

Low Tin Zry-4 피복관의 LOCA시 고온변형 및 급냉 거동

High Temperature Deformation and Quench Embrittlement Behavior of Low Tin Zry-4 Cladding under LOCA Condition

이종혁, 남철, 이명호, 정용환
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요약

가상적 LOCA 사고 조건에서의 Zry-4 및 KAERI 피복관에 대한 고온변형 및 급냉시험을 수행하였다. 고온변형 시험을 위해 650-950°C 온도에서 20-80MPa의 원주응력을 가하여 등온-등압시험을 수행하고 파단시간 및 파단연신율을 측정하였다. 급냉시험을 위해서는 1000, 1100, 1200 °C 온도에서 200-15,000초 동안 등온산화시킨 후 700°C까지 서냉하여 냉각수를 주입함으로써 열충격에 의한 파단 거동을 관찰하였다. 고온변형시험결과, 시험온도 증가에 따라 파단 연신율이 증가하였으나 850-950°C 영역, 즉 ($\alpha+\beta$)의 2상 영역에서 최소의 파단 연신율을 나타내었으며 국산 피복관과 Zry-4는 유사한 변형거동을 보였다. 미세조직 관찰 결과 변형 중 재결정 및 결정립 성장에 의해 조대한 결정립이 관찰되었으며 900°C 이상의 영역에서는 β 상이 관찰되었다. 고온산화 후 급냉시험한 경우 균일하게 성장한 산화막, α -Zr(O), prior- β 상들이 뚜렷이 관찰되었으며 시간과 온도 증가에 따라 산화막과 α -Zr(O)상의 두께가 성장하고 prior- β 상은 감소하였다. 국산 신형피복관들에 대한 예비시험결과 Nb함량이 증가할수록 α -Zr(O) 영역이 감소하였다. 전체적인 LOCA 저항성은 KAERI 피복관이 Zry-4와 유사할 것으로 추정된다.

Abstract

The high temperature deformation and quenching tests were performed to estimate the integrity of Zry-4 and KAERI cladding under LOCA condition. The high temperature deformation test was carried out under the temperature range of 650~950°C and applied hoop stress of 20~80MPa. The quenching test was carried out under a individual isothermal oxidation temperature of 1000, 1100, 1200°C for 200~15000sec. A maximum of burst strain occurred at approximately 800°C, and it decreased to 850~950°C which is known as ($\alpha+\beta$) phase for Zry-4. Up to 850°C, grain growth occurred as temperature increased and β phase was formed at temperatures over 900°C. Quench microstructure clearly represented three distinct layers such as oxide, α -Zr(O) and prior- β . The thickness of oxide scale and α -Zr(O) layer increased while prior- β layer decreased as oxidation time and temperature increase. The preliminary test result on KAERI claddings indicated that β layer increased with Nb content increase. On the whole, LOCA resistance of KAERI claddings seem to be comparable to Zry-4 cladding.

1. 서론

현재 가압경수로 (PWR) 원자로의 핵연료 피복관용 재료로는 Low Tin Zry-4 재료를 널리 사용하고 있다. 1990년대 이전에는 Sn 함량이 약 1.5wt% 수준인 표준 (standard) Zry-4 피복관을 널리 사용하였으나 최근의 고연소도 운전에 따른 부식 저항성 향상을 위하여 Sn의 함량을 약 1.3wt%로 줄인 Low Tin Zry-4 재료를 채택하고 있는 경향이다. 또한 최근에는 약 70 GWD/tU 이상의 초고연소도에서도 사용 가능한, Low Tin Zry-4 재료를 대체할 수 있는 신합금 피복관을 미국, 프랑스, 일본, 러시아, 한국을 중심으로 활발히 개발하고 있으며 한국원자력연구소에서도 국산 신형 피복관 6종의 시제품을 제조한 바 있다. 이러한 신형 피복관이 개발되면 안전성 검증을 위해 가압 경수로의 인허가 과정의 하나로써, 1차측 냉각 LOOP가 파단되어 냉각 능력을 상실하는 가상적인 사고인 냉각재상실사고(LOCA: Loss Of Coolant Accident) 조건에서의 성능을 입증하여야 한다. LOCA가 발생하면 수증기 분위기가 형성되고 피복관 온도 및 내압 증가에 따른 고온변형, 고온에서의 산화, 비상냉각수 주입에 따른 급냉 등 일련의 과정을 겪게 된다. 이러한 LOCA 사고 발생시 피복관의 온도 및 압력에 대한 일반적인 진행과정은 Blowdown, Refill, Reflood의 세단계로 나뉘어진다. 이러한 사고 진행 과정은 연료봉 출력 및 잠열(decay heat), 연료심과 피복관 사이의 간격 크기, 피복관 외부의 열전달등의 여러 가지 요인에 따라서 다르게 진행된다.¹⁾

