

수소장입 Zr 합금 피복관의 수소화물의 특성

김명수, 강지훈, 김규태
동국대학교, 경상북도 경주시 석장동 707
expendda@dongguk.ac.kr

1. 서론

국내에서 원자력발전의 경제성을 향상을 위하여 고연소, 장주기 원전 운전을 취하고 있다. 이러한 원전 운전은 핵연료 피복관의 부식량을 증가시키고 증가된 부식반응에 의해 핵연료 피복관 내부로 수소 침투량이 증가되고 있다. 이렇게 침투된 수소는 핵연료 피복관에 축적되어 피복관의 열화를 배가시킨다. 원자력발전소에서 핵연료를 60GWD/tU의 고연소도로 운전하게 되면 상용 핵연료 피복관의 산화막 두께가 $100\mu\text{m}$ 에 근접하게 되고 또한 내부로 유입되는 수소농도는 약 600ppm인 것으로 알려져 있다[1]. 특히 수소가 핵연료 피복관에 유입되어 그 양이 고용한도[2,3] 이상 초과하여 수소의 함량이 증가되는 것은 핵연료 피복관의 연성을 감소시키는 주된 원인이 된다[4].

핵연료 피복관에서 석출되는 수소화물은 배열이 핵연료 피복관의 발달된 집합조직으로 인하여 원주방향(Circumferential Direction)으로 성장하게 된다[5]. 따라서 원주방향으로 수소가 침투된 핵연료 피복관 수소화물의 생성량은 피복관의 기계적 견전성을 예측하는 척도가 된다.

본 연구에서는 핵연료 피복관의 기계적 견전성을 저해하는 수소화물의 열화거동 특성을 연구하기 위하여 Zr합금 피복관에 수소를 장입하고 기계적 특성시험 및 미세조직 분석을 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험 방법

본 연구에 사용된 Zr합금 피복관은 국내 제조된 Zr-Nb합금을 사용하였다. 시편 제원은 외경이 9.5mm이고, 두께가 0.57mm인 피복관을 그림 1과 같이 길이 방향으로 5mm가 되게 도그본(dog-bone)형태가 되도록 와이어 가공을 하였다.

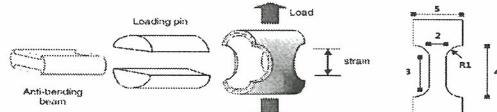


Fig. 1. Schematic description of the ring tensile test apparatus.

수소장입은 한국원자력연구원의 수소장입용 진공 열처리장비를 이용하였다. Zr-Nb튜브에 수소를 장입시키기 위하여 아세톤과 알코올을 1:1비율로 제조한 용액으로 순차적으로 세척한 뒤 100mm길이 2개의 피복관을 진공열처리로에 넣은 다음 400°C에서 수소(150torr)와 헬륨(200torr) 혼합가스를 주입한 후 수소가 표면에 흡착되도록 하였다. 수소장입 장비에서 수소가 흡착된 피복관을 석영관에 진공봉입 후 400°C에서 24시간 동안 열처리하여 피복관 기지에 수소가 균일하게 분포되도록 균질화 처리를 적용하였다. 링인장시험 및 미세조직 분석 시험을 위해 준비된 시편의 종류와 수소농도는 표1과 같다.

Table 1. Chemical composition of the zirconium fuel cladding prepared for microstructural observation and ring tensile test.

Specimen ID	Alloy composition (w/o)	H content (ppm)
01	Zr-1.0Nb-1.0Sn-0.1Fe	10
02	Zr-1.0Nb-1.0Sn-0.1Fe	300
03	Zr-1.0Nb-1.0Sn-0.1Fe	600

미세조직 분석은 광학현미경 및 주사전자현미경을 이용하여 수행하였는데, 이때의 시편은 튜브의 축방향에 수직인 면이 관찰되도록 성형(mounting), 연마(polishing), 엣칭(etching)을 하였고 위와 같이 준비된 시편에 대해 수소농도를 관찰하였다. 과면 특성은 링인장 시험 후 주사전자현미경(SEM)을 이용하여 관찰하였다. 열화거동을 평가하는 기계적 특성평가 시험은 링인장 시험을 적용하였다. 링인장 시험은 도그본 형태로 가공된 시편에 그림 2에 제시된 지그(jig)를 이용하여 0.1mm/min의 변형 속도로 응력 및 변형량을 측정하였다.

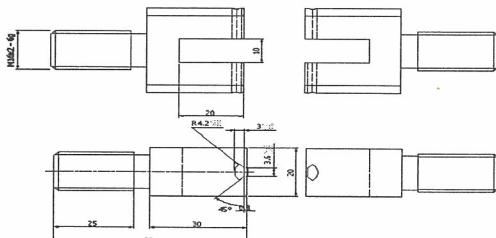


Fig. 2. Drawing of the jig for ring tensile test.

