



(19) 대한민국특허청(KR)

(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2015년07월10일

(11) 등록번호 10-1535173

(24) 등록일자 2015년07월02일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
G21C 3/42 (2006.01) **G21C 3/02** (2006.01)
 (21) 출원번호 10-2013-0164738
 (22) 출원일자 2013년12월27일
 심사청구일자 2013년12월27일
 (65) 공개번호 10-2015-0077482
 (43) 공개일자 2015년07월08일
 (56) 선행기술조사문헌
 KR101265258 B1*
 JP2790548 B2*
 JP07119821 A
 KR100715516 B1
 *는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
한국원자력연구원
 대전광역시 유성구 대덕대로989번길 111(덕진동)
 (72) 발명자
나상호
 대전 유성구 어은로 57, 110동 103호 (어은동, 한빛아파트)
박세환
 대전 유성구 어은로 57, 123동 706호 (어은동, 한빛아파트)
 (뒷면에 계속)
 (74) 대리인
이원희

전체 청구항 수 : 총 4 항

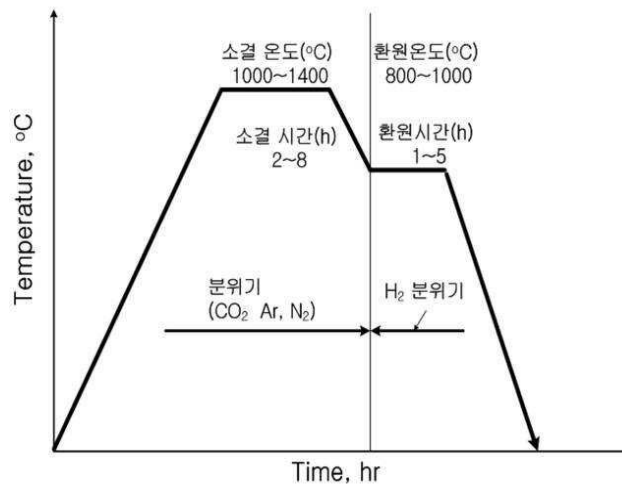
심사관 : 이용호

(54) 발명의 명칭 산화물 핵연료의 제조방법 및 이에 따라 제조되는 산화물 핵연료

(57) 요약

본 발명은 이산화우라늄(UO_{2+x}, x = 0 내지 0.20)을 포함하는 핵연료 분말을 준비하는 단계(단계 1); 상기 단계 1에서 준비된 핵연료 분말을 성형하여 성형체를 제조하는 단계(단계 2); 상기 단계 2에서 제조된 성형체를 1200 내지 1400 °C 온도에서 분위기 가스로 소결하는 단계(단계 3); 및 상기 단계 3에서 소결된 성형체를 800 내지 1000 °C 온도에서 환원 분위기 가스로 환원시키는 단계(단계 4);를 포함하는 산화물 핵연료의 제조방법을 제공한다. 본 발명에 따른 산화물 핵연료 제조방법은 1200 내지 1400 °C의 저온에서 소결을 수행함으로써, 경제적이고 안전하며, 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료를 제조할 수 있는 효과가 있다.

대표도 - 도1



(72) 발명자

김호동

대전 유성구 엑스포로 448, 109동 1601호 (전민동, 엑스포아파트)

송대용

충북 청주시 상당구 수영로 327, 110동 702호 (용담동, 세영첼시빌아파트)

신희성

대전 서구 둔산로 201, 602동 902호 (둔산동, 국화아파트)

한보영

서울 광진구 아차산로26길 27, (자양동)

서희

경기 평택시 밀월로20번길 11-1, (신장동)

원병희

대전광역시 유성구 관평동 113번지 스카이다워 609호

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	53322-13
부처명	미래창조과학부
연구관리전문기관	한국연구재단
연구사업명	원자력연구개발사업
연구과제명	파이로 안전조치 기술개발
기여율	1/1
주관기관	한국원자력연구원
연구기간	2012.03.01 ~ 2017.02.28

명세서

청구범위

청구항 1

이산화우라늄(UO_{2+x} , $x = 0$ 내지 0.20)을 포함하는 핵연료 분말을 준비하는 단계(단계 1);

상기 단계 1에서 준비된 핵연료 분말을 성형하여 성형체를 제조하는 단계(단계 2);

상기 단계 2에서 제조된 성형체를 1200 내지 1400 °C 온도에서 분위기 가스로 소결하는 단계(단계 3); 및

상기 단계 3에서 소결된 성형체를 800 내지 1000 °C 온도에서 환원 분위기 가스로 환원시키는 단계(단계 4);를 포함하되,

상기 단계 2 및 단계 3의 조건은

(1) 상기 단계 2의 성형 압력이 210 내지 250 MPa이고, 상기 단계 3의 소결 분위기 가스는 이산화탄소, 소결 온도는 1200 내지 1400 °C, 및 소결 시간은 2 내지 5 시간인 조건,

(2) 상기 단계 2의 성형 압력이 200 내지 300 MPa이고, 상기 단계 3의 소결 분위기 가스는 아르곤, 소결 온도는 1200 내지 1400 °C, 및 소결 시간은 2 내지 5시간인 조건, 및

(3) 상기 단계 2의 성형 압력이 190 내지 320 MPa이고, 상기 단계 3의 소결 분위기 가스는 질소, 소결 온도는 1200 내지 1400 °C, 및 소결 시간은 2 내지 5시간인 조건으로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종인 것을 특징으로 하는

밀도가 94.0 내지 96.5 %이론밀도(T.D., Theoretical Density)이고, 결정립 크기가 5 내지 25 μm 인 산화물 핵연료의 제조방법.

청구항 2

제1항에 있어서,

상기 단계 1의 핵연료 분말은 가돌리니아(Gd_2O_3) 또는 플루토늄 산화물(PuO_2)을 더 포함하는 것을 특징으로 하는 산화물 핵연료의 제조방법.

청구항 3

삭제

청구항 4

삭제

청구항 5

삭제

청구항 6

제1항에 있어서,

상기 단계 4의 환원 분위기 가스는 수소 가스인 것을 특징으로 하는 산화물 핵연료의 제조방법.

청구항 7

제1항에 있어서,
 상기 단계 4의 환원은 1 내지 5 시간 동안 수행하는 것을 특징으로 하는 산화물 핵연료의 제조방법.

청구항 8

삭제

청구항 9

삭제

청구항 10

삭제

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 산화물 핵연료의 제조방법 및 이에 따라 제조되는 산화물 핵연료에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 원자력 발전은 핵분열에 의해서 발생하는 열을 이용하는 것으로, 산화물 핵연료를 지르코늄 합금 피복관에 넣고 양끝을 밀봉 용접해서 연료봉을 제조하고, 연료봉을 수십~수백 개씩 묶어서 하나의 집합체 또는 다발을 제조한다. 이러한 집합체 및 다발이 각각 경수형 및 중수형 원자로에 장전되어 사용되며 산화물 핵연료에서 발생한 열은 산화물 핵연료를 거쳐서 피복관을 통해서 연료봉 주위를 흐르는 냉각수로 전달된다.

[0003] 핵연료는 산업적으로 이용가능한 핵연료 물질인 우라늄(U), 플루토늄(Pu) 또는 토륨(Th) 등의 산화물을 단독 또는 혼합한 물질을 성형 및 소결하여 제조된 원주형 또는 구형 산화물 핵연료를 제조하여 사용하고 있다. 산화물 핵연료는 대부분 이산화우라늄(UO₂)을 사용하며, UO₂에 Pu, Th, Gd, Er의 산화물과 같은 다른 핵연료 물질을 하나 이상 첨가하여 사용하기도 한다. 구체적으로, (U,Pu)O₂, (U,Th)O₂, (U,Gd)O₂, (U,Er)O₂, (U,Pu,Gd)O₂ 또는 (U,Th,Pu)O₂가 사용된다.

