

'99 춘계 학술발표회 논문집  
원자력학회

**UO<sub>2</sub> 및 UO<sub>2</sub>-5wt%CeO<sub>2</sub> 소결체의 열충격 거동**  
**Thermal shock behavior of UO<sub>2</sub> and**  
**UO<sub>2</sub>-5wt%CeO<sub>2</sub> pellets**

이상철, 정창용, 김시형, 나상호, 이영우, 손동성

한국원자력 연구소

**요 약**

1700℃/4h에서 환원 소결한 UO<sub>2</sub>와 UO<sub>2</sub>-5wt%CeO<sub>2</sub> 소결체에 대해 200~1400℃의 범위에서 각 열충격 온도차(ΔT)로 열충격을 실시하고 이에따른 균열의 생성 및 전파와 기계적인 물성의 변화를 통한 열충격 저항성을 비교 관찰하였다. UO<sub>2</sub>와 UO<sub>2</sub>-5wt%CeO<sub>2</sub> 소결체 모두 ΔT=400 조건에서 부터 균열의 생성이 시작되었고, ΔT=1200 에서는 열충격 손상에 의한 시편의 파괴가 일어났다. UO<sub>2</sub> 소결체가 ΔT=800 이상의 조건에서 경도 및 파괴인성치, 파괴표면에너지(G)의 증가를 보였고, UO<sub>2</sub>-5wt% CeO<sub>2</sub>에 비해 상대적으로 높은 열충격 저항성을 나타냈다.

**Abstract**

UO<sub>2</sub> and UO<sub>2</sub>-5wt%CeO<sub>2</sub> pellets sintered in H<sub>2</sub> atmosphere at 1700℃ for 4h were compared in regard with the crack initiation and propagation and the mechanical property upon thermally shocked specimens at various quenching temperature difference(ΔT; 200~1400℃). Both of two specimens showed that the crack initiation and the

fracture by thermal shock damage started at  $\Delta T=400$  and  $\Delta T=1200$  condition respectively. The mechanical property(Hv,  $K_{IC}$ , G) of  $UO_2$  pellets increased from  $\Delta T=800$  and  $UO_2$  pellets were observed higher than  $UO_2-5wt\%CeO_2$  pellets in terms of thermal shock resistance.

## 1. 서론

현재 사용되고 있는 산화물 핵연료는 원자로 가동중에 다양한 응력을 받게되며, 특히 급격한 열적 환경 변화에 의하여 열팽창, 열탄성 및 열충격등으로 인한 열응력이 작용하게된다. 이러한 열응력은 핵연료봉내의 산화물 핵연료와 금속 피복관 사이의 상호작용(Pellet Cladding Interaction, PCI)과 응력부식균열(Stress Corrosion Cracking of zircaloy cladding, SCC)의 원인으로 작용하게 된다.[1~3] 이러한 열응력에 대한 산화물 핵연료의 저항성에 따라 핵연료봉의 성능이 좌우된다.

산화물 핵연료에서 열적 특성에 관련된 문제는 열충격에 의한 핵연료 소결체의 파괴인데, 특히,  $UO_2$  산화물 핵연료는 원자로 출력 증가시 열전도도가  $K = (0.117 \times 2.65 \times 10^{-4}T) + 2.14 \times 10^{-8} \times (T+273)^3$  (W/m $^{\circ}C$ )로 아주 낮은 값[4]을 나타내기 때문에 소결체의 원주 중심부와 피복관이 접해 있는 소결체의 원주 표면 부분간에는 큰 온도차가 발생하게 된다. 이러한 경우 고온의 원주 중심부에서는 압축응력이 작용하고, 상대적으로 온도가 낮은 원주 표면부에서는 인장응력이 작용하여 소결체내에 큰 열응력이 발생하게 된다. 이러한 열충격 거동은 다양한 인자(기공율, 미세구조, 열전도도, 첨가물의 영향 등)에 의해 영향을 받게되며,  $UO_2$  단일 핵연료 및 혼합 핵연료 소결체에서의 열충격 거동은 이러한 인자들에 의해 각기 다르게 나타날 것이다. 따라서  $UO_2$  단일 핵연료 및 혼합 핵연료를 사용하기 위해서는 핵연료의 성능 및 안전성에 큰 영향을 미치는 열충격 거동에 대한 연구가 진행되어야 할 것이다.

