

중성자회절을 이용한 모의 DUPIC  
핵연료의 열팽창 특성 연구

Thermal Expansion Study of Simulated DUPIC Fuel  
Using Neutron Diffraction

2001. 8.  
KAERI

DUPIC 핵연료 개발팀  
한국원자력연구소

# 제 출 문

한국원자력연구소장 귀하

본 보고서를 DUPIC 핵연료 제조 및 공정기술개발분야에서 수행한 모의 핵연료의 열물성연구와 관련하여 “모의 DUPIC 핵연료와  $UO_2$  열팽창 특성 (중성자회절)”의 기술보고서로 제출합니다.

제 목:           중성자회절을 이용한 모의 DUPIC 핵연료의 열팽창특성연구  
Thermal Expansion Study of Simulated DUPIC Fuel  
Using Neutron Diffraction

2001년 8월

주저자 :       강권호 (사용후핵연료기술개발팀)

공동저자 :   류호진, 배정현, 김형수, 송기찬, 양명승

(사용후핵연료기술개발팀)

최용남, 한영수, 오화숙(하나로이용기술개발팀)

## 요 약 문

DUPIC 핵연료의 열팽창과 온도에 따른 밀도변화를 조사하기 위하여 중성자회절을 이용하여 실온에서 1273 K의 온도범위에서 모의 DUPIC 핵연료와  $\text{UO}_2$ 의 격자상수를 측정하였다. 모의 DUPIC 핵연료의 격자상수는  $\text{UO}_2$ 의 것보다 작게 나타났으며, 선 열팽창은 크게 나타났다. 298 ~ 1273 K의 온도 범위에서 모의 DUPIC 핵연료와  $\text{UO}_2$ 의 평균 선 열팽창계수는  $10.751 \times 10^{-6}$ 과  $10.471 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ 로 나타났다.

## Abstract

The lattice parameters of simulated DUPIC fuel and  $\text{UO}_2$  were measured from room temperature to 1273 K using neutron diffraction to investigate the thermal expansion and density variation with temperature. The lattice parameter of simulated DUPIC fuel is lower than that of  $\text{UO}_2$  and the linear thermal expansion of simulated DUPIC fuel is higher than that of  $\text{UO}_2$ . For the temperature range from 298 to 1273 K, the average linear thermal expansion coefficients for  $\text{UO}_2$  and simulated DUPIC fuel are  $10.471 \times 10^{-6}$  and  $10.751 \times 10^{-6}$  K<sup>-1</sup>, respectively.

## 목 차

요 약 문 .....	i
Abstract .....	ii
목 차 .....	iii
그림목차 .....	iv
표목차 .....	v
1. 서 론 .....	1
2. 실험 .....	5
3. 실험결과 .....	9
4. 결 론 .....	14

## 그림 목차

Fig. 1. SEM image of polished and etched surface of simulated DUPIC fuel	7
Fig. 2. Lattice parameters of $\text{UO}_2$ and simulated DUPIC fuel as a function of temperature.	10
Fig. 3. Percentage linear thermal expansion of $\text{UO}_2$ and simulated DUPIC fuel as a function of temperature.	11
Fig. 4. Percentage density variation of $\text{UO}_2$ and simulated DUPIC fuel as a function of temperature.	13

## 표 목 차

Table 1. Lattice parameters and average linear thermal expansion coefficients of $\text{UO}_2$	4
Table 2. Contents of fission products added in $\text{UO}_2$ powders	6
Table 3. EPMA results for metallic precipitates and matrix	6
Table 4. EPMA results for the oxide precipitates and the oxides dissolved in the matrix	7
Table 5. Lattice parameter and cell volume for $\text{UO}_2$ and simulated DUPIC fuel	9

## 1. 서론

DUPIC(Direct use of spent PWR fuel in CANDU reactors) 핵연료의 기본 개념은 핵분열성 물질이나 핵분열 생성물을 분리하지 않고 경수로 사용후핵연료를 건식 처리하여, 중수로용 핵연료를 제조하는 것이다 [1,2]. 일반적으로 경수로 사용후핵연료에는 핵분열성 물질인 Pu-239와 U-235가 각각 0.6과 0.9 wt% 남아있다. 이처럼 경수로 사용후핵연료에는 중수로에서 사용하는 천연우라늄중 핵분열성 물질의 농도인 0.71 wt% 보다 더 많은 핵분열성 물질이 존재한다. 따라서 경수로 사용후핵연료에 남아 있는 핵분열성 물질을 중수로에서 다시 사용하는 것이 DUPIC 핵연료의 기본 개념이다. DUPIC 핵연료 제조시 고농도 핵분열물질을 포함하는 DUPIC 핵연료를 제조하는 것이 경제성과 격자물성(lattice property)측면에서 유리하다. 그러나 고농도 핵분열성 물질은 안전성과 경제적 운전과 관련하여 노심성능을 저하시킨다. 경제성, 사용후핵연료의 이용도 및 CPPF를 고려하여 표준 DUPIC 핵연료(Reference Simulated DUPIC Fuel)의 U-235와 Pu-239의 농도를 각각 1.0%와 0.45%로 결정하였다 [3].

