

Zircaloy-4의 크립거동

김영석, 정연호
한국원자력연구소

요 약

최종 pilgering 단계에서의 가공량이 서로 다른 Zircaloy-4 피복관을 대상으로 350-500 °C, 원주응력 80-150 N/mm²의 이축응력 조건에서 크립시험이 수행되었다. Zircaloy-4 피복관의 크립변형률 및 크립변형량은 최종 pilgering 단계에서의 가공량에 비례하여 커졌다. 이를 토대로 크립모델이 제시되었으며 제시된 모델은 Zircaloy-4 피복관의 크립거동을 매우 잘 모사하였다. Zircaloy-4 피복관의 크립활성화 에너지는 α -zirconium에서의 자기확산의 활성화에너지 값과 거의 동일한 60 Kcal/mole 이므로, 크립지배기구는 전위상승이다. 따라서 가공량에 따라 크립변형률 및 크립변형량의 증대는 가공량에 따른 기지상내의 점결함의 증가 때문으로 사료된다.

1. 서론

Zircaloy-4 핵연료봉의 크립은 핵연료봉과 소결체간의 간격을 결정하는 주요 인자이기에 핵연료봉의 열적, 기계적 성능해석 및 안전성 관점에서 볼때 Zircaloy-4의 크립현상의 올바른 이해가 매우 중요하다. 따라서 Zircaloy-4 크립거동에 대한 많은 연구가 수행되어 왔으며, 크립거동에 미치는 주요인자로는 집합도 및 열처리 효과등이 조사된 바 있다. [1,2]. Murty 등은 피복관의 크립이 집합도에 따라 이방성을 보이며, 집합도의 함수로서 피복관의 크립거동을 나타낼 수 있다고 보고한 바 있다[3]. 그러나 Zircaloy-4 피복관의 기계적 성질을 결정하는 것은 pilgering 최종단계에서의 가공량(amount of cold working) 이므로 이에 따라 Zircaloy-4 피복관의 크립성질도 크게 달라질 것으로 예상되지만, 이에 대한 연구가 아주 미흡한 단계이다.

따라서 본 연구의 목적은 pilgering 최종단계에서의 가공량에 따른 Zircaloy-4 피복관의 크립거동을 조사하는 것이다. 본 연구에 사용된 대상 피복관은 모두 Zircaloy-4 피복관이지만, 피복관 제조공정(tube reduction schedule)이 서로 다르게 제조된 것이다. 400 °C에서의 이축크립시험결과(원주응력/일축응력=2)를 토대로 Zircaloy-4 피복관의 열적크립모델이 제시되었으며, 크립모델의 검증은 500 °C에서 원주응력/일축응력의 비가 0, 0.5, 1.0 및 2.0으로 변화될 때 측정된 크립시험결과를 이용하여 수행되었다.

2. 실험방법

2.1 Zircaloy-4 피복관

최종 pilgering 단계에서의 가공량(이후에는 단순히 가공량으로만 부름)에 따른 크립 거동을 보다 뚜렷이 조사하기 위하여, 표1에 나타난 바와 같이 가공량이 각각 다른 A, B, C 및 D로 정의된 4종류의 Zircaloy-4 피복관이 사용되었다. 피복관 A, B, C 및 D의 가공량은 면적감소량(reduction of area)으로 81.7, 80.3, 74.7 및 64.3 %로 변화되었다. 여기서 주목해야 할 것은 피복관 B, C 및 D로 이들 세 피복관은 최종 pilgering 단계에서의 가공량을 제외하고는 최종 열처리방법도 부분재결정화열처리로 거의 같고 상온 인장 특성도 거의 동일하다. 한편 피복관 A는 최종 pilgering 단계에서의 가공량이 제일 클뿐만 아니라 stress-relieving 열처리 때문에 부분재결정 열처리의 나머지 피복관에 비하여 상온 항복강도 및 인장강도가 20-25 % 더 높다.

