2002년 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

# 이중가연성 흡수 소결체의 균열 형성 및 $UO_2$ $Gd_2O_3$ 치밀화 속도에 미치는 첨가제 및 소결 분위기, 승온 속도의 영향

# Cracks in Sintered Duplex Burnable Absorber Pellet and Effect of Additives, Atmospheres and Heating Rate on the Densification of $UO_2$ $Gd_2O_3$

**이영우, 김건식, 강기원, 양재호, 김종헌, 송근우**
**한국원자력연구소**
**대전광역시 유성구 덕진동 150**

**요 약**

**내심에 $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$, 외곽에는 $UO_2$–2wt%$Er_2O_3$를 넣어 이중 성형한 이중가연성 흡수 소결체를 제조시 발생하는 균열 생성원인을 고찰하고 치밀화 속도가 느린 $UO_2$ $Gd_2O_3$ 치밀화 속도에 미치는 첨가제 및 소결 분위기, 승온 속도의 영향을 dilatometer를 이용하여 관찰하였다. 이중 소결체의 외곽/내심 계면은 완전한 접합을 이루었지만 치밀화 속도 차로 인한 반응력 (backstress)에 의하여 계면에서부터 외곽과 내심 쪽으로 균열이 성장하였다. 첨가제는 $UO_2$ $Gd_2O_3$ 치밀화 속도에는 큰 영향을 미치지 못하였다. $UO_2$ $Gd_2O_3$ 치밀화 속도는 소결 분위기의 산소분압이 높아질수록 빨라졌다. 승온 속도를 빨리 할수록 $UO_2$ $Gd_2O_3$ 간의 반응에 의한 치밀화 지연 효과가 작아지는 것을 관찰하였다.**

**Abstract**

Crack formation has been investigated in a duplex burnable absorber pellet, which is composed of core, $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$, and shell, $UO_2$–2wt%$Er_2O_3$. The sintered core-shell interface was well joined, however, cracks propagated from the interface to the both region. The crack formation could be attributed to the backstress, which results from the differential densification between the core and the shell. The effect of additives, atmospheres and heating rate on the densification of $UO_2$ $Gd_2O_3$ was studied. Additives slightly affect the densification rate of $UO_2$ $Gd_2O_3$. The densification rate of $UO_2$ $Gd_2O_3$ was accelerated with the oxygen partial pressure of sintering atmosphere increased. The shrinkage delay due to the formation of $UO_2$ $Gd_2O_3$ solid solution may decrease with the heating rate increased.

## 1. 서론

일체형 가연성흡수물질로 널리 사용되고 있는 $Gd_2O_3$는 강력한 중성자 흡수력으로 적은 양으로도 탁월한 반응도 제어효과를 얻을 수 있고 연소 후의 잔존 중성자 흡수량이 적은 장점이 있지만 $UO_2$에 고용되었을 때 열전도도가 나빠지므로 출력제어를 위하여 $U^{235}$ 농축도가 낮은 핵연료봉에만 사용할 수 있다. 또한 핵연료집합체에 장전할 때 집합체의 대칭성 유지를 위하여 일반적으로 4의 배수형태의 장전만이 가능하므로 핵연료 집합체 반응도 제어효과의 조절이 비교적 자유롭지 못하다. 가연성 중성자 흡수물질의 핵연료집합체 반응도 제어효과를 더욱 다양하게 조절하려면 현재 가연성 흡수봉 개수와 가연성 흡수물질 농도 조절에 한정되어있는 가연성 흡수봉 설계에 더 많은 다양성이 필요하다. 그 방안 중 하나가 이중 구조로 된 가연성 흡수봉이다.[1]

이중 가연성 흡수 소결체는 하나의 소결체를 내부와 외부로 나누어서 내심에는 $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$, 외곽에는 $UO_2$–2wt%$Er_2O_3$를 배치한 장주기용 가연성 흡수 소결체이다. 이중가연성 흡수 소결체는 $Gd_2O_3$가 함유된 내부 영역의 두께를 조절하여 보다 다양한 핵연료 집합체 반응도 제어가 가능하며, 외부 연료봉에 비교적 연소속도가 느린 $Er_2O_3$를 장전하여 내부 연료봉의 반경이 감소함으로써 발생하는 $Gd_2O_3$의 연소속도 증가를 억제할 수 있다. HELIOS 코드를 이용한 핵적 계산에 의하면 이중가연성 흡수 소결체를 사용하면 첨두 출력이 낮아지고 반응도 증가 억제효과가 향상되며, 잔존 중성자 흡수량도 줄일 수 있다.[1]

핵적으로 우수한 이중가연성 흡수 소결체의 사용을 제한하는 가장 큰 요인은 소결체 제조가 어렵다는 점이다. 내, 외부가 서로 다른 물질로 이루어진 이중 구조 소결체 (duplex pellet) 제조에서 가장 큰 문제점은 내부와 외부 물질의 치밀화 속도 차이 혹은 냉각시의 열팽창률 차이 등으로 인한 소결체 내부의 응력이다. 본 연구에서 설계한 이중가연성 흡수 소결체 외부의 $UO_2$–2wt%$Er_2O_3$는 순수 $UO_2$의 치밀화 거동과 매우 유사하지만, 내부의 $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$ 경우 $UO_2$와 $Gd_2O_3$ 간의 반응으로 인해 1200 1500 ℃ 구간에서 치밀화가 매우 느려지는 특성이 관찰되며 이는 $UO_2$와 $Gd_2O_3$ 간의 상호 고용도 차이로 인하여 $Gd_2O_3$ 자리에 새로운 기공이 형성되는 것에 기인하는 것으로 알려져 있다.[2-4] 따라서 $Gd_2O_3$에 의한 치밀화 지연 현상은 이중가연성 흡수 소결체 제조에 가장 큰 제한점으로 작용할 것을 예상할 수 있다.

