2003 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

Zr-2.5Nb 합금에서 DHC에 대한 수소화물 재석출 효과

Effect of Hydride Reorientation on DHC cracking in Zr-2.5Nb alloy

윤여범. 김영석. 임경수, 김성수, 정용무
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

본 연구는 thermal cycle동안 Zr-2.5Nb 압력관에 발생하는 수소화물의 재배열에 대한 가해진 응력세기, 최대온도 및 가해진 응력 부가시점의 영향에 대해서 연구하였다. 수소화물 재배열은 전기분해 방식으로 각각 60ppm과 280ppm의 수소를 장입한 cantilever beam 시편에 대해서 상온부터 각각 최대온도를 310℃와 380℃ 까지 열기계적 이력을 가하여 실험하였다. 압력관에서 수소화물의 재배열은 최대온도와 가해진 응력세기가 증가함에 따라 증가하였다. 또한 thermal 동안 가해진 응력 부가 시점의 변화가 수소화물의 재배열에 영향을 주었다.

Abstract

The objective of this study is to investigate the reorientation of Hydrides with the applied stress intensity factor, the peak temperature and the time when to apply the tensile stress in a Zr-2.5Nb pressure tube during its thermal cycle treatment. Cantilever beam specimens with a notch of 0.5mm in depth were subjected to electrolytic hydrogen charging to contain 60ppm or 280ppm H, and then to a thermal cycle involving heating to the peak temperature of either 310 or 380℃, holding there for 50h and then cooling to the test temperature of 250℃. The reorientation of hydrides in the Zr-2.5Nb tube was enhanced with the increased peak temperature and applied stress intensity factor. Then, the reorientation of hydrides during thermal cycle had different characteristics with varying the location of the applied stress intensity under the same stress.

1. 서 론

Zr 합금에서 DHC 균열을 유발하는 필요조건은 균열선단에서 수소화물 석출과 가해진 응력에 수직방향으로의 수소화물의 재배열이다[1]. 대부분의 basal pole이 압력관의 원주방향으로 배열되어 있는 강한 원주방향의 texture를 가진 Zr-2.5Nb 압력관의 경우 수소화물은 원주방향에 대응되는 가해진 인장방향으로 재배열되기가 용이하다. 이는 수소화물들이 {10-17} habit plane에 핵생성 되고 성장하기 때문이다[2]. 수소화물의 재배열이 수소화물의 핵생성 및 성장에 의해서 발생하기 때문에 재배열은 지르코늄 기지내에 존재하는 과포화된 수소농도, 가해진 응력세기, texture 및 석출된 수소화물의 크기에 의존한다[2-5]. DHC 속도에 대한 수소화물 재배열 효과는 압력관 내의 수소화물 재배열이 용이할수록 DHC 속도가 더욱 증가한다. 본 연구는 Zr-2.5Nb 압력관에서 발생하는 수소화물 재배열(hydride reorientation)과 DHC 속도사이의 관계에 초점을 맞추었다. 따라서 압력관에 낮은 응력세기(K_I)을 가한 경우와 높은 응력세기를 가한 경우에 대해서 압력관 내에서 발생하는 수소화물 재배열 양의 변화를 연구하였다. 또한 DHC 시험을 위한 thermal cycle 동안 310℃ 와 380℃로 최대온도(peak temperature)를 변화시키고 thermal cycle 동안 가해지는 응력세기 부가 시점을 각각 thermal cycle의 초기, 최대온도 유지 종점, 시험온도(test temperature) 시점으로 달리 한 경우에 있어서 수소화물의 재배열을 연구하였다.

