2002 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

K1, K2 피복관의 인장특성에 미치는 중간열처리 및 최종열처리 영향

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

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

요약

한국원자력연구소는 핵연료 피복관용 피복관 K1, K2를 개발하였다. K1, K2 피복관은 TREX열처리 및 중간열처리를 다르게 하고 최종열처리를 CW, 470℃ 및 520℃로 구분하여 제조하였다. 중간열처리 및 최종열처리가 K1, K2 피복관의 인장특성에 미치는 영향을 평가하기 위하여 6종의 열처리 공정(A10, A11, A12, D20, D21, D22)으로 각각 다르게 제조된 K1, K2 피복관의 상온 및 400℃ 고온에서 인장시험을 실시하였다. 중간 열처리가 K1, K2 피복관의 인장특성에 미치는 영향은 미미하였으나 최종 열처리의 영향은 현저하였다. 최종열처리 온도가 높을수록 항복강도 및 최대인장강도는 낮아졌으나 연신율은 증가하였다. 또한 K1, K2 피복관의 인장특성에 가장 좋은 영향을 미치는 열처리공정은 A11 공정이었으며 K1피복관보다 K2 피복관의 인장특성이 우수하였다.

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 tensile properties of K1 and K2 cladding tubes, the tensile 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 (A10, A11, A12, D20, D21 and D22,). 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 yield strength and the ultimate tensile strength was and the elongation was vice versa. The heat treatment process A11 was favorable to the tensile properties of the cladding tubes and the tensile properties of K2 were better than those of K1.

Key words: K1, K2 cladding tubes, tensile 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. K1, K2 핵연료피복관에 대한 인장특성을 평가하기 위하여 K1, K2, low tin Zry-4 및 Zirlo 핵연료 피복관에 대한 인장시험을 ASTM B811-97[7], E8M-00a[8] 및 E21-92[9](1998 재승인)요건에 따라 상온과 400℃에서 실시하여 각 피복관의 최대인장강도, 항복 강도 및 연신율을 측정하였다.

특히, K1, K2피복관은 제조공정상 도입되는 중간열처리와 최종열처리가 인장특성에 미치는 영향을 알아보고자 중간열처리 및 최종열처리열처리를 각각 다르게 하여 제조된 각 12종의 K1, K2 피복관 중 6종의 각 열처리(A10, A11, A12, D20, D21, D22) 시편에 대하여 인장시험을 실시하였다. 인장시험 결과, 중간열처리가 K1, K2피복관의 인장특성에 미치는 영향은 미미하였지만 최종열처리가 미치는 영향은 뚜렷하였다. 즉, 냉간가공된 금속재료의 대표적인 열처리 거동과 같이 최종열처리 온도가 상승할수록 항복강도 및 최대 인장강도는 저하되고 연신율이 증가하는 거동을 보였다. 또한 470℃에서 응력제거 열처리(A11, D21)를 수행한 경우 K1 피복관의 강도는 Zirlo 피복관과 비슷하였지만 Zry-4 피복관보다는 높았고 K2 피복관의 강도는 Zry-4 피복관보다 우수하였으나 연신율은 Zry-4 피복관보다는 낮았다. 강동 및 연신율에 대한 최종열처리 영향을 종합하면 A11열처리가 가장 우수한 인장특성을 보이는 열처리라고 생각된다.

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 K1, K2, low tin Zry-4(이하 Zry-4로 칭함) 및 Zirlo 피복관의 화학조성 및 치수(외경x내경x두께)는 표1과 같고 K1및 K2피복관 제조중 열처리 공정는 표2와 같다.

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

성분	Nb	Sn	Fe	Cr	Mn	Cu	O	Zr	외경x내경x두께
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
Zirlo	1.00	0.99	0.11	-	-		0.113	bal.	9.5x8.36x0.57

표 2. K1, K2 피복관 제조중 열처리 공정

피복관	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"[10] 및 "Specification for the manufacturing of the KAERI cladding tubes"[11]에 따라 제조된 것이고 Zry-4 피복관 시편은 Sandvik Special Metals Corp.에서 제조한 것으로 "As-received"상태이며, Zirlo 피복관 시편은 Westinghouse Electric Company에서 제조한 것으로 "As-received"상태이다. Zry-4 피복관은 496℃에서 4시간 동안 최종 열처리한 응력이완 조직이나 Zirlo 피복관의 최종열처리 상태는 파악되지 않았지만 454℃ 471℃인 것으로 알려져 있다. 각 시험시편은 동일 조건에서 2개의 시편 (길이 150mm)을 채취하여 표점거리 50mm가 시편 중앙에 위치하도록 하고 표점거리 중심에서 시편 양단쪽으로 표점거리를 약 5mm씩 이동하여 표점거리를 divider로 마킹표시를 하고 시험 후 최종 연신거리 측정에 이를 이용하였다. 또한 시편 치수는 등 간격 3점에 대한 내경 및 외경을 측정하여 평균한 값을 사용하였다.

2.3 인장시험 실시

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.로 하고 탄성한계 이후의 응력에서는 2.5mm/min.로 하여 인장시험을 실시하였다. 400℃ 고온 인장시험의 경우 ASTM E21-92 요건에 따라 385℃에서 20분간 가열로를 안정시킨 후 400±3℃에서 20분간 유진한 후 시험을 실시하였다. 그리고 시험완료 후 E8M-00a에 규정된 0.2% offset에 따라 항복강도를 결정하였다. 그리고 인장시험이 완료된 시편의 파단면의 미세조직을 SEM을 이용하여 관찰하였다. 또한 TEM 관찰용 시편을 준비하기 위하여 각 tube 소재를 pickling하였다. Nb를 함유한 K1, K2 및 Zirlo 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 80㎛까지 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 인장시험 결과 및 인장특성 비교

