2003 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

Zircaloy-4 피복관의 ISCC 특성

ISCC Properties of Zircaloy-4 Cladding

박상윤, 최병권, 방제건, 정용환, 정연호
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요약

Zircaloy-4(Zry-4) 피복관의 ISCC(iodine-induced stress corrosion cracking) 특성을 평가하기 위하여 피복관 내부에 축 방향의 피로균열을 발생시킬 수 있는 실험장치를 설계하여 제작하였다. 이 장치를 이용하여 Zry-4 피복관에 초기 피로균열을 제작한 후 ISCC 특성 시험을 수행하였다. ISCC 특성시험은 온도 623°K, iodine 농도 10^{-3} g/cm^2 조건에서 100 시간 동안 내부압력을 가하여 수행하였다. 균열단면에 대한 SEM 사진에서 ISCC 균열의 깊이를 측정하여 K_I (stress intensity factor) 및 균열 전파속도를 측정하였으며, 이들 사이의 상관관계로부터 K_{ISCC} (threshold stress intensity factor)값을 구하였다.

Abstract

An equipment of inducing an internal, longitudinal fatigue crack in a tube was designed and manufactured. Using this equipment, the Zircaloy-4 specimens, which had been fatigue-cracked at internal surface for evaluating their iodine-induced stress corrosion cracking (ISCC), were prepared. Tube pressurization tests were conducted at 623°K and the iodine concentration of 10^{-3} g/cm^2. The K_I (stress intensity factor) and crack propagation velocity were evaluated using the depth of ISCC crack measured by scanning electron microscope (SEM). From the relationship between the K_I and crack propagation velocity, K_{ISCC} (threshold stress intensity factor) of Zircaloy-4 cladding was estimated.

1. 서 론

1970 년대 이후로 경수로 핵연료 피복관의 파손은 주로 연료/피복관 상호작용 (PCI : pellet cladding interaction) 에 기인한 것으로 보고되고 있다 이는 연료와 피복관의 화학적 반응과 기계적 접촉이 동시에 일어날 때 발생하는 것으로써 응력부식균열

(SCC : stress corrosion cracking) 에 의한 파손으로 발전 할 수 있다. SCC 를 유발하는 화학반응 인자로는 주로 연료의 핵분열과정에서 생성되는 기체상 요오드로 알려져 있다. 따라서 이러한 현상을 ISCC (iodine-induced SCC) 라고 한다. 따라서 부하 추종운전과 같이 운전 중 과도상태가 유발되면 특히 발생 가능성이 높아진다. 또한 고연소도 조건이 되면 연료와 피복관이 서로 접촉하게 되고, 또한 핵분열에 의한 핵분열 생성물의 일종인 요오드와 방사화 분해에 의한 요오드의 농도도 지속적으로 증가된 상태이기 때문에 ISCC 발생 가능성 또한 증가한다.

오늘날에는 이러한 현상을 방지하기 위해 연료, 피복관 등의 설계를 변경하거나 원자로 운전방식 등을 개선함으로써 이러한 현상은 상당히 감소되고 있다. 그러나 PCI 는 여전히 연료봉 손상원인의 주요 위협인자이며, 이를 방지하기 위해 BWR 의 경우 피복관 내면에 Zr-liner 를 설치하거나 PWR 의 경우 반경방향의 높은 집합조직을 가지도록 피복관을 제작하기도 한다. ISCC 저항성에 대한 평가방법은 응력집중인자 (stress intensity factor)를 측정하는 방법이 있는데, 초기 피로 균열의 전파속도를 측정하여 균열 전파에 대한 문턱값, 즉 K_{ISCC} 값을 측정하는 방법이다. 그런데 피로 균열의 전파속도를 측정하는 것은 DCB 시편을 이용하여 ASTM 규정에 따라 시험해야 하나 피복관처럼 두께가 얇은 시편에 대한 규정이 없을 뿐만 아니라 실험방법이 까다로워 실험자 마다 상이한 결과를 얻기가 쉽다. 또한 국내에서 개발된 고연소도 용 핵연료 피복관의 ISCC 저항성을 평가가 시급히 필요하다.

본 연구는 기존 상용 피복관을 이용하여 초기 피로균열을 제조하는 방법을 확립하고, 이 방법으로 제조된 시편의 K_{ISCC} 값을 측정하여 K 피복관의 ISCC 저항성을 평가하기 위한 DB 를 구축하기 위한 것이다. 상용 피복관의 ISCC 특성을 시험할 수 있는 실험 장치를 설계 제작하였고, 지금까지 상용 PWR 에서 사용되어 왔던 Zircaloy-4 시편에 대한 ISCC 특성실험을 수행하였다. 이 실험 결과는 고연소도 용으로 개발 중인 신형 K 피복관의 특성 시험에 유용하게 활용될 것이다.

