

Zircaloy의 요드 응력부식균열 속도 측정

류우석, 홍준화, 국일현
한국원자력연구소

요 약

재결정 Zircaloy-2의 요드에 의한 응력부식균열의 전파속도를 직류전압강하측정법(DCPD, Direct Current Potential Drop)을 이용하여 측정하고 임계응력집중계수(K_{ISCC})를 구하였다. 임계요드농도 이상인 0.01 MPa의 요드농도에서, K_{ISCC} 는 300 °C의 경우 약 15 MPa \sqrt{m} , 350 °C의 경우 약 12 MPa \sqrt{m} 의 응력계수였으며, plateau 구역에서의 균열속도는 $10^{-4} \sim 10^{-3}$ mm/sec 영역이었다.

1. 서 론

핵연료-피복재 상호작용(PCI, Pellet-clad interaction)은 20여년 전부터 핵연료의 파손 원인 중의 하나로 판명되어져 있다. 핵연료의 출력을 일정 속도 이상으로 상승시키면 모든 발전소에서 핵연료 손상을 경험하게 되며, 그 파손 기구는 핵분열 생성물질인 요드에 의한 응력부식균열이라고 지금까지 믿고 있다.

PCI 파손을 방지하기 위하여 여러 가지 방법을 강구하여 왔다. 한 예로써, BWR의 경우는 피복관의 국부적 응력집중을 막기 위하여 Zircaloy-2 피복관 내면에 상대적으로 큰 연성을 갖는 Zr을 크래딩한 zirconium liner Zircaloy-2를 개발하여 사용하여 왔다. 그러나 최근에 이 피복관의 심한 파손을 경험하게 됨으로써, PCI 외의 일차적 파손에 따른 이차적 파손을 심각하게 고려해야만 하게 되었다. 다른 예로써 CANDU의 경우, 피복관과 핵연료 소자 사이의 윤택성을 증대시키기 위하여 피복관 내면에 흑연층을 도포하여 사용하고 있다. 이 흑연 도포 핵연료봉은 PCI 파손을 감소시키는데 여러 잇점이 있는 것으로 알려져 있으나, 고연소도에서 도포한 흑연층이 제 역할을 할 수 없는 것으로 나타나고 있다. 따라서 PCI 파손을 줄일 수 있는 새로운 핵연료 혹은 피복관 개발의 필요성이 대두되고 있다.

PCI 파손에 대한 기준은 정상 운전이나 가동중 정지시에 핵연료의 파손이 발생하지 않음을 증명하고 또한 어떤 비정상적 환경에서 파손 확율을 예측하기 위하여 개발되어 왔다. 특히 프랑스나 영국은 이 PCI 기준이 인허가의 요구조건에 포함되어 있기도 하다. 이러한 PCI 기준은 일반적으로 실험로나 상용로에서 구한 실험적 자료를 기준으로 만들

어졌다. 파괴 역학적 관점에서 균열전파 기구를 이용한 모델 정립은 PCI 기준을 더욱 정확하게 설정할 수 있다.

파괴역학적 모델은 PCI 저항성이 높은 새로운 핵연료의 개발을 위해서 그리고 핵연료 설계인자의 해석을 위하여 매우 유용하게 사용될 수 있다. 현재 이 모델을 개발하는데 있어 가장 큰 장애 요인은 요드에 의한 응력부식균열의 균열전파 속도에 대한 자료 부족이다. 내부가압법이나 맨드렐법에 의한 응력부식균열 실험에서 임계요드농도, 문지방 응력 등의 존재와 실험변수에 따른 파손시간에 관한 자료는 많이 알려져 있다. 그러므로 Zircaloy의 응력부식균열에 대한 균열전파속도가 체계적으로 연구되어지면 파괴역학적 모델 수립에 접근할 수 있다.

본 실험에서는 요드에 의한 Zircaloy의 응력부식균열 전파속도를 직접 측정하고 K_{ISCC} 를 구하는데 그 목적이 있다.

