

Zr 피복관의 ISCC 특성에 미치는 미세조직 및 첨가원소의 영향

박상윤[†] · 최병권 · 이명호 · 김준환 · 정용환
지르코늄피복관개발팀, 한국원자력연구소

Effect of Microstructure and Alloying Element on the ISCC Characteristics of Zr Cladding

Sang Yoon Park[†], Byoung Kwon Choi, Myung Ho Lee,
Jun Hwan Kim and Yong Hwan Jeong
Zirconium Cladding Development Team, Korea Atomic Energy
Research Institute, Daejeon 305-600, Korea

Abstract Iodine-Induced Stress Corrosion Cracking (ISCC) properties of Zircaloy-4 and HANA4 developed in KAERI for the high burn-up nuclear fuel cladding were evaluated. To confirm the effect of final heat treatment on ISCC resistance of Zr-alloy, stress relieved and recrystallized specimens were prepared and tested. With the pre-cracked specimen at internal surface, ISCC crack propagation rates and threshold stress intensity factor (K_{ISCC}) based on the fracture mechanics were measured by internal pressurization test at 350°C in iodine environment. K_{ISCC} of Zircaloy-4 and HANA4 cladding were 3.3 MPa · m^{1/2} and 4.4 MPa · m^{1/2}, respectively. Pitting corrosion at the crack surface was observed and it seemed that TG crack propagation was derived from the pitting.

(Received 18 April 2005; accepted 17 May 2005)

Key words: Zr-cladding, HANA4 alloy, ISCC, K_{ISCC} , Crack propagation rate

1. 서 론

1970년대 이후로 경수로 핵연료 피복관의 파손은 주로 소결체/피복관 상호작용(Pellet Cladding Interaction, 이하 PCD)에 기인한 것으로 보고되고 있다^[1-3]. PCI는 소결체와 피복관의 화학적 반응과 기계적 접촉이 동시에 일어날 때 발생하는 것으로서 핵연료에서 핵분열 도중 생성되는 기체가 피복관 부식을 유발하는 응력부식균열(Stress Corrosion Cracking, 이하 SCC)에 의한 파손으로 발전할수 있다. SCC를 유발하는 화학반응 인자로는 주로 연료의 핵분열과정에서 생성되는 기체상 요오드로 알려져 있다. 따라서 부하 추종운전과 같이 운전 중 출력이 수시로 증감하는 과도상태가 유발되면 출력에 따라 핵분열 생성 기체의 양이 변하여 특히 발생 가능성이 높아진다. 또한 원자력 발전소는 경제성을 향상시키기 위하여 핵연료의 연소주기를 높인 고연소도 운전을 채택하고 있다. 고연소도 조건이 되면 냉각재의 외압에 의해

피복관의 직경이 감소하고 봉 내압의 증가로 소결체의 직경이 증가하게 되어 연료와 피복관이 서로 접촉하게 되고, 또한 핵분열 및 방사화 분해에 의한 요오드의 농도도 지속적으로 증가되기 때문에 요오드 응력부식 균열(Iodine-induced Stress Corrosion Cracking, 이하 ISCC) 발생 가능성 또한 증가한다^[1-7].

최근 고연소도용 핵연료 피복관에 대한 관심이 집중되면서, PWR용 ISCC특성에 대한 실험이 많이 이루어 지고 있다^[8]. Lemaignan^[9], Schuster^[10] 등은 응력 이완된(Stress Relieved, SR) 상용 Zircaloy - 4 피복관에 대한 ISCC 특성실험을 주로 수행하였으며, 상용 Zircaloy-4 피복관에 대한 K_{ISCC} 값을 구하였다. 고연소도용 피복관의 경우 부식 및 크립 등의 특성을 크게 개선시키기 위하여 다양한 제조공정이 개발되고 있는데, 지르코늄합금은 최종열처리에 따라 합금의 미세조직 및 기계적 성질이 다양하게 변하게 된다. 그러므로 피복관의 최종열처리 및 미세조직에 따른 ISCC 특성 연구가 필요하다.

[†]E-mail : nsypark@kaeri.re.kr

본 연구에서는 국내에서 개발된 고연소도 신형 피복관 및 상용 피복관의 미세조직에 따른 PCI특성에 미치는 영향을 평가하기 위하여 상용피복관 및 Nb가 첨가된 신형 피복관에 대한 ISCC특성실험과 각각을 열처리하여 SR 및 RX 조식을 갖는 시편을 제조하여 ISCC특성을 연구하였다. 열처리된 피복관 시편 내부 표면에 초기 피로균열을 발생시키고, 이 시편을 사용하여 고온고압 iodine 분위기에서 가압시험을 수행하여 응력집중계수에 따른 균열 전파속도 및 K_{ISCC} 값을 측정하여 피복관 종류에 따른 ISCC 저항성을 평가하였고 열처리에 따른 ISCC특성을 관찰하였으며, 파단면을 정밀 관찰하여 균열 전파기구를 밝히고자 하였다.