2. 실험 장치 및 방법

2.1 초기 피로균열 제조

핵연료 피복관에 대한 균열전파 시험을 위해서는 먼저 피복관 내부에 미세 균열을 발생시켜야 한다. 이 초기 균열로써 기계적 노치를 만들거나 피로 균열을 만들기도 한다. Lemaignan[8]는 피복관 내부에 피로균열을 발생시키기 위한 지그를 고안하였는데, 피복관 외경에 맞는 홈이 파진 지그를 만들어 피복관을 삽입하고 위에 판재를 얹은 다음 인장시험기를 이용하여 압축응력을 가하여 피로 균열을 제조하였다. Fig.1 은 Lemaignan 의 장치를 개량하여 만든 지그이다. 이 지그를 인장시험 기인 Instron 8516 에 고정하고, 13 ㎝ 크기의 Zircaloy-4 시편을 설치한 후 변위 폭 0.12 ㎜, 진동수 5Hz 인 sine wave 형태의 주기적 하중을 가하여 피로 균열을 제조 하였으며 5000 ~ 16000 회의 주기에 따른 초기 피로 균열의 깊이를 측정하였다. 이렇게 제조된 초기 피로균열이 생긴 피복관을 가지고 ISCC 시험장치에 설치하여 균열 전파속도를 측정하였다.

2.2 ISCC 시험장치

Fig.2 는 핵연료피복관의 ISCC 특성 실험을 수행하기 위해 설계/제작한 장치의 P&I 도면이다. 최대 설계 압력 및 온도는 90Mpa 및 600°C이고 한꺼번에 4 개의 시편을 동시에 같은 온도에서 다양한 압력으로 실험할 수 있도록 설계/제작 되었다. 실험 중 고온에서 피복관이 산화 되는 것을 방지하기 위하여 시편 내부는 진공을 뽑은 후 고순도

He 가스로 가압하여 내부 압력을 조절 하도록 하였고 시편 외부의 autoclave 는 Ar 가스로 충전하여 시편 표면의 산화를 방지하였다. 또한 실험온도, 압력 및 파괴시간 등 모든 실험 변수에 대한 정보는 on-line 으로 PC 에서 수집할 수 있도록 하였다. Fig 3 은 계측 및 제어 신호의 흐름을 나타내는데, 온도 및 압력을 계측하기 위한 UT 320 과 UM 330 9 대, 여기서 나오는 RS485 신호를 컴퓨터에서 받아 들일 수 있는 신호 레벨로 변경시켜 주는 RS-converter, 장치의 상태를 관찰 및 제어 하기 위한 controller, 그리고 두 신호를 컴퓨터에서 읽어 들이기 위한 PCMClA Multi-port 로 구성되어 있다.

2.3 균열전파속도 측정

내경 8.36 ㎜, 두께 0.57 ㎜인 상용 Zircaloy-4 피복관을 13 ㎝의 크기로 잘라서 초기 피로 균열을 제작한 후 내부에 iodine 을 삽입하고 ISCC 측정장비인 Fig. 2 에 설치한 후 350℃까지 가온하고 일정한 압력을 가하여 균열이 전파하도록 하였다. Aldrich 사 제품 99.99% 고순도 iodine 을 사용하였고, 10^{-3} g/㎠ 의 양을 정량하여 시편내부에 삽입한 후 실험하였다. ISCC 시험 중 산화를 방지하기 위하여 가온 전에 시편내부의 공기를 진공 펌프로 제거 하였고 시편 외부는 아르곤 가스를 채웠다. 100 시간 동안 고온고압에서 유지시킨 후 파괴되지 않은 시편은 실험을 종료하였다. 실험이 종료된 시편은 균열이 간 부분을 잘라서 균열 단면을 전자 현미경(SEM)을 통하여 관찰하였다. 전자현미경 사진을 통하여 초기 피로 및 ISCC 균열의 깊이를 측정하여 ISCC 에 의한 균열 전파속도를 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 pre-crack 제조

Fig.4 는 피복관 외부 표면에 주기적인 압축응력을 가할 때 형성되는 균열의 모식도를 나타낸 것이다. 피복관 외부에서 압력이 가해지면 압력을 받은 부분의 바로 밑 부분에서 가장 큰 변형력을 받기 때문에 이와 같은 반 타원 모양의 피로 균열이 피복관 내부에 축 방향으로 형성되며 압축 응력 주기가 진행 될수록 피로 균열도 전파하게 된다. Fig.5 는 초기응력을 30 kg 을 주고 변위폭을 0.12 ㎜ 상태에서 5㎐ 의 반복 응력을 가하여 얻은 진동수에 따른 응력을 나타낸 그래프인데 시간이 지남에 따라 응력이 약간 감소함을 알 수 있다. Fig 6 은 주기적인 압축하중을 16,000 cycle 가한 피복관을 350℃ 기중에서 2 시간 산화시킨 후 균열부위에 인장 응력을 가하여 파괴시킨 후 단면을 관찰한 광학 현미경 사진이다. 균열의 경계가 선명하여 피로 균열의 깊이 및 축 방향의 길이 등을 용이하게 측정할 수 있었다. 피복관 두께에 대한 초기 균열의 깊이의 비율인 a/t 값은 K_I 값을 결정하는 데 중요한 인자가 된다. Fig. 7 은 진동수에 따른 피로균열의 깊이 비율 (a/t)를 나타낸 그래프이다. 비교적 실험 오차는 컸으나 균열 깊이와 진동수가 비례관계에 있음을 알 수 있다.