DUPIC 핵연료의 주요 특성은 노내에서 연소도중 발생한 핵분열생성물이 존재하는 것이다. 이 때문에 기본적인 물성이  $UO_2$ 와는 다를 것으로 예측된다. 따라서 DUPIC 핵연료의 조사시험 및 성능평가를 위해서는 온도에 따른 밀도, 비열, 열전도도, 열팽창율, 크리프등 기본 물성에 관한 자료가 필요하다. 핵연료의 열팽창은 열전도도와 함께 가장 중요한 물성으로, 피복관과 작용하는 상호응력, 핵연료와 피복관의 공극 열전도도에 영향을 미치는 물성이다. 특히 세라믹핵연료는 열전도도가 불량하여 반경방향으로 균열이 크게 발생하며, 이에 따른 부피팽창과 반경방향으로의 열팽창은 피복관에 원주방향의 인장 응력을 일으켜 연료봉을 손상시킬 수 있다. 또한 열확산도로 부터 열전도도를 구할 때 필요한 밀도변화를 열팽창자료로 구할 수 있다. 이런 이유로 핵연료의 열팽창에 관한 연구는 1950년대부터 이루어져 왔다. 열팽창연구는 크게 두 가지로 나누어진다. 하나는 macroscopic한 방법으로 시편의 온도에 따른 길이변화를 측정하는 것이며, 다른 하나는 microscopic한 방법으로 중성자나 X-ray를 이용하여 격자상수 (lattice parameter)를 측정하는 것이다. 이들 두 가지 방법은 Schottky defect 때문에 근본적으로 차이가 발생한다. 격자상수를 측정하는 방법은 물질 고유의 열팽창율을 측정할 수 있으며, 길이변화를 측정하는 방법은 시편내부의 defect, 불순물 등의 영향이 반영된 열팽창을 측정할 수 있다.

Gronvold [4]는 XRD X-ray diffractometer를 이용하여  $UO_2 - U_3O_8$ 의 온도에 따른 격자상수변화를 측정하였다. 그의 연구에서  $UO_2$ 의 격자상수는 20 °C에서 0.54704 nm이며, 20 ~ 946 °C의 온도범위에서 평균선열팽창계수 (average linear thermal expansion coefficient)는  $10.8 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$  이라고 발표했다. 또한  $UO_{2.00}$ 에서  $UO_{2.25}$ 와



UO<sub>2.25</sub>로 산소의 농도가 증가함에 따라 격자상수는 0.54462와 0.54411 nm로 각각 줄어 든다고 발표했다. U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>은 orthorhombic구조를 갖으며, a = 0.6717, b = 0.3977 및 c = 0.4144 nm의 격자상수를 갖는다. UO<sub>2</sub>의 온도에 따른 격자상수는 다음 식으로 표현하였다.

$$a_T = 0.54704 [1 + 10.8 \times 10^{-6}(T - 20)] \pm 0.00004 \text{ nm.}$$

Baldock et al. [5]은 20 ~ 2300 °C 의 온도범위에서 UO<sub>1.98</sub> ~ UO<sub>2.00</sub>의 열팽창을 XRD를 이용하여 조사하였다. 이 온도범위에서 평균선열팽창계수는  $(10.8 \pm 0.1) \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 로 확인하였다. 또한 900 °C 까지는  $(10.4 \pm 0.2) \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 로 발표하였다.

Albinati et al. [6]는 중성자회절을 이용하여 293 ~ 1733 K의 온도범위에서 UO<sub>2</sub>의 격자상수를 구하였다. 293 K에서 UO<sub>2</sub>의 격자상수는 0.5471 nm 였으며, 온도에 따른 변화는 다음 식으로 나타내었다.

$$a = 0.54576 + 4.326 \times 10^{-6} T + 8.477 \times 10^{-10} T^2 \text{ nm.}$$

Hutchings [7]은 중성자회절을 이용하여 293 ~ 2930 K의 온도범위에서 UO<sub>2</sub>와 ThO<sub>2</sub>의 격자상수를 구하였다. 293 K에서 UO<sub>2</sub>의 격자상수는 0.5470 nm 였다.

Momin et al. [8]는 XRD를 이용하여 UO<sub>2</sub>, ThO<sub>2</sub> 및 핵분열생성물이 첨가된 (U<sub>0.2</sub>Th<sub>0.8</sub>)O<sub>2</sub>의 격자상수를 상온에서 1600 K의 온도범위에서 측정하였다. 첨가된 핵분열생성물은 희토류족, Ln<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (Ln=La, Nd, Ce, Y, Sm, Gd and Eu), ZrO<sub>2</sub> 및 , 알칼리 토족, MO(M=Sr and Ba)이다. 이중 희토류족만이 고용체를 형성하는 것으로 알려져 있다. 그들은 모든 첨가물에 의해 격자상수가 줄어드는 것을 확인하였다. 온도에 따른 격자상수는 다음 식으로 제시하였다.

$$a = 0.5469 + 4.192 \times 10^{-6} (T-298) + 1.327 \times 10^{-6} (T-298)^2.$$

상온에서 UO<sub>2</sub>의 격자상수는 0.5469이며, 298 ~ 1600 K의 온도범위에서 평균선열팽창계수는  $10.8 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  로 나타났다. UO<sub>2</sub>에 약 20%의 희토류족을 추가하였을 경우 격자상수와 평균선열팽창계수는 0.5441 nm 및  $14.3 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  로 증가하였다.

Yamashita et al. [9, 10]은 XRD를 이용하여 상온부터 1300 K의 온도범위에서 ThO<sub>2</sub>,

UO<sub>2</sub>, NpO<sub>2</sub> 및 PuO<sub>2</sub>의 격자상수를 측정하여 온도에 따른 열팽창연구를 수행하였다. 293 K에서 UO<sub>2</sub>의 격자상수는 0.54699 nm 였으며, 온도에 따른 격자상수는 다음식으로 나타내었다.

$$a = 0.545567 + 4.581 \times 10^{-3} + 10.355 T \times 10^{-7} T^2 - 2.736 \times 10^{-10} T^3 \text{ nm}$$

Martin [11]은 여러 자료들을 분석하여 온도에 따른 열팽창 식을 제시하였다.

for 273 K < T < 923 K

$$L = L_{273}(0.99734 + 9.802 \times 10^{-6} T - 2.705 \times 10^{-10} T^2 + 4.391 \times 10^{-13} T^3)$$

for 273 K < T < 3120 K

$$L = L_{273}(0.99672 + 1.179 \times 10^{-5} T - 2.429 \times 10^{-9} T^2 + 1.291 \times 10^{-12} T^3)$$

여기서 L과 L<sub>273</sub> 은 온도 T와 273 K에서의 길이를 나타낸다.