2. 실험 방법

본 연구에 사용된 재료는 냉간 가공 후 400℃에서 24시간 응력제거 열처리된 Zr-2.5Nb 압력관이며, 수소화물 재배열 연구를 위한 시편은 Fig.1과 같은 너비 3.2 mm, 길이 38 mm의 cantilever beam (CB) 시편을 사용하였다. 원주방향에서 반경방향으로 수소화물을 재배열 시키기 위해서 노치 가공은 압력관의 반경 방향으로 가공하였으며, 사용된 노치 크기는 노치 깊이 0.5mm, 노치 선단 반경 0.05 mm 이었다. Cantilever beam 시편 내 수소장입은 전기분해 방식을 사용하여 충분한 두께의 수소화물 띠를 시편 표면에 형성시킨 후 각각 305°C에서 30 시간 및 454℃ 에서 20시간 균질화처리를 통하여 이론적으로 60 ppm 및 280ppm 수소가 장입되도록 하였다. 보다 자세한 수소 장입 절차는 KAERI 절차서에 기술되어있다[6]. 실제 시편 내 수소량은 LECO RH 404 수소분석장치로 최소 5번 측정치의 평균값으로 결정하였다. 균질화처리 후 모든 시편은 수냉을 행하여 Fig.1에 보여주는 바와 같은 매우 미세한 수소화물을 석출시켰다.

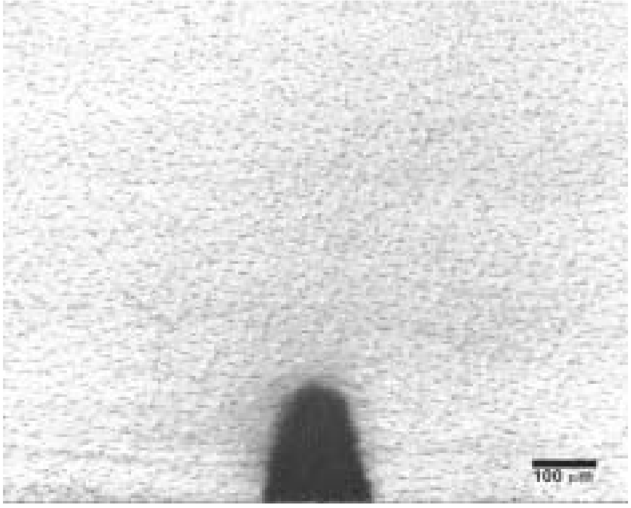


Fig.1. Fine Hydrides precipitated in the Water-Quenched CB Specimens.

60ppm 및 280ppm의 수소를 장입한 cantilever beam 시편의 노치선단 주위의 수소화물 재배열에 대한 thermal cycle 효과를 알아보기 위해서 균질화처리 후 수냉 한 시편에 대해서 Fig.2.와 같은 thermal cycle을 가하였다. 또한 열 기계적 이력 동안 수소화물 재배열에 대한 응력효과를 알아 보기 위해서 thermal cycle 동안 $K=6.13MPa\sqrt{m}$의 낮은 응력세기와 $K=18.4MPa\sqrt{m}$의 높은 응력세기를 Fig.2.에 나타낸 각각의 A, B, C 지점에서 부가함으로써 수소화물 재배열에 대한 응력세기 효과를 관찰 하였다. 시편 내에 존재하는 수소화물의 분포 및 재배열 관찰은 abrasive paper(#2000)를 사용하여 시편을 연마한 후 swap etching을 행 한 후 광학현미경을 이용하여 관찰하였다. 이 때 사용된 부식액은 10%HF - 30%HNO_3 – 30%H_2SO_4 - 30%H_2O을 사용하였다.

