

‘98 추계학술발표회 논문집

한국원자력학회

소결밀도가 UO₂ 크립에 미치는 영향
Effect of Sintered Density on UO₂ Creep

나상호, 김시형, 정창용, 이영우, 손동성

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

ex-DC UO₂ 소결체를 환원분위기하에서 온도(1773K, 1973K)와 소결밀도(10.45g/cc, 10.53g/cc)를 변화시켜 응력(5-70MPa)에 따른 압축크립변형거동을 조사하였다. 온도와 밀도에 관계없이 크립거동이 다르게 나타나는 천이응력, σ_t 가 존재하며, 이 천이응력은 온도가 증가할수록 감소하는 경향을 나타내었다. 응력지수는 $\sigma < \sigma_t$ 응력구간과 $\sigma > \sigma_t$ 응력구간에서 각각 약 1.0-1.3 과 2.5-4.6 으로 계산되었으며, 크립활성화에너지는 이러한 응력구간에서 각각 94.2kcal/mol 과 87.1kcal/mol 로 나타났다.

Abstract

Compressive creep deformation behavior of ex-DC UO₂ pellet was studied at two different temperatures(1773, 1973K) and also for two different densities(10.45, 10.53 g/cc) under a reducing atmosphere. Regardless of temperature and density, a transition stress, σ_t , at which the pellet shows different creep behavior, exists in the test stress range, and this transition stress decreases as the temperature increases. Stress exponents are calculated to be about 1.0-1.3 and 2.5-4.6 in the $\sigma < \sigma_t$ and $\sigma >$

σ_i stress ranges, respectively. Creep activation energies at the same stress ranges are estimated to be 94.2kcal/mol and 87.1kcal/mol.

1. 서론

산화물핵연료인 UO_2 는 현재 원자로내에서 가장 많이 사용되고 있는 연료이다. 일반적으로 산화물 핵연료의 크립특성은 핵연료의 성능을 결정하는 데 영향을 미치는 중요한 인자중의 하나로 알려져 있다. 산화물핵연료의 크립특성은 O/M 비, 밀도, 결정립 크기, 시험온도, 그리고 작용응력 등의 변수에 영향을 받으며, 정상상태 크립변형속도, $\dot{\epsilon}$ 는 다음과 같은 Arrhenius 식으로 나타낼 수 있다[1-7].

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

여기서 A 는 미세구조에 결정되는 재료변수, σ 는 작용응력, n 은 응력지수, Q 는 활성화에너지, R 은 기체상수 그리고 T 는 절대온도이다.

일반적으로 산화물핵연료의 크립거동은 작용응력에 따라 2 개의 다른 거동을 나타내는 것으로 보고되고 있다. 즉 크립거동이 변하는 응력인 천이응력(transition stress), σ_i 보다 작은 응력구간($\sigma < \sigma_i$)에서는 n 값이 거의 1 로[3-7], 이러한 응력구간에서는 Nabarro-Herring 크립[8]이나 Coble 크립[9]과정이 주변형기구로 보고되고 있다. 반면에 천이응력 보다 큰 응력구간($\sigma > \sigma_i$)에서는 n 값이 4~5 이며, 이러한 응력구간에서는 확산제어 전위크립(diffusion-controlled dislocation creep)과정이 주변형기구로 알려져 있다[1-2].

본 실험에서는 2 개의 다른 밀도를 갖는 UO_2 소결체에 대하여 크립시험온도 및 작용응력을 변화시켜 UO_2 의 크립거동을 조사하였다.

2. 실험 방법

1) 시료준비

시료는 ex-DC 천연 UO_2 분말을 사용하였으며, 성형체는 uniaxial compacting press 를 사용하여 제조하였으며, 성형압력(300, 500MPa)을 변화시켜 소결밀도를 조정하였다. 제조된 성형체는 수소분위기하에서 1973K 에서 4 시간 소결하였다. Table 1 에 제조된 소결체의 특성을 수록하였다.

2) 실험방법

각각의 조건에서 만들어진 소결체를 압축크립시험기(Unitherm TM 9607, Anter Corp.)를 이용하여 수소분위기하에서 온도(1623-1973K)와 응력(5-90MPa)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, ΔL 은 t 시간 이후의 시료길이 변화, 그리고 t 는 시험시간이다.

