

한국표면공학회지
Journal of the Korean Institute of Surface Engineering
Vol. 35, No. 6, Dec. 2002
<연구논문>

고압 고온 수증기에서 지르칼로이-4 산화반응 정량화 및 사고해석에의 응용

박광현

경희대학교

Zircaloy-4 Oxidation Kinetics in High-Pressure High-Temperature Steam and Application to Accident Analysis

K. H. Park

Kyunghee University

Abstract

Empirical equations for the oxide thickness and the weight gain of Zircaloy-4 cladding during the oxidation in high temperature, high pressure steam have been developed. Firstly, the empirical equations for oxide thickness in 1 atm steam in 700~1000°C were made, then, the enhancement factor for the steam pressure effects on Zircaloy-4 cladding oxidation in high temperature steam was added. Based on the analysis of the weight fraction of dissolved oxygen in metal layer, empirical equations for the weight gain of Zircaloy-4 in high pressure, high temperature steam were developed. We compare the developed empirical equations with the Baker-Just correlation. The Baker-Just correlation can give a non-conservative estimation of oxidation of Zircaloy-4, depending on the steam pressure. These developed empirical equations can be used for the correct estimation of oxidation of Zircaloy-4 during accident analysis.

Keywords :

1. 서 론

핵연료의 피복관은 핵분열로부터 발생하는 방사성 핵분열생성물이 외부로 유출되는 것을 차단하는 첫 번째 방어막의 역할을 하며, 피복관의 건전성은 정상 상태는 물론이고 사고시에도 위해한 핵분열생성물의 방출을 억제하는 역할을 충분히 수행할 수 있도록 유지되어야 한다. 현재, 국내 원전의 대부분을 차지하는 가압경수로 (Pressurized Water Reactor)에서 피

복관 재료로 지르칼로이-4가 사용되고 있다. 사고시 지르칼로이 피복관의 건전성에 관련된 기준은 미국 원자력 규제위원회 (Nuclear Regulatory Commission -NRC)의 권고를 따르고 있다. NRC의 권고안에 따르면, 사고시 어떤 경우에도 피복관 두께의 17 %이상에 해당하는 지르칼로이가 산화돼서는 안되는 것으로 설정되어 있다. 개발되는 핵연료가 규제 기관의 제작 및 판매 허가를 받기 위해서는 이 기준을 만족시킬 수 있는지 보고하여야 하며, 사고시 예

E-mail : kpark@nms.kyunghee.ac.kr

상되는 원자로내 거동분석의 결과자료는 제작 및 판매허가의 근거자료로 사용된다.

사고시 고온(대략 700°C 이상)에서 지르칼로이-4의 수증기내 산화반응에 관련되어 많은 자료가 축적되어 있다. 지르칼로이 고온 산화는 대략 3개 영역으로 구분된다. 1000°C 이하에 단사정계 산화막이 존재하는 영역, 1000~1580°C의 정방정 산화막 영역, 그리고 1580°C 이상의 입방정 산화막 존재 영역으로 구분할 수 있다. 현재 대부분의 자료는 사고분석에서 중요하게 여겨지는 정방정 산화막 영역(1000~1580°C)에 집중되어 있다¹⁹⁾. 이 영역의 측정 자료는 대체로 일치하고 있으며, NRC에선 Baker-Just(B-J)의 상관식[1]을 기본식으로 사용하도록 권고하고 있다. 입방정 산화막 영역(1500°C 이상)에서 산화속도는 정방정 산화막 영역에 비해 급격히 증가한다¹⁰⁾.

단사정 산화막 영역(1000°C 이하)에서 산화속도는 정방정 산화막 영역에 비해 낮아진다¹¹⁾. 정방정 산화막은 열역학적으로 이 온도영역에서 존재할 수 없지만, 산화막에서 소량의 정방정이 항상 관찰되고 있다. 저온의 산화막에서 소량의 정방정이 금속 경계면에서 관찰되는 이유는 정확히 밝혀져 있지 않지만 대략 금속과의 보합성(coherency)에 의한 산화막내 압축응력, 또는 작은 결정립 크기에 의한 것으로 추정되고 있다^{12~14)}. 특히 이 영역에서 산화속도는 주위의 수증기 압력에 영향을 받는 것으로 알려져 있다. Cox¹⁵⁾, Kim¹⁶⁾은 700°C 이하의 온도에서 수증기 압력효과를 관찰하였다. Cox는 수증기 압력의 한계값이 존재하며, 이 값 이상에서 산화가 가속된다고 주장하였다. Pawel은 905°C와 1100°C에서 수증기 압력효과를 측정하였는데, 905°C에서는 압력효과가 존재하여 수증기 압력이 높을수록 산화가 가속되었지만, 1100°C에서 산화된 시편에선 수증기 압력효과가 전혀 존재하지 않고 있다¹⁷⁾. Bramwell이 고압 수증기하에서 지르칼로이 산화실험을 수행하였는데, 700°C에서 950°C까지 온도영역에서 고압 수증기가 산화를 가속시키