본 연구에서는 산화물 핵연료인  $UO_2$  소결체와  $UO_2$  소결체에  $PuO_2$ 와 고온 물리 화학적인 성질이 유사한  $CeO_2$ 를 첨가[5]하여 소결한 모의 혼합 핵연료 소결체의 열충격 거동을 조사하였다.  $UO_2$  및  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체를 같은 조건에서 열충격을 실시한 후, 각 소결체의 경도, 파괴인성, 파괴표면에너지를 측정하고, 균열의 보존 및 형태를 관찰함으로써 각 소결체의 열충격 거동에 대해 비교 분석하였다.

## 2. 실험방법

### (1) 시편제조

IDR  $UO_2$  분말과 attrition mill에서 분쇄된 IDR  $UO_2-5wt\%CeO_2$  분말을 경수로형으로 각각  $4g\text{씩 } 3\text{ton}/\text{cm}^2$ 로 성형하여,  $1700^\circ\text{C}$ 에서 4시간 동안  $N_2+7\%H_2$  분위기로 소결하였다.  $UO_2$  및  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체의 표면에는 균열이 없었으며, 밀도는 각각 98.4%T.D., 96.5%T.D. 이었다. 열충격 물성치를 측정하기 위해 각 소결체를 두께 2mm의 disk형태로 절단하였으며,  $Al_2O_3$  cement를 사용하여 2mm 두께의  $Al_2O_3$  dummy pellet을 disk 양면에 접합시킴으로서 절단면의 열응력을 최소화하고자 하였다[6].

### (2) 열충격 실험

$Al_2O_3$  dummy pellet에 접합된 소결체 disk를 stainless wire로 고정하여 Thermal shock용 로에 장입하고, 가열온도는  $200 \sim 1400^\circ\text{C}$  까지  $200^\circ\text{C}$  간격으로 하였다. 각 설정 온도에서 30분간 유지후 water bath에 떨어뜨려 급냉시켰으며, 가열시 산화방지를 위해 불활성 기체인 Ar을 사용하였다.

### (3) 열충격 후의 물성측정

급냉된 시편을 mounting한 후, 경도를 측정하였고, 각온도에서 급냉됨에 따라 disk 표면에 생성된 균열의 형태를 관찰 하였다. Micro hardness tester를 이용하여 500g의 하중으로 15초 동안 유지 하여 생긴 압흔의 길이를 측정하여 경도를 산출하였으며, 표면과 중심부의 경도값 차이를 보정하기 위하여 중심부에서 1mm 간격을 두고 십자 형태로 10회 측정하였다. 파괴인성(Fracture toughness)값은 Indentation Crack Length법을 적용하였으며, Micro hardness tester로 1kg의 하중에서 15초 동안 유지하여 생긴 압흔의 길이 (2a)와 균열길이(2c)를 5회 측정하여 다음 식[7]으로 계산하였다.

$$K_{IC} \text{ (MPa}\sqrt{\text{m}}) = 0.16 \times H_v \times a^{1/2} \times (c/a)^{-2/3}$$

( $H_v$  : 비커스 경도값,  $a$  : 압흔길이의 반,  $c$  : 균열길이의 반)

파괴 표면 에너지 값은 다음 식[8]으로 계산하였다.

$$G \text{ (J/m}^2) = \frac{(1 - \nu^2) \times K_{IC}^2}{2 \times E}$$

(  $\nu$  : 포외송비,  $K_{IC}$  : 파괴 인성값,  $E$  : 영률 )

### 3. 결과 및 고찰

#### (1) 열충격에 따른 균열의 생성 및 전파

Fig. 1은  $UO_2$  소결체내에 열충격 온도차( $\Delta T$ )에 따라서 균열이 생성 및 전파되는 형태를 것이다.  $\Delta T=200$ 에서는 균열이 생성되지 않았고,  $\Delta T=400$ 일 때부터 균열의 생성이 시작되었는데, 이 때의 균열은 원주의 표면에서 시작되어 중심쪽으로 전파되는 양상을 나타내었다.  $\Delta T=600$ 일 때는 균열이 원주의 표면에서 시작되어 중심을 통과하였으며, 원주 표면에 여러개의 균열이 생성되었다.  $\Delta T=800$ 에서는 원주를 횡단하는 십자상의 균열이 관찰되었는데, 표면에서 시작된 균열이 원주를 따라 생성되어 중심쪽으로 진전됨을 알 수 있다.  $\Delta T=1000$ 에서는 시편 전체에 미세 복합 균열이 생성되었고,  $\Delta T=1200$  이상의 조건에서는 급격한 열충격으로 인한 열응력의 영향으로 시편의 파괴가 진행 되었으며,  $\Delta T=1400$ 에서도 시편의 파괴가(Fig. 3(a)) 일어났다.

