

지르코늄 피복관의 반응도사고 (RIA) 모사 노외시험

Out-of-pile Test of Zirconium Cladding
simulating Reactivity Initiated Accident

김준환, 이명호, 최병권, 방제건, 정용환
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

본 논문은 핵연료계통의 대표적인 설계기준사고인 반응도사고(RIA)시 지르코늄 피복관이 겪는 거동을 링 인장시험을 통하여 연구하였다. 지르칼로이-4와 Nb를 첨가한 신형 피복관의 고연소도 환경을 모사하기 위하여 수소를 장입한 후, 원주방향으로 인장시편을 가공하여 반응도사고를 모사할 수 있는 빠른 변형속도인 0.01, 0.1, 1/sec의 변형속도로 인장시험을 수행하였다. 수소장입량이 많아지고 변형속도가 빨라질수록 지르코늄 피복관의 강도는 최대 7.8% 증가한 반면 연성은 최대 34% 정도 감소하는 경향을 보였다. 본 논문은 향후 모사 고연소도 피복관에 대한 반응도사고 노외시험 계획을 기술하였다.

Abstract

Mechanical properties of zirconium cladding such as Zircaloy-4 and advanced cladding were evaluated by ring tension test to simulate Reactivity-Initiated Accident (RIA) as an out-pile test. Cladding was hydrided by means of charging hydrogen up to 1000ppm to simulate high-burnup situation, finally fabricated to circumferential tensile specimen. Ring tension test was carried out from 0.01 to 1/sec to keep pace with actual RIA event. The results showed that mechanical strength of zirconium cladding increased at the value of 7.8% but ductility decreased at the 34% as applied strain rate and absorbed hydrogen increased. Further activities regarding out-of-pile testing plans for simulated high-burnup cladding were discussed in this paper.

1. 서 론

반응도사고 (Reactivity Initiated Accident, 이하 RIA) 란 핵연료의 반응도를 제어하는 제어봉이 구동장치의 파손 등에 의하여 외부로 인출되어 핵연료 계통의 반응도가 급격히 변하는 사고를 일컫는다. RIA시 핵연료 피복관은 단열상태에서 높아진 반응도에 의한

핵연료의 급격한 온도상승에 의하여 급격한 온도상승 및 팽창, 핵연료 파손에 의한 기계적 손상 등을 겪게 된다. 이러한 RIA는 특히 고연소도 피복관의 안전 여유도를 줄이는 요인으로 작용하는데 그 이유는 고연소도 환경에서 표면에 형성된 산화막이 피복관의 두께를 감소시켜 하중지지에 필요한 두께를 감소시키고 더불어 부식에 의하여 피복관 내부에 형성된 수소화물이 피복관의 연성을 크게 떨어뜨리기 때문에 RIA와 같은 과도상태에 특히 취약하기 때문이다.

RIA시 반응도 변화에 의한 핵연료봉 출력 peak가 대략 0.1msec이고 온도의 변화폭이 수 초간 1000℃정도 상승하는 그 특수성[1]으로 인하여 노외시험을 통한 완전한 모사는 어려운 실정이다. 여러 국가에서 RIA를 모사하는 여러 시험을 수행하였는데 프랑스[2]에서는 유도 coil을 이용하여 급격한 온도변화를 통한 피복관의 기계적 성질을 측정하였고 스웨덴[3] 및 러시아[4]에서는 고속 링 인장시험을 통하여 피복관의 기계적 물성변화를 측정하는 연구를 수행하였다. 본 연구에서도 개발된 신형 피복관인 K-피복관의 RIA시 거동을 평가하는 사전 단계로 지르코늄 피복관에 대한 링인장시험을 수행하였고 향후 RIA 노외시험 계획에 대하여 기술하였다.

