

2000 추계학술발표회 논문집

한국원자력학회

소결밀도변화에 따른  $\text{UO}_2\text{-5wt}\%\text{CeO}_2$  소결체의 크립거동  
The Effect of Density Change on the Creep Behavior of  
 $\text{UO}_2\text{-5wt}\%\text{CeO}_2$  Sintered Pellet

나상호, 김시형, 정창용, 김한수, 이상철, 이영우

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

혼합산화물인  $\text{UO}_2\text{-5wt}\%\text{CeO}_2$  펠렛의 밀도변화에 따른 크립변형거동을 조사하였다. 소결밀도가 증가할수록 정상상태 크립변형속도는 감소하는 경향을 보여준다. 그렇지만, 밀도에 관계없이 천이 응력은 약 56 MPa 로 나타났으며, 천이응력미만의 응력구간에서 기울기는 약 1.51, 천이응력보다 큰 응력구간에서는 약 5.08 로 나타났다. 일정 응력 (16.6MPa) 하에서 95%T.D. 의  $\text{UO}_2\text{-5wt}\%\text{CeO}_2$  의 크립활성화에너지는 약 131kcal/mol 로 구해졌다.

Abstract

The effect of density change on the creep behavior of  $\text{UO}_2\text{-5wt}\%\text{CeO}_2$  sintered pellet has been investigated. The steady-state creep rate decreased as the sintered density increased. However, regardless of sintered density, the transition stress is observed at about 56MPa. The slope is about 1.51 and about 5.08 in the lower and higher stress range than the transition stress, respectively. Under the constant stress(16.6MPa), the creep activation energy of 95%T.D.  $\text{UO}_2\text{-5wt}\%\text{CeO}_2$  is calculated about 131kcal/mol.

1. 서 론

원자로 가동중 원자로내의 산화물 핵연료는 다양한 열생성과 연료내에서의 핵분열생성물의

축적 등으로 내부응력이 생성된다. 이러한 응력의 존재는 연료봉을 취화시켜 균열을 생성시키거나 소성변형을 야기시킨다. 일반적으로 세라믹재료는 순간적인 소성이 거의 없으므로 대부분의 소성변형은 고온에서 크립을 통하여 일어난다. 이러한 이유로 많은 크립연구가 산화물 핵연료를 대상으로 수행되어 왔다. 산화물 핵연료중에서 이산화 우라늄은 단일연료 및 혼합연료(mixed oxide)로 현재 원자력 발전용으로 가장 많이 사용되고 있다.

일반적으로 산화물 핵연료의 크립특성은 O/M 비, 밀도, 결정립 크기, 시험온도, 작용응력 그리고 첨가제 등의 변수에 영향을 받으며, 이러한 변수의 변화는 크립의 율속기구에 관여하게 되어 기계적 변형거동을 크게 변화시킨다[1-6]. 산화물연료의 크립거동에서 대부분의 실험데이터는 다음과 같은 Arrhenius 식으로 나타낼 수 있다.

$$\dot{\epsilon} = A\sigma^n \exp(-Q/RT)$$

여기서  $\dot{\epsilon}$  은 크립속도, A 는 미세구조에 결정되는 재료변수,  $\sigma$  는 응력, n 은 응력지수, Q 는 활성화에너지, R 은 기체상수 그리고 T 는 절대온도이다.

본 실험에서는 경수로용 혼합산화물 [(U,Pu)O<sub>2</sub>] 대신에 이와 고온 열적 성질이 유사한 모의 혼합산화물인 UO<sub>2</sub>-5wt%CeO<sub>2</sub> 를 사용하여 온도, 응력 그리고 밀도변화에 따른 크립변형거동을 조사하였다.

## 2. 실험 방법

### 1) 시료준비

ex-DC 감손 UO<sub>2</sub> 분말에 CeO<sub>2</sub> 분말 5wt%를 첨가하여 Tubular mixer에서 2시간 혼합한 후, attrition milling을 1회와 8회 하였다. 유압프레스를 사용하여 300MPa 의 성형압력으로 제조한 성형체는 수소분위기하에서 온도 1973K 에서 6 시간 소결하였다. 1회 밀링한 시료의 소결밀도는 약 95%T.D., 8회 밀링한 시료의 소결밀도는 약 98%T.D. 이다.

