2003 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

# 중간열처리 및 최종열처리 변화에 따른 신형 피복관의 파열특성

# Burst Properties of New Cladding Tubes Depending on the Change of Intermediate and Final Heat Treatments

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

**요약**

중간열처리 및 최종열처리가 신형 피복관의 인장특성에 미치는 영향을 평가하기 위하여 TREX 열처리, 중간열처리 및 최종 열처리를 다르게 하여 제조한 4종의 신형피복관을 상온 및 400℃ 고온에서 ASTM B811-97 요건에 따라 파열시험을 실시하였다. 중간 열처리가 신형피복관의 파열특성에 미치는 영향은 13%이내로 비교적 미미하였으나 최종열처리 온도가 미치는 영향은 현저하였다. 즉, 최종 열처리 온도가 높을수록 신형 피복관의 후프파열강도는 감소하고 원주방향 연신율 및 균일연신율은 증가하였다. 그러나 510℃ 이상에서는 재결정에 의해 이러한 현상으로 완화되었다.

Abstract

To evaluate the effect of both intermediate and final heat treatments on the burst properties of the new cladding tubes, four kinds of tubes were manufactured and undergone the burst tests at room temperature and 400℃. The effect of intermediate heat treatment on the claddings was a little with 13% at most, but that of final one was distinguishable. So, higher final heat treatment made the claddings have lowered the ultimate hoop strength and increased total circumferential and uniform burst elongations. But if the claddings were finally annealed above 510℃, it appeared that the re-crystallization of the tubes had the trend less.

**Key words**: cladding tubes, burst properties, final heat treatment, intermediate heat treatment

## 1. 서론

1990년대 이전에는 Sn의 함량이 약 1.5wt% 수준인 표준 Zircaloy-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 Sn Zircaloy-4(Z4) 핵연료 피복관이 주로 사용되고 있다. 또한 최근에는 Z4 재료를 대체할 수 있는 Zr 신합금 핵연료피복관이 미국, 프랑스, 일본, 러시아, 한국을 중심으로 개발되고 있고 이중 일부는 상업화 단계에 이른 것도 있다. 현재 PWR에서 널리 사용되고 있는 Z4, 미국에서 개발한 Zirlo[1], 일본에서 개발을 시도한 MDA[2] 및 NDA[3] 등의 합금으로 제조된 피복관은 500℃ 이하에서 최종 열처리를 수행한 응력완화 소재이다. 그러나, PWR 핵연료 집합체 지지격자 (space grid)용 Z4, 비등경수로 (BWR) 피복관으로 사용되는 Zircaloy-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 2종 (UC, UD)의 핵연료 피복관을 1차로 개발하고 4종의 피복관(UE, UF, UG, UH)을 추가로 개발하였다. 핵연료 피복관의 중요한 품질요소는 부식 저항성 및 치수 안정성(dimensional stability) 및 기계적 건전성이다. 이중 기계적 건전성은 인장특성, 크립특성 및 파열특성으로 구분하여 평가할 수 있다. 특히, 원자로 가동온도에 가까운 400℃에서 피복관의 기계적 건전성은 중요한 의미를 갖는다. 따라서 KAERI에서 2차로 개발한 4종의 각 피복관에 대한 파열특성을 파악하기 위하여 ASTM B811-97[7]요건에 따라 상온 및 400℃에서 파열시험을 실시하여 최대 후프강도 (UHS), 원주방향 총연신율(%TCE) 및 균일파열연신율(UBE)를 측정하고 열처리 온도 변화에 따른 각 피복관의 파열특성을 비교하여 평가 하였다.

## 2. 실험 방법

2.1 파열시험 장치

최대 600℃까지 승온시킬 수 있는 3-zone type 전기로가 부착된 최대 20,000 PSI까지 가압할 수 있는 파열사험 장치를 사용하여 시험하였다. 전기로 chamber의 균일온도 구간(uniform zone)은 10cm 이며, 목적온도에서 온도편차는 ± 3℃ 이다. 가압속도 조절기, 온도조절기가 온도 및 압력기록계가 시험장치에 구비되어 사용할 수 있도록 되어 있다. 고압가스라인과 시험편을 연결하여 시험편을 전기로 챔버(chamber) 내에 안치시키고 실험시 아르곤 가스를 사용하였다.

2.2 파열시험 시편

본 실험에 사용된 피복관 시편은 표 1, 2와 같다. UE ~ UH피복관 시편은 "Specification for the manufacturing of the TREX (Tube Reduced Extrusion) for KAERI Cladding Tubes, Revision 1 "[8] 및 "Specification for the manufacturing of the KAERI cladding tubes "[9]에 따라 제조된 것이고, Z4, A, B 피복관 시편은 상용 피복관에서 채취한 것이다. 상용피복관의 제조공정은 자세하게 공개되지 않았지만 Z4 및 A 피복관은 응력제거 열처리한 이고, B피복관는 재결정 열처리한 것으로 파악되고 있다. UE ~ UH 피복관 시편제조 열처리 이력은 표 3과 같다. 각 시편의 길이는 ASTM B811-97 규격에 따라 외경의 약 10배인 150mm로 하였다. 시편의 한쪽 끝 단에서 60, 80, 100 mm 3점 위치을 name pen으로 마킹하고 60 ˚간격으로 3점 위치의 시험전 칫수을 측정하였다.또한 시험규격에 맞는 Metal Plug를 제작하여 시험편 속에 삽입한 후 시편상단을 캡(cap)으로 밀봉하고 이를 시험 보조용 시편연결 tube와 결합하였다.