3.2 Stress Intensity Factor

피복관의 ISCC 에 의한 파손 저항성을 평가하기 위해서는 응력집중인자의 변화에 따른 균열의 전파속도를 측정하여 균열 전파에 대한 문턱 값 즉 KISCC 를 구하여야 한다. 이를 구하는 가장 일반적인 방법은 DCB 시편을 제작하여 ASTM 규정에 따라 파손 시험을 수행하여야 한다. 그러나 DCB 시편을 이용한 시험은 두께가 두꺼운 판재 형 시편에서만 측정이 가능하다. 두께가 얇은 피복관의 시험에서는 피복관 내부에 초기 균열을 형성시키고 시험 압력을 다음과 같이 Plane strain 조건을 만족하는 영역으로 유지시켜야 한다[9].

$$K_I \langle \sigma_y (3\pi t/5)^{1/2}$$

여기서 σ_y 는 피복관의 인장강도, t 는 피복관 두께이다. 두께 570 ㎛, σ_y = 220MPa 인 피복관의 경우 K_I < 7.2 MPa $m^{1/2}$ 이하가 유지되어야 한다. Newman 방법에 의하면 Fig. 4 와 같은 형태의 균열을 가진 튜브가 내부압력 P 를 받을 때 K_I 은 다음과 같이 계산할 수 있다. [10]

$$K_I = \frac{pR}{t}\sqrt{\frac{\pi a}{Q}}F(\frac{a}{c},\frac{a}{t},\frac{t}{R},\phi)$$

여기서 p = internal pressure on the tube
R = inner radius of the tube
t = tube wall thickness
a = depth of surface crack
Q = shape factor for an elliptical crack = 1 + $1.464(a/c)^{1.65}$
c = half-length of surface crack
= parametric angle of elliptical crack

그러므로 초기 균열의 형상이 알려지면 시험압력 조건에서의 K_I 값을 구할 수 있다. 특히 환산인자 f_c 는 a/c, a/t, t/R 및 ϕ 의 함수이므로 쉽게 계산할 수 있다. Fig.8 은 t/R = 0.13, $\phi = \pi/2$ 인 시험시편에 대한 a/t 및 a/c 변화에 따른 f_c 값을 나타낸 그래프이다.

3.3 K_{ISCC} 측정

Fig.9 는 세 종류의 파단면 즉 초기 피로균열, ISCC 및 열성파괴 파단면을 보여 주고 있다. 또한 Fig.10 은 세 종류의 파단면을 2000 배로 확대하여 찍은 SEM 사진이다. 세 종류의 파단면의 특성이 현저히 다르므로 각 단계의 파괴 특성을 파악할 수가 있다. 특히 ISCC 가 진행되는 100 시간 동안 균열이 진행된 깊이는 0.21 ㎜ 로써 균열 전파 속도는 5.8×10^{-7} mm/sec 임을 알 수 있다. 그런데 초기 피로 균열의 a/c = 0.3, a/t = 0.5 이고 시험압력이 14.7 MPa 이었으므로 이때 K_I 값은 2.94 이다.

Fig. 11 은 이와 같은 방법으로 구한 K_I 값에 대한 균열 전파속도의 관계를 나타낸 그래프이다. 이 그래프로부터 Zircaloy-4 피복관에 대한 KISCC 값은 3.3 MPa $m^{1/2}$ 얻었다.

이상의 방법으로 얻은 초기 피로 균열 제조 및 특성 분석, ISCC 균열 전파속도 측정 그리고 KISCC 측정 방법들은 국내에서 개발한 K 피복관에 용이하게 적용할 수 있을 것이다.

4. 결론

고연소도용 국산 신형 K 피복관의 ISCC 저항성 평가를 위한 기초 실험으로써, 상용 Zircaloy-4 피복관을 이용한 KISCC 평가실험을 수행하였다. 초기 피로 균열을 제조하는 방법을 고안하였고 제조된 균열에 대한 특성을 분석하여 응력 집중 인자(K_I)를 구하였다. K_I 변화에 대한 균열 전파 속도 측정으로부터 균열 전파 임계 값인 KISCC 를 구하였다. 이 균열 특성 분석 및 전파속도 측정 결과들은 신형 K 피복관의 ISCC 저항성 평가에 유용하게 활용될 것이다.

참고 문헌

1. M.F. Lyons, D.H. Coplin and G.G Jones, High performance UO_2 Fuel program, GEAP-3771-10,11,12 (1963/64)
2. H. S. Rosenbaurm, Electrochem. Tech, 4 (1966) 153
3. J. A. L. Robertson, in : proc. of Joint Topical Meeting on commercial Nuclear Fuel Techuoloh tody, Toronto, Aprial 1975, CNS-ISSN-0068-8515
4. F. Garzarolli, R. von Jam and H. Stehel, Energy Rev. 17(1979) 31
5. J. C. Wood and J. R. Kelm, Res Mech, 8(1983)127
6. J. C. Wood, Nucl. Technol, 23(1974)63
7. B. Cox, J, Nucl, Mat. 172(1990)249
8. C. Lemaignan, Int. J. Pres. Ves. & Piping, 15 (1984) 241
9. Yu, K, Bibilashvily, Yu. N. Dolgov, B. I. Nesterov, V. V. NoviRov, J. Nucl, Mater. 224(1995) 307
10. J. C. Newmam, Jro ; I. S. Rahu, J. Press. Vesal Tech. 102 (1980) 342

