

2003 추계학술발표회 논문집  
한국원자력학회

## LOCA 모사 환경에서 핵연료 피복관의 변형 거동

### Deformation Behavior of Fuel Claddings at Simulated LOCA Environment

\*이종혁, 홍순익,  
충남대학교

대전광역시 유성구 궁동 220

김준환, 이명호, 정용환

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

#### 요약

모사된 원자로 내 LOCA 조건에서 Zircaloy-4 및 국산 신형 피복관에 대한 고온변형 시험을 수행하였다. 수증기 분위기 및 650-1050°C 온도에서 10-70MPa의 원주응력을 가하여 고온 변형시험을 수행하고 파단시간 및 파단 연신율을 측정하였다. 고온변형 시험결과, 800°C 근처에서 최대 변형량을 나타냈고, ( $\alpha+\beta$ )의 2상 영역 850-950°C 영역에서 최소의 파단 연신율을 나타내었다. 이는 온도가 증가함에 따라 단상  $\alpha$  상의 결정립 성장에 의해서 변형량이 증가하다가  $\beta$  상이 생성되면서 변형량이 감소하는 거동을 나타내고 있다. 모사된 원자로 내 LOCA 조건에서 국산 신형 피복관의 고온 변형 거동은 Zircaloy-4와 유사하거나 우수할 것으로 추정된다.

#### Abstract

High temperature deformation tests were performed to estimate the integrity of Zircaloy-4 and KAERI cladding under simulated LOCA condition. Tests were carried out under the temperature range of 650~1000°C and hoop stress of 10~80MPa. A maximum of burst strain occurred at around 800°C, and it decreased to 850~950°C which is known as temperature range of ( $\alpha+\beta$ ) phase in Zircaloy-4. The preliminary results on KAERI claddings indicated that LOCA resistance of these claddings seem to be superior or comparable to Zircaloy-4 cladding.

## 1. 서론

현재 가압경수로(PWR) 원자로의 핵연료 피복관용 재료로는 Low Tin Zircaloy-4 재료를 널리 사용하고 있다. 1990년대 이전에는 Tin 함량이 약 1.5wt% 수준인 표준(standard) Zircaloy-4 피복관을 널리 사용하였으나 최근의 고연소도 운전에 따른 부식 저항성 향상을 위하여 그 함량을 약 1.3wt%로 줄인 Low Tin Zircaloy-4 재료를 채택하고 있는 경향이다. 또한 최근에는 약 70 GWD/tU 이상의 고연소도까지 사용 가능한, Low Tin Zircaloy-4 재료를 대체할 수 있는 신합금 피복관을 미국, 프랑스, 일본, 러시아, 한국을 중심으로 활발히 개발하고 있다. 국내의 한국원자력연구소에서도 이러한 고연소도용 국산 신형 피복관 6종의 시제품을 제조하여 그 성능을 시험하고 있다. 이러한 신형 피복관이 개발되어 상용화되려면 노내외 조건에서 정상상태 성능뿐만 아니라 사고 상태 조건에서의 안전성 또한 검증되어야 한다. 이러한 사고조건 중의 하나로써 1차측 냉각 LOOP가 파단되어 냉각 능력을 상실하는 원자로 내 사고인 냉각재상실사고 (LOCA : loss of coolant accident) 조건에서의 피복관 성능 입증은 중요한 인허가 평가요소이다.

냉각재상실사고가 발생하면 수증기 분위기가 형성되고 피복관 온도 및 내압 증가에 따른 고온변형 및 고온에서의 산화, 비상 냉각수 주입에 따른 피복관의 열충격 등 일련의 과정을 겪게 된다. 이러한 LOCA 발생시 피복관의 온도 및 압력에 대한 일반적인 진행과정은 blowdown, refill, reflood의 세단계로 진행되는데, 사고 진행 과정은 연료봉 출력, 잠열(decay heat), 연료심과 피복관 사이의 간격, 피복관 외부로의 열전달 등, 여러 가지 요인에 따라서 다양한 사고추이를 보이며 진행된다.<sup>1)</sup>