2. 실험방법

2-1. 실험 재료 및 수소장입

실험에 사용된 피복관은 상용급 Low tin 지르칼로이-4 및 Nb가 첨가된 신형피복관 A를 사용하였다. Table 1에 각 피복관의 합금조성을 나타내었다. 고연소도를 모사하는 수소화물을 장입하기 위하여 65mm로 피복관을 절취한 후, gas 분압을 이용한 방법으로 피복관에 0, 300, 600, 1000ppm의 목표량으로 수소를 장입하였다. 장입 후 피복관의 양 끝과 가운데 부분에 대한 수소분석을 수행하였다.

2-2. 링 인장시험

수소화물을 장입한 피복관의 연성을 평가하기 위하여 링인장 시험을 수행하였다. Fig. 1과 Table 2에 링 인장시험에 대한 개략도와 시험 matrix를 실었다. 수소를 장입한 시편을 가로방향으로 절취하여 폭 1.7mm, 표점거리 (gage length) 2.11mm인 링 인장시편을 제작하였다. 피복관을 원주방향으로 인장시험을 수행한 이유는 RIA시 피복관의 급격한 팽창이 원주방향으로 일어나기 때문에 이를 모사하고자 하기 때문이었다. RIA시 피복관의 온도와 변형량이 짧은 시간내에 급격히 변하기 때문에 상업로로 온도를 변화시키는 것은 오히려 급격하지 않은 온도변화가 불필요한 시편의 annealing, 수소화물의 재배열 및 조직의 재결정을 유발하여 RIA 모사를 방해하는 요인으로 작용할 수 있다. 이에 본 연구에서는 상온에서 변형속도의 변화에 따라 피복관의 기계적 연성을 평가하였다. 제작한 링 인장시편을 재료시험기에 연결하여 0.01, 0.1, 1/sec의 변형속도로 인장시험을 수행하였다. 변형속도는 crosshead의 속도에 표점거리를 나누어서 구하였다. 링 인장시험은 grip과 피복관 사이에

pin을 연결한 후 당겨서 시험하였으며 당기는 동안 피복관이 안쪽으로 bending되어 형태가 왜곡되는 것을 방지하기 위해 I 형태의 beam을 피복관에 삽입하여 시험도중 피복관의 형태가 일정하게 유지되게 하였다[4]. 수소장입양이 위치별로 차이가 존재하고 시편의 크기가 작은 특성상 시험결과가 동일 조건이더라도 산포를 일으킬 수 있다. 이에 본 연구에서는 동일 조건에 대하여 시험을 3번 실시한 후 각각의 값을 평균하여 나타내었다. 링 인장시편은 ASTM 표준 시편이 아니며 작은 시편의 특성상 gage length 외에 pin 지지부분에서도 변형을 일으킬 수 있다. 이에 파단 길이를 종래의 gage length로 나누어서 연성을 나타내는 방법으로는 연성을 효과적으로 나타낼 수 없어 연성은 피복관이 파단을 일으켰을 때의 crosshead 위치변화로 표시하였다. 시험이 끝난 후 파단된 피복관에 대한 광학현미경 및 주사전자 현미경 (SEM) 관찰을 수행하였다.

3. 실험 결과 및 향후 방향

3-1. 링인장시험 결과

Fig. 2는 파단 후 링인장 시편에 대한 사진이다. 수소 미장입인 경우에는 시편이 표준규격 시편이 아니고 시편의 크기가 매우 작기 때문에 변형이 gage length가 아닌 부분에서 일어날 수 있다. 또한 평면응력 상태가 시편의 폭으로 작용할 수 있기 때문에 수소 미장입시 파단 mode는 일반적 cup and cone 파단 외에 시편의 폭을 따라 45° 전단방향으로 파단되는 경향을 보인다. 수소를 장입한 경우에는 취성파괴에 의하여 시편은 별다른 추가 연신 없이 하중방향과 수직한 방향으로 파단이 일어나는 경향을 보인다.