Fig. 2는  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체의 열충격 온도차( $\Delta T$ )에 따라서 균열이 생성 및 전파되는 형태를 나타낸 것이다.  $\Delta T=200$ 에서 부터 미세한 균열이 생성되기 시작 하였으며,  $\Delta T=400$ 에서는 균열이 더욱 발전되어 표면과 중심을 연결하여 원주를 관통 하였다.  $\Delta T=600, 800$ 에서는 원주를 횡단하는 십자상의 균열이 관찰되었고,  $\Delta T=1000$ 에서는 미세복합 균열의 생성과 시편의 파괴가 진행 되기 시작했으며,  $\Delta T=1200, 1400$ 에서도 시편의 파괴가(Fig. 3(b)) 일어났다. 소결체의 균열 생성 및 전파는 급냉시 원주의 표면에 작용하는 인장응력과 중심에 작용하는 압축응력의 영향에 의해 나타나는데[9],  $UO_2$  와  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체의 열충격 온도차( $\Delta T$ )에 의해 일어나는 균열 생성 및 전파 형태의 관찰을 통해 열충격 온도차( $\Delta T$ )가 증가 할수록 균열의 생성과 전파가 활발히 일어나며,  $UO_2$  보다  $UO_2$ 에 5wt% $CeO_2$ 를 첨가한 소결체가 열충격에 더 취약함을 알 수 있었다.

#### (2) 열충격에 따른 기계적 물성의 변화

Fig. 4는  $UO_2$  와  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체의 열충격 온도차( $\Delta T$ )에 따른 경도값의 변화를 나타낸 것이다.  $UO_2$  소결체에서  $\Delta T=600$ 까지는 경도 값의 차이가 별로 없으나,  $\Delta T=800$  이상에서는  $\Delta T$ 값이 커질수록 경도값도 증가함을 알 수 있었다. 그러나  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체의 경우  $\Delta T=800$ 까지는 경도값이 거의 변화하지 않으나,  $\Delta$

T=1000 일때는 경도값이 오히려 감소하는데, 이것은  $\Delta T=1000$  부터 열충격에 따른 시편의 파괴가 진행되는 것으로 보아서 미세균열이 많이 보존되어 있기 때문으로 사료된다. 그리고  $\Delta T=1200, 1400$  조건에서는  $UO_2$  및  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체 모두 시편의 파괴로 경도값의 측정이 불가능하였다.

Fig. 5는 열충격 온도차( $\Delta T$ )에 따른 소결체의 파괴인성값의 변화를 나타낸 것이다.  $UO_2$  소결체에서  $\Delta T=400$  까지 변화가 거의 없었고,  $\Delta T=600, 800$ 일 때 증가하기 시작하여  $\Delta T=1000$  에서 급격히 증가하는데, 이것은 열충격 온도차( $\Delta T$ )에 따른 경도값의 변화와 비슷한 경향을 나타낸 것으로써, 열충격에 의해 IDR  $UO_2$  소결체 전체에 생성된 미세 균열이, 균열선단의 응력장을 확장시켜 외부 응력 에너지를 분산시킴으로써 균열의 진전을 지연시키는 미세 균열 강화(microcrack toughening)[10]효과를 발생시켜 상대적으로 높은 파괴인성값을 나타내는 것으로 사료된다. 한편  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체의 경우에는  $\Delta T=400$  까지  $UO_2$  소결체와 비슷한 파괴인성값을 나타내다가,  $\Delta T=600$  부터는  $UO_2$  소결체에 비해 낮은 값을 나타냈는데,  $\Delta T=1000$  에서도 생성된 복합 미세 균열에 의한 미세 균열 강화(microcrack toughening)로 파괴인성값이 약간 증가하기는 하지만, 시편의 파괴가 시작되어 역시 낮은 값을 나타내었다. 경도값과 마찬가지로  $\Delta T=1200, 1400$  조건에서는  $UO_2$  및  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체 모두 시편의 파괴가 진행되어 파괴인성값의 측정이 불가능했다.