2. 실험 장치 및 방법

2.1 시편 제조 및 초기 피로균열 제조

시험에 사용된 피복관은 한국원자력연구소에서 개발한 신형 피복관인 Zr-1.5Nb-0.4Sn-0.2Fe-0.1Cr 피

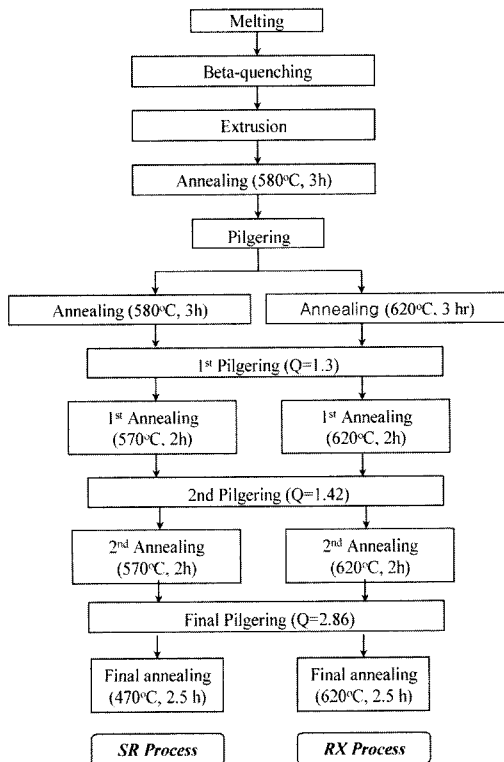


Fig. 1. Manufacturing process of the HANA4 cladding.

Table 1. Nominal chemical compositions of the test alloys (wt%)

| Alloy | Sn | Nb | Fe | Cr | Zr |
|------------|-----|-----|-----|-----|-----|
| Zircaloy-4 | 1.3 | 0 | 0.2 | 0.1 | bal |
| HANA4 | 0.4 | 1.5 | 0.2 | 0.1 | bal |

복관(HANA4)을 사용하였다. 그리고 상용원자로에서 사용되고 있는 Zircaloy-4 피복관도 비교를 위하여 함께 사용하였다. HANA4 피복관의 경우 미세조직의 영향을 평가하기 위하여 Fig. 1과 같이 낮은 온도의 공정과 높은 온도의 열처리공정을 선택하여 응력이완조직(SR)과 재결정조직(RX)의 시편을 제조하여 사용하였다. 합금 용해에서 TREX 제조까지는 미국의 Wahchang에서 수행하였고, TREX에서부터 최종 피복관까지의 공정은 일본의 ZircoProducts사에서 수행하였다. Sn 및 Nb등의 첨가 원소의 효과를 비교하기 위해 사용된 Zircaloy-4 피복관의 경우, 미세조직의 영향을 평가하기 위하여 SR조직인 as-received 시편과 620°C에서 3시간 열처리한(RX) 시편을 사용하였다. 이와 같이 실험에 사용된 합금의 화학조성을 Table 1에 수록하였다.

핵연료 피복관에 대한 균열전파 시험을 위해서는 먼저 피복관 내부에 예비균열을 발생시켜야 한다. 예비균열을 제조하기 위해 기계적 노치를 만들거나 반복응력에 의한 피로 균열을 이용하기도 한다. Lemaignan^[11]는 피복관 내부에 피로균열을 발생시키기 위한 지그를 고안하였는데, 피복관 외경에 맞는 홈이 파진 지그를 만들어 피복관을 삽입하고 위에 판재를 얹은 다음 인장시험기를 이용하여 압축 반복 응력을 가하여 피로 균열을 제조하였다. 이 방법과 유사하게 유압 피로 시험기에 시편을 고정할 수 있는 특별한 지그를 설치하고, 13 cm 크기의 피복관 시편을 설치한 후 변위 폭 0.12 mm, 진동수 5 Hz 인 sine wave 형태의 주기적 하중을 가하여 피로 균열을 제조 하였다. 반복 압축 하중의 횟수에 따른 예비균열 깊이를 측정하여 5000 주기 동안의 압축하중으로 피복관 두께의 25~50% 깊이의 예비균열을 제조하였다. 이렇게 제조된 초기 피로균열이 생긴 피복관을 가지고 ISCC 시험장치에 설치하여 균열 전파속도를 측정하였다. Fig. 2는 시험에 사용된 fatigue 예비균열 및 시편의 개략도이다.