2. 실험방법

시편은 재결정 Zircaloy-2 판재로부터 인장시편 형태로 제조하였으며, 균열이 압연방향 쪽으로 진행되도록 방전가공으로 노치를 낸 후 피로균열을 내었다. 실험장치는 그림 1과 같이 요드 분위기를 유지하기 위한 실험조와 함께 일정하중을 가할 수 있는 dead weight system을 사용하였다. 요드는 일정한 양을 유리병에 넣어 시험조 내에 공급하였으며, 요드농도는 공급한 요드량을 시험조 부피로 나눈 요드 분압으로 계산하였다. 응력집중계수(K_I)는 가해진 일정한 하중으로부터 Rooke와 Cartwright의 수식을 이용하여 계산하였으며, 시험은 5 MPa \sqrt{m} 의 K_I 값에서 시작하여 점진적으로 하중을 높였다. 균열 길이는 일정한 전류가 시편을 흐를 때 균열 주위에서 작은 전압강하가 일어나는 원리를 이용한 DCPD (Direct Current Potential Drop) 방법을 사용하여 측정하였다. DCPD 결과로부터 균열길이를 환산하는 보정곡선은 상온에서 동일한 형상의 시편에 인위적인 노치를 내어 전위차를 측정하여 균열길이-상대적 전위차 곡선을 구하여 사용하였다.

3. 결과 및 고찰

재결정 Zircaloy-2의 요드에 의한 응력부식균열(SCC)의 균열전파속도를 응력집중계수의 함수로 측정한 결과 그림 2와 3과 같다. 그림 2는 두 시편 (E279, E280)을 이용하여 0.01 MPa의 요드농도, 300 °C의 온도에서 측정한 결과이다. 응력집중계수-균열속도 곡선은 전형적인 SCC 곡선을 나타내었다. 균열은 15 MPa \sqrt{m} 이하에서 진전되지 않았으며, 그 이상에서 서서히 진전되기 시작하여 20 - 30 MPa \sqrt{m} 범위에서 일정한 속도로 진전된 후 그 이후 급격한 파괴가 일어났다. 파단면은 전형적인 SCC 파면과 동일하게 초기에 균열의 형성단계를 보였으며, 그 후 SCC 파단 양상을 보인 후 마지막에 연성 파면을 나타내었다. 이 결과로부터 300 °C에서 재결정 Zircaloy-2가 SCC를 보이는 임계응력계

수, K_{ISCC} 는 $15 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 부근이며 plateau 영역에서의 균열속도는 $1 \sim 4 \times 10^{-3} \text{ mm/sec}$ 임을 알 수 있었다.

재결정 Zircaloy-2의 $350 \text{ }^{\circ}\text{C}$, 0.01 MPa 결과는 그림 3과 같았다. $350 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 결과 또한 $300 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 의 결과와 유사하게 전형적인 SCC 곡선을 보였으며 파단면도 전형적인 SCC 파면을 나타내었다. 시편 E278의 경우 $14 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 이하의 응력계수에서 균열은 발생하지 않았으며 $15 \sim 35 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 의 응력계수 범위에서 일정한 속도로 진전된 후, $35 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 이상에서 급격히 파손되었다. 시편 E281의 경우 $12 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 에서 균열의 발생을 감지하였으나 그 이후 DCPD 전압의 측정 실패로 더 이상의 자료를 얻을 수 없었다. $350 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 의 결과는, K_{ISCC} 는 $12 \sim 15 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 범위이며 plateau 영역에서 균열속도는 10^{-4} mm/sec order 임을 보였다.

Zircaloy의 K_{ISCC} 는 여러 연구자들이 자료를 생산하고자 하였으나 실험과 시편재질의 영향 등이 복잡하여 체계적으로 측정된 것은 거의 없다. 현재 발표된 자료로는 튜브 시편을 이용한 내부가압 방법으로 실험하여 균열속도를 유추한 결과들이 있다. K_{ISCC} 는 시편의 화학조성과 집합조직에 따라 큰 차이를 보이고 있으며, 본 실험의 결과는 유사한 시편 조건인 Knorr 등의 결과와 매우 유사하다. Lemaignan 등의 결과나 Novikov 등의 결과에 비해서는 높은 값으로, 중성자 조사를 받은 시편이 SCC에 민감하여 K_{ISCC} 값이 $3 \sim 5 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 범위에 있는 것과 비교할 때, 본 결과는 상대적으로 높은 값이다. 앞으로 PCI와 관련한 핵연료 설계 자료에 균열전파속도 자료를 적용할 때, 중성자 조사에 따른 K_{ISCC} 값의 영향은 더욱 면밀히 연구를 진행해야 할 것이다.