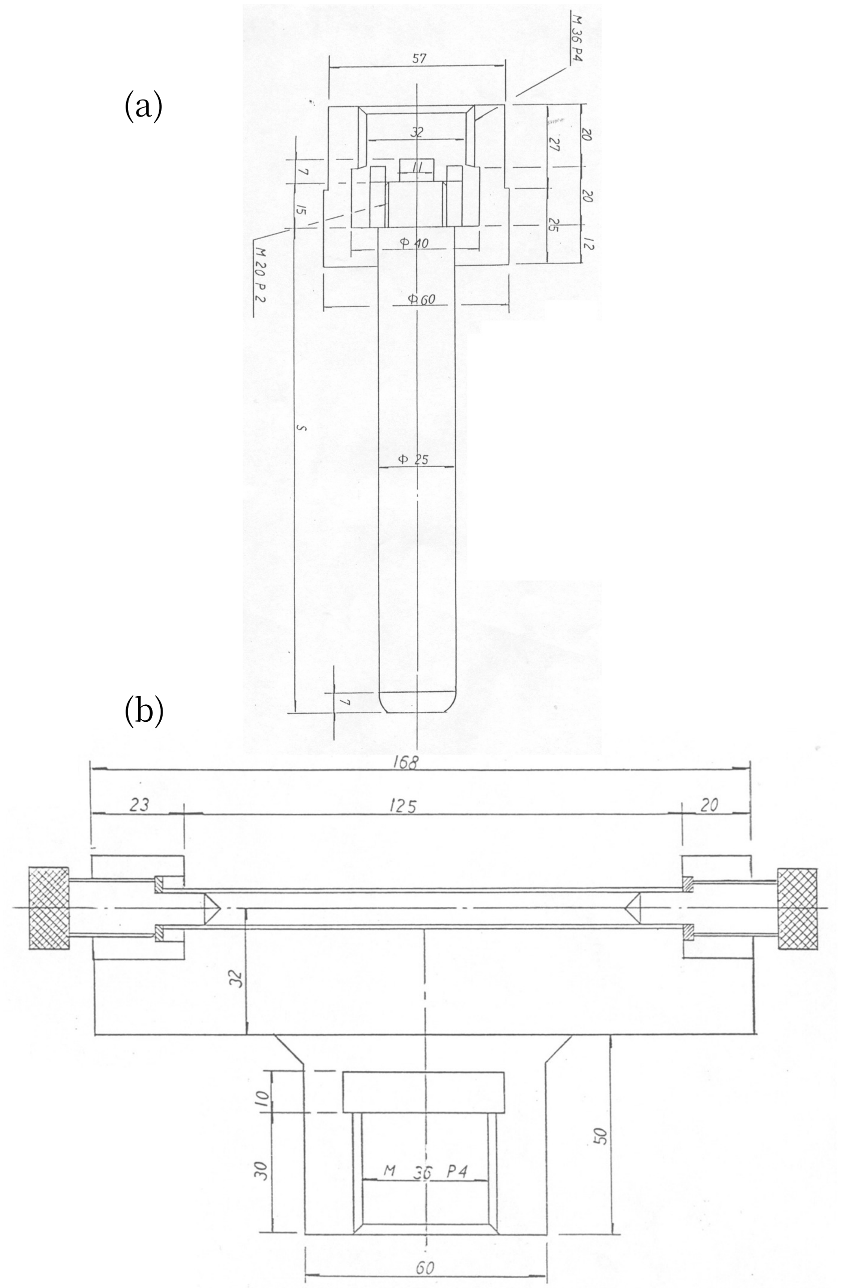

Fig. 1 Loading cell for making the fatigue pre -crack; (a) upper part and (b) lower part