2.3 파열시험 실시

E21-92(1998 재승인)요건[10]에 따라 시편이 400℃의 평형온도에 도달하도록 약 20분간 400 ±3℃의 온도를 유지한 후 가압기를 작동시켜 400℃±3℃에서 파열시험을 실시하였다. ASTM B811-97에 따라 탄성부 하중 가압속도는 "13.8±1.4MPa/분 "으로 하였고, 시험기간 중 일정한 가압속도를 유지하여 각 피복관 별로 2개씩 파열 시험을 실시하였다.

## 3. 실험 결과 및 논의

3.1 파열시험 데이터 계산

파열시 피복관 내압과 원주방향 신장량으로부터 최대후프강도(ultimate hoop stress or ultimate burst strength, UHS), 원주방향총연신율(total circumferential elongation, TCE) 그리고 원주방향균일파열연신율(uniform burst elongation, UBE)을 다음의 관계식을 이용하여 구하였다. [7]

최대후프강도(UHS) s (MPa) = PD/2t

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

t: 시험전 시험 피복관의 최소 두께 (WT, mm), P: 최대 유압 (MPa)

원주방향 총연신율 (TCE) = (C2 C1) / C1 X 100

C1: 시험전 피복관의 원주방향의 길이

C2: 시험후 피복관의 원주방향의 최대 길이

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

C1: 시험전 피복관의 원주방향의 길이

C2: 시험후 피복관의 파열개구에서 20mm 떨어진 곳에서 원주방향의 최대길이

3.2 UE-UH 피복관의 파열특성

Fig.1는 상온 및 400℃ 고온에서 시험한 UF 및 UH 피복관의 파열부위를 나타내는 사진이다. 파괴될 때까지 불안정하게 성장할 가능성 있는 cavity or void 같은 결함에 의해 피복관 직경의 축방향 1.1배 변형을 갖는 반 원주 주위에 bulge를 유발한다. 이 bulge는 온도불균형, 양축 부하걸림 변화에 의해 불안정하게 부풀어 올라서 bulge길이를 따라 터짐이(tearing)이 발생하여 급속히 파괴로 이어진다.[11] 상온에서는 열활성 도움 없었기 때문에 bulge 많이 성장하지 못하고 파괴되었다. 그러나 Fig. 2에서 보듯이 가공시 도입된 전위가 많이 남아 있는 470℃에서 최종 열처리한 시편보다 재결정으로 전위가 많이 사라진 510℃ 및 570℃에서 최종 열처리한 시편의 경우 연성이

증가했기 때문에 bulge가 좀더 큼을 볼 수 있으며 고온에서는 열활성 도움으로 파괴 전에 bulge 많이 성장하였음을 볼 수 있다.

Fig.3,4는 중간 열처리가 신형 피복관의 상온 및 고온 파열특성에 미치는 영향을 나타낸 것이고 표4는 470℃(A) 및 510℃(B)에서 최종열처리한 경우 각 피복관간 파열특성 변화를 요약한 것이다. ΔUHS의 경우 상온보다 고온에서 편차가 약간 크나 8% 이내를 나타내고 ΔTCE는 ΔUHS 보다 편차가 약간 더커서 최고 10.5%정도를 보이고 있다. 그리고 ΔUBE의 값은 ΔTCE 보다 커서 약 12.9%정도를 나타낸다. ΔUBE의 값의 편차가 이처럼 큰 것은 상대적으로 적은 특성 값의 차이 때문이다. Fig.5,6는 TREX A 및 TREX B로부터 제조된 각 피복관에 대해서 최종 열처리가 피복관의 상온 및 고온 파열특성에 미치는 영향을 나타낸 것으로 일반적인 금속의 특성을 나타내고 있음을 보여준다. 즉, 470℃에서 응력제거 열처리을 했을 경우 제조시 도입된 전위의 영향으로 강도(UHS)는 높고 연신율(TCE, UBE)은 낮지만 510℃에서 최종열처리을 했을 경우는 제조시 도입된 전위가 많이 사라지고 부분적으로 재결정이 되기 때문에 강도는 낮아지고 연신율은 상승한다. 또한 재결정이 완료되는 570℃에서 최종 열처리을 했을 경우는 전위가 대부분 사라지졌기 때문에 강도는 510℃에서 최종열처리을 했을 경우 보다 낮고 연신율은 큰 것으로 볼 수 있다. 합금원소 함유량이 많을수록 강도가 증가하는 일반적인 현상을 UHS변화에서 볼 수 있으나 연신율에서는 이런 일반적인 현상이 명확히 나타나지 않고 있다. 이는 시편소재 내의 결함 및 연신율측정 오차에 기인하는 것으로 생각된다. Fig.5,6에서 470℃ 및 510℃에서 최종열처리한 경우 상온 및 고온에서 UBE 값이 비슷하거나 오히려 고온에서 UBE값이 낮은 것을 볼 수 있는 데 이는 지르코늄합금에서 흔히 관찰되는 동적 변형시효의 영향으로 평가된다.[12] Fig.7는 신형 피복관 시편과 상용 피복관의 시편의 파열특성을 나타낸 것이다. 표 5에서 보듯이 고온 파열특성요건은 피복관 제조회사에서 규정하고 있지 않으나 K 시방서는 UBE 요건만 규정하고 있다. Fig.7에서 보듯이 시험시편의 이 값은 모두 K시방서 규격치를 상회하고 있다. 그러나 상온에서 신형피복관의 UHS 값은 A 피복관보다 다소 떨어지나 Z시방서 규격치보다는 높고, B 피복관보다 높음을 알 수 있다. 그리고 신형 피복관의 TCE 및 UBE값은 A피복관보다 높지만 B피복관 보다는 낮다. 따라서 신형피복관의 파열특성을 일괄적으로 상용 피복관과 비교하기는 곤란하나 대체로 상용피복관 보다 약간 좋다고 할 수 있다. 신형피복관은 인장파괴시 연성파괴를 보인다.[13] 지르코늄의 경우 결정립 3중점 또는 결정립계중 불규칙한 부위 또는 많이 변형된 부위의 석출물 입자에서 voids가 형성되어 변형량 증가와 함께 voids 또는 cavities가 성장하여 합체되어 파괴가 진행된다.[14] cavities 성장은 tube형으로 <c>축에 평행하게 성장한다.[15] Fig. 8은 UF 및 UH 고온시험 파단면을 SEM으로 관찰한 결과 Fig. 8과 같다. 최종열처리 온도가 470℃에서 510℃ 및 570℃로 상승하면서 파단면 상의 dimple은 합체되어 크고 깊어짐을 알 수 있고 dimple이 관 형태로 깊어짐을 알 수 있다.