그림 1은 상온에서 K1, K2, Zry-4 및 Zirlo 피복관의 응력-변형곡선을 나타낸 것이다. K1, K2 피복관 모두 최종 열처리 영향을 뚜렷이 보여주고 있다. 즉, 전형적인 금속의 응력-변형곡선으로 최종열처리 온도가 높을수록 피복관의 강도는 낮고 연신율이 큰 것을 알 수 있다. 그림 2와 3은 상온 및 400℃ 고온에서의 인장특성에 K1, K2 피복관에 대한 중간열처리의 영향을 나타낸 것이다. 그림 2,3을 보면 상온 및 고온에서 K1,K2 피복관의 중간열처리가 피복관의 YS, UTS 및 EL에 미치는 영향이 미미함을 알 수 있다. 그러나 그림 2에서 K2 피복관의 경우 A11열처리 공정은 상온에서 EL값을 높인다고 볼 수 있다. 특히, A11열처리나 D21열처리 모두 상온에서 K1, K2 피복관의 YS, UTS는 Zry-4보다 우수하고 EL은 Zirlo 보다 우수함을 알 수 있다. A12, D12열처리의 경우 K1, K2 피복관의 YS는 Zry-4와 비슷하나 UTS는 작다. 그러나 EL은 Zry-4나 Zirlo보다 좋음을 알 수 있다. 그림 3은 고온에서도 K1, K2피복관 모두 중간열처리의 영향은 미미하지만 YS, UTS 및 EL 모두 K2 피복관이 K1피복관보다 우수함을 보여준다. 따라서 K2 피복관이 K1피복관보다 우수하다고 할 수 있고 A11열처리가 K1, K2피복관의 인장특성에 가장 좋은 영향을 미친다고 생각할 수 있다. 그림 4와 5은 상온 및 400℃ 고온에서의 인장특성에 K1, K2 피복관에 대한 최종열처리의 영향을 나타낸 것이다. 그림4를 보면 상온에서 K1, K2 피복관의 최종열처리가 피복관의 YS, UTS 및 EL에 미치는 영향이 현저함을 알 수 있다. 즉, 최종열처리 온도가 높을수록 YS, UTS는 감소하나, EL은 증가한다. 그림 5를 보면 400℃고온에서 최종열처리를 하지않은 것과 470℃에서 최종 열처리한 경우 K1피복관의 인장특성은 차이가 없음을 알 수 있다.

3.2 미세조직 특징 관찰

그림 6는 A공정 열처리를 했을 경우 K1, K2 피복관의 TEM 미세조직을 보여준다. 예상되는 바와 같이 최종열처리 온도가 높을수록 전위는 사라지고 재결정이 늘어나 성장함을 알 수 있다. 470℃에서 최종 열처리한 경우 K2 피복관은 K1 피복관보다 더 부분재결정 조직으로 전위가 상당수 포함되어 있다. 그리고 520℃에서 최종 열처리한 경우 K2 피복관은 K1 피복관보다 더 작은 재결정 조직을 보인다. 뿐만 아니라 Nb 및 Sn에 의한 고용강화가 Fe, Cr, Cu에 의한 석출물강화 효과보다 크다.[12] K1 피복관이 K2피복관보다 Nb는 0.2wt.% 더 포함하고 있지만 Sn은 0.3wt.% 적게 포함하고 있다. 이를 종합하여 볼 때 K2 피복관이 K1피복관보다 기계적 특성이 좋은 것으로 판단되며 470℃에서 최종 열처리 했을 경우 가장 바람직한 인장특성을 얻을 수 있는 것으로 생각된다. 그림 7은 응력제거 열처리를 수행한 여러 가지 피복관의 인장특성과 TEM 사진을 나타낸 것이다. K2의 YS가 Zirlo의 YS와 비슷하나 EL은 더 크다. 이는 K2가 더 많은 완전 재결정조직을 보이며 더 많은 전위를 지니고 있기 때문으로 생각 된다. 그러나 Zirlo 피복관이 강도가 더 큰 것은 Nb 합금원소를 K2피복관보다 훨씬 많이 함유하여 고용강화 효과가 컸기 때문으로 판단된다.

3.3 파단면 관찰 및 파괴기구 고찰

그림 8, 9는 상온 및 400℃에서 K1 피복관중 A10, A11, A12 피복관을 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, A10, A11,A12로 갈수록 dimple이 커짐을 볼 수 있다. 400℃고온인장시험의 파단면은 상온 인장시험의 파단면보다 voids가 많이 형성되어 있음을 볼 수 있다. 그림 10는 응력완화 피복관인 K1, K2와 Zry-4 및 Zirlo 피복관을 상온 및 400℃에서 인장시험한 후 파단면에 대한 SEM 사진을 비교한 것이다. 피복관 모두 상온보다는 400℃에서의 파단면의 dimple이 크고 깊으며 Zirlo 피복관 보다는 Zry-4피복관의 dimple이 크다. 그리고 K1 피복관과 K2 피복관의 dimple 크기는 비슷하나 K2피복관의 경우에 void합체로 인한 전단현상이 더 많이 나타남을 볼 수 있다. 따라서 연성이 클수록 파단면상의 dimple이 크고 깊으며 void가 발달하면서 파괴가 진행된다고 생각된다.

4. 결 론

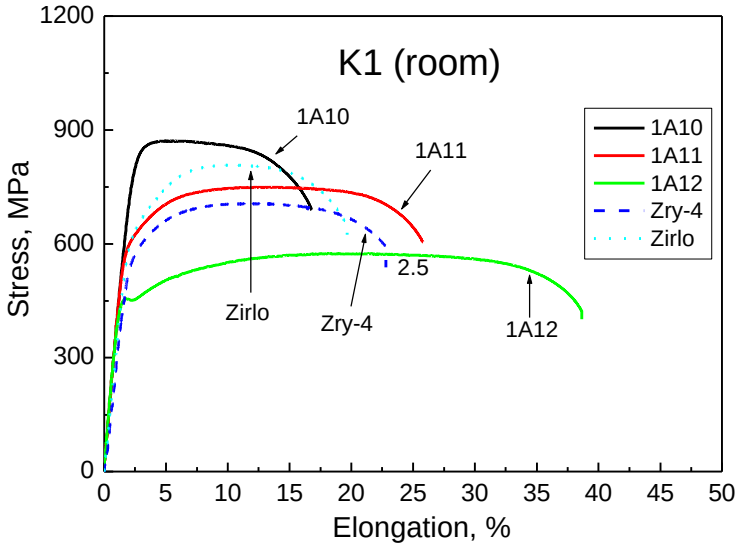
K1, K2 피복관의 인장특성에 대한 중간열처리 영향 및 최종열처리 영향평가를 위해 ASTM B811-97요건에 따라 K1, K2 피복관에 대한 인장실험을 상온 및 400℃에서 실시하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. K1, K2 피복관 모두 중간 열처리가 인장특성에 미치는 영향은 미미하고 최종열처리가 미치는 영향은 뚜렷하다. 즉, 최종열처리 온도가 높을수록 강도는 감소하고 연신율은 증가한다.
2. K1 피복관보다 K2피복관의 인장특성이 우수하다. 특히 470℃에서 최종열처리를 수행한 K2 A11 피복관은 Zirlo와 비슷한 항복강도을 가지면서 연성이 더 우수하였다.
3. 470℃에서 최종열처리를 수행한 경우 K2 A11 피복관의 인장특성이 우수한 것은 잘 발달된 부분 재결정 조직을 형성하였기 때문이라고 생각된다.
4. K1, K2 피복관 모두 파괴시 연성 파괴된다. 연성이 클수록 파단면상의 dimple이 크고 깊으며 void가 발달하면서 파괴가 진행된다고 생각된다