Blowdown 구간은 냉각재 누출 과정을, refill 구간은 압력 용기 하단으로 부터의 비상 냉각수 주입 시점을, reflood는 비상 냉각수가 주입되는 과정을 나타낸다. Blowdown 구간에서는 온도가 상승하고 압력용기의 압력이 저하되므로 피복관 내부 압력의 증가에 의해서 피복관이 부풀어 오르는 고온 변형(ballooning)이 발생하게 되고, 비상노심냉각계통(ECCS: Emergency Core Cooling System)이 작동하기 전까지 노심은 수증기 또는 물과 수증기의 2상 분위기하에 처하게 된다. 이때 피복관의 높은 온도에 의해 산화가 급격히 진행된다. 또한 고온인 피복관은 reflood 구간의 비상냉각수 주입에 의해 급냉 효과와 같은 영향을 받게 되는데, 이때 피복관은 열충격(Thermal-Shock)을 받게 되고 결국 피복관의 연성은 저하된 상태에서 피복관의 취성과파단을 야기할 수 있다.²⁾

많은 연구자들에 의해서 LOCA 조건에서 피복관의 기계적 특성 평가가 수행되었는데, Hardy³⁾는 Zircaloy-4 피복관의 온도, 압력, 산화 시간 변수에 대한 피복관 변형과 파괴에 대해서 실험 하였다. 그리고 Chapman⁴⁾은 냉각시 열전달계수를 고려하여 원주방향의 변형량을 추가로 분석하였다.

위와 같은 LOCA 조건에서의 피복관의 기계적인 특성을 평가하기 위해서 Zircaloy-4 피복관에 대한 다양한 조건에서의 고온변형, 고온산화 및 급냉시험을 수행하였다. 또한 국산신형피복관에 대한 예비 LOCA 시험을 수행하고 Zry-4 피복관 특성과 비교하였다.

2. 실험 방법

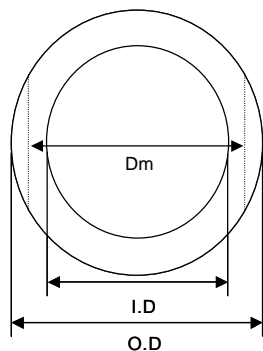
실험에 사용된 Low Tin Zry-4 피복관은 상용로에 공용되는 피복관으로써 외경이 약 9.5mm, 두께가 약 0.57mm, 길이는 330mm인 low tin Zircaloy-4이다. 한국원자력연구소에서 개발한 KAERI 피복관도 Zry-4와 동일한 제원이며 그 화학적 조성은 표 1과 같다.

LOCA 실험장비는 단일봉 시험 장비로써 자체 제작하였으며, 실험은 입력된 목표값에

따라서 컴퓨터가 자동적으로 온도와 압력, 시간 등을 조절하고 실험이 끝나면 자동적으로 멈추도록 제작하였다. 그림 1에 본 시험 장비의 모식도를 나타내었다. 시험 시편인 피복관은 양끝단에 멘드렐을 장착하고 약 200mm의 가열 부분을 정한 후 전극을 연결한다. 피복관의 가열은 저항열을 이용하여 시편을 가열하는 방법을 사용하였으며, ECCS가 작동하기 전까지의 수증기 분위기를 모사하기 위해서 증기 발생기를 사용하여 수증기 분위기를 만들어 주었고 reflow 과정을 모사하기 위해 물을 사용하였으며 피복관 밑부분에서부터 급냉을 실시하였다. 고온 변형시 피복관의 원주 변형량을 측정하기 위해서 레이저 변위측정기를 장착하였고, 피복관의 온도를 측정하기 위해서 pyrometer를 장착하였다. 그리고 피복관 가열시 축방향의 변형량을 측정하기 위해서 LVDT를 사용하였다.

(1) 고온 변형 시험

고온 변형 시험의 경우에는 피복관 내부에 불활성 기체인 아르곤 가스를 압력 controller를 사용하여 일정하게 주입하였으며, 이때 내부 압력은 아래 공식에 의해 초기 압력을 원주 응력(hoop stress)으로 계산하여 가압하였다.



$$\sigma_{\theta} = \frac{P_i D_m}{2t}$$

여기서는 원주방향으로 작용하는 응력(hoop stress)이고, P_i 는 초기 압력, t 는 피복관의 두께, D_m 은 중간 직경을 나타낸다. 여기서 중간 직경이라 함은 피복관의 두께 중간을 기준으로 해서 측정한 직경을 말한다.

고온변형시험은 650℃~950℃ 사이의 온도 범위에서 초기 압력 10MPa~80MPa로 변화를 주어서 실험을 하였다. 시험 장비에 장착된 시편은 목표 온도까지 올린 후에 일정한 압력을 유지하면서 피복관이 파열될때까지 계속 유지하여 준다. 피복관이 파열되면 시험 장비에서 피복관을 분리한다. 시험이 끝난 피복관은 파열이 발생할때까지의 파열 시간(t_r)과 파열이 일어난 부분의 변형량인 총 변형량(total elongation)을 측정하고 파열부위를 중심으로 상/하 약20mm 위치의 변형량인 균일변형량(uniform elongation)을 측정한다. 시험이 끝난 피복관은 각 시험 조건별로 총변형량과 파열 시간을 비교 평가한다. 미세조직 관찰을 위해서 파열된 부분을 절단한후 mounting처리 하였고 sand paper 600, 1200에서 polishing 한후 etching 하여 미세조직을 관찰 하였다.

