

2004 춘계학술발표회 논문집  
한국원자력학회

## K-피복관의 열적 크리프 거동

### Thermal Creep Behavior of K-Claddings

김준환, 방제건, 정용환  
한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

#### 요 약

한국원자력연구소에서 고연소도용으로 개발한 K-피복관에 대하여 열적 크리프 거동을 평가하였다. K1부터 K6까지 6종의 시제품 피복관을 개발하여 350°C와 400°C, 100에서 150MPa 사이의 인가 원주응력에서 튜브 크리프 시험을 수행하였다. K1은 700일, K2는 900일, K3부터 K6까지는 각각 600일 크리프 시험을 수행한 결과 정상상태의 2차 크리프 거동을 보이고 있다. 본 연구 결과 K-피복관이 다른 신형 피복관에 비하여 우수한 크리프 거동을 보이고 있으며 이를 최종열처리의 영향 및 인가응력의 영향, 합금원소의 영향에 따라 기술하였다. K-피복관의 경우, 최종열처리 온도가 높을수록 낮은 크리프 속도를 보였으며 첨가한 합금원소 효과와 맞물려서 개선된 크리프 거동을 보인 것으로 판단된다.

#### Abstract

Thermal creep properties of K-cladding tube which was developed for high burnup application was evaluated. Creep test of K1 to K6 cladding tubes were carried out by internal pressurization method in the temperature range of 350°C to 400°C and 100MPa to 150MPa in hoop stress. K1 cladding was tested for 700days, K2 for 900days, and K3 to K6 for 600days, which showed the steady-state secondary creep rate. The creep resistance of K-claddings was higher than that of other advanced claddings. Factors that affect creep resistance, such as final temperature, applied stress and alloying element were described. In case of K-claddings, the optimization of final heat treatment temperature as well as alloying element has a great influence on the improvement of creep resistance.

#### 1. 서 론

지르코늄 합금의 크리프 성질은 부식과 더불어 핵연료 설계에 있어서 고려되는 중

요한 요인 중 하나이다. 현재 원자력 발전소는 경제적 운전을 위해 고연소도, 장주기 운전, 고온 냉각재 및 높은 냉각수 pH 운전 등을 시도하고 있다. 이에 원자로의 안전성 측면에서는 파손 신뢰도 및 열적 여유도 등이 크게 향상된 새로운 연료봉 개발이 요구되고 있다. 이를 만족시키기 위해서는 무엇보다도 내식성 및 크리프 저항성이 향상된 신형 피복관을 개발하는 일이다. 현재 미국, 프랑스, 일본, 러시아 등 외국 원전 선진국에서도 신형 피복관 개발을 활발히 추진하고 있다. 한국원자력연구소는 현재 6종의 신형 피복관 시제품을 제조하였으며 이에 대한 노외시험이 진행 중에 있다. 원자력연구소에서 개발한 총 6종의 피복관은 2차에 걸쳐 제조되었으며, 1차로 제조된 2종은 현재 800일 이상의 크리프 시험이 진행되고 있으며 2차분 피복관 4종은 600일 이상의 시험이 진행 중에 있다. 1차 시제품 2종에 대한 중간 크리프 시험결과[1] 및 2차 시제품 4종에 대한 중간 크리프 결과[2]는 학회에 발표된 바 있다. 본 연구의 목적은 국산 신형 피복관인 K-피복관의 열적 크리프 거동을 다른 신형 피복관과 비교, 검토하는데 있으며 피복관의 크리프에 미치는 인자를 인가응력, 시험온도, 최종열처리, 합금원소의 영향으로 나누어 서 분석하였다.

## 2. 실험방법

### 2-1. 실험 재료

실험에 사용된 K-피복관의 화학 조성은 Table. 1과 같으며 K1과 K2, K5는 비교적 낮은 Nb 함량과 높은 Sn, K3, K4은 낮은 Sn과 높은 Nb 함량을 가지고 있다. K6의 경우, Sn 함량 없이 1.2%의 Nb를 합금원소로 가지고 있다. 제조한 피복관을 다양한 열처리 공정 [2] 에 따라 제조하여 크리프 시험에 이용하였다. K-피복관 외에 reference 피복관으로 지르칼로이-4와 외국의 신형 피복관 A와 B를 비교하였다. reference 피복관은 별도의 열처리를 수행하지 않고 입수상태 (As-received) 그대로 크리프 시험에 이용하였다

