

(U,Ce)O<sub>2</sub> 함량[CeO<sub>2</sub> ; 1.6~6.5wt%]에 따른 소결특성 변화

나상호, 강권호, 김영희\*, 유명준\*\*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

\*한국수력원자력(주) 원자력발전기술원, 대전시 유성구 금병로 508

\*\*한전원자력연료(주), 대전광역시 유성구 덕진동 493

shna@kaeri.re.kr

## 1. 서론

현재 세계 원자력발전의 주종 연료로 사용되고 있는 이산화우라늄(UO<sub>2</sub>)이다. 이산화우라늄은 원자로에 장전되어 일정 기간 연소된 후 방출되며, 이 방출된 핵연료를 사용후핵연료라 한다. 사용후핵연료에는 핵분열생성물을 포함한 다양한 방사성물질이 함유되어 있으며, 연소도에 따라 그 함량은 달라진다. 우라늄 자원의 고갈 우려와 사용후핵연료의 보관·저장 등의 경제성 그리고 사용후핵연료의 처리를 통해 미연소된 우라늄 자원 및 연소시에 생성된 새로운 연료를 이용할 수 있는 기술의 발달로 인하여 사용후핵연료의 재활용에 대한 관심이 점증되고 있다. 사용후핵연료는 습·건식 재처리를 통해 혼합산화물(MOX) 또는 금속우라늄의 형태로 재활용되고 있다. 특히 경수로에서 연소된 사용후핵연료에는 미연소된 핵분열물질(fissile material)의 함량이 천연우라늄의 것보다 높다는 특성을 이용하여 연료 그대로 중수로의 연료로 사용할 수 있는 DUPIC 핵연료제조기술이 개발되었다. DUPIC 핵연료 제조기술의 개발에 따른 기반기술을 이용할 때 사용후핵연료에 대한 재활용 방안에 대한 선택의 폭은 넓어질 것이다. 여기에서는 기존의 DUPIC 기술을 이용하여 핵연료를 제조하고자 하였다. 그러나 고준위 방사성물질인 사용후핵연료에 대한 접근성이 용이하지 않아 사용후핵연료의 조성 과 유사한 모의물질(simfuel ; simulated fuel)을 사용하여 재활용 기술이 이루어지고 있다.

여기에서는 UO<sub>2</sub>와 고용체를 형성하는 핵분열생성물 중에서 원자가가 4개인 CeO<sub>2</sub> 만을 대표 모의물질로 선정하여 연소도, 즉 첨가함량에 따른 소결특성을 조사하였다.

## 2. 본론

## 2.1 시편 준비 및 실험 방법

UO<sub>2</sub>-CeO<sub>2</sub> 상태에서 형성형의 전을 고용체를 형성한다. 실험에서 CeO<sub>2</sub>의 첨가함량(wt%)은 3종류-1.63(2.53 mol%), 3.25(5.33 mol%) & 6.51(9.85 mol%)-이며, 총량은 50g으로 하였다. 이 함량은 각각의 연소도 3at%, 6at% 그리고 12at%에서 고용체를 형성하는 핵분열생성물의 총량이다. 이들의 기호는 각각 Ce-1, Ce-2 그리고 Ce-4로 나타내었다. (U,Ce)O<sub>2</sub> 소결체의 제조공정은 기존의 UO<sub>2</sub> 소결체 제조공정과 동일하게 분말처리(혼합, 조립 및 사분)-성형-소결공정으로 이루어진다. 다만 2 종류의 분말을 균질하고 균일한 혼합물을 만들기 위하여 혼합한 후 다이내믹 밀을 이용하여 밀링처리를 하였다. 밀링시간(hr)은 Ce-1인 경우에는 5 조건(0.25, 0.5, 1, 2 & 4), Ce-2 및 Ce-4인 경우에는 5조건(0.5, 1, 2, 4 & 8)으로 하였다. 이는 첨가량이 많을수록 균질화를 위해서 밀링시간의 증가가 필요할 것으로 판단하였기 때문이다. 성형은 1축 프레스를 사용하였으며, 성형압력(MPa)은 Ce-1인 경우에는 2 조건(150 & 450), Ce-2 및 Ce-4인 경우에는 3 조건(150, 300 & 450 MPa)으로 성형하였으며, 제조된 성형체의 성형밀도는 기하학적 방법으로 측정하였다. 시료당 무게는 5.0±0.1(g)으로 하였다. 각 조건 당 성형체는 3개씩 제조하였다. 제조한 성형체의 소결은 1750 °C, 6시간 수소분위기하에서 하였으며, 소결밀도는 수침법(immersion method)으로 측정하였다. 그리고 결정립 크기는 결정립 크기는 시료를 반으로 잘라 연삭 및 연마한 후 thermal etching(1200 °C, 2시간)시킨 후 나타난 결정립을 광학현미경을 이용하여 6곳을 선정 한 후, 선형교차(linear intercept)법으로 결정립이 50개 지나는 거리로 측정하여 평균한 값이다.