[0004] 가장 널리 사용되는 핵연료는 우라늄산화물(UO₂) 소결체로써, 우라늄산화물 분말을 출발 물질로 하여 여기에 윤활제를 첨가·혼합한 후 약 1톤(ton)/cm² 압력으로 예비 성형하여 슬러그(Slug)를 제조하고; 상기 슬러그를 파쇄하여 과립(Granule)을 제조한다; 얻어진 과립에 윤활제를 첨가·혼합하고 압축 성형하여 약 50 % 이론밀도(T.D., Theoretical density)를 갖는 성형체(Green pellet)를 만든 후; 상기 성형체를 수소 함유 기체분위기에서 약 1600 내지 1800 °C의 온도로 2 내지 4 시간 동안 소결하여 제조한다. 상기 제조된 우라늄산화물 소결체의 밀도는 약 95 % 이론밀도이고, 결정립 크기는 5 내지 12 μm이다.

[0005] 그러나, 상기와 같이 수소 분위기에서 고온(약 1600 °C 이상)으로 소결하는 경우에는 수소의 폭발 위험성을 내포하고 있으며, 고온에서의 소결로 인해 과잉의 전기가 소모되므로 경제적이지 못한 문제가 있다.

[0006] 또한, 종래의 저온 소결법을 살펴보면, 소결 시에 이산화탄소/일산화탄소의 비를 조절한 분위기 하에서 저온

(1400 °C 이하)으로 소결하는 방법이 개시된 바 있다. 그러나, 상기와 같은 저온 소결법에서는 이산화탄소/일산화탄소의 비율을 조절하기 어려워 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료를 제조하기 어려운 문제가 있다.

[0007]

이에, 본 발명자들은 산화물 핵연료의 제조방법에 대하여 연구하던 중, 이산화우라늄을 포함하는 핵연료 분말을 사용하여 성형체로 제조하고, 제조된 성형체로 1200 내지 1400 °C의 저온에서 분위기 가스 소결 및 환원 처리함으로써, 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료를 제조하는 방법을 개발하고, 본 발명을 완성하였다.

[특허문헌]

한국 공개특허 KR2011-0024931

영국 공개특허 GB1992-003090

독일 공개특허 DE1984-00006084

발명의 내용

해결하려는 과제

[0008]

본 발명의 목적은 산화물 핵연료의 제조방법 및 이에 따라 제조되는 산화물 핵연료를 제공하는 데 있다.

과제의 해결 수단

[0009]

상기 목적을 달성하기 위하여, 본 발명은

[0010]

이산화우라늄(UO_{2+x} , $x = 0$ 내지 0.20)을 포함하는 핵연료 분말을 준비하는 단계(단계 1);

[0011]

상기 단계 1에서 준비된 핵연료 분말을 성형하여 성형체를 제조하는 단계(단계 2);

[0012]

상기 단계 2에서 제조된 성형체를 1200 내지 1400 °C 온도에서 분위기 가스로 소결하는 단계(단계 3); 및

[0013]

상기 단계 3에서 소결된 성형체를 800 내지 1000 °C 온도에서 환원 분위기 가스로 환원시키는 단계(단계 4);를 포함하는 산화물 핵연료의 제조방법을 제공한다.

[0014]

또한, 본 발명은

[0015]

상기의 제조방법으로 제조되는 산화물 핵연료를 제공한다.

발명의 효과

[0016]

본 발명에 따른 산화물 핵연료 제조방법은 1200 내지 1400 °C의 저온에서 소결을 수행함으로써, 경제적이고 안전하며, 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료를 제조할 수 있는 효과가 있다.

도면의 간단한 설명

[0017]

도 1은 본 발명에 따른 제조방법에 있어서 시간에 따른 온도 변화를 나타낸 그래프이고;

도 2 및 도 3은 본 발명에 따른 실시예 1 내지 18 및 비교예 1 내지 12에서 제조된 산화물 핵연료의 성형 압력에 따른 소결 밀도를 나타낸 그래프이고;

도 4는 본 발명에 따른 실시예 1 내지 18 및 비교예 1 내지 12에서 제조된 산화물 핵연료의 소결 온도에 따른

결정립 크기를 나타낸 그래프이고;

도 5 및 도 6은 본 발명에 따른 실시예 19 내지 36 및 비교예 13 내지 24에서 제조된 산화물 핵연료의 성형 압력에 따른 소결 밀도를 나타낸 그래프이고;

도 7은 본 발명에 따른 실시예 19 내지 36 및 비교예 13 내지 24에서 제조된 산화물 핵연료의 소결 온도에 따른 결정립 크기를 나타낸 그래프이고;

도 8 및 도 9는 본 발명에 따른 실시예 37 내지 54 및 비교예 25 내지 36에서 제조된 산화물 핵연료의 성형 압력에 따른 소결 밀도를 나타낸 그래프이고;

도 10은 본 발명에 따른 실시예 37 내지 54 및 비교예 25 내지 36에서 제조된 산화물 핵연료의 소결 온도에 따른 결정립 크기를 나타낸 그래프이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0018]

본 발명은

[0019]

이산화우라늄(UO_{2+x} , $x = 0$ 내지 0.20)을 포함하는 핵연료 분말을 준비하는 단계(단계 1);

[0020]

상기 단계 1에서 준비된 핵연료 분말을 성형하여 성형체를 제조하는 단계(단계 2);

[0021]

상기 단계 2에서 제조된 성형체를 1200 내지 1400 °C 온도에서 분위기 가스로 소결하는 단계(단계 3); 및

[0022]

상기 단계 3에서 소결된 성형체를 800 내지 1000 °C 온도에서 환원 분위기 가스로 환원시키는 단계(단계 4);를 포함하는 산화물 핵연료의 제조방법을 제공한다.

[0023]

본 발명은 원자력 발전소에 장전하는 핵연료인 산화물 핵연료를 핵연료 시방에 적합하게 조절하는 저온 소결 환원 방법을 제공한다. 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료의 소결밀도는 94.0 내지 96.5 % 이론밀도(T.D., Theoretical density)이며, 결정립 크기는 5 내지 25 μm 이다.

[0024]

이하, 본 발명에 따른 산화물 핵연료의 제조방법에 대하여 각 단계별로 상세히 설명한다.

[0025]

먼저, 본 발명에 따른 산화물 핵연료의 제조방법에 있어서, 단계 1은 이산화우라늄(UO_{2+x} , $x = 0$ 내지 0.20)을 포함하는 핵연료 분말을 준비하는 단계이다.

[0026]

상기 단계 1에서는 산화물 핵연료를 제조하기 위한 원료 물질로써, 습식 또는 건식 방법으로 제조된 이산화 우라늄을 포함하는 핵연료 분말을 준비한다.

[0027]

구체적으로, 상기 단계 1에서 핵연료 분말은 전처리 공정을 수행하여 준비할 수 있다. 상기 핵연료 분말의 전처리 공정의 일례로써, 습식 또는 건식 방법으로 제조된 이산화우라늄(UO_{2+x} , $x = 0$ 내지 0.20) 분말을 유동성이 좋게 하기 위하여, 일정한 압력(약 300 MPa 이하)으로 예비 성형공정을 수행하여 예비 성형한 예비 성형체(Slug)를 직경 1 mm 이하의 시브(Sieve)를 가지는 조립기(Granulator)에 통과시켜 1 mm 이하의 입자 크기를 가지는 과립(Granule)을 형성할 수 있다. 상기 전처리 공정이 수행되어 과립으로 형성된 핵연료 분말은 유동성이 양호하여 일정한 크기의 성형체를 제조할 수 있다. 또한, 상기 과립에 일정량의 윤활제를 섞어 성형시에 입자 간 마찰 및 입자/다이브 마찰을 줄여 균열 등의 발생을 억제할 수 있다.

[0028]

이때, 상기 단계 1의 핵연료 분말은 가돌리니아(Gd_2O_3) 또는 플루토늄 산화물(PuO_2)을 더 포함할 수 있다. 상기 핵연료 분말은 이산화우라늄만을 포함하여 UO_2 산화물 핵연료를 제조할 수 있으나, 상기와 같이 가돌리니아 등의 가연성 독물(Burnable poison)을 포함하는 핵연료 분말을 사용하게 되면 UO_2 - Gd_2O_3 와 같은 혼합 산화물 핵연료를 제조할 수 있으며, 플루토늄 산화물 등의 핵분열 물질을 포함하는 경우에도 UO_2 - PuO_2 와 같은 혼합 산화물 핵연료

를 제조할 수 있다.