4. 결론

재결정 Zircaloy-2의 요드에 의한 응력부식균열의 전파속도를 측정하고 임계응력집중계수(K_{ISCC})를 구하였다. 임계요드농도 이상인 0.01 MPa 의 요드농도에서, $300 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 의 경우 K_{ISCC} 는 약 $15 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 의 응력계수였으며, plateau 구역에서의 균열속도는 10^{-3} mm/sec 영역이었다. 반면에 $350 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 의 경우 K_{ISCC} 는 약 $12 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 의 응력계수였으며, plateau 구역에서의 균열속도는 10^{-4} mm/sec 영역이었다.

감사의 글

본 연구는 IAEA의 "Zircaloy의 Stress Corrosion Cracking"의 CRP(Co-ordinated Research Program) 과제의 일부로 수행한 것이다.

참고문헌

1. D.B. Knorr, J.M. Piltier and R.M. Pelloux, ASTM STP 824, 1984
2. Y.K. Bibilashvily, Y.N. Dolgov, and V.V. Novikov, J. Nucl. Mart., 1995
3. I. Schuster, C. Lemaignan and J. Joseph, Nucl. Eng. Des. v. 156, 1995

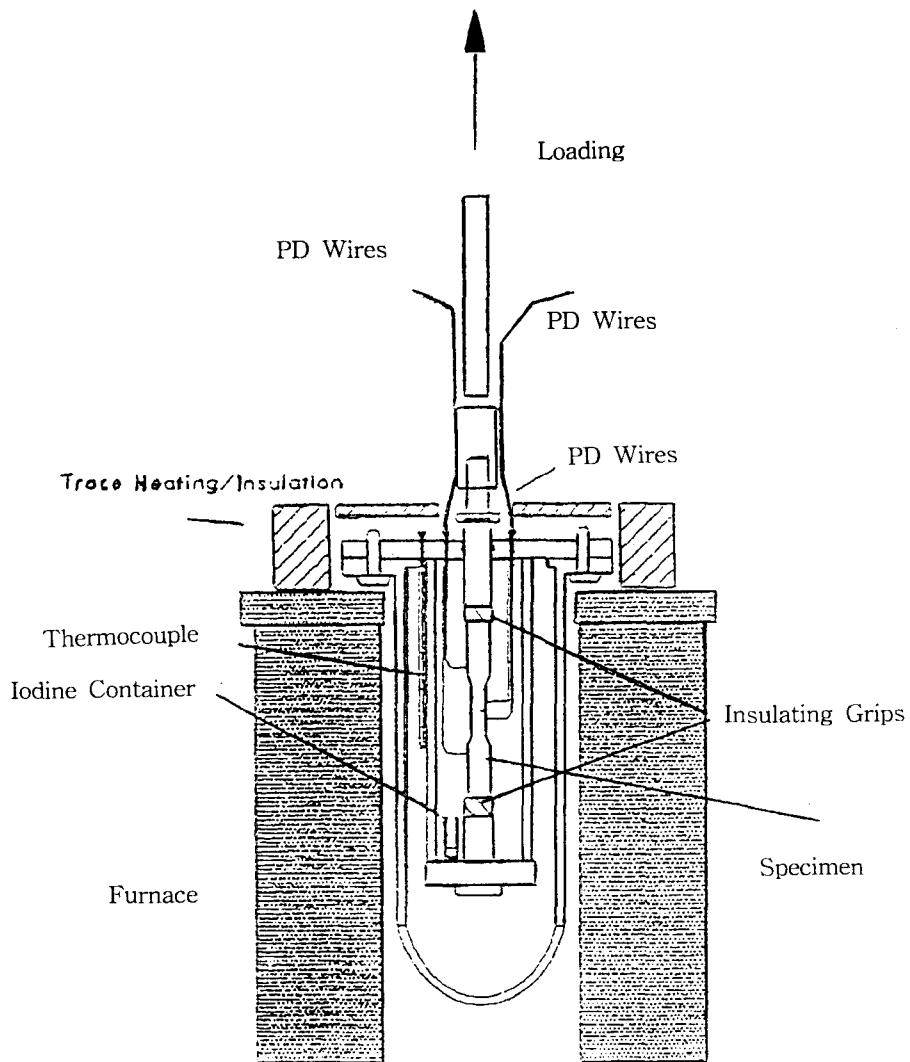


그림 1. 실험 반응조 및 DCPD 전선 배열도

OM44 (350 C) - SUM

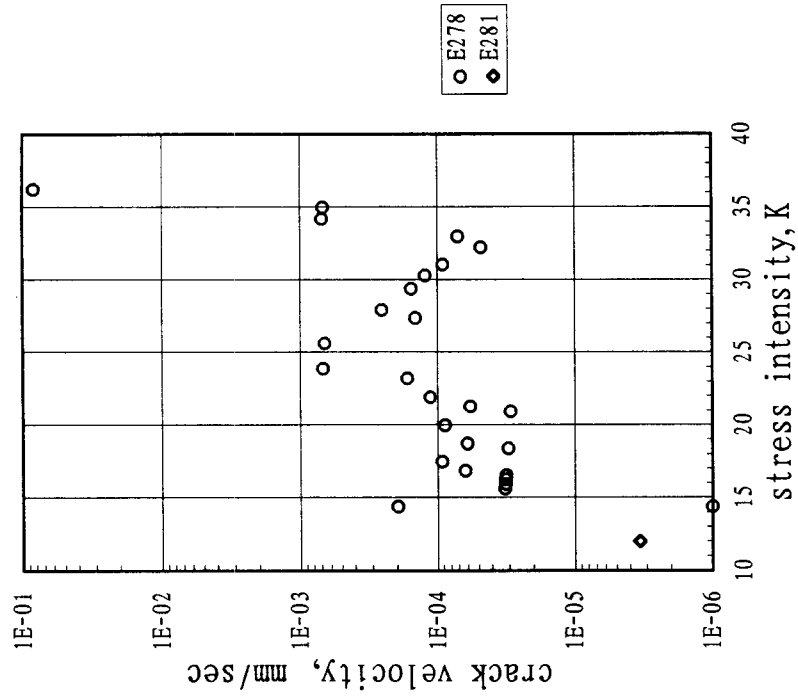


그림 3. 350 °C에서의 SCC 균열속도

OM44 (300 C) - SUM

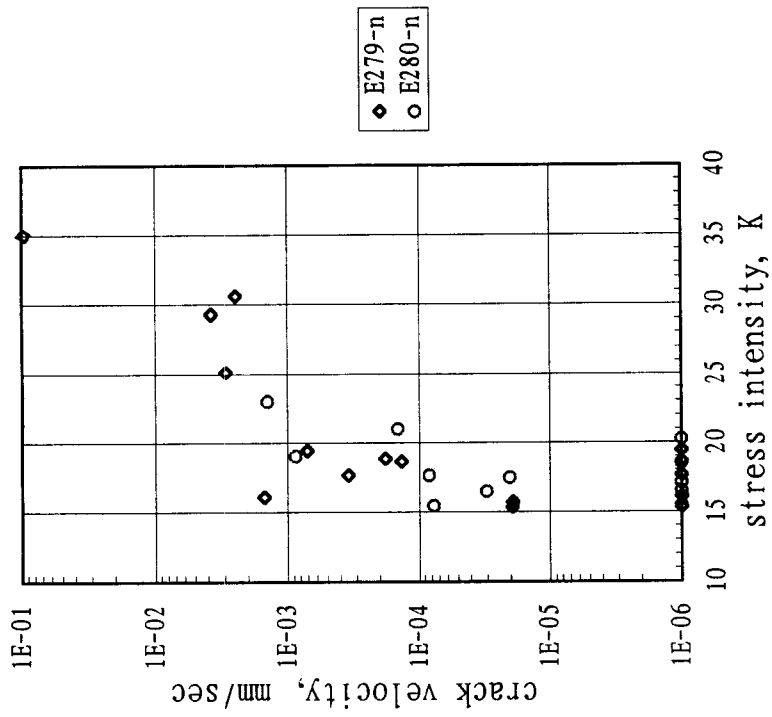


그림 2. 300 °C에서의 SCC 균열속도