2.2 크립시험

이축응력크립시험은 20 cm 길이의 피복관을 Ar 개스로 가압한 상태에서 350 및 400 °C에서 수행되었다. 이때 피복관의 길이에 따른 온도변화는 ± 1 °C로 조절되었다. 500 °C에서의 크립시험은 원주응력/일축응력의 비를 0, 0.5, 1.0 및 2.0으로 변화시켜가면서 ATS(Applied Test System) lever arm machine (Model 2330/20:1의 lever arm 비)을 이용하여 수행되었다. 크립에 따른 피복관의 외경의 변화는 laser micrometer로 측정되었다. 이 시스템의 정확도는 0.000038 cm 이었다. 크립시험시 원주응력은 80 ~ 150 N/mm²로 변화되었다.

3.결과 및 토의

3.1 Zircaloy-4 피복관의 크립거동

그림 1은 400 °C, 원주응력 80 및 150 N/mm²의 조건에서는 시간에 따른 피복관의 직경변화를 나타내며, 그림 2는 350°C, 150 N/mm² 조건에서의 크립거동을 나타낸다. 여기서 크립변형은 midwall에서의 직경변화를 나타낸다. 100 및 120 N/mm²의 원주응력조건에서도 크립시험이 수행되었으며, 그림 1과 2에 나타난 것과 같은 경향을 나타냈다. 즉, 피복관의 전크립변형량 및 크립변형률은 최종 pilgering 단계에서의 가공량에 비례하여 증가하여, 가공량이 제일 적은 피복관 D가 가장 낮은 크립변형률 및 크립변형량을 나타냈으며, 가공량이 가장 많았던 피복관 A가 가장 약한 크립강도를 나타냈다. 특히 여기서 주목해야 할만한 사실은 그 이전 단계에서의 가공 공정은 서로 다르지만 최종 pilgering 단계에서의 가공량이 거의 비슷한 피복관 A와 B는, 최종열처리가 stress-relieving 과 부분재결정화 열처리로 각각 달라도, 거의 동일한 크립변형률을 보인다는 것이다. 그러나 피복관 B와 C는 3차까지의 pilgering 공정은 동일하며 단지 최종pilgering 단계에의 가공량이 서로 다른 피복관으로, 가공량이 큰 피복관 B에서 크립변형률 및 전크립변형량이 크게 나타나는 것은 최종 단계에서의 가공량이 Zircaloy-4의 열적크립을 결정한다는 결정적인 증거자료이다. 또한 집합도에 관점에서 볼 때 피복관 B와 D는 거의 동일하지

만, 크립변형량 및 크립변형률은 크게 다르다. 결론적으로 집합도가 Zircaloy-4 피복관의 열적크립에 미치는 영향은 무시할 만하다.

3.2 Zircaloy-4 피복관의 크립모델링

크립실험조건이 $\sigma_{eff} > 10^{-3} E$ 조건을 만족하므로 Dorn [3] 이 제시한 모델을 토대로하여 피복관 B의 크립변형률을 모사하도록 아래와 같은 일차크립변형률을 경험적으로 구하였다 :

$$\dot{\epsilon} = 1.72 \times 10^{-16} \exp(-30084/T(K)) \exp(3300 \sigma_{eff} / E) \quad (1).$$

여기서 E는 탄성계수이다. 그림 1, 2에 나타낸 바와 같이 2차 크립변형률은 최종 pilgring 단계에서의 가공량에 비례하므로 식 (1)을 전피복관의 크립변형률을 모사할 수 있도록 가공량 인자, f(RA)를 첨가시켜 일반화된 크립변형률을 아래와 같이 구하였다.

$$\dot{\epsilon} = RA / (1 - RA^2) \cdot 1.72 \times 10^{-16} \exp(-30084/T(K)) \exp(3300 \sigma_{eff} / E) \quad (2).$$

여기서 RA는 최종 pilgring 단계에서의 가공량 즉 면적감소량을 나타낸다. 식 (2)에 나타낸 Zircaloy-4 피복관의 크립변형률이 실측치를 얼마나 잘 모사하는가를 조사하기 위하여 측정치와 식 (2)을 이용한 변형률 예측치를 비교하였다. 그림 3에 나타낸 바와 같이 식 3의 크립방정식은 모든 Zircaloy-4 피복관의 크립거동을 잘 모사하였다.