- [0029] 다음으로, 본 발명에 따른 산화물 핵연료의 제조방법에 있어서, 단계 2는 상기 단계 1에서 준비된 핵연료 분말을 성형하여 성형체를 제조하는 단계이다.
- [0030] 구체적으로, 상기 단계 2의 성형체 제조는 100 내지 500 MPa의 성형압력 하에서 수행되는 것이 바람직하다. 만약, 상기 단계 2의 성형체 제조가 100 MPa의 성형압력 미만에서 수행되는 경우에는 취약하여 취급하기 어려울 뿐만 아니라 핵연료로 사용되기 위한 핵연료 산화물의 소결밀도를 얻기 어려운 문제가 있으며, 500 MPa의 성형압력을 초과하는 경우에는 제조상의 어려움뿐만 아니라 균열 발생 등의 우려가 있으며, 또한 성형압력 증가에 따라 상응하는 소결밀도 증가도 어려운 문제가 있다.
- [0031] 한편, 상기 단계 2의 성형은 압축성형과 같은 통상적인 방법으로 수행될 수 있으며, 성형을 통해 제조된 성형체는 후속 공정에 적합한 원통형(속빈(Annular)) 또는 속찬(Solid)) 또는 직육면체 형태인 것이 바람직하나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0032] 다음으로, 본 발명에 따른 산화물 핵연료의 제조방법에 있어서, 단계 3은 상기 단계 2에서 제조된 성형체를 1200 내지 1400 °C 온도에서 분위기 가스로 소결하는 단계이다.
- [0033] 종래에는 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료를 제조하기 위해, 수소 분위기 하에 고온(약 1600 °C 이상)에서 2 시간 이상 소결하고 있다. 그러나, 상기와 같이 수소 분위기에서 고온으로 소결하는 경우에는 수소의 폭발 위험성을 내포하고 있으며, 고온에서의 소결로 인해 파잉의 전기가 소모되므로 경제적이지 못한 문제가 있다. 또한, 종래의 저온 소결법에서는 소결 시에 이산화탄소/일산화탄소의 비를 조절된 분위기 하에서 저온(1400 °C 이하)으로 소결하고 있다. 그러나, 상기와 같은 저온 소결법에서는 이산화탄소/일산화탄소의 비율을 조절하기 어려워 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료를 제조하기 어려운 문제가 있다.
- [0034] 이를 해결하기 위하여, 상기 단계 3에서는 1200 내지 1400 °C의 저온에서 분위기 가스로 소결하고 있으며, 다음 단계인 단계 4에서 환원 분위기 가스로 환원처리하여 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료를 제조한다.
- [0035] 구체적으로, 상기 단계 3의 소결은 이산화탄소, 질소 및 아르곤 등의 가스와 같은 분위기 가스 내에서 수행될 수 있다. 상기 단계 3의 소결이 이산화탄소 등의 산화성 가스 분위기 또는 질소 및 아르곤 등의 불활성 가스 분위기에서 수행되는 경우, 습식 또는 건식으로 제조된 이산화우라늄 분말의 O/U 비가 약 2.15 정도이기 때문에 파잉의 산소가 존재하므로, 이러한 파잉의 산소가 소결하는 과정에서 소결을 촉진하여 소결밀도와 결정립 크기를 증대시켜 준다. 반면에 수소 분위기에서 소결이 수행되는 경우에는 존재하던 파잉의 산소가 환원되어 존재하지 못하므로 원하는 소결밀도와 결정립 크기를 구하기 위해서는 1600 °C 이상의 고온이 요구된다. 한편, 질소 또는 아르곤 분위기보다는 이산화탄소(CO₂)와 같은 산화성 분위기에서 소결하는 경우에는 분위기가 산화성이므로 소결밀도와 결정립 크기를 더 크게 할 수도 있다. 그러나 이산화탄소와 같은 산화성 분위기는 지구온난화를 야기할 수 있는 가스이므로 질소 또는 아르곤 등의 가스를 사용하여 소결할 경우 보다 더 친환경적인 장점을 지닐 수 있다.
- [0036] 또한, 상기 단계 3의 소결은 2 시간 이상 수행하는 것이 바람직하며, 더욱 바람직하게는 2 내지 8 시간 동안 수행될 수 있다. 만약, 상기 단계 3의 소결을 2 시간 미만으로 수행하는 경우에는 제조되는 산화물 핵연료의 결정립 크기가 핵연료 시방에 적합하지 않은 문제가 있다.

- [0037] 다음으로, 본 발명에 따른 산화물 핵연료의 제조방법에 있어서, 단계 4는 상기 단계 3에서 소결된 성형체를 800 내지 1000 °C 온도에서 환원 분위기 가스로 환원시키는 단계이다.
- [0038] 상기 단계 3에서 소결이 완료된 소결체는 핵연료 시방에서 요구하는 O/U비가 2.00이 아니므로, 이를 UO₂로 환원 시키기 위하여 소결 후 냉각하는 과정에서 800 내지 1000 °C 온도에서 환원 분위기 가스로 전환하여 환원처리하며, 상기 환원을 통해 UO_{2+x} 으로부터 UO₂ 산화물 핵연료를 제조할 수 있다.
- [0039] 상기 단계 4의 환원을 수행함에 따라 균열 등의 결함이 없는 고품질 UO₂ 산화물 핵연료를 제조할 수 있으며, 제조된 UO₂ 산화물 핵연료의 산소/우라늄(O/U) 비가 2.00을 나타내어 우수한 산화물 핵연료를 제조할 수 있다.
- [0040] 이때, 상기 단계 4의 환원은 1 내지 5 시간 동안 상기 800 내지 1000 °C의 온도를 유지하여 수행할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0041] 한편, 상기 단계 3 및 상기 단계 4의 소결 및 환원은 연속적으로 수행될 수 있다. 즉, 상기 단계 3의 소결이 수행된 후, 환원 분위기를 조성하기 위하여 수소가스를 주입하여 환원 분위기로 전환한다. 이를 통해 공정의 중단 없이 연속적으로 소결 및 환원을 수행할 수 있다.
- [0042] 이때, 상기 소결이 이산화탄소, 질소, 아르곤과 분위기 가스에서 수행되는 경우에는 바로 수소가스를 주입하여 환원분위기를 조성할 수 있다.
- [0043] 본 발명의 소결 및 환원 공정의 일례로써, 도 1의 그래프를 통해 개략적으로 나타낸 바와 같이, 본 발명에 따른 산화물 핵연료의 제조방법은 1200 내지 1400 °C의 온도로 산화성 분위기 가스 또는 불활성 분위기 가스 내에서 저온 소결 공정을 수행한 후, 냉각 과정에서 환원 분위기 가스로 전환하여 800 내지 1000 °C의 온도에서 환원 공정을 수행한다. 이를 통해, 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료를 제조할 수 있다.
- [0044] 또한, 본 발명은
- [0045] 상기의 제조방법으로 제조되는 산화물 핵연료를 제공한다.
- [0046] 본 발명에 따른 제조방법으로 제조되는 산화물 핵연료는 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료로써, 종래에는 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료를 제조하기 위해, 수소 분위기 하에 고온(약 1600 °C 이상)에서 2 시간 이상 소결하여 제조하거나, 이산화탄소/일산화탄소의 비를 조절된 분위기 하에서 저온(1400 °C 이하)으로 소결하여 제조하고 있다. 그러나, 상기 제조방법들은 경제성과 안전성이 부족하고, 상기 분위기 가스의 비율을 조절하기 어려운 문제가 있다.
- [0047] 반면, 본 발명에 따른 제조방법으로 제조되는 산화물 핵연료는 1200 내지 1400 °C의 저온에서 소결하여 제조되어 경제성과 안정성 문제를 해결할 수 있으며, 단일 분위기를 가스를 통해 제조함으로써 제조하기 용이한 장점이 있다.
- [0048] 이때, 상기 산화물 핵연료의 밀도는 94.0 내지 96.5 % 이론밀도(T.D., Theoretical density)를 가지며, 상기 산화물 핵연료의 결정립 크기는 5 내지 25 μm를 가짐으로써, 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료인 것을 특징으로 한다.

