

2004 춘계학술발표회 논문집

한국원자력학회

지르칼로이-4 피복관의 LOCA시 변형 거동 연구

Deformation Behavior of Zircaloy-4 Cladding during Loss of Coolant Accident

김준환, 이명호, 최병권, 정용환

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

본 논문은 원자력발전소의 대표적인 설계기준 사고인 냉각재 상실사고 (LOCA) 환경에서 지르칼로이-4 피복관이 겪는 변형 거동을 연구하였다. 등온변형 시험과 가열변형 시험으로 나누어서 실험하였으며 등온변형시험의 경우 LOCA를 모사하는 수증기 분위기에서 10MPa 부터 60MPa까지 초기 원주응력을 가한 지르코늄 피복관을 등온상태에 노출시켜 파열에 이르기까지의 변형량을 측정하였으며 가열변형시험의 경우 가열하여 파열에 이르는 온도 및 변형량을 측정하였다. 지르코늄 피복관의 변형거동은 상변태와 밀접한 연관이 있었으며 α 상 영역에서는 입내 변형에 의한 결정립의 연신이 변형에 큰 영향을 차지했으며 β 상 영역에서는 입계활주에 의한 변형이 큰 영향을 차지했다. 등온변형 실험의 경우 고온영역에서 피복관의 산화현상이 발생하여 변형량의 감소가 발생하였다.

Abstract

The high temperature ballooning properties of the Zircaloy-4 cladding were evaluated at the environment simulated Loss Of Coolant Accident (LOCA) condition. Two types of test were produced. The former is the isothermal ballooning test in which initially pressurized Zircaloy-4 cladding between 10MPa and 60MPa was ballooned in high temperature steam environment. The latter is the transient ballooning in which initially pressurized cladding was heated until rupture. Burst elongation and burst temperature was measured after the test. The results showed that phase transformation between α to β has an great influence on ballooning behavior in that α phase acts transgranular slip and β phase does intergranular sliding. In case of Isothermal ballooning, oxidation has a great effect on cladding deformation.

1. 서 론

핵연료 피복관은 원자력 발전소에서 핵물질이 냉각수 내로 누출되는 것을 막아주는

중요한 노심재료로서 1990년도까지 내부식성 향상을 위하여 Low Sn 지르칼로이-4를 사용하였고 많은 연구가 진행되었다[1]. 최근에는 경제성을 향상시키고 부식속도를 지르칼로이-4보다 저감시킨 신형 피복관이 미국, 프랑스, 일본을 중심으로 활발히 개발되고 있다. 이러한 신형 피복관이 상용화되려면 원자로의 정상 상태 뿐만 아니라 사고 상태 조건에서의 안전성 또한 검증되어야 한다. 이에 입각하여 설계기준 사고 중에서 1차측 냉각 루프가 파단되어 냉각 능력을 상실하는 냉각재상실사고 (Loss of Coolant Accident, 이하 LOCA)조건에서의 피복관 성능입증은 중요한 인허가 평가요소 중 하나로 작용한다. LOCA시 노심은 수증기 분위기에 처하게 되고 피복관은 냉각재 상실에 따른 온도의 증가 및 계통 개방에 따른 내압 증가에 의해 고온변형이 발생한다[2]. 이때 변형되거나 파열된 피복관은 비상냉각수 주입시 냉각재의 유로를 막아 피복관 집합체의 냉각 능력을 저하시킬 수 있다[3]. 따라서 LOCA 조건에서 피복관의 안전성을 확보하기 위해서는 LOCA환경을 모사하는 고온 환경에서의 변형거동을 규명해야 한다. 이에 본 연구에서는 신합금 피복관의 LOCA 현상을 연구하기 위한 진단계로 LOCA 조건에서 지르칼로이-4 피복관의 고온 변형거동 특성을 연구하였으며 변형 기구를 상변태적 측면에서 규명하였다.

2. 실험방법

2-1 실험 시편

실험에 사용된 피복관은 상용급 Low Sn 지르칼로이-4를 사용하였다. 시험에 사용된 시편은 약 9.5mm의 외경과 0.57mm의 벽두께 그리고 시편 길이는 330mm로써 동일한 재질을 사용하였다.