(2) 급냉 시험

피복관의 파괴 거동을 평가하기 위해서 고온에서 산화시킨후 급냉 처리 시키는 급냉 시

험의 경우 1000, 1100, 1200의 세가지 조건의 산화온도까지 10°C/sec의 가열속도로 가열한후 200~15000sec의 정해진 산화시간 동안 온도를 유지하면서 피복관을 산화 시키게 된다. 목표 산화시간이 되면 온도는 ECCS작동시 원자로내의 분위기를 모사하기 위해서 자동적으로 700°C까지 떨어지게 되고(-10°C/sec), 물을 피복관 밑부분에서부터 채워 급냉처리하였다. 시험이 끝난 시편은 단면 관찰을 위해서 tube를 절단하였고, sand paper를 600, 1200 순으로 polishing 한후 etching을 하였다. 광학 현미경을 사용하여 산화막과 α -Zr(O) 층과 prior β 상을 관찰 하였고 knoop 경도기를 사용하여 산화된 시편의 경도값을 비교 평가하였다. 각 실험에 대한 조건을 표 2에 요약하였다.

3. 결과 및 고찰

(1) 고온변형 시험 결과

그림 2는 고온변형 시험으로서 Zircaloy-4와 KAERI 피복관의 온도-압력에 대한 변형량을 비교한 시험 결과이다. Zry-4의 파열 변형량을 나타낸 Erbacher에의하면 $\alpha \rightarrow (\alpha+\beta)$ 로 변태하는 약 820°C에서 최대 변형량이 발생하고 $(\alpha+\beta)$ 중간인 약 920°C에서 최소 변형량이 발생했다.⁵⁾ 그림 2에서 파열 변형량은 일정하게 집중되어 있지않고 넓게 분포하고 있는 것을 알 수 있다. 하지만, 변형량은 증가하다가 감소하는 경향을 보이고 있다. 약 800°C에서 위쪽 경계선과 아래쪽 경계선 모두 최대 변형량을 나타내고 있고 약 950°C에서 가장 낮은 변형량을 나타내고 있음을 알 수 있다. 따라서 일반적인 고온변형 특성을 잘 나타내고 있다. 이러한 피복관의 변형거동은 국부적으로 불균일한 온도 분포에 영향을 받는다.⁶⁾ 피복관이 파열될 때까지의 파열 시간을 비교한 그림 3을 보면 온도와 압력이 높을수록 파괴시간은 짧아지는 것을 관찰 할 수 있었다.

그림 4에서 Zircaloy-4와 KAERI 피복관을 비교 해 볼 때 변형량도 비교적 작고 파열 시간도 같은 조건의 Zircaloy-4와 비교했을 시에 KAERI 피복관의 크리프 특성이 좀더 우수함을 알 수 있다.

그림 5는 각 온도에서 시험한 피복관의 파열 변형량에 따른 피복관의 파열 형태와 미세조직 사진이다. 낮은 온도에서는 비교적 많은 변형이 발생하지만 높은 온도에서는 상대적으로 작은 변형량이 나타남을 관찰 할 수 있다. 낮은 온도에서의 미세조직과 고온에서 시험한 피복관의 단면 조직사진을 보면 800°C까지는 α 상에서 결정립이 시험온도에 따라 성장한 것을 관찰 할 수 있었다. 그러나 850°C 이상의 온도에서는 β 상이 관찰되었으며, 이는 시험 중 $(\alpha+\beta)$ 로 상변태가 발생하였음을 의미한다.

(2) 급냉 시험

그림 6, 7, 8은 Zircaloy-4 피복관을 산화 온도와 시간에 변화를 준후에 급냉 시험한 피복관의 단면을 촬영한 광학 사진으로서 산화층, α -Zr(O) 층, prior- β 층을 뚜렷히 관찰 할 수있다. 산화온도와 산화시간이 증가 함에 따라서 산화층과 α -Zr(O) 층이 증가하고 prior- β 층이 감소함을 관찰할 수 있었다. 그림 8에서 Zry-4는 oxide, α -Zr(O) 층이 뚜렷이 구별되고 KAERI F, H 피복관은 α 층의 경계가 모호하다. 표 3에 각 합금별 층 두께를 대략적으로 비교해 놓았다. 산화막의 두께는 KAERI 피복관이 좀더 얇고, Nb 함량에 따라 α -Zr(O) 층은 감소하고 prior- β 층은 증가한다.