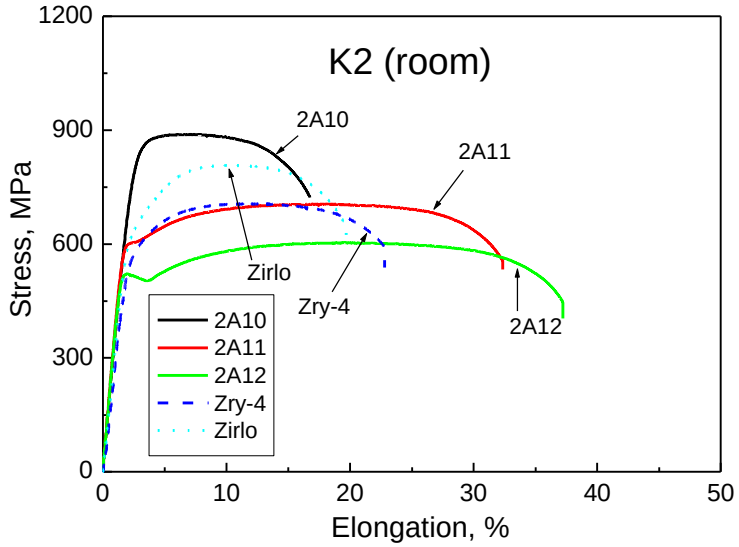
REFERENCES

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. Specification for the manufacturing of the TREX of KAERI alloys, 한국원자력연구소, 2000.3.27
8. Specification for the manufacturing of the KAERI cladding tubes, 한국원자력연구소, 2000.3.27
9. ASTM E8M-00a, Standard Test Methods for Tension Testing of Metallic Materials [Metric]
10. ASTM B811-97, Standard Specification for Wrought Zirconium Alloy Seamless tubes for Nuclear Reactor Fuel Cladding
11. ASTM E21-92, Standard Test Methods for Elevated Temperature Tension Tests of Metallic Materials
12. 하승원, 허주열, 김현길, 정용환, 다원계 Zr 신합금의 부식 및 기계적 특성, J. Kor. Inst. Met. & Mater. Vol. 38 No.9 (2000)



(a) K1 claddings



(b) K2 claddings

Fig. 1. Stress-strain curves at room temperature of K1, K2, Zry-4 and Zirlo cladding tubes

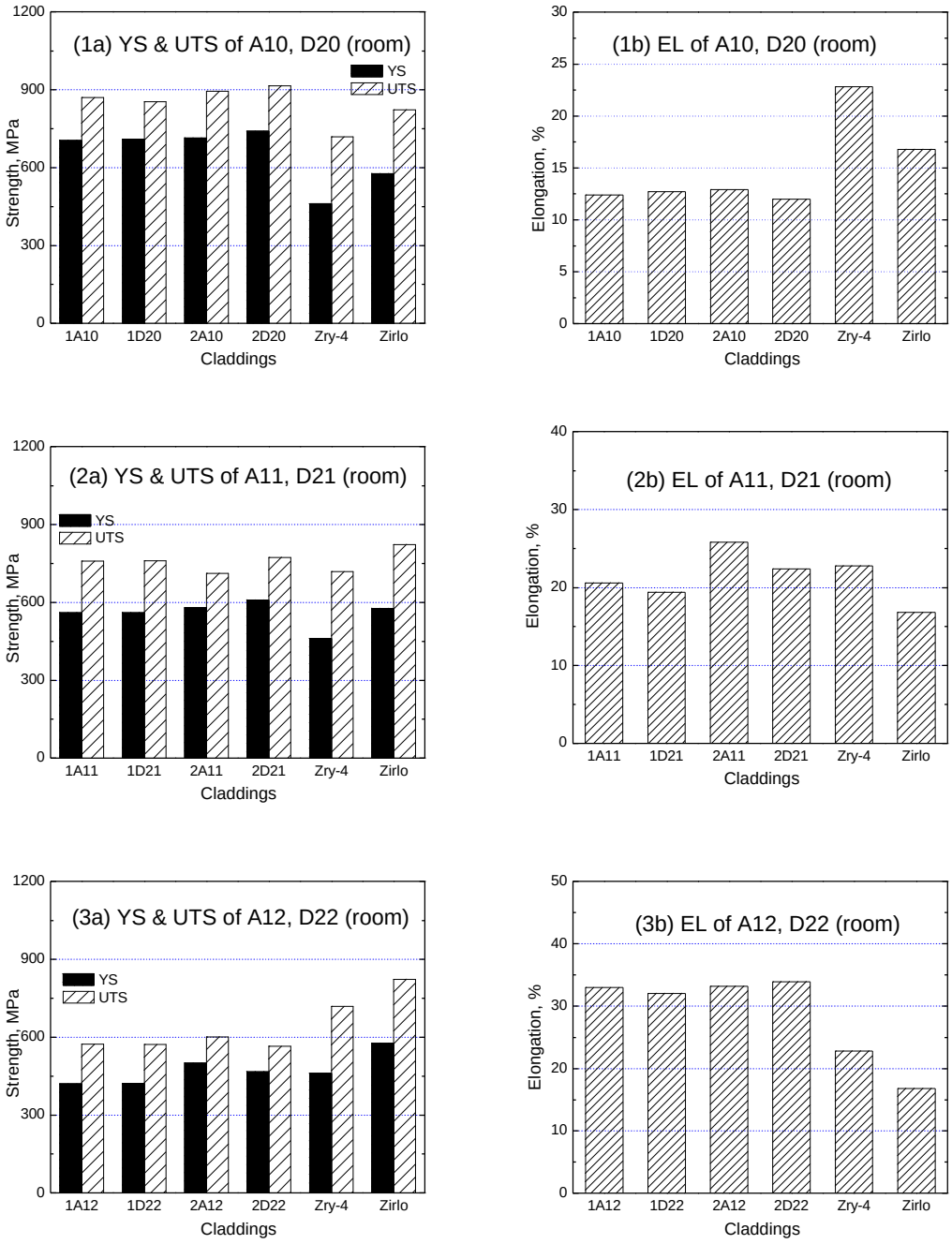


Fig. 2. The effect of intermediate heat treatment on the tensile properties of K1, K2, Zry-4 and Zirlo cladding tubes at room temperature