## 4. 결 론

4종의 신형 피복관(UE, UF, UG, UH)의 파열특성에 대한 중간열처리 영향 및 최종열처리 영향 평가를 위해 ASTM B811-97요건 및 E21-92에 따라 상온 및 400℃ 고온에서 파열시험결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 파열특성에 대한 중간열처리 영향은 약 2-13% 정도로 미미하나 최종 열처리 영향은 현저하였다. 즉, 최종 열처리 온도가 높을수록 후프 파열강도(UHS)는 감소하였고 원주방향 연신율(TCE) 및 균일연신율(UBE)은 증가하는 일반적인 금속의 속성을 보였다.
2. 신형 피복관의 UHS는 A피복관보다 낮으나 low Sn Zircaloy-4 및 B피복관보다 우수하고 TCE, UBE는 B피복관보다 낮으나 low Sn Zircaloy-4 및 A피복관 비슷하거나 약간 우수하다.
3. 신형 피복관 파열파괴는 dimple 형성 및 합체에 의해 발생하고 관 형태의 dimple이 깊어지면서 진행된다.


## 감사의 글

본연구는 과학기술부의 원자력연구개발 사업중 “지르코늄신합금해견연료피복관개발”과제 수행의 일환으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

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. Nikulina, S.A., Goncharov, V.I., Markelov, V.A., and Shishov V.N., ASTM STP 1295, E.R. Bradley and G.P. Sabol, Eds., American Society for Testing and Materials, 1996, pp. 659-709
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 (Tube Reduced Extrusion) for KAERI Cladding Tubes, Revision 1, 한국원자력연구소, 2001.8.1
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. J.M. Kramer and L.W. Deitrich, Cladding Failure by Local Plastic Instability, ANL, ANL-77-95, December, 1997
12. D. Lee, Metallurgical Transactions Vol. 1, June 1970, pp 1607
13. 이명호, 남철, 최병권, 정용환, 정연호: 중간열처리 및 최종열처리 변화에 따른 신형 피복관의 인장특성, 2002 추계학술발표회 논문집, 한국원자력학회
14. S. CARE and A. ZAOUI, Acta mater. Vol. 44, No. 4, pp1323, 1996
15. J. CREPI, T.BRETHEAU and D.CALDEMAISON, Acta mater. Vol. 44, No. 12, pp 4927, 1996

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

| 성분 | Nb | Sn | Fe | Cr | O | Zr | 공칭칫수 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| Z4 | - | 1.26 | 0.23 | 0.12 | 0.13 | Bal. | 9.7x8.43x0.63 |
| A | 1.00 | 0.99 | 0.11 | - | 0.11 | Bal. | 9.5x8.36x0.57 |
| B | 1.00 | - | - | - | 0.12 | | 9.5x8.36x0.57 |

Table 2. UE ~ UH 피복관의 화학조성 (wt.%) 및 치수 (외경x내경x두께:mm)

| 성분 | Nb | Sn | TM | O | Zr | 공칭칫수 |
|---|---|---|---|---|---|---|
| UE | 1.50 | 0.40 | 0.20 | 0.12 | Bal. | 9.5x8.36x0.57 |
| UF | 1.50 | 0.40 | 0.30 | 0.12 | Bal. | 9.5x8.36x0.57 |
| UG | 0.40 | 0.80 | 0.52 | 0.12 | Bal. | 9.5x8.36x0.57 |
| UH | 1.20 | - | 0.10 | 0.12 | Bal. | 9.5x8.36x0.57 |

TM: Transition Metal

Table 3. 신형 피복관의 중간열처리 및 최종열처리

| 시편 ID | TREX | TREX 열처리 | 피복관 중간열처리 | | 피복관 최종 열처리 | ∑A 값 |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | 1차 | 2차 | | |
| A1 | A | 580 $^{o}$Cx3hr | 570 $^{o}$Cx2hr | 570 $^{o}$Cx2hr | 470 $^{o}$Cx2.5hr | 4.15E-20 |
| A3 | | | | | 510 $^{o}$Cx2.5hr | 4.17E-20 |
| A5 | | | | | 570 $^{o}$Cx2.5hr | 4.77E-20 |
| B1 | B | 620 $^{o}$Cx3hr | 620 $^{o}$Cx2hr | 570 $^{o}$Cx2hr | 470 $^{o}$Cx2.5hr | 2.00E-19 |
| B2 | | | | 620 $^{o}$Cx2hr | 510 $^{o}$Cx2.5hr | 2.65E-19 |
| B3 | | | | | 620 $^{o}$Cx2.5hr | 3.18E-19 |

