2001 추계 학술발표회 논문집
한국원자력학회

HIMET 핵연료의 고온 인장 특성

The Tensile Properties of HIMET Fuel at elevated temperature

강일호, 김인섭
한국과학기술원
대전광역시 유성구 구성동 373-1

오제용, 손동성, 조항식, 이종탁
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

HIMET 금속 핵연료에 사용된 피복재인 Zr-1%Nb 합금과 심재인 40%U-Zr 합금의 기계적 성질 중에서 인장실험을 수행하였다. 고온과 산화방지를 위해서 새로운 인장 실험 시스템을 구성하였고, 변형률은 $1x10^{-4}$ /sec으로 상온에서 600°C까지 100°C 간격으로 인장 실험을 수행하여 나온 결과를 연구 분석하였다. Zr-1%Nb 합금인 경우는 300-400 °C 구간에서 α-Zr기지내에 β-Nb 석출물과 산소 원자와 전위들간의 상호작용으로 판단되는 동적변형시효[DSA]현상으로 기울기가 평탄한 영역이 보였다. 한편, 40%U-Zr 합금에서는 온도와 연신률의 변화 그래프에서 보면, 상온에서 200°C까지는 연신률이 취성 파괴(brittle fracture) 양상으로 낮은 값을 보였으며, 온도가 더 증가하면서 연신률이 급격히 증가하는 것을 볼 수 있다. 이러한 결과는 인장 성질에 미치는 가장 중요한 인자인 시편 제조 공정의 영향, 변형률 및 시험온도의 영향으로 인한 결과로 판단된다.

Abstract

Tensile tests were performed to investigate the mechanical properties of Zr-1%Nb alloy and 40%U-Zr alloy used as HIMET fuel, A new tensile test system was equipped for the experiment at evaluated temperatures and for the protection of specimen against oxidation, The tensile tests were conducted at strain rate of $1x10^{-4}$ /sec in the temperature range of 20 to 600 °C. In case of Zr-1%Nb alloy, stress plateau due to β-Nb precipitates in α-Zr matrix and oxygen atom-dislocation interactions was observed. As shown in elongation-temperature curve of 40%U-Zr alloy, the appearance of brittle fracture was observed from RT to 200°C but the increment of elongation was observed as test temperature increased. The above results confirmed that the most important parameters affecting tensile properties are specimen fabrication process, test temperature and strain rate.

1. 서 론

금속핵연료는 세라믹핵연료에 비해 높은 밀도와 높은 열전도등의 장점들을 갖고 있기 때문에 오

래 전부터 관심을 끌어왔으나 기술적인 어려움 등에 의하여 실제로 수행된 연구와 실용화는 미약한 상태이다. 1950년대 미국을 중심으로 금속핵연료에 대한 연구[1]가 이루어졌으나 주로 액체금속로용 금속핵연료로서 우라늄에 다른 원소가 소량 첨가된 고함량의 우라늄 합금에 대한 연구였다. 해수담수용 소형원자로(SMART)에 사용 예정 금속핵연료인 HIMET는 저 함량의 우라늄-지르코늄 합금을 연료로 사용하기 때문에 기존의 고함량의 우라늄 합금에 대한 연구 결과를 이용하기는 매우 어려운 형편이다. 한편 러시아에서는 1960년대부터 HIMET과 비슷한 금속연료에 대한 연구를 수행하였으나 자료의 신뢰성과 서방세계의 기준에는 부합하지 못하는 부분이 문제로 남아있는 형편이다.

국내에서는 금속핵연료에 대한 연구가 한국원자력연구소를 중심으로 액체금속로용 연료로 연구된 적[2,3]은 있으나 본 과제가 시작되기 전까지는 HIMET의 피복재(Zr-1%Nb)와 핵연료심(약 40%U-Zr)에 대한 기계적 성질에 대한 시험을 수행한 경험이 없으며 재료물성의 데이터베이스 또한 존재하지 않았다.

따라서, 본 연구에서는 HIMET 금속핵연료의 연료심 및 피복재의 비 조사된 물리적, 금속적, 기계적 특성을 파악하여 조사된 핵연료의 특성을 추정하는 기본자료를 확보하고 데이터 베이스를 구축하고자 하였다.