는 것을 확인하였다¹⁸⁾. 최근에는 저자가 700~900°C 영역에서 산화실험을 수행하여 산화속도에 수증기 압력 영향에 관련된 보다 체계적인 자료를 생산하였다¹⁹⁾.

Pawel이 실험으로 밝혔듯이, 단사정 산화막 영역에서만 수증기 압력에 의한 산화가속 효과가 존재하는데, 아직 이를 설명할 수 있는 산화속도 모형이 설정되어 있지 않은 상태이다. Bramwell은 수증기에 의한 가속효과에 대하여 다양한 자료를 보고, 이를 정량화할 수 있는 산화속도 모형을 세우지 못하였고 단지 정성적인 경향을 설명하는 것으로 그치고 말았다¹⁸⁾. 특히 1000°C 이하 영역에서 B-J 상관식으로 산화속도를 기술하여 사고해석을 수행하는데, 현재 B-J상관식은 정방정 영역에서 측정된식으로서, 1000°C 이하 영역에서 정확성과 보수성에 대한 논란이 지속되고 있어, 이 영역에서 수증기 압력을 고려한 정확한 산화 속도식이 절실히 요구되는 실정이다. 본 논문에선 실험자료를 근거로 하여, 절실히 요구되는 1000°C 이하 영역에서의 수증기 압력을 고려한 산화속도식을 개발하여, 보다 정확한 원전 사고해석이 가능하도록 하는데 기여하려 한다.

2. 대기압 수증기에서 지르칼로이-4 산화막 두께 증가

단사정 산화막의 저온산화 영역(대략 500°C 이하)에서 무게증가는 시간의 1/3승에 비례하고, 천이점 이후에는 시간에 따라 선형적으로 변화한다^{20~22)}. 그러나, 정방정 영역(1000°C 이상)의 고온에선 금속 산화막내 산소확산에 의해 결정되는 산화기구인 시간의 1/2승에 따른다^{1~9)}. 500°C에서 1000°C 사이에서 산화속도는 시간의 1/3승과 1/2승 사이에 존재하는 것으로 나타나 있다. Cox의 측정자료는 분명하지 않지만 시간의 1/2승에 가까이 비례하는 것으로 나타나 있다²⁴⁾. Leistikow 와 Schanz의 측정자료는 950°C 이하에선 무게증가가 대략 시간의 1/3승에

비례한다^{4,5)}. 저자가 Westinghouse사의 시편으로 측정한 자료는 Leistikow 와 Schanz와 거의 동일한 결과를 얻고있다²⁵⁾.

고온, 고압에서 산화속도는 일반적으로 실험 후, 산화막의 두께로 측정하게 되는데 무게증가와 산화막 두께와는 일정한 비례 관계가 성립되지는 않는다⁴⁾. 이는 고온에선 금속총 (α -Zr) 속에 산소가 어느 정도 용해될 수 있기 때문이다. 수증기 압력효과에 대한 정량적 모형을 세우기 위해서는, 기준이 되는 1기압 수증기 환경에서 산화막 두께 증가에 대한 모형을 개발할 필요가 있다. Denis는 Cox의 자료²⁴⁾를 근거로 이동 경계 조건을 갖는 확산방정식을 사용하여 600-860°C 영역에서 산화모형을 설정하였다²⁶⁾. 그러나, 이 모형은 복잡하여, 실제 사고해석에 간단히 적용하기 어려운 점이 있으며, 더욱이 산화막 두께에 대한 정보를 제공하지 못한다. 따라서, 1기압 수증기 하에서 산화막 두께에 관한 보다 간단하면서 사고해석 연구에 적용 가능한 실험식이 요구된다. 1000°C 이상의 정방정 산화막 영역에서는 천이점이 존재하지 않지만, 500°C 이하의 저온 산화에선 천이점이 존재한다. Leistikow 와 Schanz의 1기압 수증기내에서 산화막 측정자료를 검토해보면, 800°C 까지는 천이점이 존재하지만 850°C 이상의 고온에선 천이점이 존재하지 않는 것으로 나타나 있다^{4,5)}. 따라서, 본 연구에선 천이점 이전 영역과 이후 영역으로 구분하여 산화막 두께를 추정하는 실험식을 Leistikow와 Schanz의 자료를 근거로 만들었다. 그리고, 천이점 이후의 식은 저온 산화에서 일반적으로 사용되는 실험식²³⁾의 형태를 취하였다.

