2002 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

# 중간열처리 및 최종열처리 변화에 따른 신형 피복관의 인장특성

# Tensile Properties of New Cladding Tubes Depending on the Change of Intermediate and Final Heat Treatments

이명호, 남철, 최병권, 정용환, 정연호
한국원자력연구소
305-353 대전광역시 유성구 덕진동 150

**요약**

중간열처리 및 최종열처리가 신형 피복관의 인장특성에 미치는 영향을 평가하기 위하여 TREX 열처리, 중간열처리 및 최종 열처리를 다르게 제조된 4종의 신형피복관을 상온 및 400℃ 고온에서 $4.2X10^{-3}$/s의 변형속도로 인장시험을 수행하였다. 중간 열처리가 신형피복관의 인장특성에 미치는 영향은 피복관 종류에 관계없이 470℃에서 최종열처리한 경우 7%이내이었으나 510℃에서 최종열처리한 경우 10%이내로 미미하였으나 최종열처리 온도가 높을수록 신형피복관의 강도는 줄어들고 연신율은 증가하는 금속의 일반적인 특성을 나타냈다. 신형피복관의 강도는 Zry-4 피복관과 비슷하였으나 연신율은 약 2.6 4.3%정도 더 우수하였다.

Abstract

To evaluate the effect of both intermediate and final heat treatments on the tensile properties of new KAERI cladding tubes, four kinds of the tubes(UE, UF, UG and UH) were manufactured and the tensile tests of those tubes were carried out with the strain rate $4.2X10^{-3}$/s at room temperature and 400℃. The effect of intermediate heat treatment on the claddings was a little, but that of final one was distinguishable showing that the higher the final heat treatment was the lower both the yield strength and the ultimate tensile strength was, and the elongation was vice versa. The tensile strength of the tubes was equivalent to or over than that of Zry-4 but the tensile elongation of the tubes was larger by about 2.6-4.3%

Key words: cladding tubes, tensile properties, final heat treatment, intermediate heat treatment

## 1. 서론

1990년대 이전에는 Sn의 함량이 약 1.5wt% 수준인 표준 (standard) Zry-4 피복관이 가압경수로 (PWR)의 핵연료 피복관용 재료로 널리 사용되었으나, 현재는 고연소도 운전에 따른 부식 저항성 향상을 위하여 Sn의 함량이 약 1.3wt%인 low tin Zry-4 핵연료 피복관이 PWR의 핵연료 피복관용 재료로 널리 사용되고 있다. 또한 최근에는 low tin Zry-4 재료를 대체할 수 있는, 약 60 GWD/tU 이상의 초고연소도에서도 사용 가능한 신합금 핵연료피복관이 미국, 프랑스, 일본, 러시아, 한국을 중심으로 활발히 개발되고 있다. 이러한 신합금 피복관들의 노내 건전성 향상을 위하여 다양한 방식의 피복관 제조공정이 도입되고 있다. 현재 PWR에서 널리 사용되고 있는 Zry-4, 미국에서 개발한 Zirlo[1], 일본에서 개발되고 있는 MDA[2] 및 NDA[3] 등의 합금으로 제조된 피복관은 500℃ 이하에서 최종 열처리를 수행한 응력이완(stress-relieve) 소재이다. 그러나, PWR 핵연료 집합체의 지지격자 (space grid)용 Zry-4, 비등경수로 (BWR) 피복관으로 사용되는 Zry-2, 프랑스에서 개발한 M5[4-5] 및 러시아에서 개발한 E635[6] 합금 피복관은 550℃ 이상에서 최종열처리하여 재결정시킨 소재이다. 한국원자력연구소(KAERI)는 중간열처리와 최종열처리를 서로 다르게 하여 신형 핵연료 피복관을 2종을 개발한 후 4종을 추가로 개발하였다. 핵연료 피복관의 노내 부식 저항성 및 노내 치수 안정성 (dimensional stability)과 함께 기계적 건전성 확보는 핵연료 피복관의 매우 중요한 품질요소중의 하나이다. KAERI에서 1차로 개발한 UC 및 UD 핵연료 피복관은 중간열처리가 인장 특성에 미치는 영향은 미미하였으나 최종열처리가 인장특성에 미치는 영향은 현저하였다. 즉 최종열처리 온도가 높을수록 강도는 저하되고 연신율은 증가하는 금속의 일반적인

인장특성을 나타냈다[7]. 제조 공정상 도입된 중간열처리와 최종열처리가 인장특성에 미치는 영향을 알아보고자 Fig. 1의 A1, A3, A5 및 B3의 공정으로 중간열처리 및 최종열처리열처리를 각각 다르게 하여 추가로 KAERI가 제조한 UE, UF, UG, UH 피복관 시편에 대하여 ASTM B811-97[8], E8M-00a[9] 및 E21-92[10](1998 재승인)요건에 따라 상온과 400℃에서 인장시험을 실시하여 각 피복관의 최대인장강도, 항복 강도 및 연신률을 측정하고 그 결과를 분석하였다.

## 2. 실험 방법

### 2.1 인장시험 장비

10 ton load cell이 부착된 대경테크에서 제작한 ASTM E4 DTU-900MLCD10T 인장시험기를 상온 인장시험에 이용하였고 인장시험의 실시, 시험 데이터 수집 및 분석에는 대경테크에서 제작한 DKTT UTM2000F program을 사용하였다. 그리고 400℃ 고온 인장시험에는 10 ton load cell 이 부착된 대영기계에서 제작한 TSM-100 인장시험기를 이용하였고 고온시험의 실시, 데이터 수집 및 분석에는 TSM-100 시험기를 제어하는 Digital Controller (RED 02)와 Ampmaster 와 TMaster program을 사용하였다. 또한 1000℃ 용량의 전기로를 400℃고온시험에 사용하였고, ASTM E8M-00a에 규정된 요건을 충족하도록 Metal plug를 제작하여 상온 및 400℃ 고온 인장시험에 tube심쇄로 사용하였다.

### 2.2 인장시험 시편

본 실험에 사용된 피복관의 화학조성 및 치수(외경x내경x두께)는 표1과 같고 KAERI 피복관 제조중 열처리 공정는 Fig. 1과 같다. UE, UF, UG, UH 피복관 시편은 "Specification for the manufacturing of the TREX of KAERI alloys"[11] 및 "Specification for the manufacturing of the KAERI cladding tubes"[12]에 따라 제조된 것이고 Zry-4(Z4) 및 A 피복관 시편은 "As-received"상태이다. Zry-4 피복관은 496℃에서 4시간 동안 최종 열처리한 응력이완 조직이나 AZ 피복관의 최종열처리 상태는 파악되지 않았지만 454℃ 471℃인 것으로 알려져 있다. 각 시험시편은 동일조건에서 2개의 시편 (길이 150mm)을 채취하여 표점거리 50mm가 시편 중앙에 위치하도록 하고 표점거리 중심에서 시편 양단쪽으로 표점거리를 약 5mm씩 이동하여 표점거리를 divider로 marking 하여 표시를 하고 시험 후 최종 연신거리 측정에 이를 이용하였다. 또한 시편 치수는 등간격 3점에 대한 내경 및 외경을 측정하여 평균한 값을 사용하였다.