2-2 실험 장비

LOCA 모사 시험장비는 단일 봉 시험 장비로써 Fig. 1과 같이 자체 제작하였다. 시험 시편인 피복관의 양 끝단에 멘드렐을 장착하고 약 200mm의 가열 부분(heating length)를 지정하여 전극을 연결하였다. 피복관을 가열하는 방식은 전기저항을 이용한 직접 가열법을 이용하였다. 비상노심냉각시스템(ECCS)이 작동하기 전까지 원자로내의 수증기 분위기를 모사하기 위해 증기를 발생시켜 주입하였고 고온 변형 시 피복관의 온도를 측정하기 위해서 파이로메타를 설치하였다. 모든 데이터와 변수 제어는 컴퓨터를 통해 자동적으로 제어할 수 있도록 하였다.

2-3 시험 방법

LOCA시 피복관의 거동을 연구하기 위하여 등온변형시험과 가열변형시험의 두 가지 시험 mode로 시험하였다. 등온변형시험은 초기내압을 준 피복관을 일정온도의 수증기상태에 노출시켜 파단에 이르기까지 실험하였으며 가열변형시험은 초기 내압을 준 상태에서 피복관의 온도를 1, 10, 100℃/s의 세 가지 가열 속도를 사용하여 상승시켜 파단에 이르기까

지의 온도를 측정하는 방식으로 수행하였다. Fig. 2는 각 시험 mode를 설명한 그림이다. 각 시험 공히 10~60MPa의 초기 내부 압력 하에서 시험을 수행하였고 피복관 내부에 압력을 가하기 위해 압력 제어기를 사용하여 이르곤 기체를 일정하게 주입하였다. 시험이 끝난 피복관은 파열이 발생 할 때까지의 파열온도와 파열이 일어난 부분의 변형량인 총 변형량 (total elongation)을 측정하였다. 변형량은 실을 이용하여 원주 둘레를 측정하였으며 시험이 끝난 피복관은 각 시험 조건별로 온도에 따른 총 변형량을 비교, 평가하였다.

3. 결과 및 고찰

3-1. 등온변형시험 결과

Fig. 7은 등온변형시험 후의 지르칼로이-4의 미세조직 사진이다. 700℃의 온도에서는 완전 재결정된 α 상 조직을 나타내고, 온도가 증가 할수록 α 상 결정립이 성장하는 것을 관찰 할 수 있다. 850℃의 온도에서는 상변태 온도인 약 820℃를 지났기 때문에 β 상들이 α 상 결정립계에 우선적으로 형성되는 것을 관찰 할 수 있다. 그러나 낮은 ($\alpha+\beta$) 이상영역 온도로 인하여 기지조직은 대체로 α 상을 유지하며 α 상 결정립계 주위에 β 상이 소량 존재하는 것으로 관찰된다. 900℃ 온도 구역에서는 높은 ($\alpha+\beta$) 이상영역 온도로 인하여 β 상이 α 상 결정립계뿐만 아니라 α 상 결정립 내에 까지 크게 성장했음을 관찰할 수 있는데 이는 지르코늄의 상변태 거동과 일치하는 것으로 나타났다. 지르코늄의 온도에 따른 상변태의 거동은 시험온도 900℃와 950℃사이에서는 β 상의 분율이 증가하고, 950℃ 이상에서는 완전 β 상이 존재하게 된다[1]. 1100℃와 1200℃ 온도의 고온에서는 β 상의 결정립이 성장함을 관찰할 수 있다.

Fig. 3은 등온상태에서 온도에 따른 Zircaloy-4 피복관의 변형량을 나타낸 그림이다. 편차를 보이는 이유는 시험도중 축방향 뿐만 아니라 원주방향으로 온도구배가 생겨서 이것이 국부 가열되는 지점을 유발하여 피복관 변형거동이 편차를 보이고 있음으로 알려져 있다[2]. 그러나 이러한 편차에도 불구하고 온도에 따른 변형거동이 일련의 추세를 보이고 있음을 확인할 수 있다. Fig. 3에서 피복관의 변형량이 온도에 따라 peak를 보이는 이유를 피복관의 상변태로 설명할 수 있다. 온도가 600℃에서 800℃로 증가할수록 피복관은 단상영역에서 결정립의 성장으로 인하여 연성이 증가하는 거동을 보인다. 시험온도가 800℃ 이상일 때 피복관이 단상에서 β 상을 포함하는 상으로 천이되어 이것이 피복관의 연성을 방해하는 요인으로 작용하여 피복관의 연성은 감소하게 된다.

