2004 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

Zircaloy-4 피복관의 최종열처리가 PCI 특성에 미치는 영향

Effect of Final Heat Treatment on the PCI Characteristics of Zircaloy-4 Cladding

박상윤, 최병권, 김준환, 정용환, 정연호
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요약

Zircaloy-4(Zry-4) 피복관의 PCI(Pellet Cladding Interaction) 특성에 미치는 미세조직의 영향을 관찰하기 위하여 최종열처리를 변화시킨 Zry-4 시편에 대한 ISCC (iodine-induced stress corrosion cracking) 실험을 수행하였다. Zry-4 피복관의 내부에 초기 피로균열을 형성시킨 후, 고온고압의 Iodine 분위기에서 내부압력시험을 수행한 후 K_I 및 균열 전파속도를 측정하여 K_{ISCC} (threshold stress intensity factor) 값을 구하였다. 응력이완조직을 갖는 시편에 비하여 재결정조직을 갖는 시편의 K_{ISCC} 값이 증가하였고, 높은 K_I 영역 즉 region II 에서의 균열 전파속도도 1/10 이하로 감소하여 PCI 저항성이 증가하는 것으로 나타났다. 그러므로 고연소도용 PWR 핵연료 피복관 개발시 PCI 관점에서는 가능한 한 높은 온도에서 최종열처리를 하는 것이 유리하다.

Abstract

ISCC (Iodine-induced stress corrosion cracking) test was performed in finally heat-treated Zry-4 to investigate the effect of microstructure on PCI (Pellet cladding interaction) characteristics of Zry-4 cladding. Crack propagation rate and threshold stress intensity factor (K_{ISCC}) of pre-cracked Zry-4 was measured after internal pressurization test in high temperature and high pressure iodine environment. Recrystallized specimen showed higher K_{ISCC} and lower crack propagation rate as 1/10 value than stress relieved specimen. The results showed that final heat treatment in higher temperature was recommended to enhance PCI resistance in developing PWR fuel cladding.

1. 서 론

1970 년대 이후로 경수로 핵연료 피복관의 파손은 주로 연료/피복관 상호작용 (PCI : pellet cladding interaction) 에 기인한 것으로 보고되고 있다 이는 연료와 피복관의

화학적 반응과 기계적 접촉이 동시에 일어날 때 발생하는 것으로써 응력부식균열 (SCC : stress corrosion cracking) 에 의한 파손으로 발전 할 수 있다. SCC 를 유발하는 화학반응 인자로는 주로 연료의 핵분열과정에서 생성되는 기체상 요오드로 알려져 있다. 따라서 부하 추종운전과 같이 운전 중 과도상태가 유발되면 특히 발생 가능성이 높아진다. 또한 고연소도 조건이 되면 연료와 피복관이 서로 접촉하게 되고, 또한 핵분열에 의한 핵분열 생성물의 일종인 요오드와 방사화 분해에 의한 요오드의 농도도 지속적으로 증가되기 때문에 ISCC 발생 가능성 또한 증가한다[1-7].

최근 고연소도 용 핵연료 피복관에 대한 관심이 집중되면서, PWR 용 피복관의 PCI 문제가 다시 대두되어 Zr 피복관의 ISCC 특성에 대한 실험이 많이 이루어 지고 있다. Lemaignan[8], Schuster[9] 등은 응력 이완된(Stress Relieved, SR) 상용 Zry-4 피복관에 대한 ISCC 특성실험을 주로 수행하였으며, 이 피복관에 대한 K_{ISCC} 값을 구하였다. 그런데 고연소도용 피복관을 개발하기 위해서는 부식 및 크립 등의 특성을 크게 개선시켜야 하기 때문에 다양한 제조공정이 개발되고 있는데, 최종열처리에 따라 합금의 미세구조가 다양하게 변하게 된다. 그러므로 피복관의 최종열처리 및 미세구조에 따른 ISCC 특성 연구가 필요하다.

본 연구에서는 Zry-4 피복관의 미세조직에 따른 PCI 특성에 미치는 영향을 평가하기 위하여 응력이완조직(SR)과 재결정조직(RX)을 갖는 시편을 제조하여 ISCC 특성실험을 수행하였다. 열처리된 피복관시편 내부 표면에 초기 피로균열을 제조였고, 이 시편을 사용하여 고온고압 iodine 분위기에서 내부압력시험을 수행하였다. 응력이완조직을 갖는 시편에 비하여 재결정조직을 갖는 시편의 K_{ISCC} 값이 증가하였고, 높은 K_I 영역 즉 region II 에서의 균열 전파속도도 1/10 이하로 감소하여 PCI 저항성이 증가하는 것으로 나타났다.

