의 사용후 핵연료의 소결밀도는  $10.227\text{ g}/\text{cm}^2$ 에서  $10.255\text{ g}/\text{cm}^2$ 로 증가하였으며, 모의 사용후 핵연료를 산화/환원 후 재소결한 모의 DUPIC 핵연료는  $10.365\text{ g}/\text{cm}^2$ 에서  $10.398\text{ g}/\text{cm}^2$ 로 증가하였다. 습식 밀링 처리된 분말을 이용하여 제조한 소결체의 경우 성형압이 증가함에 따라 모의 사용후 핵연료의 소결밀도는  $10.457\text{ g}/\text{cm}^2$ 에서  $10.549\text{ g}/\text{cm}^2$ 로 증가하는 것으로 나타났으며 모의 DUPIC 핵연료는  $10.573\text{ g}/\text{cm}^2$ 에서  $10.61\text{ g}/\text{cm}^2$ 로 증가하였다. 따라서 분말처리에 관계없이 성형압에

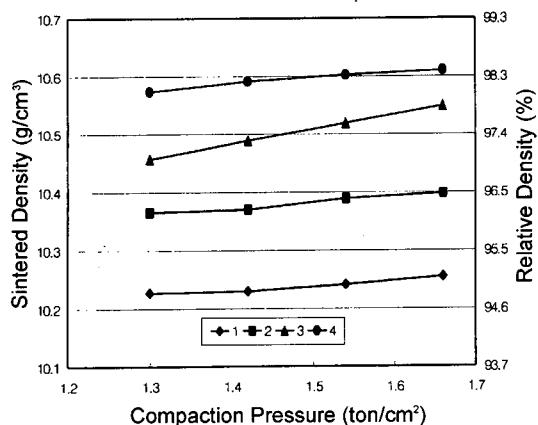


Fig. 4. Densities of simulated fuels with to the variation of compaction pressure:

- A) simulated spent fuel produced with dry milled powder
- B) simulated DUPIC fuel produced with dry milled powder
- C) simulated spent fuel produced with wet milled powder
- D) simulated DUPIC fuel produced with wet milled powder

따라 소결밀도는 증가하는 것으로 나타났으며, 모의 사용후 핵연료 보다 모의 DUPIC 핵연료의 소결밀도가 높게 나타났다. 또한 건식 밀링 처리된 분말을 이용한 소결체보다 습식 밀링 처리된 분말을 이용하여 제조된 소결체의 밀도가 높게 나타났다. 모의 사용후 핵연료보다 모의 DUPIC 핵연료의 소결밀도가 높게 나타난 것은 모의 핵연료의 소결성에 미치는 핵분열 생성물이 산화/환원 공정 및 고온의 재소결 과정에서 충분한 확산이 이루어져 모의 DUPIC 핵연료 내에서 고르게 분포되었으며, 열역학적으로 평형상태를 유지하기 때문으로 생각된다. 또한 앞에서 설명한 바와 같이 한번의 소결공정과 산화/환원공정을 더 거치면서 고온에서 기지에 고용되는 첨가물들의 양이 많아지기 때문에 상대적으로 입자성장을 저해하는 석출물들이 결정립 계에 적게 존재하기 때문으로 생각된다. 아울러 산화/환원공정시 분말내부에 미세균열 발생등 분말특성의 변화가 수반된 것으로 생각된다. 또한 건식 밀링 처리보다 습식 밀링 처리된 분말의 소결밀도가 높은 것은 분말의 특성에서 살펴본 바와 같이 건식 밀링 처리된 분말보다 습식 밀링 처리된 분말의 입도가 작고 비표면적이 크기 때문으로 생각된다. 따라서 높은 밀도의 소결체를 얻기 위해서는 습식 밀링 분말처리가 유리한 것으로 나타났다.