Fig. 6은 열충격 온도차( $\Delta T$ )에 따른 소결체의 파괴표면에너지(G)값의 변화를 나타낸 것이다. 소결체의 파괴표면에너지(G)값의 변화는 파괴인성값의 변화와 같은 경향을 나타내었는데,  $UO_2$  소결체는  $\Delta T=600, 800$ 일 때 약간 증가했다가  $\Delta T=1000$  에서 급격히 증가하였고,  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체의 경우  $\Delta T=800$  까지는  $UO_2$  소결체와 비슷한 값을 나타내다가,  $\Delta T=1000$  에서 약간 증가하였다. 경도, 파괴 인성값과 마찬가지로  $\Delta T=1200, 1400$  조건에서는  $UO_2$  및  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체 모두 시편의 파괴가 진행되어 측정이 불가능 했다.

#### 4. 결 론

1700℃에서 4시간 동안  $N_2+7\%H_2$  분위기로 소결한  $UO_2$ 와  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체를 200~1400℃의 온도 범위에서 열충격 시험한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1)  $UO_2$  와  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체 모두  $\Delta T=400$ 의 조건에서부터 균열이 생성되었

으며,  $\Delta T=800$  에서는 원주를 횡단하는 균열이,  $\Delta T=1000$  에서는 시편 전체에 미세 복합 균열이 생성되었고,  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체가 열충격에는 상대적으로 더 취약하였다.

2) 열충격 온도차( $\Delta T$ )에 따른 경도, 파괴인성, 파괴표면에너지 등의 물성값은  $UO_2$  소결체가  $\Delta T=800$  이상의 조건에서 상대적으로 높은 값을 나타냈으며,  $\Delta T=1000$ 에서 급격한 물성값의 증가가 관찰되었다.  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체는  $\Delta T=800$  이상의 조건에서 상대적으로 낮은 값을 나타내었다.

3) 이상의 실험결과를 통해  $UO_2$  소결체가  $UO_2-5wt\%CeO_2$  소결체에 비해 상대적으로 높은 열충격 저항성을 갖는것을 알 수 있었다.

4)  $UO_2$  핵연료 및 혼합 핵연료의 성능 및 안전성에 큰 영향을 미치는 열충격 거동에 대해서 향후에는 기공율, 미세구조, 열전도도, 첨가물의 영향 등에 대한 연구가 더욱 깊이 있게 진행되어야 할 것으로 사료된다.

### Acknowledgement

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 사업의 일환으로 수행되었음.

### Reference

- [1] Y.Mishima et al., Trans. Am. Nucl. Soc., 20, (1975) 222.
- [2] D.D.Lanning, Nucl. Technol., 56, (1982) 565.
- [3] A.D.Appelhans et al., NUREG/CR-1425., (1980).
- [4] MATPRO-VO9, TREE-NURGE-1005., (1976).
- [5] 김 시형 등, 한국원자력학회 '98 추계학술발표회 논문집, p267, 한양대학교, 1998. 10. 30. - 31.
- [6] M.Oguma, J. Nucl. Mater., 127, (1986) 67.
- [7] B.R.Lawn and E.R.Fuller, J. Mater. Sci., 10, (1975) 2016-2024.
- [8] P.S.Maiya, J. Nucl. Mater., 40 (1971) 57.
- [9] W.D.Kingery, J. Am. Ceram. Soc., 38, (1955) 3.
- [10] F.F.Lange, Philos. Mag., 22, (1970) 983-992.

