

## 종자첨가 이산화우라늄의 결정립 성장 거동 Grain Growth Behaviour in Seeded UO<sub>2</sub> Pellet

이용우\*, 김건식, 강기원, 김종현, 양재호, 이영우, 송근우  
한국원자력연구소 경수로연료개발부

### 1. 서론

핵분열 기체의 방출을 억제시키기 위한 방법으로 소결체의 결정립 크기를 증가시키는 연구가 진행되고 있다.[1] 종자를 첨가하여 소결하는 방법은 불량 소결체를 재활용하는 동시에 결정립을 성장시킬 수 있다는 장점을 가지고 있다. 현재까지 알려진 바로는 UO<sub>2</sub> seed는 기지상 입자들과의 곡률 반경의 차에 의해 구동하며 결정립 성장을 매우 효과적으로 촉진시킬 수 있는 것으로 확인되었다.[2] 그러나 실제 소결시에 결정립이 성장하는 시점과 종자 크기에 따른 결정립 크기와의 상관 관계에 대하여는 아직 확인되지 않았다. 본 연구에서는 통상적인 소결체 제조공정에 25 $\mu$ m의 크기로 제조한 종자를 첨가하여 소결 중에 일어나는 결정립 성장 거동을 소결 온도와 시간별로 관찰하였다.

### 3. 실험방법

본 실험에서는 scrap UO<sub>2</sub> pellet을 산화시켜 얻어진 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말을 사용하여 UO<sub>2</sub> seed를 제조하였다. U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말을 700 $^{\circ}$ C에서 2시간 동안 환원시킨 후 이를 다시 CO<sub>2</sub> 분위기에서 1720 $^{\circ}$ C까지 온도를 높여 열처리 하였다. 열처리된 UO<sub>2</sub> 종자를 0.1톤의 압력을 가해 분리하였다. ADU-UO<sub>2</sub> 분말에 UO<sub>2</sub>종자를 4wt% 첨가하여 tumbling mixer에서 1시간 혼합하였다. 혼합 분말을 3t/cm<sup>2</sup>의 압력을 가하여 성형 하였으며 1400 $^{\circ}$ C에서 1700 $^{\circ}$ C까지 온도와 유지시간을 변화시키면서 소결하였다. 제조된 소결체는 아르키메데스의 원리를 적용하여 밀도를 측정하였고 시편연마후 열에칭하여 조직을 관찰하였다. 주사전자현미경으로 seed의 크기 및 형상을 관찰하였고 광학현미경과 image analyzer를 이용하여 소결체의 미세 조직과 결정립 크기를 측정하였다.

### 2. 실험결과

[그림1]은 1720 $^{\circ}$ C, CO<sub>2</sub>분위기에서 4시간 동안 유지시켜 제조한 UO<sub>2</sub> seed의 형상을 나타내는 SEM 사진이다. 구형의 단결정 형태로 평균 25 $\mu$ m 정도의 크기를 나타내고 있다. [그림2]는 UO<sub>2</sub> seed를 4wt% 첨가하여 제조한

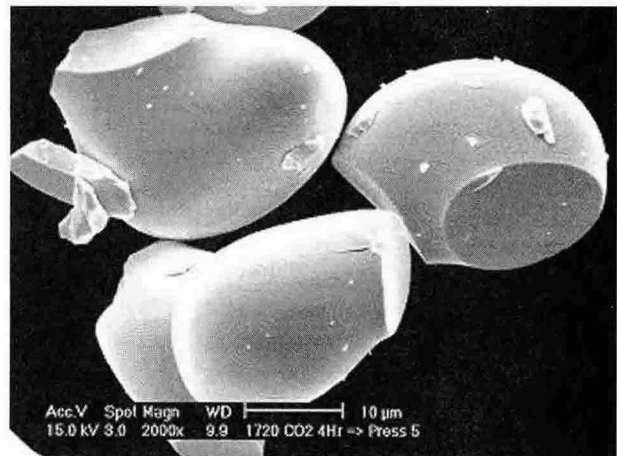
소결체의 미세조직 사진이다. 소결 온도 1500 $^{\circ}$ C에서는 첨가된 종자와 기지상 입자들이 별도의 독립된 형태를 나타내고 있으며 입자성장은 크게 일어나지 않았다. 소결 온도가 높아 질수록 기지 결정립과 종자간의 곡률 반경 차에 의한 구동력이 작동하여 종자를 중심으로 결정립 크기가 급격히 증가하였다. 통상적인 소결 조건인 1700 $^{\circ}$ C 4시간에서는 첨가된 종자 크기의 2.5배에 달하는 50~60 $\mu$ m 크기의 결정립이 관찰되었다.