### 2.2 크리프 시험

Tube 크리프 장치를 이용하여 피복관의 장기 크리프 거동을 평가하였다. 100, 120, 135, 150MPa의 원주응력을 갖게 Ar gas로 장입한 tube를 용접, 밀봉한 후 350°C와 400°C furnace에 놓고 30일 간격으로 지름의 변화를 측정하였다. 크리프 변형량은 micrometer를 사용하여 시편중간부위 3군데를 측정하여 평균값을 취하였다. Fig. 1에 tube형 크리프 시편의 개략도를 나타내었다. 크리프는 시험 온도와 인가응력간의 함수로 나타낼 수 있으며 그 관계식은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\dot{\epsilon} = A\sigma^n \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (1)$$

여기서 n은 속도지수, Q는 온도에 따른 활성화 에너지이다. 본 연구에서는 (1)의 관계식을 이용하여 K-피복관의 응력에 따른 응력지수와 활성화 에너지를 구하여 크리프 기

구를 예상하는데 사용하였다.

### 3. 실험 결과 및 고찰

#### 3-1. 장기 크리프시험 결과

Fig. 2는 재결정 온도에서 열처리한 K-피복관 및 reference 피복관의 크리프 속도를 나타낸 결과이다. K1은 700일, K2는 900일, K3부터 K6까지는 각각 600일 크리프 시험을 수행한 결과이며 각 피복관 모두 정상상태의 안정한 2차 크리프 변형 거동을 보이고 있다. 재결정 온도에 열처리 한 경우 응력이완조건에 비하여 공통적으로 크리프 속도가 현저히 감소한 것으로 관찰되고 있으며 B-K5-K2-K1-Zry4-K3-K4-K6-A의 순서로 크리프 변형률의 ranking을 보이고 있다. Nb의 함량이 높을수록 크리프 저항성이 다소 떨어지는 거동으로 보이고 있다. 재결정 온도 열처리의 경우, 600일 실험을 기준으로 비교하면 K5가 다른 피복관에 비하여 우수한 저항성을 보이고 있으며 외국의 신형 피복관 B와 대등한 크리프 속도를 보이고 피복관 A의 크리프 속도의 25%에 불과한 매우 우수한 크리프 거동을 보이고 있다.

#### 3-2. 최종열처리의 영향

전 장에서 기술한 바와 같이 각 피복관 공히 재결정 온도에서 최종열처리 할 때, 크리프 속도는 응력이완 조건의 25%에서 40%수준까지 떨어지는 거동을 보이고 있다. 피복관 A의 크리프 속도가 높은 것은 피복관 제조시 최종열처리 온도가 낮음에 기인하는 것으로 보이며 피복관 B의 경우 최종열처리 온도가 비교적 높아서 개선된 크리프 거동을 보이는 것으로 생각된다. 또한 피복관 B의 경우 Nb외에 미량의 산소를 첨가하고 있는데 산소가 350°C에서 가동전위를 locking하는 동적변형시효현상을 일으켜서 크리프 속도를 낮추는 요인으로 작용하는 것으로 생각된다[3].

최종열처리 영향을 명확히 보기 위하여 K1 피복관에 대하여 최종열처리를 440°C부터 580°C까지 변화시켜 350°C 시험온도에서 크리프 변형률을 측정하였다. Fig. 3은 이러한 최종열처리 온도의 영향에 따른 피복관의 크리프 속도를 나타낸 결과이며 최종열처리 온도가 높아질수록 크리프 속도가 감소하는 거동을 보이고 있다. 최종열처리 온도가 높아질수록 석출물의 크기가 증가하여 dislocation 크리프의 경우 가동전위가 석출물을 뛰어넘기에 필요한 열에너지를 받기까지 시간이 소요되어 이것이 크리프 저항성을 낮추는 요인으로 작용하며 [3] diffusional 크리프의 경우, 열처리 온도가 높아질수록 결정립 크기가 증가하여 공공 확산에 필요한 path가 늘어나서 vacancy migration에 필요한 시간이 늘어나게 되어 이것이 피복관의 크리프 저항성을 낮추는 요인으로 작용하는 것으로 보인다[4].

