

승온속도가 UO_2 -15wt% CeO_2 의 소결성에 미치는 영향

Effect of the Sintering Rate on the Sinterability of UO_2 -15wt% CeO_2

한국원자력연구소 김연구*, 나상호, 김시형, 이영우, 김한수

1. 서론

자원의 재활용과 폐기물 감용화를 위해 단일 산화물인 UO_2 대신에, 혼합산화물(MOX, Mixed OXide)인 $(U,Pu)O_2$ 가 연료로 시도되고 있으며, 일부 경수로 원자력 발전소에서 연료로 사용되고 있다. 일반적으로 혼합산화물 소결체의 조성, 소결밀도 그리고 미세구조 등은 장주기·고연소도화에 중요한 인자로 알려져 있다. 첨가 산화물의 함량 증대는 고연소도화를 유도하지만, 첨가 산화물의 양의 첨가가 증가할수록 균질성 있는 소결체를 제조하기 어렵다.

본 연구에서는 PuO_2 와 핵화학적 성질이 유사한 CeO_2 를 사용하였으며, 첨가량은 15wt%로 하였다. 산화성 분위기 하에서 승온속도가 UO_2 -15wt% CeO_2 의 소결성에 미치는 영향을 조사하였다.

2. 실험 방법

UO_2 분말과 CeO_2 분말을 혼합용기에 넣어 1시간 예비혼합하였다. 예비혼합된 혼합산화물 분말을 다이내믹 밀로 4시간 밀링하였다. 다이내믹 밀의 분말용기는 분당 25번 회전하며, 용기 안에는 직경 8 mm의 지르코니아 볼이 70 vol.% 들어 있다. 분쇄·혼합된 분말은 유압 프레스를 이용하여 성형압력 300 MPa로 성형하였다. 제조된 성형체는 산화성 분위기 하(CO_2)에서 승온속도를 변화시켰으며(0.5~8°C/분), 최종 소결온도는 1500°C에서 4시간 유지하였다. 소결밀도와 결정립 크기는 각각 수침법(immersion method)와 intercept 방법을 사용하여 측정하였다. 소결시 수축율은 TMA-92(Setaram, 프랑스) 장치를 이용하여 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 1에 소결 승온속도에 따른 UO_2 -15wt% CeO_2 의 소결밀도를 도시하였다. 그림에서 보는 바와 같이 승온속도가 증가하여도 소결밀도는 거의 변하지 않지만 조금은 감소하는 경향을 보여준다. 그림 2와 3에 각각 소결 승온속도에 따른 결정립 크기와 미세구조 사진을 나타내었다. 그림과 미세구조 사진에서 보는 바와 같이, 승온속도가 증가할 수록 결정립 크기는 감소하는 경향을 보여주지만, 승온속도 분당 2°C 이상에서는 거의 비슷한 경향을 보여준다. 즉, 2°C/min 이상의 승온속도에서는 승온속도가 증가하여도 결정립 크기는 감소하지 않음을 보여준다.

그림 4에 소결 승온속도의 함수로 UO_2 -15wt% CeO_2 의 고밀화 곡선을 도시하였다. 고밀화 곡선에서 알 수 있는 바와 같이, 수축율이 변화되지 않는 구간이 존재한다. 이 온도 구간은 고용체 형성 구간, T_{SSF} , 으로 알려져 있다. 고용체 형성 온도 구간은 소결 승온속도가 증가할수록 증가하는 경향을 보여준다. 예를 들어, 소결 승온속도가 분당 0.5°C, 2°C 그리고 8°C인 경우 T_{SSF} 는 각각 830-1250°C, 880-1290°C 그리고 935-1320°C로 증가하는 것으로 나타났다. 이러한 데이터를 참조하여 소결시 소결온도의 프로파일 작성에 도움을 줄 것으로 사료된다.

3. 결론

소결 승온속도가 UO_2 -15wt% CeO_2 의 소결성(소결밀도, 결정립 크기 그리고 고용체 형성 온도구간)에 미치는 영향을 조사하여 다음과 같은 결론을 구하였다.

- 소결 승온속도가 증가할수록 결정립 크기는 감소하는 반면에 소결밀도는 거의 변하지 않은 것으로 나타났다.
- 소결 승온속도가 증가할수록 고용체 형성 온도 구간은 높게 나타났다.

Acknowledgement

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었음.

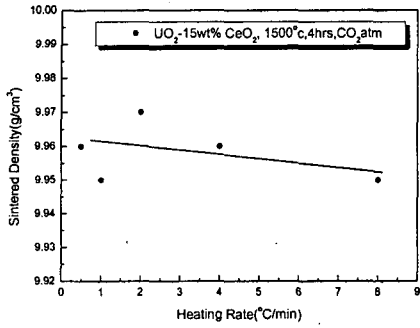


Fig. 1 The sintered density of the UO_2 -15wt% CeO_2 pellet as a function of the heating rate

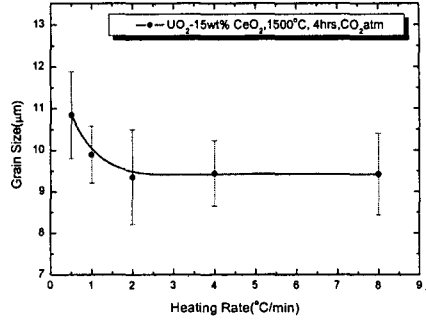


Fig. 2 The grain size of the UO_2 -15wt% CeO_2 pellet as a function of the heating rate

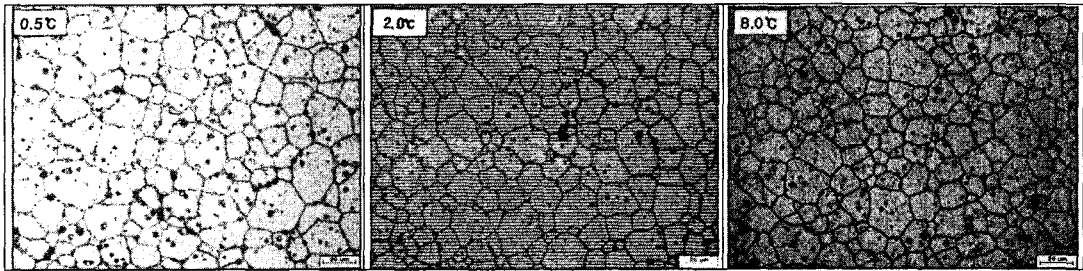


Fig. 3. The grain structures of UO_2 -15wt% CeO_2 pellet as a function of the heating rate.

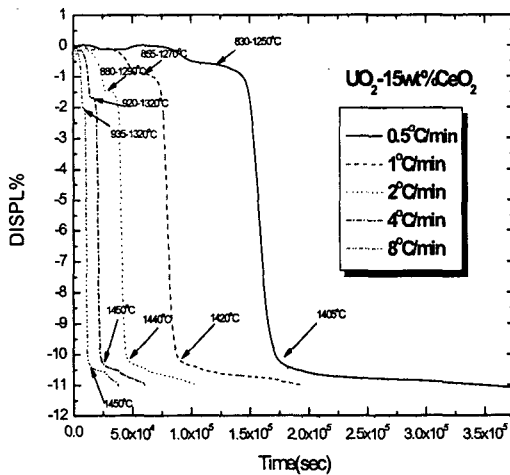


Fig. 4 The shrinkage of the UO_2 -15wt% CeO_2 pellet as a function of the heating rate