또한 그는 열팽창계수를 다음 식으로 제시하였다.

for 273 K < T < 923 K

$$\alpha = 9.828 \times 10^{-6} - 6.390 \times 10^{-10} T + 1.330 \times 10^{-12} T^2 - 1.757 \times 10^{-17} T^3$$

for 273 K < T < 3120 K

$$\alpha = 1.1833 \times 10^{-5} - 5.013 \times 10^{-9} T + 3.756 \times 10^{-12} T^2 - 6.125 \times 10^{-17} T^3$$

여기서  $\alpha$ 는 열팽창계수를 나타낸다.

이상의 UO<sub>2</sub>에 대한 격자상수와 열팽창계수를 표 1에 나타내었다.

DUPIC 핵연료의 경우는 사용후핵연료의 높은 방사선 때문에 열물성을 실험실에서 직접 측정하기가 어렵다. 따라서 DUPIC 핵연료 개발 연구의 일환으로 모의 DUPIC 핵연료를 이용하여 DUPIC 핵연료 열물성을 연구하고 있다. 모의 사용후핵연료는 천연우라늄에 핵분열생성물을 첨가하여 미세구조와 열역학적 평형상태를 사용후핵연료와 동일하게 모사하여 제조한다. 모의 DUPIC 핵연료는 DUPIC 핵연료의 제조공정과 동일하게 모의 사용후핵연료를 산화/환원한 분말을 이용하여 성형 및 소결을 통해 제조한다. 이런 모의 핵연료 (모의 사용후핵연료와 모의 DUPIC 핵연료)는 조사된 고연소도 핵연료를 대신할 수 있는 유일한 non-radioactive 물질이다. 모의 사용후핵연료

를 이용하면 쉽고 신뢰성 있는 측정과 원하는 시편을 상대적으로 많이 가질 수 있는 이점이 있으며, fission gas bubble와 균열이 없는 핵연료 고유의 열물성을 측정할 수 있다. 조사된 핵연료와 유사한 미세구조로 인하여 모의 사용후핵연료는 다음과 같이 다양한 실험에 이용되고 있다.

- 열전도도 (thermal conductivity)
- 핵분열생성기체 이동 (fission-gas mobility)
- 산화거동 (oxidation behavior)
- DUPIC (direct use of spent PWR fuel in CANDU) 핵연료 연구,
- 용해시험 (leaching tests)
- 전기화학 (electrochemistry)
- 핵연료-피복관 상호거동 (fuel-zircaloy interaction)
- 조사손상 연구 (radiation damages studies)
- 물리적 특성 연구 (measurements of physical properties)

본 연구에서는 DUPIC 핵연료의 열팽창 특성을 예측하기 위하여 중성자를 이용하여 모의 DUPIC 핵연료의 격자상수를 상온과 1273 K의 온도범위에서 측정하였다. 온도에 따른 격자상수를 이용하여 선열팽창 (linear thermal expansion)을 나타낼 수 있는 식, 평균선열팽창계수 (average linear thermal expansion coefficient), 밀도변화 등을 구하였다.

Table 1. Lattice parameters and average linear thermal expansion coefficients of  $UO_2$

연구자	격자상수(nm)	평균선열팽창계수 ( $\times 10^6, K^{-1}$ )	측정방법
Gronvold [4]	0.54704 (20 °C)	10.8 (20~946 °C)	XRD
Baldock [5]	0.54704 (23 °C)	10.8 (20~2300 °C) 10.4 (20~900 °C)	XRD
Albinati [6]	0.5471 (20 °C)		Neutron
Hutchings [7]	0.5470 (20 °C)		Neutron
Momin [8]	0.5469 (23 °C)	10.8 (25~1327 °C)	XRD
Yamashita [9,10]	0.54699 (20 °C)		XRD