Blowdown 구간은 냉각재 누출 과정을, refill 구간은 압력 용기 하단으로부터의 비상 냉각수 주입 시점을, reflood는 비상 냉각수가 주입되는 과정을 나타낸다. 특히, Blowdown 구간에서는 온도가 상승하고 압력용기의 압력이 저하되므로 피복관 내부 압력의 증가에 의해서 피복관이 부풀어 오르는 ballooning 현상이 발생하게 된다. 이때, 비상노심냉각계통(ECCS : emergency core cooling system)이 작동하기 전까지 노심은 수증기 또는 물과 수증기의 2상 분위기하에 처하게 된다.<sup>1)</sup> 이러한 사고에 의해 피복관이 파단 되면 핵연료 펠렛 및 핵물질들이 노심으로 누출되며 냉각재 유로를 막음으로써 추가적인 열전달 능력을 저하시키고 연료봉 용융 등 사고추이를 더욱 악화 시킬 수 있다. 따라서 이러한 LOCA 조건에서도 피복관은 ballooning에 대한 저항성이 커야한다.

그래서 고온 변형 시험은 LOCA 초기 단계에 발생하는 ballooning 및 크리프 파단에 대한 저항성을 평가하기 위해 실시된다. 이를 위한 가장 손쉬운 방법은 판재형 시편을 만들어 단축 크리프 시험기로 시험하여 기초적이고 기계론적인 변형 모형을 유도하여 노내 조건에서의 변형 및 파단 시간을 평가하는 방식이다. 그러나 실제 피복관은 2축 응력 상태에서 변형하기 때문에 대부분의 LOCA 변형 모형은 주로 튜브형 시편으로 시험한 결과를 이용하고 있다.

많은 연구자들에 의해서 LOCA 조건에서 피복관의 기계적 특성 평가가 수행되었는데, Hardy<sup>2)</sup>는 Zircaloy-4 피복관의 ballooning 현상에 대한 내부압력과 가열속도 및 온도의 영향에 대해서 실험하였다. 그리고 Chapman<sup>3)</sup>은 냉각시 열전달계수를 고려하여 원주방향의 변형량을 추가로 분석하였다. Sell과 Ortlieb는 Zircaloy-4 피복관의 고온변형 시 상변태의 영향을 분석하였다.<sup>4)</sup>

위와 같이 LOCA 조건에서 피복관의 고온 변형에 대한 LOCA 저항성을 평가하기 위해

다양한 조건에서 Zircaloy-4 피복관의 고온 변형시험(ballooning) 수행하였다. 또한 국산 신형 피복관에 대한 예비 LOCA 시험을 수행하고 Zircaloy-4 피복관의 고온변형 특성과 비교, 고찰하였다.

## 2. 실험 방법

실험에 사용된 Zircaloy-4 피복관의 제원은 외경이 약 9.5mm, 두께가 약 0.57mm로서 시편의 길이는 330mm를 사용하였다. 한국원자력연구소에서 개발한 KAERI 피복관도 Zircaloy-4와 동일한 제원이다. Zircaloy-4와 KAERI 피복관은 Zr 합금으로서 Zircaloy-4는 Sn이 1.3% 첨가된 반면에 KAERI 피복관은 Nb이 첨가된 합금이다. 고온변형 시험에 사용된 국산 신형 피복관은 KC, D, F, H 합금으로서 KC, D는 Nb 고용도(0.6%wt.) 이하 첨가된 low Nb 합금이고, KF, H는 high Nb 합금이다.