천이점 이전에 산화막 두께증가는 시간의 0.4승에 비례하는 것으로 나타났다. 그리고, 천이점 이후의 선형적 두께증가 영역에서 산화속도는 온도가 증가함에 따라 증가하는 것으로 나타났다. 이를 간략히 식으로 정리하면 아래와 같다.

천이점 이전의 산화막 두께 :

$$d = 2.813 \times 10^3 \cdot e^{-\frac{9740}{T}} \cdot t^{0.4} \quad (1)$$

천이점에서 산화막 두께 :

$$d_T = 1.223 \times 10^4 \cdot e^{-\frac{7934}{T}} \quad (2)$$

천이점 이후 (850°C 미만에서만 존재)에서 산화막 두께 :

$$d = d_T + k_L(t - t_T) \quad (3)$$

$$\text{그리고, } k_L = 2.222 \times 10^3 \cdot e^{-\frac{13664}{T}} \quad (4)$$

$$t_T = 39.413 \cdot e^{-\frac{13661}{T}} \quad (5)$$

여기서, 두께, d, d_T 의 단위는 μm ; 시간, t, 는 초; 온도, T는 절대온도이다.

그림 1은 위의 산화막 두께에 관한 실험식과 Leistikow와 Schanz가 측정한 실험자료를 비교한 것이다. 약간의 차이를 보이지만 대체적으로 실험식이 자료들을 잘 설명하고 있다.

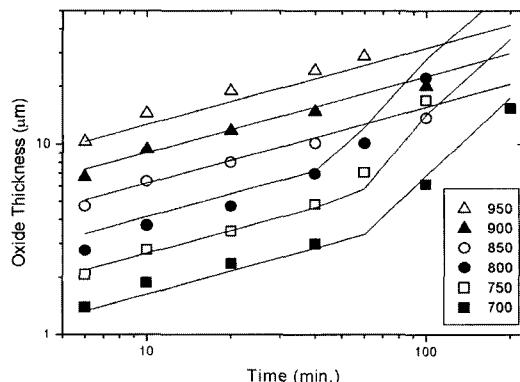


그림 1 실험식과 Leistikow와 Schanz가 측정한 실험자료의 비교.

(숫자는 섭씨 온도를 나타냄)

3. 고압 수증기에서 지르칼로이-4 산화막 두께

고압 수증기에 의한 지르칼로이-4의 산화가속 효과는 단사정 산화막 영역에서만 존재하는 것으로 알려져 있다. 수증기 압력에 따른 산화가속 효과에 대한 정확한 이유가 밝혀지지는 않았지만, 최근 저자

에 의해 산화막내 정방정의 안정성에 의해 발생하는 것으로 제안된 바있다²⁷⁾. 즉, 금속 경계면에 존재하는 정방정은 약간의 초소성(superplasticity)을 갖고 있는데, 이 정방정이 매우 높은 압축응력 속에 존재하는 산화막에서 새로운 산화막을 형성할 때의 부피증가(10~50%)와 정방정이 단사정으로 변화할 때의 부피증가(약 3%)에 따른 산화막내 응력변화를 적절히 조절하여, 보다 내부식성을 갖는 단사정을 만드는데 기여하는 것으로 알려져 있다. 그러나, 고압의 수증기가 존재할 때, 수증기에 의해 정방정의 표면에너지가 감소하면서 단사정으로 상변태가 가속화되어, 결국 보호성을 갖추지 못한 단사정 산화막을 형성하여 산화가 가속되는 것으로 추정되는 것이다. 따라서, 정방정의 안정성과 수증기 압력에 의한 산화속도 증가는 서로 반비례 관계가 성립되며, 이를 식으로 표현하면, 아래와 같이 나타낼 수 있다.

$$\frac{d(P)}{D(1)} = e^{h(P-1)} \quad (6)$$

여기서, $d(P)$ 와 $d(1)$ 은 각각 수증기 압력 P 기압과 1기압에서 산화된 지르칼로이-4의 산화막 두께이고, h 는 압력가속 효과를 나타내는 상수이다²⁷⁾.