Zircaloy-4 피복관의 크립변형률 뿐만아니라 전 크립변형량을 예측 가능하도록 하기위해서 피복관의 일차크립은 시간의 평방근과 크립변형률의 합이 지수함수적으로 감소된다고 가정하였다. :

$$\epsilon_p = \epsilon_p^0 (1 - \exp(-34.13 \epsilon \cdot \sqrt{t})) \quad (3).$$

여기서 ϵ_p^0 은 일차 크립상수로서 등가응력 및 최종 pilgring 단계에서의 가공량에 비례한다. :

$$\epsilon_p^0 = c \sigma_{eff} RA \quad \text{여기서 } c = \text{상수} = 6.072 \times 10^{-3},$$

$$\sigma_{eff} = 1/\sqrt{2} [(\sigma_t - \sigma_r)^2 + (\sigma_r - \sigma_\theta)^2 + (\sigma_\theta - \sigma_r)^2]^{1/2}.$$

따라서 Zircaloy-4 피복관의 전크립량은 일차크립, 식 (3)과 크립변형률, 식(2)를 이용하여 나타낼 수 있다 :

$$\epsilon_t = 6.027 \times 10^{-3} \sigma_{eff} RA (1 - \exp(-34/13 \dot{\epsilon} \sqrt{t})) + \dot{\epsilon} t. \quad (4).$$

여기서 ϵ_t 는 전 크립변형량이며, $\dot{\epsilon}$ 는 크립변형률이다.

식 (4)에 나타낸 Zircaloy-4 피복관의 크립모델이 실제 피복관의 크립변형량을 얼마나 잘 모사하는가를 조사하기 위해서 350, 400 °C 그리고 80, 100, 120, 150 N/mm² 의 응력조건에서 4 종류의 피복관의 크립변형량의 실측치와 식 (4)의 크립모델에 의한 계산치 비교가 수행되었다. (그림 4). 크립모델은 모든 피복관의 크립변형량을 완벽할 정도로 잘 모사하였다.

3.3 Zircaloy-4 크립제어기구

본 연구에서 제시한 Zircaloy-4 크립모델 (식 4)에 따르면 Zircaloy-4 크립활성화 에너지는 60 Kcal/mole이며, 이 값은 Murty [4] 나 Lyashenko [5] 등이 각각 보고한 크립

활성화 에너지 60.2 Kcal/mole, 62.2 KJ/mole와 잘 일치한다. 한편 α -zirconium에서의 자기확산의 활성화에너지 값이 69 Kcal/mole [6]으로 보고되고 있으므로, 지금까지 보고된 값이나 본 연구에서 구한 크립활성화 에너지값은 지르코늄의 자기확산 활성화 에너지값과 거의 일치한다는 것을 보여준다. 이것은 Zircaloy-4 피복관의 크립 지배기구는 지르코늄 확산에 의해 일어난다는 것을 말하고 있다. 결론적으로 Zircaloy-4 피복관의 크립은 지르코늄 확산에 의한 전위상승 속도에 의해 지배된다. 이러한 피복관의 크립이 전위상승에 의해 지배된다는 것은 Holmes등도 이미 제시한 바 있었으나, 이들은 구체적인 실험적인 증거는 활성화 에너지 값의 비교 이외에는 보여주지 못하였다. 크립이 전위상승 속도에 의해 지배되므로, 지르코늄 기지상내에 존재하는 점결함 농도가 크면 전위상승 속도는 비례하여 커진다. 따라서 최종 pilgering 단계에서의 가공량이 커지면 기지상내에 존재하는 점결함 농도는 비례하여 커지므로, 그림 1과 2에 나타난 바와 같이 가공량에 따라 크립변형량 및 크립변형률이 커지는 실험 결과는 Zircaloy-4의 크립이 전위상승에 의해 지배된다는 것을 확증적으로 보여주는 것이다.