LOCA 실험장비는 단일봉 시험 장비로써 고온변형, 수증기 산화 및 열충격 시험 등 LOCA의 전 과정을 모사 할 수 있는 종합(integral) LOCA 시험 장비로써 자체 제작하였으며, 그림 1에 본 시험 장비의 모식도를 나타내었다. 시험 시편인 피복관은 양 끝단에 멘드렐을 장착하고 약 200mm의 가열 부분, 즉 active length를 지정하고 전극을 연결한다. 피복관을 가열하는 방식은 전기저항 가열을 이용한 직접 가열법을 사용하였으며, 이때 최대 500A의 DC power supply를 사용하였다. Power supply는 최대온도 1500℃, 최대 가열속도 20 0℃/s, 최대 압력 120bar 까지 온도 및 압력 제어가 가능하다. 압력 제어기를 사용하여 압력을 조절하였으며 주입되는 개스는 아르곤을 사용하였다. 또한, 원자로내의 수증기 분위기를 모사하기 위해서 증기 발생기(steam generator)를 부착, 사용하였다. 고온 변형 시 피복관의 원주 변형량을 측정하기 위해서 레이저 변위측정기를 장착하였고, 피복관의 온도를 측정하기 위해서 파이로메타와 열전대를 설치하였다. 그리고 피복관 가열시 축방향의 변형량을 측정하기 위해서 20mm LVDT를 사용하였다. 이 모든 데이터와 변수 제어는 컴퓨터를 통해 자동적으로 제어할 수 있도록 프로그래밍하였다.

고온변형시험은 등온-등압 시험으로서 목표 온도까지 20℃/sec로 가열한 후 피복관이 과열 될 때까지 내압을 일정하게 유지하는 시험으로써, 650-1050℃의 시험 온도에서 10-70MPa의 내부 압력을 가하여 고온 변형 시험을 수행하였다.

고온변형시험 시 피복관에 내압을 가하기 위해서 피복관 내부에 불활성 기체인 아르곤 개스를 압력 제어기를 사용하여 일정하게 주입하였으며, 이때 내부 압력은 아래의 식에 의해 초기 압력을 원주 응력(hoop stress)으로 계산하여 가압하였다.

$$\sigma_{\theta} = \frac{P_i D_m}{2t} \quad (1)$$

여기서,  $\sigma_{\theta}$ 는 원주방향으로 작용하는 응력(hoop stress)이고,  $P_i$ 는 초기 압력,  $t$ 는 피복관의 두께,  $D_m$ 은 중간 직경을 나타낸다. 여기서 중간 직경(mid-wall diameter)이라 함은 피복관의 두께 중간을 기준으로 해서 측정된 직경이다.

시험이 끝난 피복관은 파열이 발생 할 때까지의 파열 시간( $t_p$ )과 파열이 일어난 부분의

변형량인 총 변형량(total elongation)을 측정하고 파열부위를 중심으로 상하로 각각 약 20mm 위치의 변형량인 균일 변형량(uniform elongation)을 측정한다. 이러한 변형은 대체적으로 불균일하게 발생하므로 그 변형량은 실을 이용하여 원주 둘레를 측정하였다. 시험이 끝난 피복관은 각 시험 조건별로 총변형량과 파열 시간을 비교 평가하였다.

또한, 각 온도 구간에서 Zircaloy-4 피복관의 상변화를 광학 현미경을 통해서 관찰하였고, 피복관의 파열시 파괴 형태를 관찰하였다.

### 3. 결과 및 고찰

고온 변형 시험의 결과로써 그림 2와 3은 Zircaloy-4 피복관과 국산 피복관들의 온도-압력에 대한 총 변형량을 비교 도시하였다. Zircaloy-4 피복관의 파열 변형량은 시험온도와 내압에 따라 넓은 분포를 보이고 있다. 그러나, 시험 온도에 따라 뚜렷한 변형량 차이를 나타내고 있는데, 즉 약 800°C에서 위쪽 경계선과 아래쪽 경계선 모두 최대 변형량을 나타내고 있고 약 950°C에서 가장 낮은 변형량을 나타내고 있음을 관찰 할 수 있다. 이는 일반적인 Zircaloy-4의 전형적인 고온변형특성으로써,<sup>1,2)</sup> Zircaloy-4의 파열 변형량은 온도가 증가 할수록 증가하다가 다시 감소하는 경향을 나타내고 있다. 이는 Zircaloy-4 재료의 상변태와 밀접한 연관이 있는 것으로 추정된다. 즉, hexagonal 구조의  $\alpha$  상에서 2상구역인 ( $\alpha+\beta$ ) 혼합상으로 변태하는 약 820°C에서 최대 변형량이 발생하고 ( $\alpha+\beta$ ) 중간 구역인 약 920°C에서 최소 변형량이 발생했으며,<sup>1,5)</sup>  $\beta$ 상이 지배적일수록 낮은 파열 변형량을 나타내고 있다. 이는  $\beta$  상에서  $\alpha$  상으로의 변태는 무확산 변태로서 전단변형을 하기 때문에 단상인  $\alpha$  상 구역에서는 온도가 증가 할수록  $\alpha$  상의 결정립이 재결정되고 성장하기 때문에 변형량이 증가하는 반면에 2상 지역인 ( $\alpha+\beta$ ) 혼합상에서는  $\beta$  상이 생성되기 시작하면서 가공경화가 최소화<sup>6)</sup>되기 때문에 변형량이 감소하게 되는 것으로 추정된다.