지르칼로이-4의 산화에 있어 천이점이 생성되는 구체적인 이유에 대하여 정확한 정설이 설정되어있지 않다. 천이점이 나타날 때 나타나는 중요 현상들은, 산화 초기에 산화막내에 비교적 많이 존재하는 정방정이 단사정으로 급속히 변화되고^{12, 13)}, 작은 기공들이 관찰되기 시작하고²⁸⁾, 천이점에서 산화막내 압축응력이 최대가 되며, 그 후에 지속적으로 감소하며 작은 균열들이 관찰되고 있다²⁹⁾는 것들이다. 정방정이 급속히 단사정으로 변화되는 이유에 대하여 Roy와 David는 산화막내 압축응력이 점차 산화막이 두꺼워지면서 감소가 되는 것으로 설명하였고³⁰⁾, Barberis는 정방정 결정립의 성장으로 설명하고 있다³¹⁾.

천이점의 발생에 관하여 명확한 정설이 존재하지 않지만, 관찰되는 현상을 근거로 다음과 같이 정리할 수 있다. 천이점은 전체적으로 보호성을 갖는 산화막이 부분적으로 보호성을 갖게되는 산화기구의 전이점이고, 정방정이 급격히 단사정으로 상변태를 이루는 기점이며, 이 상변태는 산화막내 압축응력의 감소나, 정방정 결정립의 성장으로 발생한다. 따라서, 천이점이 일어나는 산화막의 두께는 온도에 따른 산화막과 금속층의 물성에 의해 결정된다고 볼 수 있다. 400°C이하에서 관찰되는 천이점은 산화 환경에 거의 무관하게 특정 산화막 두께에서 천이점이 관찰되는 것으로 보아³²⁾, 환경보다 온도에 의해 결정되는 것으로 사료된다.

따라서, 본 연구에서 수증기에 의한 산화막 증가에 대한 모형을 다음과 같이 설정하였다.

1) 고압 수증기 하에서 산화될 때에도 850°C 미만의 온도에서 천이점이 존재하며, 천이가 발생하는 산화막 두께는 식 (2)로 주어진다.

2) 고압 수증기는 정방정의 표면에너지를 낮춰 불안정하게 만들고, 급격한 정방정의 단사정으로의 상변태는 비보호성 단사정 산화막을 만들게 된다. 산화막 내부의 정방정의 안정성은 수증기 압력에 따라 기하급수적으로 급속히 감소한다²⁷⁾. 산화속도는 정방정의 안정성에 반비례한다고 보면, 고압의 수증기에서 산화막 두께는 수증기 압력에 따라 기하급수적으로 증가한다. 즉 산화속도 증가는 식 (6)으로 주어진다.

3) 1기압 수증기에서 측정한 산화막 두께를 기준으로 삼으며, 대기압 수증기에서 생성된 산화막 두께는 실험식 (식 (1) ~ (5))으로 주어진다.

그림 2는 상기 모형을 사용한 계산값(선)과 측정된 자료¹⁹⁾를 비교한 것이다. 700°C의 일부 실험자료를 제외하고는 측정된 자료값을 잘 설명하고 있다. 그림 2에서 사용한 각 온도별 압력효과 상수, h (식 (6))의 값을 표 1에 나타내었다.

표 1. 각 온도별 압력효과 상수(h)값

온도(°C)	700	750	800	850	900
$h(\text{bar}^1)$	9.62×10^{-3}	1.30×10^{-2}	1.18×10^{-2}	1.30×10^{-2}	9.95×10^{-3}

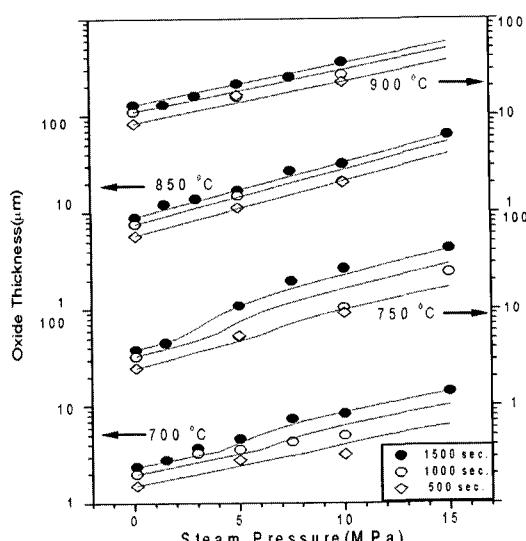


그림 2 수증기 압력을 고려한 실험식(실선)과 측정된 자료의 비교.