### 2.3 인장시험 및 미세조직 관찰

금속재료 인장시험 표준방법을 규정한 E8M-00a에 따르면 인장 시험시 항복점의 1/2 또는 최대강도의 1/4중 더 작은 응력범위에서는 시험속도를 규정할 필요가 없지만 이 응력범위를 넘는 응력에 대해서는 규정된 한계 내에서 시험속도를 유지하여야 한다. 또한 Zr합금 tube 규격인 ASTM B811-97에 따르면 시험속도는 항복점 응력에 이를 때까지 "0.003 0.007mm/분" 범위 내에서 변형속도(strain rate)를 정하고 항복점을 통과한 후 파단까지 0.05mm/분" 까지 변형속도를 증가시켜도 된다. 따라서 탄성한계 이내의 응력에서는 시험기의 cross-head 이동 속도를 표점거리 50mm에 대하여 0.25mm/min.($4.2X10^{-3}$/s)로 하고 탄성한계 이후의 응력에서는 2.5mm/min.($4.2X10^{-2}$/s)로 하여 인장시험을 실시하였다. 400℃ 고온 인장시험의 경우 ASTM E21-92 요건에 따라 385℃에서 20분간 가열로를 안정시킨 후 400±2℃에서 20분간 유진한 후 시험을 실시하였다. 그리고 시험완료 후 E8M-00a에 규정된 0.2% offset에 따라 항복강도를 결정하였다. 인장시험이 완료된 시편의 파단면의 미세조직은 JEOL 5200 SEM을 이용하여 관찰하였다. 또한 TEM 관찰용 시편을 준비하기 위하여 각 tube 소재를 pickling하였다. Nb를 함유한 UC, UD 및 AZ 피복관은 30%증류수+30%$HNO_3$+30%$H_2SO_4$+ 10%HF의 용액으로 pickling 하였고 Nb을 함유하지 않은 low tin Zry-4 피복관은 45%증류수+45%$HNO_3$+10%HF의 용액으로 시편두께 60 80μm까지 pickling 하였다. Pickling이 완료된 시편은 지름 3㎜의 원형판으로 제작한 후 Twin Jet-Polisher를 사용하여 화학연마 하였다. 화학 연마시 $C_2H_5OH$ 900㎖ + $HClO_4$ 100㎖ 용액을 사용하고, 약-40 -45℃에서 12 17V의 전압으로 약 0.01㎃의 전류를 통전하였다. 화학 연마된 최종시편은 JOEL사의 200kV 전압의 TEM으로 미세조직을 관찰하였다.

## 3. 실험 결과 및 논의

### 3.1 인장특성

그림 2는 상온에서 UE, UF, UG, UH, Zry-4 및 A 피복관의 응력-변형곡선을 나타낸 것이다. 470℃에서 2.5시간 최종열처리한 시편에 대한 응력변형 곡선인 A1 Stress Strain Curve 에서 보는 바와 같이 UF 피복관의 경우 인장강도는 796MPa로 A 피복관의 인장강도 807MPa와 거의 같지만 연신율 20.5%로 ZLO 연신율 17%보다 3.5% 더 크며 UE 피복관의 경우는 인장강도가 715MPa로 Z4 피복관의 인장강도 705MPa보다 약간 크면서도 연신율은 25.4%로 Z4의 22.8% 보다 2.6%나 더 크다. 570℃에서 2.5시간 최종열처리한 시편에 대한 응력변형 곡선인 A5 Stress Strain Curve 에서 보는 바와 같이 UE, UF 피복관은 577MPa, 565MPa로 거의 같고 연신율도 34.8%, 34.5%로 거의 같다. 그리고 UG, UH 피복관은 534MPa, 524Pa로 거의 비슷하나 연신율도36.2%, 34.7%로 거의 비슷하다. 이와 같은 현상은 Table 1에서 보는 바와 같이 UE와 UF피복관의 합금조성량이 비슷하고 UG와 UH피복관의 합금조성량이 비슷하기 때문일 것으로 생각된다. 또한 470℃에서 최종열처리한 시편의 경우 하부 항복점이 나타나지 않지만 570℃에서 최종열처리한 시편의 경우 A5 Stress Strain Curve에서 보는 바와 같이 하부 항복점이 나타나고 있다. 이는 UF 피복관을 470℃, 510℃, 570℃에서 각각 최종열처리 했을 때 TEM 사진인 Fig. 3에서 보는 바와 같이 470℃에서 최종열처리한 A 시편의 경우 변형시 도입된 전위와 기존 전위 및 석출물간의 계속적인 상호작용에 의해 하부 항복강하가 나타나지 않으나 570℃에서 최종열처리한 시편의 경우는 재결정이 완료되어 기존의 전위가 사라지고 변형시 도입된 새로운 전위간의 상호작용으로 상부항복점까지 강도가 증가하다가 변형이 계속될 경우 전위간의 상호작용이 약해저서 하부항복점이 나타나고 추가적으로 변형이 계속될 경우 다시 강도가 증가하는 것은 변형시 도입된 전위와 석출물간의 작용 때문인 것로 생각된다.

### 3.2 중간열처리의 영향

중간 열처리 영향을 알아보기 위하여 KAERI 피복관의 상온 인장특성을 그림 4, 5에 나타내고 400℃고온 인장특성을 그림 6, 7에 나타냈다. 그림 1에 A1, B1으로 표시된 470℃에서 2.5시간 최종열처리한 시편에 대한 상온 인장특성을 그림 4에 나타냈고, 그림 1에 A3, B2으로 표시된 510℃에서 2.5시간 최종열처리한 시편에 대한 상온 인장특성을 그림 5에 나타냈다. 그리고 그림 1에 A1, B1으로 표시된 470℃에서 2.5시간 최종열처리한 시편에 대한 고온 인장특성을 그림 6에 나타냈고, 그림 1에 A3, B2으로 표시된 510℃에서 2.5시간 최종열처리한 시편에 대한 고온 인장특성을 그림 7에 나타냈다. 470℃에서 2.5시간 최종열처리한 경우 A1 시편의 중간열처리의 영향을 기준으로 할 때 B1 시편의 중간열처리 영향은 Table 2에서 보듯이 상하 6.7% 이내이며. 510℃에서 2.5시간 최종열처리한 경우 A3 시편의 중간열처리의 영향을 기준으로 할 때 B2 시편의 중간열처리 영향은 Table 3에서 보듯이 상하 9.1% 이내였다. 따라서 중간열처리 영향은 UC, UD 피복관[7]에서와 같이 미미하다고 생각된다.

### 3.3 최종열처리의 영향

그림 8는 그림 1에 표시된 A1, A3, A5 및 B3로 최종열처리한 UE, UF, UG, UH 시편에 대한 상온 인장특성을 나타낸 것이고, 그림 9는 그림 1에 표시된 A1, A3, A5 및 B3로 최종열처리한 UE, UF, UG, UH 시편에 대한 고온 인장특성을 나타낸 것이다. 이와 같은 현상은 3.1항에서 언급하였듯이 각 피복관의 합금조성량의 차이에 따라 인장특성이 다르게 나타나는 것으로 생각된다. 즉, 합금 조성량이 많으면 강도는 높게 나타나고 연신률은 낮아지는 것으로 볼 수 있다. 특히 이러한 현상은 UF 피복관에서 두드러짐을 볼 수 있다.

### 3.4 파단면 관찰 및 파괴기구 고찰

그림 10은 그림 1에 표시된 A1, A3, A5 및 B3로 최종열처리한 UF 시편을 상온 및 400℃ 고온에서 인장시험한 후 파단면에 대한 SEM 사진을 보여준다. 모두 많은 양의 전단 혹은 소성변형을 필요로 하여 상당량의 에너지를 흡수하는 연성 파괴의 전형적인 파면모양으로 전단터짐(shear tearing)에서 작은 dimple과 이들의 합체에 의한 Voids의 형성에 의해 파괴가 발생한 것으로 생각된다. 최종열처리 온도가 높을수록 즉, 470℃(A1), 510℃(A3), 570℃

(A5) 및 620℃(B3)로 최종열처리 할 수록 dimple이 커짐을 볼 수 있다. 400℃고온 인장시험의 파단면은 상온 인장시험의 파단면보다 voids가 더 많이 합체되어 파단시 연성이 더 컸졌을 것으로 볼 수 있다. 따라서 연성이 클수록 파단면상의 dimple이 크고 깊으며 void가 발달하면서 파괴가 진행된다고 생각된다.