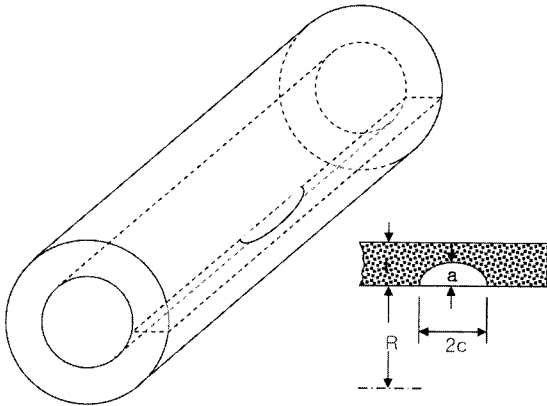


Fig. 2. Schematic diagram of the fatigued pre-crack.

2.2 ISCC 시험장치

핵연료 피복관의 ISCC 특성 실험은 내부압력시험에 의해 수행되었으며, 이를 위해 최대 90 MPa 및 600°C인 압력과 온도에서 다양한 압력으로 실험할 수 있도록 설계/제작된 장치를 사용하였다. 실험 중 고온에서 피복관이 산화 되는 것을 방지하기 위하여 시험 내부는 진공을 처리한 후 고순도 He 가스로 조절, 가압하여 내부 압력을 변화시켰고, 시험 외부의 autoclave는 Ar 가스로 충전하여 시험 표면의 산화를 방지하였다. 또한 실험온도, 압력 및 파괴시간 등 모든 실험 변수에 대한 정보는 on-line으로 PC에서 수집할 수 있도록 하였다.

2.3 균열전파속도 측정

내경 8.36 mm, 두께 0.57 mm인 신행 피복관 및 상용 Zircaloy-4 피복관을 13 cm의 크기로 잘라서 초기 피로 균열을 발생시킨 후 내부에 일정농도의 iodine을 장입하고 ISCC 측정장비에 설치한 후 350°C까지 가온하고 일정한 압력을 가하여 균열이 전파하도록 하였다. Aldrich사 제품 고순도 iodine (99.99%)을 사용하였고, 10⁻³ g/cm²의 양을 정량하여 시험내부에 장입한 후 실험하였다. 100시간 동안 고온고압에서 유지시킨 후 파괴되지 않은 시험편은 실험을 종료하였다. 실험이 종료된 시험편은 절취하여 균열 단면을 광학현미경(OM) 및 전자 현미경(SEM)을 통하여 관찰하였다. 전자현미경 사진을 통하여 초기 피로 및 ISCC 균열의 깊이를 측정하여 ISCC에 의한 균열 전파속도를 측정하였다.

3. 균열전파에 대한 이론적 고찰

3.1 응력집중 계수(Stress Intensity Factor)

피복관의 ISCC에 의한 파손 저항성을 평가하기 위해서는 응력집중인자의 변화에 따른 균열의 전파속도를 측정하여 균열 전파에 대한 문턱 값 즉 K_{ISCC} 를 구하여야 한다. 초기 균열이 내재된 두께가 얇은 피복관의 경우 시험압력을 다음 조건으로 유지할 때 평면 변형(Plane Strain) 조건이 도달하는 것으로 알려져 있다^[12].

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

여기서 σ_y 는 피복관의 인장강도, t 는 피복관 두께이다. 실험에 사용된 핵연료 피복관은 두께 570 μm , $\sigma_y = 330 \text{ MPa}$ 로써 이 경우 K_I 는 10.8 $\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 이하가 유지되어야 한다. Kobayashi^[13] 등은 두께가 얇은 관에 대한 K_I 에 대한 이론적 계산을 다음과 같이 구하였다.

$$K_I = \alpha(a, 2c) \cdot \sigma \sqrt{\pi a} \quad (2)$$

여기서 a 는 균열 최대 깊이, α 는 균열 형상계수 그리고 σ 는 hoop stress이다. Anderson^[14] 등은 균열 형상계수를 보정하여 K_I 에 대한 이론식을 다음과 같이 발전시켰다.

$$K_I = \frac{pR}{t} \sqrt{\frac{\pi a}{Q}} F\left(\frac{a}{2c}, \frac{a}{t}, \frac{R}{t}\right) \quad (3)$$