그림 5는 모의 핵연료의 균열 형상을 나타낸 것이

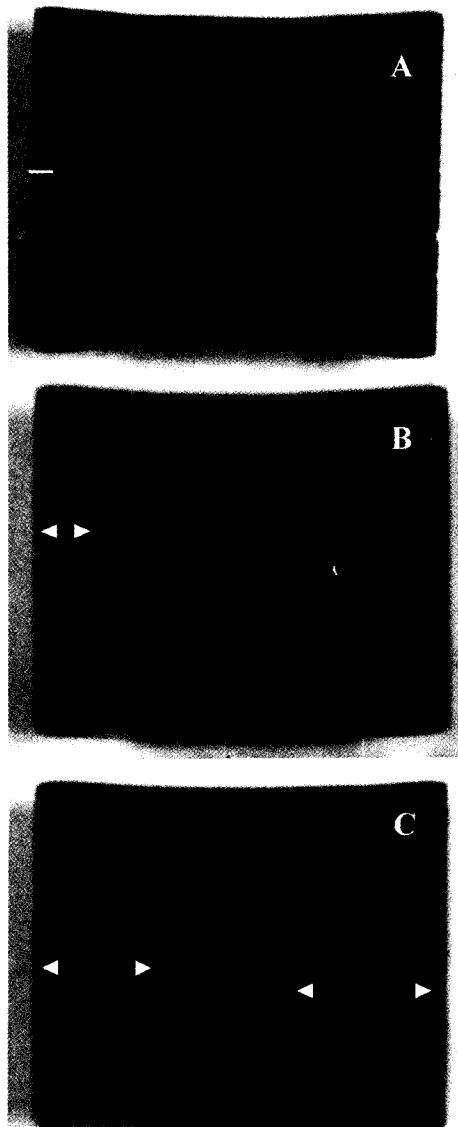


Fig. 5. Crack shapes of simulated DUPIC fuel and simulated spent fuel:

- A) simulated DUPIC fuel(compaction pressure : 1.3 ton/cm<sup>2</sup>)
- B) simulated DUPIC fuel(compaction pressure : 2.0 ton/cm<sup>2</sup>)
- C) simulated spent fuel(compaction pressure : 1.66 ton/cm<sup>2</sup>)

다. 일반적으로 소결체에 발생하는 균열은 소결체 내부의 밀도 및 응력의 차이에 의해서 발생하는 것으로 생각된다. 즉 성형할 때 분말간의 마찰과 다이버스션과의 마찰 등으로 인해 성형압이 성형체에 균일하게 분포되지 않으며, 이로인해 성형체 내부에 밀도의

차이가 존재하게 된다. 이런 성형체를 소결하면 밀도 차이에 따라 수축율이 달라지고, 수축율차이에 따른 응력이 발생하게 된다. 또한 모의핵연료와 같이 열전도도가 낮은 핵연료를 소결할 때 소결온도까지 가열, 그리고 상온으로 냉각할 때 소결체 내부 및 외부의 온도 차이에 의한 열응력이 발생하게 된다. 이러한 내부 내부응력을 견디지 못할 경우 균열이 발생하게 된다. 본 실험에서는 균열이 수평으로 발생하였으며 성형압이 높을수록 균열의 깊이와 길이가 크게 나타났다. 모의 DUPIC 핵연료의 경우는  $1.3 \text{ ton/cm}^2$  의 성형압에서는 깊이가 1 mm 이하, 길이가 약 7 mm의 균열이 수평으로 발생하였으며,  $1.65 \text{ ton/cm}^2$  에서는 깊이가 약 2 mm, 길이가 약 7 mm의 균열이 수평으로 발생하였다. 모의 사용후 핵연료의 경우는 깊이 약 4.5 mm의 균열이 수평으로 발생하여 모의 DUPIC 핵연료보다 크게 나타났다. 균열이 수평으로 발생한 것은 성형할 때 성형체와 다이 벽면과의 마찰에 의한 것으로 생각되며 성형압이 높을수록 균열이 크게 발생된 것은 다이 벽면과의 마찰이 크기 때문으로 생각된다. 그러나 천연이산화우리늄만으로 소결체를 제조할 때 동일한 제조조건에 의해서는 균열이 발생하지 않는 것을 고려하면, 첨가물의 혼합으로 기지의 소결능이 저하됨과 동시에 고용되지 않은 첨가물의 석출물등이 입계에 존재함으로서 입계를 따라 균열이 쉽게 일어나는 것으로 추측된다. 아울러 모의 DUPIC핵연료의 크랙이 모의 사용후 핵연료의 균열보다 적게 나타난 것은 앞에서 살펴본 바와 같이 모의 DUPIC 핵연료의 제조 중 규질도의 향상 등에 의한 소결성이 향상되어 밀도가 증가되었고 이로 인해 내부응력을 잘 견디기 때문으로 생각된다.

#### 4. 결 론

모의 DUPIC 핵연료 제조에 관한 연구를 통해서 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 산화/환원공정을 통해 분말의 소결특성이 향상되었다.
2. 모의 DUPIC 핵연료의 밀도가 모의 사용후 핵연료의 밀도 보다 크게 나타났다.
3. 모의 DUPIC 핵연료의 결정립 크기는  $4.6 \mu\text{m}$  였다.

4. 성형압을 높이는 것이 소결밀도를 향상시키나 균열이 발생한다.