## 2. 실험

### 2.1 모의 DUPIC 핵연료 제조

DUPIC 핵연료는 사용후핵연료를 탈피복하여 산화/환원 공정을 거친 후 성형, 소결하여 제조한다. 따라서 모의 DUPIC 핵연료 역시 모의 사용후핵연료를 산화/환원 공정을 통해 제조된 분말을 성형, 소결하여 제조한다. 모의 사용후핵연료는 천연우라늄에 핵분열생성물을 첨가하여 열역학적 평형상태, 균일한 분포 등을 사용후핵연료와 동일하게 모사하여 제조한다. 모의 사용후핵연료 제조시 첨가하는 핵분열생성물은 초기성분, 출력 등 모의 대상 사용후핵연료의 이력에 따라 다르며, ORIGEN-2 코드를 이용하여 계산한다. 본 실험에서 제조한 모의 DUPIC 핵연료는 표준 DUPIC 핵연료를 모사한 것으로서, 이는 핵분열성 물질인 U-235와 Pu-239의 농도를 각각 1.0 %와 0.45 %가 되게 여러 연소도의 사용후핵연료를 혼합한 것이다. 본 연구에서 모의 사용후핵연료 제조를 위해 첨가한 핵분열 생성물은 표 2에 나타내었다. 사용후핵연료내의 핵분열 생성물은 핵연료 전체에 균질하게 분포되어 평형상태를 이루고 있다. 따라서 모의 사용후핵연료 제조를 위하여 첨가된 핵분열 생성물을  $UO_2$  분말에 균질하게 혼합하는 것이 중요하다. 핵분열 생성물을 첨가한  $UO_2$  분말을 tubular mixer에서 약 24시간 혼합하였다. 혼합된 분말은 attrition miller에서 약 2시간 동안 습식 밀링 처리하였으며, 40℃ 오븐에서 약 5일간 건조시켰다. 건조된 분말은 용기 바닥에 딱딱하게 굳어 있었으며, 이를 유발에서 갈은 후 35번 sieve를 통과시켜 tubular에서 5시간 분쇄하여 조립화를 대신하였다. 또한 윤활재로서 Zn stearate를 약 0.2% (0.4g)첨가하여 tubular에서 약 1시간 혼합하였다. 이상과 같이 처리된 분말은 3 ton/cm<sup>2</sup>의 압력으로 성형하여 1700 °C에서 4시간동안 100 % 수소분위기에서 소결하였다. 모의 사용후핵연료는 400 °C와 600 °C의 온도에서 각각 산화, 환원된다. 3회의 산화, 환원공정을 거친 분말은 모의 사용후핵연료 제조 때와 같은 조건으로 제조된다. 이렇게 제조된 모의 DUPIC 핵연료의 밀도와 결정립크기는 각각 10.26 g/cm<sup>3</sup> (95.14 % of TD)와 10.264 μm로 나타났다. 모의 DUPIC 핵연료의 미세구조는 그림 1에 나타내었다. 모의 DUPIC 핵연료의 조성과 농도는 EPMA(electron probe microanalyzer)를 이용하여 조사되었다 [12]. EPMA에 의해 관찰된 산화 석출물과 금속 석출물은 표 3과 4에 나타내었다. 산화 석출물은 주로 Zr과 Ba가 주성분을 이루고 있으며, BaZrO<sub>3</sub>의 perovskite 구조를 이루고 있다. 금속 석출물은 결정립계에 분포되어 있으며, Mo, Ru, Pd 와 Rh로 구성되었다. 또한 Zr, Y, La, Nd 와 Ce는 기지에 용해되어 고용체를 형성하는 것으로 나타났다.

Table 2. Contents of fission products added in UO<sub>2</sub> powders

element	chemical form	weight	contents (g)	% of element	Weight of Oxide	weight of U 100g	% of element
Rb	Rb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	85.5	278.6	0.02811	356.83	0.03174	0.0308761
Sr	SrO	87.6	541.7	0.05465	640.62	0.05697	0.0554318
Y	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	88.9	355.0	0.03582	450.84	0.04010	0.0390104
Zr	ZrO <sub>2</sub>	91.2	2888.4	0.29142	3901.65	0.34700	0.3376048
Mo	MoO <sub>3</sub>	96.0	2636.7	0.26602	3955.05	0.35175	0.3422253
Tc	RuO <sub>2</sub>	99.0	612.0	0.06175	822.61	0.07316	0.0711798
Ru	RuO <sub>2</sub>	101.1	1724.5	0.17399	2270.50	0.20193	0.1964632
Rh	Rh <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	102.9	330.0	0.03329	406.97	0.03619	0.0352144
Pd	PdO	106.4	1109.3	0.11192	1276.11	0.11349	0.1104203
Te	TeO <sub>2</sub>	127.6	379.6	0.03830	474.80	0.04223	0.0410836
Ba	BaCO <sub>3</sub>	137.3	1493.2	0.15065	2145.70	0.19083	0.185665
La	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	138.9	957.7	0.09662	1123.18	0.09989	0.0971871
Ce	CeO <sub>2</sub>	140.1	1854.6	0.18712	2278.15	0.20261	0.197125
Pr	Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	140.9	877.6	0.08854	1047.81	0.09319	0.0906659
Nd	Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	144.2	3157.2	0.31854	3682.52	0.32751	0.318644
Sm	Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	150.4	693.0	0.06992	775.41	0.06896	0.067095
Th		232.0	396.6	0.04001		0.00000	0
U	UO <sub>2</sub>	238.0	991154	100.000	1124402.51	100.00000	97.29308
Np		237.0	354.7	0.03579		0.00000	0
Pu(Ce)	CeO <sub>2</sub>	244.0	7361.9	0.74276	5193.16	0.46186	0.4493571
Am	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	243.0	720.1	0.07265	482.73	0.04293	0.0417703

Table 3. EPMA results for metallic precipitates and matrix [12]

Point	U	Zr	Mo	Ru	Pd	Sr	Rh	Ba	La	Ce	Te
1	38.26	1.24	34.14	19.42	1.24	2.38	2.18				1.13
2	98.33	0.29				0.55				0.43	
3	23.97	0.88	27.92	41.56	1.59	1.30	2.83				
4	12.70	1.88	42.08	32.57	2.10	2.94	1.71	1.58	1.15	1.29	
5	26.88	31.98	30.13	2.28	1.74	2.05	1.36	1.47	1.08	0.47	

1,3,4,5 : metallic precipitates, 2 : matrix

Table 4. EPMA results for the oxide precipitates and the oxides dissolved in the matrix [12]

Point	U	Zr	Nd	Ba	Mo	Remark
1	98.96	0.40	0.65			matrix
2	13.57	34.00		52.42		oxide precipitate
3	28.76	28.76		43.93		
4	20.53	31.50		47.97		
5	12.40	34.41		53.19		
6	86.49	5.73		7.78		
7	99.26	0.47	0.27			matrix
8	98.09	0.72	0.87		0.31	matrix