Fig. 3은 변형속도에 따른 지르칼로이-4와 신형 피복관 A의 기계적 성질을 수소함량에 따라 나타낸 그림이다. 수소를 장입한 경우 변형속도의 증가에 따라 항복응력의 증가 및 파단연성의 감소현상이 현저히 관찰되었다. 수소 미장입인 경우 두 합금간의 기계적 성질차이가 두드러지지 않았으나 수소를 장입한 경우, 지르칼로이-4가 A보다 항복응력의 증가가 두드러졌으며 파단연성도 A보다 다소 감소함이 관찰되고 있다. 이는 첨가한 Nb가 수소흡수 및 수소취성을 어느정도 저지함으로 생각되고 있다[5]. Table. 3은 정상상태 운전을 가정한 0ppm 수소장입과 0.01/sec 변형률 일때와 RIA상태를 모사하는 1000ppm 수소장입과 1/sec 변형률에서의 지르코늄 피복관의 기계적 성질의 변화를 나타낸 표이다. 모사 RIA 상태일때 지르칼로이-4의 경우 7.8%의 강도 증가 및 34.3%의 연성 감소가 관찰되었으며 A 피복관의 경우 5.7%의 강도증가와 32.7% 연성의 감소가 관찰되어 앞서 기술한바와 같이 Nb가 첨가된 피복관이 모사 RIA에서 기계적 성질이 지르칼로이-4 피복관보다 다소 나은 거동을 보였다.

Fig. 4는 수소함량에 따른 지르코늄 피복관의 기계적 성질의 변화를 나타낸 그림이다. 수소를 장입하였을 때 초기에 항복응력이 커지고 파단연성이 감소하는 것과 같은 기계적 성질의 변화가 크게 나타났으나 수소량의 증가에 따라 기계적 성질의 변화폭이 감소하였다. 이는 초기에 고용된 수소량이 없기 때문에 적은양의 수소로도 수소취성에 의한 기계적

성질의 변화가 크게 나타나나 수소고용도가 일정수준 이상에서는 더 이상의 수소흡수에서도 기계적 성질의 변화가 포화상태에 이르는 것으로 생각되고 있다. Table 4는 변형속도와 수소함량에 따른 링인장 시편의 취성과파단 비율을 조사한 표이다. 수소미장입 시편에서는 변형속도의 변화에 관계없이 취성과파단이 나타나지 않았으나 수소함량이 높아질수록 전체시편 중 취성과파단을 일으키는 시편의 양이 많아졌으며 변형속도가 높아질수록 동일한 수소함량에서도 취성과파단을 일으키는 시편의 비율이 높아짐을 관찰할 수 있었다.

Fig. 5는 수소 미장입 시편과 1000ppm 수소를 장입한 시편의 파단사진을 광학현미경으로 관찰한 결과이다. 수소 미장입인 경우에는 cup and cone 형상이 시편두께를 통하여 관찰되었으며 1000ppm 수소를 장입하여 취성과파단에 이른 시편의 경우에는 하중방향과 수직인 방향으로 균열이 진행하였으며 균열이 수소화물 주위에서 집중되는 양상을 보였다. 수직하게 진행한 균열은 일정 길이 전과 후 응력상태가 평면변형에서 평면응력으로 전환되어 최종적으로 잔여 ligament부근에서 45° 방향으로 파손된 양상을 보인다. Fig. 6은 수소 미장입 시편과 1000ppm 수소장입한 시편의 파단된 표면을 주사전자현미경으로 관찰한 결과이다. 수소 미장입 시편인 경우 딩플(dimple)이 많이 형성된 반면 1000ppm 수소 장입한 시편의 경우, 딩플의 숫자가 확연히 줄어든 것이 관찰되었고 간간히 미세한 취성과파단의 징후가 관찰되었으며 저배율 상에서 수소화물 주위와 기지조직간 계면간의 박리현상 (decohesion)이 관찰되었다. Table. 4에서 높은 변형속도에서 취성과파단의 비율이 높게 나온 결과가 이러한 박리현상이 낮은 변형속도보다는 높은 변형속도에서 두드러지게 일어난 것으로 생각된다.