## 2.2 실험 결과

Fig. 1에 원자가가 4개인 Ce의 함량(Ce-1, Ce-2 그리고 Ce-4) 및 다이내믹 밀링 시간에 따른 (U, Ce)O<sub>2</sub>의 성형압력별 성형밀도 및 소결밀

도를 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 함량에 관계없이 성형압력이 증가하면 성형밀도는 증가하는 경향을 보여준다. 또한 밀링시간이 증가하면 성형밀도는 증가하나 4시간 이상의 밀링시간에서는 거의 포화되는 경향을 보여준다. 반면에 소결밀도는 Ce-1의 경우, 밀링시간이 증가하면 소결밀도는 감소하는 경향을, Ce-2의 경우 소결밀도는 감소하다가 포화되는 경향을 그리고 Ce-4의 경우에는 밀링시간에 따라 소결밀도는 증가하는 경향을 보여준다. 즉 원하는 소결밀도를 얻기 위해서는 첨가량에 따라 밀링시간을 조정해야 할 것으로 판단된다. 일반적으로  $UO_2$  분말을 밀링하면 밀링시간에 따라 생성된 열에 의해 잉여산소에 의해 분말의 O/U비는 증가하며, 이에 따라 소결밀도는 감소한다. Ce는 산소를 흡수하는 특성이 있으므로, 밀링에 의한 잉여산소를 어느 정도 흡수할 수 있을 것으로 사료된다. 따라서 Ce 첨가량이 적은 경우에는 잉여산소에 의해 소결밀도가 감소하지만, 어느 정도 이상의 Ce첨가량과 밀링시간에서는 Ce에 의해 잉여산소가 흡수되어 소결밀도가 감소하지 않을 것으로 사료된다.

Fig. 2에 소결밀도가 비슷한 시료의 결정립 크기를 나타내었다. 즉 Ce-1의 경우, 밀링시간은 1시간, 성형압력은 450 MPa, 소결밀도는 95.7%T.D., Ce-2의 경우, 밀링시간은 2시간, 성형압력은 300 MPa, 소결밀도는 95.03 %T.D., 그리고 Ce-4의 경우, 밀링시간은 2시간, 성형압력은 300 MPa, 소결밀도는 95.8 %T.D.이다. 그림에서 보는 바와 같이, 소결밀도는 대략 95 %T.D.로 비슷하지만 Ce의 첨가함량에 따라 결정립 크기는 증가하는 경향을 보여준다.

### 3. 결론

$CeO_2$  첨가함량 및 밀링시간에 따른  $(U, Ce)O_2$ 의 밀도 및 결정립 크기를 조사하여 다음과 같은 결과를 구하였다.

- 밀링시간이 증가하면 소결밀도는 Ce-1에서는 지속적으로 감소하는 경향을, Ce-2에서는 감소하다가 포화되는 경향을 그리고 Ce-4의 경우에는 소결밀도는 지속적으로 증가하는 경향을 보여준다.
- Ce의 첨가함량에 따른 결정립 크기는 Ce 함량에 따라 증가하는 경향을 보여준다.

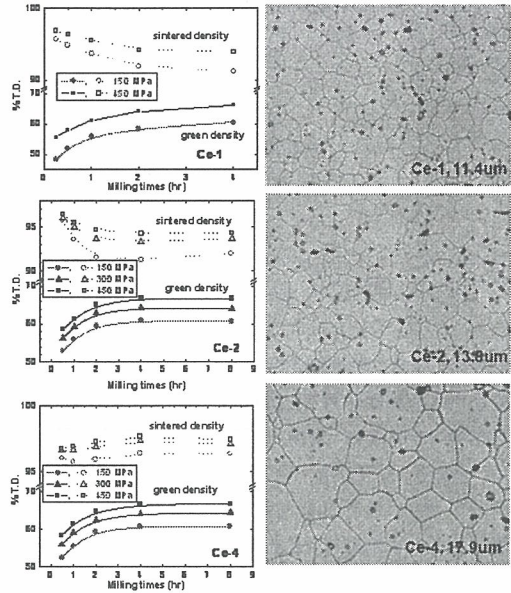


Fig. 1. Green density vs. sintered density

Fig. 2. Microstructures of  $(U,Ce)O_2$

### 4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력증장기과제의 일환으로 수행되었습니다.