## 4. 결 론

UE, UF, UG, UH 피복관의 인장특성에 대한 중간열처리 영향 및 최종열처리 영향평가를 위해 ASTM B811-97요건에 따라 이들 피복관에 대한 인장실험을 상온 및 400℃에서 실시하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 중간 열처리가 각 피복관 인장특성에 미치는 영향은 미미하고 최종열처리가 미치는 영향은 뚜렷하다. 즉, 최종열처리 온도가 높을수록 강도는 감소하고 연신율은 증가한다. 그리고 이런 현상은 UF 피복관에서 특히 두드러졌는 데 이는 합금원소의 영향으로 생각된다.
2. 570℃에서 최종열처리를 수행한 피복관의 경우 상부 항복점 및 하부 항복저이 나타났다. 이는 재결정온도 이상에서 열처리되어 가공시 도입된 전위가 사라졌기 때문에 나타나는 현상으로 생각된다.
3. 각 피복관의 파괴특성은 모두 연성파괴다. 연성이 클수록 파단면상의 dimple이 크고 깊으며 void가 발달하면서 파괴가 진행된다고 생각된다.
4. KAERI 피복관과 Zry-4 및 A 피복관의 인장특성을 비교한 결과 UE 피복관은 Zry-4 피복관과 강도는 비슷하나 연신율은 2.6% 정도 더 크고 UF 피복관은 A피복관과 강도는 비슷하나 연신율이 3.5% 정도 더 컸다.

## REFERENCES


1. G. P. Sabol et al.: ASTM STP 1245, (1994).
2. K. Goto, S. Matsumoto, T. Murata, T. Miyashita, H. Anada, H. Abe, 1-8-1, Proceedings of 2000 ANS International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Park city, Utah, April 10-13, 2000
3. Yasuhiro Irisa, Sigemitsu Suzuki, Kenji Murai, R.Sabate, Ken Goto, J.M.Alonso, 1-7-1, Proceedings of 2000 ANS International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Park city, Utah, April 10-13, 2000
4. Mardon, J.P., et al., "The M5 Fuel Rod Cladding", Avignon, Sept. 13-15, 1999
5. J.T. Willse, G.L. Garner, 1-4-1, Proceedings of the 2000 ANS International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Park City, Utah, April 10-13, 2000
6. A.V. Nikulina, A.M. Vladimir, M.M. Peregud, Y.K. Biblashvili, V.A. Kotrekhov, A.F. Lositsky, N.V. Kuzmerenko, Y.P. Shevnin, V.K. Shamardin, G.P. Kobylyansky, A.E. Novoselov; ASTM STP 1295 (1996) p710
7. 이명호, 남철, 최병권, 정용환, 정연호, UC, UD 피복관의 인장특성에 미치는 중간열처리 및 최종열처리 영향, 한국원자력학회.대한방사선학회 2002 춘계공동학술발표회 제 5분과 핵연료 및 원자로재료 (C)-핵연료피복관, 2002.5.23-24, 조선대학교
8. ASTM B811-97, Standard Specification for Wrought Zirconium Alloy Seamless tubes for Nuclear Reactor Fuel Cladding
9. ASTM E8M-00a, Standard Test Methods for Tension Testing of Metallic Materials [Metric]
10. ASTM E21-92, Standard Test Methods for Elevated Temperature Tension Tests of Metallic Materials
11. Specification for the manufacturing of the TREX (Tube Reduced Extrusion) for KAERI Cladding Tubes Revision 1, 한국원자력연구소, 2001.8.01
12. Specification for the manufacturing of the KAERI cladding tubes, 한국원자력연구소, 2000.3.27

Table 1. Chemical Composition of the Tested Tubes (wt.%)

| Tubes | Nb | Sn | Fe | Cr | Cu | O | Zr | ODxIDxTH |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| UE | 1.5 | 0.4 | X | - | X | 0.12 | bal. | 9.5x8.36x0.57 |
| UF | 1.5 | 0.4 | X | X | - | 0.12 | bal. | |
| UG | 0.4 | 0.8 | X | X | X | 0.12 | bal. | |
| UH | 1.2 | - | - | - | X | 0.12 | bal. | |
| Zry-4 | - | 1.26 | 0.23 | 0.12 | - | 0.129 | bal. | 9.7x8.43x0.63 |
| AZ | 1.00 | 0.99 | 0.11 | - | - | 0.113 | bal. | 9.5x8.36x0.57 |

Table 2. Above or Below Fraction of Tensile Properties B1 to Those of A1 (%)

| Tested Temperature | Claddings / Tensile Properties | UE | UF | UE | UF |
|---|---|---|---|---|---|
| Room Temperature | Yield Stress | 3.7 | -3.6 | -0.3 | 0 |
| | Ultimate Tensile Stress | 3.6 | -4.4 | 0.7 | 1.9 |
| | Elongation | 1.1 | 1.4 | 1.6 | -6.7 |
| 400℃ | Yield Stress | 5 | -6.2 | -3.4 | 0 |
| | Ultimate Tensile Stress | 6.5 | -5.7 | 1.5 | 1.9 |
| | Elongation | -5.1 | -2.6 | -2.6 | -6.7 |

Table 3. Above or Below Fraction of Tensile Properties B2 to Those of A3 (%)

| Tested Temperature | Claddings / Tensile Properties | UE | UF | UE | UF |
|---|---|---|---|---|---|
| Room Temperature | Yield Stress | 3.9 | -0.5 | -2.2 | -1.2 |
| | Ultimate Tensile Stress | 4.7 | -0.5 | 0.9 | -0.1 |
| | Elongation | -5.4 | -2.4 | -1.5 | -1.1 |
| 400℃ | Yield Stress | 9.1 | 3.5 | -6.6 | -1.2 |
| | Ultimate Tensile Stress | 6.8 | 3.3 | -4.8 | 0 |
| | Elongation | -4.3 | -8.8 | -8.8 | -1.1 |