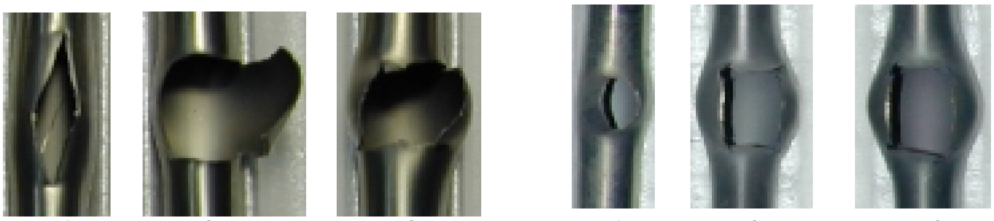
Table 4. UE-UH 피복관 파열특성에 대한 열처리 변수의 영향

| 구분 | 최종열처리 | ΔUHS (%) | ΔTCE(%) | ΔUBE(%) | 비고 |
|---|---|---|---|---|---|
| 상온특성 | 470 $^{o}$Cx2.5hr (A) | 1.8 | 9.7 | 12.9 | |
| | 510 $^{o}$Cx2.5hr (B) | 5.8 | 8.2 | 8.9[1] | [1] UE경우 21.7 |
| 400$^{o}$C | 470 $^{o}$Cx2.5hr (A) | 2.1 | 10.5 | 12.1 | |
| | 510 $^{o}$Cx2.5hr (B) | 8.0 | 10.3 | 12.2 | |

Table 5. 피복관 시방서 품질규격치

| 규격 / 요구치 | ASTM B811-97 | C 시방서[1] | K 시방서[2] | Z 시방서[3] |
|---|---|---|---|---|
| UHS (MPa) | ≥ 500 | ≥ 690 | - | ≥ 848 |
| TCE(%) | ≥ 20 | ≥ 12% | - | ≥ 6% |
| UBE(%) | - | - | ≥ 2.5%(평균),<br>≥ 1%(개별) | - |
| 온도 | 상온 | 상온 | 고온 | 상온 |

