

## 공진 초음파 분광법을 이용한 모의 DUPIC 핵연료의 탄성계수 측정

### Elastic Constants Measurement of Simulated DUPIC Fuel by Resonant Ultrasound Spectroscopy

류호진, 강권호, 양명승, 정현규, 정용무

한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

#### 요 약

DUPIC 핵연료의 성능해석을 위해 기계적 거동을 분석에 필요한 핵연료 소결체의 탄성계수를 조성별, 밀도별, 연소도별로 측정하였다. 본 연구에서는 공진주파수법의 원리를 기초로 하여 직육면체 시편의 1회 측정으로 모든 결정방향의 탄성계수를 구할 수 있는 공진 초음파 분광법을 사용하여  $UO_2$  핵연료 및 모의 DUPIC 핵연료의 탄성계수를 측정하였다. 공진 초음파 분광법에 의해 측정된  $UO_2$ 의 탄성계수는 MATPRO-11의 값과 일치하였으며 모의 DUPIC 핵연료의 Young률은 금속석출물, 산화물석출물, 고용원소의 존재로  $UO_2$ 보다 높게 측정되었다. 모의 DUPIC 핵연료의 Young률은 기공도(P)에 따라 상온에서  $E = 231.4 - 657.8 P$  (GPa)의 관계식을 가졌으며 모의 DUPIC 핵연료의 Young률은 연소도가 증가함에 따라 증가하였다.

#### Abstract

The elastic constants of simulated DUPIC fuel with varying composition, density and burnup were measured in order to analyze the mechanical properties for performance evaluation of DUPIC fuel. Resonant ultrasound spectroscopy which can determine all elastic moduli with one set of measurements for a rectangular parallelepiped sample was employed to measure the elastic constants of  $UO_2$  and simulated DUPIC fuel. Young's modulus of  $UO_2$  determined by RUS was close to the reported value of database reference (MATPRO-11) and simulated DUPIC fuel showed higher value of Young's modulus than  $UO_2$  due to the presence of metallic precipitates and oxide precipitates and solid solution elements. The correlation between Young's modulus and porosity of simulated DUPIC fuel was found to be  $231.4 - 657.8 P$  (GPa) at room temperature and Young's modulus increased with burnup.

#### 1. 서 론

DUPIC(Direct Use of Spent PWR Fuel In CANDU Reactors) 핵연료는 경수로에서 방출된 사용후핵연료에 남아있는 1.5%의 핵분열성 물질( $U^{235}$ ,  $Pu^{239}$ )을 중수로에 재사용하여 사용후핵연료의 처분 문제를 해결하고자 하는 핵연료주기 기술로서, 핵확산저항성에 부합되는 신형 핵연료이다[1]. 모의 DUPIC 핵연료는 DUPIC 핵연료의 소결거동 및 물성을 분석하기 위하여 사용후핵연료에 존

재하는 핵분열 생성물인 Zr, Mo, Nd, Ru, Ce 등 15종의 원소들을 천연  $UO_2$  에 첨가하여 밀링, 압분, 소결 공정으로 제조된다[2]. 본 연구에서는 모의 DUPIC 핵연료의 탄성계수를 측정하고 밀도에 의한 효과와 연소도에 의한 효과를 분석하였다.

탄성계수는 탄성체가 탄성한계 내에서 가지는 응력과 변형의 비율로서 비례한계 안에서는 물체에 가한 힘과 그것에 의한 변형량은 비례관계에 있다는 Hooke's law에 의해서 표현된다[3-5]. 핵연료의 성능해석을 위해 기계적 거동을 분석할 경우 핵연료의 열팽창, 스웰링, 기체 내압, 냉각수 압력 등으로 인하여 변형 또는 응력이 발생할 경우 핵연료 소결체의 탄성계수는 응력과 변형률의 상호작용을 해석하는데 일차적으로 필요한 데이터이다[6]. CANDU 핵연료의 성능해석 코드인 ELESTRES는 핵연료 소결체의 탄성계수를 170 GPa의 기본값을 사용하고 있으며 성능코드용 핵연료 물성 데이터베이스인 MATPRO-11에서는 아래와 같은 기공도 P와 온도 T의 함수로 표현하고 있다[7,8].