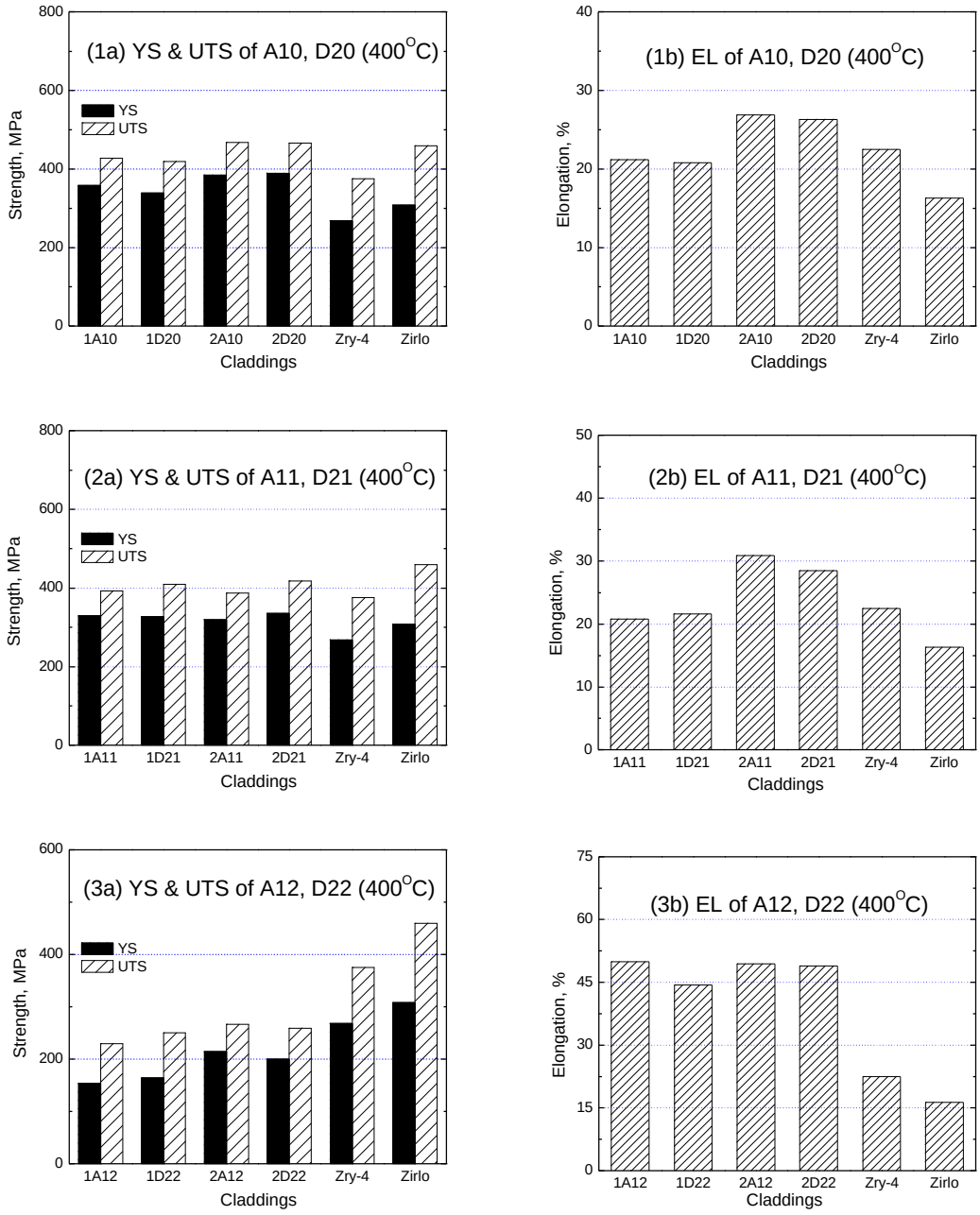


Fig. 3. The effect of intermediate heat treatment on the tensile properties of K1, K2, Zry-4 and Zirlo cladding tubes at 400°C