그림 10은 급냉 시험한 피복관의 표면에서 내부로의 경도 분포를 비교하는 그림으로서, 그림에 산화막의 경도값은 포함되지 않았다. 경도값은 α -층에서 급격히 감소하고 점점 느리게 감소하다가 prior- β 층에서는 일정하게 유지됨을 관찰할수있었다. 경도값은 금속내 산소 고용도에 의존하는 것으로 알려져 있다. 그렇기 때문에 α -층의 경도값이 prior β -층 보다 높다. 그리고 LOCA 사고시 prior- β 층은 피복관의 기계적 특성, 특히 연성에 매우 중요한 요소로서 경도값이 높다는 것은 재료의 연성이 낮음을 의미한다. 급냉 시험 후 피복관 두께에 따른 경도시험결과 KAERI 피복관과 Zry-4 피복관은 유사한 값을 보였다. Nb이 주 첨가 원소인 H 피복관은 β 상에서의 경도가 Zry-4보다 약간 높게 나타났다. 그러나 산화층이 얇기 때문에 전체적인 고온산화 취성은 Zry-4와 유사할 것으로 예상된다.

4. 결론

1. Zry-4 피복관은 α 상영역인 약 800°C 까지는 온도 증가에 따라 과열변형량이 증가하고 ($\alpha+\beta$)상의 850~950°C 영역에서는 최소의 변형량을 나타내었다.
2. KAERI 피복관의 고온변형 저항성은 Zry-4 피복관 보다 우수하거나 유사한 것으로 나타났다.
3. 수증기 분위기에서 산화시킨 피복관은 온도가 높고 산화시간이 길수록 산화막과 α -Zr(O)층은 확장되고 반면에 prior- β 층은 감소함을 알 수 있다. 그리고 피복관의 Nb 함량이 증가할수록 α -Zr(O)층이 감소하였다.
4. KAERI 피복관과 Zry-4 피복관의 고온산화 후 급냉시 피복관 경도 분포는 유사한 값을 보였으며 따라서 급냉 취화 저항성은 대등할 것으로 추정된다.

감사의 글

본 연구는 2002년도 과학기술부의 원자력연구 개발 사업 중 지르코늄합금핵연료피복관 과제의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

- 1) F. J. Erbacher and S. Leistikow, "Zircaloy Fuel Cladding Behavior in a Loss-of-Coolant Accident : A Review", ASTM STP, 1987, pp. 451~488
- 2) C. A. Mann, E. D. Hindle and P. D. Parsons, "The Deformation of PWR Fuel in a LOCA", United Kingdom Atomic Energy Authority, ND-R-701(S), 1982
- 3) D. G. Hardy, "High Temperature Expansion and Rupture Behavior of Zircaloy Tubing", Topicalmeetingon water-reactorsafety held at Salt Lake City, Utah, March 25-28, CONF-730304, pp. 254~272
- 4) H. Chapman, J. L. Crowley, A. W. Longest and G. Hofmann, "Zirconium Cladding Deformation in a Steam Environment with Transient Heating", ASTM STP 681, 1979, pp. 393~408
- 5) F. J. Erbacher, H. J. Neitzel, H. Rosinger, H. Schmidt, and K. Wiehr, "Burst

Criterion of Zircaloy Fuel Claddings in a Loss-of-Coolant Accident", ASTM STP 754, 1982, pp. 271~283

- 6) F. Erbacher, H. J. Neitzel, and K. Wiehr, "Studies on Zircaloy Fuel Clad Ballooning in a Loss-of-Coolant Accident-Results of Burst Tests with Indirectly Heated Fuel Rod Simulators", ASTM STP 681, 1979, pp. 429~446

표 1. 시험에 사용된 Low Tin Zry-4 피복관 및 KAERI 피복관의 화학조성

합금	Nb	Sn	Others	Zr
Zry-4	-	1.3	0.3	
KAERI C	0.4	0.8	0.6	
KAERI D	0.2	1.1	0.6	bal.
KAERI F	1.5	0.4	0.3	
KAERI H	1.2	-	0.1	

표 2. LOCA 모사 시험 조건

	피복관		온도(°C)	압력 (MPa)	(bar)	가열속도 (°C/sec.)
	고온 변형 시험	Zircaloy-4		650	80	98.9
700						
750				50	61.8	
800				40	49.5	
850				30	37	
900				20	24.7	
950				10	12.4	
K-series		KC	750	50	61.8	20
		KD				
		KF				
	KH					

	피복관		온도(°C)	산화시간 (sec.)	가열속도 (°C/sec.)
	급냉 시험	Zircaloy-4		1000	2000
5000					
7000					
15000					
2000					
1100				3000	
				5000	
				10000	
				200	
1200				500	
				1000	
				1500	
				2000	
				5000	
				5000	
K-series		KC	1100	3000	10 (-10*)
		KD			
		KF			
		KH			

