2002 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

K1, K2 피복관의 파열특성에 미치는 중간열처리 및 최종열처리 영향

Effect of Intermediate and Final Heat Treatments on the Burst Properties of K1 and K2 Cladding Tubes

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

요약

한국원자력연구소는 신형핵연료 피복관 K1, K2를 개발하였다. K1, K2 피복관은 TREX열처리 및 중간열처리를 다르게 하고 최종열처리를 CW, 470℃ 및 520℃로 구분하여 제조하였다. 최종 열처리가 파열특성에 미치는 영향을 평가하기 위하여 상온 및 400℃ 고온에서 제조된 K1, K2 피복관을 파열시험 하였다. 중간 열처리가 K1, K2 피복관의 파열특성에 미치는 영향은 미미하였으나 최종 열처리의 영향은 현저하였다. 최종열처리 온도가 높을수록 최대 파열강도는 낮아졌으나 원주방향 연신율은 증가하였다. 470℃에서 최종 열처리한 K1, K2 피복관은 Zry-4 및 AZ 피복관과 유사한 파열특성을 보였다.

Abstract

Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI) has developed newly K1 and K2 cladding tubes for nuclear fuel. K1 and K2 cladding tubes were manufactured with final heat treatment at 470℃, 520℃ and without final heat treatment. To evaluate the effect of both intermediate and final heat treatments on the burst properties of K1 and K2 cladding tubes, the burst tests were carried out at room temperature and 400℃ for the various K1 and K2 cladding tubes, which had manufactured through different 6 kinds of heat treatment processes. 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 the ultimate hoop strength was and the elongation was vice versa. K1 and K2 cladding tubes having final heat treatment at 470℃ showed the burst properties which are similar to those of Zry-4 and AZ.

Key words: K1, K2 cladding tubes, burst properties, heat treatment process

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 K1, K2 핵연료 피복관을 각각 12종씩 개발하였다.

핵연료 피복관의 노내 부식 저항성 및 노내 치수 안정성 (dimensional stability)과 함께 기계적 건전성 확보는 핵연료 피복관의 매우 중요한 품질요소이다. 핵연료 피복관의 파열특성 평가는 인장특성 및 크립특성 평가와 함께 핵연료 피복관의 기계적 건전성을 측정하는 중요 항목중의 하나이다. KAERI에서 개발한 12종의 피복관중 6종의 열처리(A10, A11, A12, D20, D21, D22) 피복관을 ASTM B811-97[7]요건에 따라 상온 및 고온(400℃)에서 파열시험을 실시하여 최대 파열강도(UHS), 원주방향 총연신율(%TCE) 및 균일파열연신율(UBE)를 측정하였다. 각 피복관의 파열특성을 비교하기 위하여 열처리를 다르게 하여 제조된 6종의 K1, K2 핵연료피복관과 함께 low tin Zry-4 핵연료 피복관 및 AZ 핵연료 피복관에 대한 파열시험도 ASTM B811-97에 따라사 실시하고 각 피복관의 최대파열강도(UHS), 원주방향 총연신율(TCE) 및 원주방향 균일파열연신율(UBE)을 측정하였다. 중간열처리가 K1, K2피복관에 미치는 영향은 미미하였지만 최종열처리가 미치는 영향은 알려져 있는 바와 같이 뚜렷하였다. 즉, 냉간가공된 금속재료의 대표적인 열처리 거동과 같이 최종열처리 온도가 상승할수록 UHS는 저하되고 TCE은 증가하는 일반적인 거동을 보였다.

2. 실험 방법

2.1 파열시험 장치

최대 가스 가압 용량은 최대 20,000 PSI까지 이며, 압력유체는 아르곤 가스를 사용한다. 장치에 부착된 전기로는 최대 600℃까지 승온시킬 수 있는 3-zone type으로서 균일온도 구간(uniform zone)은 10cm 이며, 목적온도에서 온도편차는 ± 2℃ 이다.