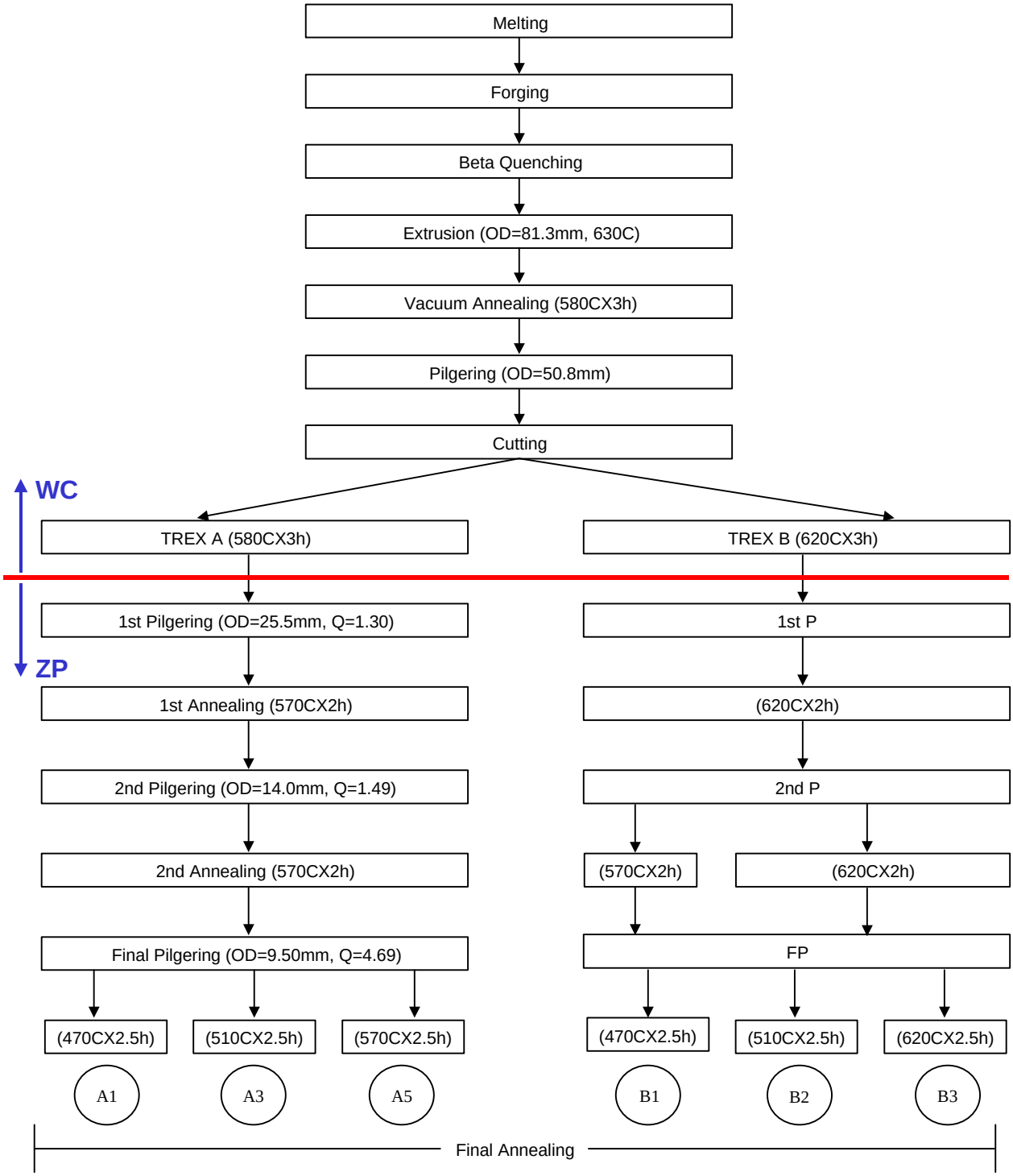



Fig.1 Overall manufacturing process outline of UE, UF, UG and UH cladding tubes

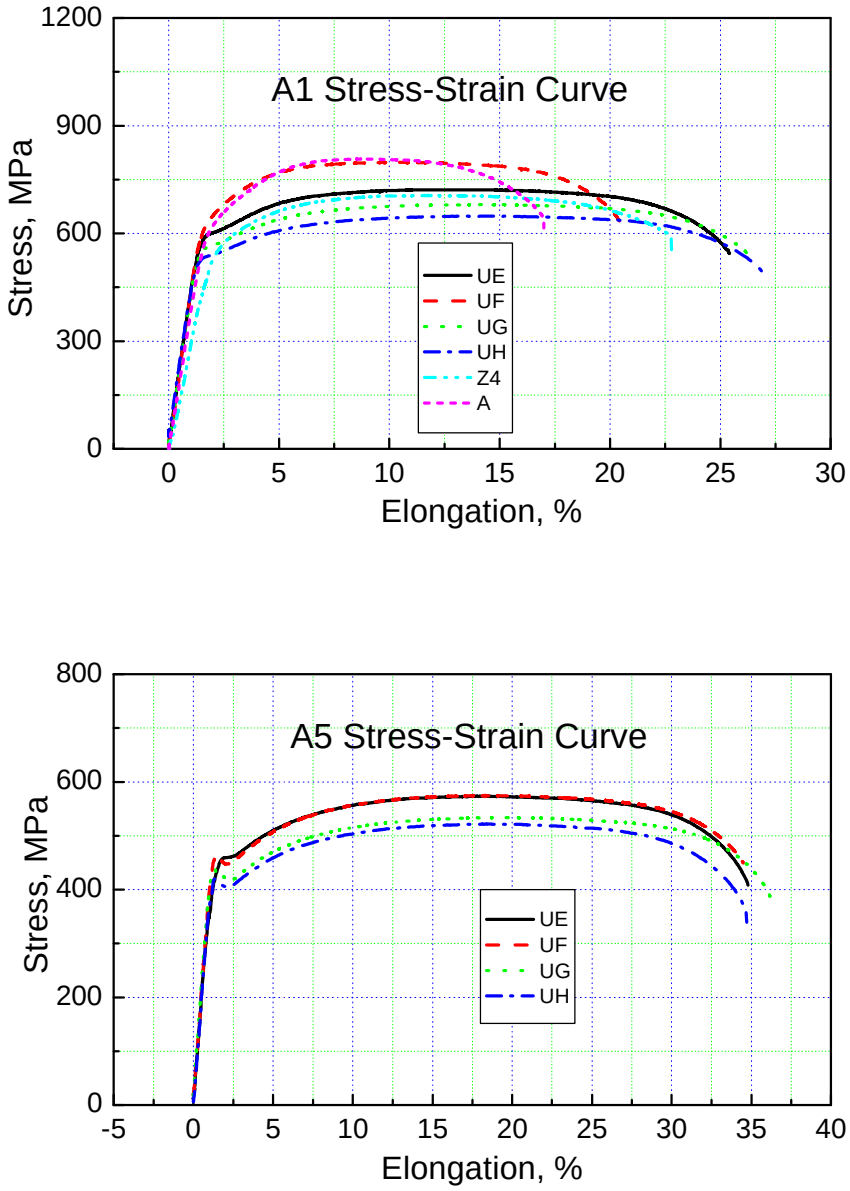
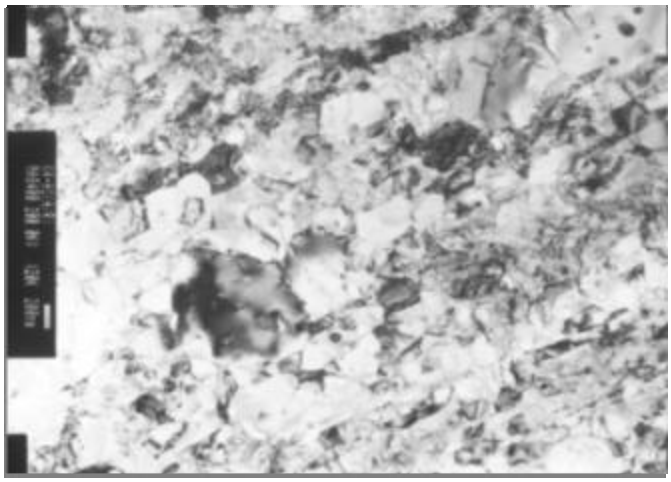
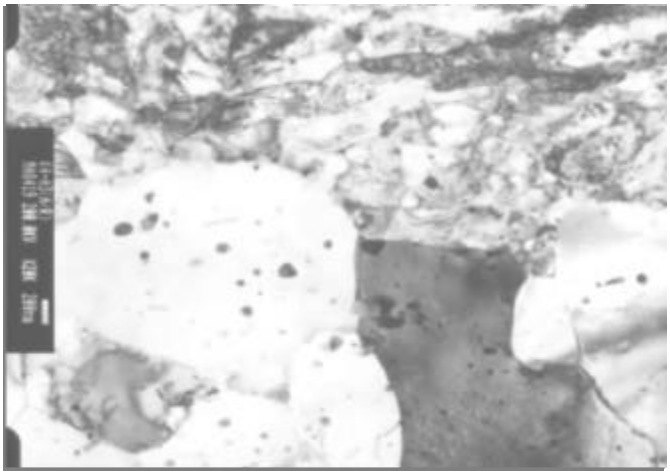