- [0049] 이하, 하기 실시예 및 실험예에 의하여 본 발명을 상세히 설명한다.
- [0050] 단, 하기 실시예 및 실험예는 본 발명을 예시하는 것일 뿐 발명의 범위가 실시예 및 실험예에 의해 한정되는 것은 아니다.
- [0051] <실시예 1> 산화물 핵연료의 제조 1
- [0052] 단계 1: 습식으로 제조된 천연 이산화우라늄 분말(ex-ADU UO₂, 비표면적: 5.72 m²/g, O/U 비: 2.13)을 준비하였다.
- [0053] 단계 2: 상기 단계 1에서 준비된 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 150 MPa의 압력을 가하여 성형체를 제조하였다. 상기 성형체의 직경은 약 10.0 mm이고, 길이는 10 mm이며, 무게는 약 3.6 ~ 4.5 g이었다. 상기 성형체의 밀도는 약 42 ~ 43 % 이론밀도를 나타내었다.
- [0054] 단계 3: 상기 단계 2에서 제조된 성형체를 이산화탄소(CO₂) 분위기에서 4 °C/분의 승온속도로 승온하여 1200 °C의 온도에서 2 시간 동안 소결하였다.
- [0055] 단계 4: 상기 단계 3을 수행하고 난 후, 4 °C/분의 냉각속도로 1000 °C의 온도까지 냉각한 후, 수소 가스로 치환하고 2 시간 동안 환원 처리하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0056] <실시예 2> 산화물 핵연료의 제조 2
- [0057] 상기 실시예 1의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다. 300 MPa의 성형압력으로 성형체 제조시 성형밀도는 약 48 ~ 49 % 이론밀도를 나타내었다.
- [0058] <실시예 3> 산화물 핵연료의 제조 3
- [0059] 상기 실시예 1의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다. 450 MPa의 성형압력으로 성형체 제조시 성형밀도는 약 52 ~ 53 % 이론밀도를 나타내었다.
- [0060] <실시예 4> 산화물 핵연료의 제조 4
- [0061] 상기 실시예 1의 단계 3에서 5 시간 동안 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0062] <실시예 5> 산화물 핵연료의 제조 5
- [0063] 상기 실시예 4의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 4와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0064] <실시예 6> 산화물 핵연료의 제조 6
- [0065] 상기 실시예 4의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기

실시예 4와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.

- [0066] <실시예 7> 산화물 핵연료의 제조 7
- [0067] 상기 실시예 1의 단계 3에서 1300 °C의 온도에서 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0068] <실시예 8> 산화물 핵연료의 제조 8
- [0069] 상기 실시예 7의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 7과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0070] <실시예 9> 산화물 핵연료의 제조 9
- [0071] 상기 실시예 7의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 7과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0072] <실시예 10> 산화물 핵연료의 제조 10
- [0073] 상기 실시예 7의 단계 3에서 5 시간 동안 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 7과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0074] <실시예 11> 산화물 핵연료의 제조 11
- [0075] 상기 실시예 10의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 10과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0076] <실시예 12> 산화물 핵연료의 제조 12
- [0077] 상기 실시예 10의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 10과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0078] <실시예 13> 산화물 핵연료의 제조 13
- [0079] 상기 실시예 1의 단계 3에서 1400 °C의 온도에서 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0080] <실시예 14> 산화물 핵연료의 제조 14
- [0081] 상기 실시예 13의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 13과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0082] <실시예 15> 산화물 핵연료의 제조 15
- [0083] 상기 실시예 13의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 13과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.

- [0084] <실시예 16> 산화물 핵연료의 제조 16
- [0085] 상기 실시예 13의 단계 3에서 5 시간 동안 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 13과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0086] <실시예 17> 산화물 핵연료의 제조 17
- [0087] 상기 실시예 16의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 16과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0088] <실시예 18> 산화물 핵연료의 제조 18
- [0089] 상기 실시예 16의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 16과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0090] <실시예 19> 산화물 핵연료의 제조 19
- [0091] 상기 실시예 1의 단계 3에서 이산화탄소(CO₂) 분위기가 아닌, 아르곤(Ar) 분위기에서 소결을 수행한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0092] <실시예 20> 산화물 핵연료의 제조 20
- [0093] 상기 실시예 19의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 19와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0094] <실시예 21> 산화물 핵연료의 제조 21
- [0095] 상기 실시예 19의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 19와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0096] <실시예 22> 산화물 핵연료의 제조 22
- [0097] 상기 실시예 19의 단계 3에서 5 시간 동안 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 19와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0098] <실시예 23> 산화물 핵연료의 제조 23
- [0099] 상기 실시예 22의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 22와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0100] <실시예 24> 산화물 핵연료의 제조 24
- [0101] 상기 실시예 22의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 22와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0102] <실시예 25> 산화물 핵연료의 제조 25
- [0103] 상기 실시예 19의 단계 3에서 1300 °C의 온도에서 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 19와 동일하게 수행하여

산화물 핵연료를 제조하였다.

- [0104] <실시예 26> 산화물 핵연료의 제조 26
- [0105] 상기 실시예 25의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 25와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0106] <실시예 27> 산화물 핵연료의 제조 27
- [0107] 상기 실시예 25의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 25와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0108] <실시예 28> 산화물 핵연료의 제조 28
- [0109] 상기 실시예 25의 단계 3에서 5 시간 동안 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 25와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0110] <실시예 29> 산화물 핵연료의 제조 29
- [0111] 상기 실시예 28의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 28과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0112] <실시예 30> 산화물 핵연료의 제조 30
- [0113] 상기 실시예 28의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 28과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0114] <실시예 31> 산화물 핵연료의 제조 31
- [0115] 상기 실시예 19의 단계 3에서 1400 °C의 온도에서 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 19와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0116] <실시예 32> 산화물 핵연료의 제조 32
- [0117] 상기 실시예 31의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 31과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0118] <실시예 33> 산화물 핵연료의 제조 33
- [0119] 상기 실시예 31의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 31과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0120] <실시예 34> 산화물 핵연료의 제조 34
- [0121] 상기 실시예 31의 단계 3에서 5 시간 동안 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 31과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.

- [0122] <실시예 35> 산화물 핵연료의 제조 35
- [0123] 상기 실시예 34의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 34와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0124] <실시예 36> 산화물 핵연료의 제조 36
- [0125] 상기 실시예 34의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 34와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0126] <실시예 37> 산화물 핵연료의 제조 37
- [0127] 상기 실시예 1의 단계 3에서 이산화탄소(CO₂) 분위기가 아닌, 질소(N₂) 분위기에서 소결을 수행한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0128] <실시예 38> 산화물 핵연료의 제조 38
- [0129] 상기 실시예 37의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 37과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0130] <실시예 39> 산화물 핵연료의 제조 39
- [0131] 상기 실시예 37의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 37과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0132] <실시예 40> 산화물 핵연료의 제조 40
- [0133] 상기 실시예 37의 단계 3에서 5 시간 동안 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 37과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0134] <실시예 41> 산화물 핵연료의 제조 41
- [0135] 상기 실시예 40의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 40과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0136] <실시예 42> 산화물 핵연료의 제조 42
- [0137] 상기 실시예 40의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 40과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0138] <실시예 43> 산화물 핵연료의 제조 43
- [0139] 상기 실시예 37의 단계 3에서 1300 °C의 온도에서 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 37과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0140] <실시예 44> 산화물 핵연료의 제조 44
- [0141] 상기 실시예 43의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기

실시에 43과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.