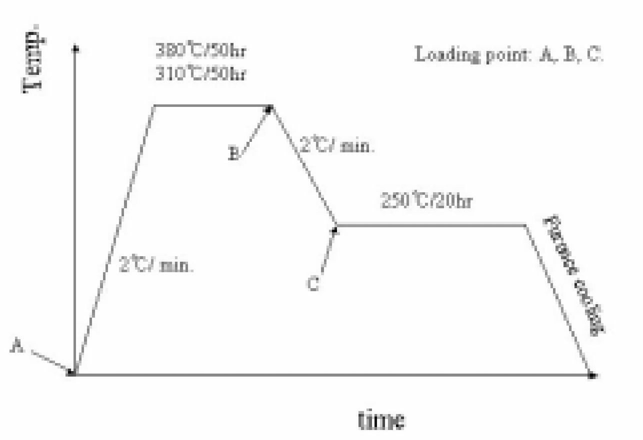
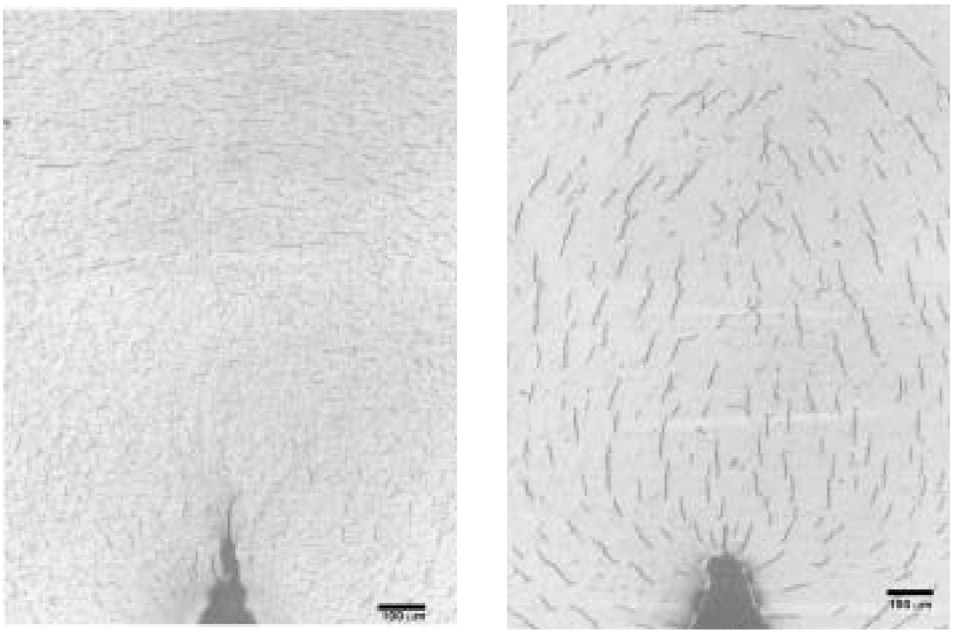


Fig.2. Thermal Cycle Treatment applied on the CB Specimens taken from the Zr-2.5Nb tube along with points of Time when the Stress Intensity Factor is applied.

3. 결과 및 고찰

thermal cycle 초기에 K=18.4MPa√m의 높은 응력세기가 CB 시편에 가해질 때 (Fig.2의 A 지점) 압력관 내의 수소화물 재배열은 thermal cycle의 최대온도(peak temperature)에 강하게 의존한다. Fig.3.은 K=18.4MPa√m의 동일 응력세기에서 최대온도를 각각 310℃와 380℃로 변화시킨 경우에 있어서의 수소화물 재배열 양상을 관찰한 것이다. 상대적으로 낮은 310℃의 최대온도에서는 노치선단 근처에서만 국부적으로 반경방향(radial direction)으로 미세한 수소화물의 재석출이 관찰되고 재배열된 수소화물의 파괴에 의한 DHC 균열이 발생하였다. 그러나 최대온도를 380℃로 증가시킴에 의해서 310℃의 낮은 최대온도와 비교하여 노치선단 뿐만 아니라 시편 전체에 걸쳐 상대적으로 조대한 수소화물이 반경방향으로 석출되었으며 DHC 균열이 발생하지 않았다. 이 결과는 수소화물을 파괴시키는데 필요한 응력 이상의 외부 응력하에서 재배열된 수소화물이 DHC 균열을 조장한다는 기존의 연구 결과와는 상반된 것이다. 이는 지르코늄 합금에서 DHC 발생에 대해서 수소화물 재배열 이외의 Kim[5]의 DHC 모델에서 제안한 것과 같은 수소의 과포화농도 같은 다른 인자가 지배인자로 작용할 수 있다는 것을 암시해 준다.



(a) 310℃ (b) 380℃

Fig.3. Distribution of Reoriented Hydrides in the Zr-2.5Nb Tube with the Peak Temperature when the Stress Intensity Factor of 18.4MPa√m is applied from the Beginning of the Thermal Cycle.

Fig.3b와 같은 동일한 380℃의 최대온도 까지 thermal cycle 동안 thermal cycle 초기에 K=6.13MPa√m의 낮은 응력세기를 가할 경우 압력관 내의 수소화물 재배열 거동을 Fig.4에 나타내었다.