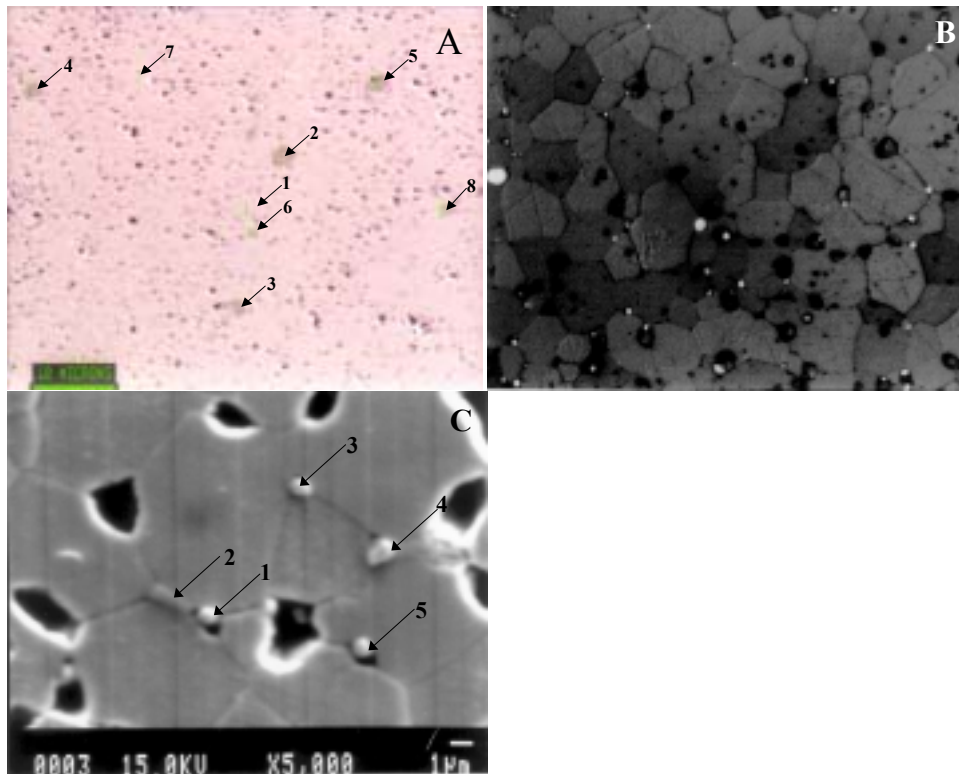


Fig. 1. SEM image of polished and etched surface of simulated DUPIC fuel :  
 A) polished surface : Dark parts indicated by arrows are oxide precipitates.  
 B) etched surface : Equiaxed matrix grains, white metallic and dark oxide precipitates are shown.  
 C) etched surface : Small particles indicated by arrows between the matrix grains are metallic precipitates.

## 2.2 중성자회절시험

연구용 원자로인 「하나로」의 ST2 수평공에 설치되어 있는 고분해능 중성자 분말 회절장치 (HRPD, high resolution powder diffractometer)를 이용한 중성자 회절실험을 수행하였다. 원자로에서 발생된 백색 중성자빔은 Ge (331)단색화 결정에 의해 90°의 인출각 (take-off angle)으로 회절되어 파장이 1.835 Å으로 단색화 되었으며, 시료 위치에서의 열중성자속은 대략 106 n/cm<sup>2</sup>s 이었다.

온도에 따른 시료의 결정구조상의 변화를 관측하고자 고온 진공로 (vacuum furnace) 속에 pellet 형태로 가공된 시료를 넣고 상온부터 1000°C까지 200°C간격으로 온도를 변화시키며 각 온도에서 1시간씩 중성자회절상을 얻었다. 고온 진공로는 상온에서는 약 10<sup>-5</sup> torr 의 진공도를 나타내었고, 1000°C에서는 약 10<sup>-3</sup> torr 정도의 진공도를 나타내었다. 발열체로는 graphite heater를 사용하였고 단열체로는 carbon pelt를 사용하였다.

HRPD의 검출기 시스템은 32개의 He<sup>-3</sup> 비례계수관과 이를 둘러싼 차폐체와 초기 증폭기(pre-amplifier)의 조합으로 이루어져 있으며, 0.05°스텝으로 100스텝 동안 검출기 시스템이 회전해가면서 중성자회절상을 얻는다. 이때 측정되어지는 회절각은 2θ = 0 ~160 °까지이며 직사빔 (direct beam)에 의한 검출기 손상을 막기 위해 beam stopper로 가려진 부분을 제외한 약 8°이상의 각도 영역부터 얻어진 회절상을 분석에 사용하였다.

중성자 회절상들은 Rietveld 방법으로 잘 알려진 분석코드 중의 하나인 'FullProf'를 이용하여 분석되었다. 모든 시료의 결정구조는 UO<sub>2</sub>의 결정구조인  $Fm\bar{3}m$ 로 분석하였으며, U와 O의 화학적 성분비는 1:2로 고정하였고, 미량의 상들에 대한 분석은 제외하였다.

### 3. 실험결과

본 연구에서 측정된  $\text{UO}_2$ 와 모의 DUPIC 핵연료의 온도에 따른 격자상수를 표 5에 나타내었다.

Table 5. Lattice parameter and cell volume for  $\text{UO}_2$  and simulated DUPIC fuel

Temperature (K)	$\text{UO}_2$		simulated DUPIC fuel	
	a, nm	volume, nm <sup>3</sup>	a, nm	volume, nm <sup>3</sup>
298	0.547176	0.163825	0.546832	0.163517
473	0.547993	0.164560	0.547664	0.164264
673	0.549116	0.165574	0.548825	0.165311
873	0.550276	0.166626	0.550064	0.166433
1073	0.551499	0.167739	0.551297	0.167555
1273	0.552762	0.168894	0.552564	0.168713

그림 2는  $\text{UO}_2$ 와 모의 DUPIC 핵연료의 온도에 따른 격자상수를 나타낸 것이다. 본 연구에서 측정된  $\text{UO}_2$ 의 격자상수는 다른 연구원들의 결과와 유사하게 나왔다. 그러나 모의 DUPIC 핵연료의 격자상수는  $\text{UO}_2$ 보다 적게 나왔다. 이 결과는 Momin 등 [8]의 결과와 잘 일치한다. 그는  $\text{UO}_2$ ,  $\text{ThO}_2$  and  $(\text{U}_{0.2}\text{Th}_{0.8})\text{O}_2$ 에 희토류족, 알칼리 토족을 첨가함으로써 격자상수가 줄어드는 것으로 발표했다. 본 연구에서 측정된 온도에 따른 격자상수는 다음 식으로 나타낼 수 있다.