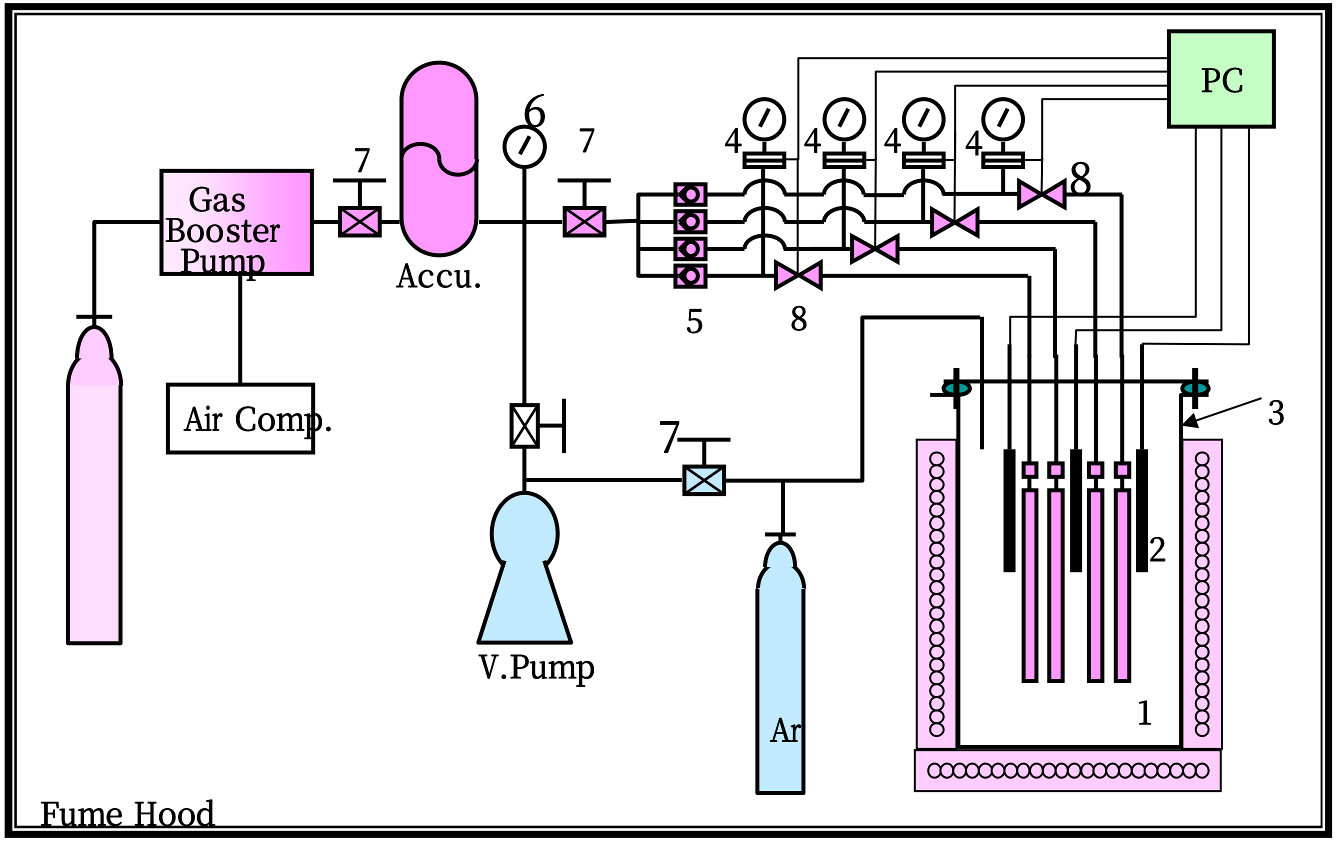

Fig. 2. Schematic drawing of the ISCC Testing Facility

1: Specimens, 2: Thermocouple, 3: SS Liner (100^{ϕ} X 300^{L}),
4: High Pressure Gauges & Transducers, 5: High Pressure Regulators,
6: High Pressure Gauge, 7: High Pressure Valves, 8: Automatic Valves