그림 4는 고온 변형 시 Zircaloy-4 피복관의 온도에 따른 미세조직의 변화를 나타내는 것으로써 파열이 발생한 부분(burst region)과 파열이 일어난 부분에서 약 20mm 떨어진 균일변형 부분(uniform region)에서 관찰한 조직을 나타내고 있다. 그리고 파열된 부분의 조직이 균일변형 부분에 비해 좀 더 연신된 것을 볼 수 있는데 이는 파열된 부분의 변형량이 좀 더 크기 때문이다. 조직의 변화를 보면 700°C의 온도에서는 완전 재결정된  $\alpha$  조직을 나타내고, 온도의 증가에 따라 결정립 성장을 나타낸다. 800-850°C의 온도에서는 막 형성되기 시작한  $\beta$ 상들이  $\alpha$  결정립계에 존재하게 되지만 900°C보다 높은 온도에서는  $\alpha$  결정립이 크게 성장했음을 알 수 있고, 형성된  $\beta$ 상들이  $\alpha$  결정립계 뿐만 아니라 결정립내에서도 다량으로 존재함을 알 수 있다. 시험온도 925°C와 950°C사이에서는  $\beta$ 상의 분율이 증가고, 975°C이상의 온도에서는 순수  $\beta$  구역으로서 존재하게 된다.<sup>4)</sup> 그림 3에서 파열 된 피복관의 접사 사진을 비교해 봐도 피복관의 최대 변형량의 변화를 쉽게 비교할 수 있다. 이러한 피복관의 변형거동은 피복관 표면의 불균일한 온도 분포에 의해서 영향을 받는 것으로 예상된다.<sup>7)</sup>

그림 5는 이전의 연구 데이터와 본 실험에서 실시한 Zircaloy-4의 파열될 때까지의 파단 시간(time to rupture)과 초기원주응력과 관계를 비교한 그림이다. 이 그림에서 Zircaloy-4의 파열 저항성은 표준 Zircaloy-4의 고온변형거동<sup>4)</sup>과 유사한 것으로 평가되었고, 표 1을 보면 국산 신형 피복관과 Zircaloy-4의 파열 저항성은 유사함을 관찰하였다.

모사된 LOCA 조건에서 고온 변형 시험을 통한 Zircaloy-4와 국산 신형 피복관의 파열

저항성을 비교해 볼 때 기존의 Zircaloy-4보다 좀 더 우수하거나 유사할 것으로 평가된다.

그림 6은 고온 변형 시험 후 피복관의 파괴 형태를 나타내는 그림으로써 HCP 구조를 갖는  $\alpha$  상과  $\beta$  상이 지배적인 ( $\alpha+\beta$ ) 혼합상에서는 Zircaloy-4의 texture 특성에 의해서 원주 방향의 변형이 매우 제한적이기 때문에, 전단 파괴형태가 발생하지만, BCC 구조를 갖는  $\beta$  상에서는 피복관 표면에 생성된 산화막에서 축 균열이 발생하게 되고  $\beta$  구역으로 균열이 확장되면서 국부적인 두께 감소나 necking에 의한 인장파괴 형태를 나타내고 있음을 관찰 할 수 있다.<sup>8)</sup>