3. 결과 및 토의

1) 온도변화에 따른 효과

그림 1은 UO_2 소결체(밀도 : 10.53 g/cc)를 온도(1773K, 1973K)와 응력(5-60MPa) 변화에 따른 정상상태 크립변형속도를 도시한 것이다. 그림에서 보는 바와 같이 온도와 응력이 증가할수록 정상상태 크립변형속도는 증가하는 경향을 보여준다. 또한 온도가 증가할수록 천이응력은 감소하는 경향을 보여준다. 즉 천이응력, σ_i 는 1773K 와 1973K 에서 각각 약 29.5MPa 와 12.7MPa 로 나타났다. 천이응력보다 작은 응력구간($\sigma < \sigma_i$)에서 응력지수, n 값은 대략 1.1~1.3(1773K ; 1.30, 1973K ; 1.09)로 이 응력구간에서 주변형기구는 Nabarro-Herring 또는 Coble 크립인 것으로 사료된다. 반면에, 천이응력보다 큰 응력구간($\sigma > \sigma_i$)에서 n 값은 1773K 와 1973K 에서 각각 4.6 과 2.5 로 나타났으며, 이는 이 응력구간에서 크립변형이 확산제어에 율속되는 것으로 사료된다. 한편 온도가 증가할수록 응력지수값이 작아지는 이유는 이러한 두 변형기구외에 입계활주에 의한 변형기구가 크립변형에 점점 더 영향을 미치는 것으로 판단된다.

천이응력보다 작은 응력구간($\sigma < \sigma_i$) 및 큰 응력구간($\sigma > \sigma_i$) 크립활성화에너지, Q 를 측정 한 결과 각각 약 94.2 kcal/mol 과 87.1 kcal/mol 로 나타났다. 저응력구간($\sigma < \sigma_i$)에서

크립활성화에너지는 다른 저자들의 결과[1]와 잘 일치하지만 고응력구간($\sigma > \sigma_i$)에서는 다른 저자들의 실험결과보다 크게 나타났다. 그렇지만 응력지수가 증가할수록 크립활성화에너지가 감소하는 경향은 잘 일치한다.

2) 밀도변화에 따른 효과

그림 2는 크립시험온도 1773K 에서 소결밀도를 변화시켜 응력에 따른 정상상태 크립변형속도를 도시한 것이다. 그림에서 보는 바와 같이 밀도가 큰 경우 작은 경우보다 동일 응력조건하에서 정상상태 크립변형속도는 감소하는 경향을 보여준다. 한편, 응력지수값은 밀도변화에 관계없이 거의 동일한 것으로 나타났다. 따라서 밀도는 응력지수에 그다지 영향을 미치지 않으며 다만 크립변형속도에만 영향을 미치는 것으로 사료된다.

4. 결론

ex-DC 천연 UO₂ 를 사용하여 수소분위기하에서 압축크립시험으로 온도와 밀도를 변화시켜 응력에 따른 정상상태 크립변형속도를 측정하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 동일 응력조건하에서 시험온도증가에 따라 정상상태 크립변형속도는 증가하는 경향을 보여준다. 또한 소결밀도가 증가하면 정상상태 크립변형속도는 감소하는 경향을 보여준다.
- 2) 소결밀도가 10.53 (g/cc) 인 경우 천이응력, σ_i 는 1773K 온도에서는 29.5MPa, 1973K 온도에서는 12.7MPa 로 나타났다.
- 3) 응력지수는 1773K 인 경우 천이응력보다 낮은 응력구간과 큰 응력구간에서는 각각 1.1 과 2.5 로 나타났다. 반면에 1973K 인 경우 응력지수는 각각 1.3 과 4.6 으로 나타났다.
- 4) 크립활성화에너지는 응력이 증가할수록 감소하는 경향을 나타냈다. 즉 천이응력보다 낮은 응력구간과 큰 응력구간에서 크립활성화에너지는 각각 94.2 와 87.1 kcal/mol 로 나타났다.

Acknowledgement

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었음.