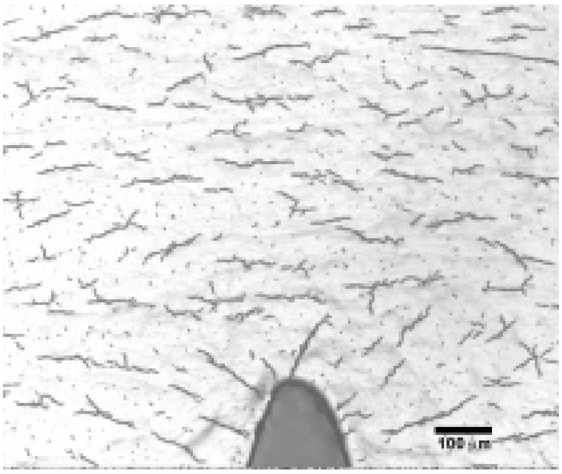
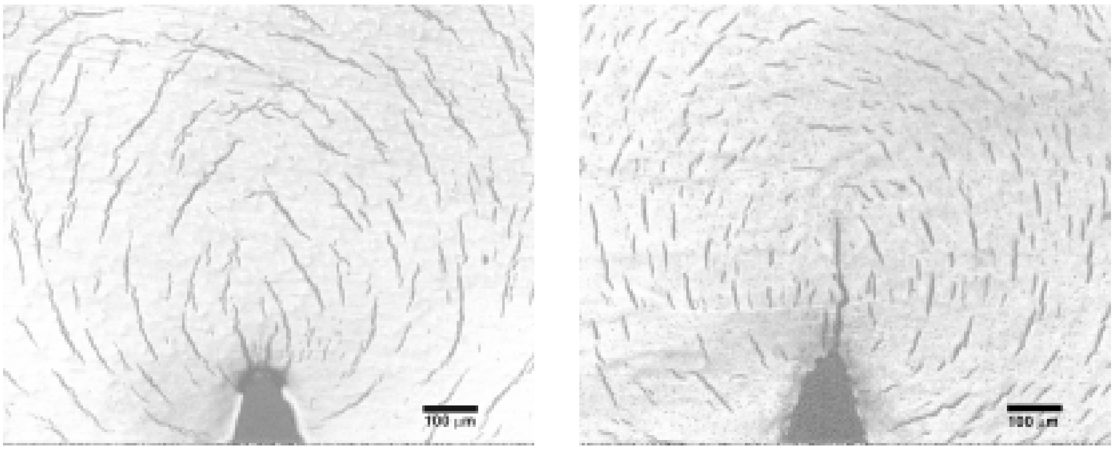


Fig.4. Reorientation of Hydrides in the Zr-2.5Nb Tube when the Stress is applied from the Beginning of the Thermal Cycle (K = 6.13MPa√m).

Fig.3(b)와 Fig.4에서의 응력세기 변화에 따른 재배열된 수소화물 양의 비교는 응력세기가 증가함에 따라 압력관 노치선단의 원주방향에서 반경방향으로의 수소화물 재배열이 증가한다는 것을 알 수 있으며 또한 thermal cycle의 최대온도에서 시험온도(test temperature)로 냉각동안에 수소화물의 재석출이 촉진된다는 것을 알 수 있다.