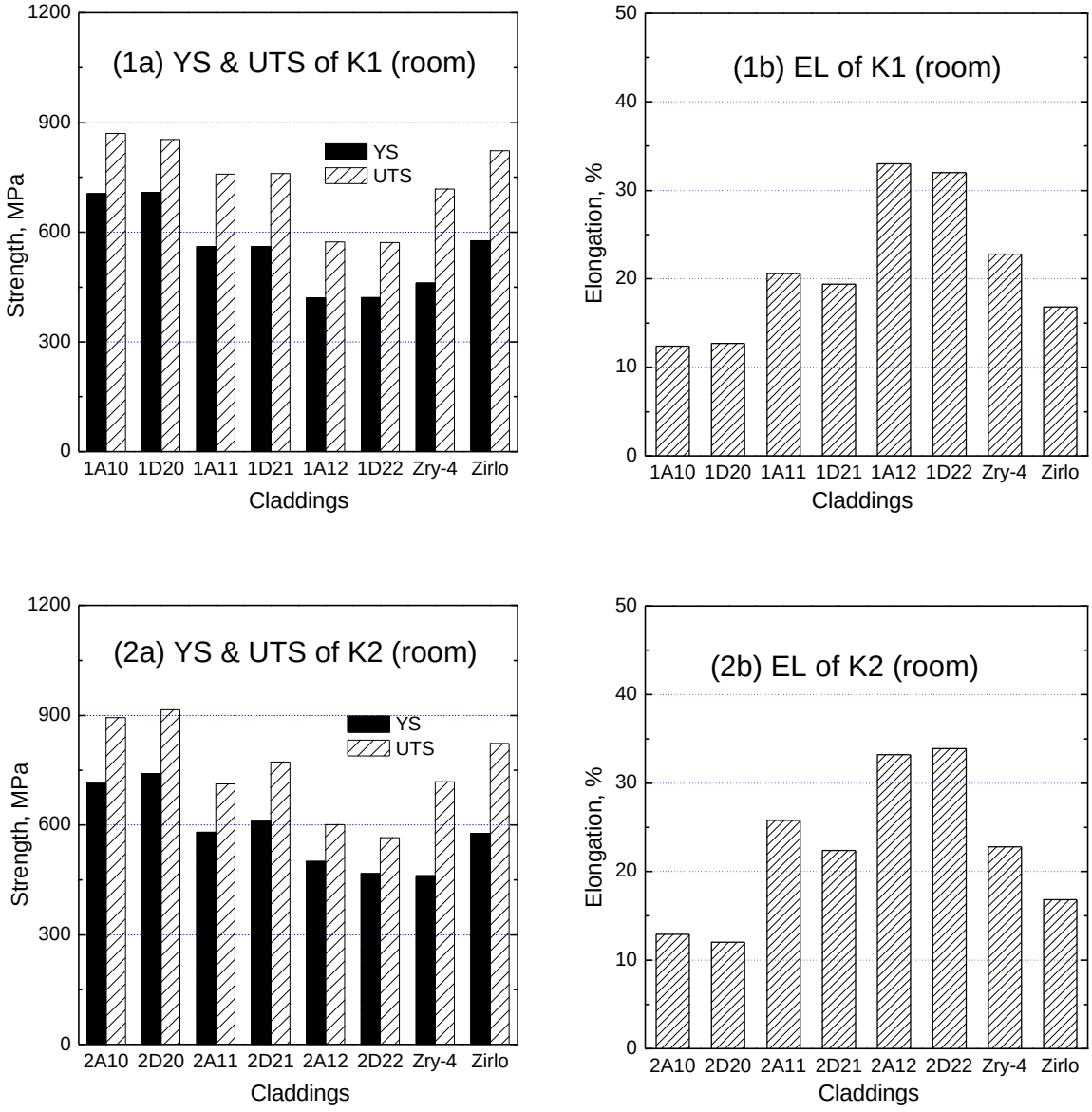


Fig. 4. The effect of final heat treatment on the tensile properties of K1, K2, Zry-4 and Zirlo cladding tubes at room temperature

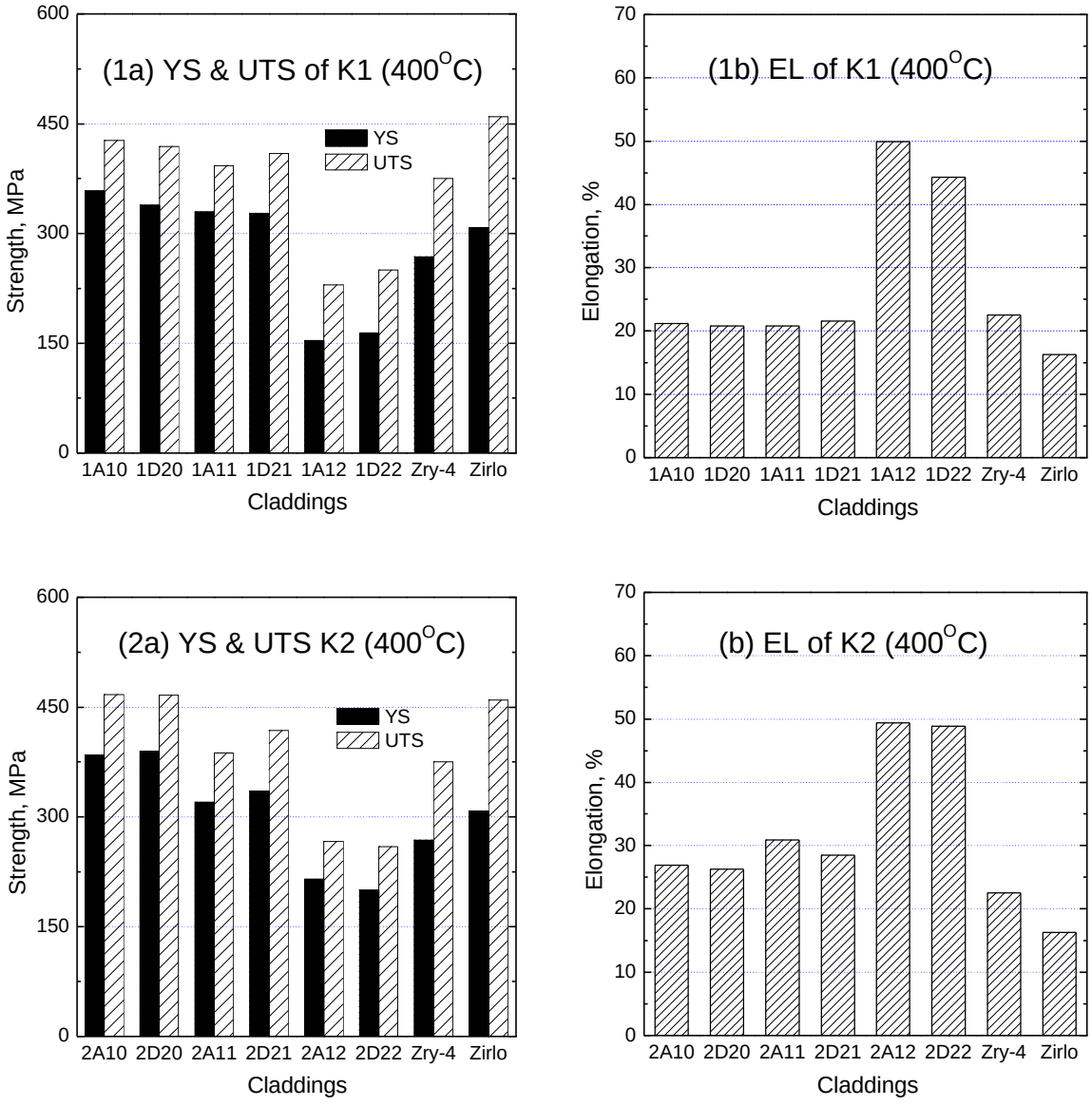
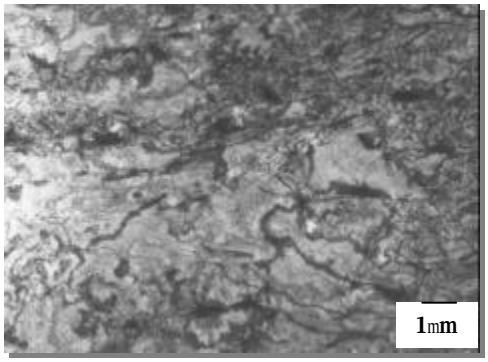
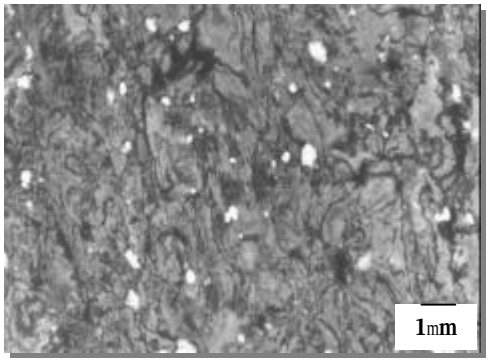