- [0142] <실시에 45> 산화물 핵연료의 제조 45
- [0143] 상기 실시예 43의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 43과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0144] <실시에 46> 산화물 핵연료의 제조 46
- [0145] 상기 실시예 43의 단계 3에서 5 시간 동안 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 43과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0146] <실시에 47> 산화물 핵연료의 제조 47
- [0147] 상기 실시예 46의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 46과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0148] <실시에 48> 산화물 핵연료의 제조 48
- [0149] 상기 실시예 46의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 46과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0150] <실시에 49> 산화물 핵연료의 제조 49
- [0151] 상기 실시예 37의 단계 3에서 1400 °C의 온도에서 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 37과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0152] <실시에 50> 산화물 핵연료의 제조 50
- [0153] 상기 실시예 49의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 49와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0154] <실시에 51> 산화물 핵연료의 제조 51
- [0155] 상기 실시예 49의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 49와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0156] <실시에 52> 산화물 핵연료의 제조 52
- [0157] 상기 실시예 49의 단계 3에서 5 시간 동안 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 49와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0158] <실시에 53> 산화물 핵연료의 제조 53
- [0159] 상기 실시예 52의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 52와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.

- [0160] <실시예 54> 산화물 핵연료의 제조 54
- [0161] 상기 실시예 52의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 실시예 52와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0162] <비교예 1>
- [0163] 상기 실시예 1의 단계 3에서 1000 °C의 온도에서 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0164] <비교예 2>
- [0165] 상기 비교예 1의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 1과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0166] <비교예 3>
- [0167] 상기 비교예 1의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 1과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0168] <비교예 4>
- [0169] 상기 비교예 1의 단계 3에서 5 시간 동안 소결한 것을 제외하고는 상기 비교예 1과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0170] <비교예 5>
- [0171] 상기 비교예 4의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 4와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0172] <비교예 6>
- [0173] 상기 비교예 4의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 4와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0174] <비교예 7>
- [0175] 상기 실시예 1의 단계 3에서 1100 °C의 온도에서 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0176] <비교예 8>
- [0177] 상기 비교예 7의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 7과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0178] <비교예 9>
- [0179] 상기 비교예 7의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 7과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.

- [0180] <비교예 10>
- [0181] 상기 비교예 7의 단계 3에서 5 시간 동안 소결한 것을 제외하고는 상기 비교예 7과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0182] <비교예 11>
- [0183] 상기 비교예 10의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 10과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0184] <비교예 12>
- [0185] 상기 비교예 10의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 10과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0186] <비교예 13>
- [0187] 상기 실시예 19의 단계 3에서 1000 °C의 온도에서 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 19와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0188] <비교예 14>
- [0189] 상기 비교예 13의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 13과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0190] <비교예 15>
- [0191] 상기 비교예 13의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 13과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0192] <비교예 16>
- [0193] 상기 비교예 13의 단계 3에서 5 시간 동안 소결한 것을 제외하고는 상기 비교예 13과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0194] <비교예 17>
- [0195] 상기 비교예 16의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 16과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0196] <비교예 18>
- [0197] 상기 비교예 16의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 16과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0198] <비교예 19>

- [0199] 상기 실시예 19의 단계 3에서 1100 ℃의 온도에서 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 19와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.

- [0200] <비교예 20>
- [0201] 상기 비교예 19의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 19와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.

- [0202] <비교예 21>
- [0203] 상기 비교예 19의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 19와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.

- [0204] <비교예 22>
- [0205] 상기 비교예 19의 단계 3에서 5 시간 동안 소결한 것을 제외하고는 상기 비교예 19와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.

- [0206] <비교예 23>
- [0207] 상기 비교예 22의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 22와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.

- [0208] <비교예 24>
- [0209] 상기 비교예 22의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 22와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.

- [0210] <비교예 25>
- [0211] 상기 실시예 37의 단계 3에서 1000 ℃의 온도에서 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 37과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.

- [0212] <비교예 26>
- [0213] 상기 비교예 25의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 25와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.

- [0214] <비교예 27>
- [0215] 상기 비교예 25의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 25와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.

- [0216] <비교예 28>
- [0217] 상기 비교예 25의 단계 3에서 5 시간 동안 소결한 것을 제외하고는 상기 비교예 25와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.

- [0218] <비교예 29>
- [0219] 상기 비교예 28의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 28과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0220] <비교예 30>
- [0221] 상기 비교예 28의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 28과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0222] <비교예 31>
- [0223] 상기 실시예 37의 단계 3에서 1100 °C의 온도에서 소결한 것을 제외하고는 상기 실시예 37과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0224] <비교예 32>
- [0225] 상기 비교예 31의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 31과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0226] <비교예 33>
- [0227] 상기 비교예 31의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 31과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0228] <비교예 34>
- [0229] 상기 비교예 31의 단계 3에서 5 시간 동안 소결한 것을 제외하고는 상기 비교예 31과 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0230] <비교예 35>
- [0231] 상기 비교예 34의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 300 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 34와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.
- [0232] <비교예 36>
- [0233] 상기 비교예 34의 단계 2에서 이산화우라늄 분말을 유압 프레스로 450 MPa의 압력을 가한 것을 제외하고는 상기 비교예 34와 동일하게 수행하여 산화물 핵연료를 제조하였다.

표 1

	구분	분위기 가스	온도 (°C)	압력 (MPa)	시간 (시간)
[0234]					

실시예 1	이산화탄소 (CO ₂)	1200	150	2
실시예 2			300	
실시예 3			450	
실시예 4			150	
실시예 5			300	
실시예 6			450	
실시예 7		1300	150	2
실시예 8			300	
실시예 9			450	
실시예 10			150	
실시예 11			300	
실시예 12			450	
실시예 13		1400	150	2
실시예 14			300	
실시예 15			450	
실시예 16			150	
실시예 17			300	
실시예 18			450	

표 2

[0235]

구분	분위기 가스	온도 (°C)	압력 (MPa)	시간 (시간)
실시예 19	아르곤 (Ar)	1200	150	2
실시예 20			300	
실시예 21			450	
실시예 22			150	
실시예 23			300	
실시예 24			450	
실시예 25		1300	150	2
실시예 26			300	
실시예 27			450	
실시예 28			150	
실시예 29			300	
실시예 30			450	
실시예 31		1400	150	2
실시예 32			300	
실시예 33			450	
실시예 34			150	
실시예 35			300	
실시예 36			450	

표 3

[0236]

구분	분위기 가스	온도 (°C)	압력 (MPa)	시간 (시간)
----	--------	---------	----------	---------

실시예 37	(N ₂) 질소	1200	150	2
실시예 38			300	
실시예 39			450	
실시예 40			150	
실시예 41			300	
실시예 42			450	
실시예 43		1300	150	2
실시예 44			300	
실시예 45			450	
실시예 46			150	
실시예 47			300	
실시예 48			450	
실시예 49		1400	150	2
실시예 50			300	
실시예 51			450	
실시예 52			150	
실시예 53			300	
실시예 54			450	

표 4

[0237]

구분	분위기 가스	온도 (°C)	압력 (MPa)	시간 (시간)
비교예 1	이산화탄소 (CO ₂)	1000	150	2
비교예 2			300	
비교예 3			450	
비교예 4			150	
비교예 5			300	
비교예 6			450	
비교예 7		1100	150	2
비교예 8			300	
비교예 9			450	
비교예 10			150	
비교예 11			300	
비교예 12			450	
비교예 13	아르곤 (Ar)	1000	150	2
비교예 14			300	
비교예 15			450	
비교예 16			150	
비교예 17			300	
비교예 18			450	
비교예 19		1100	150	2
비교예 20			300	
비교예 21			450	
비교예 22			150	
비교예 23			300	
비교예 24			450	

비교예 25	질소 (N ₂)	1000	150	2
비교예 26			300	
비교예 27			450	
비교예 28			150	
비교예 29			300	
비교예 30			450	
비교예 31		1100	150	2
비교예 32			300	
비교예 33			450	
비교예 34			150	
비교예 35			300	
비교예 36			450	

[0238] <실험예 1> 산화물 핵연료 소결밀도 및 결정립 크기 분석

[0239] (1) 이산화탄소 분위기 소결에 따른 산화물 핵연료 소결밀도 및 결정립 크기 분석

[0240] 본 발명에 따른 제조방법으로 제조된 산화물 핵연료의 소결밀도 및 결정립 크기를 확인하기 위하여, 상기 실시예 1 내지 18 및 비교예 1 내지 12에서 제조된 산화물 핵연료의 소결밀도를 수침법(Immersion method)로 측정하고, 결정립 크기는 Heyn의 Lineal intercept 방법(ASTM E 112)으로 측정하였으며, 그 결과를 도 2 내지 4에 나타내었다.