2. 실험 장치 및 방법

2.1 시편 열처리 및 초기 피로균열 제조

Zry-4 시편은 Sn 함량이 1.3 wt% 인 low tin Zry-4 피복관을 사용하였고, 시편의 미세조직을 조절하기 위해서는 470℃ 에서 3 시간(SR) 및 600℃ 에서 3 시간(RX) 동안 각각 열처리하였다. Fig.1 은 최종 열처리한 시편의 광학현미경 사진이며 SR 및 RX 조직을 잘 나타내 주고 있다. 핵연료 피복관에 대한 균열전파 시험을 위해서는 먼저 피복관 내부에 미세 균열을 발생시켜야 한다. 이 초기 균열로써 기계적 노치를 만들거나 피로 균열을 만들기도 한다. Lemaignan[10]는 피복관 내부에 피로균열을 발생시키기 위한 지그를 고안하였는데, 피복관 외경에 맞는 홈이 파진 지그를 만들어 피복관을 삽입하고 위에 판재를 얹은 다음 인장시험기를 이용하여 압축응력을 가하여 피로 균열을 제조하였다. 이 방법과 유사하게 Instron 8516 에 시편을 고정할 수 있는 특별한 지그를 설치하고, 13 cm 크기의 Zircaloy-4 시편을 설치한 후 변위 폭 0.12 ㎜, 진동수 5Hz 인 sine wave 형태의 주기적 하중을 가하여 피로 균열을 제조 하였으며 5000 ~ 16000 회의 주기에 따른 초기 피로 균열의 깊이를 측정하였다. 이렇게 제조된 초기 피로균열이 생긴 피복관을 가지고 ISCC 시험장치에 설치하여 균열 전파속도를 측정하였다.

2.2 ISCC 시험장치

Fig.2 는 핵연료피복관의 ISCC 특성 실험을 수행하기 위해 설계/제작한 장치의 P&I 도면이다. 최대 설계 압력 및 온도는 90Mpa 및 600℃이고 한꺼번에 4 개의 시편을 동시에 같은 온도에서 다양한 압력으로 실험할 수 있도록 설계/제작 되었다. 실험 중 고온에서 피복관이 산화 되는 것을 방지하기 위하여 시편 내부는 진공을 뽑은 후 고순도 He 가스로 가압하여 내부 압력을 조절 하도록 하였고 시편 외부의 autoclave 는 Ar 가스로 충전하여 시편 표면의 산화를 방지하였다. 또한 실험온도, 압력 및 파괴시간 등 모든 실험 변수에 대한 정보는 on-line 으로 PC 에서 수집할 수 있도록 하였다. Fig.3 은 계측 및 제어 신호의 흐름을 나타내는데, 온도 및 압력을 계측하기 위한 UT 320 과 UM 330 9 대, 여기서 나오는 RS485 신호를 컴퓨터에서 받아 들일 수 있는 신호 레벨로 변경시켜 주는 RS-converter, 장치의 상태를 관찰 및 제어 하기 위한 controller, 그리고 두 신호를 컴퓨터에서 읽어 들이기 위한 PCMClA Multi-port 로 구성되어 있다.

2.3 균열전파속도 측정

내경 8.36 ㎜, 두께 0.57 ㎜인 상용 Zircaloy-4 피복관을 13 ㎝의 크기로 잘라서 초기 피로 균열을 제작한 후 내부에 iodine 을 삽입하고 ISCC 측정장비에 설치한 후 350℃까지 가온하고 일정한 압력을 가하여 균열이 전파하도록 하였다. Aldrich 사 제품 99.99% 고순도 iodine 을 사용하였고, 10^{-3} g/㎠ 의 양을 정량하여 시편내부에 삽입한 후 실험하였다. ISCC 시험 중 산화를 방지하기 위하여 가온 전에 시편내부의 공기를 진공 펌프로 제거 하였고 시편 외부는 아르곤 가스를 채웠다. 100 시간 동안 고온고압에서 유지시킨 후 파괴되지 않은 시편은 실험을 종료하였다. 실험이 종료된 시편은 균열이 간 부분을 잘라서 균열 단면을 전자 현미경(SEM)을 통하여 관찰하였다. 전자현미경 사진을 통하여 초기 피로 및 ISCC 균열의 깊이를 측정하여 ISCC 에 의한 균열 전파속도를 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 pre-crack 제조

Fig.4 는 피복관 외부 표면에 주기적인 압축응력을 가할 때 형성되는 균열의 모식도를 나타낸 것이다. 피복관 외부에서 압력이 가해지면 압력을 받은 부분의 바로 밑 부분에서 가장 큰 변형력을 받기 때문에 이와 같은 반 타원 모양의 피로 균열이 피복관 내부에 축 방향으로 형성되며 압축 응력 주기가 진행 될수록 피로 균열도 전파하게 된다. Fig.5 는 주기적인 압축하중을 16,000 cycle 가한 피복관을 350℃ 기중에서 2 시간 산화시킨 후 균열부위에 인장 응력을 가하여 파괴시킨 후 단면을 관찰한 광학 현미경 사진이다. 균열의 경계가 선명하여 피로 균열의 깊이 및 축 방향의 길이 등을 용이하게 측정할 수 있었다. 피로 주기와 초기균열의 깊이는 Fig.6 와 같이 측정되었으며, a/t 의 값을 0.2 ~ 0.3 이 되도록 5,000 cycle 에서 초기 피로균열을 제조하였다.