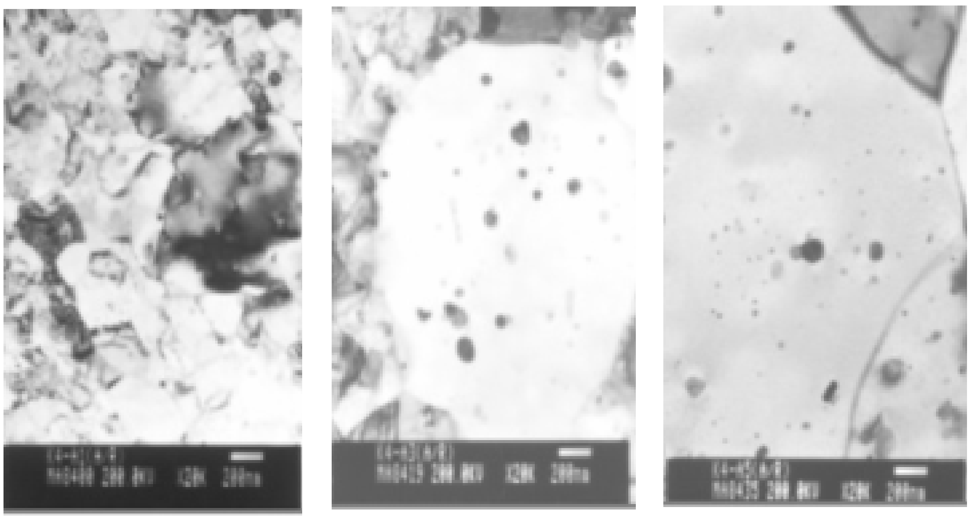
[1), 2), 3)]: 피복관 제조회사 시방서



A1 A2 A3 A1 A2 A3

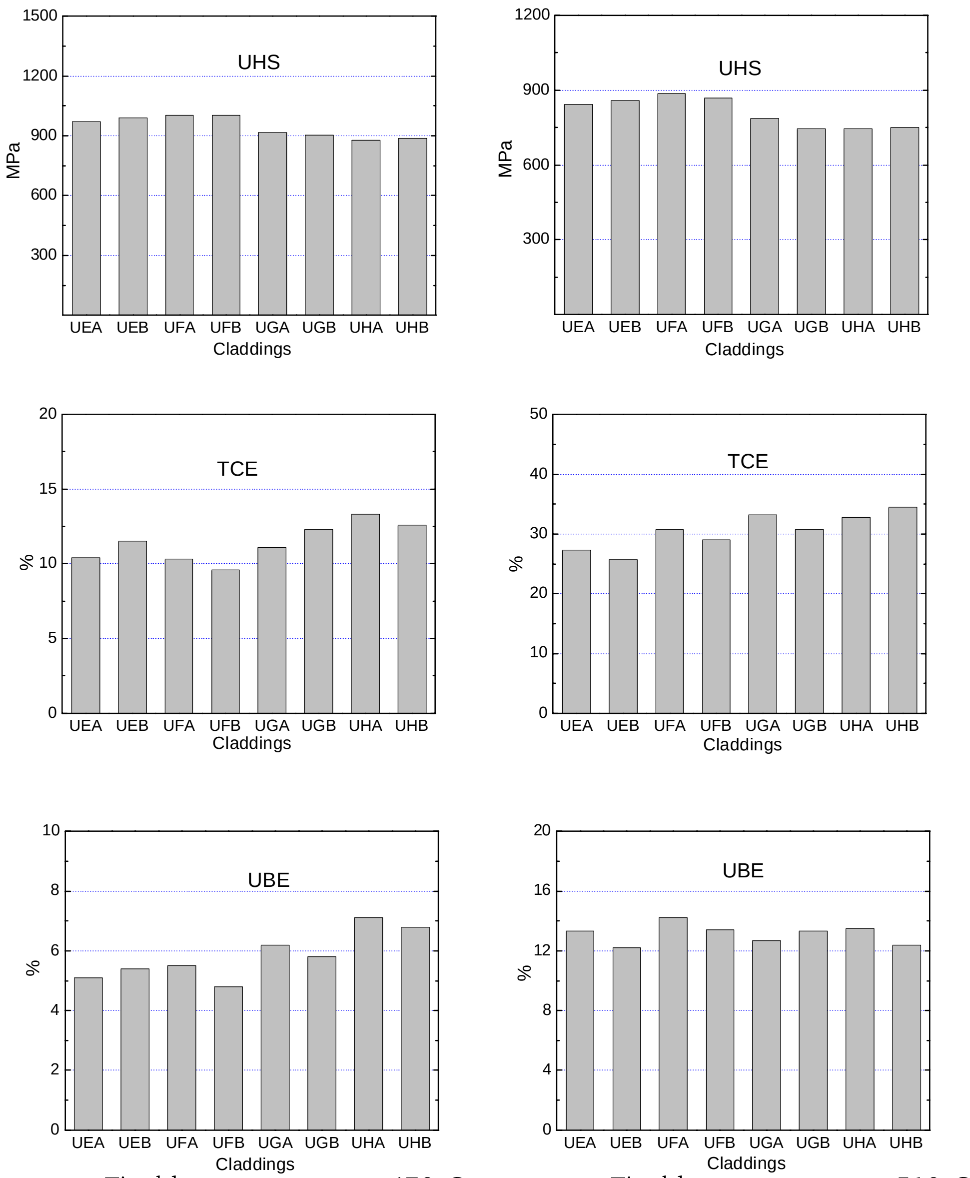
Aat room temperature At 400°C

Fig. 1 Rupture openings of UF cladding tubes which had finally heat - treated at 470°C(A1), 510°C(A2), 570°C(A3)