### 2) 실험방법

상기 조건에서 제조된 소결체를 압축크립시험기(Unitherm TM 9607, Anter Corp.)를 이용하여 수소분위기하에서 온도(1773-1973K) 에서 응력(4-90MPa) 을 변화시켜 정상상태 크립변형속도를 구하였다. 압축크립시험은 원자로 가동조건하에서 핵분열생성물 팽창과 열팽창차이가 피복관과 연료의 억제력에 반하는 반경방향의 응력성분을 초래하므로 이와 가장 모사한 시험조건이다. 각각의 시험에서 정상상태 크립변형속도,  $\dot{\epsilon}$ , 는 다음 식을 이용하여 계산하였다.

$$\dot{\epsilon} = \frac{\Delta L/t}{L}$$

여기서  $L$  은 초기 시료길이,  $\Delta L$  은  $t$  시간 이후의 시료길이 변화, 그리고  $t$  는 시험시간이다.

### 3. 결과 및 토의

#### 1) 온도 및 응력변화에 따른 크립변형속도

그림 1에 이론 소결밀도가 95% 인  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체의 환원분위기하에서 온도 및 응력을 변화시켜 정상상태 크립변형속도를 구하였다.

그림에서 보는 바와 같이 온도가 증가할수록 동일한 응력조건하에서 정상상태 크립변형속도는 증가하는 경향을 보여준다. 또한 응력이 증가할수록 시험온도에 관계없이 정상상태 크립변형속도는 증가하는 경향을 보여준다. 이와 같은 경향은 일반적인 것으로  $UO_2$ [7],  $UO_2-3.25wt\%CeO_2$ [8] 에서도 유사한 경향을 보여준다.

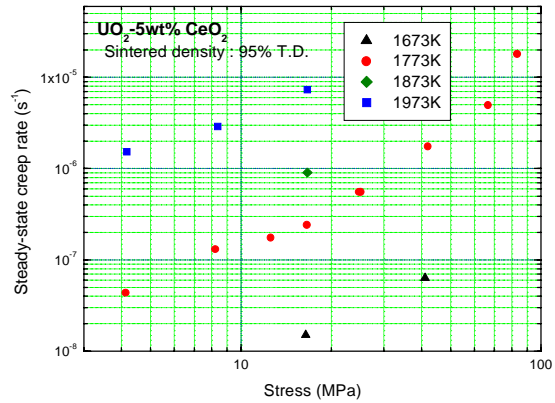


그림 1. 온도에 따른 정상상태 크립변형속도

#### 2) 크립활성화에너지

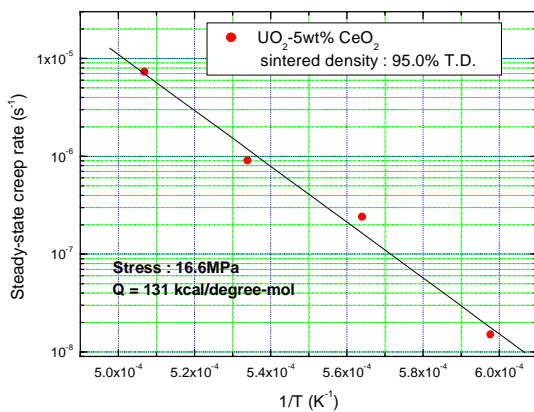


그림 2,  $UO_2-5wt\%CeO_2$  의 활성화에너지 크립속도를 감소시키고 크립활성화에너지를 증가시키는 것으로 판단된다.

그림 2에 이론 소결밀도가 95% 인  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체를 일정 응력 16.6MPa 하에서 온도변화에 따른 정상상태 크립변형속도를 도시하였으며, 크립활성화에너지는 약 131kcal/mol 로 구해졌다. 이 값은 순수  $UO_2$  (밀도 ; 98%T.D.) 의 94kcal/mol 이나  $UO_2-3.25wt\%(98\%T.D.)$  의 110kcal/mol[9] 보다 크게 나타났다. 결과적으로 순수  $UO_2$  에  $CeO_2$  의 첨가함량이 증가할수록 크립활성화에너지는 증가하는 경향을 보여준다. 이는  $Ce^{+4}$  가  $Ce^{+3}$  으로 되면서 우라늄확산계수를 감소시

### 3) 1773K에서 밀도변화에 따른 크립변형속도

그림 3에 동일온도(온도 ; 1773K) 조건에서 밀도변화(95와 98%T.D.)에 따른 정상상태 크립변형속도를 나타냈다. 그림에서 보는 바와 같이 밀도가 증가할수록 정상상태 크립변형속도는 감소하는 경향을 보여준다. 이론밀도가 95%인 시료에서 기울기 즉,  $n$ (응력지수) 값이 변하는 응력인 천이응력,  $\sigma_t$ 가 존재함을 보여준다. 천이응력은 약 56 MPa로 나타났으며, 천이응력미만의 응력구간에서 기울기는 약 1.51, 천이응력보다 큰 응력구간에서는 약 5.08로 나타났다. 결과적으로 작용응력이 천이응력