3.2 Stress Intensity Factor

피복관의 ISCC 에 의한 파손 저항성을 평가하기 위해서는 응력집중인자의 변화에 따른 균열의 전파속도를 측정하여 균열 전파에 대한 문턱 값 즉 KISCC 를 구하여야 한다. 이를 구하는 가장 일반적인 방법은 DCB 시편을 제작하여 ASTM 규정에 따라 파손 시험을 수행하여야 한다. 그러나 DCB 시편을 이용한 시험은 두께가 두꺼운 판재 형 시편에서만 측정이 가능하다. 두께가 얇은 피복관의 시험에서는 피복관 내부에 초기 균열을 형성시키고 시험 압력을 다음과 같이 Plane strain 조건을 만족하는 영역으로 유지시켜야 한다[11].

$$K_I \langle \sigma_y (3\pi t/5)^{1/2} \tag{1}$$

여기서 σ_y 는 피복관의 인장강도, t 는 피복관 두께이다. 두께 570 ㎛, σ_y = 220MPa 인 피복관의 경우 K_I < 7.2 MPa $m^{1/2}$ 이하가 유지되어야 한다. Newman 방법에 의하면 Fig. 4 와 같은 형태의 균열을 가진 튜브가 내부압력 P 를 받을 때 K_I 은 다음과 같이 계산할 수 있다.

$$K_I = \frac{pR}{t}\sqrt{\frac{\pi a}{Q}}F(\frac{a}{2c},\frac{a}{t},\frac{R}{t}) \tag{2}$$

여기서 p = internal pressure on the tube
R = mean radius of the tube
t = tube wall thickness
a = depth of surface crack
Q = shape factor for an elliptical crack = 1 + 1.464(a/c)$^{1.65}$
c = half-length of surface crack
= parametric angle of elliptical crack

(2)식에서 F는 boundary correction factor로써 피복관의 내부에 형성된 초기 균열의 형태에 따라서 결정되며, Anderson[12] 등의 연구에 의하면 5≤ R/t≤ 20, 2c/a ≤ 12, a/t ≤ 0.80인 조건에서 가장 깊은 균열 선단에서 보정계수는 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$F = 1.12 + 0.053\xi + 0.0055\xi^2 + \left(1 + 0.02\xi + 0.0191\xi^2\right)\frac{\left(20 - \frac{R}{t}\right)^2}{1400} \tag{3}$$

여기서 $\xi = \frac{a}{t}\left(\frac{a}{2c}\right)$

상용 17X17 PWR 피복관인 Zry-4 에 대한 R/t=7.37 이므로 초기 균열의 크기를 적절히 조절하면 위의 (2) 및 (3) 식을 활용할 수 있다. Fig.7 은 (3) 식을 이용하여 a/t 및 a/c 에 따른 F 의 관계를 도식한 그래프이며 a/t 가 일정할 경우 F 는 a/c 에 비례함을 알 수 있다. 이와 같은 방법으로 구한 F 값을 (2)식에 대입하여 초기균열에 대한 K_I 값을 구하였다

3.3 K_{ISCC} 측정

Fig.8 은 세 종류의 파단면 즉 초기 피로균열, ISCC 및 인장파괴 파단면을 보여 주고 있다. 또한 Fig.9 는 세 종류의 파단면을 고배율로 확대하여 찍은 SEM 사진이다. 세 종류의 파단면의 특성이 현저히 다르므로 각 단계의 파괴 특성을 파악할 수가 있다. 초기피로균열이나 인장 파단면은 SR 이나 RX 시편에서 동일한 형태를 갖고 있으나 ISCC 파단면은 시편의 미세조직에 따라 크게 차이가 났으며, 특히 RX 조직에서는 시편의 grain boundary 를 따라서 ISCC 균열이 전파하고 있음을 잘 나타내 주고 있다.

Fig. 10 은 이와 같은 방법으로 구한 K_I 값에 대한 균열 전파속도의 관계를 나타낸 그래프이다. 이 그래프로부터 SR 조직을 갖는 Zircaloy-4 피복관에 대한 K_{ISCC} 값은 3.3 MPa $m^{1/2}$ 이고 RX 의 경우는 4.8 MPa $m^{1/2}$ 로써, RX 시편이 ISCC 균열 전파에 대한 저항성이 큰 것으로 나타났다. 뿐만 아니라 K_I 값이 큰 영역 즉 region II 에서 균열 전파속도도 RX 시편이 1/10 정도 적은 것으로 나타났다. 이와 같은 결과는 RX 조직을 갖는 시편이 SR 조직을 갖는 시편보다 연성이 크기 때문인 것으로 판단되며, 고연소도용 PWR 피복관에서는 PCI 저항성이 큰 재료가 요구되므로 신형 피복관 개발시 가능한한 고온에서 최종 열처리하는 것이 유리할 것으로 판단된다.