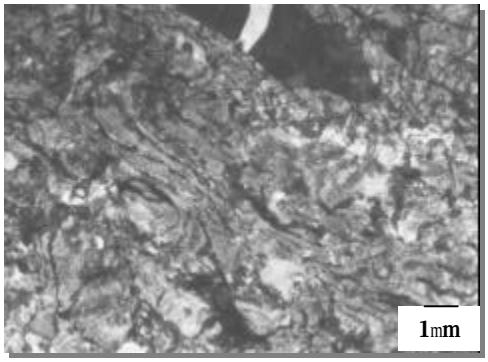
Fig. 5. The effect of final heat treatment on the tensile properties of K1, K2, Zry-4 and Zirlo cladding tubes at 400°C



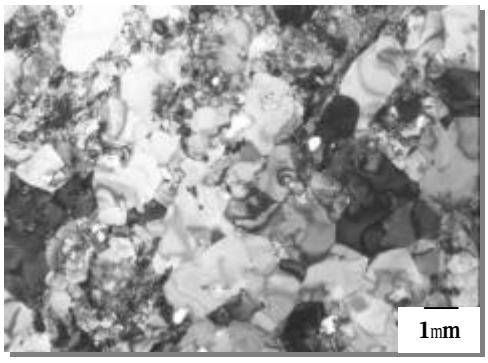
(1) K1 A10



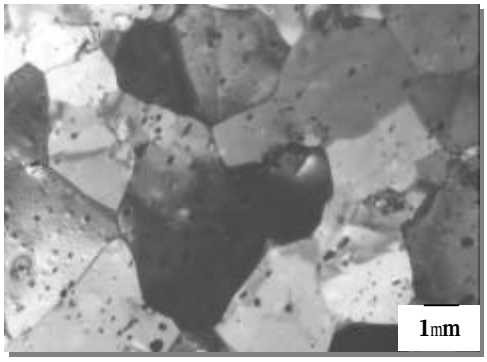
(a) K2 A10



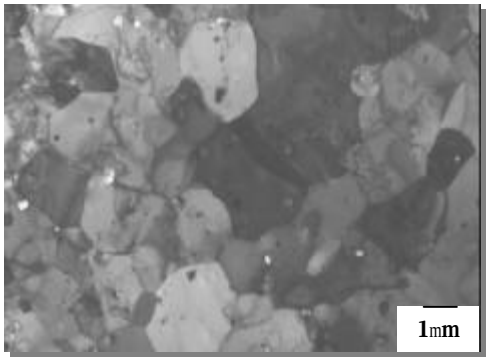
(2) K1 A11



(b) K2 A11



(3) K1 A12



(c) K2 A12

Fig. 6. TEM Micrographs on A10, A11, and A11 of both K1 and K2 cladding tubes

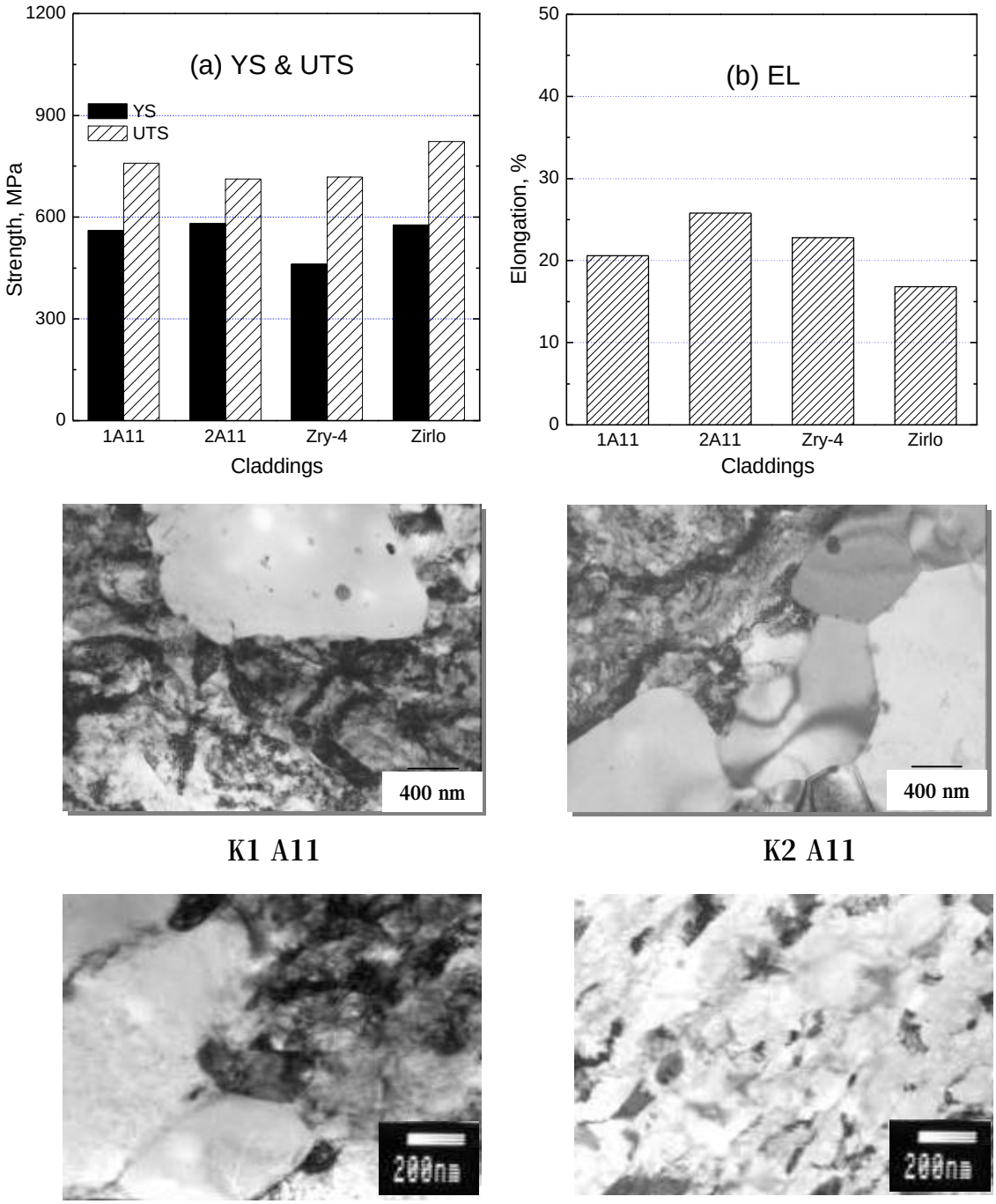


Fig. 7. Tensile properties and TEM Micrographs of the stress-relieved claddings at room temperature: for K1 A11, K2 A11, Zry-4 and Zirlo cladding tubes