여기서 p = internal pressure on the tube

R = mean 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

(3)식에서 F 는 boundary correction factor로서 피복관의 내부에 형성된 초기 균열의 형태에 따라서 결정되며, $5 \leq R/t \leq 20$, $2c/a \leq 12$, $a/t \leq 0.80$ 인 조건에서 가장 깊은 균열 선단에서 보정계수는 다음

과 같이 나타낼 수 있다.

$$F = 1.12 + 0.053\xi + 0.0055\xi^2 + (1 + 0.02\xi + 0.0191\xi^2) \frac{\left(20 - \frac{R}{t}\right)^2}{1400} \quad (4)$$

여기서 $\xi = (a/t)(a/2c)$ 이다. 본 실험에서 사용한 피복관은 $R/t = 7.37$ 이므로 초기 균열의 크기를 적절히 조절하면 위의 식들을 활용할 수 있다. 본 논문에서는 plane strain 조건을 만족하는 (1)식의 범위에서 실험 하였고 균열 보정계수 및 K_I 값은 (3) 및 (4)식을 이용하여 계산하였다.

3.2 ISCC에 의한 균열 전파 속도

Zr 피복관의 ISCC에 의한 균열 전파속도는 K_I 및 $K_{I,ISCC}$ 의 함수로 표시되며, Boulich^[8] 등은 다음과 같은 모델식으로 표시하였다.

$$\frac{da}{dt} = C(1 + D(K_I - K_{I,ISCC})) \quad (5)$$

여기서 $K_{I,ISCC}$ 는 문턱 응력집중계수로써 균열전파는 $K_I > K_{I,ISCC}$ 인 조건에서 이루어 지므로 $K_{I,ISCC}$ 값이 클수록, 모델 상수인 C 및 D값이 작을수록 ISCC에 대한 저항성이 큰 재료임을 알 수 있다.

4. 실험 결과 및 고찰

4.1 ISCC에 미치는 열처리의 영향

Fig. 3은 예비균열이 형성된 시편을 내부압력시험에 의해 ISCC시험을 수행한 후 파단면을 광학현미경 및 전자현미경 (SEM)을 이용하여 촬영한 사진이다. 이들 사진에 (i) 피로균열에 의한 예비균열, (ii) 본 실험에 의하여 형성된 ISCC crack 및 (iii) 시험 후 시편을 쪼개어 형성된 ductile fracture 등에 의한 파단면을 분명히 구분할 수 있으며 이 사진으로부터 초기 균열의 boundary correction factor를 구하기 위한 균열 깊이, a 및 크기, 2c 등의 값을 측정할 수 있었다. 이들 균열에 대한 정보를 (3) 및 (4)식에 대입하여 각 조건에 대한 K_I 값을 구하였다. 또한 I_2 가 존재하는 350°C의 고압 분위기가 유지되는 동안 ISCC균열이 진행된 두께(ii 영역의 두께)를

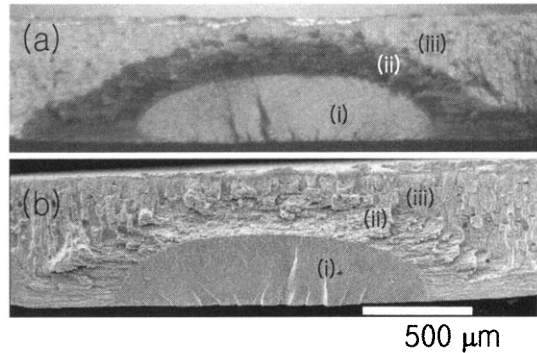


Fig. 3. Cross-section of fracture surface showing (i) fatigued pre-crack, (ii) I-SCC crack and (iii) ductile fracture; (a) optical image and (b) SEM image.

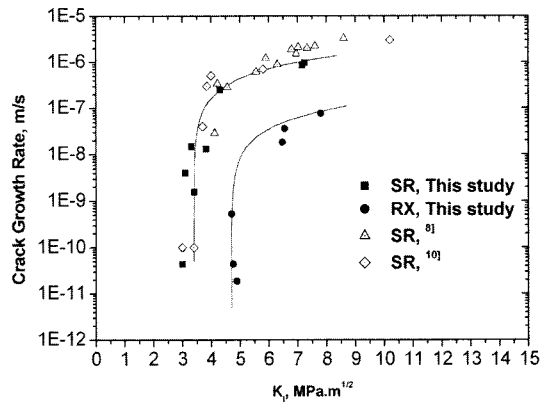


Fig. 4. Crack propagation rate versus stress intensity factor for SR and RX Zircaloy-4 claddings. The solid lines represent the Eq. (5) for two sets of data points (Results of the other studies are given for comparison).

