

# 조성 및 열처리에 따른 사용후핵연료 피복관 열화 거동

홍종대\*, 양용식, 김주성, 정양일, 김효찬

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

\*jongd@kaeri.re.kr

## 1. 서론

현재 국내 사용후핵연료의 피복관은 Zry-4, Improved Zry-4, ZIRLO 등 각각 다른 조성과 열처리 조건으로 제조되었다 (Table 1). 이러한 제조 특성은 재료의 미세구조, 기계적 특성 등을 변화시켜 열화거동의 차이를 유발할 수 있으나, 관련 연구는 제한적인 실정이다. 본 연구에서는 피복관의 조성 및 열처리 특성과 이에 따른 크립, 수소화물 재배열, 지연수소화 균열, 부식 등의 열화거동에 관한 고찰을 수행하였다. 이를 통해 피복관 종류에 따른 사용후 핵연료 관리에 도움이 되고자 하였다.

Table 1. Chemical composition and heat treatment of used cladding material in Korean PWRs

Materials	Heat treatment*	Chemical composition (wt.%)
Zircaloy-4	CWSR	Zr-1.5Sn-0.15Fe-0.1Cr
Imp. Zircaloy-4	CWSR	Zr-1.3Sn-0.15Fe-0.1Cr
ZIRLO	CWSR	Zr-1.0Nb-1.0Sn-0.1Fe
Opt. ZIRLO	PRA	Zr-1.0Nb-0.7Sn-0.1Fe

\*CWSR : Cold worked, Stress Relief Annealed

\*PRA : Partially Recrystallized Annealed

## 2. 본론

### 2.1 합금 조성에 따른 영향

국내 사용후핵연료 피복관은 Zr-Sn계의 Zry-4와 Zr-Nb-Sn계의 ZIRLO로 크게 분류할 수 있으며, 다른 합금원소에 비해 Nb과 Sn의 조성 영향이 상대적으로 크다. Nb은 강화효과(Strengthening effect)가 있으며 확산 속도가 느리고 용해도가 높기 때문에 크립강도 향상에 효과적이다. 이러한 이유로 PHWR의 압력관으로 Zr-2.5Nb 합금이 널리 사용되고 있다. 반대로 Sn 함량은 낮을수록 크립이 증가하여 상충되는 효과를 보이기 때문에, ZIRLO와 Zry-4의 함량에 따른 크립 저항성 차이는 크게 나타나지 않는다.

### 2.1.1 수소화물 재배열 및 지연수소화 균열(DHC)

합금 원소에 따른 수소화물 재배열 거동과 관련한 연구는 거의 수행되지 않았으나, Zry-4(1.2~1.7 Sn)와 MDA(0.8 Sn-0.5 Nb) 간의 수소화물 재배열 거동이 유사하게 나타나기 때문에 Nb 함량에 따른 큰 영향은 없는 것으로 판단된다.

DHC는 수소의 확산 및 석출과 관련된 현상이므로, 합금에 따라 조금씩 다른 수소의 확산속도, 용해도 등이 거동의 차이를 유발할 수 있다. 가장 중요한 판단기준인  $K_{IH}$ (Threshold stress intensity factor) 경우에도 합금마다 다르게 보고되고 있다 [1]. 현재까지는 실험 데이터 간의 분산이 크게 나타나기 때문에, 합금 조성에 따른 영향을 판단하기 힘들며 추가적인 연구가 필요하다.

### 2.1.2 부식

스펀지 지르코늄의 질소 함유량이 크게 감소한 이후, 피복관 재료의 Sn 함유량은 내식성 향상을 위해 낮게 조절되고 있다. Sn 함유량이 높은 Zry-4(1.2~1.7 Sn)가 가장 산화막이 두껍게 생성되고, Low-Sn Zry-4(1.2~1.4 Sn), Opt Zry-4, ZIRLO(0.7 Sn-1Nb), M5(0 Sn, 0.8~1.2 Nb) 순으로 산화막의 두께가 감소함을 확인할 수 있다 [2].

## 2.2 열처리에 따른 영향

국내 사용후핵연료 피복관에 수행된 열처리는 크게 CWSR과 PRA로 분류할 수 있다. 일반적으로, 최종 열처리에 따라 낮은 온도에서 어닐링을 하면 강도는 높으나 연성이 낮으며, 높은 온도에서 어닐링을 하면 강도는 감소하나 연성이 증가한다. 또한, 일반적으로 냉간가공된(CW) 혹은 냉간가공 후 응력완화 열처리된(CWSR) 지르코늄 합금에서 RXA (Recrystallized Annealed) 재료보다 더 높은 크립 속도가 관찰된다 [3]. 냉간가공된 경우, SIPA (Stress Induced Preferred Absorption) 기구에 따라 전위밀도가 증가하였기 때문으로 판단된다. 한편, 열처리에 따른 부식/산화의 거동과 관련된 연구는 거의 수행되지 않았으나, 부식특성의 경우가 RXA 재료보다 SRA 재료가 부식량이 다소 높은

것으로 보인다 [2]. 그러나, 사용후핵연료는 최대 400°C의 낮은 온도에 노출되기 때문에 열처리에 따른 크립/부식/산화량의 차이는 크지 않을 것으로 보인다.