4. 결론

Zr피복관의 미세조직이 PCI특성에 미치는 영향을 평가하기 위하여 최종열처리를 변화시킨 Zircaloy-4 피복관을 이용한 ISCC특성 평가실험을 수행하였다. 응력이완 조직 및 재결정 조직을 갖는 Zry-4 의 K_{ISCC}는 각각 3.3 및 4.8 MPa·$m^{1/2}$ 로써 재결정조직을 갖는 시편이 매우 컸다. 또한 높은 K_I 값을 갖는 region II 에서 재결정조직을 갖는 시편의 ISCC균열 전파속도가 1/10 로 감소하였으므로 PCI 저항성이 응력이완 조직을 갖는 시편보다 현저히 증가하였다. 그러므로 고연소용 PWR 피복관을 개발하는 경우 가능한 한 높은 온도에서 열처리하여 PCI저항성을 증가시키는 것이 유리하다고 판단된다.

참고 문헌

1. M.F. Lyons, D.H. Coplin and G.G Jones, High performance UO_2 Fuel program, GEAP-3771-10,11,12 (1963/64)
2. H. S. Rosenbaurm, Electrochem. Tech, 4 (1966) 153
3. J. A. L. Robertson, in : proc. of Joint Topical Meeting on commercial Nuclear Fuel Techuoloh tody, Toronto, Aprial 1975, CNS-ISSN-0068-8515

4. F. Garzarolli, R. von Jam and H. Stehel, Energy Rev. 17(1979) 31
5. J. C. Wood and J. R. Kelm, Res Mech, 8(1983)127
6. J. C. Wood, Nucl. Technol, 23(1974)63
7. B. Cox, J, Nucl, Mat. 172(1990)249
8. C. Lemaignan, Int. J. Pres. Ves. & Piping, 15 (1984) 241
9. C. Lemaignan and I.schuster, Pro. Technical Committee Meeting on Properties of Materials for Water Reactor Elements and Methods of Measurement, Vienna, Austria, 13-16(1986)
10. I. Schuster, C.Lemaignan and J. Joseph, SMiRT-12C03/2(1993), 45
11. Yu, K, Bibilashvily, Yu. N. Dolgov, B. I. Nesterov, V. V. NoviRov, J. Nucl, Mater. 224(1995) 307
12. T.L. Anderson, " Fracture Mechanics-Fundamentals and Applications" , CRC Press., 2nd Ed. (1995)636

(a)

(b)

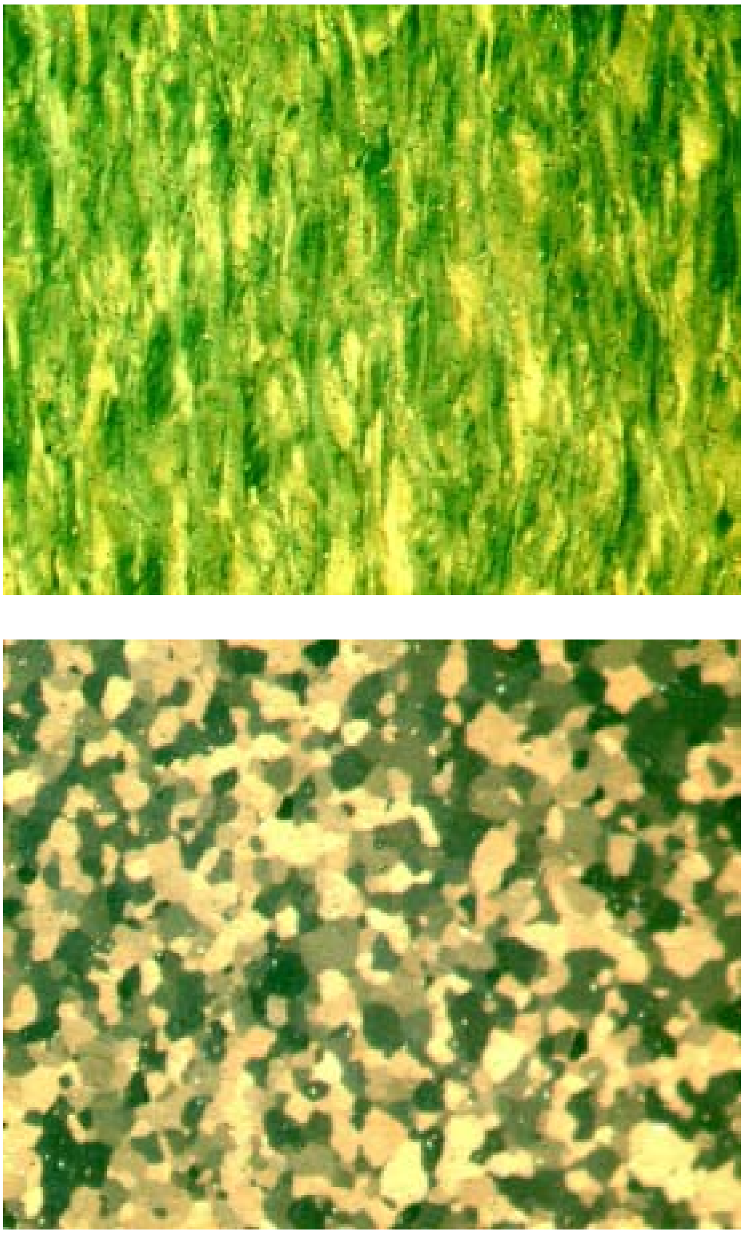

Fig. 1 microstructure of Zircaloy-4 specimens heat-treated at (a) 470°C and (b) 600°C for 3hr.