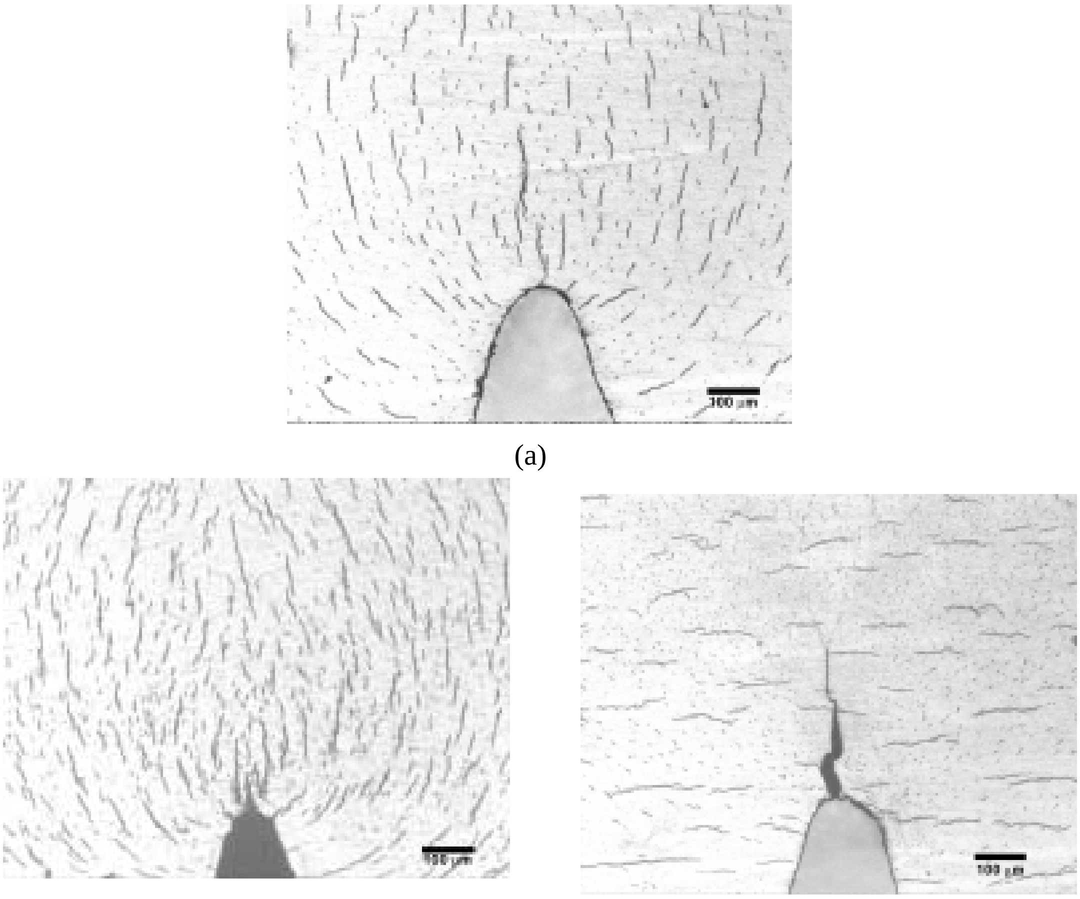
Zr-2.5Nb 압력관에서 수소화물의 재배열 및 DHC 발생에 미치는 수소농도 효과를 알아 보기 위해서 각각 60ppm 과 280ppm의 수소를 장입한 시편에 대해서 상온부터 380℃의 최대온도 까지 thermal cycle을 가하는 동안 최대온도 유지 종점에 K=12.3MPa√m의 동일응력세기를 가하여 수소농도 변화에 따른 수소화물의 재석출 거동 및 DHC에 대한 수소농도 효과를 Fig.5에 나타내었다. Fig.5(a)의 60ppm의 수소를 장입한 경우 노치선단 주위에 조대한 수소화물들이 재배열되어 있음을 알 수 있다. 반면에 280ppm의 수소를 장입한 Fig.5(b)의 경우 60ppm의 경우와 비교하여 상대적으로 크기가 작은 수소화물 들이 노치선단 주위에 재배열 되었으며 또한 노치선단에 DHC 균열이 발생됨을 알 수 있다. 이로부터 동일응력, 동일 최대온도에서의 thermal cycle 동안 수소화물의 재배열 및 DHC 균열 발생에 Zr-2.5Nb 압력관에 존재하는 수소농도가 큰 영향을 미침을 알 수 있다.



(a) 60 ppm (b) 280 ppm

Fig.5. The Effect of Hydrogen Concentration on the Hydride Reorientation at the same Stress Intensity Factor (K= 12.3 MPa√m) during the thermal cycle.