3-2. 향후 시험방향

Fig. 7은 RIA 노외시험과 관련된 향후 연구방향을 나타낸 그림이다. 고연소도 피복관의 특징이 수소화물과 더불어서 표면에 형성된 산화막의 복합영향이 있으므로 수소화물 장입과 아울러 모사 산화막 시편과 산화막과 수소화물 복합 시편에 대한 링인장 시험을 계획 중에 있다. 아울러 균열이 있는 피복관의 축방향 균열진전 저항성을 평가하는 pin loading test[6]도 계획하고 있다.

4. 요약

고연소도를 모사한 수소장입 피복관에 대하여 RIA를 모사하는 링인장시험 결과, 수소화물의 장입에 따라 지르코늄 피복관은 수소취성과 함께 수소화물과 기지조직간의 박리현상에 의하여 높은 수소함량과 빠른 변형속도에서 피복관의 취성 파단현상이 나타났다. 지르칼로이-4보다는 Nb를 첨가한 신형 피복관에서 수소흡수 저항성이 관찰되어 신형 피복관이 모사 RIA시 기계적 성질이 어느정도 개선된 양상을 보였다. 향후 수소화물 외에 산화막의 영향, 수소화물과 산화막 복합영향에 대한 실험을 계획하고 있으며 향후 피복관의 파괴인성을 측정할 수 있는 pin loading test도 아울러 고려하고 있다.

후 기

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

참고문헌

- [1] P. E. MacDonald et al., Nuclear Safety, 21, 5, 582 (1980)
- [2] P. Yvon et al., IAEA Technical Meeting on Fuel Behavior under Transient and LOCA conditions
- [3] A. B. Cohen et al., 25th Water Reactor Safety Meeting, 133 (1997)
- [4] L. Yegorova et al., 29th Water Reactor Safety Meeting, 343 (2002)
- [5] J. H. Kim et al, submitted for J. of Kor. Inst. Met. & Mater. (2004)
- [6] V. Grigoriev et al., Scripta Metallurgica et Materialia. 33, 1, 109 (1995)

Table. 1 Chemical Composition of experimental alloys

	Nb	Sn	Fe	Cr	O	Zr
Zircaloy-4	-	1.3	0.21	0.1	0.13	bal.
A	1.0	1.0	0.1	-	-	bal.

Table. 2 Test matrix of this study

		0	300	600	1000ppm
0.01/sec	Zircaloy-4	○	○	○	○
	A	○	○	○	○
0.1/sec	Zircaloy-4	○	○	○	○
	A	○	○	○	○
1/sec	Zircaloy-4	○	○	○	○
	A	○	○	○	○

Table. 3 Change of mechanical properties with strain rate and absorbed hydrogen

		0 ppm, 0.01/sec	1000ppm, 1/sec	change (%)
Zry-4	UTS (MPa)	698.46	753.12	+ 7.8
	d _f (mm)	0.985	0.647	-34.3
A	UTS (MPa)	709.98	750.28	+ 5.7
	d _f (mm)	1.014	0.682	-32.7

Table. 4 Fraction of brittle fracture after test

(%)		0.01/sec	0.1/sec	1/sec
0ppm	Zry-4	0	0	0
	A	0	0	0
300ppm	Zry-4	66	0	0
	A	0	50	100
600ppm	Zry-4	0	33	100
	A	0	33	66
1000ppm	Zry-4	0	66	100
	A	0	33	100