#### 3-3. 응력지수 및 활성화 에너지

Fig. 4는 인가응력에 따른 K-피복관의 크리프 변형을 나타는 그림이다. 인가 Hoop

stress가 늘어날수록 크리프 속도는 증가하는 거동을 보이고 있으며 합금별 영향은 나타나지 않았다. Table. 2는 K2, K4, K5, K6 피복관과 지르칼로이-4에 대한 열처리 조건에 따른 크리프 인자를 나타낸 표이다. 응력이완조건의 경우 응력지수가 2.90에서 3.12사이의 값이 나왔으며 재결정조건에서는 응력지수가 3.32에서 4.05로 다소 높게 상승한 것으로 나타났다. 지르코늄 합금의 응력지수는 일반적으로 응력지수가 1에서 3인 경우 크리프 변형기구가 공공의 확산에 기인하는 diffusional 크리프며 응력지수가 3에서 7인 경우 크리프 변형기구가 전위활주 후 장애물에서 전위의 상승에 의하여 결정되는 dislocation climb controlled 크리프를 보이고 있는 것으로 알려져 있다[5]. 열처리 온도의 상승에 따라 응력지수가 상승한 것은 크리프 기구가 확산 크리프에서 전위활주 및 전위상승 크리프로 그 변형 mode가 전환된 것으로 보인다.  $\ln A$ 는 재료의 미세구조에 좌우되는 상수로서 열처리시 각각의 값이 상승하는 거동을 보인다. 그러나 이 값은 경험적인 값으로서 현재로서  $\ln A$ 의 상승이 크리프의 변형에 어떠한 영향을 미치는 지에 대하여는 추후 고찰이 필요할 것으로 보인다. 활성화 에너지는 K-피복관의 경우 40에서 60kcal/mole의 값으로서 열처리에 따른 활성화 에너지의 변화는 감지하기 어려웠으며 이 값은 일반적으로 알려진 Zr-1.3Sn 합금의 자체확산 활성화 에너지인 62kcal/mole보다 다소 낮은 값을 보이고 있다[6]. 활성화 에너지는 일반적으로 온도에 따라 민감하며 이는 지르코늄 합금의 동적시효에 기인한다고 알려져 있다. 국산 K-피복관에서는 동적변형시효가 관찰된 반면[7] 활성화 에너지의 큰 변화가 관찰되지 않았다.

#### 3-4. 합금원소의 영향

Fig. 5는 합금원소의 함량에 따른 피복관의 크리프 거동을 나타낸 그림이다. Nb의 함량이 증가할수록 피복관의 크리프 속도가 증가하는 거동을 보였으며 Sn이 첨가된 경우 크리프 거동이 개선되고 있음을 관찰되고 있다. Sn의 첨가는 고용강화를 유발하여 피복관 크리프 성질을 개선시키는 반면, Nb는 일정 함량 이상 첨가시 강화기구가 고용강화에서 석출강화로 전환되고 석출강화는 느린 크리프 보다 빠른 크리프속도에서 영향을 보인다고 알려져 있다[8]. 판재형 시편의 크리프 저항성에 대한 합금원소 효과는 Sn 함량과 0.5wt% 이하의 Nb 함량에 의해 좌우된다고 알려져 있으며 이러한 경향은 피복관 tube에서도 동일한 효과를 보이고 있다.

#### 4. 결론

한국원자력연구소에서 개발한 신형 피복관인 K-피복관 tube에 대하여 최장 900일 동안 열적 크리프 시험을 수행한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

- 1) 시제품 피복관에 대한 장기 크리프 시험 결과 K-피복관이 지르칼로이-4와 해외 신형 피복관 A에 비해 우수한 크리프 거동을 보였으며 신형 피복관 B와 대등한 크리프 성능을 보이고 있다.
- 2) K-피복관의 크리프와 관련된 주요 변형기구는 응력이완조건에서는 확산 크리프며 재결

정조건에서는 전위활주 및 상승에 의한 기구로 판단된다.

3) K-피복관의 개선된 크리프 성능은 합금원소의 영향 뿐 아니라 최종 열처리 온도에 기인하는 것으로 생각된다.