2. 실험 방법

본 실험에서는 사용된 Zr-1%Nb 시편은 미국으로부터 수입한 주괴(ingot)를 압출과 β 열처리를 거쳐 최종적으로 한국원자력연구소에서 700℃, 1시간의 열처리 후 1:18의 비로 압출하여 지름이 7mm인 봉상태로 제조되었다. 이와 같이 제조된 후 인장실험을 위해 압출방향으로 그림 1에서 와 같이 가공되었으며, ASTM E 8M-97에 준하여 최대한 규격시편이 되게 제작하였다. 인장시편은 잔류응력(residual stress) 제거를 위해서 vacuum furnace를 이용하여 580°C에서 3시간 열처리를 수행한 후 실험을 수행하였다. 게이지 길이(gage length)와 직경(diameter)만 표준 규격을 따른 시편 특이성과 시편의 산화를 억제하고 또한 고온에서 실험이 가능하게 하기 위해서 그림 2 에서 보여지는 것처럼 새로운 인장시스템을 구축하였다. 이 시스템의 가장 큰 특징으로 그림 2-(a)처럼 고온에서 사용이 가능하도록 핀(pin)을 이용한 그립(grip)과 지그(jig) 그리고 에릭씰(eriseal)을 이용한 밀봉튜브(sealing tube)이고 각각 inconel 718과 inconel 600으로 제작하였다. 또한 차가운 아르곤(Ar) 기체가 직접 밀봉튜브로 유입되었을 시 시편의 온도 조절이 어렵기 때문에 그림 2-(b)와 같이 튜브를 한번 감싸 아르곤 기체의 온도를 상승 시킨 후 유입되도록 하였다.

두 인장시험 모두 상온, 100℃부터 600℃(간격 100℃)에서 변형률은 $1x10^{-4}$ /sec로 수행하였으며, 각 실험 조건에서 결과의 재현성을 확인하기 위해서 각 온도 구간에서 한 번씩의 실험을 하고 다시 반복하여 온도구간 당 총 2번의 실험을 수행하였고, 결과값의 차이가 많이 발생할 경우 한번의 실험을 더 수행하여 이의 평균값을 채택하였다. 아르곤(Ar) 주입은 실험 전 Furnace가 꺼져 있을 때는 200cc/min(Ar 순도 99.9%)의 양으로 넣어주었고, Zr-1%Nb 시편의 경우는 Furnace가 켜져 있을 때는 50cc/min(Ar 순도 99.999%), 40%U-Zr 시편의 경우는 100cc/min(Ar 순도 99.999%)의 양으로 넣어주었다. Furnace가 작동 시 두 시편의 Ar 주입양이 차이가 나는 것은 우라늄(U)의 산화가 더 용이하기 때문이다. 모든 인장 실험을 수행한 후에 주사전자현미경(SEM)을 이용하여 시편의 파면을 관찰하였다.

3. 실험 결과 및 고찰

3-1 Zr-1%Nb 인장시험 분석

그림 3 는 온도의 증가에 따른 응력과 변형(stress vs. strain)의 변화를 보여주고 있다. 명확하게 나타나진 않았지만 불연속적인 항복현상(discontinuous yielding)[4,5]이 상온에서 300°C사이에서 관찰되었고, 300°C에서 최대 Luders elongation이 약 0.9%정도 관찰되었다. 그림 4 는 Zr-1%Nb 시편의 온도변화에 따른 항복강도와 최대인장강도(Y.S & UTS)를 나타내고 있다. 상온에서부터 온도가 증가할수록 Y.S 와 UTS 값들이 감소하다 600°C에선 두 값이 거의 일치함을 보였다. 또한 온도 변화에 따른 2% 유동응력(flow stress) 그래프가 그림 5 에서 보여지는 것처럼 300-400°C 사이에서 기울기의 평탄화(plateau) 현상[2]을 보이고 있다. 이것은 α-Zr기지(matrix)내에 석출된 β-Nb(precipitates)과 산소 원자가 전위(dislocation)들간의 상호작용으로 인한 동적변형시효[DSA]로 인한 현상으로 판단된다[3]. Y.S 와 UTS가 기존의 자료들[5,6]보다 다소 높게 나온 것은 표 1에서 보여지는 것처럼 시편내의 산소량의 영향으로 판단되어 고온 추출법(hot extraction)을 이용해서 Zr-1%Nb시편내의 산소량 분석을 한 결과 1019ppm이 나왔다. 그림 6 에서 보여지는 것처럼 온도변화에 따른 연신률(elongation)의 변화를 보면, 2% flow stress 평탄화 영역에서 최소값[6,7]을 나타내지만, 본 실험에서 보면 약간의 감소와 평탄한 모습을 보여주고 있다. 이 역시 Zr 합금에서의 동적변형시효 현상의 증거로 판단되어진다. 또한 연신률은 시편가공의 차이와 열처리 조건의 차이로 인해 다소 낮게 나온 것으로 보여진다.