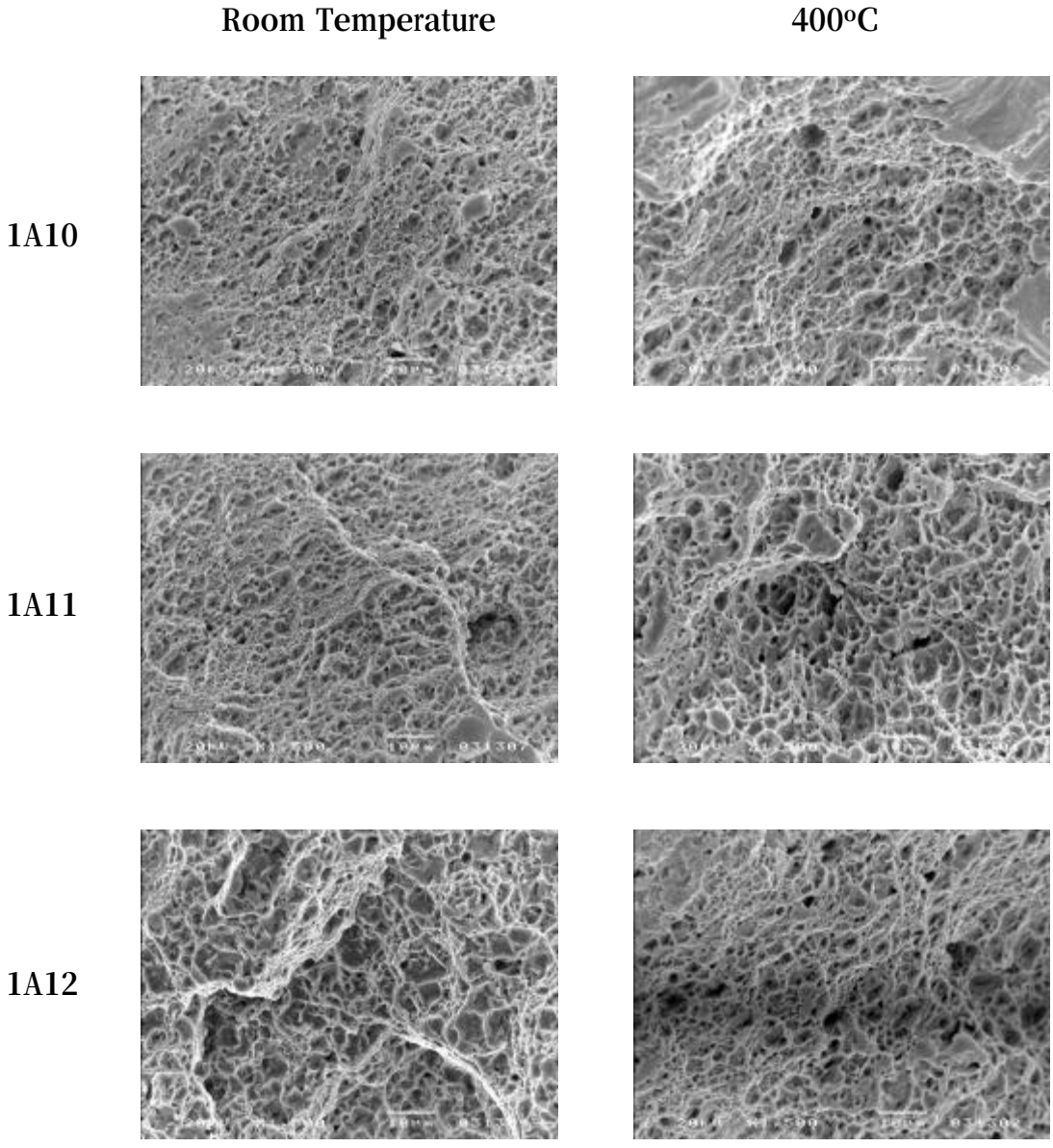


FIG. 8. Fractographs of K1 claddings: 1A10, 1A11 and 1A12 at both room temperature and 400°C