Fig. 4는 등온변형시험에서 피복관의 인가 원주응력 및 파단시간과의 관계를 도식한 그림이다. 피복관의 인가응력 및 파단시간의 관계를 creep-rupture curve로 model화 할 수 있으며 그 관계식은 다음과 같다.

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

본 연구에서 피복관의 온도에 따른 파단시간의 활성화 에너지는 약 23.4kcal/mol이 나왔으

며 이를 피복관의 파단시간 및 파단응력에 정규화 (normalization)한 결과 응력지수는 1.28 이 나왔다. 일반적으로 지르코늄 합금의 응력지수가 4에서 5이면 전위이동에 의한 creep으로 생각할 수 있으며 응력지수가 낮아져 1에 이르면 입계, 또는 입내의 공공(vacancy)의 확산에 의한 변형기구가 전체 변형을 주도하게 된다 [4]. 이에 단상인 α 영역에서의 피복관의 변형이 확산 creep에 의한 결정립의 변형에 기인하는 것으로 생각된다.

Fig. 8은 등온변형 시험 후 지르칼로이-4 피복관의 파단면 사진이다. 800°C 이하에서는 피복관은 단상영역을 보이며 온도의 증가에 따라 결정립의 성장과 변형에 따른 연신을 보이고 있으며 2상 영역인 900°C에서 결정립 주위에 형성된 β 상이 α 상의 연신을 구속함이 확인되고 있다. 시험 온도가 상승에 따라 산소 흡수의 활성화로 인한 취화와 산화층의 성장에 의한 oxide-induced necking[5]의 존재로 인하여 피복관은 일정이상 연신되지 못하고 파단되게 됨이 Fig. 9에서 확인되고 있다.

3-2. 가열변형시험 결과

Fig. 5는 가열변형 시험에서 인가 원주응력 및 파열온도와의 관계를 도시한 그래프이다. 인가원주응력이 클수록 파열에 이르는 온도는 낮아지는 경향을 보이고 있으며 가열속도가 높은 경우 높은 가열속도를 상쇄할 만한 높은 온도에서 파열이 일어나게 된다. 인가압력 및 파단온도와의 관계는 다음과 같다[6].

$$T_R = 3960 - \frac{20.4\sigma}{1+H} - \frac{8,510,000\sigma}{100(1+H) + 2790\sigma} \quad (2)$$

여기서 T_R 은 파열온도(°C), σ 는 인가 원주응력 (kpsi), H 는 가열속도를 28°C/sec로 나눈 값이다.

Fig. 6은 가열 변형 조건에서 파열온도에 따른 피복관의 변형량을 나타낸 그림이다. 등온변형시험과 다르게 700°C와 1100°C에서 두 개의 최대 변형량이 관찰되었다. 첫 번째 peak는 3-1에서 설명한 바와 같이 단상 α 에서 혼합상인 ($\alpha+\beta$)로 변태함에 따라 상변태에 의하여 피복관의 연성이 온도의 증가에 따라 점차적으로 감소하게 되는 것으로 생각할 수 있다. 이렇게 감소한 연신율은 온도가 상승하여 단상인 β 영역에 도달하였을 때 다시 회복하는 거동을 보이는데 이는 변형거동이 전위의 입내 이동보다는 입계활주에 의존하는 것으로 생각된다. 이를 확인하기 위해 피복관 표면에 미세한 선을 긋고 각 온도에서 피복관이 변형되었을 때 선의 변화를 관찰하였다. 만약 피복관이 결정립계 sliding에 의한 변형을 일으킨다면 그 선은 그 형태를 유지하지 못하고 약간씩 회전하거나 꺾인 양상을 보일 것이다. Fig. 9 (b)는 변형된 지르칼로이-4 피복관의 표면을 SEM으로 관찰한 사진이다. α 상 영역에서 변형된 피복관의 경우에는 선이 끊기지 않고 변형된 것을 관찰하였지만 β 상 영역에서 변형된 피복관은 선이 꺾어지고 끊어졌을 뿐 아니라 선의 폭도 시험 전에 비하여 매우 넓어졌음을 관찰할 수 있었다[6]. 이는 입계 sliding을 통하여 변형이 발생되어 초기에 그 선이 꺾어졌을 뿐 아니라 피복관 내부의 입계가 외부로 노출되면서 이것이 선의 폭을 넓히는 요인으로 작용한 것으로 보인다. 파열온도가 높아져 β 상의 크기가 일정 크기 이상일 때는 더 이상 결

정립계 sliding이 용이하지 않기 때문에 피복관의 변형량은 감소하게 되어 이것이 2번째 peak를 만들게 된다. 이러한 경향은 가열속도가 100°C/sec로 빠른 경우에 더욱 뚜렷이 나타나고 있으며 1°C/s의 느린 가열 속도에서는 가열속도에 의한 영향보다는 산화에 의한 영향이 크기 때문에 고온의 β 상에서는 변형 거동을 관찰할 수 없었다[2].