[0241] 도 2 및 도 3에 나타낸 바와 같이, 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료의 소결밀도 범위는 94.0 내지 96.5 % 이론밀도(T.D., Theoretical density)이고, 상기 소결밀도 범위에 속하는 산화물 핵연료의 제조 조건은 다음과 같다.

[0242] 소결 시간이 2 시간이며, 소결 온도가 1000 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 400 MPa 이상, 1100 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 280 MPa 이상, 1200 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 210 MPa 이상, 1300 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 150 MPa 이상, 마지막으로 1400 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 420 MPa 이하인 것으로 나타났다.

[0243] 또한, 소결 시간이 5 시간이며, 소결 온도가 1000 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 300 MPa 이상, 1100 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 210 MPa 이상, 1200 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 150 MPa 이상, 1300 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 150 MPa 이상, 마지막으로 1400 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 250 MPa 이하인 것으로 나타났다.

[0244] 나아가, 도 4에 나타낸 바와 같이, 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료의 결정립 크기는 5 μm 이상이고, 상기 결정립 크기 범위에 속하는 산화물 핵연료의 제조 조건은 1200 °C 이상의 온도와 2 시간 이상의 소결 시간으로 확인되었다. 이때, 성형 압력은 결정립 크기에 그다지 영향을 미치지 않는 것으로 확인되었다.

[0245] 이와 같이, 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료의 조건인 94.0 내지 96.5 % 이론밀도 및 5 μm 이상의 결정립 크기를 가지는 산화물 핵연료의 제조의 적합한 조건은 다음과 같다.

[0246] 소결 시간이 2 시간인 경우, 소결 온도 1200 °C에서 성형 압력은 210 MPa 이상이며, 소결 온도 1300 °C에서 성형 압력은 150 MPa 이상이고, 소결 온도 1400 °C에서 성형 압력은 420 MPa 이하이다. 또한, 소결 시간이 5 시간인 경우, 소결 온도 1200 °C에서 성형 압력은 150 MPa 이상이며, 소결 온도 1300 °C에서 성형 압력은 150 MPa 이상이고, 소결 온도 1400 °C에서 성형 압력은 250 MPa 이하이다.

- [0247] (2) 아르곤 분위기 소결에 따른 산화물 핵연료 소결밀도 및 결정립 크기 분석
- [0248] 본 발명에 따른 제조방법으로 제조된 산화물 핵연료의 소결밀도 및 결정립 크기를 확인하기 위하여, 상기 실시예 19 내지 36 및 비교예 13 내지 24에서 제조된 산화물 핵연료의 소결밀도를 수침법(Immersion method)로 측정하고, 결정립 크기는 Heyn의 Lineal intercept 방법(ASTM E 112)으로 측정하였으며, 그 결과를 도 5 내지 7에 나타내었다.
- [0249] 도 5 및 도 6에 나타낸 바와 같이, 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료의 소결밀도 범위는 94.0 내지 96.5 % 이론밀도(T.D., Theoretical density)이고, 상기 소결밀도 범위에 속하는 산화물 핵연료의 제조 조건은 다음과 같다.
- [0250] 소결 시간이 2 시간이며, 소결 온도가 1000 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 370 MPa 이상, 1100 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 220 MPa 이상, 1200 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 220 MPa 이상, 1300 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 150 MPa 이상인 것으로 나타났다.
- [0251] 또한, 소결 시간이 5 시간이며, 소결 온도가 1000 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 270 MPa 이상, 1100 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 170 MPa 이상, 1200 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 150 MPa 이상, 1300 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 150 MPa 이상, 마지막으로 1400 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 300 MPa 이하인 것으로 나타났다.
- [0252] 나아가, 도 7에 나타낸 바와 같이, 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료의 결정립 크기는 5 μm 이상이고, 상기 결정립 크기 범위에 속하는 산화물 핵연료의 제조 조건은 1200 °C 이상의 온도와 2 시간 이상의 소결 시간으로 확인되었다. 이때, 성형 압력은 결정립 크기에 그다지 영향을 미치지 않는 것으로 확인되었다.
- [0253] 이와 같이, 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료의 조건인 94.0 내지 96.5 % 이론밀도 및 5 μm 이상의 결정립 크기를 가지는 산화물 핵연료의 제조의 적합한 조건은 다음과 같다.
- [0254] 소결 시간이 2 시간인 경우, 소결 온도 1200 °C에서 성형 압력은 200 MPa 이상이며, 소결 온도 1300 °C에서 성형 압력은 150 MPa 이상이고, 소결 온도 1400 °C에서 성형 압력은 150 MPa 이상이다. 또한, 소결 시간이 5 시간인 경우, 소결 온도 1200 °C에서 성형 압력은 150 MPa 이상이며, 소결 온도 1300 °C에서 성형 압력은 150 MPa 이상이고, 소결 온도 1400 °C에서 성형 압력은 300 MPa 이하이다.
- [0255] (3) 질소 분위기 소결에 따른 산화물 핵연료 소결밀도 및 결정립 크기 분석
- [0256] 본 발명에 따른 제조방법으로 제조된 산화물 핵연료의 소결밀도 및 결정립 크기를 확인하기 위하여, 상기 실시예 37 내지 54 및 비교예 25 내지 36에서 제조된 산화물 핵연료의 소결밀도를 수침법(Immersion method)로 측정하고, 결정립 크기는 Heyn의 Lineal intercept 방법(ASTM E 112)으로 측정하였으며, 그 결과를 도 8 내지 10에 나타내었다.
- [0257] 도 8 및 도 9에 나타낸 바와 같이, 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료의 소결밀도 범위는 94.0 내지 96.5 % 이론밀도(T.D., Theoretical density)이고, 상기 소결밀도 범위에 속하는 산화물 핵연료의 제조 조건은 다음과 같다.
- [0258] 소결 시간이 2 시간이며, 소결 온도가 1000 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 350 MPa 이상, 1100 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 200 MPa 이상, 1200 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 190 MPa 이상, 1300 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 150 MPa 이상, 마지막으로 1400 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 150 MPa 이상인 것으로 나타났다.

다.

[0259] 또한, 소결 시간이 5 시간이며, 소결 온도가 1000 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 270 MPa 이상, 1100 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 190 MPa 이상, 1200 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 190 MPa 이상, 1300 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 150 MPa 이상, 마지막으로 1400 °C의 온도인 경우에 성형 압력은 320 MPa 이하인 것으로 나타났다.