참고 문헌

- [1] P.E. Bohaboy, R.R. Asamato 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] W.R. Cannon and T.G. Langdon, J. Nucl. Mater., 82(1979)22
- [8] C. Herring, J. Appl. Phys. 21(1950)437
- [9] R.L. Coble, J. Appl. Phys., 34(6)(1963)1679

Table 1. 소결체 특성

성형압력 (MPa)	성형밀도 (g/cc)	소결밀도		결정립크기 (μm)
		(g/cc)	% T.D.	
300	5.7	10.45	95.35	8~9
500	6.1	10.53	96.08	

만 실험데이터상의 불확실성 때문에 몇 개 만이 특정 크립기구와 관찰된 거동간의 관계를 확실하게 수립하는 것이 가능하였다.

산화물 연료는 원자로연료의 중요성 때문에 산화물 연료의 기계적 특성 특히 크립특성을 구명하는데 많은 연구가 수행되어 왔다. 일반적으로 산화물 연료의 크립특성은 O/M 비, 밀도, 결정립 크기, 시험온도, 작용응력 그리고 첨가제 등의 변수에 영향을 받는 것으로 보고되고 있다.

산화물 핵연료의 정상상태 크립변형속도, $\dot{\epsilon}$, 는 일반적으로 다음과 같은 Arrhenius 형태로 나타낸다.

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

여기서 A 는 상수, n 은 응력지수, Q 는 크립활성화에너지, R 은 기체상수 그리고 T 는 절대온도이다.

본 실험에서는 경수로용 혼합산화물 [(U,Pu)O₂] 대신에 이와 기계적 성질이 유사한 모의 혼합산화물인 (U,Ce)O₂ 를 사용하여 일정온도(1773K)에서 dopant 종류 및 첨가량 그리고 응력변화에 따른 크립변형거동을 조사하였다.

네 번째로 (U,Ce)O₂-0.1wt%Li₂O 에 SiO₂ 를 0.005wt% 첨가한 경우 정상상태 크립변형속도는 (U,Ce)O₂ 에 비해서는 증가하였지만 (U,Ce)O₂-0.1wt%Li₂O 와 (U,Ce)O₂-0.005wt%SiO₂ 에 비해서는 감소하는 것으로 나타났다. (U,Ce)O₂-0.1wt%Li₂O 에 비해 감소한 원인은 결정립 크기는 감소하므로 정상상태 크립변형속도가 증가하여야 하지만 소결밀도 감소가 더 큰 영향을 미쳐 감소한 원인으로 사료된다. 또한 (U,Ce)O₂-0.005wt%SiO₂ 에 비해 감소한 원인은 이는 4원계 산화물의 복합적인 요인에 의해 기인되는 것으로 추측된다.

조성	File No.	Stress (MPa)	Creep rate (s ⁻¹)	조성	File No.	Stress (MPa)	Creep rate (s ⁻¹)
UO ₂ -3.25wt%CeO ₂	Ce971117	50.44	3.53 × 10 ⁻⁸	UO ₂ -3.25w/oCeO ₂ -0.1w/oLi ₂ O	Ce970625	24.68	2.92 × 10 ⁻⁷
	Ce971110	67.27	6.45 × 10 ⁻⁸		Ce970618	49.54	5.46 × 10 ⁻⁷
	Ce971126	75.64	1.61 × 10 ⁻⁷		Ce970710	61.69	1.49 × 10 ⁻⁶
	Ce971205	79.80	1.515 × 10 ⁻⁷		Ce970623	74.38	1.82 × 10 ⁻⁶
	Ce971105	84.85	1.45 × 10 ⁻⁷		Ce970624	99.70	3.40 × 10 ⁻⁵
	Ce971201	92.38	2.15 × 10 ⁻⁷	Ce970709	124.11	9.931 × 10 ⁻⁶	
	Ce971107	100.90	3.31 × 10 ⁻⁷	UO ₂ -3.25w/oCeO ₂ -0.005w/oSiO ₂	CeSi0923	41.51	2.32 × 10 ⁻⁷
	Ce971203	117.67	1.14 × 10 ⁻⁶		CeSi0919	50.17	3.98 × 10 ⁻⁷
	Ce971204	134.37	3.55 × 10 ⁻⁶		CeSi0922	66.69	8.94 × 10 ⁻⁷
					CeSi0918	83.55	6.77 × 10 ⁻⁶
UO ₂ -3.25w/oCeO ₂ -0.1w/oLi ₂ O -0.005w/oSiO ₂	UCL5Si4	49.76	1.38 × 10 ⁻⁷	UO ₂ -3.25w/oCeO ₂ -0.02w/oSiO ₂	UCL5Si4	49.76	1.38 × 10 ⁻⁷
	UCL5Si3	66.41	2.29 × 10 ⁻⁷		UCL5Si3	66.41	2.29 × 10 ⁻⁷