For  $\text{UO}_2$ ,

$$a_T = (0.54608 \pm 0.00011) + (2.79613 \pm 0.52332) \times 10^{-6} T + (3.18639 \pm 0.72476) \times 10^{-9} T^2 + (1.00848 \pm 0.30533) \times 10^{-12} T^3. \quad (1)$$

For simulated DUPIC fuel pellet,

$$a_T = (0.54578 \pm 0.00015) + (2.45728 \pm 0.70622) \times 10^{-6} T + (3.96164 \pm 0.97806) \times 10^{-9} T^2 + (1.34114 \pm 0.41204) \times 10^{-12} T^3. \quad (2)$$



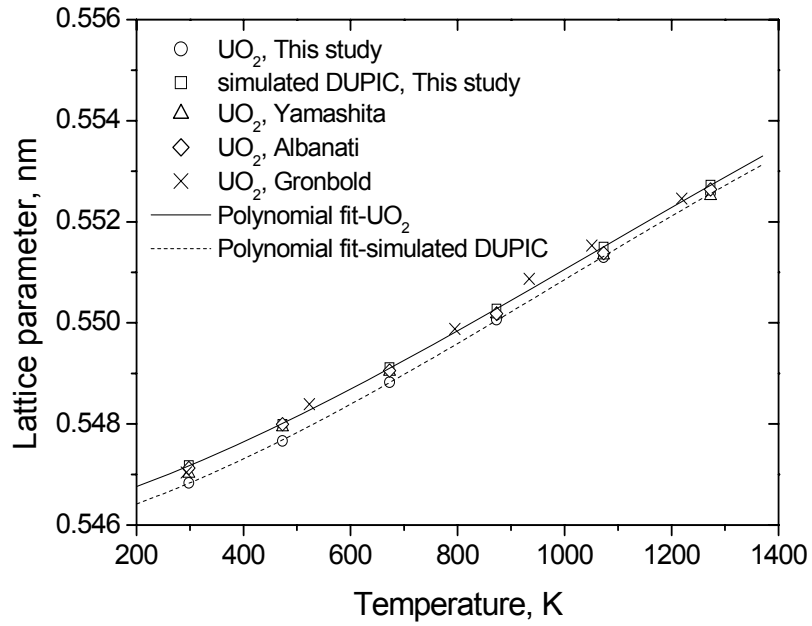


Fig. 2. Lattice parameters of UO<sub>2</sub> and simulated DUPIC fuel as a function of temperature.

선열팽창비율(percentage linear thermal expansion)은 온도에 따른 격자상수의 증가량을 초기의 격자상수로 나눔으로서 계산 할 수 있다. 즉,

$$\text{Expansion \%} = \{(a_T - a_{298})/a_{298}\}/100, \quad (3)$$

여기서  $a_T$  and  $a_{298}$ 는 온도 T와 온도 298 K에서의 격자상수를 나타낸다. 위 식으로 계산한 선열팽창비율은 다음의 3차 식으로 나타낼 수 있다.

For UO<sub>2</sub>,

$$\begin{aligned} \text{Expansion \%} = & (-0.20012 \pm 0.02037) + (5.1101 \pm 0.95640) \times 10^{-4} T \\ & + (5.82334 \pm 1.32454) \times 10^{-7} T^2 + (1.84307 \pm 0.55580) \times 10^{-10} T^3. \quad (4) \end{aligned}$$

For simulated DUPIC fuel,

$$\text{Expansion \%} = (-0.19309 \pm 0.02751) + (4.49366 \pm 1.29148) \times 10^{-4} T + (7.24472 \pm 1.78859) \times 10^{-7} T^2 + (2.45256 \pm 0.7535) \times 10^{-10} T^3. \quad (5)$$

그림 3은 위의 식으로 계산한 선열팽창율을 나타낸 것이다. 모의 DUPIC 핵연료의 격자상수는  $\text{UO}_2$ 의 것보다 적었으나, 선열팽창율은 높게 나타났으며 온도가 증가할수록 그 차이는 더 크게 나타났다. 이는 모의 핵연료에 첨가한 핵분열생성물중 일부가  $\text{UO}_2$ 의 격자에 치환되어 고용체를 형성하여 원자간 결합력을 변화 시켰기 때문으로 생각된다.

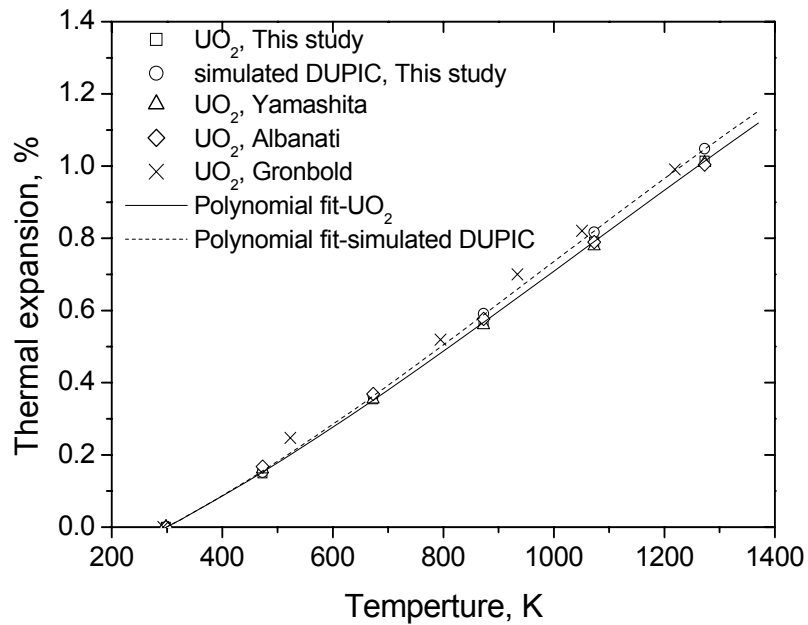


Fig. 3. Percentage linear thermal expansion of  $\text{UO}_2$  and simulated DUPIC fuel as a function of temperature.