### 2.2.1 수소화물 재배열

열처리에 따라 결정립 크기, 입계의 방향, 잔류 응력/변형 등의 기계적 물성이 달라지므로 수소화물 재배열 거동에 영향을 미칠 수 있다. 선행연구에 의하면, 열처리 온도가 높을수록 수소화물 재배열이 잘 발생하며, 이는 집합조직과 결정립 크기의 변화에 의한 것으로 보인다 [4,5]. Fig. 1에서도 볼 수 있듯이, CW 조건보다 열처리가 수행된 RXA, SRA 조건에서 반경화물 수소화물이 더 생성되었고, 마찬가지로 Zry-4보다 ZIRLO의 경우 수소화물 재배열이 더 많이 발생한다. 수소화물 재배열의 문턱응력은 300~340°C에서, RXA 재료(Zry-2)의 경우 ~70 MPa, CWSR(SRA) 재료(Zry-4)의 경우 ~120 MPa로 보고되었고, 이러한 경향은 JNES의 요건에도 기술되어 있다 [6].

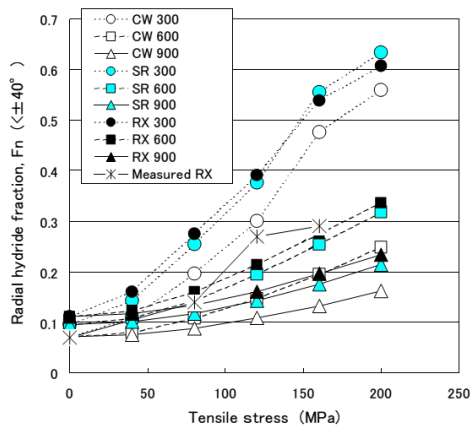


Fig. 1. Hydride reorientation behaviors depends on heat treatment condition [7].

### 2.2.2 자연수소화 균열

DHC의 균열성장속도는 주로 수소의 용해도와 확산속도에 영향을 받는다. 지르코늄 합금에서의 열처리에 따른 수소의 거동에 관한 연구는 제한적으로 수행되었으나 Fig. 2에서 볼 수 있듯이, 균열 성장속도는 CW/CWSR 재료의 경우 온도 의존성이 명확하게 드러나며, RXA 재료의 경우 데이터간 분산이 심하게 나타나는 경향을 보이고 있다. 또한, CW/CWSR 재료의 경우에는 균열성장속도가 강도(UTS)와 비례관계가 성립되는 것으로 보인다.

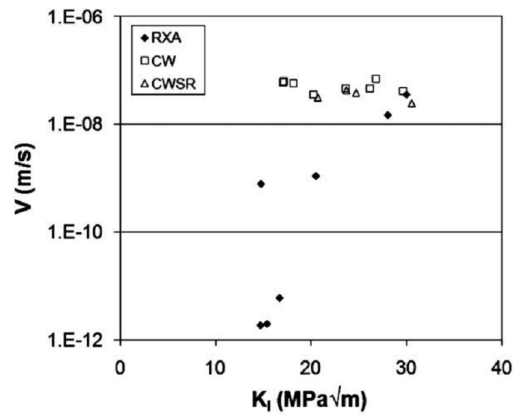


Fig. 2. DHC growth rate of Zry-4 depends on heat treatment condition [8].

## 3. 결론

다양한 제조 특성을 가진 국내 사용후핵연료 피복관의 건전성을 평가하기 위한 기초자료로서 조성 과 열처리에 따른 크립, 수소화물 재배열, DHC, 부식 등의 열화거동에 관한 고찰을 수행하였다.

## 4. 감사의 글

본 연구는 2015년도 산업통상부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다.(No. 2014171020166A)

## 5. 참고문헌

- [1] J.-S. Kim, J.-D. Hong, H.-C. Kim, Y.-S. Yang, submitted to J. Nucl. Sci. Tech.
- [2] P. Bouffieux et al, Light Water Reactor Fuel Performance Review of Degradation Phenomena affecting Fuel Rod Cladding.
- [3] E. Kolstad, IPG meeting-Workshop on Fuel Behaviour, ANL, USA, Sep. 8-19 2008.
- [4] J.J. Kearns et al., J. Nucl. Mater. 20 (1966).
- [5] M. Aomi et al, J. ASTM Inter. 5(9) (2008).
- [6] K. Kamimura, Int'l Seminar on Spent Fuel Storage (ISSF) 2010, Japan, Nov. 2010.
- [7] M. Nakatsuka, K. Sakamoto, 2008 Water Reactor Fuel Performance Meeting, Seoul, Korea, Oct. 19-23 (2008) Paper No. 8004.
- [8] C. Coleman et al, J. ASTM Inter. 7(5), (2010)