3.4 크립모델의 검증

본 논문에서 제시한 크립모델은 모든 Zircaloy-4 피복관의 크립을 예측 가능한 만능 모델 (generalized creep model)이다. 이 모델의 특징은 크립변형률이 Murty 등이 [7] 주장한 바와 같이 응력의 n 승에 비례하는 power law 크립이 아니라 등가응력의 지수함수적으로 증가한다는 것이다. 따라서 Zircaloy-4 피복관의 크립이 power law 크립을 따르는지 아니면 본 논문에서 제시한 크립모델을 따를 것인지를 검증하기 위하여 500 °C, 여러 가지 응력조건에서 응력에 따른 크립변형률을 조사하였다(그림 5, 6). Power law 크립을 따른다면, 그림5에 나타난바와 같이 응력에 따른 크립변형률을 log-log로 표시할 경우 일정한 크기의 기울기를 보여야하지만, 기울기 n 값이 응력의 크기 및 다축 응력 상태에 따라 일정하지 않다. 이에 반하여 크립변형률의 대수를 등가응력은 일차함수로 표시할 경우 피복관의 종류 및 다축응력상태에 무관하게 직선적인 관계를 보였다. 결론적으로 power law 크립모델보다는 등가응력의 지수함수적으로 크립변형이 일어나는 모델 (식 4)이 타당하다.

4. 결론

최종 pilgering 단계에서의 가공량이 서로 다른 Zircaloy-4를 대상으로 크립시험을 수행한 결과 Zircaloy-4 피복관의 크립변형률·변형량은 가공량에 비례하여 커졌다. 이러한 결과를 토대로 아래와 같이 제안하였으며, 이 모델은 Zircaloy-4 피복관의 크립 특성을 잘 묘사하였다.

$$\begin{aligned} \epsilon_t &= 6.072 \times 10^{-3} \sigma_{eff} RA(1 - \exp(-34.13 \epsilon \sqrt{t})) + \dot{\epsilon} t \\ \dot{\epsilon} &= RA/(1 - RA^2) 1.72 \times 10^{16} \exp(-30084/T/(K)) \exp(3300 \sigma_{eff}/E). \end{aligned}$$

Zircaloy-4 피복관의 크립활성화 에너지는 α -zirconium에서의 자기확산의 활성화 에너지 값과 거의 동일한 60 Kcal/mole 이므로, 크립지배기구는 전위상승이다. 따라서

가공량에 따라 크립변형률 및 크립변형량이 커지는 것은 가지상내의 점결함의 농도가 가공량에 비례하여 커지기 때문이다.

5. 참고문헌

[1] K. Kallstrom, T. Anderssson and A. Hofvenstam, ASTM STP 551 (1974)p160
 [2] V. Fidleris, Atomic Energy Rev., 13 (1975) p51
 [3] K. L. Murty, B. V. Tanikella and J. C. Earthman, Acta Metall. Mater. 42 (1994) p3653
 [4] K. L. Murty, G. S. Clevinger and T. P. Papazoglou, Trans. of the 4th Int'l. Conf. on Structural Mechanics in Reactor Technology, C3/4, San Francisco, CA (1977)
 [5] V. S. Lyashenko, V. N. Bykor and L. V. Pavlinov, Phys. Metals Metallography, vol. 8 (1960)
 [6] G. M. Hood, AECL Memo to Y. S. Kim, RMR-95-378 (1995)

Table 1. Characterization of the Zircaloy-4 Cladding Tubes.

Item	Tube A	Tube B	Tube C	Tube D
1. Dimension (O.D x W) (mm)	9.5 x 0.58	9.5 x 0.64	10.75 x 0.73	9.5 x 0.64
2. Reduction of Area at the Final Pass(%)	81.7	80.3	74.7	64.3
3. Heat Treatment	SR*	PR**	PR	PR
4. Degree of Recrystallization(%)	-	13-24	13-24	10-24
5. Texture Parameter(Tr)	-	0.52	0.56	0.52
6. Yield Strength at RT (N/mm ²)	652	507	493-517	>471
7. Tensile Strength at RT (N/mm ²)	849	709	681-705	>684
8. Elongation(%)	-	19-20	21.5-23.5	22