#### 4. 결론

1. Zircaloy-4 피복관은  $\alpha$ 상 영역인 약 800°C 까지는 온도 증가에 따라 파열 변형량이 증가하고 ( $\alpha+\beta$ )상의 850~950°C 영역에서는 최소의 변형량을 나타내었다. 국산 신형 피복관의 고온변형 저항성은 Zircaloy-4 피복관 보다 우수하거나 유사한 것으로 나타났다.
2. 고온 변형 특성은 Zircaloy-4의 상변태에 의한 것으로써, hexagonal 구조인  $\alpha$  상에서는 온도 증가에 따른 결정립 성장에 의해서 변형량이 증가하고, bcc 구조를 갖는  $\beta$  상이 나타날수록 변형량은 감소한다.
3. Zircaloy-4의 재료적인 특성에 의해서  $\alpha$  상에서는 전단 파괴형태가 발생했고,  $\beta$  상에서는 고온 산화에 의한 축 균열에 의한 국부적인 변형에 의해서 작은 변형량을 나타내었다.

#### 감사의 글

본 연구는 2003년도 과학기술부의 원자력연구 개발 사업 중 지르코늄합금핵연료피복관 과제의 일환으로 수행되었습니다.

#### 참고문헌

- 1) F. J. Erbacher and S. Leistikow: Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP, 939 (1987) 451.
- 2) D. G. Hardy: Topical meeting on water-reactor safety held at Salt Lake City, Utah, March 25-28, CONF-730304, (1973) 254.
- 3) H. Chapman, J. L. Crowley, A. W. Longest and G. Hofmann: Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP, 681 (1979) 393.
- 4) Hans-Jürgen Sell and Erhard Ortlieb: Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1423 (2002) 658.
- 5) F. J. Erbacher, H. J. Neitzel, H. Rosinger, H. Schmidt, and K. Wiehr: Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP, 754 (1982) 271.
- 6) D. O. Hobson, M. F. Osborne and G. W. Parker: Nuclear Tech., Vol. 11, (1971) 479.
- 7) F. Erbacher, H. J. Neitzel, and K. Wiehr: Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 681, (1979) 429.
- 8) H. M. Chung, T. F. Kassner, ANL-77-31, (1978)