2.2 파열시험 시편

본 실험에 사용된 K1, K2, low tin Zry-4(이하 Zry-4로 칭함) 및 AZ 피복관 시편의 화학조성 및 치수(외경x내경x두께)는 표1과 같으며, K1및 K2 피복관 제조 중 수행된 열처리 공정은 표2와 같다.

표 1. 시험된 피복관의 화학조성 (wt.%) 및 치수 (외경x내경x두께:mm)

성분	Nb	Sn	Fe	Cr	Mn	Cu	O	Zr	칫수
K1	0.4	0.8	0.35	0.15	x		0.120	Bal.	9.5x8.36x0.57
K2	0.2	1.1	0.35	0.15	-	x	0.12	Bal.	9.5x8.36x0.57
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

표 2. K1, K2 피복관의 열처리공정

피복관	열처리 공정	ID	TREX 열처리	중간열처리			최종 열처리
				1차	2차	3차	
K1	A	1A10	580 °Cx3hr	590 °Cx3hr	570 °Cx3hr	570 °Cx3hr	N/A
		1A11					470 °Cx3hr
		1A12					520 °Cx3hr
K2	D	2D20	640 °Cx3hr	620 °Cx3hr		-	N/A
		2D21					470 °Cx3hr
		2D22					520 °Cx3hr

K1, K2 피복관 시편은 "Specification for the manufacturing of the TREX of KAERI alloys"[8] 및 "Specification for the manufacturing of the KAERI cladding tubes"[9]에 따라 제조된 것이고, Zry-4 및 AZ 피복관 시편은 "As-received"상태이다. Zry-4 피복관은 496℃에서 4시간 동안 최종열처리하여 응력이완(Stress Relief)시킨 것이다. AZ 피복관의 최종열처리 상태는 파악되지 않았지만 454℃ 471℃인 것으로 알려져 있다. 각 시편의 길이는 ASTM B811-97 규격에 따라 외경

의 약 10배인 150mm로 하였다. 시편의 한쪽 끝 단에서 60, 80, 100 mm 3점 위치을 name pen으로 마킹하고 60 간격으로 3점 위치의 시험전 외경(OD)칫수을 측정하였다. 시편의 End fittings은 원주 방향 대 축 방향 응력비를 2:1이 되도록 하였다. 그리고 Metal plug는 시험 피복관의 평균내경보다 0.25±0.05mm 적은 직경을 갖고 양단에 약간 구배를 갖는(tapered)를 갖도록 제작하여 사용하였다.

2.3 파열시험 실시

ASTM B811-97에 따라 탄성부 하중 가압속도는 "13.8±1.4MPa/분 "으로 하였고, 시험기간중 똑 같은 initial fluid volume pumping 속도를 유지하여 각 피복관별로 2개씩 파열시험을 실시하였다. 400℃ 고온시험의 경우에는 E21-92(1998 재승인)요건[10]에 따라 시편이 400℃의 평형온도에 도달하도록 약 20분간 400±3℃의 온도를 유지한 후 가압기를 작동시켜 가압기의 각 행정마다 급격한 압력 변동(surge)이 발생하지 않도록 하여 400℃±3℃에서 파열시험을 실시하였다. 시편 내부의 가압는 가압기와 시편내 공간의 사이를 연결하는 가스파이프의 중간에 설치된 유량미세조절 가능한 제어밸브에 의하여 조절하였다. 시편의 표면온도는 K-type 열전대에 의해서 계측하였다.

3. 실험 결과 및 논의

3.1 파열시험 데이터 계산

피복관 파열시 피복관의 내압과 원주방향 신장량으로부터 최대파열강도(ultimate hoop stress or ultimate burst strength), 원주방향 총연신율(total circumferential elongation) 그리고 원주방향 균일 파열연신율(uniform burst elongation)을 다음의 관계식을 이용하여 구한 결과 표3과 같다.