선열팽창계수는 열팽창율을 온도에 따라 미분하여 구할 수 있다.

$$a_T = \frac{1}{a_{298}} \left( \frac{\partial a_T}{\partial T} \right) \quad (6)$$

여기서  $a_{298}$ 은 온도 298 K에서의 격자상수를 나타낸다. 위 식으로 계산한 선열팽창계수는 다음의 3차 식으로 나타낼 수 있다.

For  $UO_2$ ,

$$T = 6.38733 \times 10^{-6} + 8.05647 \times 10^{-9} T - 3.12511 \times 10^{-12} T^2 + 1.82125 \times 10^{-16} T^3. \quad (7)$$

For simulated DUPIC fuel,

$$T = 5.41076 \times 10^{-6} + 1.34729 \times 10^{-8} T - 9.68337 \times 10^{-12} T^2 + 2.26817 \times 10^{-15} T^3. \quad (8)$$

298 ~ 1273 K의 온도 범위에서  $UO_2$ 와 모의 DUPIC 핵연료의 평균 선열팽창계수는  $10.471 \times 10^{-6}$ 과  $10.751 \times 10^{-6} K^{-1}$ 이다.

열팽창에 따른 밀도변화는 다음 식과 같이 계산할 수 있다.

$$\rho(T) = \rho(298) \left( \frac{L_{298}}{L_T} \right)^3 \quad (9)$$

위의 식을 이용하여 온도에 따른 밀도 변화를 초기 밀도와의 비로 그림 4에 나타내었으며 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

For  $UO_2$ ,

$$\rho(T)/\rho(298) \times 100 = 100.60874 - 0.00157 T - 1.69475 \times 10^{-6} T^2 + 5.611 \times 10^{-10} T^3. \quad (10)$$

For simulated DUPIC fuel,

$$\rho(T)/\rho(298) \times 100 = 100.58532 - 0.00139 T - 2.1119E \times 10^{-6} T^2 + 7.41818 \times 10^{-10} T^3. \quad (11)$$

$UO_2$ 와 모의 DUPIC 핵연료의 온도 상승에 따른 밀도감소는 온도가 1273 K까지 증가함에 따라 초기 밀도의 96.92와 97.02 % 까지 줄어드는 것으로 나타났다. 두 시편의

밀도변화는 거의 비슷하나 모의 DUPIC 핵연료의 밀도변화가  $\text{UO}_2$ 의 밀도변화보다 약간 크게 나타났다.

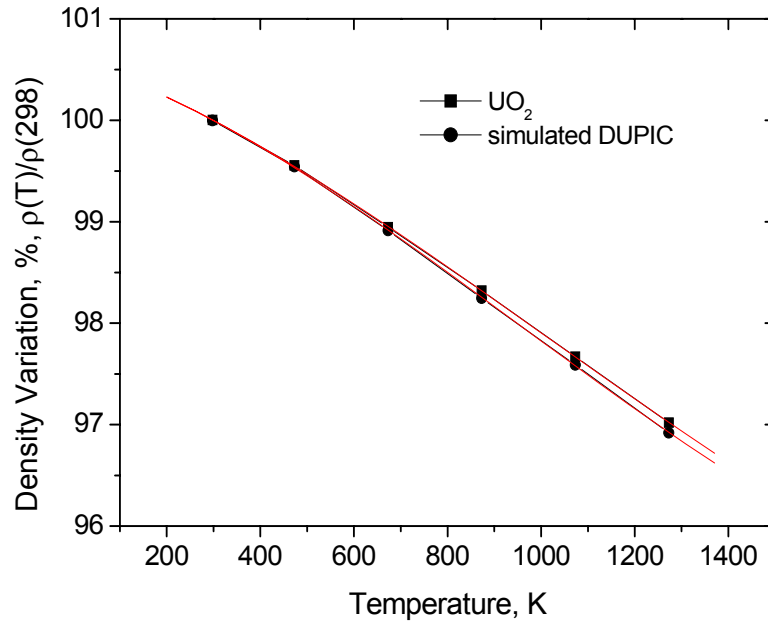


Fig. 4. Percentage density variation of  $\text{UO}_2$  and simulated DUPIC fuel as a function of temperature.

#### 4. 결 론

DUPIC 핵연료의 열팽창 특성을 파악하기 위해 중성자 회절을 이용하여 실온에서 1273 K의 온도범위에서 격자상수의 변화를 측정된 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 모의 DUPIC 핵연료의 격자상수는  $UO_2$  보다 적게 나타났으며, 온도에 따른 격자상수의 증가는 식 (2)로 나타낼 수 있다.
2. 모의 DUPIC 핵연료의 열팽창은  $UO_2$  보다 크게 나타났으며, 온도에 따른 선 열팽창비율은 식 (5)로 나타낼 수 있다.
3. 298 ~ 1273 K의 온도 범위에서  $UO_2$ 와 모의 DUPIC 핵연료의 평균 선열팽창계수는  $10.471 \times 10^{-6}$ 과  $10.751 \times 10^{-6} K^{-1}$ 이다.
4. 모의 DUPIC 핵연료의 온도 상승에 따른 밀도감소가  $UO_2$ 보다 약간 크게 나타났다. 온도가 1273K까지 증가함에 따라  $UO_2$ 의 밀도변화는 초기 밀도의 97.02 %로 줄어들며, 모의 DUPIC 핵연료의 밀도 변화는 96.92% 까지 줄어드는 것으로 나타났다.
5. 이상의 결과는 DUPIC 핵연료의 성능평가에 유용하게 이용될 수 있을 것으로 생각된다.