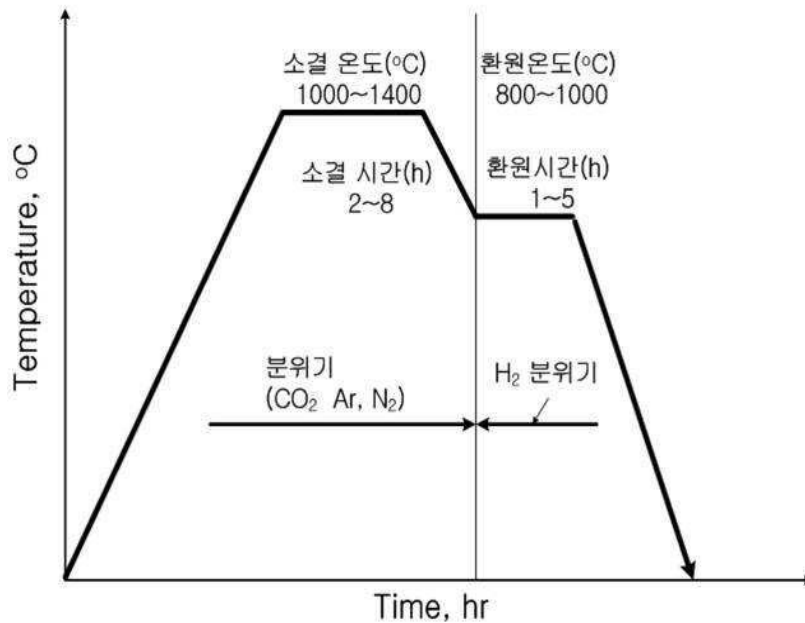
[0260] 나아가, 도 10에 나타난 바와 같이, 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료의 결정립 크기는 5 μm 이상이고, 상기 결정립 크기 범위에 속하는 산화물 핵연료의 제조 조건은 1200 °C 이상의 온도와 2 시간 이상의 소결 시간으로 확인되었다. 이때, 성형 압력은 결정립 크기에 그다지 영향을 미치지 않는 것으로 확인되었다.

[0261] 이와 같이, 핵연료 시방에 적합한 산화물 핵연료의 조건인 94.0 내지 96.5 % 이론밀도 및 5 μm 이상의 결정립 크기를 가지는 산화물 핵연료의 제조의 적합한 조건은 다음과 같다.

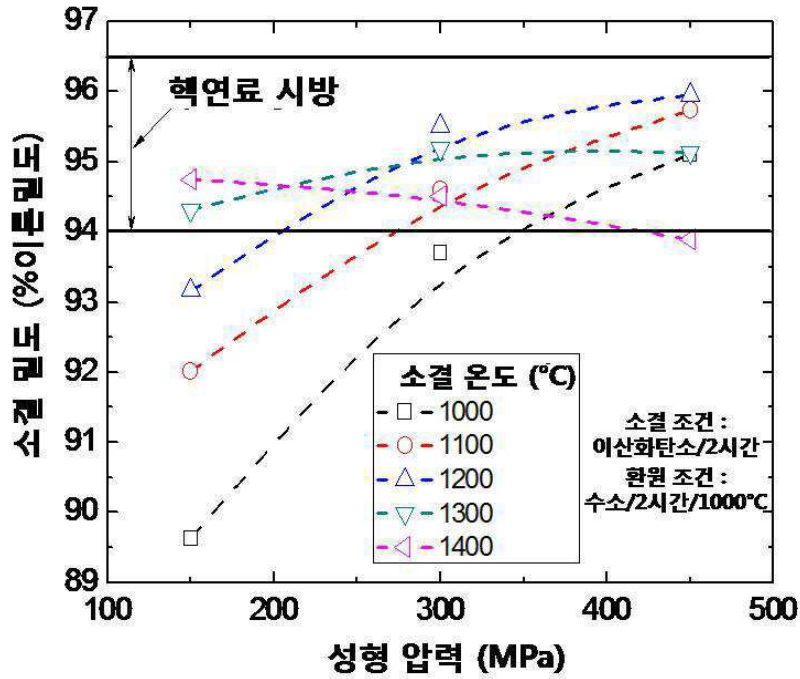
[0262] 소결 시간이 2 시간인 경우, 소결 온도 1200 °C에서 성형 압력은 190 MPa 이상이며, 소결 온도 1300 °C에서 성형 압력은 150 MPa 이상이고, 소결 온도 1400 °C에서 성형 압력은 150 MPa 이상이다. 또한, 소결 시간이 5 시간인 경우, 소결 온도 1200 °C에서 성형 압력은 190 MPa 이상이며, 소결 온도 1300 °C에서 성형 압력은 150 MPa 이상이고, 소결 온도 1400 °C에서 성형 압력은 320 MPa 이하이다.