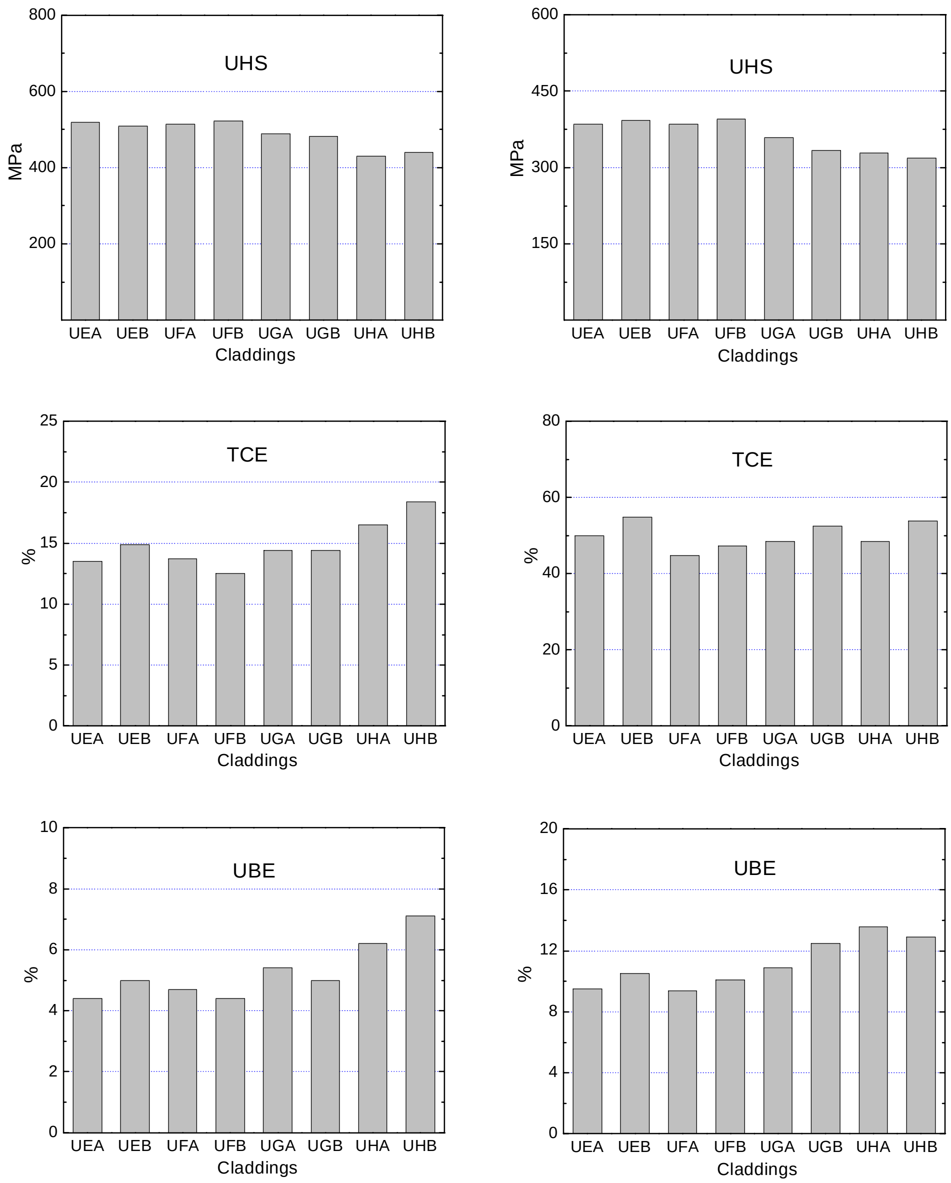
A1 A2 A3

Fig. 2 TEM micrographs of UF cladding tubes which had finally heat - treated at 470°C(A1), 510°C(A2), 570°C(A3)



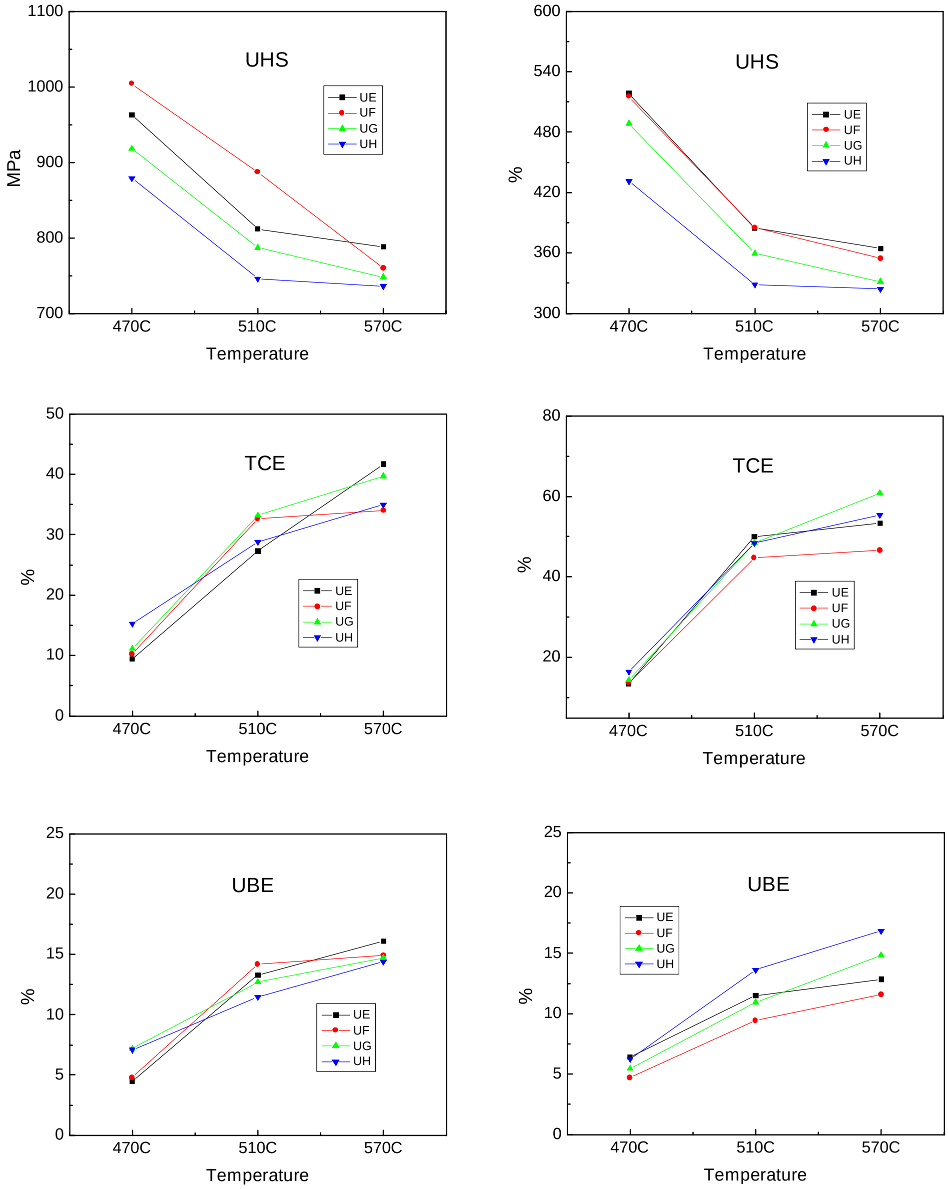

Final heat treatment at 470°C　　　Final heat treatment at 510°C

Fig.3 Effect of intermediate heat treatment on burst properties of the sample cladding tubes at room temperature when they had been finally heat-treated at 470°C(A) and 510°C(B).