측정하여 ISCC균열 전파속도를 구하였다.

Fig. 4는 상용 가압경수로에서 사용되어왔던 Zircaloy-4피복관의 응력 이완조직 (SR)을 갖는 시편 (as-received) 과 620°C에서 3시간 동안 열처리하여 재결정 조직(RX)을 갖는 시편에 대해 균열전파속도를 나타낸 그래프이다. 이 그래프로부터 SR 조직을 갖는 Zircaloy-4 피복관에 대한 $K_{I,ISCC}$ 값은 3.3 MPa $m^{1/2}$ 이고 RX의 경우는 4.8 MPa $\cdot m^{1/2}$ 로서, RX 시편이 ISCC 균열 전파에 대한 저항성이 큰 것으로 나타났다. 뿐만 아니라 K_I 값이 큰 영역 즉 region II에서 균열 전파속도도 RX 시편이 1/10 정도 적은 것으로 나타났다. 이상의 시험 결과는 Brunisholt^[15] 및 Schuster^[11] 등의 연구 결과와 유사한 결과로서, SR 시편에 비해 RX 시편의 연성이 증가하여 ISCC에

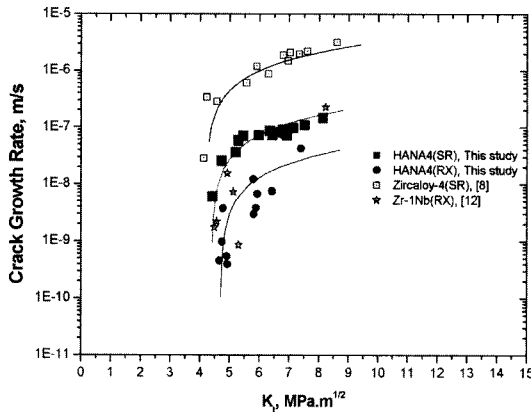


Fig. 5. Crack propagation rate versus stress intensity factor for HANA4 claddings. The solid lines represent the Eq. (5) for two sets of data points (results on the Zircaloy-4^[8] and Zr-1Nb^[12] claddings are given for comparison).

의한 균열전파를 지연시키기 때문인 것으로 판단된다.

4.2 ISCC에 미치는 합금원소의 영향

Fig. 5는 KAERI에서 개발한 신형 피복관의 SR 및 RX 시편을 가지고 내부압력시험을 수행하여 얻은 균열전파속도를 나타낸 그래프이다. Zircaloy-4 피복관과는 달리 신형 피복관의 경우 SR 조직을 갖는 시편과 RX 조직을 갖는 시편의 K_{ISCC} 값이 큰 차이가 없었으며 각각 4.4와 4.8 $MPa \cdot m^{1/2}$ 였다. 유사한 SR 조직을 갖는 시편일지라도 신형 피복관은 K_{ISCC} 값이 4.4 $MPa \cdot m^{1/2}$ 로서, 3.3 $MPa \cdot m^{1/2}$ 인 Zircaloy-4에 비해서 ISCC에 대한 저항성이 큰 것을 알 수 있다. 그러나 RX 조직의 경우는 신형 피복관이나 Zircaloy-4 피복관의 K_{ISCC} 값이 4.8 $MPa \cdot m^{1/2}$ 로써 서로 동일한 값을 나타내었다. (5) 식을 이용하여 D 값을 계산한 결과 RX 조직을 갖는 신형 피복관과 Zircaloy-4의 경우 각각 90 및 150으로써, K_{ISCC} 값이 동일하더라도 신형 피복관의 ISCC에 대한 저항성이 큰 것으로 나타났다. Table 2는 Zircaloy-4, Zr-1Nb 및 신형 피복관에 대한 임계 응력집중계수 값을 수록한 도표이다. Zircaloy-4에 비하여 Nb 첨가 합금의 임계 응력집중계수 값이 증가하여 ISCC에 대한 저항성이 증가하는 것으로 관찰되었다. Table 1에 수록된 것과 같이 Zircaloy-4는 Nb가 첨가되지 않은 합금인 반면 HANA4는 Sn 첨가량을 0.4 wt%로 줄이고 Nb의 함량을 1.5