4. 사고시 지르칼로이-4의 무게 증가

사고 해석에서 중요한 것은 사고시 지르칼로이-4와 수증기와 반응에 의해 발생하는 수소의 양이다. 수소 발생량은 지르칼로이-4의 무게증가로 구할 수 있다. 지르칼로이-4 피복관의 무게 증가는 산화막 발생과 금속층에 고용되는 산소에 의해 나타난다. 식(1) ~ (6)은 산화막 두께 증가만을 나타내는 식으로, 금속에 고용된 산소에 의해 증가되는 무게를 추가하여야 수증기와의 산화반응 정도를 구할 수 있다.

금속층에 고용되는 산소의 양은 산화막과 금속층에 각각 산소의 확산방정식을 적용하여 해를 구하면 알 수 있다. 그러나, 1000°C 이하에선 전체적인 산화속도가 시간의 1/3승에 비례하므로, 확산계수가 상수인 확산방정식을 적용할 경우 무게증가가 시간의 1/2승에 비례하게 되므로, 확산방정식만으로 적절히 지르칼로이-4의 산화를 기술할 수 없는 어려

움이 있다. 본 연구에선, 실험에서 측정된 전체적인 무게증가와 측정된 산화막 두께를 근거로 금속내 산소에 의한 무게증가를 추정하였다. 그림 3은 지르칼로이-4의 산화막층에 있는 산소무게에 비해 금속내 용해된 산소의 무게비율의 시간에 따른 변화를 나타낸 것이다. 1기압의 수증기에서 700°C와 950°C의 두 경우를 비교하였다. 산화시 무게 증가에 산화막 내 산소에 의한 무게증가가 가장 큰 기여를 하지만, 금속내 용해된 산소의 양도 무시할 수 없는 양으로 나타나 있다. 금속내 용해된 산소에 의한 무게증가가 초기에는 크지만, 점차 시간이 지날수록 그 비율은 감소하게 된다. 950°C의 금속내 산소의 양이 700°C에 비해 약간 크지만, 측정시 오차를 고려하면 그 차이가 적은 것으로 볼 수 있다. 따라서, 본 연구에선, 측정된 산화막 두께와 전체적인 무게증가를 다음과 같은 실험식으로 나타내었다.

$$W(\text{mg}/\text{dm}^2) = d(\mu\text{m}) \cdot w_{ox} \cdot (2.05 - 9.4 \times 10^{-2} \ln t) \quad (7)$$

여기서, W는 무게증가, d는 산화막두께, w_{ox} 는 $14.7 \text{ mg}/\text{dm}^2 \cdot \mu\text{m}$, t는 산화시간(sec)이다.

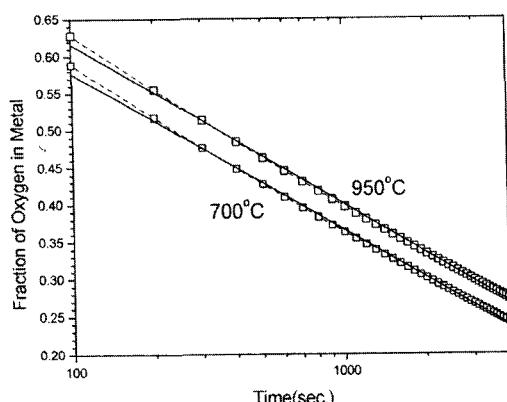


그림 3 산화막의 무게에 비교한 금속내 산소의 무게 실선은 본 연구에서 사용한 실험식

식(7)은 팔호안의 값이 1 이상의 값을 갖는 영역(19시간 이내의 산화)에서만 적용가능하다.