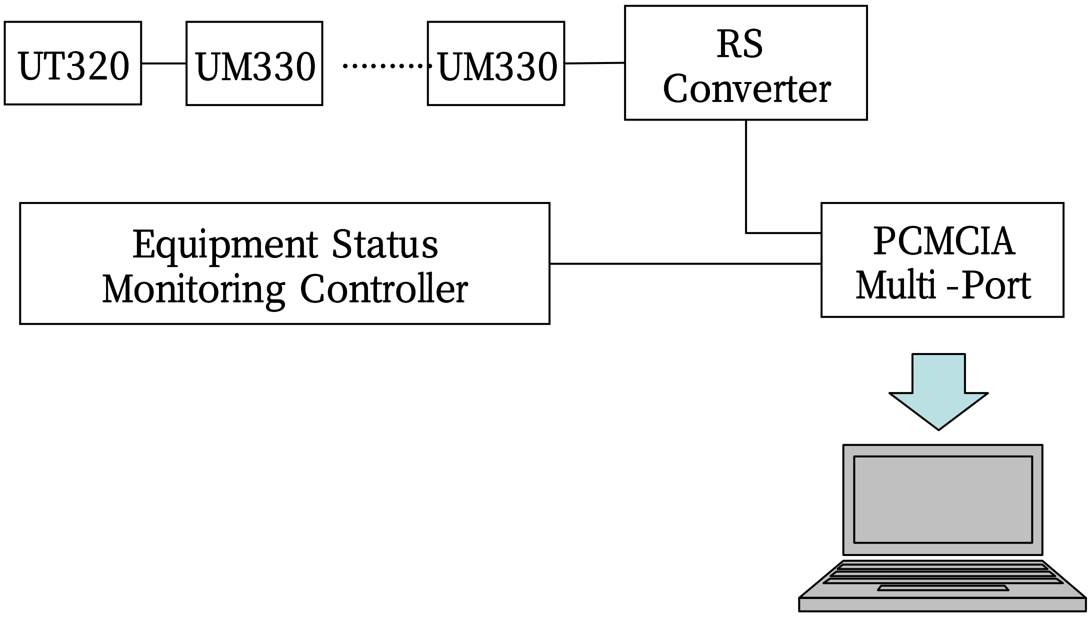

Fig. 3. Control and indication system

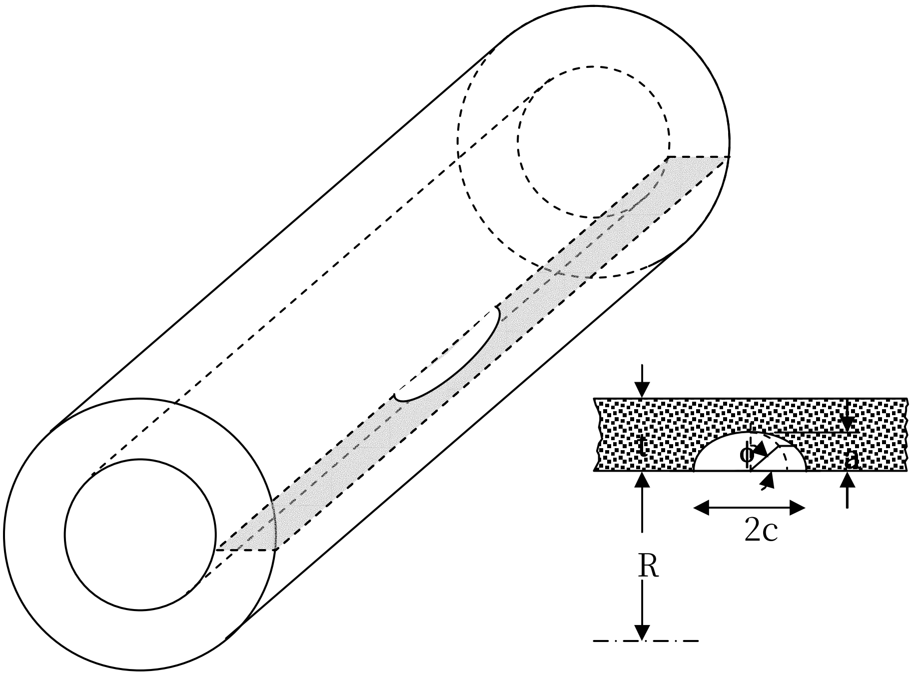

Fig. 4. Surface crack in an internally pressurized cylinder

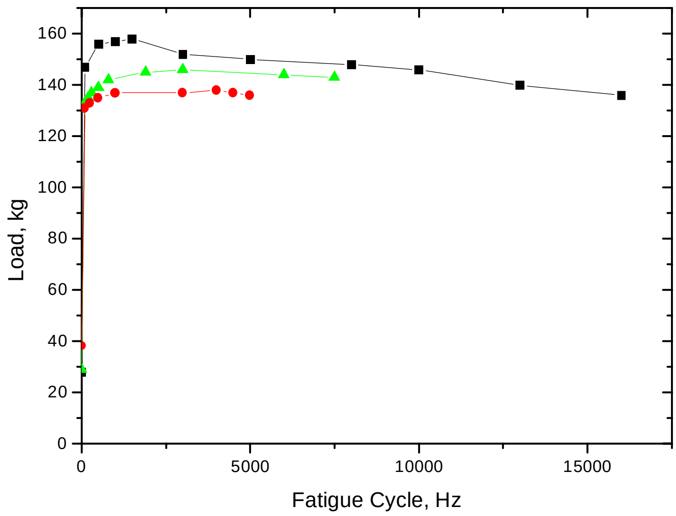

Fig. 5. Load vs. frequency plots

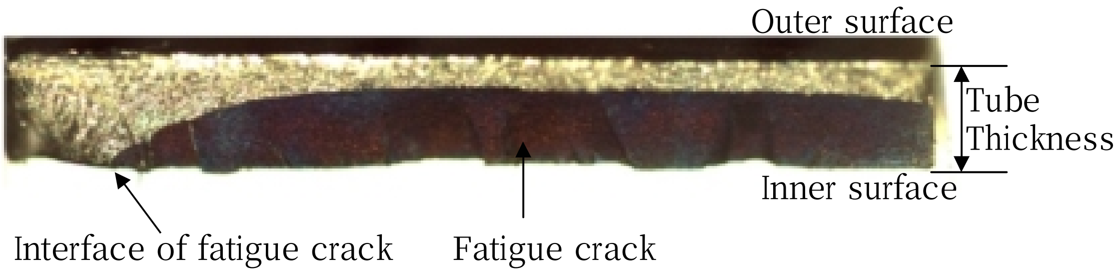

Fig. 6. Cross -section of pre -crack showing the depth of fatigue crack (70% of total tube thickness).