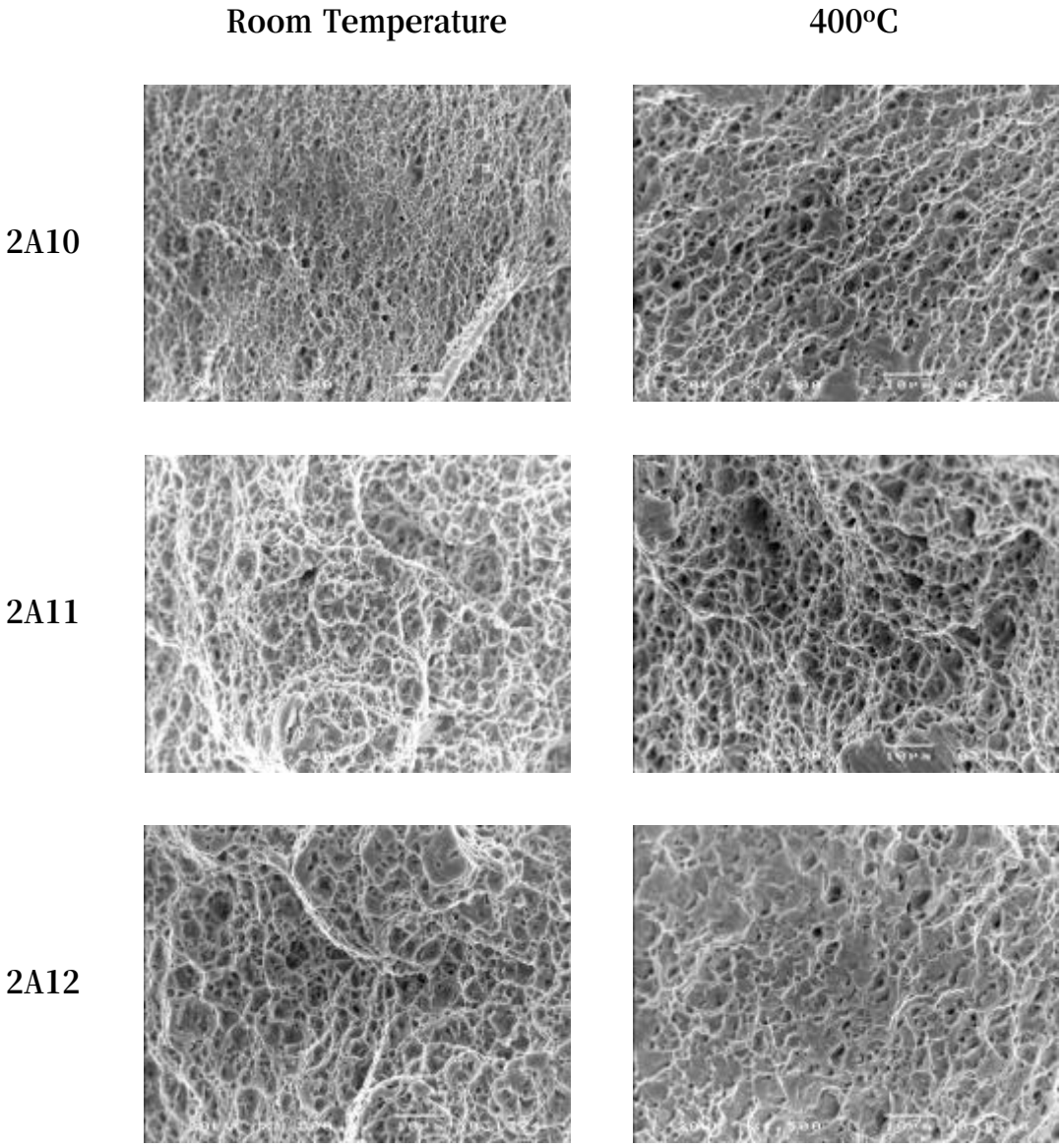


Fig. 9. Fractographs of K2 claddings: 2A10, 2A11 and 2A12 at both room temperature and 400°C

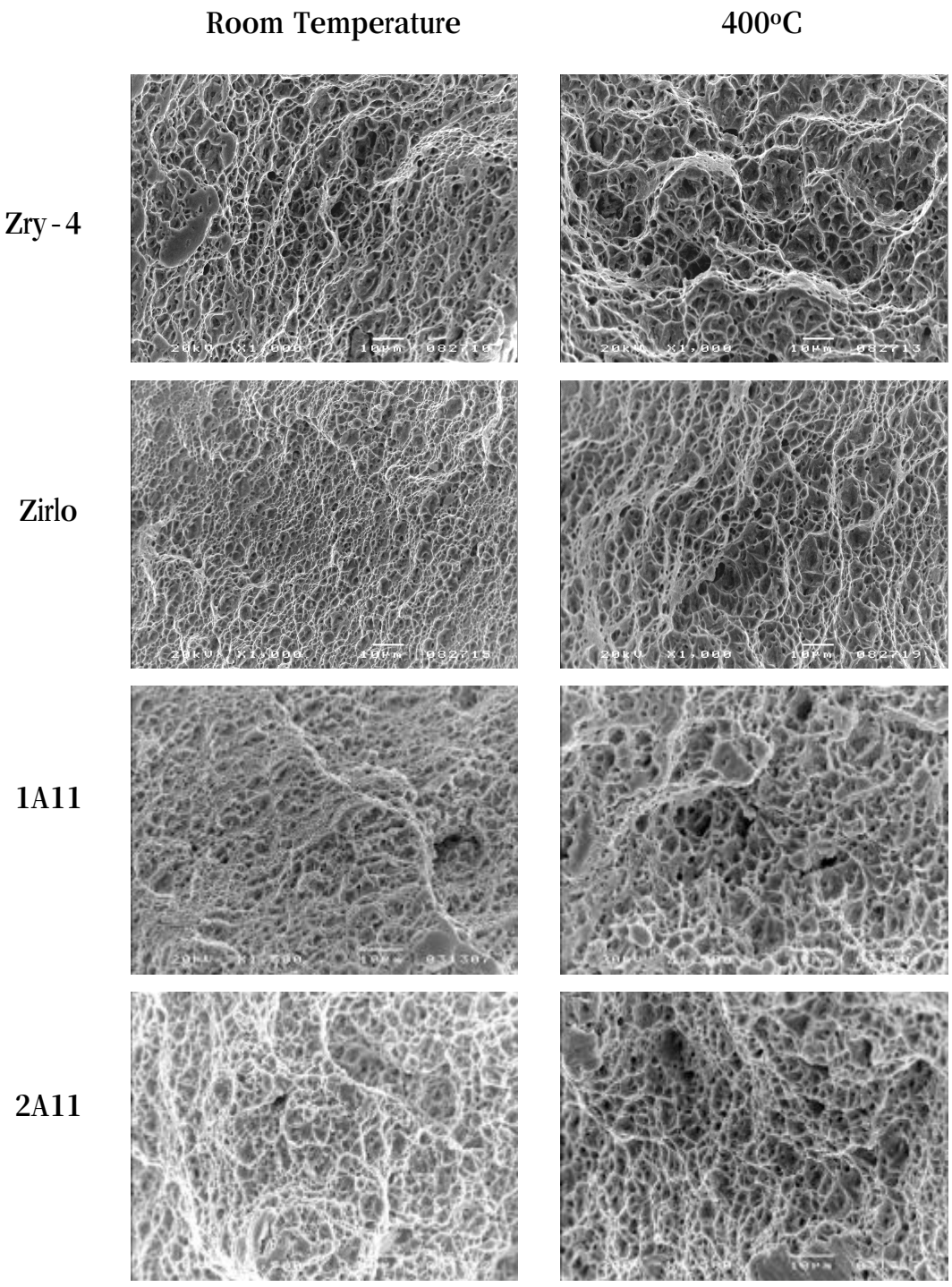


Fig. 10. Fractographs of various claddings: Zry - 4, Zirlo, 1A11 and 2A11 at both room temperature and 400°C