5. 사고해석에 적용 (Baker-Just Correlation과 비교)

지르칼로이 피복관의 고온 사고해석에 현재 일반적으로 적용되고 있는 산화식은 Baker-Just 실험식이다¹⁾. 이 식은 1000°C 이상의 1기압 수증기에서 산화되는 지르칼로이 피복관의 산화량에 대하여 잘 기술하고 있으나, 1000°C 미만에선 실제 측정된 산화량에 비해 과대하게 예측하는 것으로 알려져 있다. 이 보수성에 대하여 많은 지적이 있어왔으나, 아직 까지 그 보수성에 대한 정확한 평가가 이루어지지 않고 있다. 특히 1000°C 이하에선 수증기 압력에 의한 가속효과가 존재하므로, 이를 고려한 비교 연구가 수행되어야 할 필요가 있다.

본 연구에서 구한 실험식(1)~(7)을 사용하여 Baker-Just 실험식의 보수성을 평가하였다. 그림 4는 500초와 1000초 동안 지르칼로이-4가 고압 수증기에 산화될 경우에 온도와 압력에 따라, Baker-Just 실험식의 보수성이 존재하는 영역과 존재하지 않는 영역으로 구분한 것이다. 비교적 높은 온도(900°C 이상)에서도 고압의 수증기(60~80bar)에선

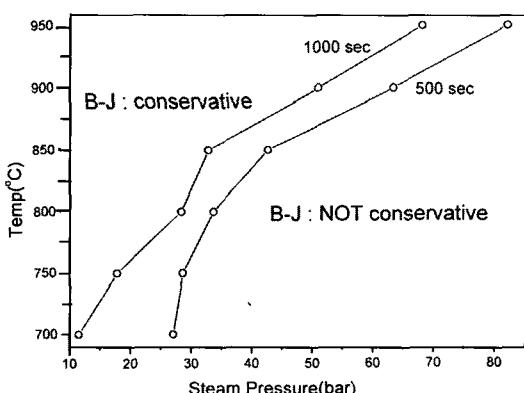


그림 4 수증기 압력과 온도에 따른 Baker-Just 실험식의 보수성. 산화시간을 500, 1000초로 설정하였다.

산화가 가속되어 Baker-Just 실험식보다 높은 산화속도를 갖게 된다. 온도가 점차 낮아지면, Baker-Just 실험식의 보수성을 나타내는 수증기 압력의 경계값은 점차 낮아지게 된다. 이는 Baker-Just 실험식의 활성화에너지 (22.75kcal)가 본 실험식의 에너지 (19.4kcal) 보다 높으므로, 온도가 낮아질수록 Baker-Just 실험식의 예측값이 적어지기 때문이다.

수증기 압력에 의한 지르칼로이 산화의 가속화를 고려하면, 700~1000°C에서 수증기 압력을 고려한 사고해석이 이뤄져야 할 것으로 판단되며, 현재 사고해석에서 나타나는 보수성에 관련된 논쟁도 본 연구에서 얻은 실험식을 적용하면 어느 정도 해소될 수 있다.

5. 결 론

고온의 고압 수증기에서 산화된 지르칼로이-4 피복관의 온도와 압력에 따른 산화막 두께와 산화반응에 의한 무게증가를 자료로¹⁹⁾ 정량화하였다. 아직까지 구체적으로 실험식이 설정되지 않고 있는 700~1000°C 영역에서 지르칼로이-4 피복관의 산화막 두께를 실험식 형태로 정량화하였다(식(1)~(5)). 그리고, 수증기 압력에 의한 산화막 두께 증가를 정량화할 수 있는 실험식을 유도하였다(식(6)). 측정된 산화막 두께 자료^{4, 5)}와 무게증가를 고려하여 금속총에 용해된 산소에 의한 무게증가를 유도하였다(식(7)). 이와 같이 얻어진 실험식을 사용하여, 현재 논란이 되고 있는 사고해석시 고온 산화에 사용되는 Baker-Just 실험식의 보수성에 대하여 알아보았다. 일반적으로 알려진 Baker-Just 실험식의 보수성은 수증기 압력에 따라 변화하며, 900°C 이상의 고온에서도 고압의 수증기(60~80bar) 하에서 오히려 Baker-Just 실험식보다 더 많은 산화가 이루어질 가능성이 있다. 본 연구로 얻은 실험식은 고온 사고해석시 수증기 압력을 고려하여 더욱 정확한 사고해석을 가능하게 할 것으로 생각된다.