## 후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업인 “지르코늄신합금 핵연료피복관 개발 과제”의 일환으로 수행되었음

## 참고문헌

- [1] 남철, 최병권, 정용환, 정연호, 2002 춘계학술발표회 논문집, 한국원자력학회 (2002)
- [2] 방제건, 정용환, 정연호, 2003 춘계학술발표회 논문집, 한국원자력학회 (2003)
- [3] D. G. Frankline et al., ASTM STP 815 (1983)
- [4] R. B. Jones, J. Nucl. Mater. 19, 204 (1966)
- [5] I. M. Bernstein, Trans. Am. Inst. of Met. and Pet. Eng. 239, 1518 (1967)
- [6] J. J. Holmes, J. Nucl. Mater. 13, 2 (1964)
- [7] 이명호, 김준환, 박상윤, 방제건, 최병권, 정용환, 정연호, 2004 춘계학술발표회 논문집, 한국원자력학회 (2004)
- [8] C. Nam, K. H. Kim, M. H. Lee and Y. H. Jeong, J. Kor. Nucl. Soc. 32, 372 (2000)

Table. 1 Chemical composition of Advanced claddings

ID	Nb	Sn	Others	Zr
K1	0.4	0.8	0.6	Bal.
K2	0.2	1.1	0.6	Bal.
K3	1.5	0.4	0.2	Bal.
K4	1.5	0.4	0.3	Bal.
K5	0.4	0.8	0.55	Bal.
K6	1.2	-	0.1	Bal.
Zry-4	1	1.3	0.3	Bal.
A	1.0	1.0	0.1	Bal.
B	1.0	-	-	Bal.

Table. 2 Creep parameters of K-claddings

ID	K2		K4		K5		K6		Zry-4
	SR	PR	SR	PR	SR	PR	SR	PR	SR
n	2.90	3.32	2.94	3.62	3.12	3.69	2.63	4.05	3.47
Q (kcal/mole)	52.0	64.2	40.6	40.6	58.5	57.8	41.2	38.9	49.9
lnA	52.2	63.6	44.9	48.1	59.1	61.3	43.4	49.9	53.3

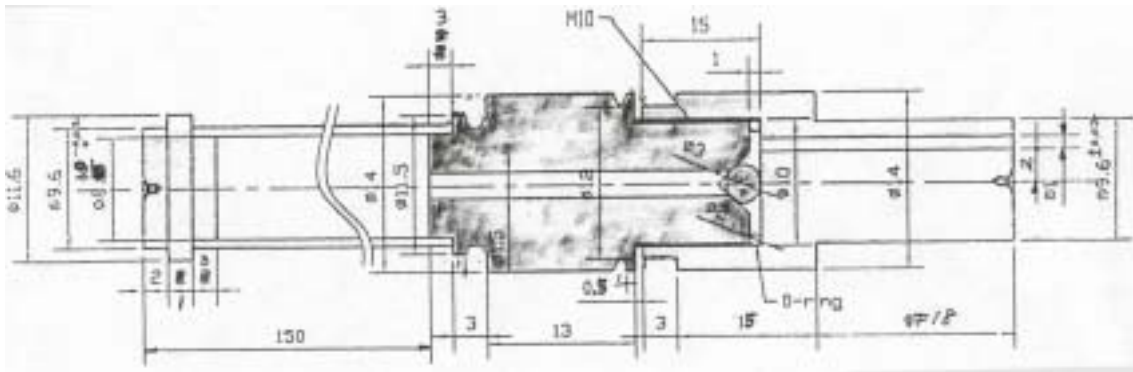
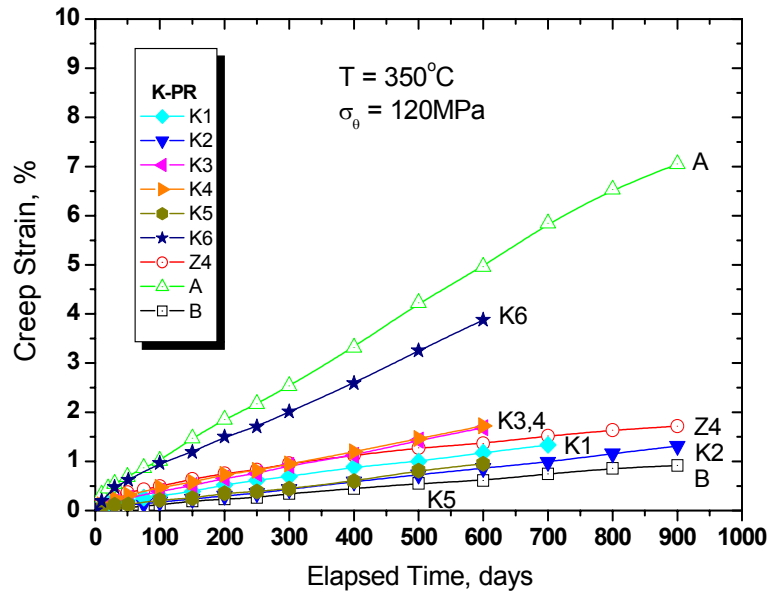
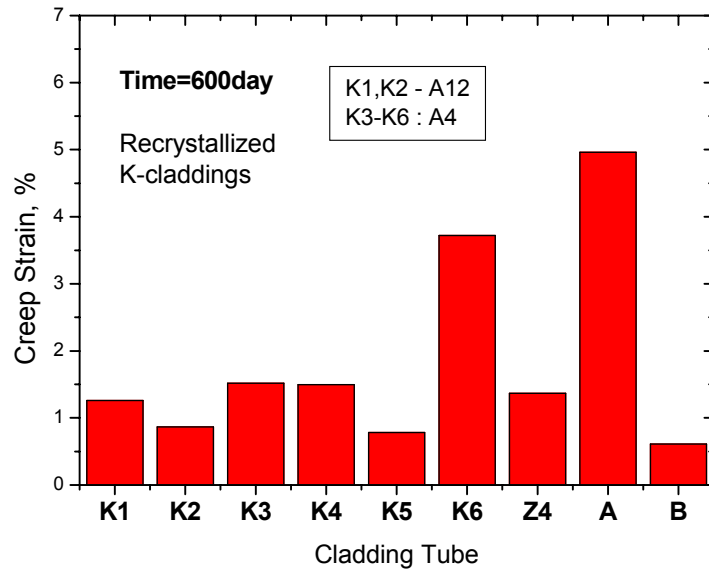