* : Stress Relieved,

** : Partially Recrystallized

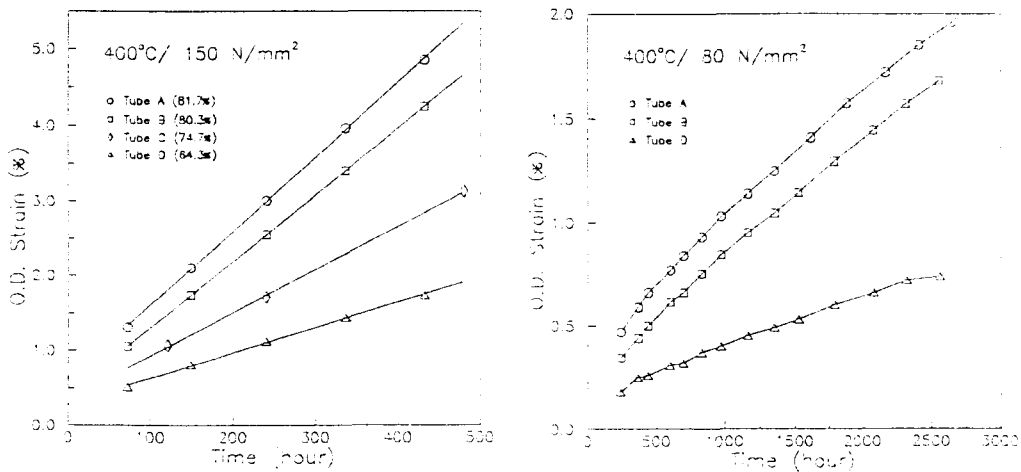


Fig. 1 Creep Strains of Zircaloy-4 Tubes with Time under 80 and 150 N/mm² of Hoop Stress at 400 °C

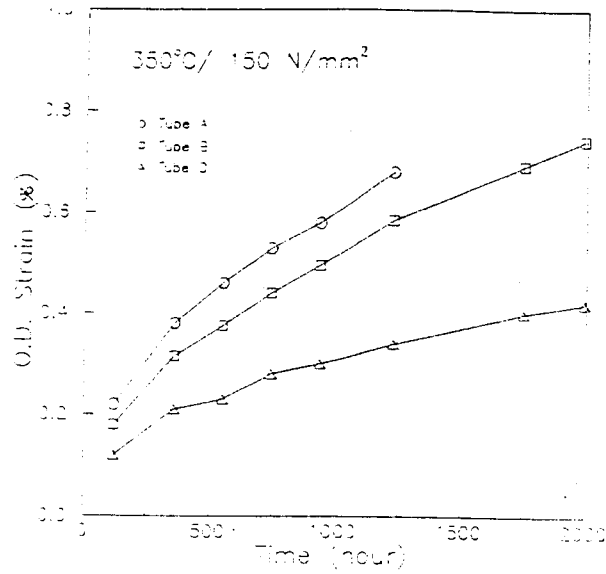


Fig. 2 Creep Strains of Zircaloy-4 Tubes under Hoop stress of 150 N/mm² at 350 °C

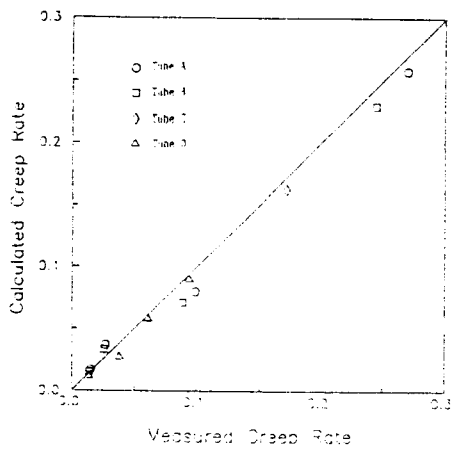


Fig. 3 Comparison of the Measured Creep Rate and the Predicted Creep Rate by the Generalized Creep Model