4. 결 론

LOCA 환경시 지르칼로이-4 피복관은 상변태에 따라 변형거동이 지배받으며 α 상까지는 온도의 상승에 따라 확산 creep에 의하여 결정립이 연신되는 기구로 변형량이 증가하게 된다. $\alpha+\beta$ 이상 영역에서는 α 상 단상 주위에 형성된 β 상이 α 상의 연신을 구속함에 따라 변형량은 감소하게 된다. 온도가 상승하여 β 상 영역에 도달하면 입계활주 기구에 의하여 피복관의 연성은 다시 회복하는 거동을 보인다. 1100°C 이상 고온에서 수증기 노출시간이 길어질 경우에는 표면에 고온산화 반응에 의한 산소취화의 영향으로 피복관의 연성은 감소하게 된다.

후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업인 “지르코늄합금 핵연료피복관 개발” 과제의 일환으로 수행되었음.

참고문헌

- [1] S. B. Choi, D. H. Lee and S. I. Kwun, Met & Mater., 3, 153 (1977)
- [2] E. J. Ebacher and S. Leistikow, ASTM STP 939, (1987), 451
- [3] E. J. Erbacher, H. J. Neitzel and K. Wiehr, ASTM STP 681, 429 (1979)
- [4] D. G. Franklin et al., ASTM STP 815, 30 (1983)
- [5] M. Boček, P. Hofmann and C. Peterson, ASTM STP 633, 66 (1977)
- [6] D. A. Powers and R. O. Meyer, NUREG-0630, 10 (1980)