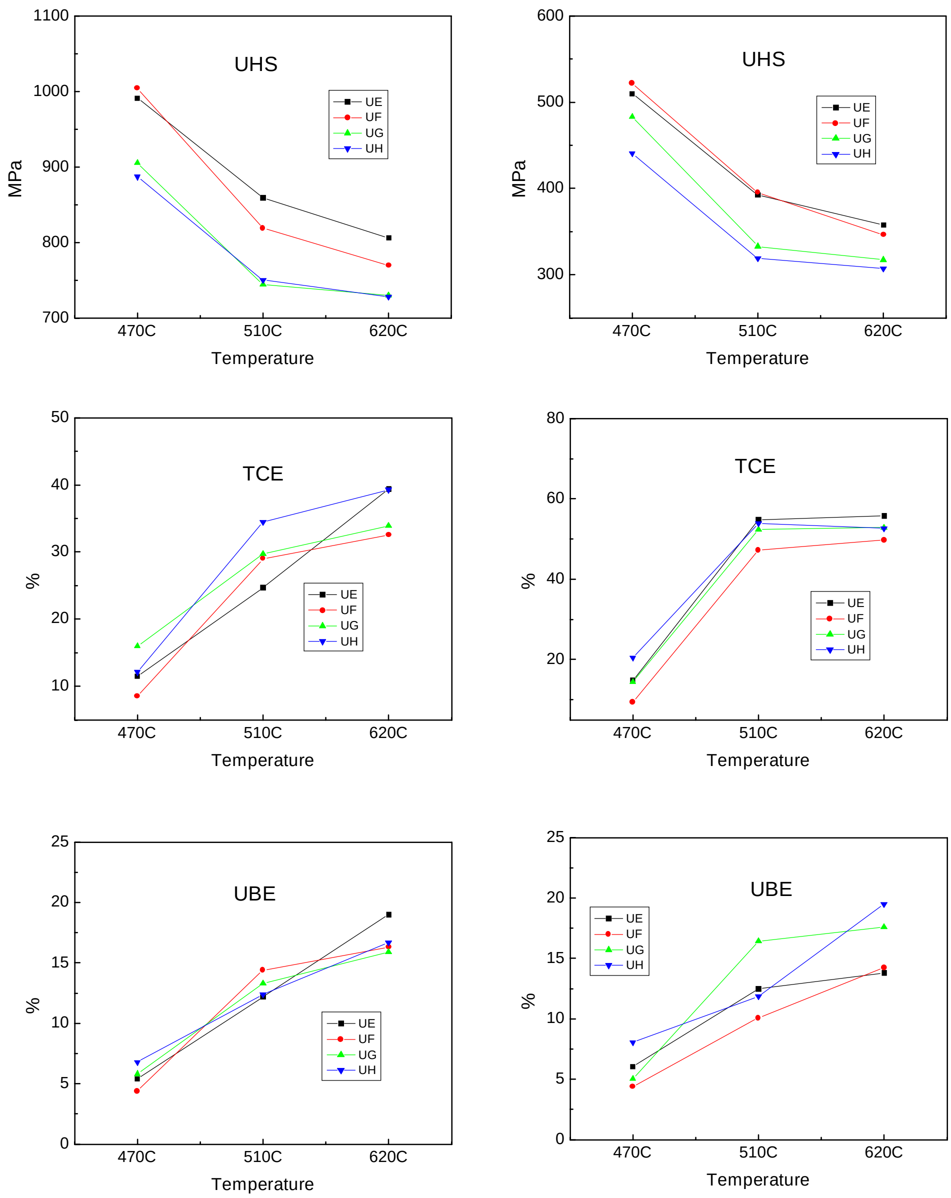

Final heat treatment at 470°C    Final heat treatment at 510°C

Fig.4 Effect of intermediate heat treatment on burst properties of the sample cladding tubes at 400°C when they had been finally heat -treated at 470°C and 510°C.




At room temperature　　　　　　At 400°C

Fig.5 Effect of final treatment on burst properties of the sample cladding tubes from TREX A at room temperature and 400°C




At room temperature

At 400°C

Fig. 6 Effect of final treatment on burst properties of the sample cladding tubes from TREX B at room temperature and 400°C