3-2 Zr-1%Nb 파면분석

인장 실험 후에 주사전자현미경(SEM)을 이용해서 파면 관찰한 결과가 그림 7 에 나타나 있다. 그림 7 에서 보면 온도가 증가함에 따라서 파면 상의 오목한 곳(dimple)의 크기가 증가함을 볼 수가 있고, 이것은 온도 증가에 따른 연신률 증가로써 나타내어 진다. 하지만 600°C의 경우에는 시편 산화로 인해서 파면 관찰에 어려움이 있었다.

3-3 40%U-Zr 인장시험 분석

그림 8 는 40%U-Zr 시편의 온도변화에 따른 항복강도와 최대인장강도(Y.S & UTS)를 나타내고 있다. 상온에서는 Y.S 와 UTS가 상당히 높은 값을 보였지만 온도가 증가할수록 Y.S 와 UTS는 서서히 감소하다가 500°C이상에서는 급격한 감소로 인해 Y.S 와 UTS가 낮은 값에서 일치하는 현상을 나타냈다. 이것은 상변태 온도인 약 610°C 근처에서 경도 값이 급격히 떨어지는 것[1]과 비슷한 경향을 보였다. 온도 변화증가에 따른 연신률의 변화를 그림 9 에서 보면, 상온에서 200°C까지는 연신률이 낮은 취성 파괴(brittle fracture) 양상으로 낮은 값을 보였지만, 온도가 더 증가하면 연신률이 급격히 증가하는 것을 볼 수 있다. 한편 400℃ 와 500℃에서 일부 시편에서 그림 10 에서와 같이 Double necking 현상을 보였고, 그 때의 그래프 형태가 그림 11 에 보여지고 있다. 이와 같은 현상은 첫째로는 하중이 가해짐에 따라 necking이 발생하고 가공경화가 일어나는 중에 시편이 400-500℃에서 재결정이 일어남에 따라 먼저 일어난 necking 부분 외의 취약한 곳에서 지속되는 하중에 따라 다시 necking이 일어날 수 있고, 둘째로는 시편을 소결하는 과정에서 δ-matrix 내에 α-Zr이 상온에서 한 곳에 편중되어 위와 같은 현상이 일어 난 것으로 판단된다.

3-4 40%U-Zr 파면분석

주사전자현미경(SEM)을 이용해서 파면 관찰한 결과가 그림 12 에 나타나 있다. 그림 12-(a) 에서 보면 상온에서는 연신률이 낮은 취성 파괴(brittle fracture) 양상으로 파면 상에 벽개(cleavage)가 많이 분포하고 있었으며, 온도가 증가함에 따라 cleavage의 양은 줄어들고 dimple의 양이 증가하는 연성 파괴(ductile fracture) 현상으로 높은 연신률을 나타냈다. 한편 그림 12-(f) 은 500°C에서는 시편의 산화가 600°C보다 심하게 일어남을 보였으나 정확한 이유에 대해서는 연구가 더 필요하다.

4. 결론

Zr-1%Nb 합금과 40%U-Zr 합금의 인장 실험 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. Zr-1%Nb 시편의 경우는 DSA의 영향으로 변형 초기에 불연속적인 항복현상과 300-400°C 사이에서 온도 증가에 따른 2% flow stress 변화 기울기의 평탄화(plateau) 현상을 관찰 할 수 있었다.
2. Zr-1%Nb 시편의 연신률은 시편가공과 열처리 차이로 인해 예상보다 다소 낮게 나온 듯 하고, DSA 온도 영역에서는 연신률이 다소 감소 또는 평탄한 경향을 나타냈다.
3. 40%U-Zr 시편의 경우는 상온에서는 Y.S 와 UTS가 상당히 높은 값을 보였지만 500°C이상에서는 급격한 감소로 인해 Y.S 와 UTS가 낮은 값에서 일치하는 현상을 나타냈다.
4. 40%U-Zr 시편의 경우 일부 시편에서 400℃ 와 500℃에서 가공경화 중에 재결정의 영향 또는 시편 제조 과정중의 문제점으로 예상되는 double necking 현상을 보였다.
5. 인장 실험 후의 40%U-Zr 시편의 파면 관찰을 보면, 상온에선 연신률이 낮은 취성 파괴 양상으로 파면 상에 벽개(cleavage)가 많이 분포하고 있었으나, 온도가 증가함에 따라 cleavage의 양은 줄어들고 dimple의 양이 증가하는 연성 파괴 현상으로 천이하였다.