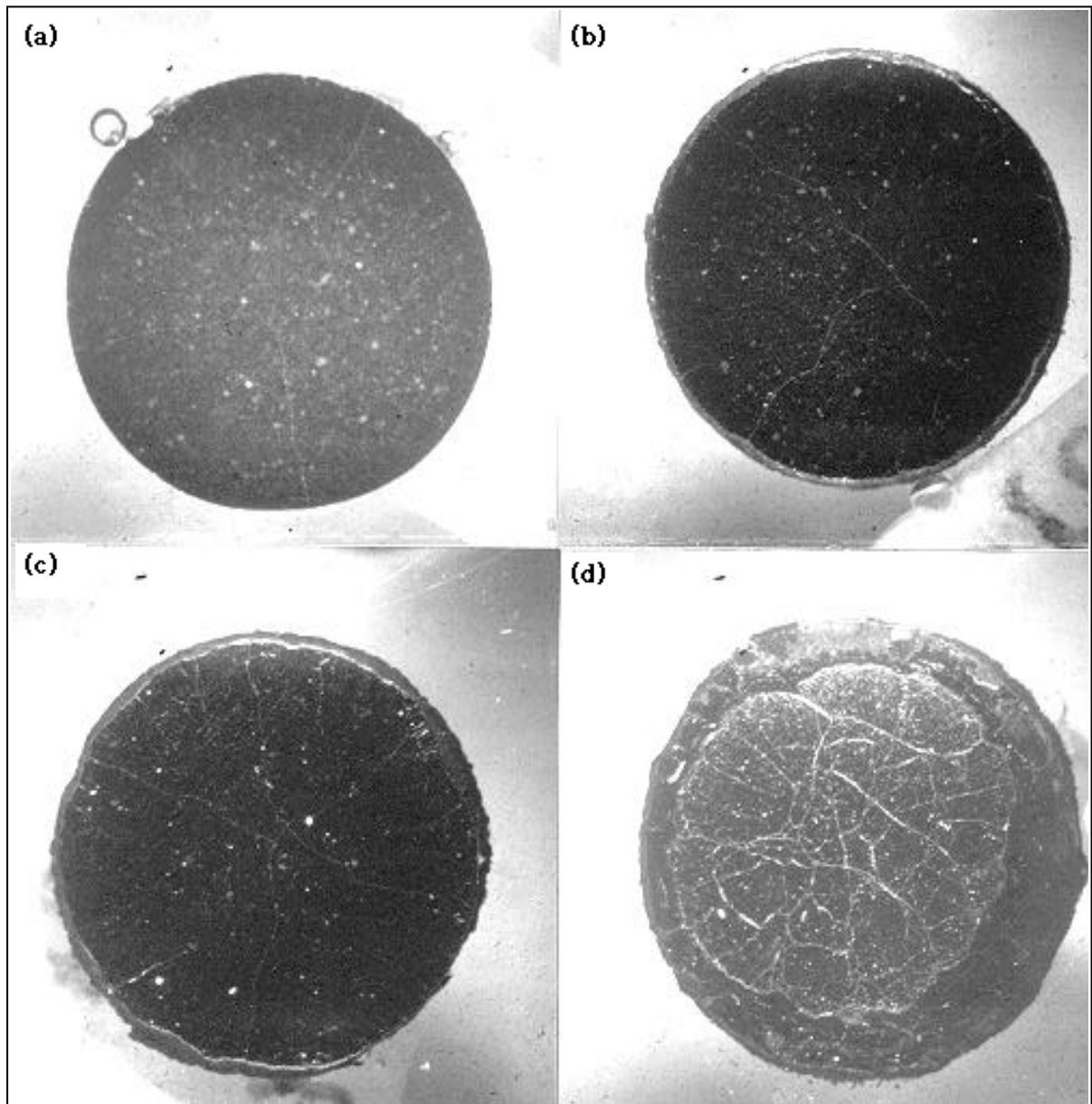


Fig.1. Influence of thermal shock temperature difference( $\Delta T$ )  
on crack patterns of  $UD_2$  pellets at various  $\Delta T$ ,

(a)  $\Delta T=400$ , (b)  $\Delta T=600$ , (c)  $\Delta T=800$  and (d)  $\Delta T=1000$ .