최대파열강도(UHS) s (MPa) = PD/2t [7]

D: 시험 피복관의 평균 외경(OD, mm) ? 시험 피복관의 평균 두께(WT, mm)

t: 시험전 시험 피복관의 최소 두께 (WT, mm)

최대 유압 (P, MPa)

원주방향 총연신율 (TCE) = (C2 ? C1) / C1 X 100

C1: 시험전 피복관의 원주방향의 길이

C2: 시험후 피복관의 원주방향의 최대 길이(파열개구 포함)

원주방향 균일파열 연신율 (UBE) = (C2 ? C1) / C1 X 100

C1: 시험전 피복관의 원주방향의 길이

C2: 시험후 피복관의 파열개구에서 20mm 떨어진 곳에서 원주방향의 최대길이

표3. K1, K2 피복관의 파열특성

최종열처리	상온			고온		
	UHS(MPa)	TCE(%)	UBE(%)	UHS(MPa)	TCE(%)	UBE(%)
미수행	1030-1130	4-7	3-4	400-500	9-11	5-7
470°C	960-980	5-8	4-6	350-530	10-19	4-6
520°C	800-840	14-17	11-13	250-380	40-65	12-16

3.2 시험온도 변화에 따른 K1, K2 피복관의 파열특성

그림 1은 실온 및 400℃고온에서 파열특성을 나타낸 것이다. K1, K2 피복관 모두 보다 높은 온도에서 최종열처리를 수행할 경우 UHS가 낮고 TCE 및 UBE가 큼을 알 수 있다. 이는 냉간 가공된 금속재료를 열처리할 때 나타나는 일반적인 현상과 일치하는 것이다. 그림 1(1b)에서 보듯이 K1A (A10, A11, A12) 피복관은 400℃고온에서 UHS가 다른 피복관에 비하여 떨어진다. 그러나 전체적으로 K1, K2 모두 A공정 열처리와 D공정 열처리 간에 뚜렷한 차이가 없는 것으로 보아 중간열처리가 K1, K2 피복관의 파열특성에 미치는 양향은 미미한 것으로 보인다. 재결정 열처리한 Zr 합금 핵연료피복관에 대한 ASME B811-97의 파열특성 요건에 의하면 실온에서 UHS는 500MPa 이상, TCE는 20%이상이다. 그러나, 520℃에서 최종열처리한 K1, K2의 A12, D22 피복관

은 UHS는 800MPa이상이나 TCE는 20%가 안된다. 이는 520℃에서 최종열처리를 수행했기 때문에 재결정이 완료되지 않고 제조중 도입된 전위가 남아있기 때문으로 생각된다.[11] 그러나 CE 시방서[12]는 실온에서 UHS는 690MPa 이상, TCE는 12%이상으로 규정하고 있다. 따라서 A10, A11, D20, D21열처리 시편은UHS는 CE 시방서 규격보다 높으나 TCE는 낮다. 그런데 KWU 시방서[13]에서는 400℃고온에서 파열특성만 규정하고 있다. 즉, UHS값이나 TCE값은 규정하지 않고 UBE값만 평균 2.5%이상(개별 1%이상)으로 규정하고 있다. KWU 시방서기준에서 보면 K1, K2 피복관의 UBE는 매우 양호하다고 할 수 있다. 그림 2는 470℃에서 응력제거 열처리(A11, D21)를 실시한 K1, K2 피복관과 유사한 열처리 조건의 Zry-4 및 AZ 피복관의 파열특성을 비교한 것이다. 실온에서 K1, K2 피복관의 UHS값은 Zry-4 피복관 보다는 높으나 AZ 피복관보다는 약간 낮다. 400℃고온에서 K2 피복관의 UHS값은 Zry-4 피복관 보다는 높으나 AZ 피복관보다는 약간 낮다.. TCE값은 실온 및 고온에서 Zry-4 및 AZ 피복관과 비슷하지만 K2 D21 피복관은 이들보다 TCE값이 낮다. 또한 실온에서 K1, K2 피복관의 UBE값은 대체적으로 Zry-4 피복관보다 낮으나 AZ 피복관보다 높다. 그림 3는 고온에서 K1, K2 피복관의 파열모양을 나타낸 사진이다. 최종열처리를 하지 않은 경우 연성이 작아서 취성 파열이 발생하였으나 최종 열처리 온도가 높을수록 재결정의 영향으로 파괴 전 ballooning 이 발생한 후 파열되었음을 알 수 있다. 또한 470℃에서 응력제거 열처리를 수행한 시편의 경우는 520℃에서 최종 열처리한 피복관에 비하여 balloning도 작았고, 터짐 개구의 크기도 최종 열처리를 하지 않은 경우나 520℃최종 열처리를 하지 않은 경우보다 작았다. 따라서 최종 열처리를 하지 않거나 520℃에서 최종 열처리한 경우보다 파열특성이 더 우수하다고 할 수 있다. 그림 4과 5는 최종열처리를 다르게 A공정 열처리를 수행한 K1, K2 피복관의 파열단면에 대한 SEM 사진을 나타낸 것이다. K1 피복관 파열시험에서 A10 열처리의 경우 400℃에서 파열된 시편의 경우 dimple형성과 더불어 벽개면을 형성하면서 파괴가 진행된 것으로 보인다. 그리고 A11, A12 열처리를 수행한 시편이 400℃에서 파열된 경우 dimple이 상온파열에서 형성된 것보다 약간 더 크고 벽개면이 형성되고 있음을 보여준다. K2 피복관 파열시편 경우에는 A12 열처리를 한 피복관이 400℃ 파열시 dimple의 합체와 함께 압력이 작용하는 일정한 방향으로 결을 형성하면서 파괴가 이루어 졌다.