이러한 문제를 해결하기 위해서는 $UO_2$–$Gd_2O_3$ 치밀화 거동에 영향을 미치는 첨가제, 소결 분위기, 승온 속도 등의 소결 변수에 따른 기본적인 소결 kinetics 연구가 필요하다. 따라서 본 연구에서는 $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$ 조성에서 $Cr_2O_3$, $Al_2O_3$, $TiO_2$, $SiO_2$, $Nb_2O_5$ 등의 첨가제가 치밀화 거동에 미치는 영향을 관찰하여 가장 효과적인 첨가제를 선정하였다. 또한, $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$의 경우 $UO_2$와 $Gd_2O_3$ 간의 반응이 치밀화 억제의 주된 원인으로 생각되므로 이에 영향을 미칠 수 있는 소결 분위기의 산소분압을 $H_2$–3%$CO_2$, 5%$CO_2$, 10%$CO_2$로 늘려가며 치밀화 속도를 측정하였다.

승온 속도 역시 $UO_2$와 $Gd_2O_3$ 간의 반응에 영향을 줄 수 있다. $UO_2$와 $Gd_2O_3$ 간의 반응은 치밀화가 억제되는 영역인 1100 1300 ℃ 부근에서 주로 일어나는 것으로 추정된다. 따라서 승온 속

도를 빠르게 하여 이 영역을 빠르게 지나가 반응 시간을 줄이는 것 역시 소결체의 결함을 줄일 수 있는 한가지 방법으로 생각할 수 있다. 본 연구에서는 5 K/min, 10 K/min, 20 K/min의 3조건에서 승온 속도에 따른 치밀화 거동을 측정하였다.

## 2. 실험방법

ADU–$UO_2$ 분말에 $Gd_2O_3$, $Er_2O_3$를 turbula mixer에서 중량비 2:1로 각각 1시간 혼합한 후 나머지 $UO_2$ 분말을 추가하여 다시 1시간 혼합하여 $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$, $UO_2$–2wt%$Er_2O_3$ 분말을 준비하였다. 순수한 $UO_2$–$Gd_2O_3$ 분말과 $Cr_2O_3$, $Al_2O_3$, $TiO_2$, $SiO_2$, $Nb_2O_5$ 등의 첨가제를 첨가한 $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$ 분말은 보다 높은 균질도를 얻기 위하여 막자 사발에서 30 분간 분쇄하여 #100 체로 3회 sieve mixing 하였다.

이중 성형체는 Fig. 1과 같이 이중으로 제작된 성형몰드에서 우선 외곽에 $UO_2$–2wt%$Er_2O_3$ 분말을 장입하여 예비 성형하고, 내심에 $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$ 분말을 넣어 외곽 예비 성형체와 길이가 같게 예비성형 하였다. 두 예비 성형체를 이동하여 동일한 높이에서 합체한 후 3 ton/$cm^2$의 압력으로 압축하여 본 성형체를 성형하였다. 이때 외곽과 내심 간의 계면을 일정하게 유지하기 위하여는 예비 성형시 외곽과 내심의 길이를 동일하게 성형하는 것이 중요하다. 이중 성형체는 1700 ℃, $H_2$ 3%$CO_2$ 분위기에서 4 시간 소결하여 길이 방향 및 원주 방향으로 절단하여 연마한 후 광학현미경으로 관찰하였다.

Dilatometer 측정용 성형체는 직경 8 mm 성형몰드에 혼합 분말 2.85 g을 넣고 압축성형하여 높이 약 10 mm 정도의 일정한 크기로 제조하였다. 성형체를 dilatometer에서 5 K/min, 10 K/min, 20 K/min으로 가열하고 1650 ℃로 유지하면서, 성형체가 온도에 따라서 치밀화 거동을 분석하고 속도를 측정하였다. 성형체 시편을 push–rod에 장착하고 온도를 높이면 성형체의 길이가 소결에 의해서 수축한다. 이때 열팽창에 의한 길이 증가는 소결 수축에 비하여 매우 적다. 온도에 따른 길이 변화를 LVDT로 측정 기록한 후, 표준 알루미나 시편을 사용하여 동일한 가열 cycle에서 장치 자체에서 비롯하는 길이변화를 구하여 측정한 값을 보정하였다. 치밀화 속도는 치밀화 양을 시간으로 미분하여 구하였다.