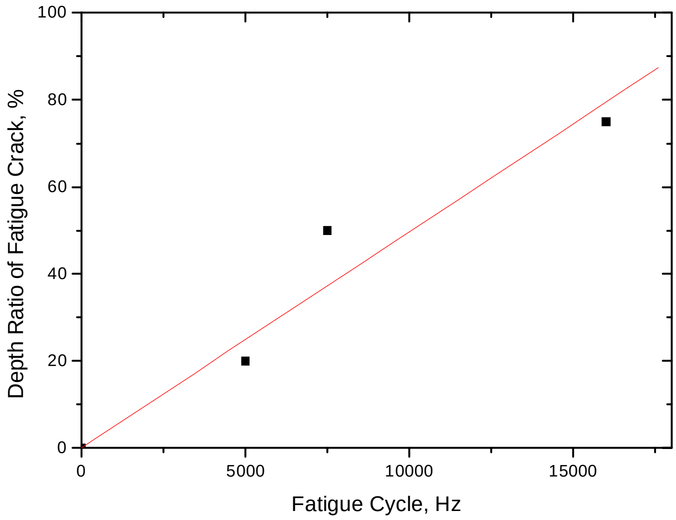

Fig. 7. Depth ratio of fatigue crack vs. fatigue cycle plots.

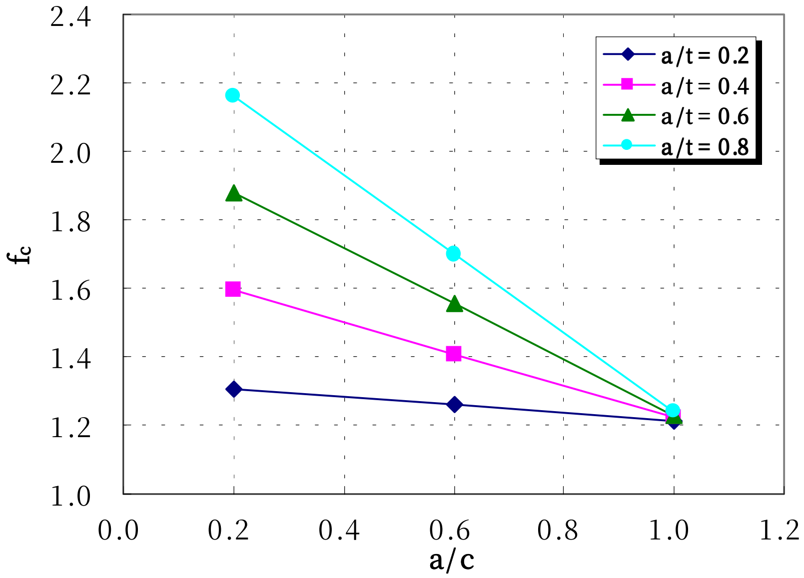

Fig. 8. Boundary -correction factor for a surface crack in a pressurized tube (t/R=0.13)