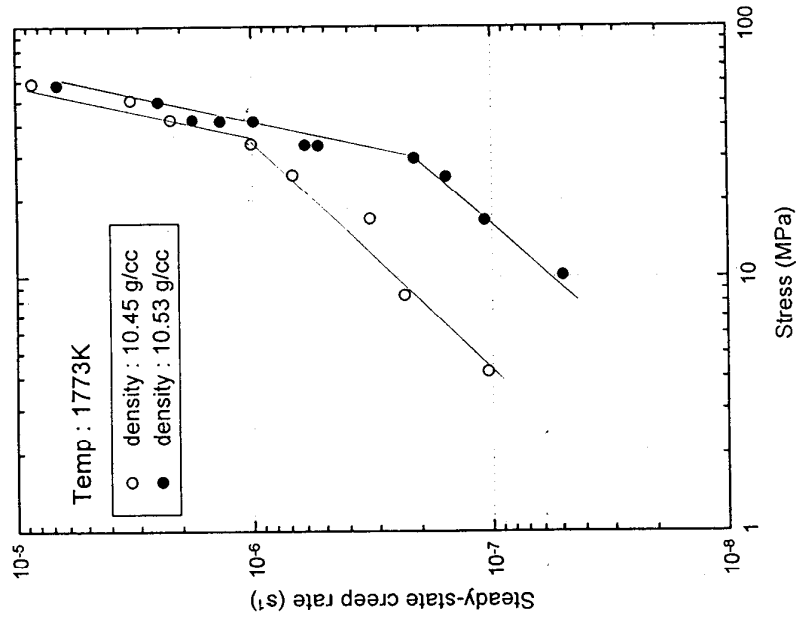


그림 2. 1773K 에서 밀도변화에 따른 크립변형속도

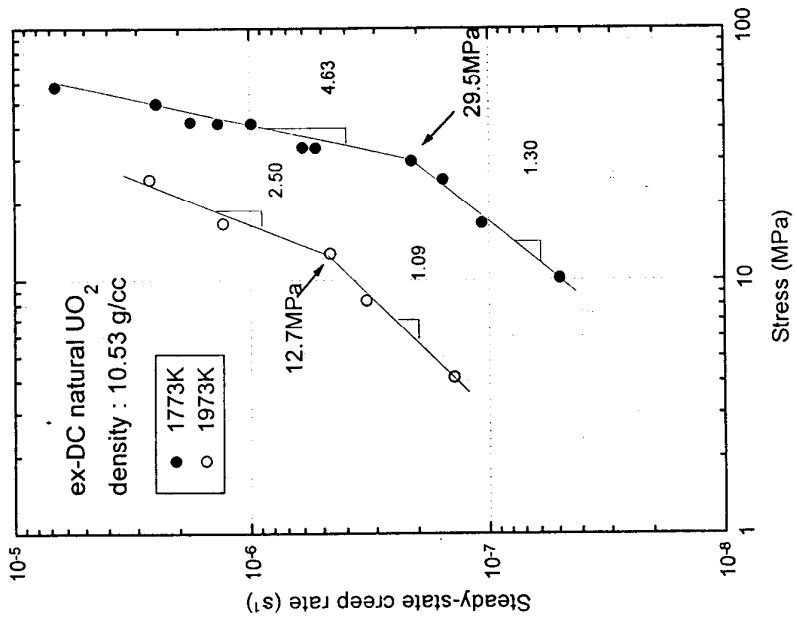


그림 1. 온도 및 밀도의 변화에 따른 크립변형속도