4. 결 론

K1, K2 피복관의 인장특성에 대한 중간열처리 영향 및 최종열처리 영향평가를 위해 ASTM B811-97요건 및 E21-92에 따라 실시한 상온 및 400℃ 파열시험결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 중간 열처리가 K1, K2 피복관의 파열특성에 미치는 영향은 미미하였으나 최종 열처리의 영향은 현저하였다. 최종열처리 온도가 높을수록 최대 파열강도는 낮아졌으나 원주방향 연신율은 증가하였다.
2. 520℃에서 최종열처리한 K1, K2의 A12, D22피복관은 UHS는 800MPa이상이나 TCE는 ASTM B811-97에서 규정하고 있는 20%이하이다. 이는 ASTM B811-97에서 규정하는 소재는 완전 재결정된 것이나 K1, K2의 A12, D22는 520℃에서 최종열처리한 것으로 전위가 남아있기 때문으로 생각된다.
3. 470℃에서 최종열처리하여 응력을 제거한 K1, K2, Zry-4 및 AZ 피복관과의 비슷한 특성을 보였으나 세부적으로는 다음과 같다.
   A. K1, K2 피복관의 UHS 값은 대체적으로 Zry-4 피복관보다 크고 AZ 피복관보다는 비슷하거나 다소 낮은 값을 갖는다.
   B. 400℃ 고온에서 K1의 TCE값은 Zry-4 및 AZ 피복관보다 비슷하거나 높으나 실온에서는 AZ 피복관보다 높지만 Zry-4피복관보다는 낮다.
   C. K2 피복관의 TCE는 Zry-4 및 AZ 피복관보다 낮다.
   D. K1, K2 피복관의 UBE값은 상온 및 400℃고온에서 AZ 피복관보다 높다. 그러나 K1 A열처리한 경우에는 상온에서 Zry-4보다 높지만 그 외의 열처리한 피복관은 Zry-4 피복관보다 낮다.

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. ASTM B811-97, Standard Specification for Wrought Zirconium Alloy Seamless tubes for Nuclear Reactor Fuel Cladding
8. Specification for the manufacturing of the TREX of KAERI alloys, 한국원자력연구소, 2000.3.27
9. Specification for the manufacturing of the KAERI cladding tubes, 한국원자력연구소, 2000.3.27
10. ASTM E21-92, Standard Test Methods for Elevated Temperature Tension Tests of Metallic Materials
11. 이명호, 남철, 정용환: K1, K2 인장특성 평가, AF-ZC-TR-02-037 Rev.0, 한국원자력연구소, 2002.3.28
12. CE 시방서, Zircaloy-4 fuel rod cladding tube specification No. 00000-PD-301, Rev.04 (7/7/91)
13. KWU 시방서, Zircaloy 2 and Zircaloy 4 cladding tube for light and heavy water reactor fuel rods, RE-LE-3384 Rev. D. (Feb. 28, 85)