Table 2. Threshold stress intensity factor for various Zr-claddings at 350°C

| Alloy | Micro-structure | K_{ISCC} | Reference |
|------------|-----------------|------------|-----------|
| Zircaloy-4 | SR | 3.4 | 9 |
| Zircaloy-4 | SR | 3.2 | 10 |
| Zircaloy-4 | SR | 3.3 | This Work |
| Zircaloy-4 | RX | 4.8 | This Work |
| Zr-1Nb | RX | 4.8 | 12 |
| HANA4 | SR | 4.4 | This Work |
| HANA4 | RX | 4.8 | This Work |

wt%로 증가시킨 합금이다. 즉 Sn 첨가합금은 ISCC 저항성이 감소하는 반면 Nb 첨가합금은 증가하는 경향을 보이고 있다. 이것은 Sn 첨가 합금이 강도는 높으나 연성이 낮은 데, Zircaloy-4가 ISCC 저항성이 감소하는 이유는 Sn 첨가에 의한 연성감소 때문인 것으로 판단된다. 일반적으로 첨가원소가 적고, 강도가 낮으며, 연성이 큰 Zr 합금이 균열 전파에 대한 저항성이 큰 것으로 알려져 있으나, Nb 첨가에 의한 ISCC 저항성의 증가에 대한 직접적인 원인은 규명되지 않고 있다.

4.3 파단면 관찰 및 균열전파 기구

ISCC에 의한 Zr-피복관의 파단면에서는 intergranular(IG) 및 transgranular(TG)에 의한 파단면이 동시에 관찰되고 있으며, 초기균열에서는 IG가 주로 관찰되나 균열이 진행됨에 따라 TG 형태로 바뀌고 보고되고 있다^[7]. 또한 Bouch[8] 등은 PWR 핵연료가 PCI 조건에 놓이면 핵연료의 팽창에 의한 hoop stress와 I_2 에 의한 부식 작용이 상승작용을 하여 균열전파가 일어난다고 보고하고 있으나, 구체적인 근거를 제시하지는 못하고 있다. Fig. 6 및 Fig. 7은 이 현상을 관찰하기 위하여 I_2 가 없는 inert 분위기(350°C He 분위기) 및 I_2 를 첨가한 분위기에서 내부압력시험을 한 후, 예비균열과 ISCC crack의 경계(ISCC 균열 초기 파단면)를 2000배 및 5000배의 고배율 SEM 사진을 찍은 것이다. Fig. 6에 나타난 바와 같이 I_2 가 없는 inert한 분위기에서 진행된 파단면은 모두 IG 임을 알 수 있다. 그러나 Fig. 7에 나타난 바와 같이 I_2 가 첨가된 실

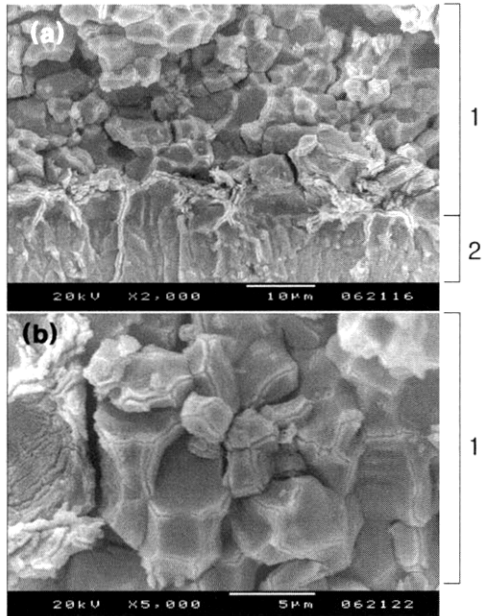


Fig. 6. Fracture surface of the Zircaloy-4 pressurized in the inert environment (without I_2) at 350°C; 1-SCC; 2-fatigue pre-crack; (a) 2000X and (b) 5000X.

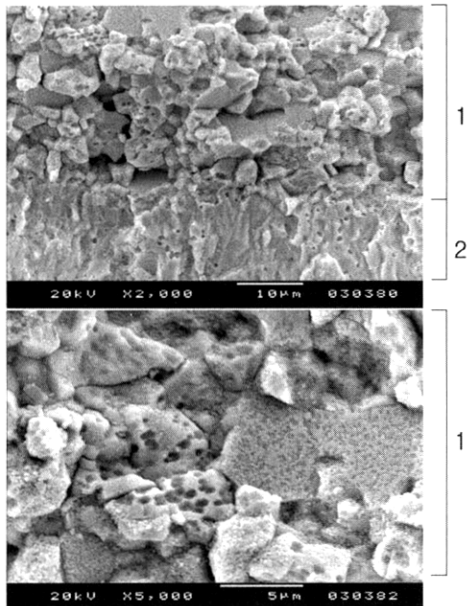


Fig. 7. Fracture surface of the HANA4 pressurized in the corrosive environment (with I_2) at 350°C; 1-SCC; 2-fatigue pre-crack; (a) 2000X and (b) 5000X.