후기

본 연구는 과학기술부 원자력 연구개발 사업의 일환으로 수행된 미래형 핵연료 개발 과제에서 지원되었기에 감사드립니다.

참고문헌

1. Arthur A. Bauer “ An evaluation of the properties and behavior of Zr-U alloys” BMI-1350 (September 28 , 1959)
2. 황온, 강희영 “금속핵연료설계개발, 최종보고서” KAERI/RR-1887/98 (1999)
3. 강영호, 이종탁 “금속핵연료설계개발, 최종보고서” KAERI/RR-1895/98 (1999)
4. K.Veevers and W.B.Rotsay, J. Nucl. Mater. 27 (1963) 108
5. W.R.Thorpe and I.O.Smith, J. Nucl. Mat 78 (1978) 49-57
6. A.M.Nasr, J. Nucl .Mat 186 (1992) 166-176

7. V.Ramachandran and R.E.Reed-hill, Metall. Trans 1 (1970) 2015

Table 1 Effect of Oxygen content in Zr-1%Nb

[러시아 자료 인용]

Oxygen content	T = 293 K		T = 623-653 K	
	Y.S [MPa]	UTS [MPa]	Y.S [MPa]	UTS [MPa]
500ppm	240-270	400-430	90-100	200-230
1300ppm	330-370	520-530	120-130	220-230
1600ppm	420-430	580-590	150-160	250-260

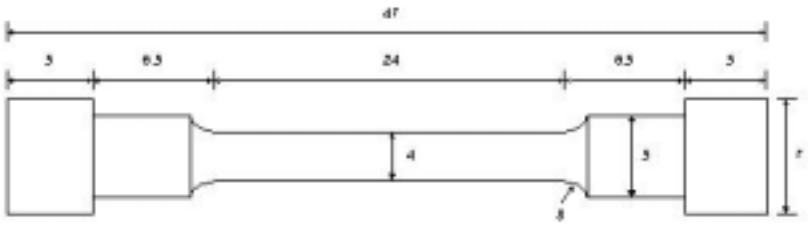


Fig. 1 Geometry of tensile test specimen

(a)

(b)

(c)

Fig. 2 (a) pin type grip (b) sealing tube surrounded S.S tube
(c) new tensile test system at high temperature

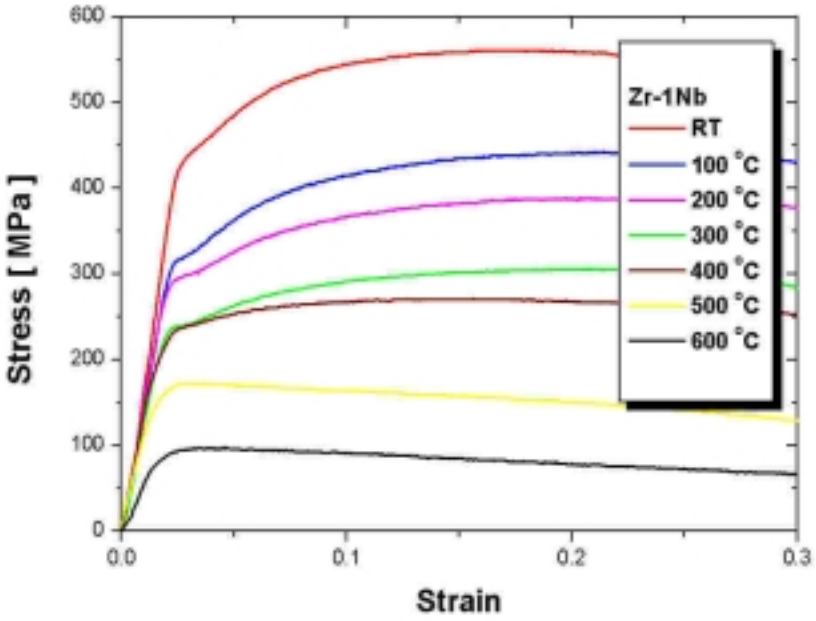


Fig. 3 Stress vs. strain curves of Zr-1%Nb alloy
at a strain rate $1x10^{-4}$/sec for various temperature