- * : 산화온도에서 700°C까지의 냉각속도

	ZrO ₂	-Zr(O)	Prior -
KC	103 μ m	121 μ m	220 μ m
KD	100 μ m	101 μ m	235 μ m
KF	103 μ m	8 μ m	324 μ m
KH	84 μ m	6 μ m	335 μ m
Zry - 4	117 μ m	147 μ m	224 μ m

표 3. 1100°C에서 3000sec. 산화 후 급냉 시킨 Zry-4와 KAERI 피복관의 각 층 두께

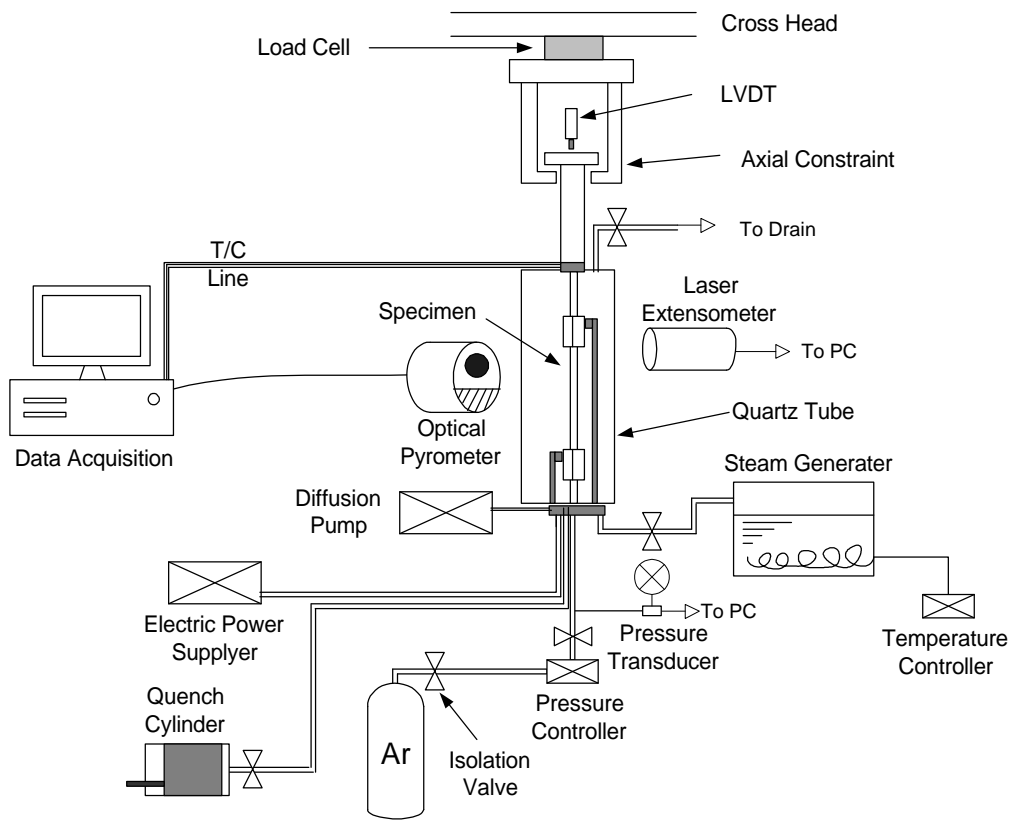