험에서 얻은 파단면의 경우 예비균열과 ISCC crack의 경계 면에서부터 TG가 발견되고 있으며, 다음과

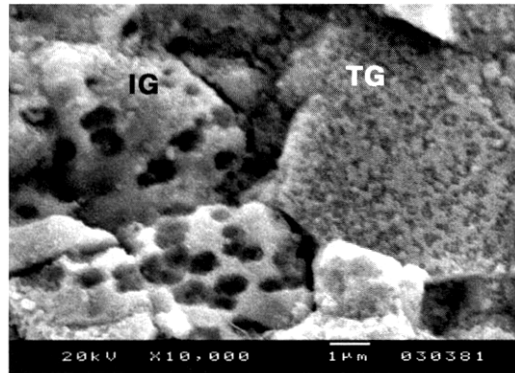


Fig. 8. ISCC crack surface of the HANA4 pressurized in the corrosive environment (with I_2) showing the large/deep pitting on IG surface and shallow/high density pitting on TG surface.

같은 특징이 있다.

1) TG 면은 하나의 입내에서 포획되어있고 굴곡이 없이 평평한 평면이다.

2) 하나의 입내에 형성된 TG는 방향이 이웃하는 입내에로 연장되지 못하고 방향이 바뀌든지, 혹은 몇 개의 IG가 형성된 뒤에 다시 TG가 형성된다.

3) Fig. 8에 나타난 것과 같이 IG 표면에는 약 0.5 µm 정도의 크고 깊은 pitting이 소밀한 분포를 하고 있는 반면, TG 표면에는 아주 미소하고 얇은 pitting이 조밀하고 균일하게 분포하고 있다.

4) 이와 같은 pitting은 iodine 환경에서만 형성되고 있다.

일반적으로 거대 균열이 존재하는 선단에 날카로운 미세 균열이 형성되면 그곳에 원자간 접촉력을 증가하는 응력이 집중될 수 있고, 이로 인해 쉽게 벽개에 의해 균열이 전파하게 된다^[14]. 이와 같은 벽개 특성을 ISCC 파단면 관찰결과에 적용하면 RX 조직을 갖는 Zr-합금의 ISCC에 의한 균열 전파는 다음과 같이 이루어진다. I_2 에 의해 형성된 pitting은 예비균열 선단에서 미세 균열로 작용하여 TG가 발생된다. 특히 Zr-합금은 HCP구조로서 3개의 slip system을 갖는데, 이 slip system과 I_2 에 의한 pitting이 만나는 곳에서 쉽게 벽개에 의한 TG가 발생되며, 일단 입계까지 균열이 전파하고 나면 응력집중이 가파르게 감소하여 더 이상 이웃하는 입내로 TG가 진행되지 못하고, IG에 의한 균열 전파가 이루어진다. IG가 진행되는 동안 I_2 에 의한 pitting

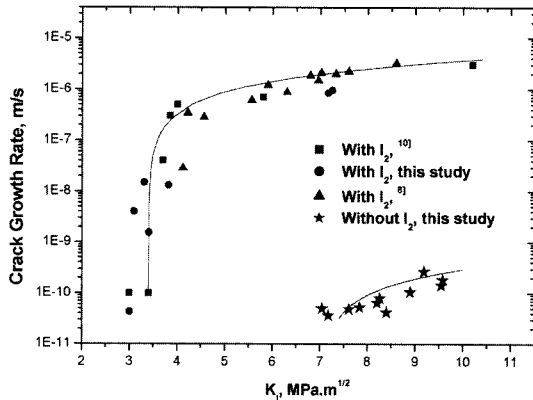


Fig. 9. Crack propagation rate versus stress intensity factor for zircaloy-4 claddings. The solid lines represent the Eq. (5) for four sets of data points.

corrosion은 계속되며 slip system과 만나서 응력이 집중되면 그 입내에서 다시 TG가 발생된다. 반면 SR조직의 경우 결정입계가 분명하지 않고 서로 얽혀져 있기 때문에 TG에 의한 균열 전파시 결정입계에서 응력집중이 급하게 감소되지 못하여 더 멀리 TG가 진행되며 전파속도가 증가하게 되며, Fig. 4 및 Fig. 5에 나타난 바와 같이 K_{ISCC} 값이 RX 조직의 경우보다 감소하는 경향을 보이는 것으로 판단된다.