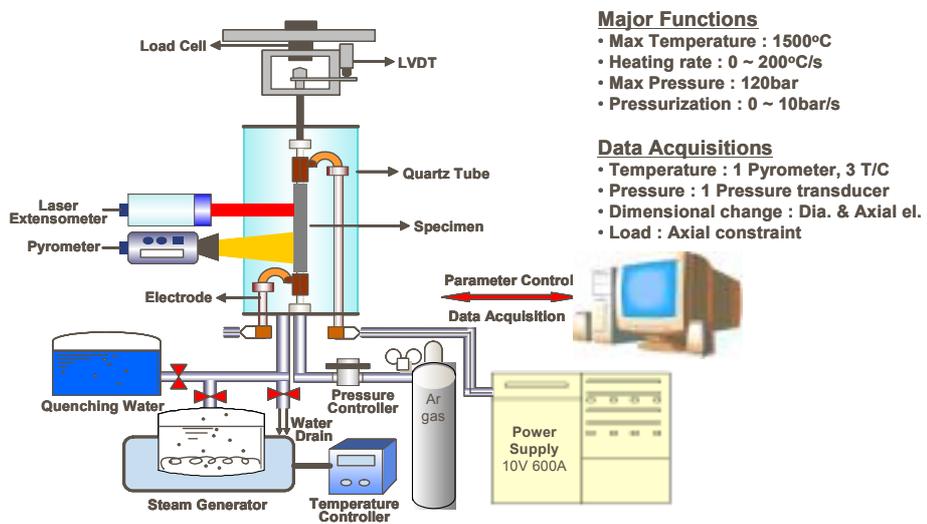


Fig. 1. Schematic diagram of integral LOCA equipment

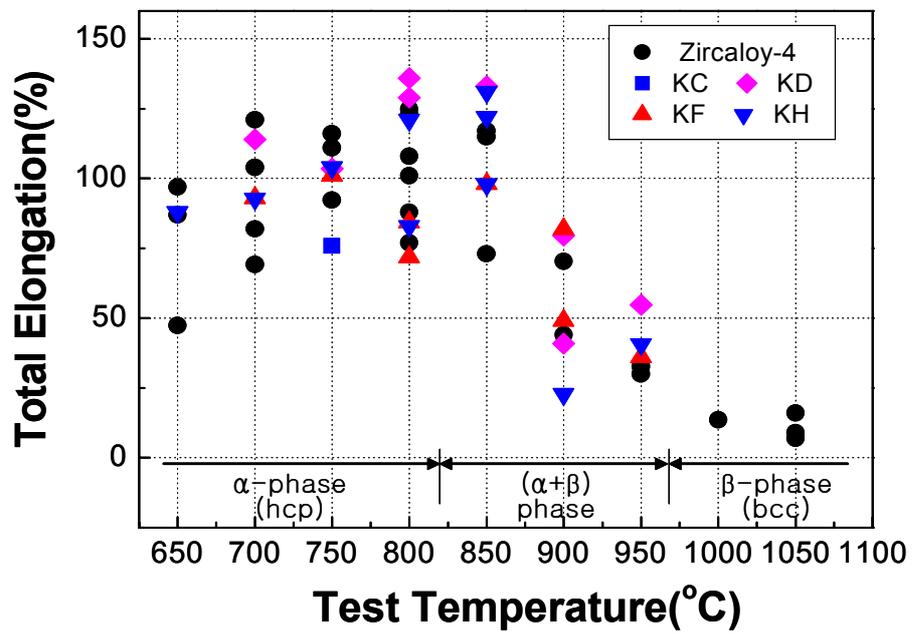


Fig. 2. Burst strain versus burst temperature of Zircaloy-4 and advanced claddings



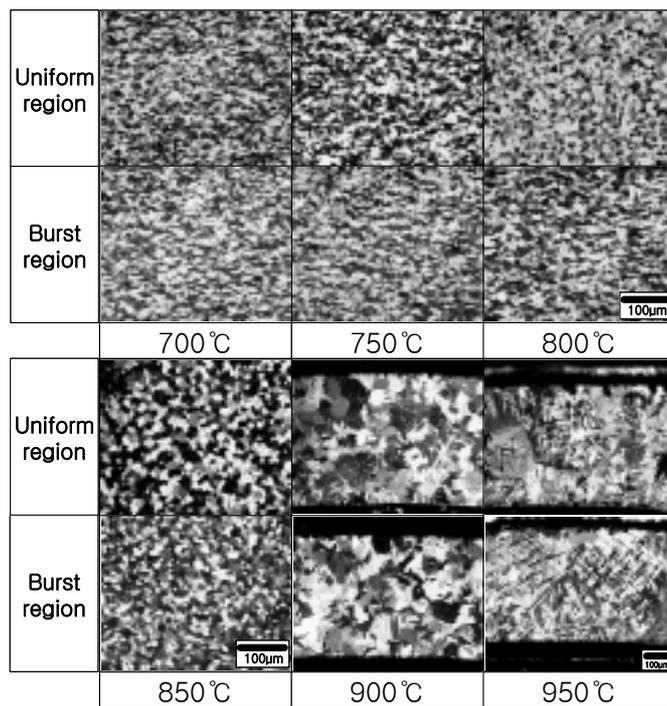


Fig. 4. Microstructural changes with test temperature at uniform and burst region of Zircaloy