Fig. 2 Stress-Strain curve of UE, UF, UG, and UH cladding tubes when tested at room temperature: A1 Stress-Strain Curve(Room) for A1 final heat treatment, A5 Stress-Strain Curve(Room) for A5 final heat treatment

A



B



C

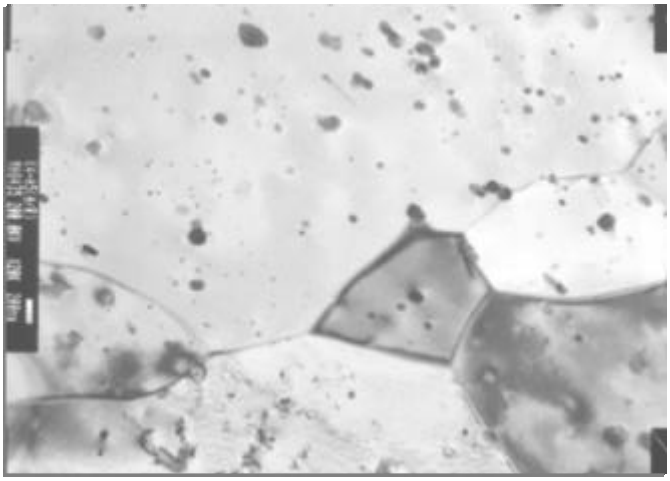


Fig. 3 TEM micrographs of UF cladding tube; A: when it was finally heat-treated for 2.5 hours at 470°C(A1), B: at 510°C(A3), C: at 570°C(A5)

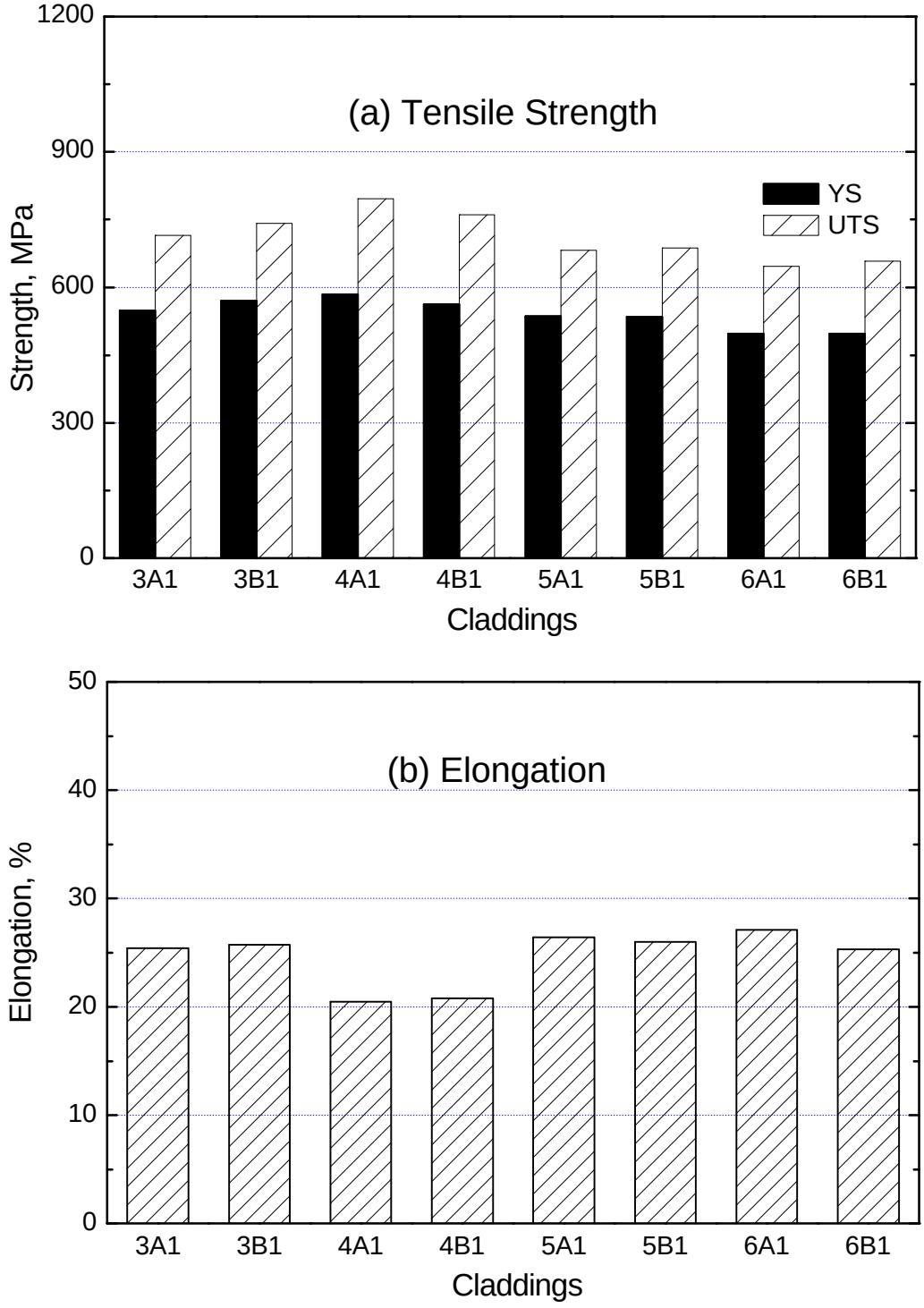



Fig. 4 Mechanical properties at room temperature of UE(3), UF(4), UG(5), UH(6) cladding tubes having different intermediate heat treatment history(A1, B1) when they were finally heat-treated at 470°C X 2.5 hours