$$233.4 \cdot [1 - 2.752 P] \cdot [1 - 1.0915 \times 10^{-4} T] \quad (\text{GPa}) \quad (1)$$

등방성(isotropic) 물체의 경우, Young률(Young's modulus), Poisson 비(Poisson's ratio), 전단탄성계수(shear modulus), 체적탄성계수(bulk modulus) 4개의 계수 중 2개만이 독립변수이며, 전단탄성계수 G와 체적탄성계수 K는 Young률 E와 Poisson비  $\nu$ 를 사용하여 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$G = \frac{E}{2(1 + \nu)} \quad (2)$$

$$K = \frac{E}{3(1 - 2\nu)} \quad (3)$$

본 연구에서는 핵연료 소결체가 분말의 소결로 제조된 다결정체이므로 등방성 재료로 가정하고 2개의 탄성계수, 즉 Young률과 Poisson비를 측정하고자 하였다.

탄성계수의 측정법에는 인장시험, 압축시험, 굽힘시험을 통해서 얻을 수 있는 응력과 변형률의 상관관계에서 정적 탄성계수를 구하는 것과 재료 내의 음파속도 및 공진주파수를 구하여 동적 탄성계수를 측정하는 방법이 있다. 이중 공진주파수법은 시편을 파괴하지 않으며 측정값의 오차가 보다 적은 것으로 알려져 있어 탄성계수의 표준 측정법으로 인정되고 있으나 기존의 공진주파수 측정법에 의하면, 종파를 사용하여 Young률을 구하고, 비틀림파를 이용하여 전단탄성계수를 구해야 하는 단점이 있다. 본 연구에서는 공진주파수법의 원리를 기초로 하여 직육면체 시편의 1회 측정으로 모든 결정방향의 탄성계수를 구할 수 있는 공진초음파분광법 (Resonant Ultrasound Spectroscopy)을 사용하여  $UO_2$  핵연료 및 모의 DUPIC 핵연료의 탄성계수를 측정하여 그 결과를 분석하였다[9,10].

## 2. 실험 방법

본 연구에서 제조된 모의 DUPIC 핵연료의 조성은 ORIGEN-2 코드를 이용하여 계산된 결과를 기준으로 주요 핵분열생성물 모사 원소를 천연  $UO_2$ 에 첨가하여 기준 조성, 10000 MWd/tHE, 20000 MWd/tHE에 해당되도록 분말들을 혼합하였다. 균질한 혼합을 위해 attritor에서 메탄올을 용매로 한 습식 밀링을 200 rpm, ball-to-powder 무게비는 4:1의 조건으로 2시간 동안 수행하고, 40°C로 유지된 오븐에서 약 5일간 건조시켰다. 건조된 모의 DUPIC 핵연료 분말은 35번 sieve를 통과시킨 후 Tubular mixer에서 4시간 동안 혼합시켰으며, 0.2 wt%의 Zn stearate를 첨가시킨 후 다시 30분간 혼합하였다. 이와 같이 처리된 분말은 1 ~ 4 ton/cm<sup>2</sup>의 압력으로 직경 10mm의 압분체로 성형하여 1700°C에서 4시간동안 100%의 수소분위기로 소결하였다. 소결된  $UO_2$  및 모의 사용후핵연료는 수침법을 이용하여 밀도를 측정하였고 공진 초음파 분광법을 이용한 탄성계수 측정

을 위해 세변의 길이가 각각 다른 직육면체로 연마되었다. 이 때 한 변의 길이는 대략 3 ~ 5 mm의 범위였다. 연마 시 시편의 직각도와 평행도를 최대한 확보하기 위해 특별히 고안된 치구를 제작하여 사용하였다.

UO<sub>2</sub> 및 모의 사용후핵연료의 공진 초음파 분광법의 측정은 한국원자력연구소의 원자력재료기술개발팀에서 1996년 구입하여 보유하고 있는 Quatrosomics, Inc. 사의 RUS 장비를 이용하였다. 공진주파수의 측정을 위해 drive transducer와 receive transducer 사이에 시편을 체적 대각선 방향으로 놓고 주파수를 100 kHz에서 1000 kHz까지 증가시키며 RUSPEC 이라는 소프트웨어를 통해 공진 주파수를 측정하였다. 측정된 데이터를 다결정 UO<sub>2</sub>의 탄성계수 데이터인 E=193GPa,  $\nu$ =0.30를 통해 계산된 초기값과 비교하여 최적 탄성계수를 추출하는 RPR 코드를 통해 RMS error 0.2% 이하, chi square 1 이하, 8차함수, 주파수 값 20개 이상 사용의 조건이 만족될 때까지 반복 계산하였다[11].