5. 분말 처리중 습식밀링이 건식밀링보다 소결밀도를 더 향상시킨다.

6. 핵분열 생성물 중 금속간 화합물은 Mo, Ru, Pd, Rh가 주를 이루며, 결정립 계에 존재한다.

7. 산화석출물은 Zr과 Ba가 주를 이루고 있으며 기지내에 존재한다.

#### 감사의 글

본 연구를 위해 많은 토론을 해주신 한국원자력연구소의 김형수 박사님, 나상호 박사님 그리고 이영우 박사님께 감사드립니다.

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

#### 참고문헌

1. 양명승, 박현수, 이영우, 나상호, 이정원, 송근우, 배기광, 김한수, 김봉구, 김형수, 정상태, 권우주, 김시형, 조대식, 서승원, 김윤희, 최광국, 육영미, “경중수로 연계 핵연료주기 기술개발”, KAERI/RR-1311/93.
2. H. Kleykamp, J. Nucl. Mater., **167** (1985) 49.
3. T. Muromura, T. Adachi, H. Takeishi, Z. Yoshida, T. Yamamoto and K. Ueno, J. Nucl. Mater., **151** (1988) 318-326.
4. T. Adachi, T. Muromura, H. Takeishi and T. Yamamoto, J. Nucl. Mater., **160** (1988) 81-87.
5. P.G. Lucuta, B.J. Palmer, Hj. Matzke and D.S. Hartwig, “Preparation and characterization of SIMFUEL; Simulated CANDU high-burnup nuclear fuel”, Proc. Second Int. Conf. CANDU Fuel, Ed. I.J. Hasting, CNS, Toronto (1989), also AECL-10117 (1989).
6. K. Une and M. Oguma, J. Nucl. Sci. Technol., **20** (1983) 844.
7. J.O. Paschoal, H. Kleykamp and F. Thummel, Z. Metallk. **74** (1983) 652.
8. K. Naito, T. Tsuji, T. Matsui and A. Date, J. Nucl. Mater. **154** (1988) 3.
9. M. Ugajin, T. Shiratori and K. Shiba, J. Nucl. Mater. **84** (1979) 26.
10. M. Ugajin and K. Shiba, J. Nucl. Mater. **91** (1980) 227.
11. M. Ugajin and K. Shiba, J. Nucl. Mater. **105** (1982) 211.
12. R.A. Verrall, I.J. Hastings, P.G. Lucuta, Hj. Matzke and B.J. Palmer, “Preparation and applications of simulated high-burnup fuel”, Proc. 11th Annual Conf. of the

- CNA, Toronto, June 3-8 1990, also AECL-10217 (1990).
13. P.G. Lucuta, B.J. Palmer, Hj Marzke and D.S. Hartwig, "Preparation and characterization of SIMFUEL; Simulated CANDU higg-burnup nuclear fuel", Proc. Second Int. Conf. CANDU Fuel, Ed. I.J. Hastings, CNS, Toronto (1989).
  14. P.G. Lucuta, R.A. Verrall, Hj. Matzke and B.J. Palmer, J. Nucl. Mater., **178** (1991) 48.
  15. T. Ogawa, R.A. Verrall, M.D. Schreiter and M.O. Westcott, "Dose effect on release of ion-implanted noble gases from oxide fuel", Proc. of Int. Conference on CANDU Fuel, Chalk River, 1986 Oct. 6-8, CNS, Ed. I.J. Hastings, 543-557.
  16. R.A. Verrall, Hj. Matzke, T. Ogawa and B.J. Palmer, "Iodine release and bubble formation in oxide fuels", Proc. of Int. Conference on CANDU Fuel, Chalk River, 1986 Oct. 6-8, CNS, Ed. I.J. Hastings, 558-572.
  17. Hj. Matzke, I.L.F. Ray and R.A. Verrall, "Diffusion and behaviour of iodine and rubidium in  $\text{UO}_2$  and  $\text{ThO}_2$ ", IAEA, IWGFOT/27 (1987) 183-196.
  18. P.G. Lucuta, R.A. Verrall, Hj. Matzke and I.J. Hastings, "Thermal conductivity and gas realease from SIMFUEL", Fission gas release and fuel rod chemistry related to extended burnup, Proc. of a Committee Mtg., Pembroke, Ontario, Canada, 28 May-1 May 1992, also IAEA-TECDOC-697 (Apr. 1993).
  19. P.G. Lucuta, Hj. Matzke and R.A. Verrall, J. Nucl. Mater., **223** (1995) 51.
  20. J. Cobos, D. Papaioannou, J. Spino, M. Coquerelle, J. Alloys and Compounds **271** (1998) 610