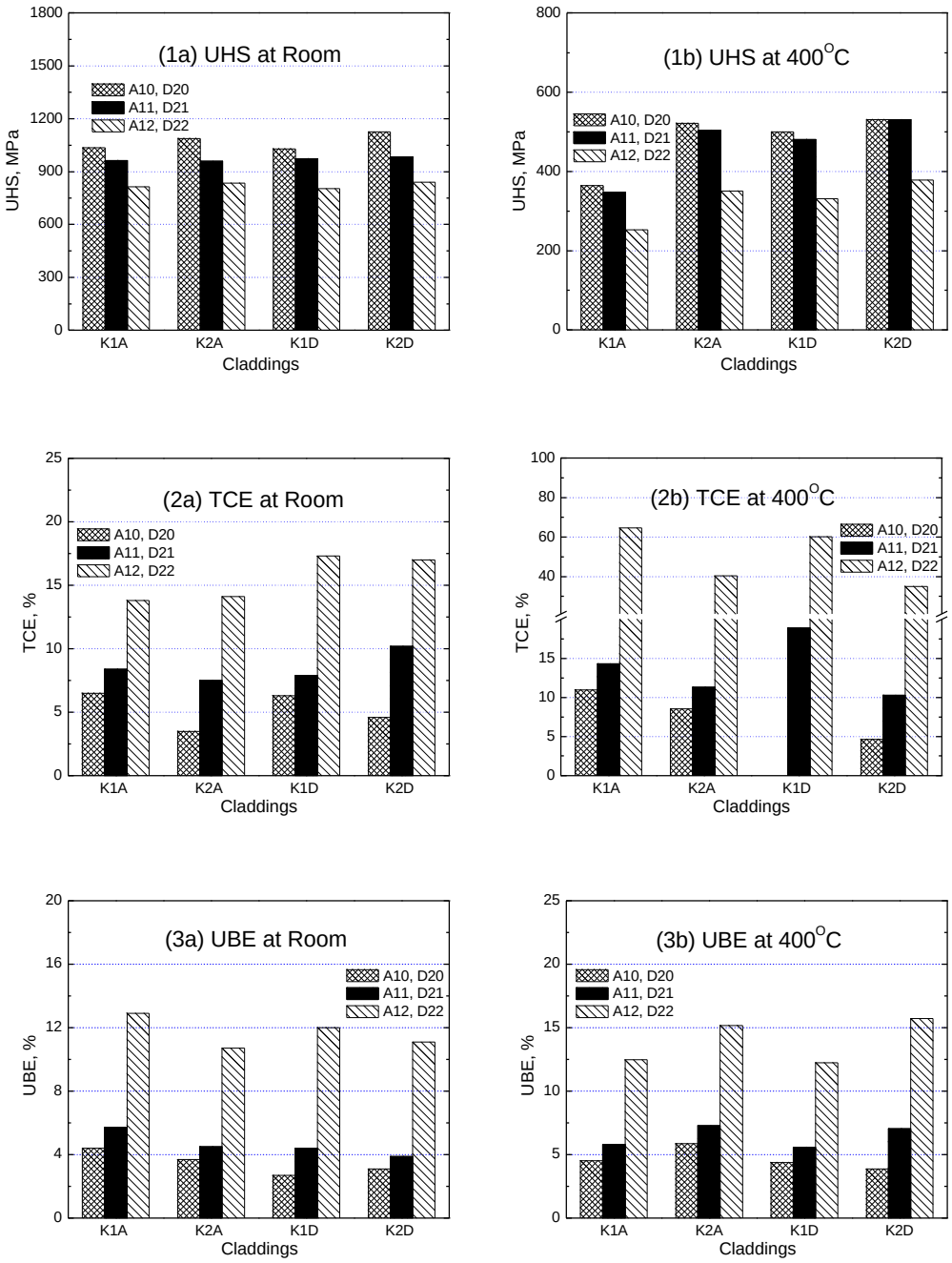

Fig. 1. Burst properties of K1 and K2 claddings at room temperature and 400°C

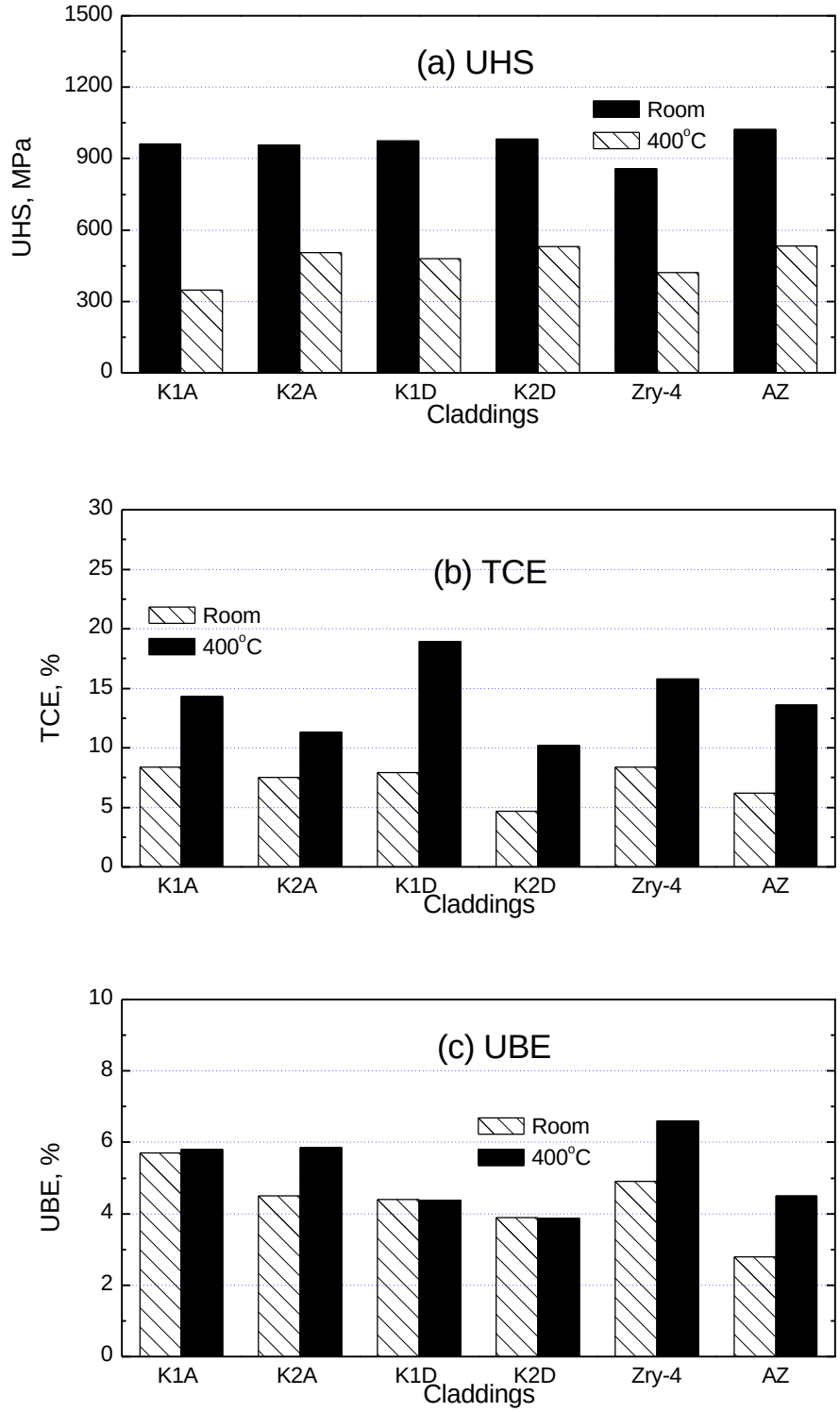

Fig. 2. Burst properties of K1 and K2 claddings at room temperature and 400°C

Fig. 3. Burst Fractographs of both K1 and K2 claddings: A10, A11, A12, D20, D21 and D22 at 400°C