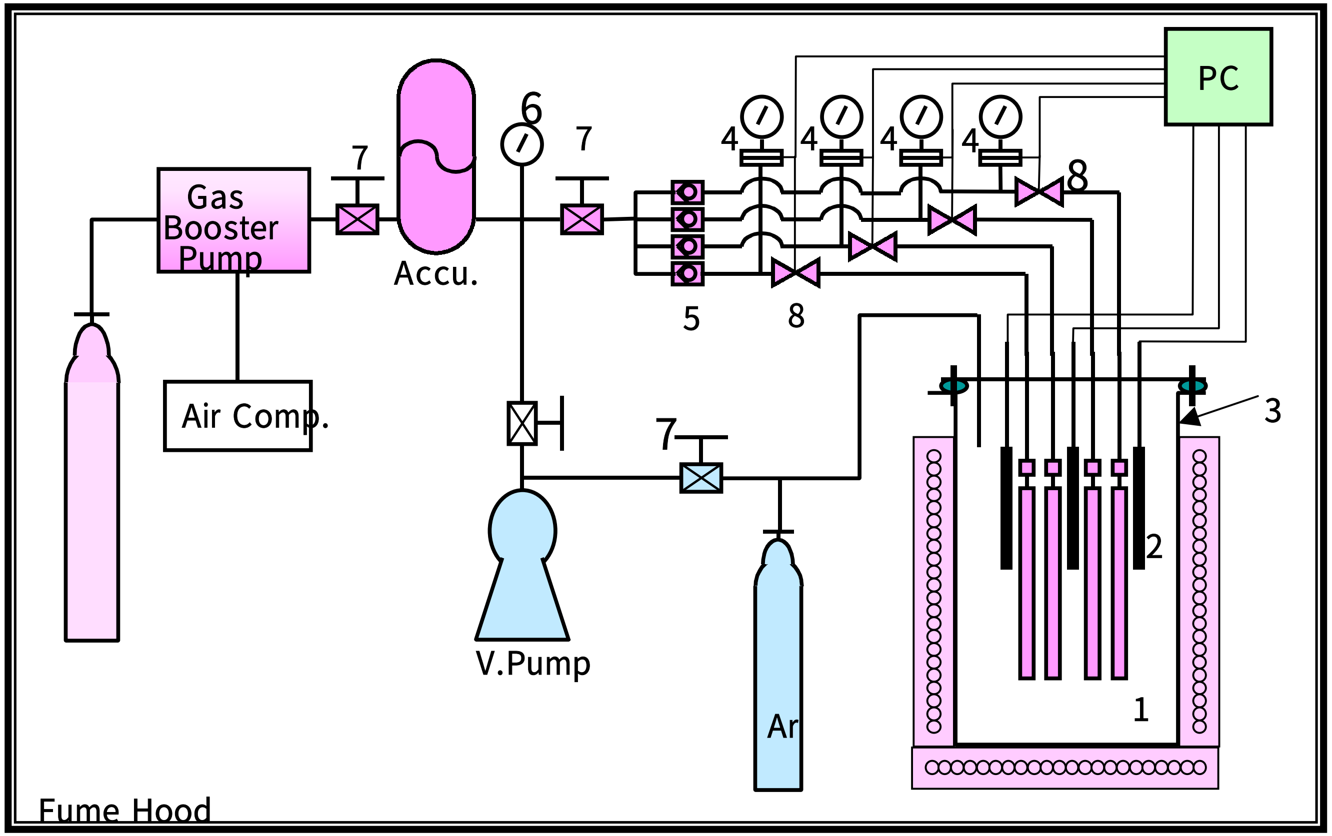

Fig. 2. Schematic drawing of the ISCC Testing Facility

1: Specimens, 2: Thermocouple, 3: SS Liner (100^{ϕ} X 300^{L}),
4: High Pressure Gauges & Transducers, 5: High Pressure Regulators,
6: High Pressure Gauge, 7: High Pressure Valves, 8: Automatic Valves