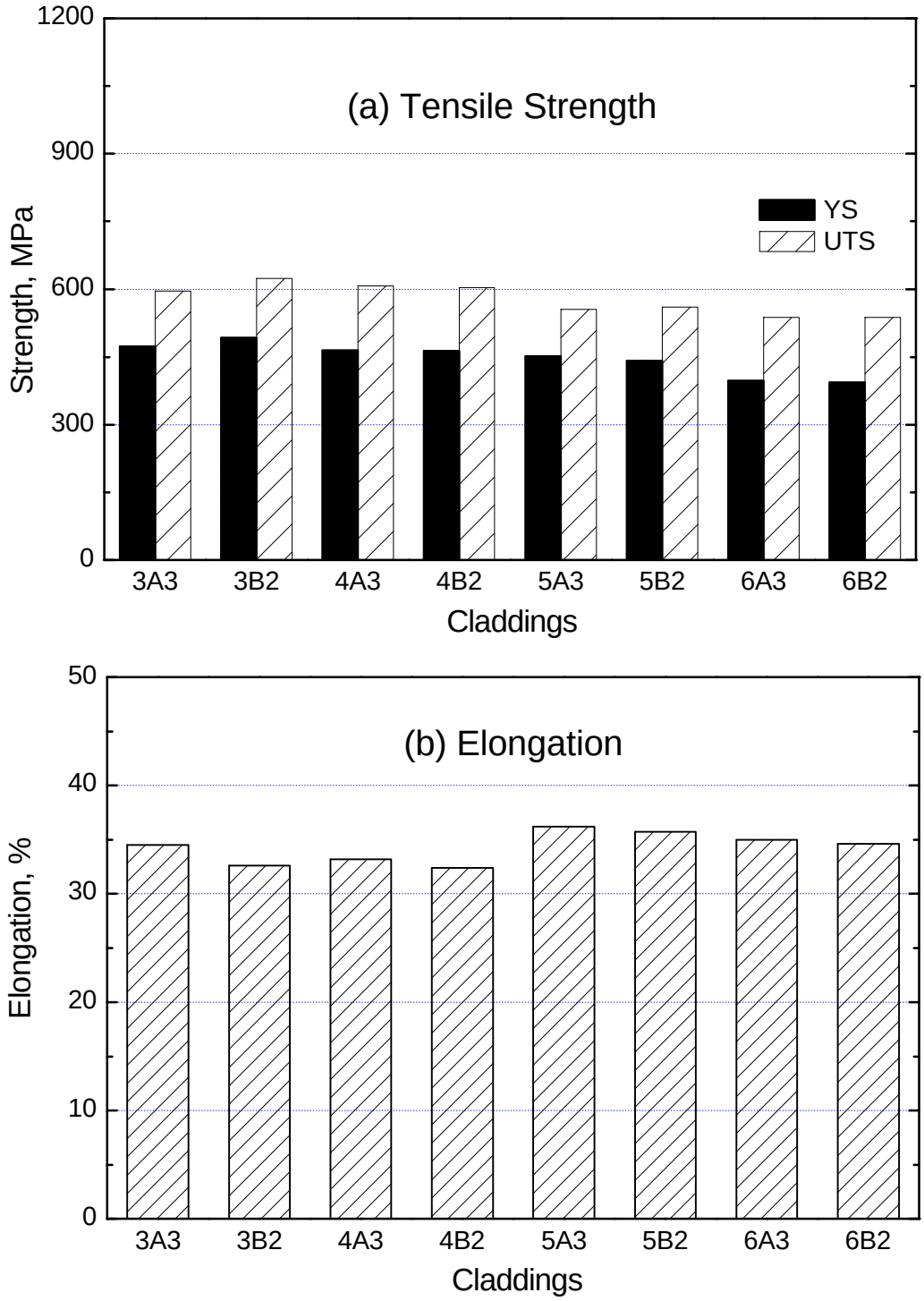



Fig. 5 Mechanical properties at room temperature of UE(3), UF(4), UG(5), UH(6) cladding tubes having different intermediate heat treatment history(A1, B1) when they were finally heat-treated at 510°C X 2.5hours

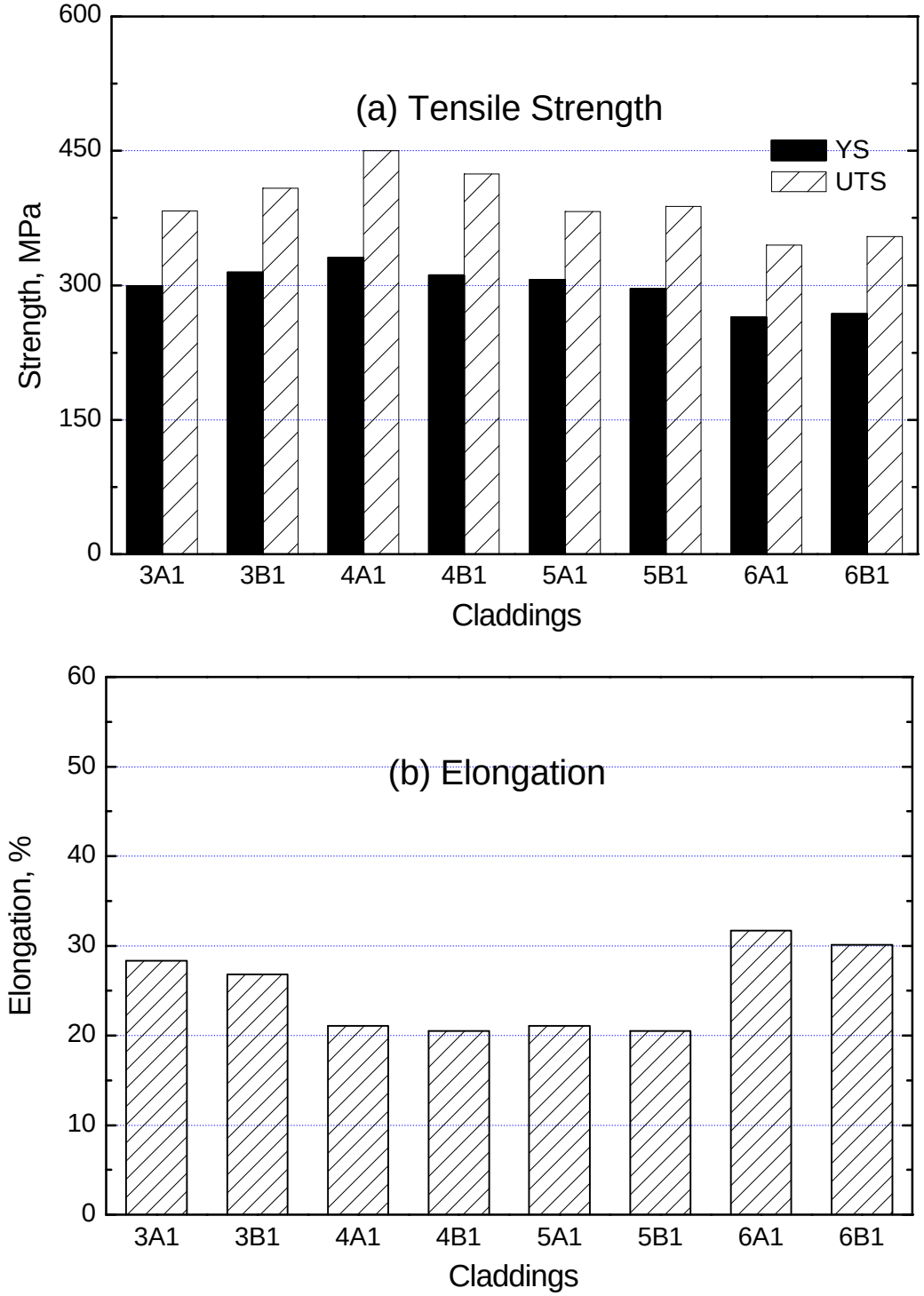



Fig. 6 Mechanical properties at 400°C of UE(3), UF(4), UG(5), UH(6) cladding tubes having different intermediate heat treatment history(A1, B1) when they were finally heat-treated at 470°C X 2.5 hours