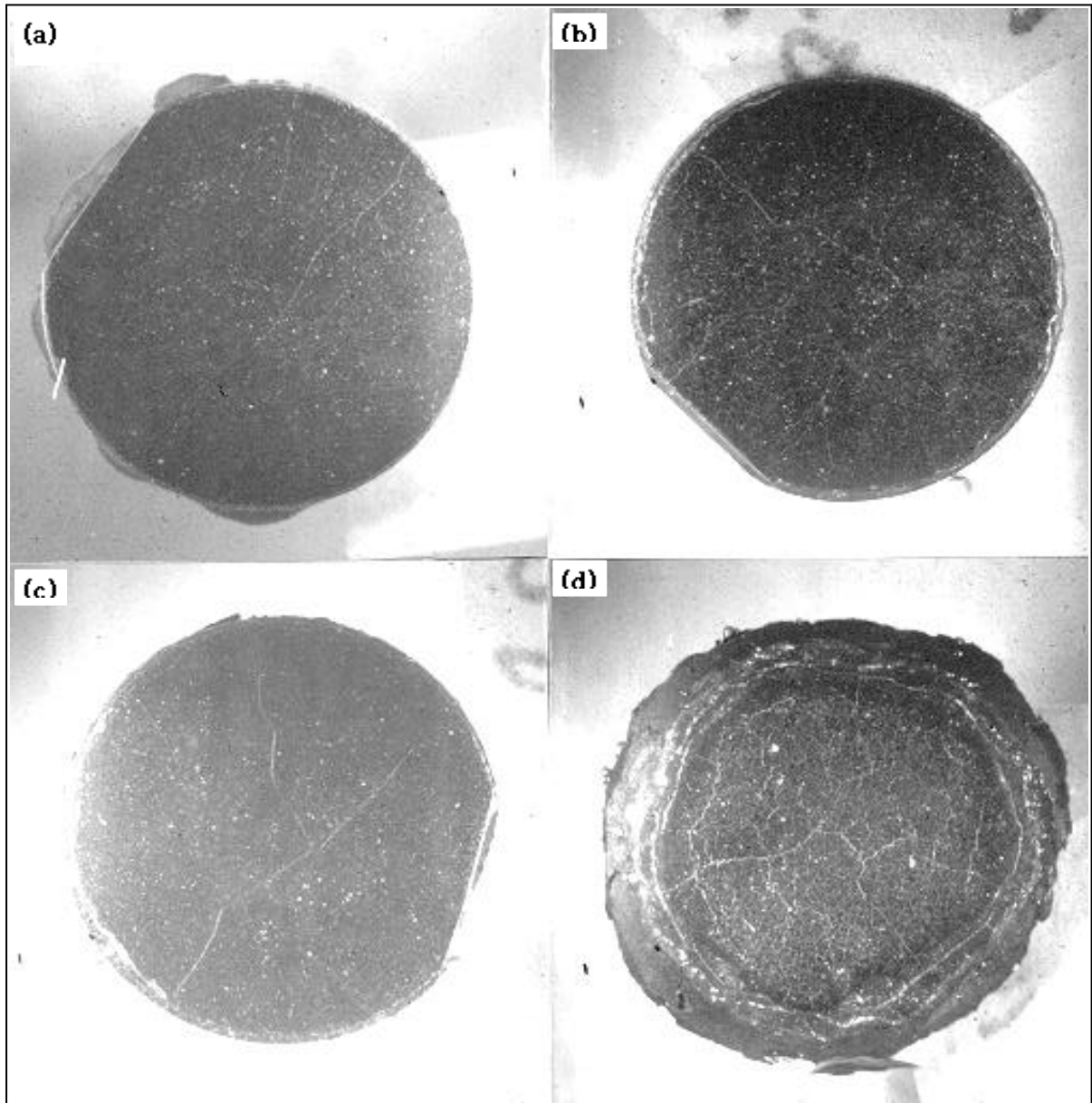
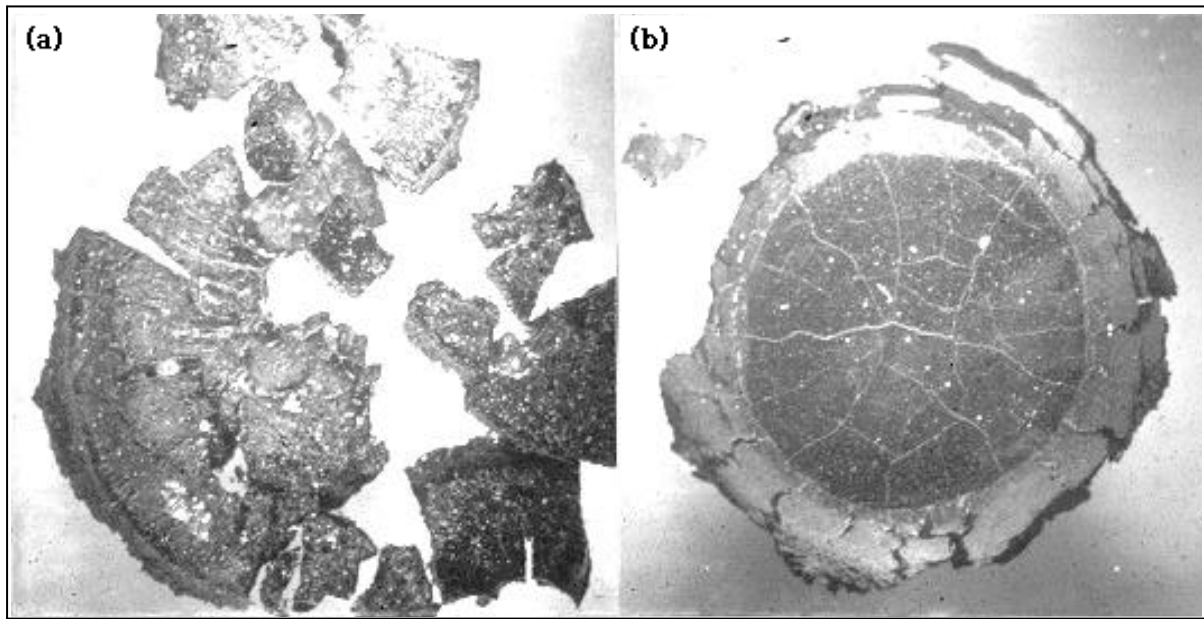