Fig. 9는 I_2 가 존재하지 않는 inert한 He 분위기에서 얻은 균열 전파속도를 ISCC에 의한 균열 전파속도와 비교한 그래프이다. I_2 가 없는 inert한 분위기의 결과는 문지방 응력집중계수가 2배 이상 증가하였고, $K_{ISCC} < K_I$ 인 region II 영역에서 균열 전파속도는 1/10000 정도로 감소하였다. Fig. 6에 의하면 I_2 가 없는 곳에서 SCC에 의한 균열 전파는 전적으로 IG에 의해 일어나고 있다. 그러므로 I_2 에 의한 부식은 pitting이며 이것이 입계 표면의 slip system과 만나면 TG를 유발하고 이들은 synergistic 효과를 나타내어서 균열 전파속도가 10000배 이상 증가하는 것으로 생각된다.

4. 결 론

국내에서 개발된 신형 지르코늄 피복관의 ISCC 저항성에 미치는 미세조직 및 Nb 첨가의 영향을 알아보기 위하여 피복관 내부에 예비균열을 제조하여 I_2 이 있는 350°C의 He 분위기에서 내부압력시험을

수행한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. Nb가 첨가된 HANA4 및 Sn이 첨가된 피복관인 Zircaloy-4의 K_{ISCC} 값은 각각 4.4 및 3.3 $MPa \cdot m^{1/2}$ 로써 Nb 첨가 합금의 ISCC저항성이 큰 것으로 나타났는데, 이것은 Sn 첨가시 합금의 연성이 감소하기 때문인 것으로 판단된다.

2. 재결정 조직을 갖도록 최종 열처리를 수행한 시편의 경우 K_{ISCC} 값이 응력이완 조직을 갖는 시편에 비해 증가하였으며, 그 증가 폭은 Sn 합금인 Zircaloy-4가 커서 RX 조직을 갖는 경우 두 피복관의 K_{ISCC} 값은 동일하였다.

3. 고온 고압 분위기에서 I_2 는 Zr 결정 입계 표면에서 pitting corrosion을 유발하며 이것은 균열전파속도가 빠른 영역(region II)에서의 속도를 I_2 가 없는 경우보다 10000배 이상 증가시키며, 이것은 PCI 반응시 I_2 에 의한 화학적 효과가 매우 큰 것을 의미한다.

4. 결정 입계 표면에서 형성된 pitting이 HCP 구조의 slip system과 만날 때 이곳에서 응력이 집중하여 TG가 발생되며 이 TG는 예비균열과 ISCC crack 경계, 즉 균열 전파 초기부터 형성되어 속도 상승의 요인이 되는 것으로 판단된다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업 중 지르코늄 신합금 핵연료 피복관 개발 과제의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

1. M. F. Lyons, D. H. Coplein and G. G. Jones: High performance UO₂ Fuel program, GEAP-3771-10,11,12 (1963/64).
2. H. S. Rosenbaum: Electrochem. Tech, **4** (1966) 153.
3. J. A. L. Robertson: Proc. of Joint Topical Meeting on Commercial Nuclear Fuel Technology today, Toronto, April 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. D. Le Boulch, L. Fournier and C. S. Catherine: Int.

- Seminar on Pellet-Cladding Interaction in Water Reactor Fuels, Held in March 2004, Aix en Provence, France.
9. C. Lemaignan and I. Schuster: Proc. Technical Committee Meeting on Properties of Materials for Water Reactor Elements and Methods of Measurement, Vienna, Austria, (1986) 13.
 10. I. Schuster, C. Lemaignan and J. Joseph: SMiRT-12C03/2 (1993) 45.
 11. C. Lemaignan: Int. J. Pres. Ves. & Piping, **15** (1984) 241.
 12. Yu, K, Bibilashvily, Yu. N. Dolgov, B. I. Nesterov, V. V. NoviRov, J. Nucl, Mater. **224** (1995) 307.
 13. A. S. Kobayashi, N. Polvanich, A. F. Emery and W. J. Love: Journal of Pressure Vessel Technology, Transaction of the ASME, February, (1977).
 14. T. L. Anderson: CRC Press., 2nd Ed. (1995) 6.
 15. L. Brunisholz and C. Lemaignan: Proc. 7th Int. Con. On Zirconium in Nuclear Industry, ASTM-STP **939** (1985) 70.