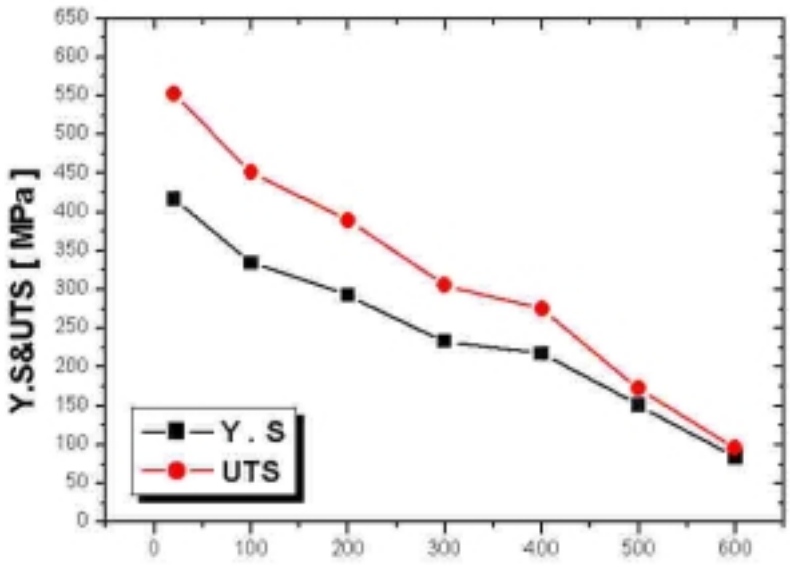


Fig. 4 The relationship between yield stress & ultimate tensile stress
and temperature of Zr-1%Nb

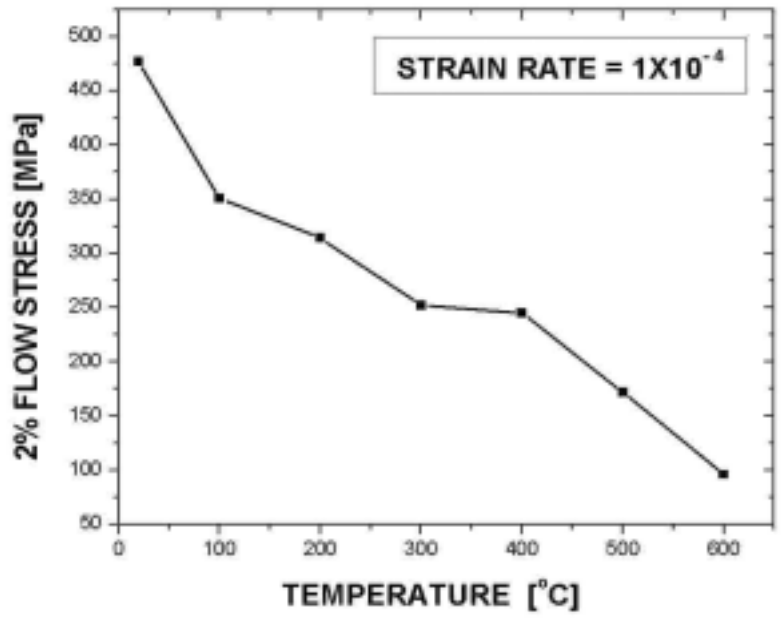


Fig. 5 Temperature dependence of 2% flow stress of Zr-1%Nb at a strain rate $1x10^{-4}$/sec

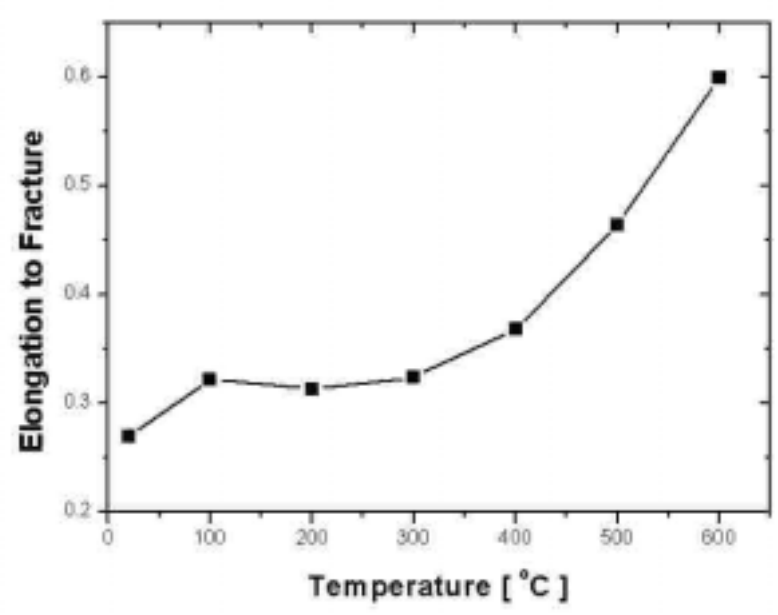
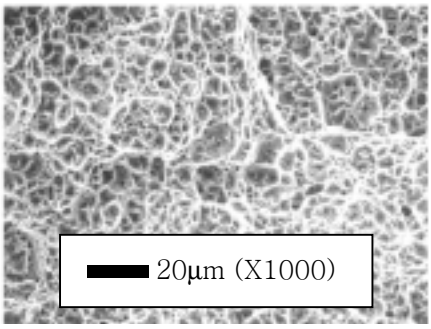
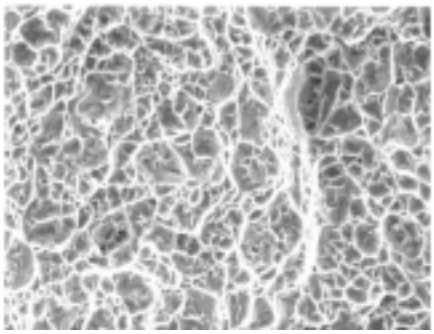