2.2 수소농도에 따른 미세조직 관찰

준비된 시편에서 수소농도는 표 1과 같이 수소장입이 없는 초기 시편에서는 수소농도가 10ppm (ID-01)정도이지만 수소를 장입한 경우에는 300ppm (시편 ID-02)과 600ppm(ID-03) 정도로 나타났다. 참고로, 한국원자력연구원의 수소장입장치를 이용할 경우 단시간에 많은 양의 수소를 장입할 수 있다.

그림 3은 초기 시편(ID-01), 수소 300ppm 시편 (ID-02), 수소 600ppm 시편(ID-03)의 수직인 면을 광학현미경으로 관찰한 것이다. 지르코늄 합금에서의 수소화물 배열은 일반적으로 지르코늄 합금의 집합조직에 의해 좌우된다. 즉 수소화물은 지르코늄 격자의 (1017)면을 따라 석출되는데 [7], 지르코늄 합금 투브는 제조공정 중에 (0002)면이 원주방향과 평행하게 원주방향과 평행하게 제어되므로 (0002)면과 14.7° 의 각을 갖는 (1017)면으로 석출되는 수소화물은 피복관의 원주방향에 거의 평행한 상태로 나타나게 된다. 또한 석출된 수소화물은 판상으로 원주방향과 길이방향에 평행한 상태로 놓이게 된다[6].

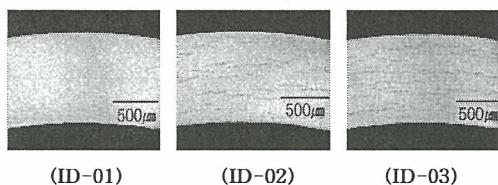


Fig. 3. OM observations of the various hydride distributions for the as-received and hydrogen charged zirconium fuel cladding.

2.3 수소장입 Zr 합금 피복관의 기계적특성

수소장입 Zr 합금 피복관의 인장시험을 현재 진행 중에 있다. 그림 3에서 보듯이, Zr 합금 피복관은 수소 농도에 따라 ZrH_2 의 농도가 증가하고 있다. 한편, ZrH_2 는 재료의 인장강도 및 연성을 감소시키는 것으로 알려져 있으므로, 본 연구에서 사용한 시편 ID-03, 시편 ID-02, 시편-01 순서대로 최대인장강도 및 연신율이 작을 것으로 예측된다.

2.4 Zr합금 피복관 수소화물의 과면특성

과면특성에 미치는 수소화물의 영향은 ID-01 시편의 경우에는 과단형태가 일반적 cup and cone 과단 외에 시편의 폭을 따라 45° 방향으로 전단 과단 되는 경향을 보일 것으로 예상되는데 이는 시편이 표준규격 시편이 아니고 시편의 크기가 매우 작기 때문에 평면응력 상태가 시편의 폭을 가로

질러 작용하기 때문이다. 수소를 장입한 ID-02 시편과 ID-03 시편의 경우에는 취성파괴에 의하여 시편은 별다른 추가 연신 없이 하중방향과 수직한 방향으로 파단이 일어날 것으로 예상된다[7].

3. 결론

Zr 합금 피복관의 수소농도에 따른 피복관 열화거동에 미치는 특성을 연구한 결과 수소농도에 비례하여 수소화물 농도가 증가하는 것으로 나타났다. 수소화물은 Zr 합금의 집합조직 특성에 따라 원주방향으로 배열되어 있음을 확인하였다.

향후 Zr 합금 피복관 내의 수소화물의 배열 방향에 따른 핵연료피복관의 기계적 열화거동을 연구 할 계획이다.

4. 참고문헌

- [1] J. P. Mardon, A. Lesbros, C. Bernaudat, and N. Waeckel, *Proc. of the 2004 Int. Meeting on LWR Fuel Performance*, p.507, Orlando, FL(2004).
- [2] W .H. Erickson and D. Hardie, *J. Nucl. Mater.* 13, 254(1964).
- [3] J. J. Kearns, *J. Nucl. Mater.* 22, 292(1967)
- [4] M. H. Lee, J. H. Kim, S. Y. Park, B. K. Choi, and Y. H. jeong, *Met. Mater. Int.* 15, 539(2009).
- [5] K. Kllstrm, *Scandinavian Journal of Metallurgy* 4, 65 (1975).
- [6] 김현길, 김일현, 박상윤, 박정용, 정용환 “피복관 열화거동에 미치는 수소화물 영향 평가”, 추계 한국방사성폐기물학회, 2010.
- [7] 정용환, “경수로용 신형 핵연료 기술개발”, KEARI/RR-2735/2006 한국원자력연구원 (2007).