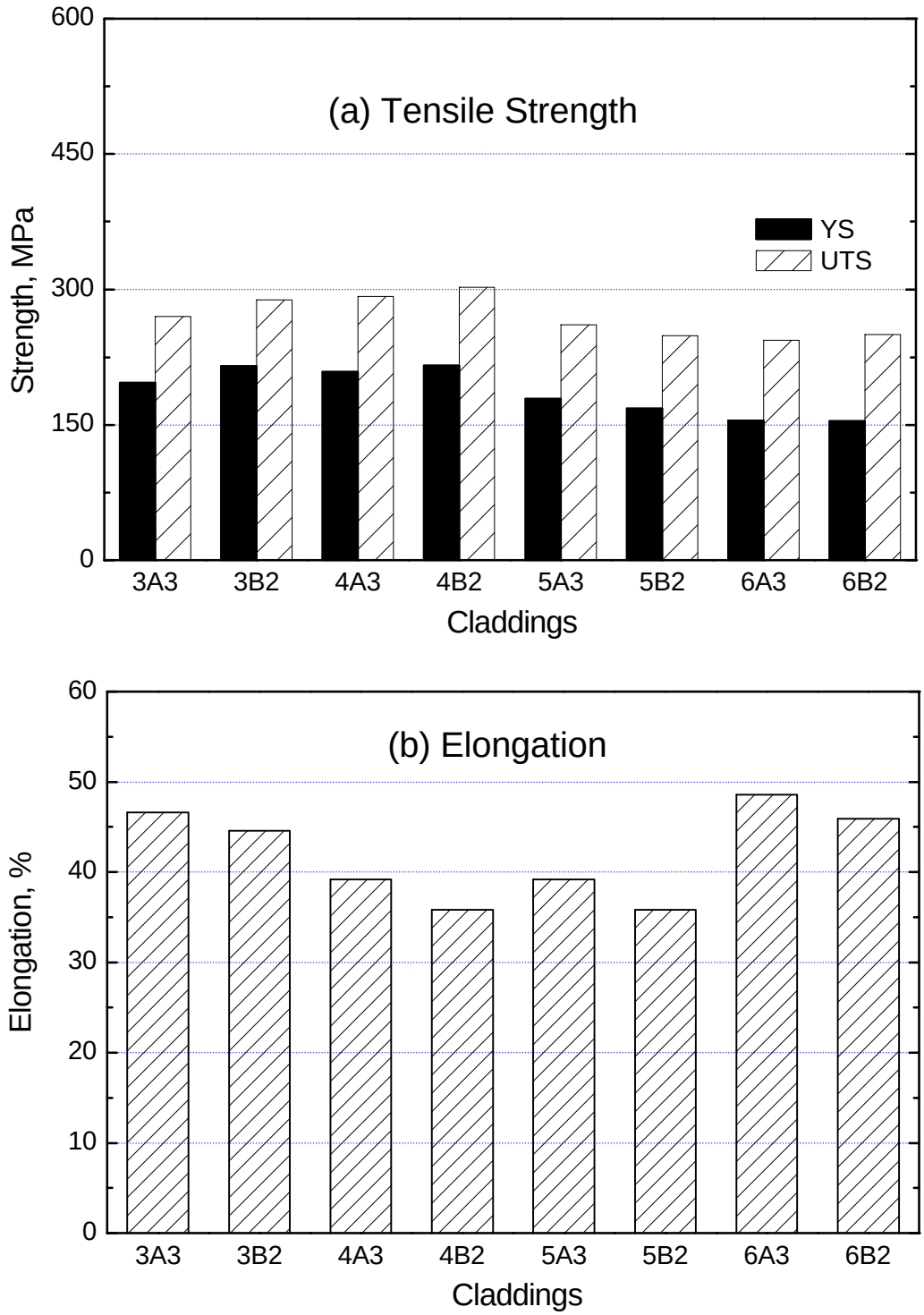



Fig. 7 Mechanical properties at 400°C of UE(3), UF(4), UG(5), UH(6) cladding tubes having different intermediate heat treatment history(A1, B1) when they were finally heat-treated at 510°C X 2.5 hours

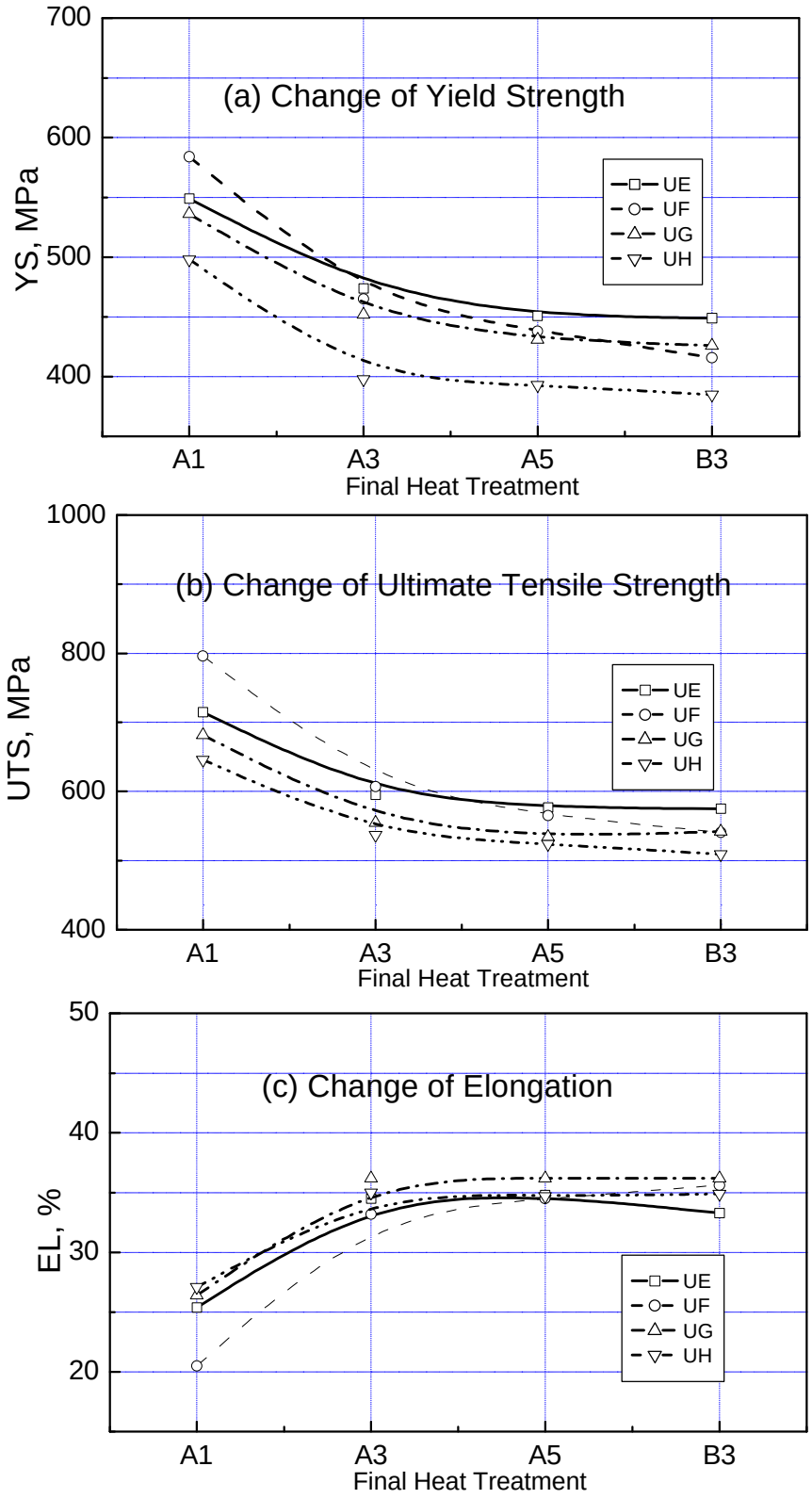



Fig. 8 Mechanical properties at room temperature of UE, UF, UG, UH cladding tubes when they were finally heat-treated for 2.5 hours at 470°C(A1), 510°C(A3), 570°C(A5) and 620°C(B3)