## 3. 결과 및 토론

Fig. 2(a)는 내심과 외곽에 모두 순수 $UO_2$ 분말을 넣어 이중 성형한 후 1700 °C, $H_2$ 3%$CO_2$ 분위기에서 4 시간 소결한 소결체 단면 사진이다. 내, 외부 같은 분말을 이용하여 성형한 경우 일반 성형 소결체와 같이 결함이 없는 소결체를 얻을 수 있었다. 또한 내심/외곽 계면 역시 완전한 결합을 이루었다. 이는 이중성형 방법에 의한 소결체의 결함 발생은 없음을 의미한다. Fig. 2(b)는 외곽 영역에 2 wt% $Er_2O_3$을 첨가한 $UO_2$ 분말을 넣고 내심 영역에 $UO_2$ 12 wt% $Gd_2O_3$ 분말을 넣

어 이중 성형한 후 1700 °C, $H_2$ 3%$CO_2$ 분위기에서 4 시간 소결한 소결체의 단면 사진이다. 소결체 내심과 외곽 영역 모두에서 많은 균열이 생성되었다.

Fig. 3은 $UO_2$ 12 wt% $Gd_2O_3$ / $UO_2$ 2 wt% $Er_2O_3$ 이중 소결체를 길이 방향에 평행한 면과 수직한 면으로 절단한 면에서 균열 전파 양상이다. 내심/외곽 간의 계면은 매우 깨끗하게 접합되어 있지만, 계면을 중심으로 내심과 외곽 쪽으로 균열이 성장해 간 것을 볼 수 있다. 거의 모든 균열은 내심/외곽 계면에서 시작된 것으로 보이며 내심 쪽으로는 계면에 수직한 방향으로 전파되었고 외곽 쪽으로는 계면에 나란하게 전파되었다.

이와 같은 이중 성형 소결체에 생기는 결함의 원인으로는 소결 중의 불균일 치밀화 (differential densification)와 소결 후 냉각과정 중의 열팽창 계수 차이에 의한 응력 등을 고려할 수 있다. 불균일 치밀화는 같은 종류의 분말 성형체에서도 강한 응집체 (hard agglomerate) 등에 의한 국부적인 성형밀도 차이, 기공 크기 분포, 분말 크기 분포 등에 의하여 일어날 수 있다.[5,6] 불균일 치밀화가 일어나면 소결 중에는 국부적으로 치밀화가 빨라지게 되고 입자들이 움직여서 원래 분말 성형체 내에 있던 기공보다도 더 큰 기공을 생성하기도 한다. 특히 이종 분말이나 휘스커, platelet 등이 첨가된 혼합체에서는 기지상 내에 반응력 (backstress)이 생겨 커다란 결함을 생성하기 쉬운 것으로 알려져 있다.[7]

$UO_2$에 $Gd_2O_3$, $Er_2O_3$가 첨가된 소결체의 열팽창은 각각 1400 °C, 1000 °C 이후부터 순수 $UO_2$에 비하여 약간 증가하는 경향을 나타낸다.[1] 10 wt% $Gd_2O_3$가 첨가된 경우 1600 °C에서 순수 $UO_2$와의 열팽창 차이는 약 0.1% 정도이고, 2 wt% $Gd_2O_3$가 첨가된 경우 1600 °C에서 순수 $UO_2$와의 열팽창 차이는 약 0.03% 정도로 그 차이가 매우 작다. 또, Fig. 3의 균열은 일반적인 열충격에 의한 균열에 비하여 넓게 벌어져 있다. 이중 소결체의 균열은 소결 후 냉각중의 열팽창 차이에 의한 것이라기보다는 외곽과 내심의 소결 속도 차이에 의한 불균일 치밀화에 의한 것으로 여겨진다. 이는 $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$, $UO_2$–2wt%$Er_2O_3$ 성형체의 치밀화 속도를 측정한 결과에서 확인할 수 있다.

$UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$, $UO_2$–2wt%$Er_2O_3$ 성형체의 길이 수축 변화를 온도에 따라서 Fig. 4에 나타냈다. $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$과 $UO_2$–2wt%$Er_2O_3$은 치밀화가 시작하는 온도는 약 1000℃ 정도로 거의 같지만, 온도가 높아지면 $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$과 $UO_2$–2wt%$Er_2O_3$의 치밀화 차이가 서서히 벌어지고, 1200–1400℃에서는 $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$의 치밀화가 매우 억제된다. 1500℃ 이상에서는 치밀화가 다시 가속되는 경향을 보인다. 즉 $Gd_2O_3$가 첨가되면 치밀화가 1200–1400℃에서 억제된다. Manzel 등[2]에 의하면 이러한 현상은 $UO_2$와 $Gd_2O_3$ 간의 고용체 형성과 관련이 있다. 이는 $UO_2$와 $Gd_2O_3$ 간의 반응이 늦어지는 것이 치밀화를 억제하는 것을 의미하고 이 반응 영역은 $UO_2$ 분말의 제조공정, 분쇄 상태 등 분말 특성과 소결 분위기 등에 따라 약간의 차이가 있는 것으로 알려져 있다.[4] $UO_2$–2wt%$Er_2O_3$ 성형체는 일반적인 순수 $UO_2$ 성형체와 거의 동일한 치밀화 양상을 보이는데 이는 $Er_2O_3$의 양이 치밀화를 억제할 정도로 많지 않기 때문으로 생각된다.