## 참 고 문 헌

1. I.J. Hastings, P.G. Boczar, C.J. Allan and M. Gacesa, Proc. Sixth KAIF/KNS Annual Conf. Seoul, Korea, 1991.
2. J.S. Lee, K.C. Song, M.S. Yang, K.S. Chun, B.W. Rhee, J.S. Hong, H.S. Park and C.S. Rim, Proc. Int. Conf. on Future Nuclear Systems: Emerging Fuel Cycles and Waste Disposal Options Global 93, Seattle, Washington, 1993.
3. Hangbok Choi and Gyuhong Roh, "A sensitivity study on DUPIC fuel composition", KAERI/TR-942/98(1998)
4. F. Gronvold, J. Inorganic and Nuclear Chemistry, **1**, 357(1955)
5. P.J. Baldock, W.E. Spindler and T.W. Baker, J. Nucl. Mater. **18**, 305 (1966)
6. A. Albinati, Acta Cryst. A **36**, 265(198)
7. M.T. Hutchings, J. Chem. Soc, Faraday Trans. 2, **83**, 1083 (1987)
8. A.C. Momim, E.B. Mirza and M.D. Mathews, J. Nucl. Mater. **185**, 308 (1991)
9. T. Yamashita, N. Nitani, T. Tsuji and H. Inagaki, J. Nucl. Mater. **245**, 72 (1997)
10. T. Yamashita, N. Nitani, T. Tsuji and T. Kato, J. Nucl. Mater. **247**, 90 (1997)
11. D.G. Martin, J. Nucl. Mater. 152 (1988) 94
12. K.H. Kang, K.C. Song, J.S. Moon, H.S. Park and M.S. Yang, METALS AND MATERIALS, **6**, 583 (2000).

서 지 정 보 양 식					
수행기관 보고서번호	위탁기관 보고서번호	표준보고서번호	INIS 주제코드		
KAERI/TR-1900/2001					
제목 / 부제	중성자회절을 이용한 모의 DUPIC 핵연료의 열팽창 특성 연구				
연구책임자 및 부서명	강권호 (DUPIC핵연료기술개발팀)				
연구자 및 부서명	류호진, 배정현, 김형수, 송기찬, 양명승 (DUPIC핵연료기술개발팀) 최용남, 한영수, 오화숙 (하나로이용기술개발팀)				
발행지	대전	발행기관	한국원자력연구소	발행일	2001.7.
페이지	p. 20	도표	유(○), 무( )	크기	
참고사항					
비밀여부	공개(○), 대외비( ), ___급비밀	보고서 종류	기술 보고서		
연구위탁기관		계약번호			
초록	<p>DUPIC 핵연료의 열팽창과 온도에 따른 밀도변화를 조사하기 위하여 중성자회절을 이용하여 실온에서 1273 K의 온도범위에서 모의 DUPIC 핵연료와 UO<sub>2</sub>의 격자상수를 측정하였다. 모의 DUPIC 핵연료의 격자상수는 UO<sub>2</sub>의 것보다 적게 나타났으며, 선 열팽창은 크게 나타났다. 298 ~ 1273 K의 온도 범위에서 모의 DUPIC 핵연료와 UO<sub>2</sub>의 평균 선 열팽창계수는 <math>10.751 \times 10^{-6}</math> 과 <math>10.471 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}</math> 로 나타났다.</p>				
주제명	모의DUPIC핵연료, 열팽창율, 중성자회절, 밀도변화				

BIBLIOGRAPHIC INFORMATION SHEET					
Performing Org. Report No.		Sponsoring Org. Report No.		Standard Report No.	INIS Subject No.
KAERI/TR-1900/2001					
Title/Subtitle		Thermal Expansion Study of Simulated DUPIC Fuel Using Neutron Diffraction			
Project Manager and Dept.		Kweon Ho Kang(DUPIC Fuel irradiation Test and Performance Evaluation)			
Researcher and Dept.		H.J. Ryu, J.H. Bae, H.S. Kim, K.C. Song, M.S. Yang(DUPIC) Y.N. Choi, Y.S. Han, H.S. Oh(HANARO)			
Pub. Place	Taejeon	Pub. Org.	KAERI	Pub. Date	2001. 7
Page	p. 20	Fig. and Tab.	Yes(○), No( )	Size	
Note					
Classified	Open(○), Outside( ), __Class		Report Type	Technical Report	
Sponsoring Org.				Contract No.	
Abstract		<p>The lattice parameters of simulated DUPIC fuel and UO<sub>2</sub> were measured from room temperature to 1273 K using neutron diffraction to investigate the thermal expansion and density variation with temperature. The lattice parameter of simulated DUPIC fuel is lower than that of UO<sub>2</sub> and the linear thermal expansion of simulated DUPIC fuel is higher than that of UO<sub>2</sub>. For the temperature range from 298 to 1273 K, the average linear thermal expansion coefficients for UO<sub>2</sub> and simulated DUPIC fuel are <math>10.471 \times 10^{-6}</math> and <math>10.751 \times 10^{-6}</math> K<sup>-1</sup>, respectively.</p>			
Subject Key Words		simulated DUPIC fuel, thermal expansion, neutron diffraction, density.			



## 주 의

1. 이 보고서는 과학기술처에서 시행한 원자력연구개발사업의 연구보고서입니다.
2. 이 보고서 내용을 발표할 때는 반드시 과학기술처에서 시행한 원자력연구개발사업의 결과임을 밝혀야 합니다.
3. 국가과학기술 기밀유지에 필요한 내용은 대외적으로 발표 또는 공개하여서는 아니됩니다.