### 3. 결과 및 고찰

연소도에 따른 기공도를 구하기 위하여 Lucuta 등의 SIMFUEL 실험결과를 바탕으로 모의 DUPIC 핵연료의 연소도를 첨가원소량을 기준으로 계산하였고 그에 따른 이론밀도를 계산하였다 [33]. Fig. 1과 같이 Lucuta 의 SIMFUEL(3at%, 8at%)에 대한 첨가원소량을 일차식으로 근사하여 연소도의 함수로 나타내었고 또한 Lucuta등이 제시한 이론 밀도 데이터를 일차식으로 근사하여 이론밀도 역시 연소도의 함수로 나타내었다[12,13]. 이 때 at% 연소도는 MWd/tU으로 1 at% 당 9375 MWd/tU으로 환산하였다. 그결과 핵분열생성물 함량(F.P.)과 이론밀도 (T.D.)에 대해 아래와 같이 연소도(BU, MWd/tHE)의 함수로 표현되는 환산식을 얻을 수 있었다.

$$F.P. (wt\%) = -0.008 + 8.3378 \times 10^{-5} BU \quad (4)$$

$$T.D. (g/cm^3) = 10.9585 - 5.1918 \times 10^{-6} BU \quad (5)$$

본 연구에서 첨가된 핵분열 생성물 원소의 함량을 SIMFUEL에 해당되는 연소도로 나타낸 결과 기준 조성의 경우 28209 MWd/tHE 이었으며, 또한 이에 해당되는 이론 밀도는 10.789 g/cm<sup>3</sup>이었으며, 10000 MWd/tHE와 20000 MWd/tHE에 해당되는 이론밀도는 각각 10.746 g/cm<sup>3</sup>과 10.692 g/cm<sup>3</sup> 이었다.

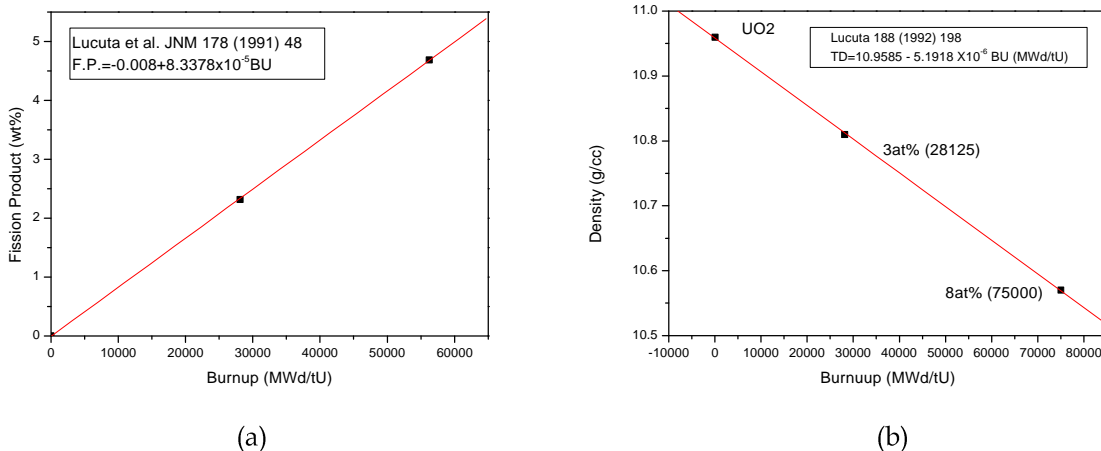


Fig. 1. The amount of fission product in simulated spent fuel (a) and the theoretical density of simulated spent fuel (b).

RUS를 이용한 탄성계수 측정은 천연우라늄과 모의 DUPIC 핵연료를 비교하는 조성별 비교시험, 기준 조성의 모의 DUPIC 핵연료의 밀도 변화에 따른 밀도별 비교시험, 모의 DUPIC 핵연료의 연소도 변화에 따른 연소도별 비교시험으로 나뉘어 수행되었다.