1400~1700 $^{\circ}$ C 온도와 1700 $^{\circ}$ C 유지시간에 따른 종자크기에 비한 결정립 크기의 비율(Growth factor)을 [그림3]에 나타내었다. 결정립 크기는 1600 $^{\circ}$ C까지 종자크기의 1.5배 정도였던 것이 1700 $^{\circ}$ C 도달후에는 약 2.0배가 되고 1700 $^{\circ}$ C에서 2시간 유지하면 2.5배가 되며, 그 이상에서는 포화되는 양상을 보였다.

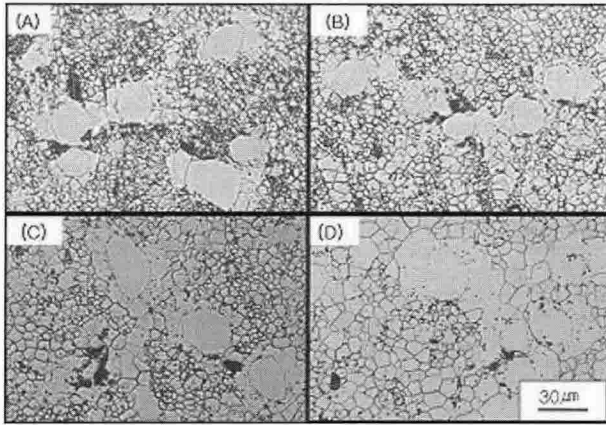
### 4. 결론

첨가된 UO<sub>2</sub> 종자는 소결온도 1600 $^{\circ}$ C 이후부터 빠른 속도로 결정립 성장을 촉진하였다.

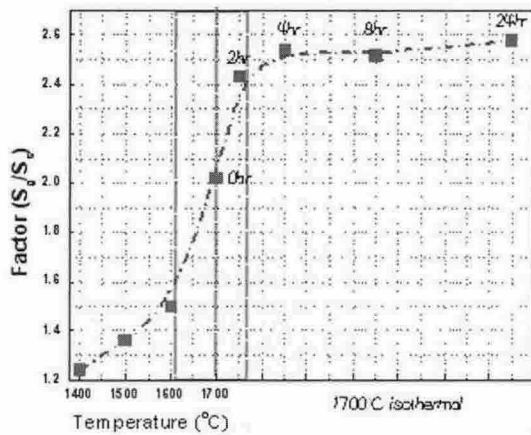
통상적인 소결조건에서 하나의 종자가 작동하여 성장시킬 수 있는 결정립의 크기는 종자크기의 약 2.5배이다.



[그림 1] SEM image of UO<sub>2</sub> seed



[그림 2] Microstructures of seeded UO<sub>2</sub> pellets  
 (A)1500°C 0Hr (B)1600°C 0Hr (C)1700°C 0Hr  
 (D) 1700°C 4Hr



[그림 3] Growth Factor (Grain size / Seed size)

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부 원자력 연구개발 중장기 사업의 지원으로 수행되었음.

#### 참고문헌

1. 송근우외, 소결체재료신기술개발, KAERI/RR2323/2002, 과학기술부, 2003.3
2. K.W.Song et al, J. Nucl. Mater. 317 (2003)204
3. K.W.Song et al, J. Nucl. Mater, 277 (2000)123
4. H.Assmann et al, in Guidebook on Quality Control of Water Reactor Fuel, TR series No.221, IAEA, Vienna, (1983) 84