도면

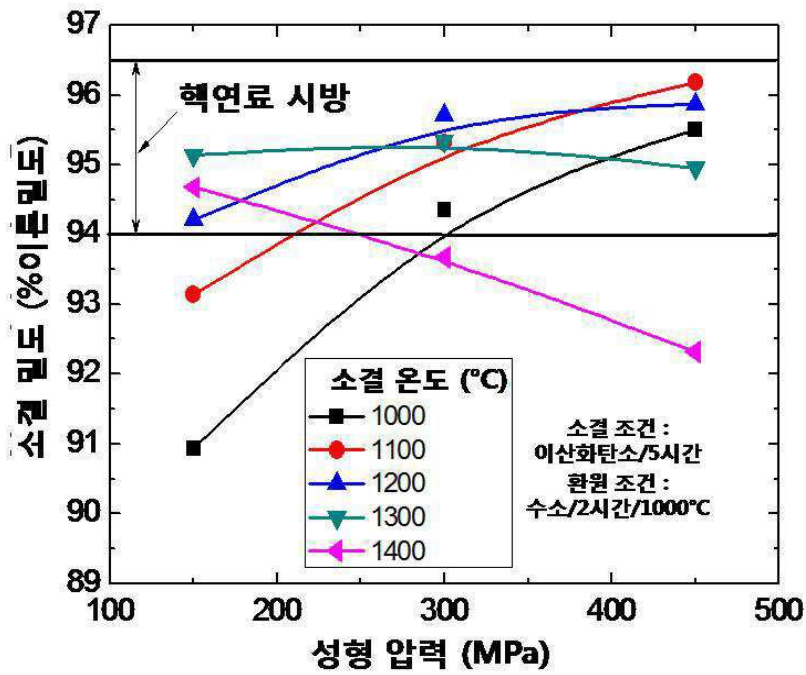
도면1



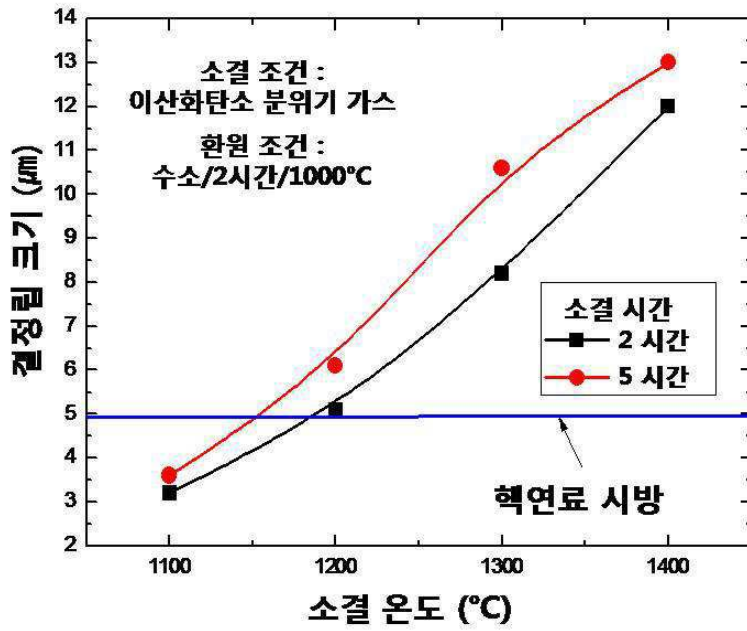
도면2



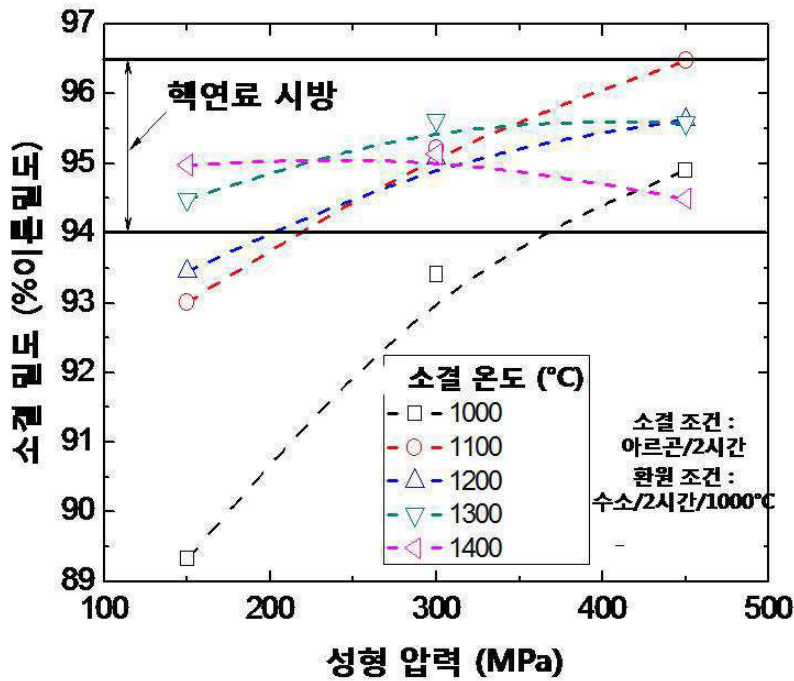
도면3



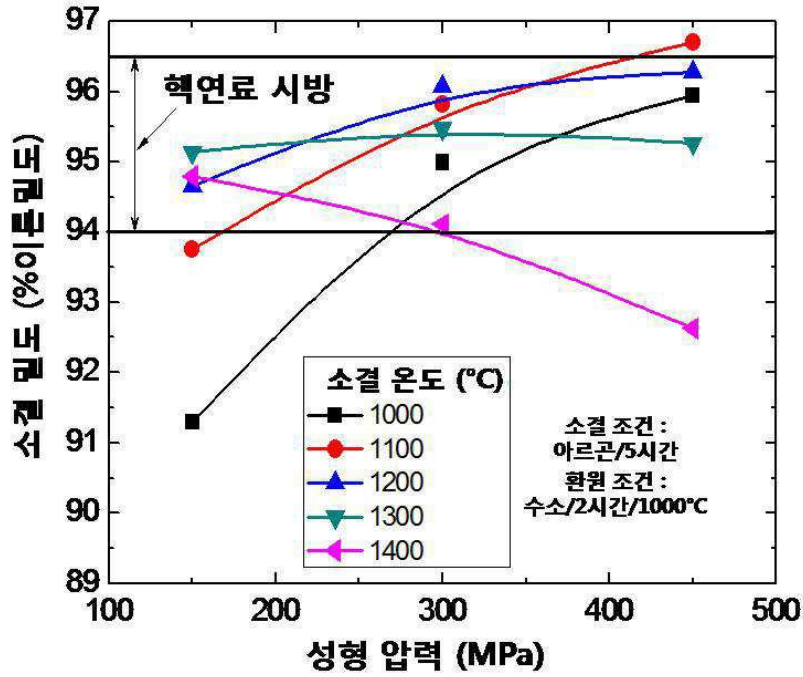
도면4



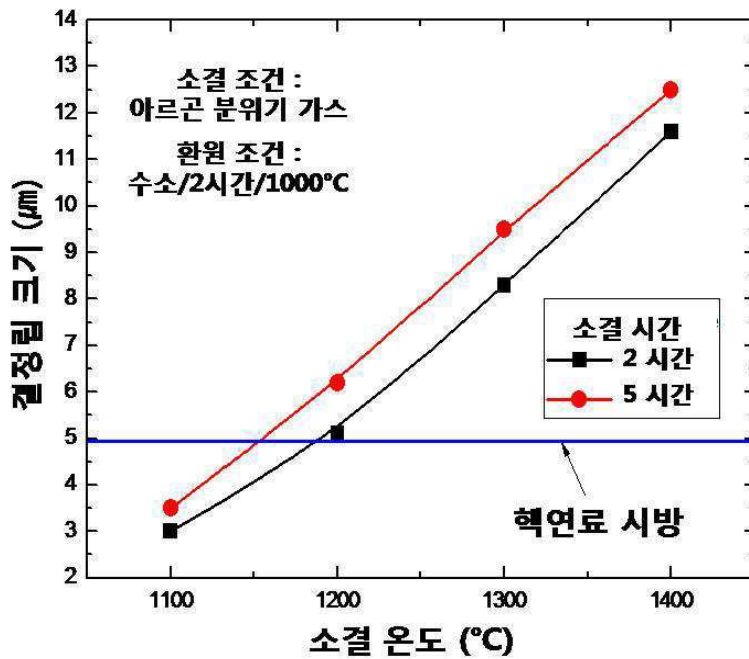
도면5



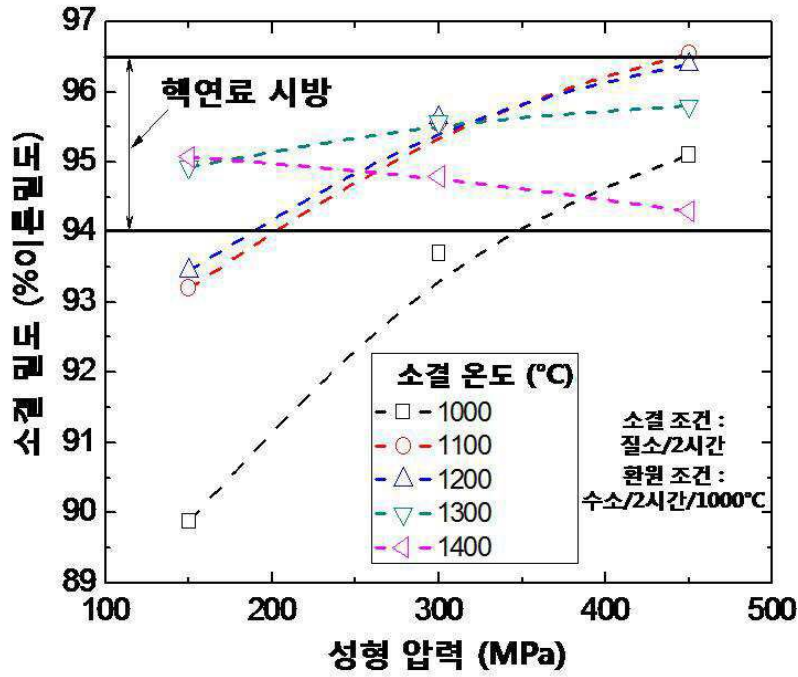
도면6



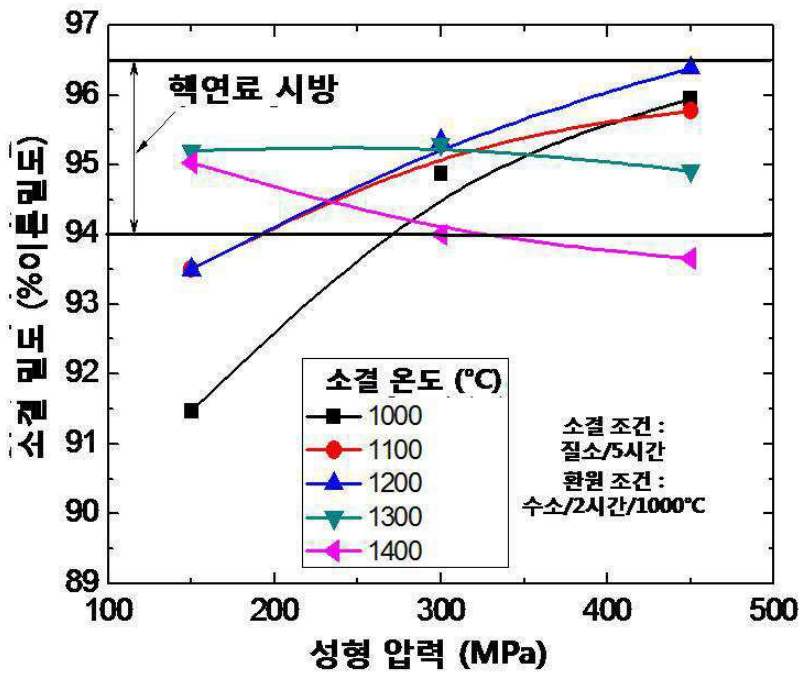
도면7



도면8



도면9



도면10