참고문헌

1. L. Baker and L. C. Just : "Study of Metal-Water Reactions at High Temperature III, Experimental and Theoretical Studies of Zirconium-Water Reaction", ANL-6548 (1962)
2. J.P. Pemsler : Electrochem. Technol. **4** (1966) 128
3. R.G. Ballinger : J. Nucl. Mater., **62** (1976) 213
4. S. Leistikow and G. Schanz : Nuclear Eng. and Design, **103** (1987) 65
5. S. Leistikow and G. Schanz : Werkstoffe und Korrosion, **36** (1985) 105
6. R.E. Pawel : J. Electrochem. Soc., **126** (1979) 1111
7. R.E. Pawel, J.V. Cathcart, and R.A. McKee : J. Electrochem. Soc., **126** (1979) 1105
8. A.F. Brown, M.O. Tucker, and T. Healey : J. Nucl. Mater., **105** (1982) 93
9. R.R. Biederman, H. Ocken, and R.D. Sisson : Jr. J. Nucl. Mater., **97** (1981) 265
10. J.T. Prater and E.L. Courtright "High Temperature Oxidation of Zircaloy-4 in Steam and Steam-Hydrogen Environments", NUREG/CR-4476 (1986)
11. J.P. Pemsler : J. Electrochem. Soc., **113** (1966) 1241
12. J. Godlewski, J.P. Gros, M. Lambertin, J.F. Wadier, and H. Weidinger : "Raman Spectroscopy Study of the Tetragonal-to-Monoclinic Transition in Zirconium Oxide Scales and Determination of Overall Oxygen Diffusion by Nuclear Microanalysis of O-18", ASTM STP **1132** (1991) 416
13. F. Gazarolli, H. Seidal, R. Tricont and G.P. Gros : "Oxide Growth Mechanism in Zirconium Alloys", ASTM STP **1132** (1991) 395
14. P. Barberis : J. Nucl. Mater., **226** (1995) 34
15. B. Cox : "Accelerated Oxidation of Zircaloy-2 in Supercritical Steam," AECL-4448 (1973)
16. Y.S.Kim, D.Min, S.Kim, S.Ro, Y.Ok, and M. Park : "High Pressure Steam Corrosion and Hydriding of Zircaloy-4", International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Portland, U.S.A. (1997)
17. R. E. Pawel, J. V. Cathcart and J. J. Campbell : J. Nucl. Mat., **82** (1979) 129
18. I.L.Bramwell, T.J.Haste, D.Worswick : and P. D.Parsons : "An Experimental Investigation into the Oxidation of Zircaloy-4 at Elevated Pressures in the 750 to 1000°C Temperature Range", ASTM STP **1245** (1994) 450
19. K. Park, K. Kim, and J. Whang : "Pressure Effects on High Temperature Zircaloy-4 Oxidation in Steam", International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Park City, Utah, U. S.A. (2000)
20. S. Kass : J. Nucl. Mater., **28** (1969) 315
21. I.K. Dawson, G. Long, W.E. Seddon, and J.F. White : J. Nucl. Mater., **25** (1968) 179
22. F. Garzarolli : "Waterside Corrosion of Zircaloy-Clad Fuel Rods in a PWR Environment", ASTM STP **754** (1982) 430
23. E. Hillner : "Corrosion of Zirconium-Base Alloys - An Overview", ASTM STP **633** (1977) 211
24. B. Cox : AECL-6784 (1980)
25. K. Park, T. Yoo, and K. Kim : to be published.
26. A. Denis, E. Moyano, and E.A. Garcia : J. Nucl. Mater. **110** (1982) 11
27. K. Park, K. Kim, and T. Yoo : "Pressure Effects on High Temperature Steam Oxidation of Zircaloy-4", Proceedings of the Symposium on Nuclear Materials and Fuel 2000, Taejon,

- Korea, August (2000)
- (1970) 71
28. B. Cox : J. Nucl. Mater., **29** (1969) 50
31. P. Barberis : J. Nucl. Mater., **226** (1995) 34
29. D.H. Bradhurst and P.M. Heuer : J. Nucl.
32. J. Nakamura, M. Hashimoto and S. Kawasa-
- Mater., **37** (1970) 35
- ki : J. Nucl. Mater., **200** (1993) 256
30. J. Roy and G. David : J. Nucl. Mater., **37**

received day : 2002. 9. 6

accepted day : 2002.10.30