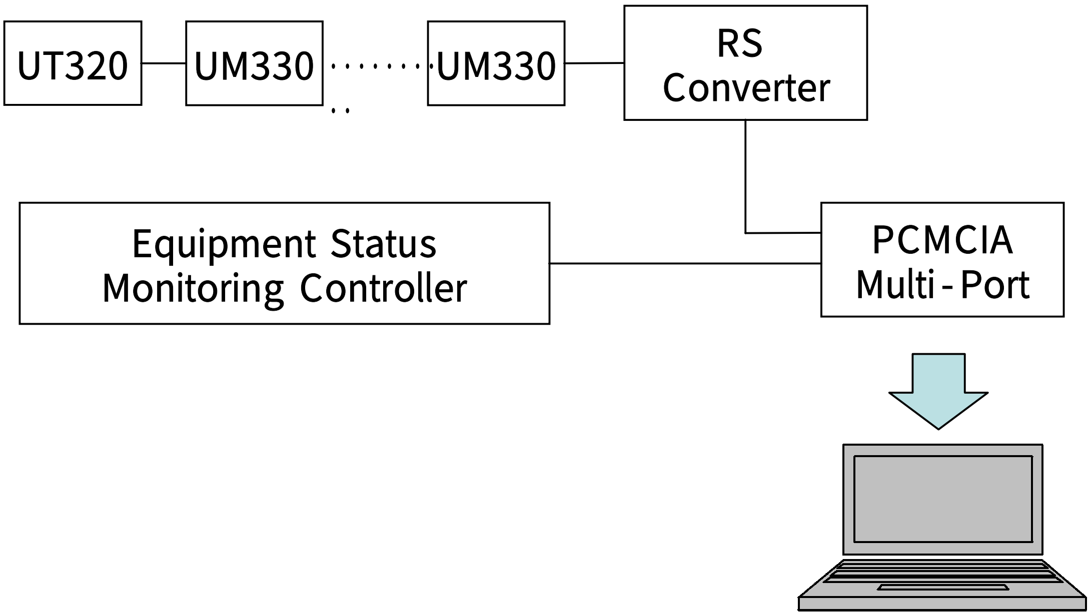

Fig. 3. Control and indication system

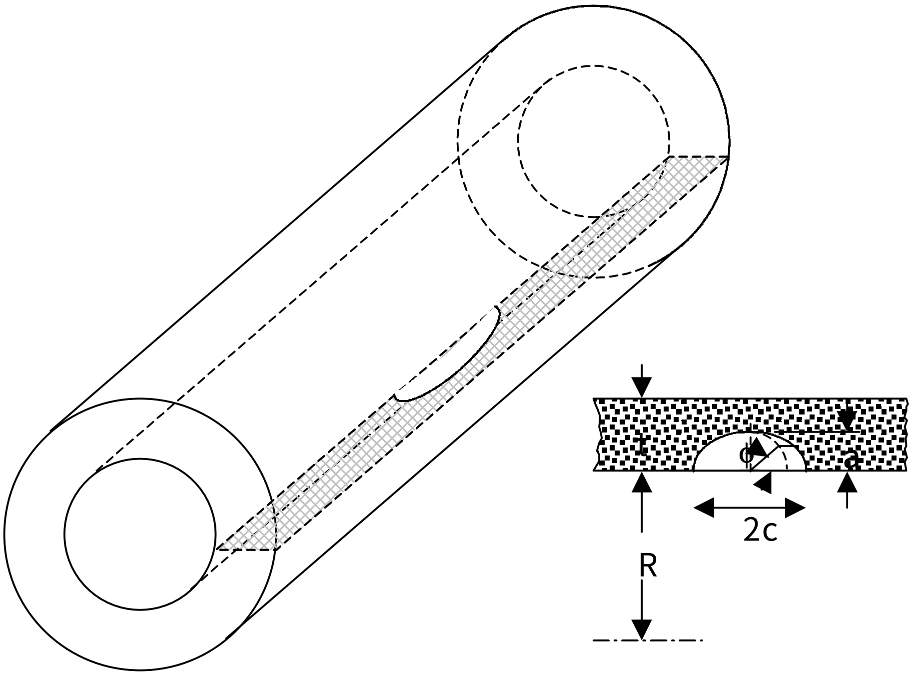

Fig. 4. Surface crack in an internally pressurized cylinder

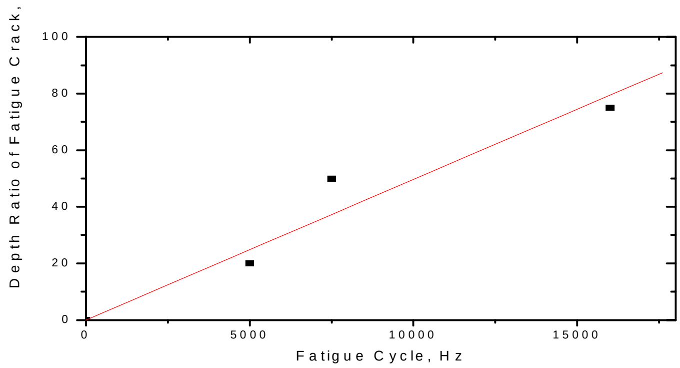

Fig. 5. Depth ratio of fatigue crack vs. fatigue cycle plots.