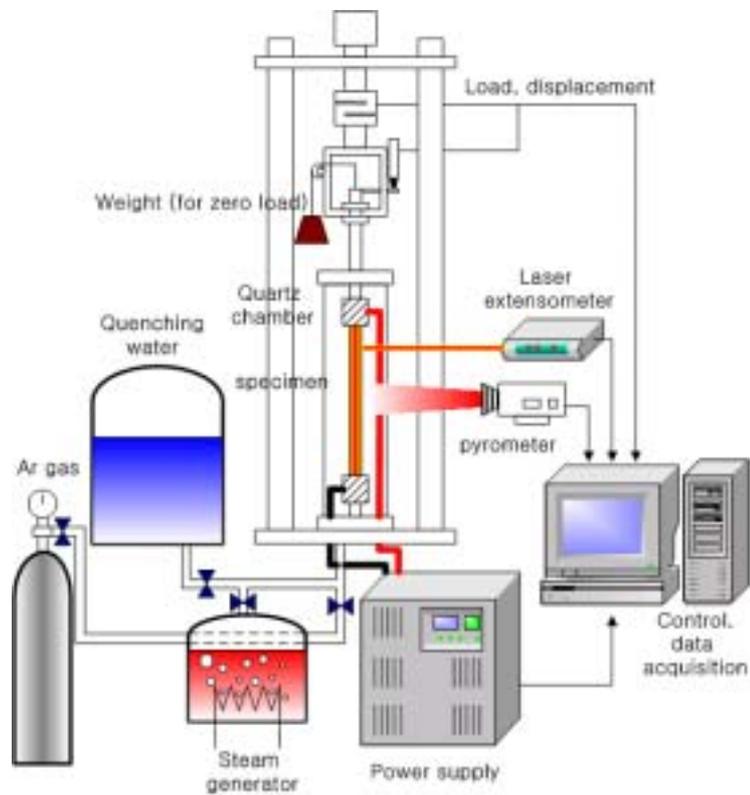


Fig. 1 Schematic illustration of LOCA facility

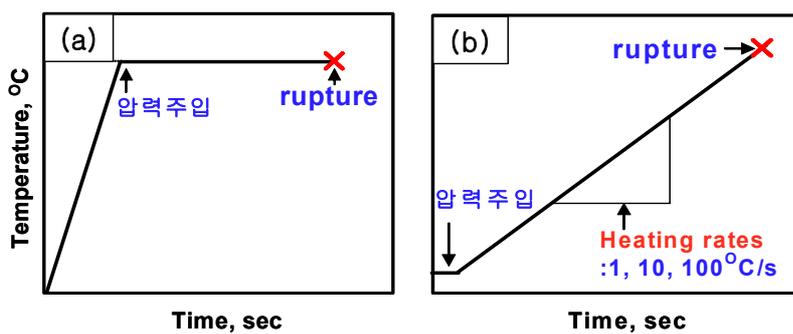


Fig. 2 Schematic illustration of test mode in high temperature burst test

(a) isothermal (b) transient heating test

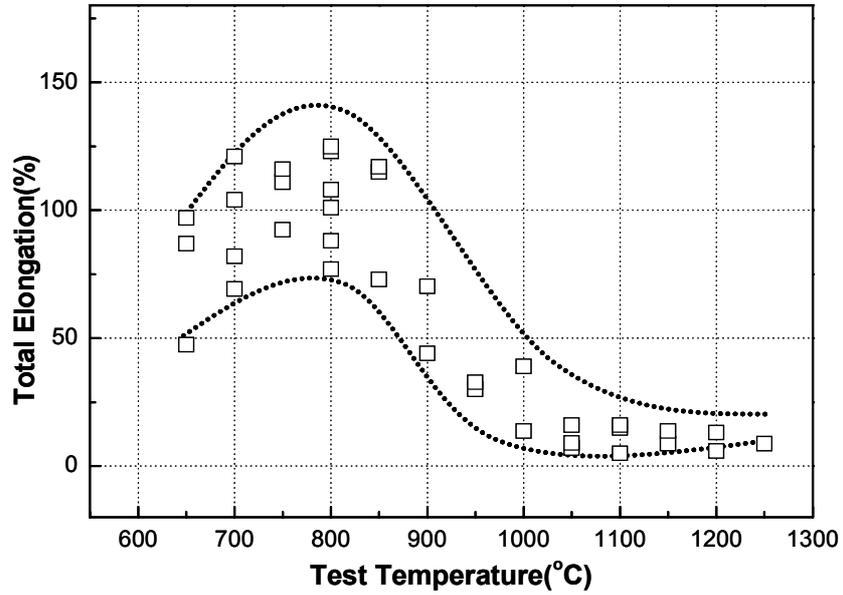


Fig. 3 High temperature burst property of Zircaloy-4 cladding under isothermal condition

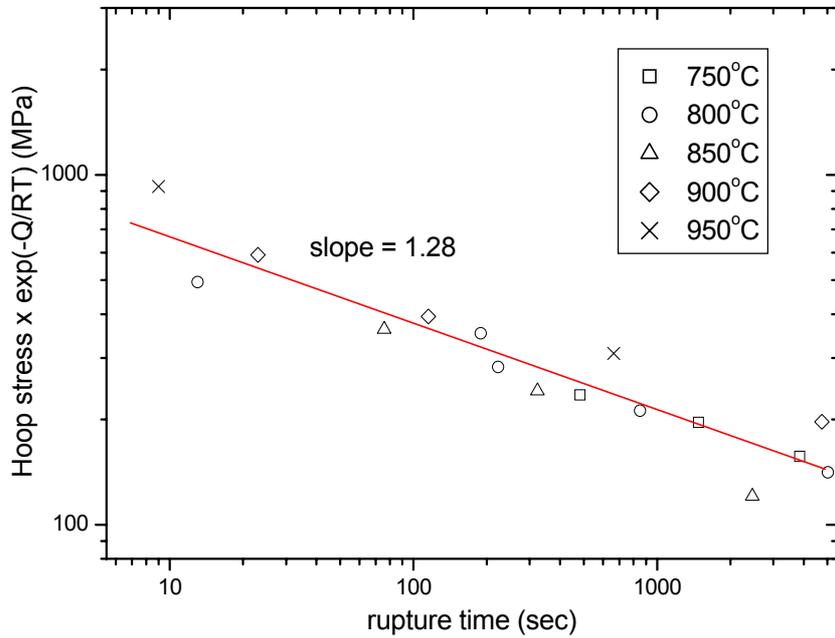


Fig. 4 Relationships between applied hoop stress and rupture time in isothermal ballooning test