Fig. 1 Schematic illustration of internal pressurized creep specimen



(a)



(b)

Fig. 2 Thermal creep properties of K-claddings in recrystallized conditions

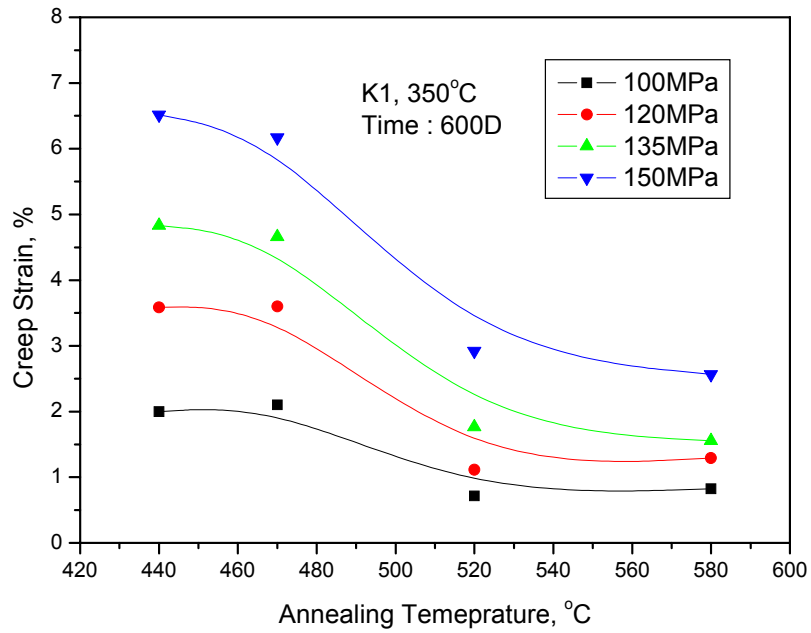


Fig. 3 Effect of annealing temperature of thermal creep rate of K1 cladding