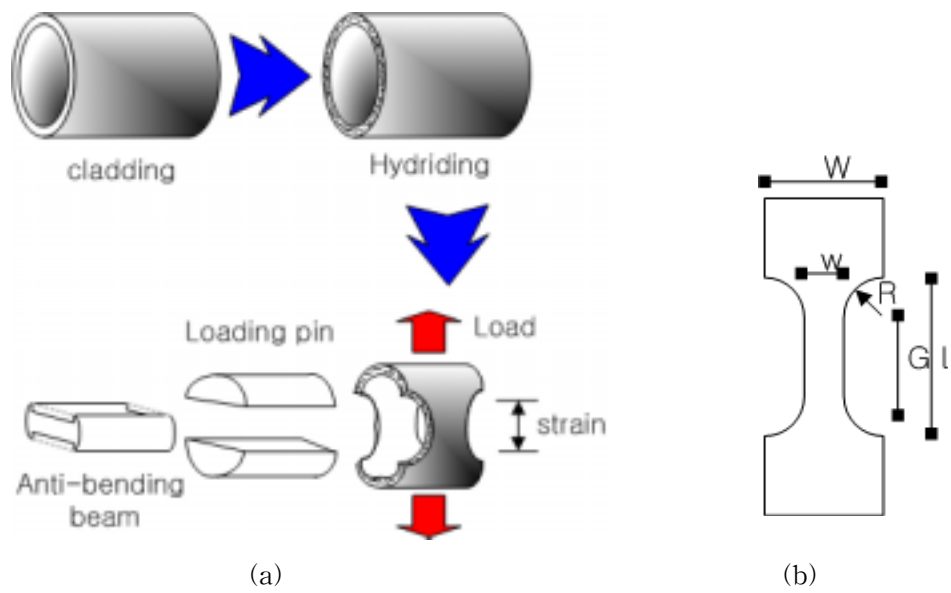


Fig. 1 (a) Schematic illustration of ring tension test of hydrided cladding (b) Geometry of ring tension specimen ($W:4.27\text{mm}$, $w:1.70\text{mm}$, $L:4.27\text{mm}$, $G:2.11\text{mm}$, $R:1.08\text{mm}$)

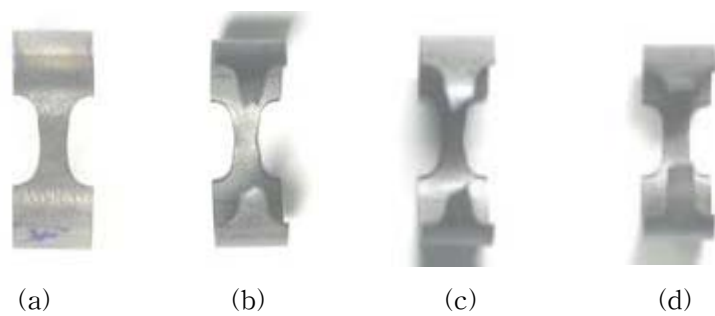
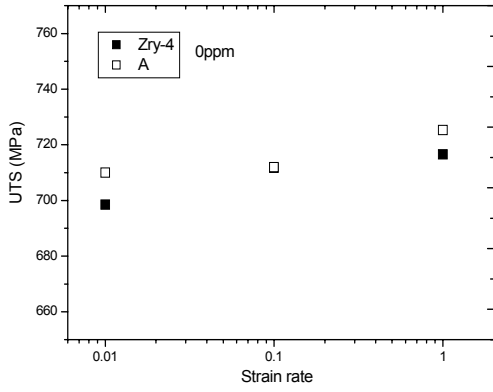
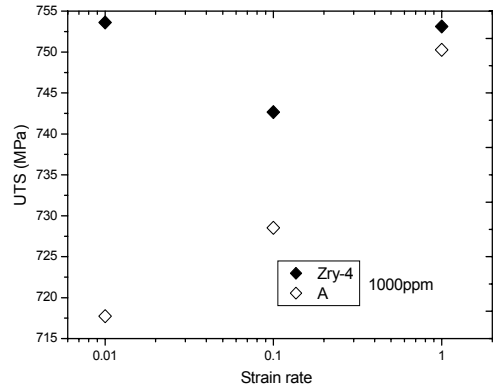