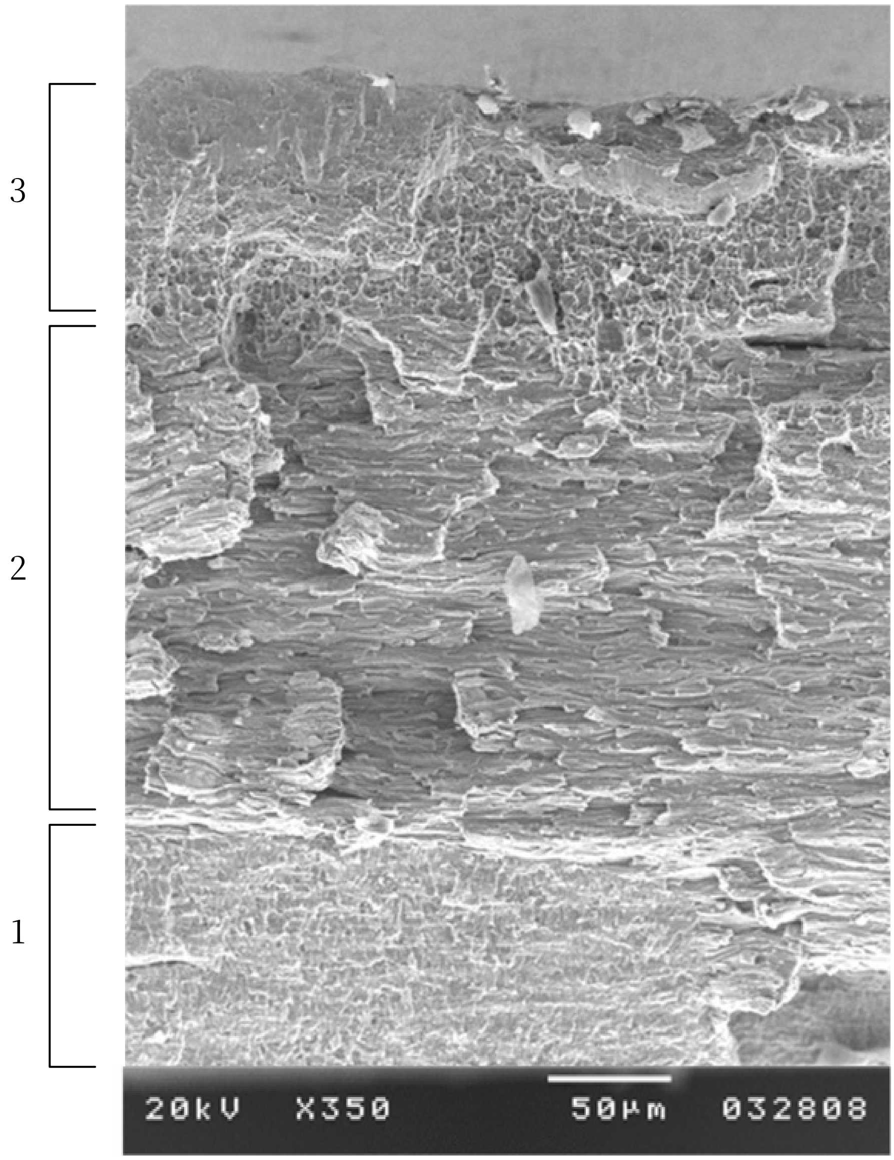

Fig. 9. Fracture surface in the defect area of a specimen tested for; 1 – fatigue crack; 2 – ISCC; 3 – ductile overload

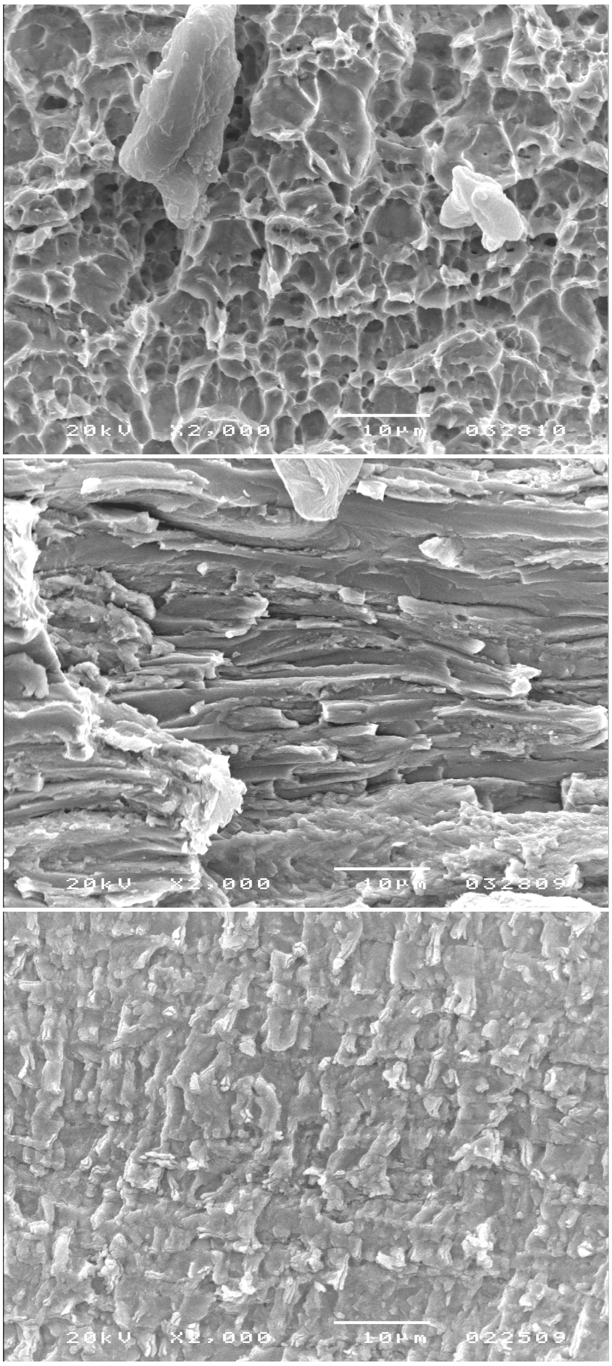

Fig. 10. Detailed fracture surface in the defect area of a specimen tested for (a) fatigue crack; (b) ISCC; (c) ductile overload

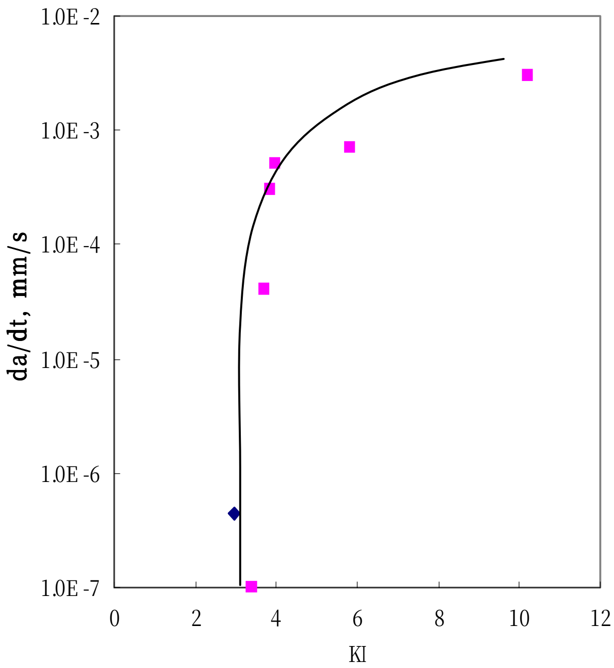

Fig. 11. Crack propagation rate versus stress intensity factor for Zircaloy -4 claddings