그림 1. LOCA 모사 시험 장비 모식도

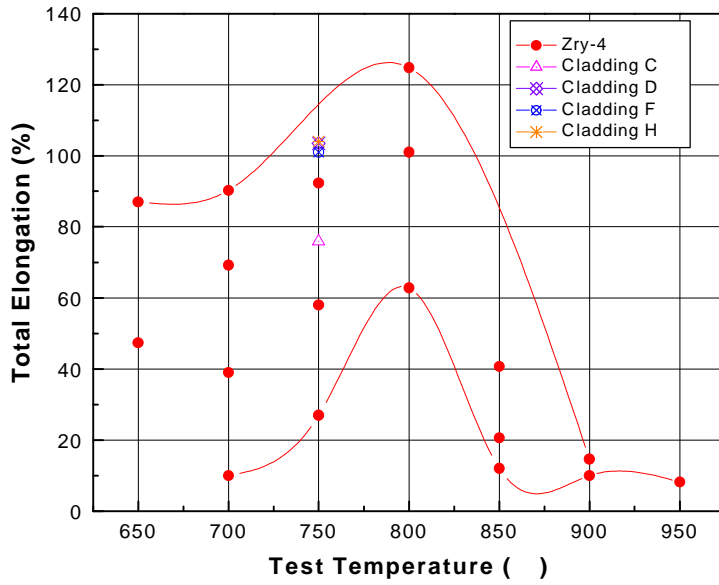


그림 2. 시험 온도에 따른 Zry-4와 KAERI 피복관의 원주방향 파열 변형량 분포

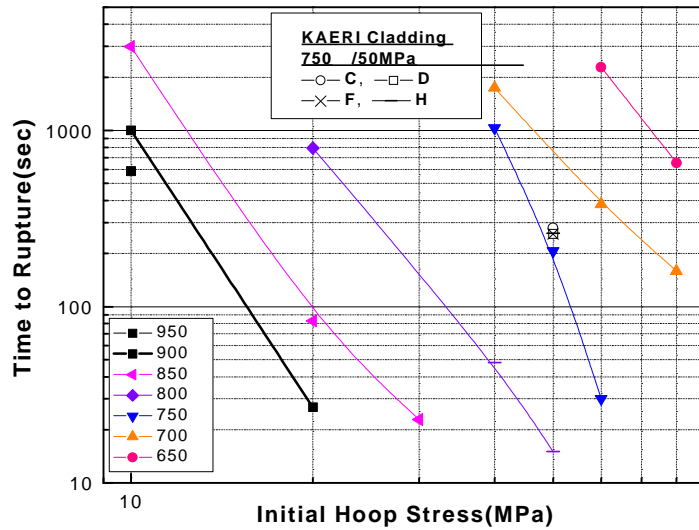


그림 3. 온도-초기 압력에 대한 Zry-4 피복관의 파열 시간

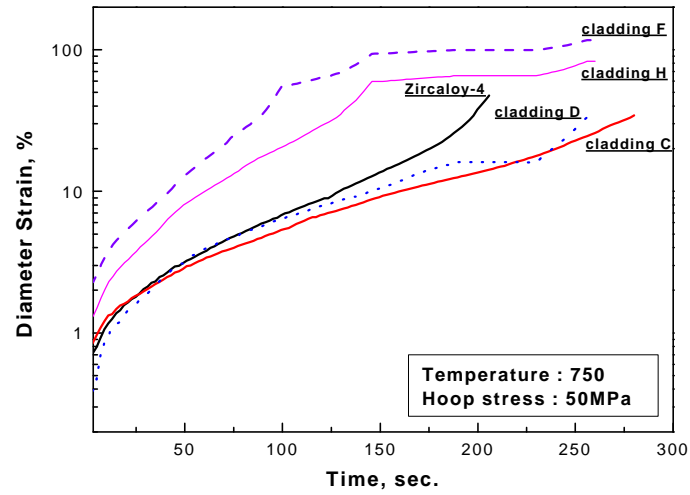


그림 4. Zry-4와 KAERI 피복관의 시간에 따른 변형량