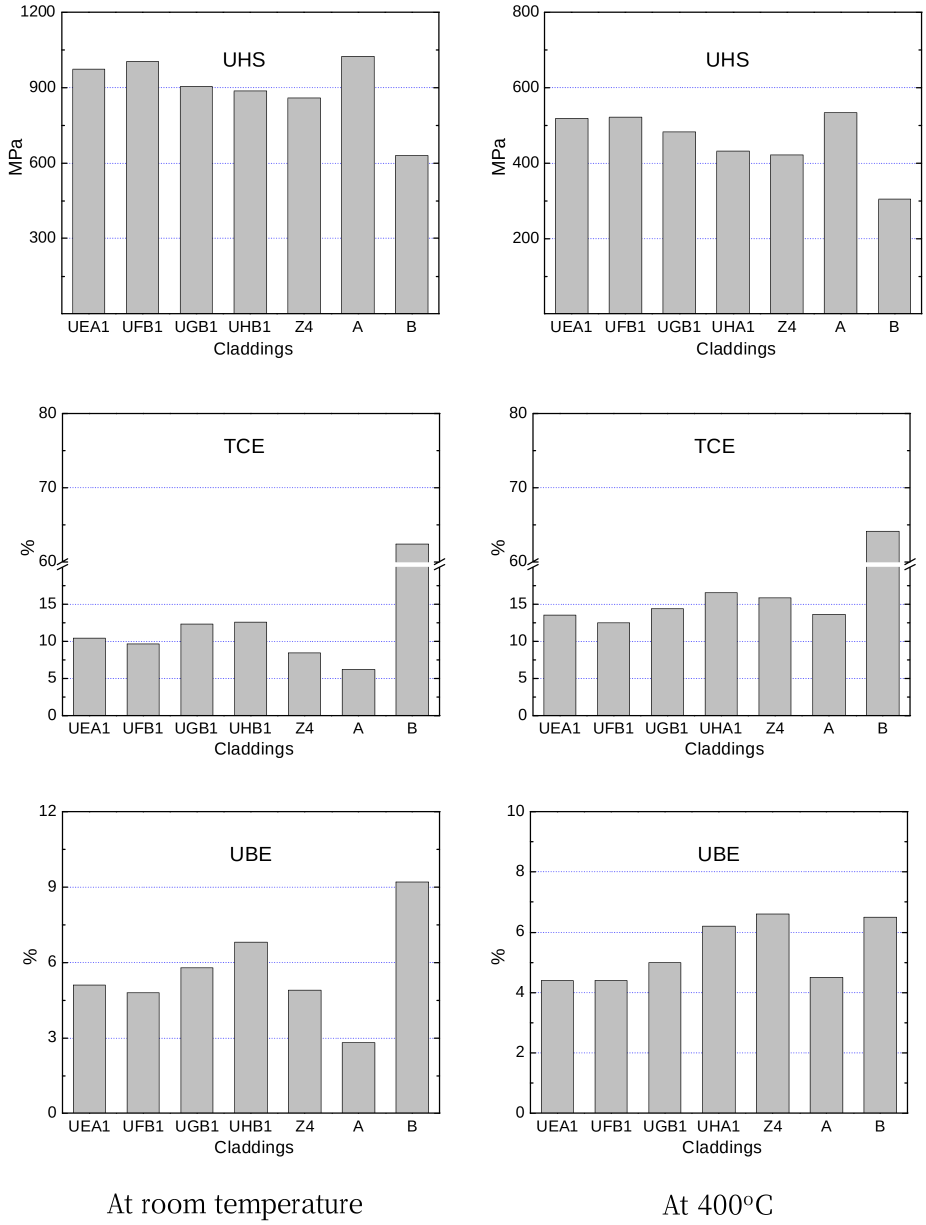



Fig. 7 Burst properties of the various cladding tubes at room temperature and 400°C

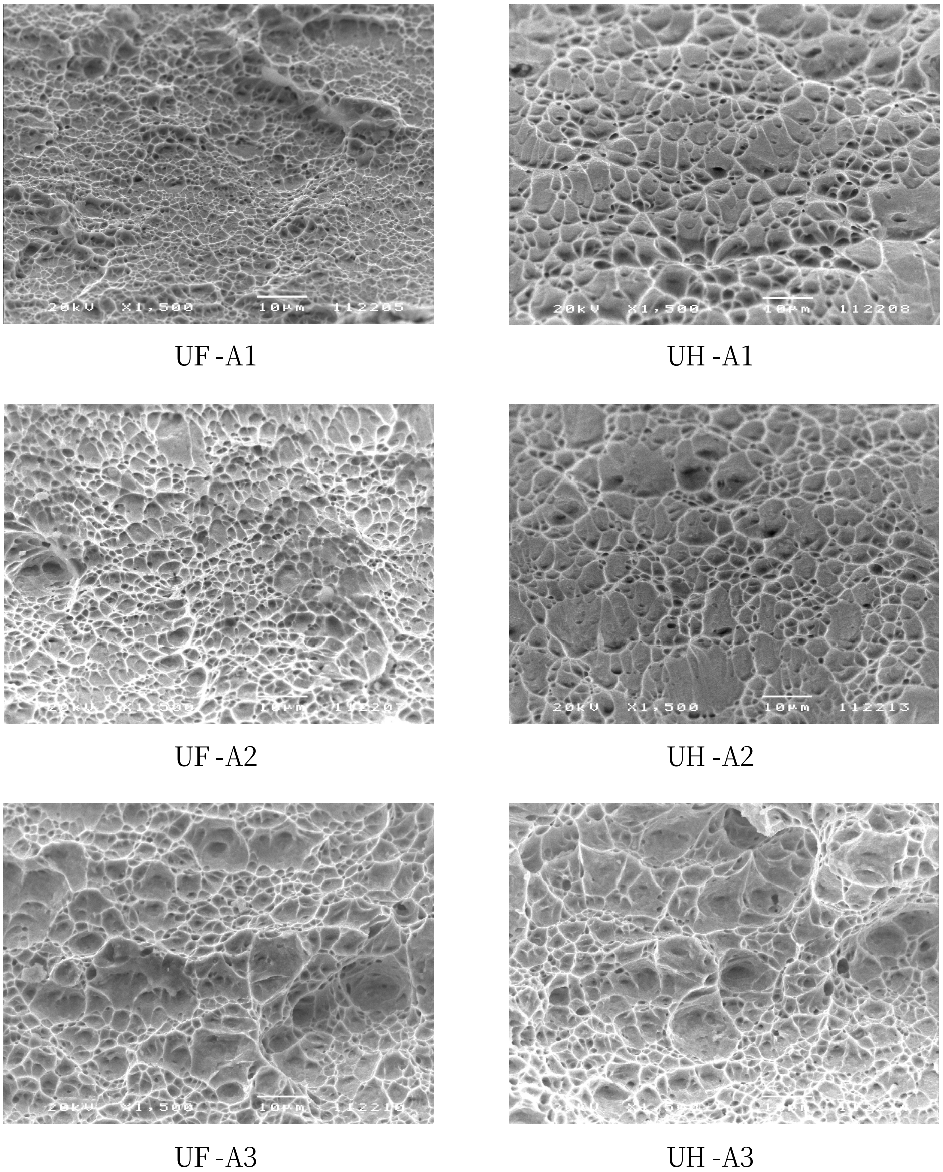



Fig.8 Fractographs of UF and UH claddings from TREX A after burst test at 400°C cladding tubes which had finally heat - treated at 470°C(A1), 510°C(A2), 570°C(A3)