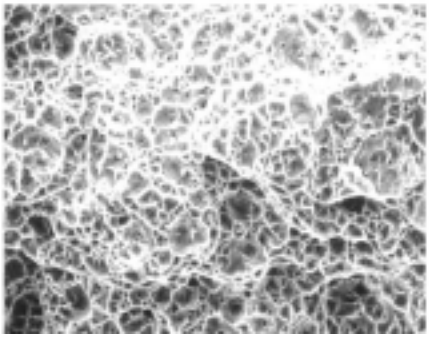
Fig. 6 The relationship between elongation to fracture and temperature



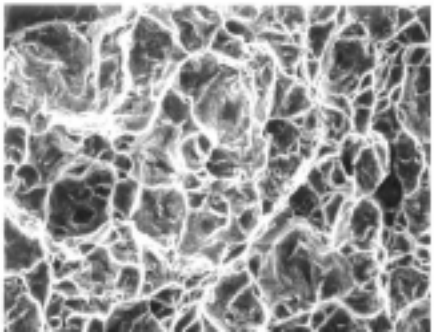
(a)



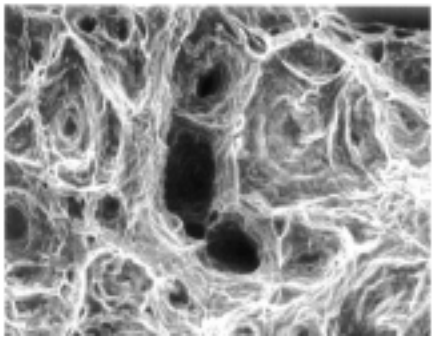
(b)



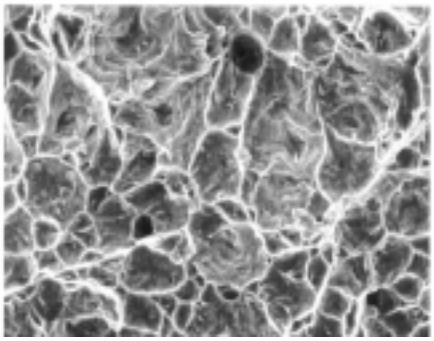
(c)



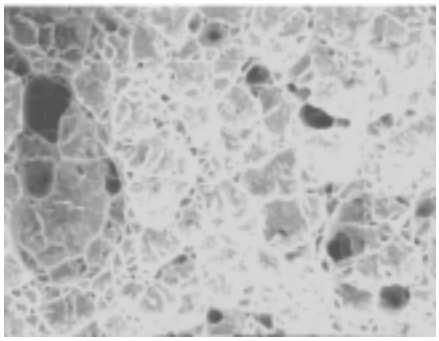
(d)



(e)



(f)



(g)