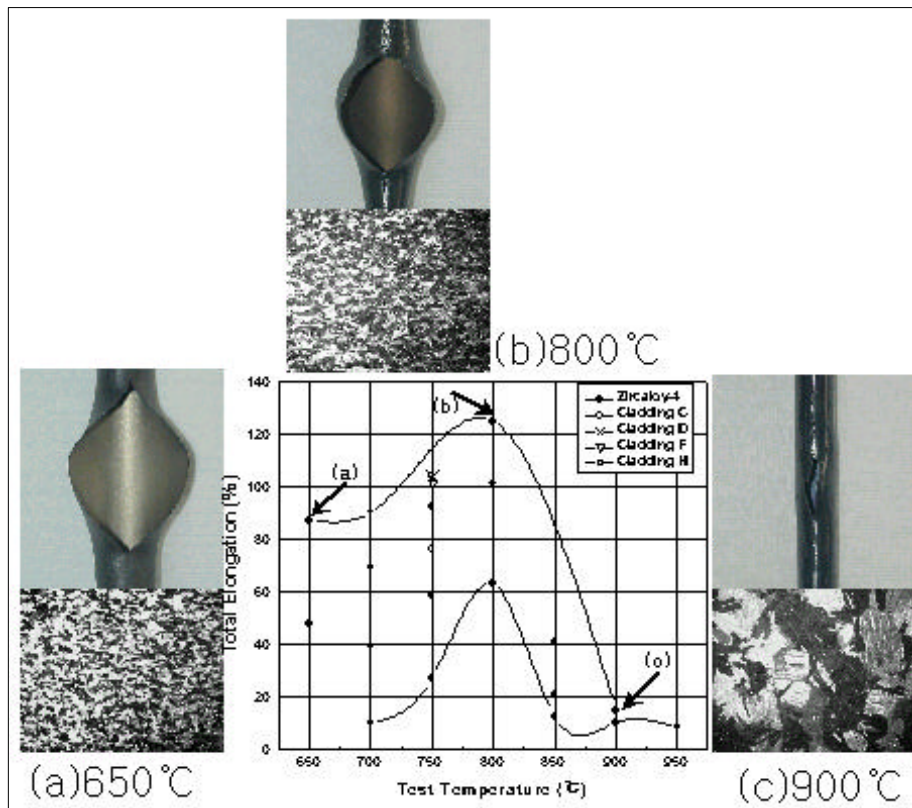


그림 5. 온도에 대한 Zircaloy-4와 KAERI 피복관의 변형량에 대한 조직사진 비교

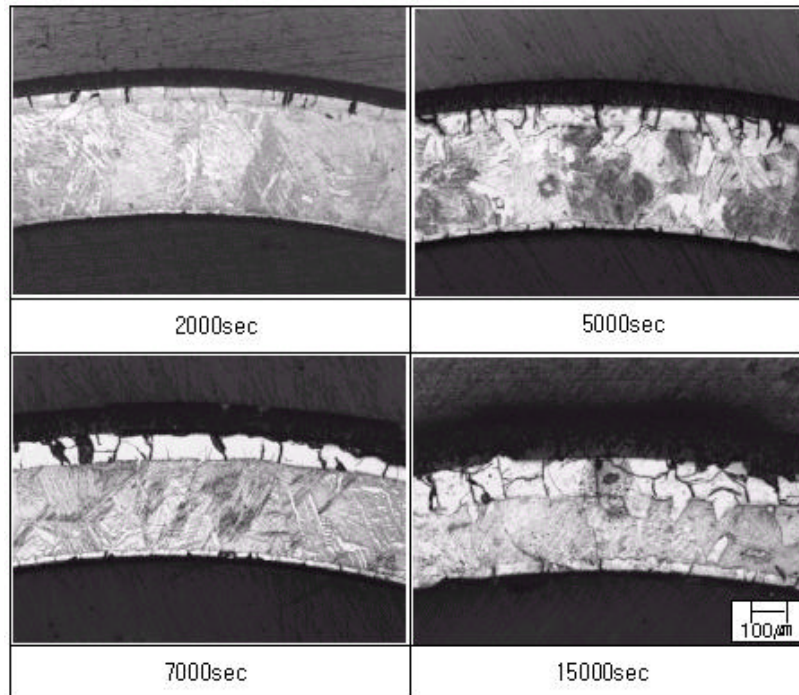


그림 6. 1000°C에서 산화 시간에 따른 Zry-4의 단면 사진

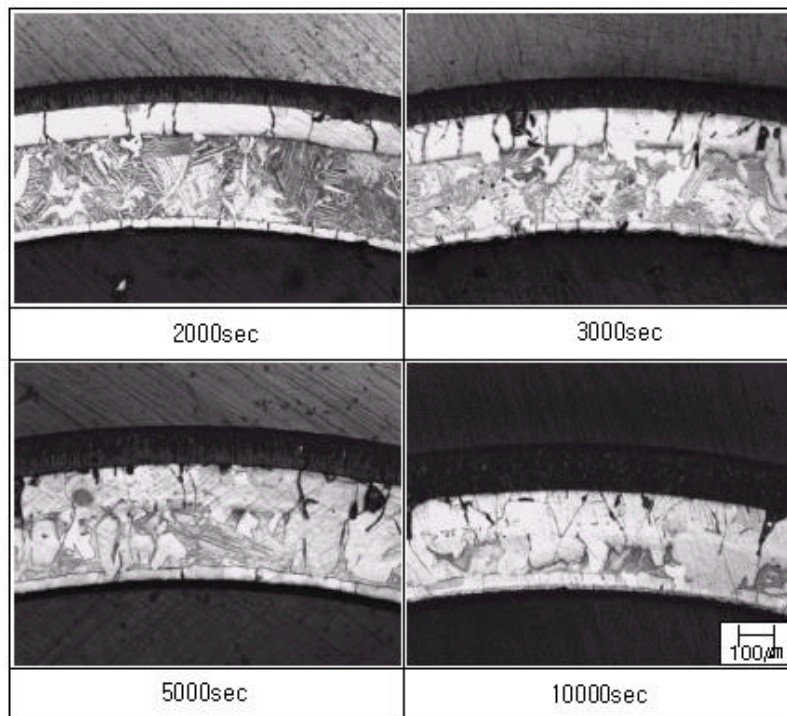


그림 7. 1100°C에서 산화 시간에 따른 Zry-4의 단면 사진