$UO_2$–12 wt% $Gd_2O_3$ / $UO_2$ 2 wt% $Er_2O_3$ 이중 성형체의 경우 내심과 외곽의 치밀화 속도 차이가 매우 크므로 두 영역 사이에는 거시적으로 반응력 (backstress)이 작용하였을 것이고 이에 의하여 균열이 형성된 것으로 보인다. 균열이 내심/외곽 계면에서 시작되어 내심 쪽으로는 계면에 수직

한 방향으로 성장하고 외곽 쪽으로는 계면에 나란하게 자라는 전파 거동을 보면, 내심에는 길이방향에 평행하게 인장응력이, 외곽에는 길이방향에 평행하게 압축 응력이 걸렸었음을 유추할 수 있다. 따라서 균열은 소결 속도가 빠른 외곽의 소결이 일어난 후에 상대적으로 치밀화가 덜 되었던 내심이 수축하면서 생기는 반응력에 의하여 발생하는 것으로 보인다. 즉, 외곽이 소결되어 수축하는 동안 내심은 상대적으로 기공도가 높아 soft 하므로 외곽 수축으로 인한 응력을 결함 없이 해소할 수 있지만 외곽 소결이 진행되어 치밀해지고 난 후에 내심의 치밀화가 일어나면 단단한 외곽으로부터 강한 반응력이 계면을 중심으로 작용하고 그로 인하여 균열이 발생한 것으로 생각된다. 특히 내심 쪽의 균열이 비교적 넓게 벌어진 것으로부터 내심 영역의 치밀화가 많이 진행되지 않은 상태에서 균열이 발생한 것을 확인할 수 있다.

따라서, $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$ 성형체의 치밀화는 가속시키고, $UO_2$–2wt%$Er_2O_3$ 성형체의 치밀화는 지연시켜 두 치밀화 곡선을 근접시키는 소결 변수를 찾는 것이 무결함 이중가연성 소결체를 제조하는데 중요한 단계가 될 것이다. 본 연구에서는 $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$ 성형체의 치밀화를 빠르게 하기 위하여 $Cr_2O_3$, $Al_2O_3$, $TiO_2$, $SiO_2$, $Nb_2O_5$ 등 5종의 첨가제 효과를 관찰하고 소결 분위기의 산소분압, 승온 속도에 따른 치밀화 속도를 측정하였다. $UO_2$–2wt%$Er_2O_3$ 성형체의 경우 milling하지 않은 혼합 분말을 사용하여 치밀화 속도를 지연시키고자 하였다.

Fig. 5는 $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$ 성형체의 치밀화를 빠르게 하기 위하여 $Cr_2O_3$, $Al_2O_3$, $TiO_2$, $SiO_2$, $Nb_2O_5$ 등을 0.1–0.2 wt% 첨가하여 치밀화 속도를 측정한 결과이다. $Cr_2O_3$, $Al_2O_3$, $TiO_2$, $SiO_2$, $Nb_2O_5$ 등의 첨가제는 주로 $UO_2$–$Gd_2O_3$의 소결밀도 및 입자크기를 증가시키기 위하여 연구되었다.[8,9] 이들 첨가제는 최종 소결 밀도에는 긍정적인 효과를 보이는 것으로 알려져 있지만 중간 단계에서의 치밀화 속도에는 큰 영향을 미치지 못한 것으로 보인다. $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$ 성형체의 치밀화 속도에 가장 큰 영향을 준 첨가제는 $Cr_2O_3$으로서 약 1260 ℃까지는 순수 $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$ 성형체보다 약간 작은 치밀화 양을 보여주지만 그 이상의 온도에서는 빠르게 치밀화가 일어나서 $UO_2$–2wt%$Er_2O_3$ 성형체와의 치밀화 양 차이를 다른 어떤 첨가제 보다 줄일 수 있었다. 따라서 산소분압, 승온 속도 등의 소결변수에 따른 치밀화 속도 변화는 $Cr_2O_3$ 첨가 $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$ 성형체에서 실험하였다. $Cr_2O_3$을 제외한 $Al_2O_3$, $TiO_2$, $SiO_2$, $Nb_2O_5$ 등은 약 1380 ℃까지는 순수 $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$ 성형체 보다 오히려 늦은 치밀화 거동을 보여주었으며 그 이후에는 치밀화가 빠르게 진행되었지만 $UO_2$–2wt%$Er_2O_3$ 성형체와의 치밀화 양 차이를 $Cr_2O_3$보다 줄이지는 못하였다.

$UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$의 산소분압에 따른 치밀화 양을 Fig. 6(a)에, 치밀화 속도를 Fig. 6(b)에 나타내었다. $H_2$에 섞는 $CO_2$ 양이 3%, 5%, 10% 증가함에 따라, 즉, 산소분압이 높아질수록 치밀화가 지연되는 구간이 뚜렷해지는 것을 볼 수 있다. 또한 이 치밀화 지연구간 전까지의 치밀화 양은 산소분압이 높아질수록 증가하는 것을 알 수 있다. Fig. 6(b)의 치밀화 속도 곡선을 보면 3 조건 모두에서 2번의 치밀화 속도 피크를 보이는데, 산소분압이 높아질수록 1차 피크 온도는 낮아지고 2차 피크온도는 높아지는 것을 알 수 있다. 이는 Yuda 등[4]의 결과와 같은 경향을 보이는 것으로 $UO_2$–$Gd_2O_3$ 성형체에서 1차 치밀화 피크는 $UO_2$ 입자간의 치밀화에 의한 것으로 알려져 있고 $Gd_2O_3$와의 반응이 일어나는 동안은 치밀화가 지연되고 그 후에 다시 치밀화가 진행되면서 2차 피

크를 보이는 것으로 해석된다. 따라서 산소분압이 높아질수록 $UO_2$ 입자간의 치밀화가 낮은 온도에서부터 시작되어 빠르게 진행되므로 1차 피크 온도는 낮아지게 된다. 2차 피크 온도가 높아지는 것은 산소분압이 높을수록 $UO_2$ 입자간의 치밀화 뿐만 아니라 $UO_2$ 입자의 입자성장 역시 많이 진행되었기 때문으로 생각된다. 즉, 산소분압이 높을수록 1차 치밀화 동안 입자크기가 더 커질 것이므로 2차 치밀화의 구동력이 낮아 더 높은 온도에서 치밀화 피크를 보이는 것으로 여겨진다.

$UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$의 승온 속도에 따른 치밀화 양을 Fig. 7(a)에, 치밀화 속도를 Fig. 7(b)에 나타내었다. Fig. 7(a)에서, 승온 속도가 빨라질수록 치밀화 양은 같은 온도에서 적어지는 것을 볼 수 있다. 이는 그 온도까지 성형체가 받은 총 열량과 시간이 승온 속도가 빠를수록 적어지는 것에 기인하는 것으로 생각된다. Fig. 7(b)의 치밀화 속도는 승온 속도가 빨라질수록 1차 치밀화 피크 온도가 높아지고 피크가 희미해지는 것으로 볼 수 있다. 이는 승온 속도가 빠를수록 $UO_2$ 입자간의 치밀화나 $UO_2$와 $Gd_2O_3$ 간의 반응이 일어나는 온도 구간을 빠르게 통과하여 $UO_2$ 입자간의 치밀화나 $UO_2$와 $Gd_2O_3$ 간의 반응에 의한 치밀화 억제 양을 줄이고 고온에서 반응과 소결이 함께 일어나기 때문으로 여겨진다. 즉, $UO_2$와 $Gd_2O_3$ 간의 반응에 의한 치밀화 억제를 피하려면 승온 속도가 빠를수록 유리할 것으로 생각된다.

## 4. 결론

내, 외부가 서로 다른 물질로 이루어진 이중가연성 흡수 소결체 제조시에 생기는 균열은 내부와 외부 물질의 치밀화 속도 차이로 인하여 계면을 중심으로 생긴 반응력 (backstress)에 의하여 발생한 것으로 보인다. 외부의 $UO_2$–2wt%$Er_2O_3$는 순수 $UO_2$의 치밀화 거동과 매우 유사하지만, 내부의 $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$ 경우 $UO_2$와 $Gd_2O_3$ 간의 반응으로 인해 1200 1500 ℃ 구간에서 치밀화가 매우 느려지고 그로 인하여 외곽에는 소결체 길이방향으로 압축응력이 내심에는 인장응력이 작용하는 것으로 생각된다.

$Cr_2O_3$, $Al_2O_3$, $TiO_2$, $SiO_2$, $Nb_2O_5$ 등의 첨가제는 최종 소결 밀도에는 긍정적인 효과를 보이는 것으로 알려져 있지만 중간 단계에서의 치밀화 속도에는 큰 영향을 미치지 못한 것으로 보인다. $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$ 성형체의 치밀화 속도에 가장 큰 영향을 준 첨가제는 $Cr_2O_3$으로서 약 1260 ℃까지는 순수 $UO_2$–12wt%$Gd_2O_3$ 성형체 보다 약간 작은 치밀화 양을 보여주지만 그 이상의 온도에서는 빠르게 치밀화가 일어나서 $UO_2$–2wt%$Er_2O_3$ 성형체와의 치밀화 양 차이를 다른 어떤 첨가제 보다 줄일 수 있었다.

소결 분위기의 산소분압이 높아질수록 치밀화가 지연되는 구간이 뚜렷해지고 치밀화 지연구간 전까지의 치밀화 양이 증가하였다. 산소분압이 높아질수록 $UO_2$ 입자간의 치밀화가 낮은 온도에서부터 시작되어 빠르게 진행되므로 지연구간 전까지 치밀화 양이 많고 1차 치밀화 속도 피크 온도는 낮아지게 된다. 치밀화 속도 2차 피크 온도가 높아지는 것은 산소분압이 높을수록 $UO_2$ 입자간의 치밀화 뿐만 아니라 $UO_2$ 입자의 입자성장 역시 많이 진행되었기 때문으로 생각된다. 즉, 산소분압이 높을수록 1차 치밀화 동안 입자크기가 더 커질 것이므로 2차 치밀화의 구동력이 낮아

더 높은 온도에서 치밀화 피크를 보이는 것으로 여겨진다.