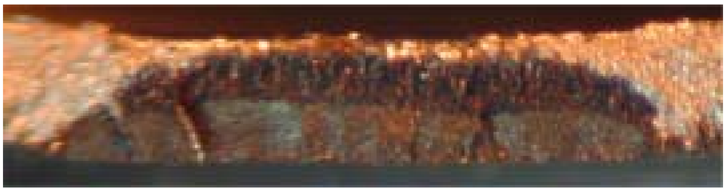

Fig. 6. Fractured surface showing the region of fatigue, ISCC and tensile rupture

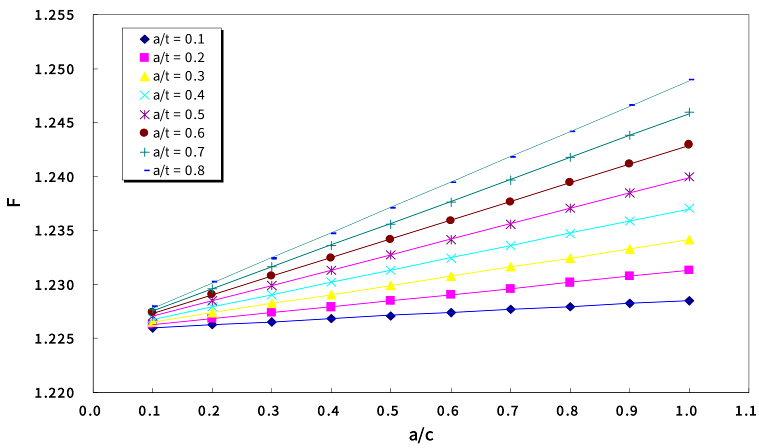

Fig. 7. Boundary-correction factor for a surface crack in a pressurized tube (t/R=0.13)

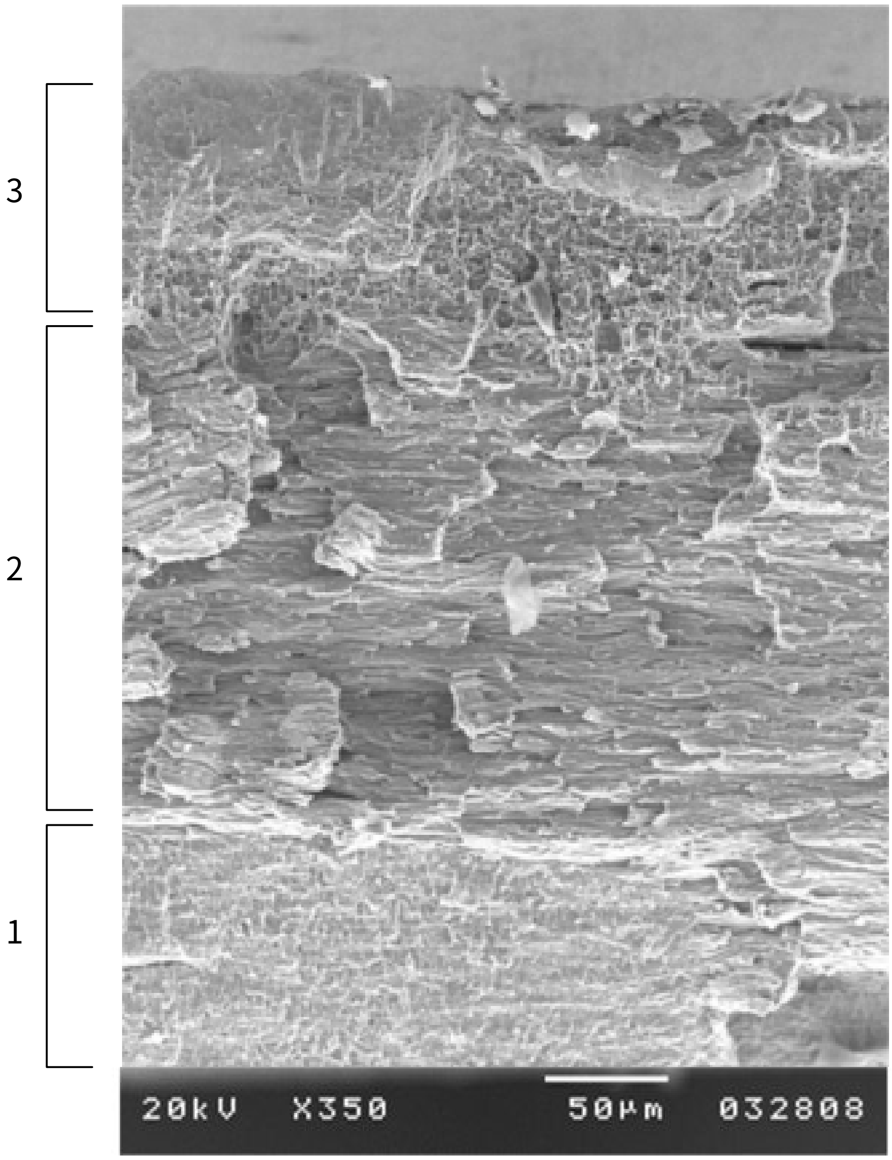

Fig. 8. Fracture surface in the defect area of a specimen tested for; 1 – fatigue crack; 2 – ISCC; 3 – ductile overload