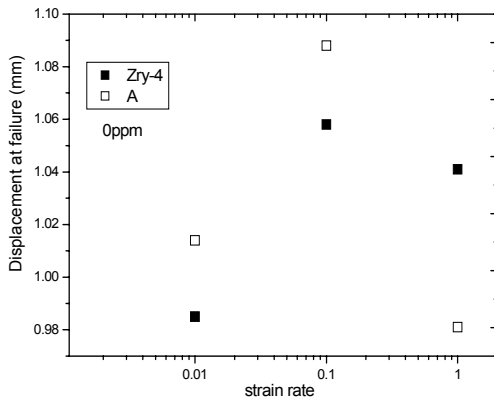
Fig. 2 ring tension specimen (a) before test and (b) cup and cone (c) 45° shear (d) brittle fracture after test



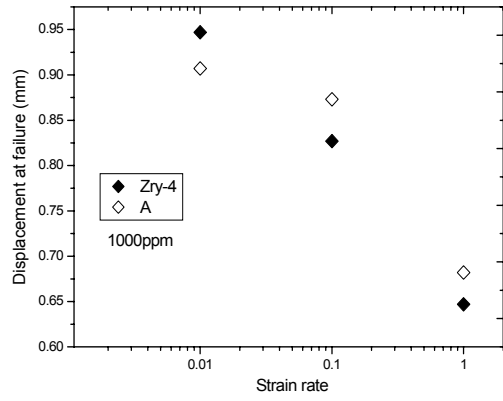
(a)



(b)

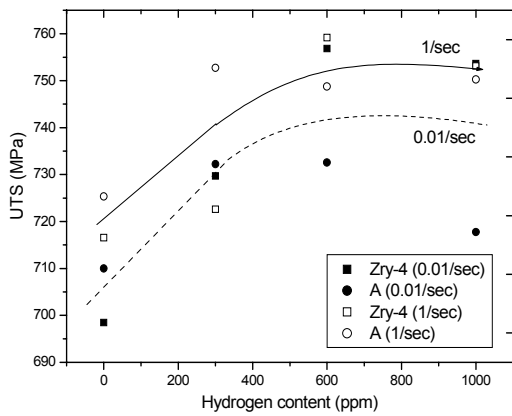


(c)

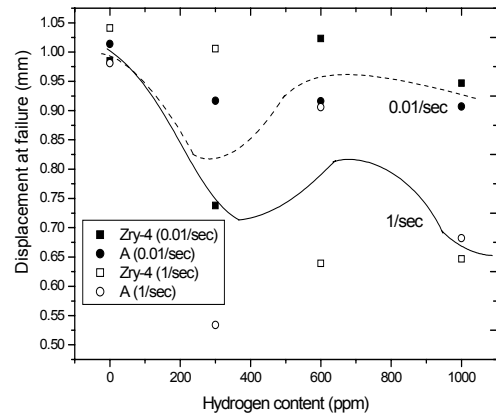


(d)

Fig. 3 Effect of strain rate on mechanical property of ring tension specimen
(a), (b) UTS (c), (d) displacement at failure



(a)



(b)

Fig. 4 Effect of hydrogen content on mechanical property of ring tension specimen
(a) UTS (b) displacement at fracture