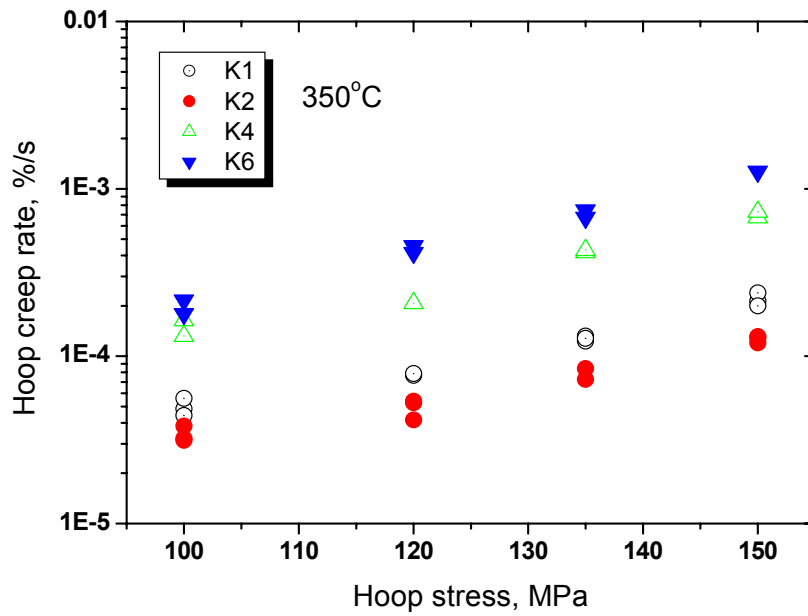


Fig. 4 Effect of applied stress of thermal creep rate of K-claddings



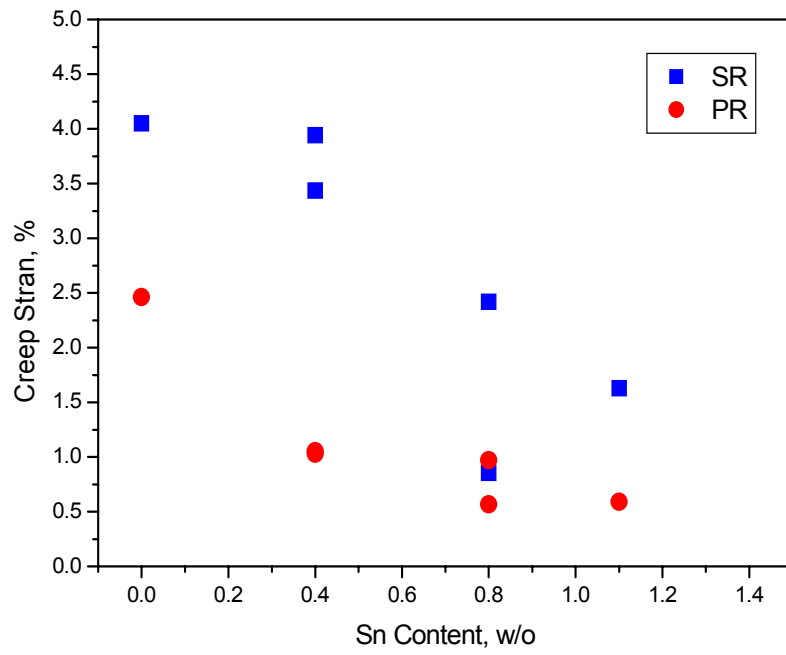
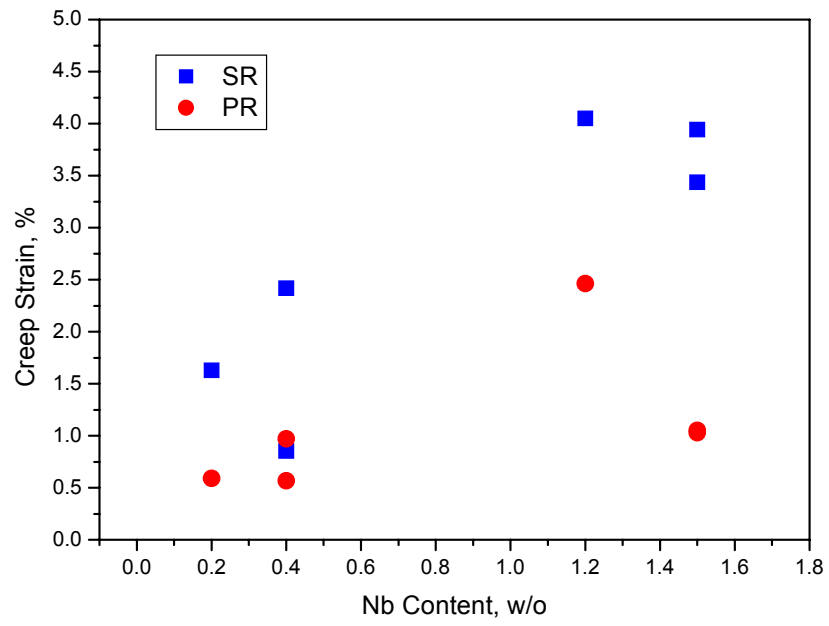


Fig. 5 Effect of alloying element of thermal creep rate of K-claddings