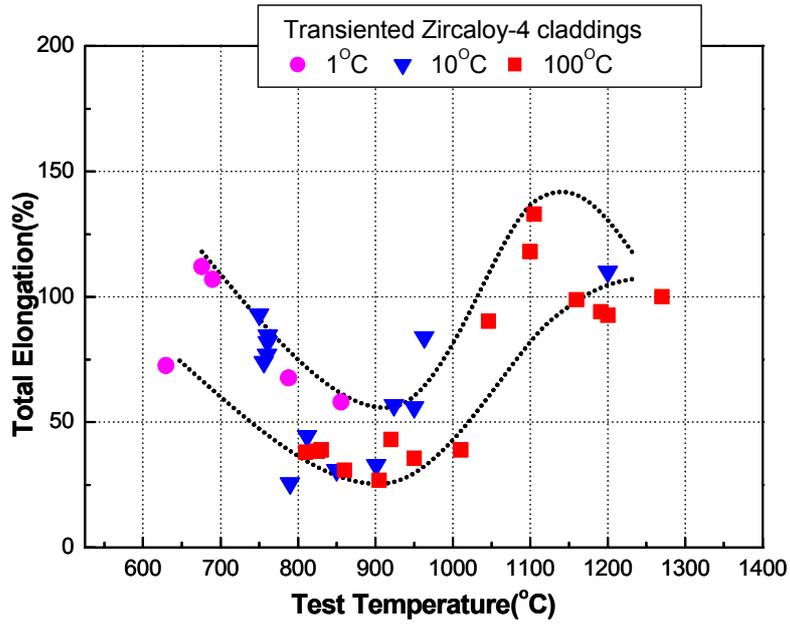


Fig. 5 High temperature burst property of Zircaloy-4 cladding under transient heating condition