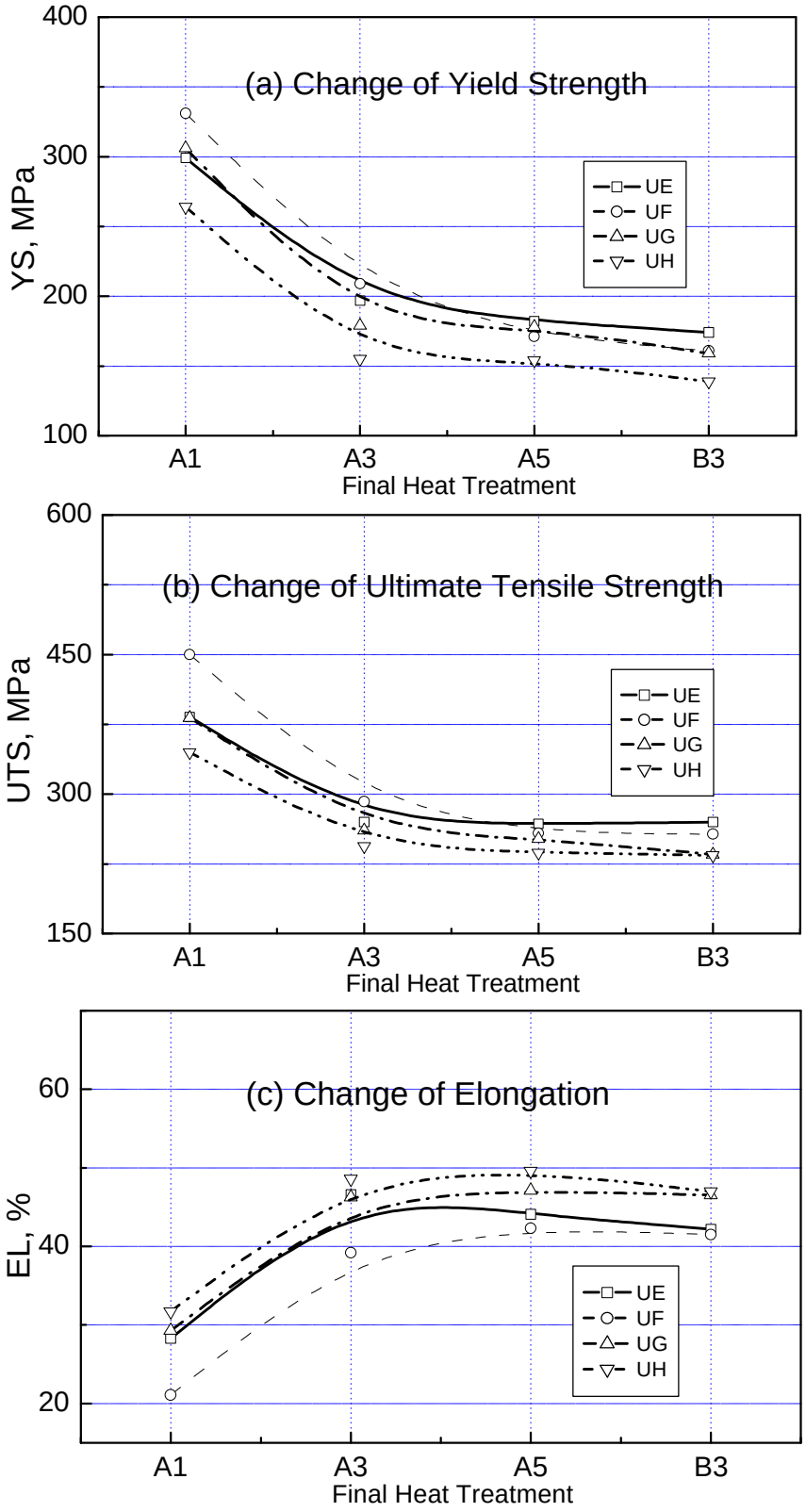



Fig. 9 Mechanical properties at 400°C of UE, UF, UG, UH cladding tubes when they were finally heat-treated for 2.5 hours at 470°C(A1), 510°C(A3), 570°C(A5) and 620°C(B3)

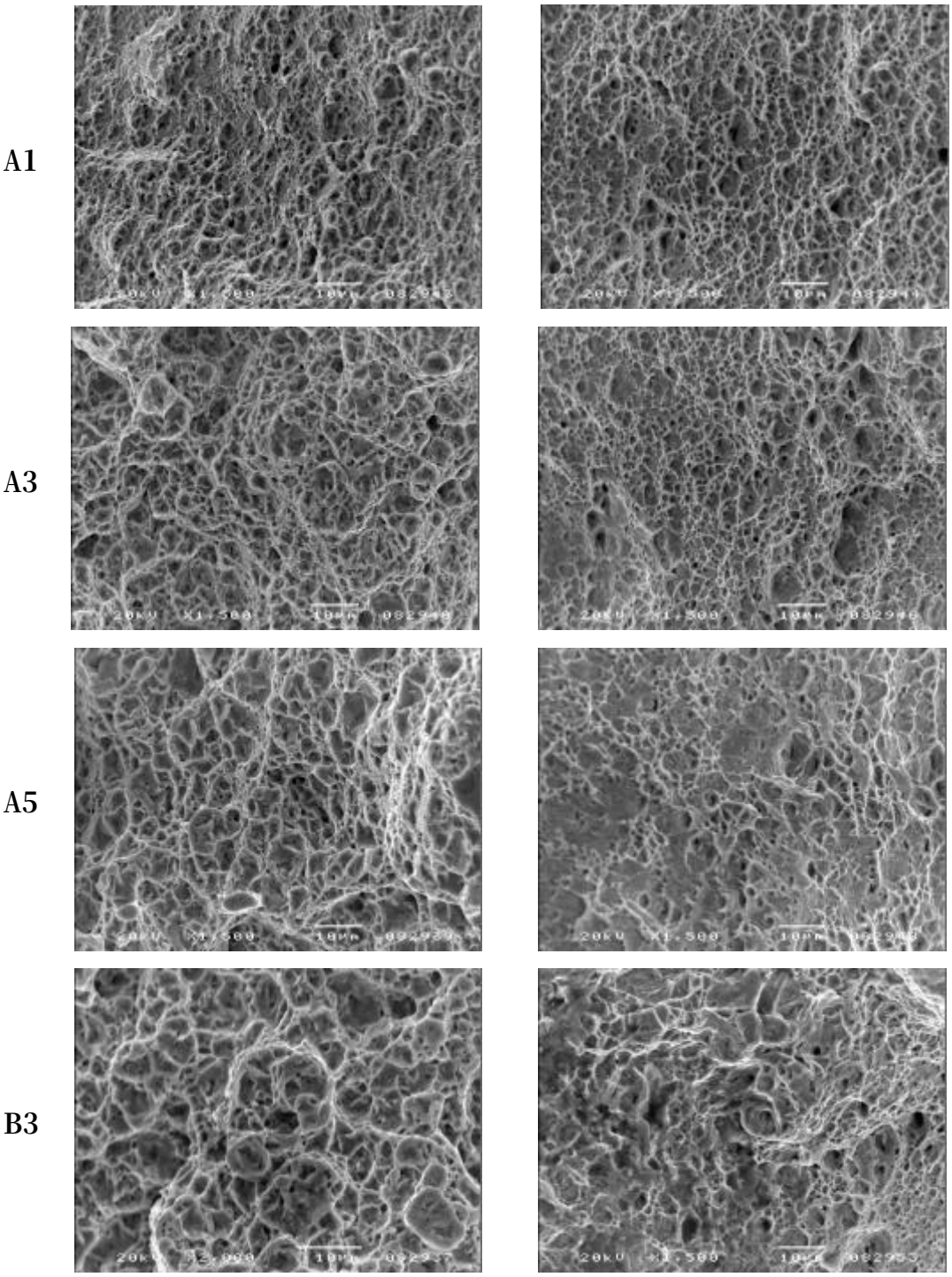



Fig. 10 Fractographs of UF cladding tube when it was tested at room temperature and 400°C