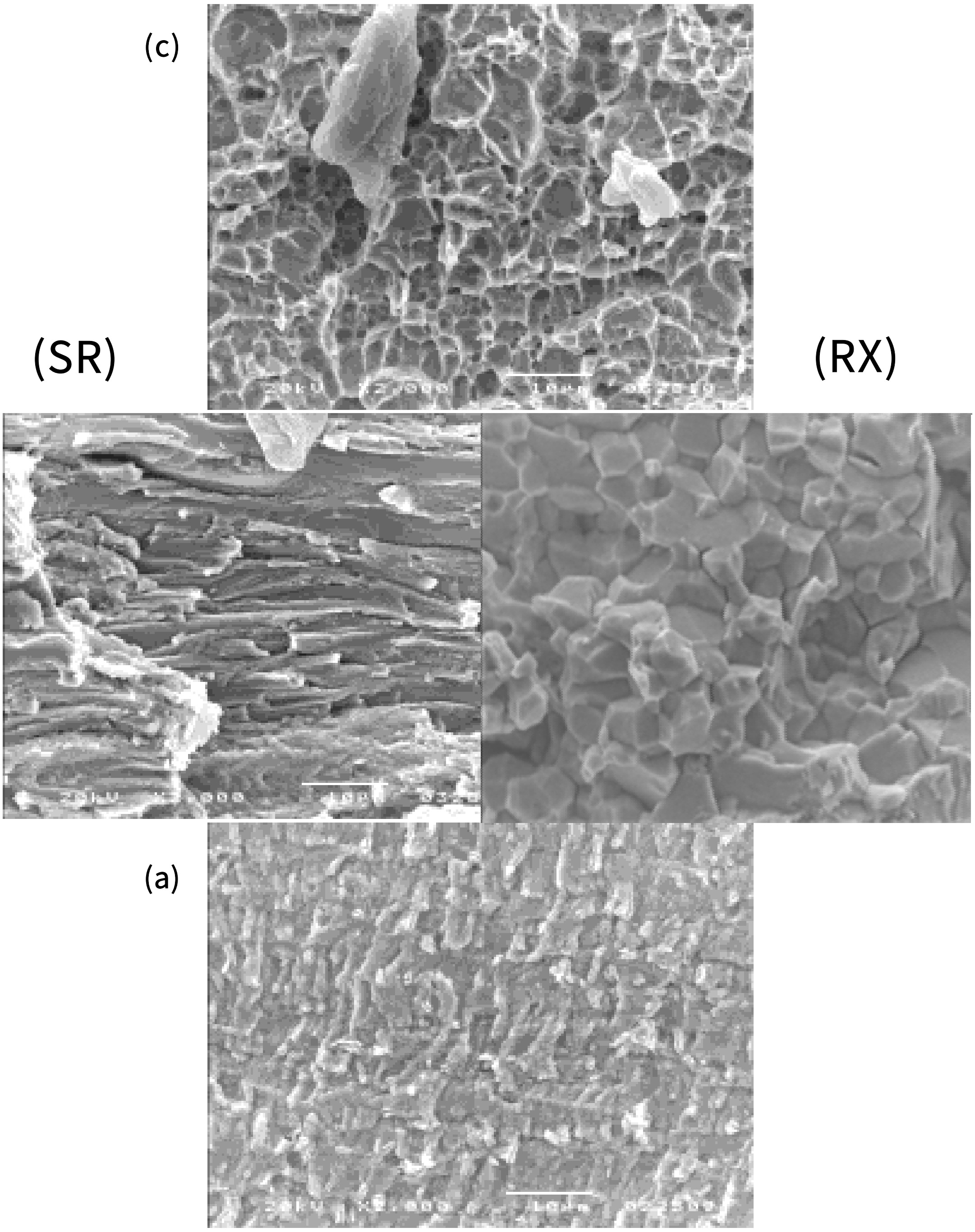

Fig. 9. Detailed fracture surface in the defect area of a specimen tested for (a) fatigue crack; (b) ISCC; (c) ductile overload

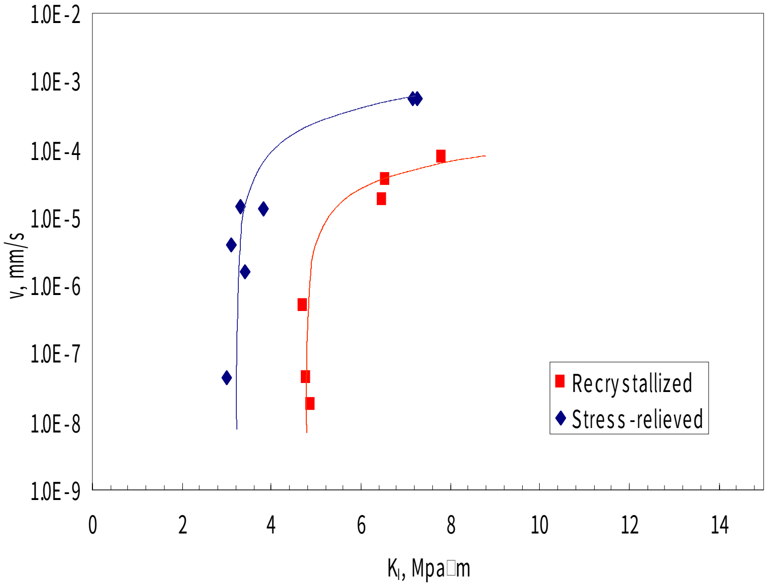

Fig. 10. Crack propagation rate versus stress intensity factor for Zircaloy-4 claddings