Table 1, 2, 3에 표시된 것과 같이 모의 핵연료 소결체의 밀도는 92.8%에서 95.7%의 범위에서 변화되었으며, 직육면체 시편의 크기는 2.5 mm에서 5.0mm 사이의 범위에서 세변의 길이가 각각 다르도록 변화되었다.

10.385 g/cm<sup>3</sup>의 소결밀도를 가지는 천연 UO<sub>2</sub>에 대한 RUS 실험 결과, Table 4에 기록된 바와 같이 194.1 GPa의 Young률을 얻을 수 있었으며 이는 MATPRO-11에서 제시된 식에 의한 결과인 193.8 GPa와 거의 유사한 값(오차: 0.17%)으로 RUS에 의한 탄성계수 측정이 매우 신뢰도가 높음을 알 수 있었다.

유사한 밀도를 가지는 모의 DUPIC 핵연료의 Young률을 측정된 결과 198.3 GPa의 값을 보여 모의 DUPIC 핵연료의 Young률이 UO<sub>2</sub>보다 높음을 알 수 있었다.

모의 DUPIC 핵연료의 밀도에 따른 Young률의 관계식을 얻기 위하여 밀도 변화에 따른 Young률을 일차식으로 근사한 결과 Fig. 2와 같이 UO<sub>2</sub> 보다 높은 값을 나타내는 것을 알 수 있었으며, 기공도가 증가함에 따라 Young률이 감소하는 경향을 나타내었다. UO<sub>2</sub>와 모의 DUPIC 핵연료의 기공도(P)에 따른 상온 Young률의 관계식은 아래와 같다.

$$E_{UO_2} = 225.8 - 621.4 P \text{ (GPa)} \quad (6)$$

$$E_{DUPIC} = 231.4 - 657.8 P \text{ (GPa)} \quad (7)$$

또한 연소도에 따른 모의 DUPIC 핵연료의 Young률은 Table 5에 기록되었으며 식(7)에 의해 동일한 밀도를 가지는 기준 조성의 모의 DUPIC 핵연료와 비교할 경우 고연소도의 모의 DUPIC 핵연료가 보다 높은 Young률을 나타내었다.

이와 같이 UO<sub>2</sub>보다는 모의 DUPIC 핵연료가 높은 Young률을 나타내는 것은 핵분열생성물 함량이 증가하기 때문인 것으로 분석되며, 이론적 배경에서 서술한 것과 같이 고용된 원소에 의한 고용강화 효과와 금속 석출물 및 산화물 석출물에 의한 입자강화 효과가 탄성계수를 증가시키는 것으로 판단된다.

Table 1. The sintered density and x-y-z dimensions of RUS specimen for compositional comparison.

재료	밀도	이론밀도	상대밀도	x축(mm)	y축(mm)	z축(mm)
UO <sub>2</sub>	10.395	10.96	95%	3.296	2.950	2.417
simulated DUPIC fuel	10.287	10.789	95%	3.572	2.987	2.235

Table 2. The sintered density and x-y-z dimensions of RUS specimen for compositional comparison.

재료	밀도	이론밀도	상대밀도	x축(mm)	y축(mm)	z축(mm)
simulated DUPIC fuel	9.987	10.789	92.6%	3.454	4.189	4.781
	10.149		94.1%	2.790	3.008	4.018
	10.300		95.5%	2.925	3.223	4.590

Table 3. The sintered density and x-y-z dimensions of RUS specimen for compositional comparison.

재료	밀도	이론밀도	상대밀도	x축(mm)	y축(mm)	z축(mm)
10 GWd/tU	10.079	10.746	93.8%	2.715	3.602	3.959
20 GWd/tU	9.977	10.692	93.3%	2.933	3.826	4.753

Table 4. Elastic constants of  $UO_2$  and simulated DUPIC fuel obtained from RUS.

재료	$c_{11}$	$c_{12}$	$c_{44}$	E (GPa)	$\nu$
$UO_2$	2.6997	1.2196	0.7400	194.1	0.311
simulated DUPIC fuel	3.0905	1.6137	0.7384	198.3	0.343

Table 5. Elastic constants of simulated DUPIC fuel with burnup obtained from RUS.