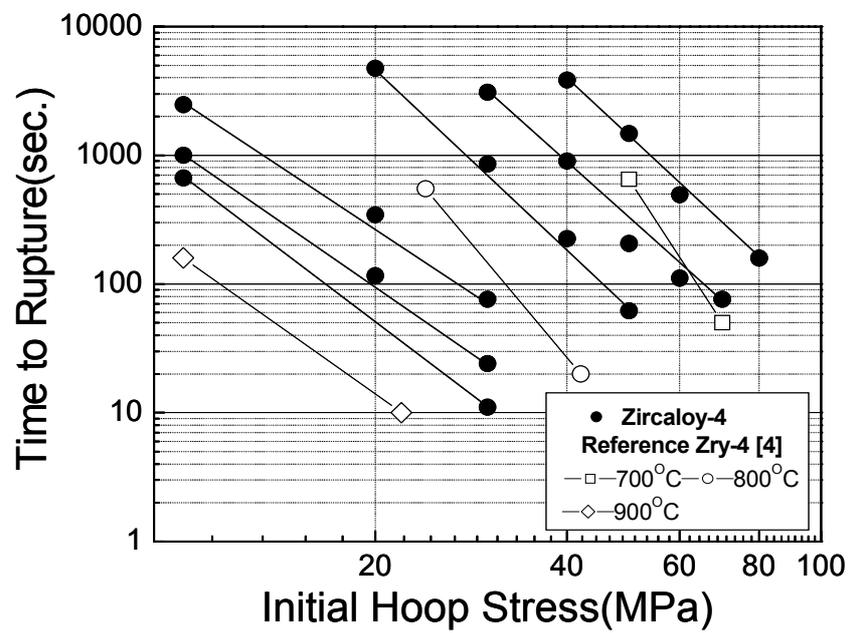
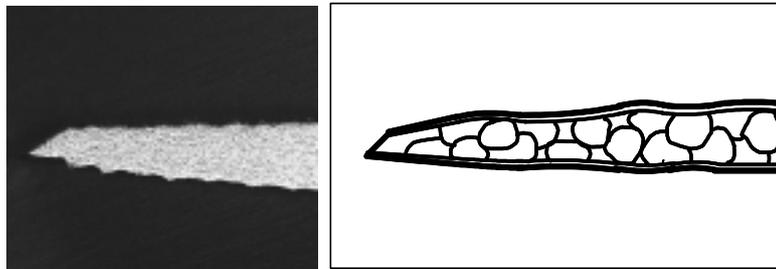


Fig. 5. Time to rupture versus initial hoop stress of Zircaloy-4 claddings

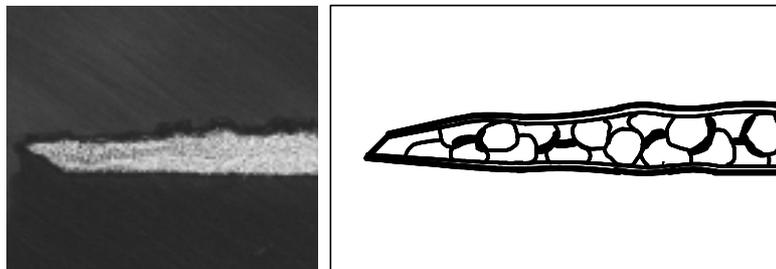
Table 1. Time to rupture of Zircaloy-4 and advanced claddings

Conditions		Zircaloy-4	KC	KD	KF	KH
온도(°C)	압력(MPa)					
700	60	493	·	476		
750	50	207	280	259	258	260
800	50	62	·	33	31	31
900	20	116	·	112	81	93
950	10	665	·	594	542	468

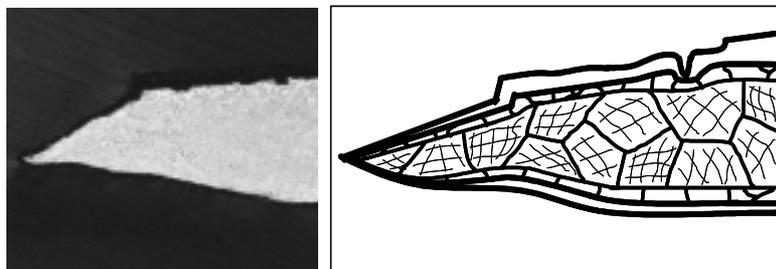
\* Time to rupture : sec.



(A)  $\alpha$ -phase



(B) ( $\alpha+\beta$ ) phase (dominant  $\alpha$ )



(C)  $\beta$ -phase

Fig. 6. Cross section and schematic diagram of fracture location of Zircaloy-4 at (A)  $\alpha$ -phase, (B) ( $\alpha+\beta$ ) phase, (C)  $\beta$ -phase