승온 속도가 빨라질수록 1차 치밀화 피크 온도가 높아지고 피크가 희미해진다. 이는 승온 속도가 빠를수록 $UO_2$ 입자간의 치밀화나 $UO_2$와 $Gd_2O_3$ 간의 반응이 일어나는 온도 구간을 빠르게 통과하여 $UO_2$ 입자간의 치밀화나 $UO_2$와 $Gd_2O_3$ 간의 반응에 의한 치밀화 억제 양을 줄이고 고온에서 반응과 소결이 함께 일어나기 때문으로 여겨진다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부 원자력연구개발 중장기 사업의 지원으로 수행되었음.

참고문헌

1. **경수로용 신형핵연료 개발: 소결체재료신기술개발 보고서**, KAERI/RR-2023/99, 2000.
2. R. Manzel and W. O. Dörr, “Manufacturing and Irradiation Experience with $UO_2/Gd_2O_3$ Fuel,” *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **59** 601-603 (1980).
3. S. M. Ho and K. C. Radford, “Structural Chemistry of Solid Solutions in the $UO_2$-$Gd_2O_3$ system,” *Nucl. Tech.*, **73** 350-360 (1986).
4. R. Yuda and K. Une, “Effect of Sintering Atmosphere on the Densification of $UO_2$-$Gd_2O_3$ compacts,” *J. Nucl. Mater.*, **178** 195-203 (1991).
5. 강석중, *소결: 치밀화, 입자성장과 미세조직*, 과학문화사, 대전, 1997.
6. M. N. Rahaman, *Ceramic Processing and Sintering*, Marcel Dekker, Inc., New York, 1995.
7. F. F. Lange and M. Metcalf, “Processing-Related Fracture Origins: II, Agglomerate Motion and Cracklike Internal Surfaces Caused by Differential Sintering,” *J. Am. Ceram. Soc.*, **66** 398-406 (1983).
8. K. W. Kang, K. S. Kim, K. W. Song, J. H. Yang, and Y. H. Jung, “Effect of $TiO_2$ and $Al(OH)_3$ on Sintering Behavior of $UO_2$-$Gd_2O_3$ Fuel Pellet,” *J. Kor. Nucl. Soc.*, **32** 559-565 (2000).
9. K. S. Kim, K. S. Song, K. W. Kang, J. H. Yang, and J. H. Kim, “Sintering of a Mixture of $UO_2$ and $Gd_2O_3$ Powders Doped with $Cr_2O_3$-$SiO_2$,” *J. Kor. Nucl. Soc.*, **33** 386-396 (2001).

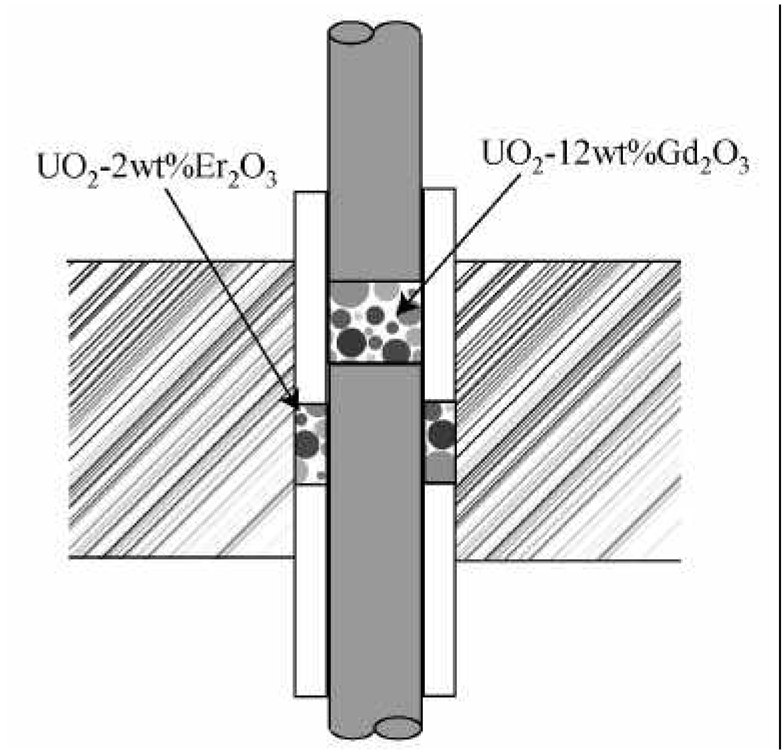


Fig. 1. Schematic of duplex forming mold.