Fig. 7 SEM photographs of fracture surfaces at each test temperature

(a) Zr-1%Nb at RT (b) 100℃ (c) 200℃ (d) 300℃ (e) 400℃ (f) 500℃ (g) 600℃

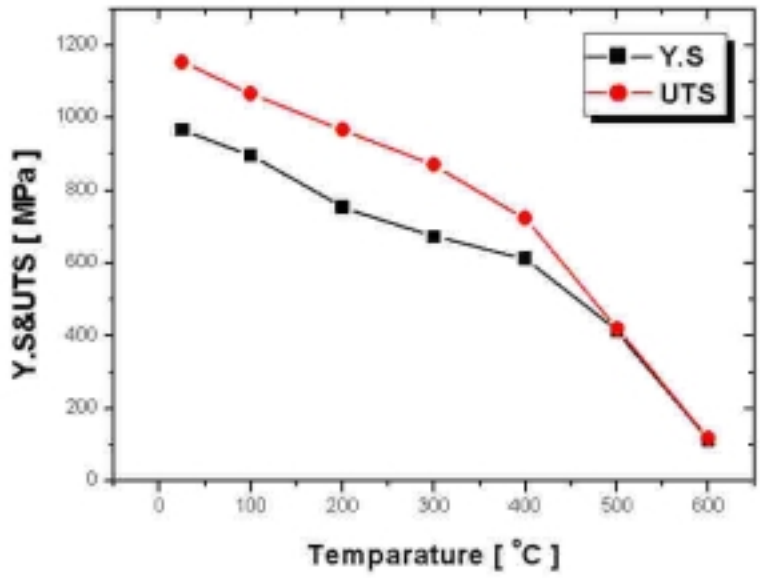


Fig. 8 The relationship between yield stress & ultimate tensile stress and temperature of 40%U-Zr