Fig.6.은 수소화물 재배열에 대한 소성변형 영향을 알아 보기 위해서 상온부터 380℃까지 thermal cycle을 가하는 동안 가해주는 응력 부가 시점의 변화가 Zr-2.5%Nb 압력관 내의 수소화물 재배열에 미치는 영향을 조사하기 위해서 Fig.2의 각각 상온, 최대온도 유지 종점, 250℃에 K=18.4MPa√m의 응력세기를 가하여 실험한 결과를 나타낸다. 상온[Fig.6(a)]과 최대온도 종점[Fig.6(b)]에서 응력을 부가한 경우 수소화물 재배열에 큰 차이는 나타나지 않으나 최대온도 종점에서 응력을 가한 경우 노치 선단에 DHC 균열이 발생하였다. 250℃에서 응력을 부가한 경우[Fig.6(c)]는 원주방향에서 반경방향으로의 수소화물 재배열이 관찰되지 않았으며, 단지 노치선단에 국부적인 응력집중에 의해서 발생된 DHC 균열 선단에만 수소화물의 재배열이 발생되었다. Fig.6에서 Zr-2.5%Nb 압력관에서 수소화물의 재배열은 외부응력이 존재하는 상태에서 최대온도에서 냉각 시 발생됨을 알 수 있다. 또한 동일한 thermal cycle 조건하에서 상온과 달리 최대온도로부터 냉각 시나 250℃에서 응력을 부가한 경우 DHC 균열이 발생하는데, 이는 상온에 응력을 가한 경우 thermal cycle의 최대온도에서 유지 동안 항복응력 감소에 의한 소성변형 증가에 의해서 시편 전체에 걸쳐 수소화물의 재배열이 발생함으로써 DHC 균열이 발생하지 않았으나 250℃의 시험온도에 응력을 부가한 경우는 상대적으로 항복응력이 낮기 때문에 소성변형이 적고 따라서 노치선단에 국부적인 응력집중이 증가하기 때문으로 사료된다.



(a)

(b) (c)

Fig.6. Reorientation of Hydrides in the Zr-2.5Nb Tube with when to apply Stress Intensity Factor on the CB Specimens subjected to the Thermal cycle: (a) at the Beginning of the Thermal Cycle, (b) at the End of the Hold at the Peak Temperature and (c) at the Test Temperature of 250 ^{o}C.

4. 결론

Zr-2.5Nb 압력관에서 수소화물의 재배열은 thermal cycle 동안 최대온도가 높고 가해진 응력세기가 증가함에 따라 증가하였다. Thermal cycle 동안 동일한 최대온도, 동일한 가해진 응력세기하에서 압력관내에 존재하는 수소농도가 증가함에 따라 상대적으로 작은 수소화물이 관찰되고 DHC 균열이 발생하였다. 또한 thermal cycle 동안 가해주는 응력부가 시점의 변화에 의해서 다른 수소화물 재배열 양상을 보였다. 즉, 상온이나 최대온도에서 냉각시 시편 전반에 걸쳐 수소화물 재배열이 관찰되나 250℃의 시험온도에서는 노치선단에만 수소화물 재배열이 관찰되고 DHC 균열이 발생하였다

후 기

본 연구는 과학기술부 원자력 중장기 개발 사업 중수로 압력관 기술개발 과제의 일환으로 수행된 것으로 연구비 지원에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. C.E. Coleman, “Effect of Texture on Hydride Reorientation and Delayed Hydride Cracking in Cold Worked Zr-2.5Nb”, Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 754, p. 393, ASTM (1982).
2. Y.S. Kim, S.C. Kwon and S.S. Kim, “Crack Growth Pattern and Threshold Stress Intensity Factor, KIH, of Zr-2.5Nb Alloy with the Notch Direction”, Nucl. Mater., 280, 304 (2001).
3. S.J. Kim, Y.S. Kim, K.S. Im, S.S. Kim and Y.M. Cheong, “Delayed Hydride Cracking of Zr-2.5Nb tubes with the Notch Tip Shape and Cooling Rate”, J. Kor. Inst. Met. & Mater., 41, 21(2003).
4. Y.S. Kim, Y. Perlovich, M. Isaenkova, S.S. Kim and Y.M. Cheong, “Precipitation of Reoriented Hydrides and Textural Change of α-Zirconium Grains during Delayed Hydride Cracking of Zr-2.5%Nb Pressure Tube”, J. Nucl. Mater., 297, 292 (2001).
5. Y.S. Kim et al., “DHC Velocity and K_{IH} of Zr-2.5Nb Tubes with Hydrogen”, Journal of Metals, 55 (2), 383 (2003).
6. Y.S. Kim et al., “A Manual for Characterization Tests for Zr-2.5Nb Pressure Tubes”, KAERI Technical Report, KAERI/TR-1329/99 (1999).