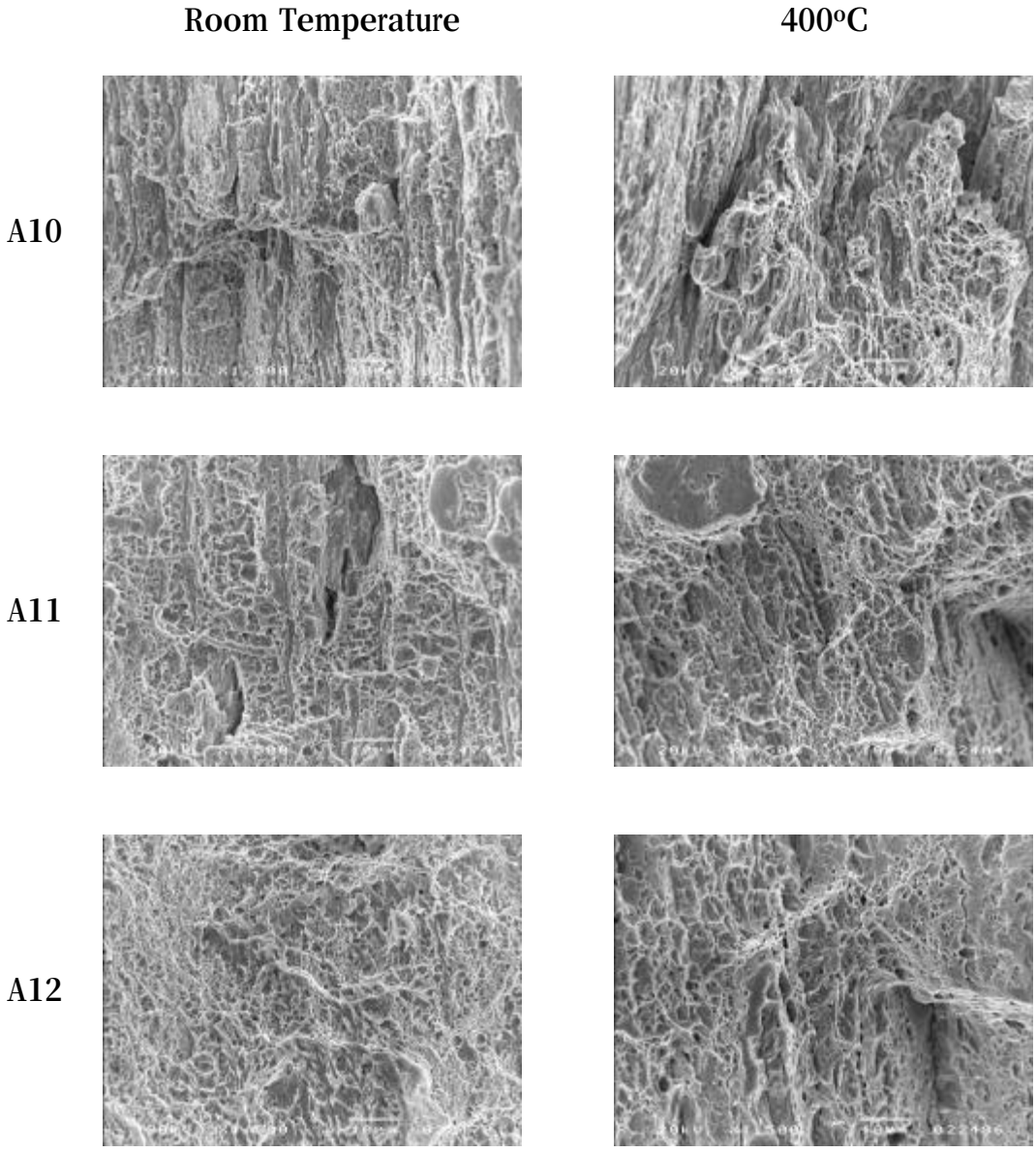

Fig. 4. Fractographs of K1 claddings: A10, A11 and A12 at room temperature and 400°C