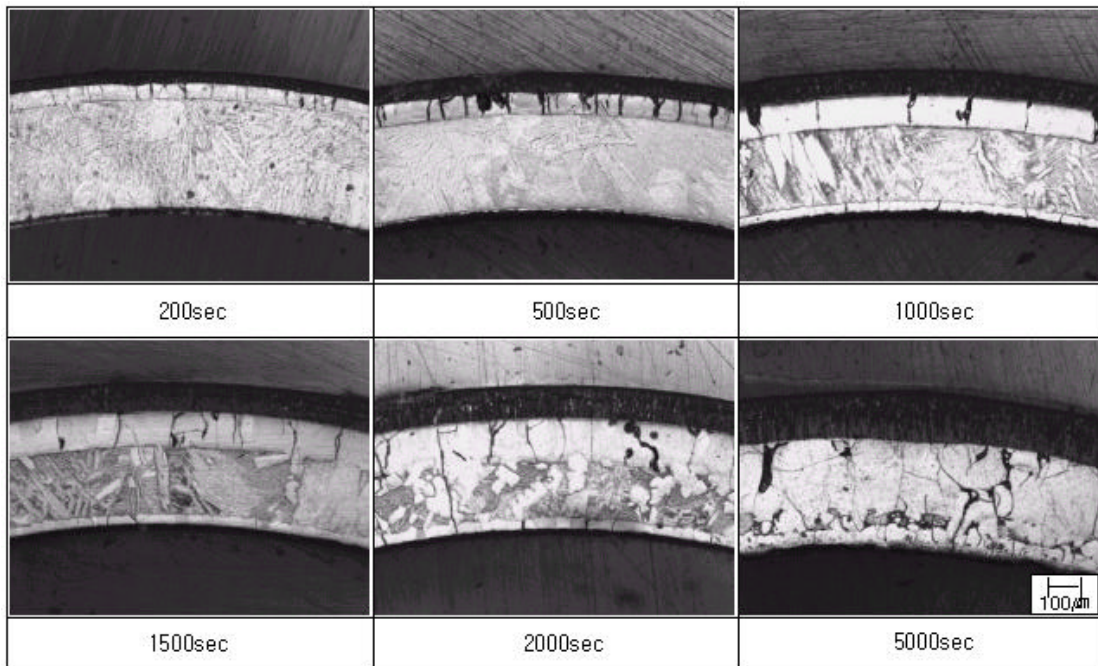


그림 8. 1200°C에서 산화 시간에 따른 Zry-4의 단면 사진

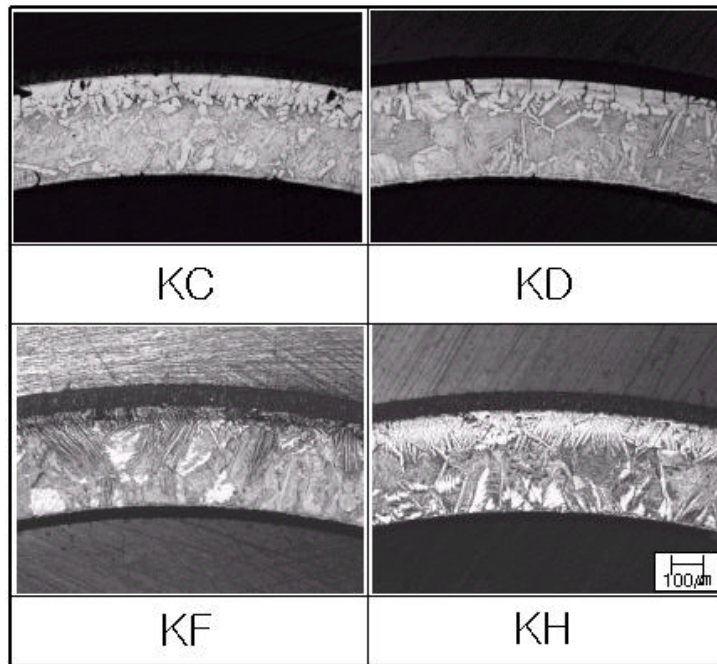


그림 9. 1200°C에서 산화 시간에 따른 Zry-4와 KAERI Cladding tube의 단면 사진

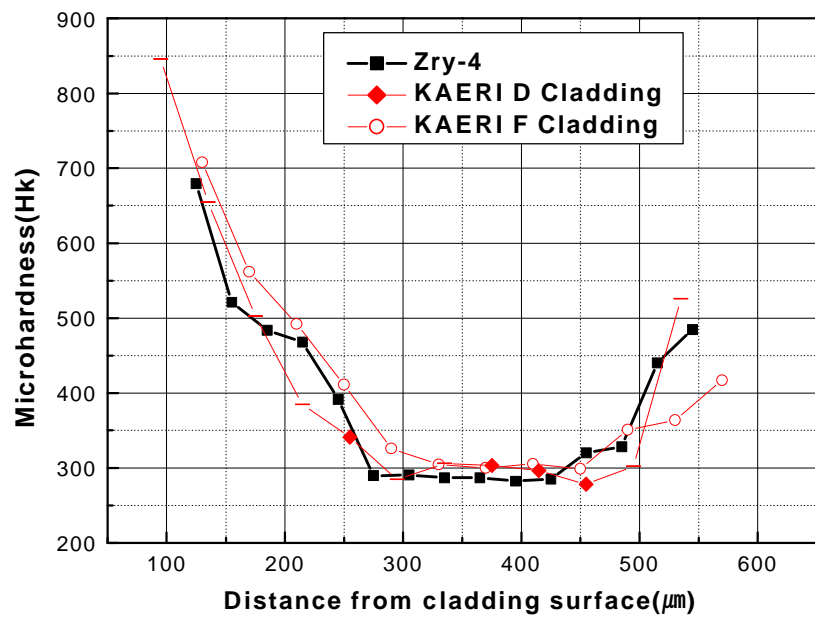


그림 10. 1100°C에서 3000sec 수증기 산화후 Zry-4와 KAERI 피복관의 경도값 비교