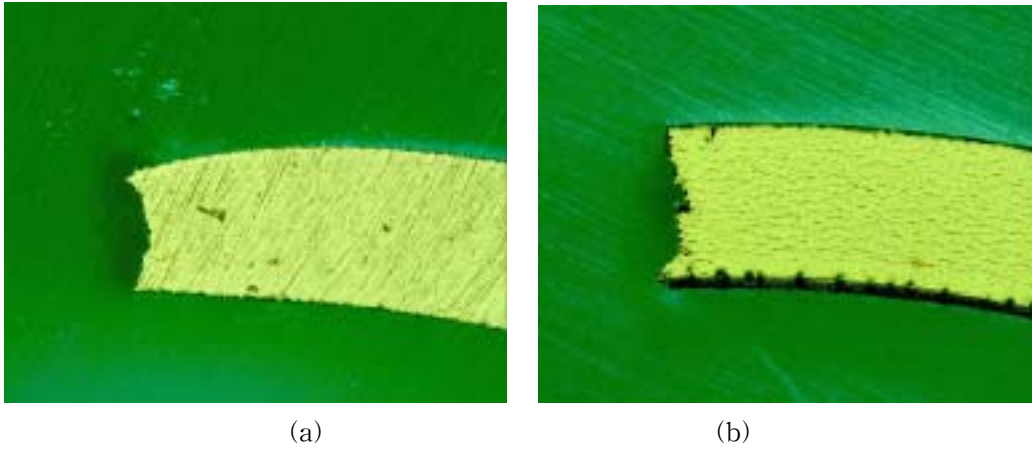


Fig. 5 Optical microstructures of fracture surface of ring specimen at 1/sec
 (a) non-hydrided ($\times 50$), (b) 1000ppm hydrided ($\times 50$)

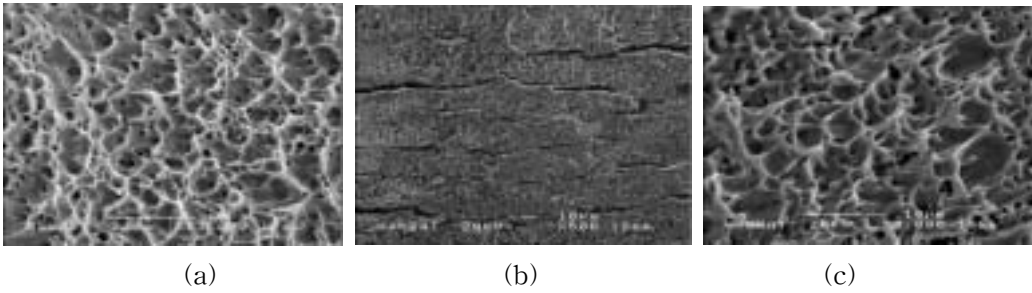


Fig. 6 Scanning electron microscope of fracture surface in Zircaloy-4 after test at 1/sec
 (a) non-hydrided ($\times 3000$), (b) 1000ppm hydrided ($\times 500$), (c) 1000ppm hydrided ($\times 3000$)

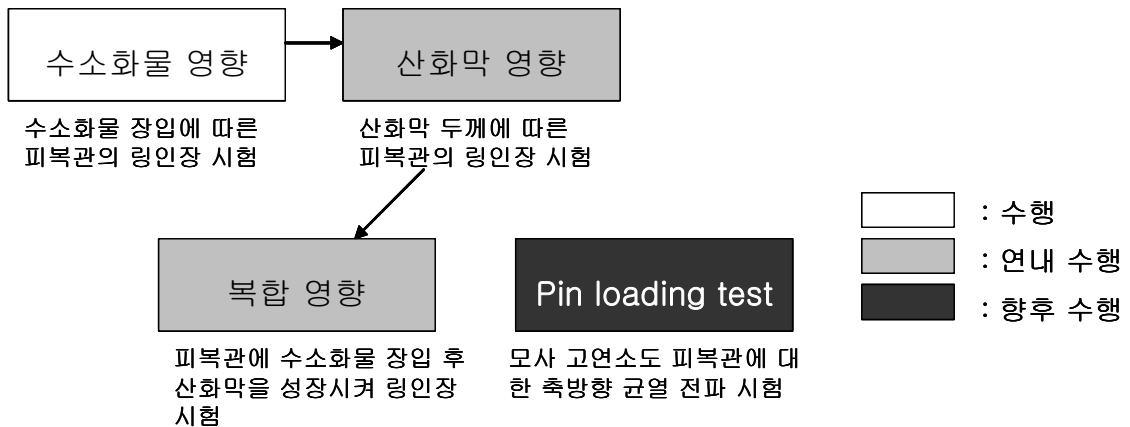


Fig. 7 Road map of out-of-pile RIA test for zirconium fuel cladding