재료	$c_{11}$	$c_{12}$	$c_{44}$	E (GPa)	$\nu$	동일밀도 reference DUPIC
10 GWd/tU	2.7629	1.3034	0.7297	192.7	0.323	190.6
20 GWd/tU	2.8769	1.4595	0.7087	189.4	0.337	187.3

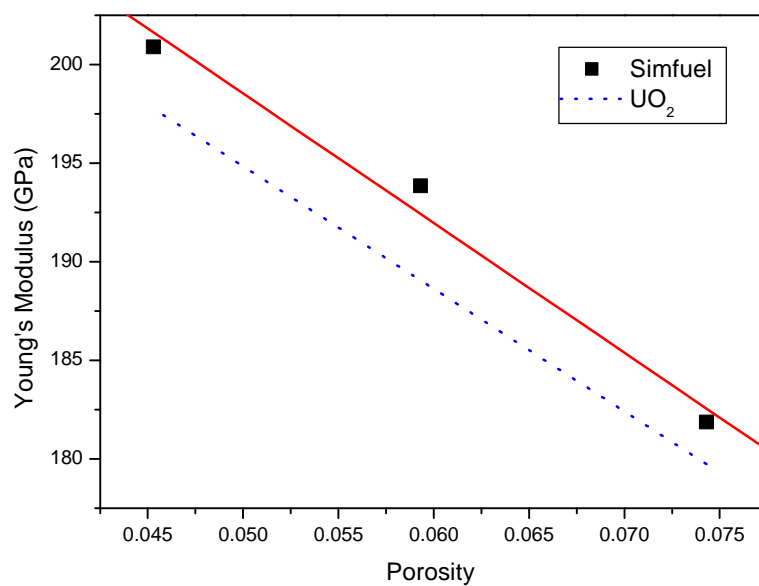


Fig. 2. Young's modulus of  $UO_2$  and simulated DUPIC fuel with porosity.

#### 4. 결 론

- 작은 직육면체 시편의 1회 측정으로 모든 결정방향의 탄성계수를 구할 수 있는 공진 초음파 분광법 (Resonant Ultrasound Spectroscopy)에 의해 핵연료의 탄성계수를 측정하는 방법을 확립하였다.
- 공진 초음파 분광법(RUS)에 의해 측정된  $UO_2$ 의 탄성계수는 문헌 상(MATPRO-11)의 값과 일치하여 측정의 신뢰성을 확보하였다.
- 모의 DUPIC fuel의 Young률은 금속석출물, 산화물석출물, 고용체의 존재로  $UO_2$ 보다 높게 측정되었다.
- 모의 DUPIC fuel의 Young률은 기공도(P)에 따라 상온에서  $E = 231.4 - 657.8 P$  (GPa)의 관계식을 가진다.
- 고연소도 모의 DUPIC fuel의 Young률은 기준 조성의 모의 DUPIC 핵연료보다 높은 값을 나타낸다.

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행된 것으로 지원에 감사드립니다.

#### Reference

1. J.S. Lee et al., Global '95, Sept. 11-14, 1995, Versailles
2. K.H. Kang et al., Metals and Materials, 6(2000)583
3. T.H. Courtney, Mechanical Behavior of Materials, McGraw-Hill Publishing Company, Singapore, 1990.
4. G.E. Dieter, Mechanical Metallurgy, McGraw-Hill Book Company, 1986.
5. S. Nemat-Nasser and M. Hori, Micromechanics, North-Holland, Amsterdam, 1993.
6. D.R. Olander, "Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements", ERDA, 1976
7. 석호천 외, ELESTRES 전산코드 사용지침 및 기술서, KAERI/TR-320/92
8. MATPRO-Version11 (edited by D.L. Hagrman and G.A. Reymann), NUREG/CR-0497, TREE-1280, R3.EG&G Idaho, Inc., Idaho Falls, ID.
9. H. Ledbetter, C. Fortunko, P. Heyliger, J. Appl. Phys., 78(1995)1542
10. A. Migliori, Physica B, 183(1993)1
11. RU Spec User's Manual.
12. P.G. Lucuta, R.A. Verrall, Hj. Matzke and B.J. Palmer, J. Nucl. Mater., 178(1991)48
13. P.G. Lucuta, Hj. Matzke, R.A. Verrall, and H.A. Tasman, J. Nucl. Mater., 188(1992)198