Fig. 2. Influence of thermal shock temperature difference( $\Delta T$ )  
on crack patterns of  $UD_2$ -5wt%  $CeD_2$  pellets at various  $\Delta T$ .





(a)  $\Delta T=400$ , (b)  $\Delta T=600$ , (c)  $\Delta T=800$  and (d)  $\Delta T=1000$ .

Fig. 3. Influence of thermal shock temperature difference ( $\Delta T$ )  
on crack patterns of  $UD_2$  and  $UD_2-5wt\% CeO_2$  pellets  
at  $\Delta T=1400$ . (a)  $UD_2$  (b)  $UD_2-5wt\% CeO_2$

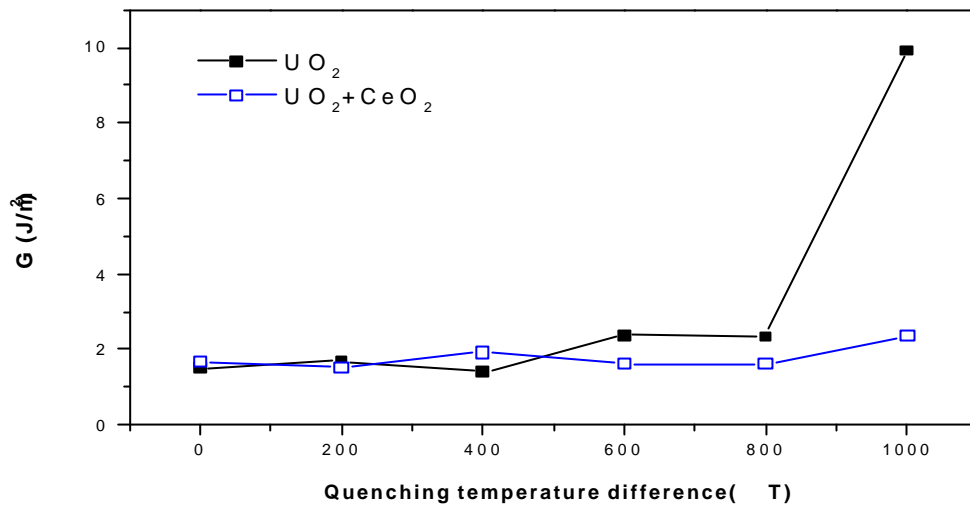


Fig. 6. Change in fracture surface energy of  $\text{UO}_2$  and  $\text{UO}_2$ -5wt%  $\text{CeO}_2$  pellets subjected to thermal shock at various  $T$