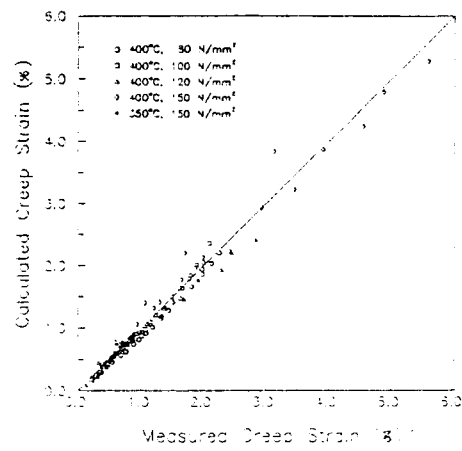


Fig. 4 Comparison of the Measured Creep Strains and the Calculated Ones by the Generalized Creep Model

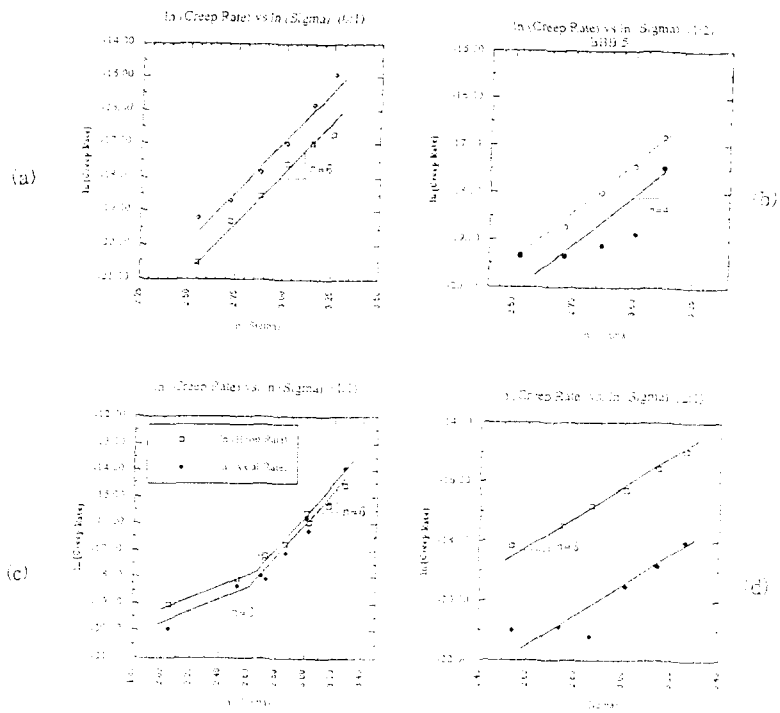


Fig. 5 Log-Log Plot of the Hoop Creep Rate and Axial Creep Rate for Tube D (designated BBB)

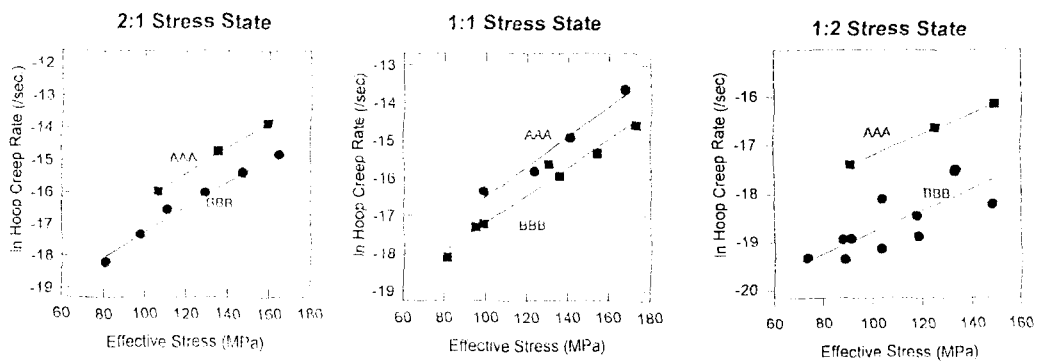


Fig. 6 Semi-Log Plot of the Hoop Creep Rate versus Equivalent Stress for Tubes B and D (designated AAA and BBB, respectively)