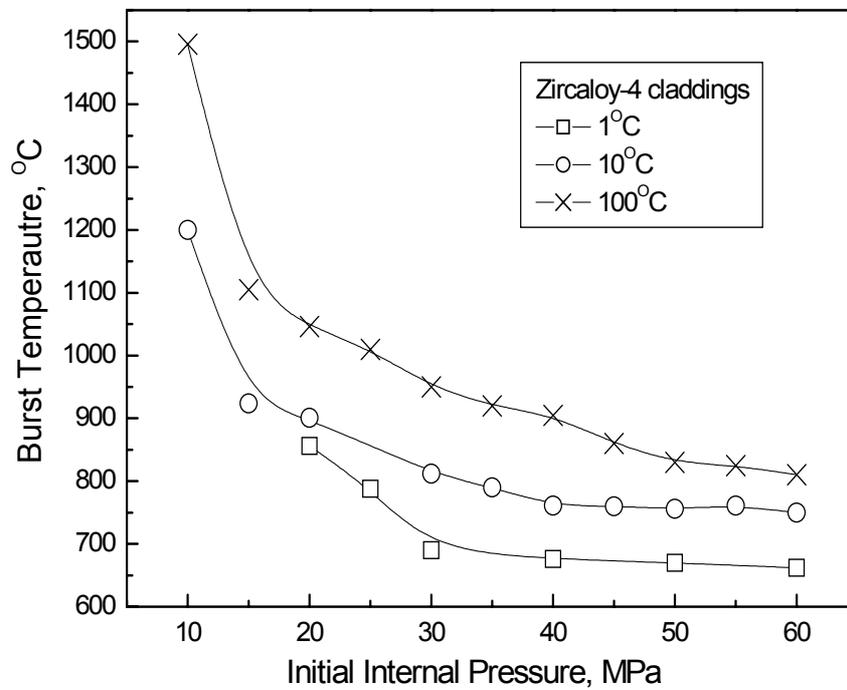


Fig. 6 relationship between initial pressure and burst temperature

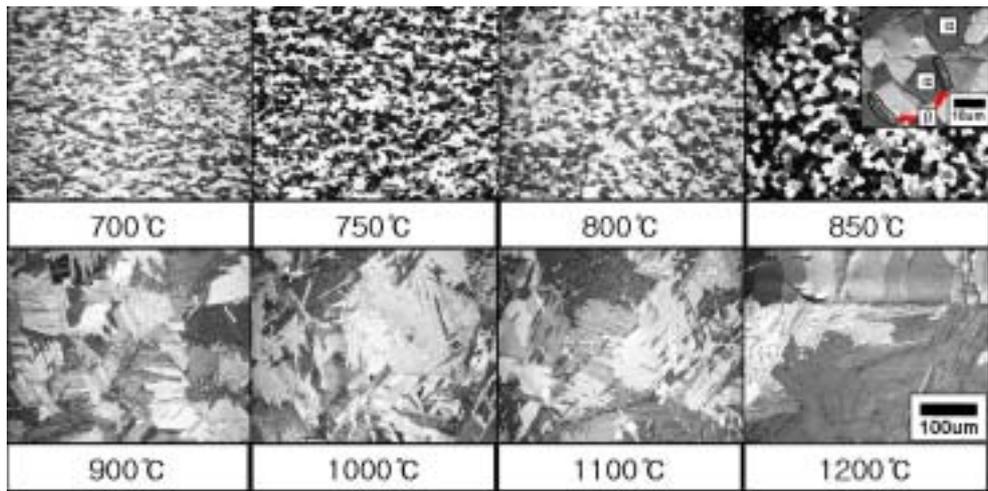


Fig. 7 Optical microstructures of Zircaloy-4 of various test temperature

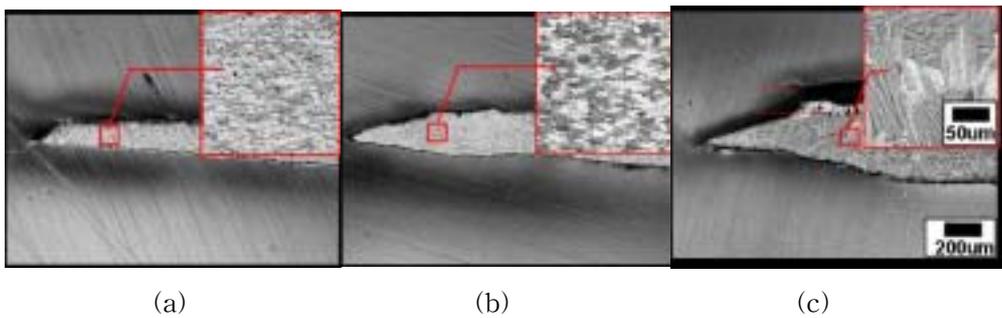


Fig. 8 Fracture tip of bursted Zircaloy-4 (a) 800°C (b) 900°C (c) 1200°C

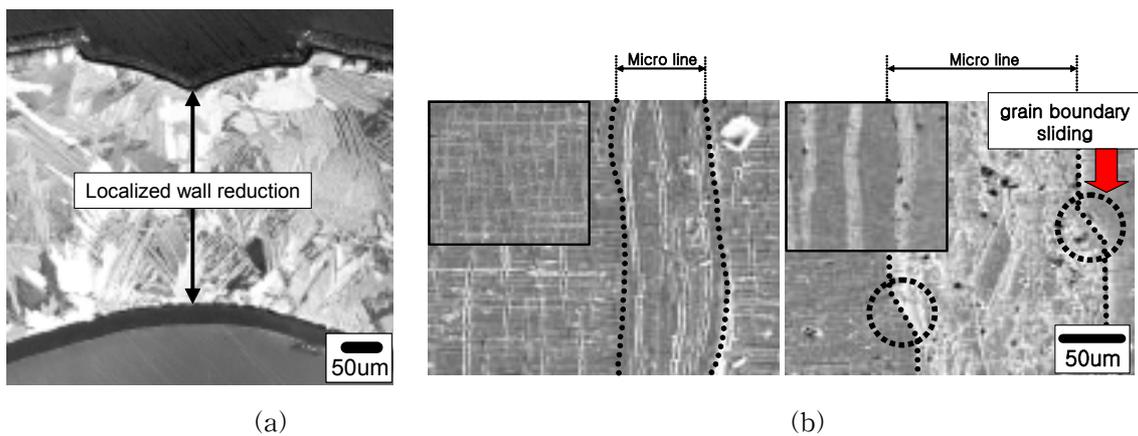


Fig. 9 (a) localized wall thinning caused by oxide induced necking in isothermal ballooning test. Test performed at 1200°C (b) Surface observation of Zircaloy-4 at transient heating test. left : at 700°C, right : at 1200°C