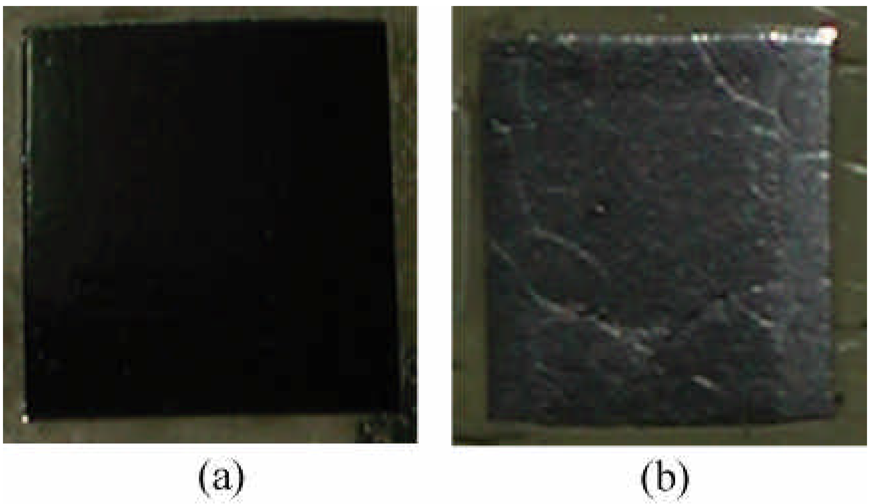


Fig. 2. Cross sections of sintered duplex pellets, (a) core: $UO_2$, shell: $UO_2$, (b) core: $UO_2$-12wt%$Gd_2O_3$, shell: $UO_2$-2wt%$Er_2O_3$.

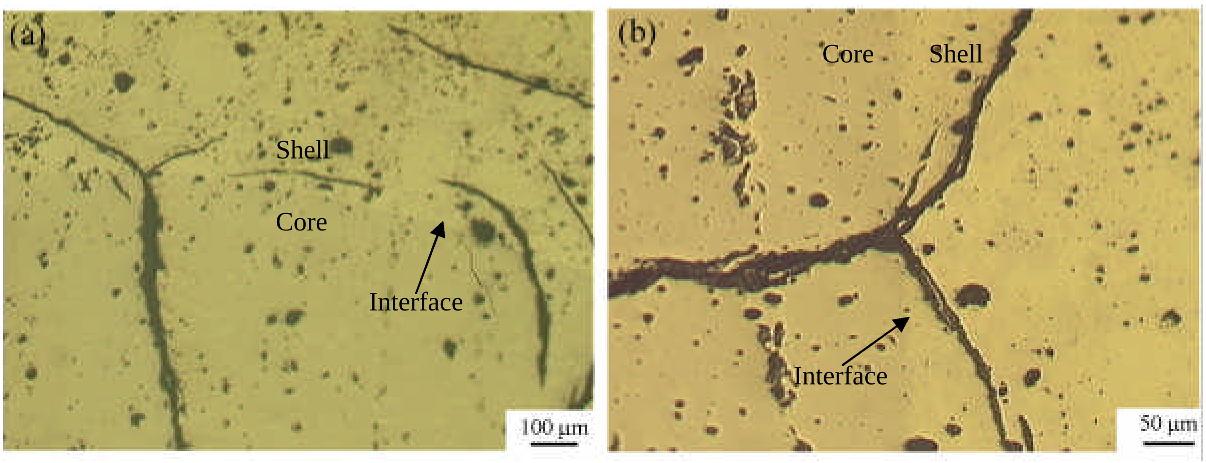


Fig. 3. Cracks in a sintered duplex pellet, (a) top-view, (b) side-view.

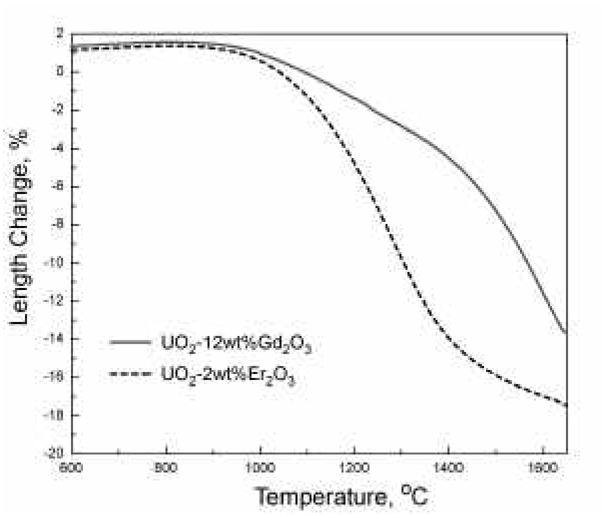


Fig. 4. Shrinkage curves for $UO_2$  12 wt% $Gd_2O_3$ and $UO_2$  2 wt% $Er_2O_3$.