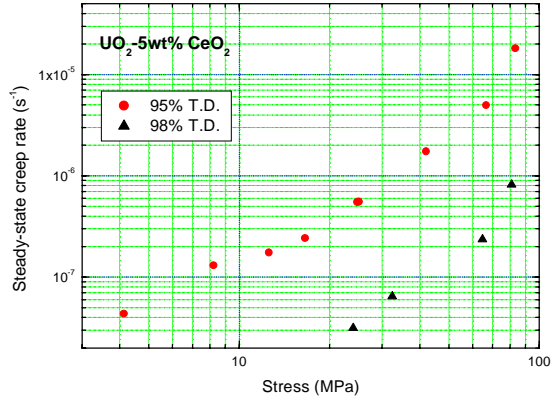


그림 3. 밀도변화에 따른 정상상태 크립변형속도 (밀도 : 95, 98%T.D., 온도 : 1773K)

보다 작은 응력구간( $\sigma < \sigma_t$ )에서는 크립변형에 대한 주변형기구가 확산크립, 그리고 작용응력이 천이응력보다 큰 응력구간( $\sigma > \sigma_t$ )에서는 확산제어에 의한 전위크립기구가 지배적인 것으로 사료된다. 또한, 이론밀도가 98%인 소결체에서도 이와 유사한 경향을 보일 것으로 예상되며, 천이응력은 밀도에 그다지 영향을 받지 않는 것으로 추측된다. 이들에 대한 상세분석은 좀 더 많은 실험데이터가 필요할 것으로 판단되어, 이에 대한 추가실험이 요구된다.

### 4. 결론

UO<sub>2</sub>-5wt%CeO<sub>2</sub> 소결체의 밀도(95와 98%T.D.)를 변화시켜 응력(4-90MPa) 및 온도(1773-1973K)에 따른 환원분위기하에서 압축크립시험을 수행하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 시험온도 및 작용응력이 증가할수록 정상상태 크립변형속도는 증가하는 경향을 보였다. 이는 순수 UO<sub>2</sub> 및 UO<sub>2</sub>에 CeO<sub>2</sub> 첨가함량을 증가시켜도 유사한 경향을 보이는 것으로 나타났다.
- 2) UO<sub>2</sub>-5wt%CeO<sub>2</sub> 소결체(95%T.D.)를 일정 응력 16.6MPa 하에서 크립활성화에너지는 약 131kcal/mol로 구해졌다. 이 값은 순수 UO<sub>2</sub>(밀도 ; 98%T.D.)의 94kcal/mol이나 UO<sub>2</sub>-3.25wt%(98%T.D.)의 110kcal/mol보다 크게 나타났다. 결과적으로 CeO<sub>2</sub> 함량이 증가할수록 크립활성화에너지는 증가하는 것으로 사료된다.
- 3) 밀도가 증가할수록 정상상태 크립변형속도는 감소하는 경향을 보여준다. 밀도에 관계없이 천이응력은 약 56 MPa로 나타났으며, 천이응력미만의 응력구간에서 기울기는 약 1.51, 천이응력보다 큰 응력구간에서는 약 5.08로 나타났다.

## Acknowledgement

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었음.

## 참고 문헌

- [1] P.E. Bohaboy, R.R. Asamoto and A.E. Conti, GEAP-10054(1969)
- [2] F.A. Mohamed and M.S. Soliman, Mater. Sci. Engng., 53(1982)185
- [3] M.S. Seltzer, A.H. Clauer and B.A. Wilcox, J. Nucl. Mater., 44(1972)331
- [4] B. Burton and G.L. Reynolds, Acta Metall., 21(1973)1073
- [5] T.E. Chung and T.J. Davies, Acta Metall., 27(1979)627
- [6] R.A. Wolfe and S.I. Kaufman, WAPD-TM-587(1967)
- [7] 나상호 등, '98 추계학술발표회, p.263, 한국원자력학회
- [8] 나상호 등, '97 추계학술발표회, p.49, 한국원자력학회
- [9] 나상호 등, '98 춘계학술발표회, p.181, 한국원자력학회