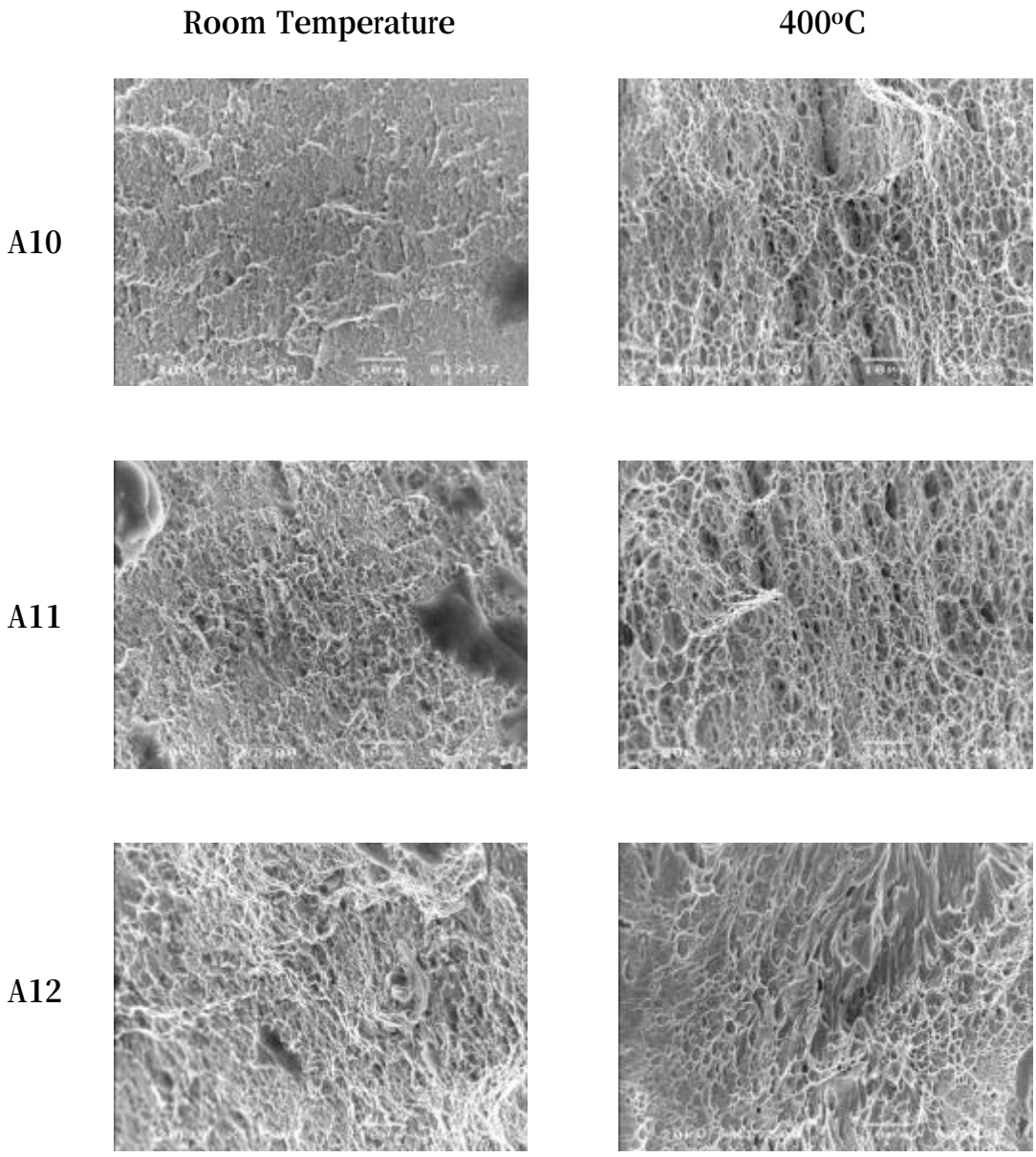

Fig. 5. Fractographs of K2 claddings :A10, A11 and A12 at room temperature and 400°C