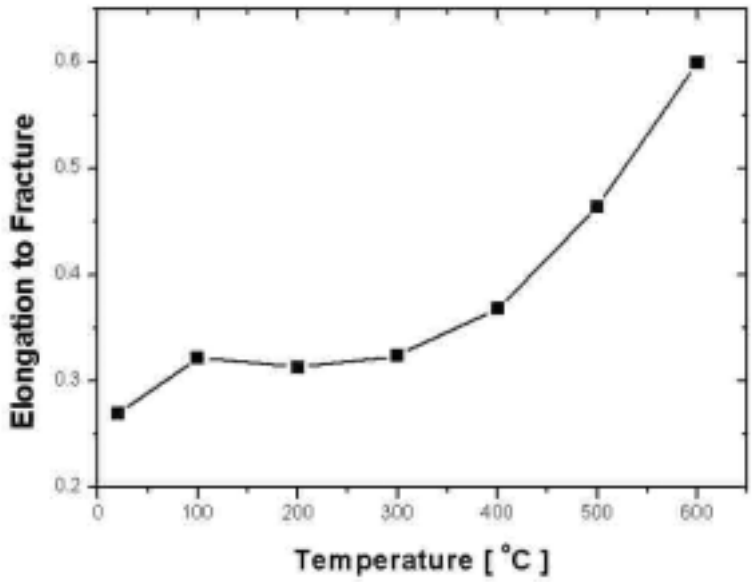


Fig. 9 The relationship between elongation to fracture and temperature

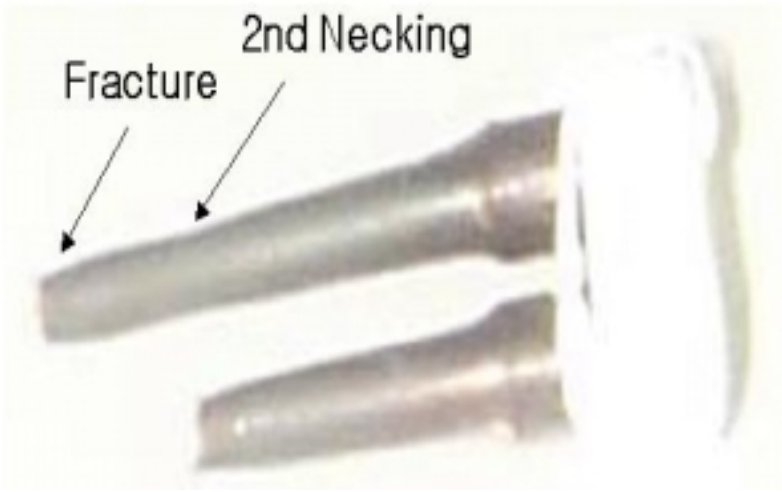


Fig. 10 Double necking of 40%U-Zr

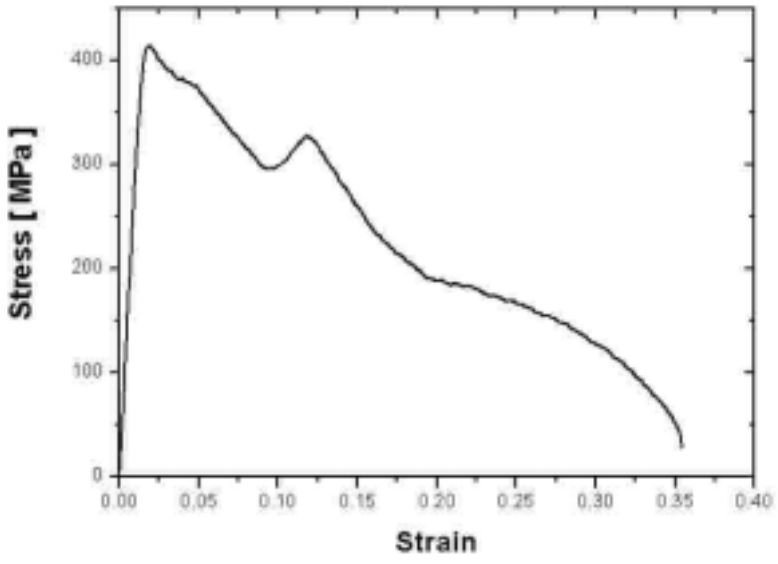
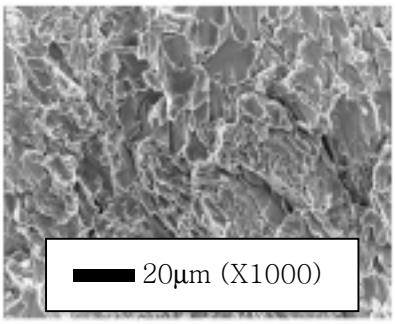
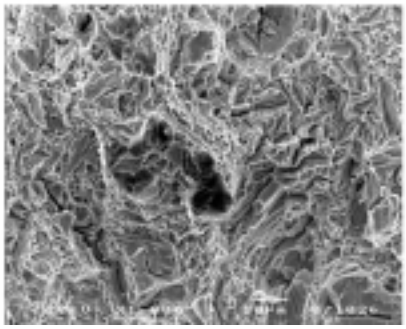


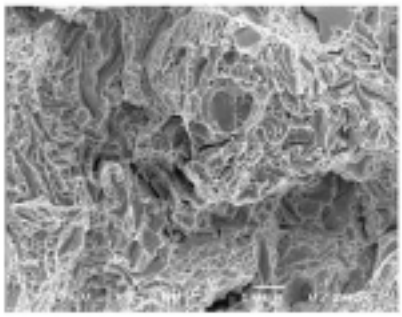
Fig. 11 Double necking curve of 40%U-Zr at 500℃



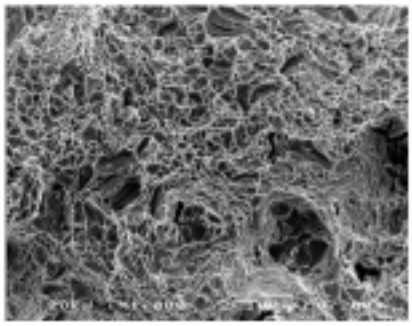
(a)



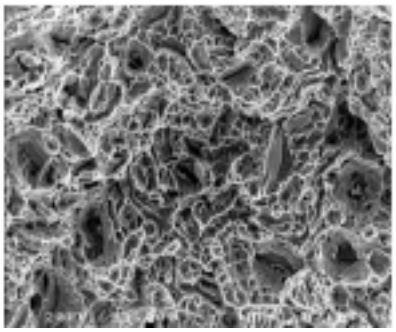
(b)



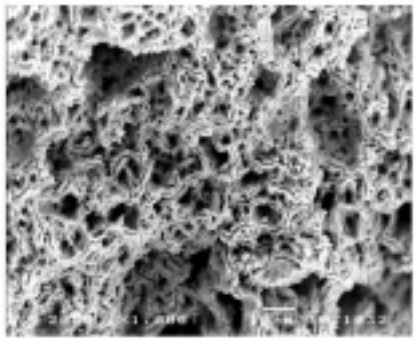
(c)



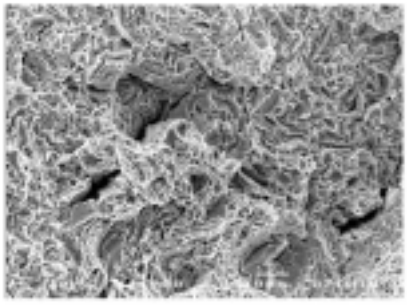
(d)



(e)



(f)



(g)

Fig. 12 SEM photographs of fracture surfaces at each test temperature
(b) 40%U-Zr at RT (b) 100℃ (c) 200℃ (d) 300℃ (e) 400℃ (f) 500℃ (g) 600℃