

## 소결 분위기에 따른 이산화우라늄의 치밀화 및 입자성장 (Effect of Sintering Atmosphere on the Densification and Grain Growth of Uranium Dioxide at Final-Stage Sintering)

한국과학기술원 \*이영우, 강석중  
한국원자력연구소 김형수, 양명승

### 1. 서론

UO<sub>2</sub>는 가장 대표적인 세라믹계 핵연료로써 금속계 핵연료에 비해 열전도도는 낮지만, 고온에서 화학적으로 안정하고 융점, 변태점이 높으므로 핵반응 온도를 높여 고출력을 얻기에 적당하다. 따라서, 현재 대부분의 상업 발전용 원자로에서는 UO<sub>2</sub>핵연료가 사용되고 있다. UO<sub>2</sub>핵연료 제조 공정중에서 소결은 매우 중요한 공정이다. 상용 UO<sub>2</sub> 핵연료의 소결은 통상 수소분위기, 1700°C에서 이루어지기 때문에 전력소모가 많고, 고온용 발열체, 내화재등을 사용해야 하는 단점이 있다. 따라서 UO<sub>2</sub>를 저온에서 소결하고자 하는 연구가 많이 시도되었고 CO<sub>2</sub>분위기를 이용하여 1100~1200°C에서 핵연료를 소결하여 상용 생산에 일부 적용하기도 하였다.

핵연료 재료로써 UO<sub>2</sub>의 미세구조상의 중요한 변수인 입자크기, 기공율, 기공의 분포 등은 매우 짧은 시간내에 완료되는 소결 초기단계보다 고립기공이 형성된 소결 후기단계에서 결정된다. 그러나 지금까지 UO<sub>2</sub>의 소결기구에 관한 연구는 대부분 소결 초기단계에 대해서만 이루어져 있을뿐 미세구조 발달에 중요한 소결후기단계에 대하여는 미진하였다. 특히 UO<sub>2</sub>는 소결분위기에 따라 매우 다른 치밀화와 입자성장 거동을 보이는 것으로 알려져 있으며 특이한 미세구조를 가진다. 본 연구에서는 대표적 환원, 산화 분위기인 수소분위기와 CO<sub>2</sub>분위기에서 치밀화와 입자성장을 동시에 고려하여 소결 후기단계에서의 미세구조 발달을 관찰하고자 하였다.

### 2. 실험방법

실험에 사용된 UO<sub>2</sub>분말은 ADU(Ammonium diuranate)공정으로 제조된 분말로서 평균 입자크기는 0.9 $\mu$ m, O/U비는 2.32였다. UO<sub>2</sub>분말을 2ton/cm<sup>2</sup>으로 성형한 후 1700°C, 수소 분위기와 1100°C, CO<sub>2</sub> 분위기에서 15분에서 40시간동안 소결하였다. 소결시 승온속도는 약 550°C/h이었다. 소결체 밀도는 아르키메데스법으로 측정하였고, 입자크기는 liner intercept법으로 측정하였다.

치밀화 속도와 입자성장 속도는 소결시간에 따른 소결밀도와 입자크기 값을  $\log(t+1)$ 에 대해 polynomial fitting하여 얻은 함수를 시간으로 미분하여 구하였다. 치밀화 기구를 알기 위해 치밀화 속도와 입자크기를 log-log plot하여 입자크기 지수를 결정하였고, 입자성장 기구는 일반적인 입자성장 속도식에서 각각의 기구에 대해 plot한 후에 가장 근접한 기구를 찾고자 하였다.

### 3. 결과 및 고찰

CO<sub>2</sub>분위기에서 소결한 소결체의 밀도와 입자크기는 소결시간에 따라 95~98%TD, 3~9 $\mu$ m사이의 값을 가졌다. CO<sub>2</sub>분위기에서 UO<sub>2</sub>를 소결할때 치밀화와 입자성장을 동시에 고려하여 소결기구를 분석하면 치밀화는 입계확산에 의해, 입자성장은 표면확산에 의한 기공제어 입자성장 또는 solute drag에 의한 입자성장에 지배되는 것으로 생각된다.