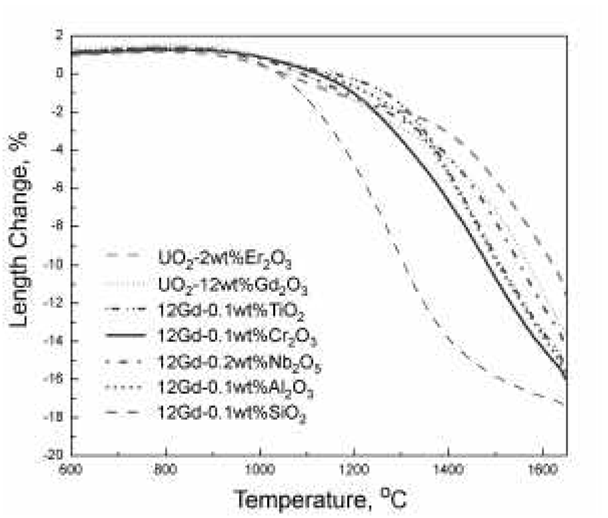


Fig. 5. Shrinkage curves for $UO_2$  12 wt% $Gd_2O_3$ with various dopants.

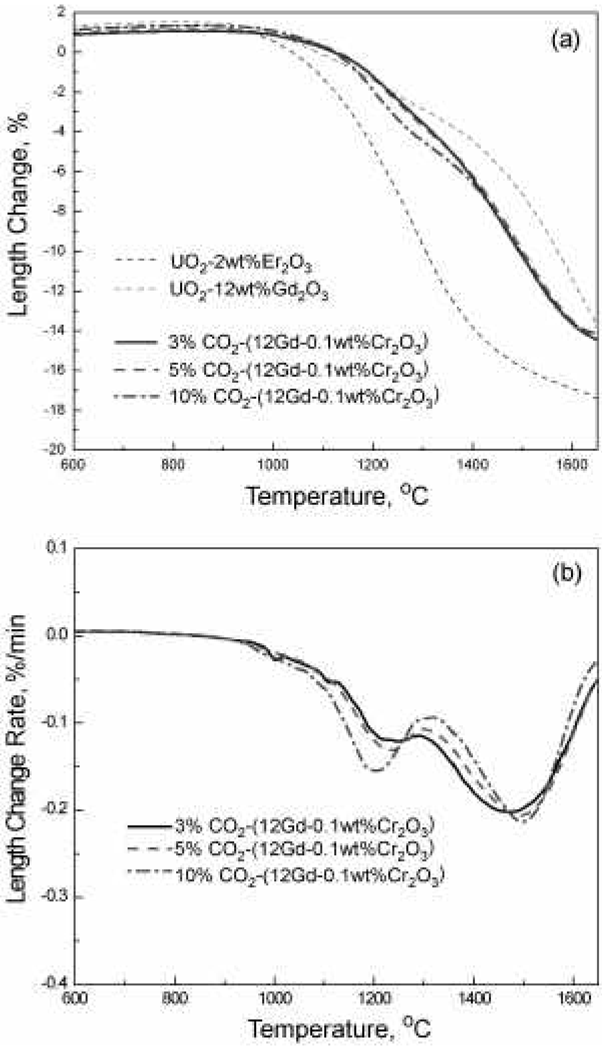


Fig. 6. (a) Shrinkage curves and (b) shrinkage rate for $UO_2$ 12 wt% $Gd_2O_3$ under various sintering atmospheres.

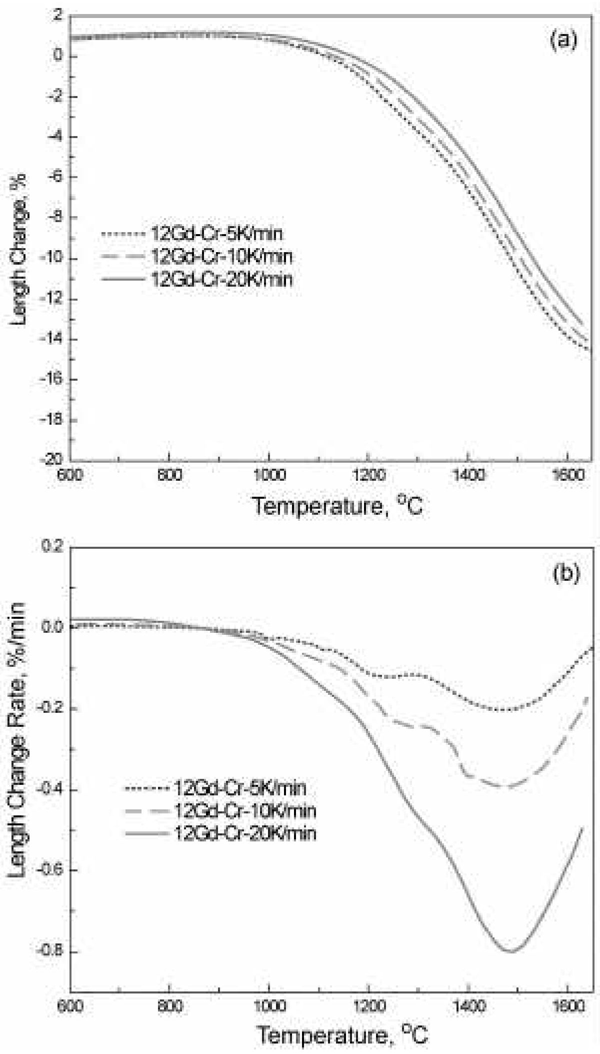


Fig. 7. (a) Shrinkage curves and (b) shrinkage rate for $UO_2$ 12 wt% $Gd_2O_3$ under various heating rate.