

CANDU Zr-2.5Nb 압력관의 DHC거동에 미치는 조사열화의 영향

Effect of Neutron Irradiation on DHC Velocity at CANDU Zr-2.5Nb Pressure Tube

최승준, 안상복, 임경수, 김성수, 김영석
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

본 연구의 목적은 현재 월성 원자력 발전소의 Zr-2.5Nb 압력관의 수명평가를 위해 실제로 중성자 조사된 압력관의 DHC 속도를 최초로 평가하는 것이다. 따라서 월성 원자력 발전소에서 채취한 M11 tube(Effective full power year: 9.3 year, Accumulated neutron fluence: $7.66 \sim 8.91 \times 10^{25}$ n/m²)를 Hot Cell에서 가공하여 CT(Compact Tension)시편(수소함유량: 48 ppm)을 제조한 후 Hot Cell 내부에 설치된 Instron 8502 장비를 이용하여 DHC 시험(실험온도 182도, 160도)을 행하였다. 이때 압력관의 부위별 조사선량의 차이와 냉각수 온도의 차이가 DHC 속도에 미치는 영향을 평가하기 위해 세부위(Inlet, Middle, Outlet)에서 시편을 채취하였다. 본 실험 결과로 중성자 조사된 시편의 경우 비조사된 시편에 비해 약 4~6배의 빠른 DHCV 속도($5.298E-0.8 \sim 7.039E-8$ m/s: 182 oC)를 보였다. 이러한 결과는 Pickering 발전소에서 채취한 시편(평균 $4.5E-8$ m/s: 182 oC)에 비해 평균적으로 다소 높은 DHCV를 보이는데 이는 Pickering 발전소보다 더욱 가혹한 조건(높은 냉각수 온도, 고과워 및 효율)에서 월성 원자로가 작동되기 때문인 것으로 생각된다. 한편 DHC 파면에서 관찰되는 Striation Spacing은 기존의 비조사재의 것에 비해 훨씬 작은 것으로 나타났다. 이러한 결과를 종합하고 이를 각 시편의 항복강도와 비교한 결과 비조사된 시편보다 빠른 DHCV와 작은 Striation Spacing을 보이는 것은 조사손상에 의한 재료 취화에 따른 항복강도에 변화에 기인하는 것으로 생각이 된다.

Abstract

The objective of this study is to evaluate the lifetime of Zr-2.5Nb pressure tube at Wolsung Unit-1. The testing materials (Effective full power year: 9.3 year, Accumulated neutron fluence: $7.66 \sim 8.91 \times 10^{25}$ n/m²) were sampled from M-11

tube at various position(inlet, middle and outlet). The cutting was carried out at Hot cell to fabricate CT(Compact tension) specimen with 48 ppm hydrogen content. In the result of DHC test, irradiation-damaged specimen showed 4~6 times faster DHC velocity($5.298E-0.8 \sim 7.039E-8$ m/s: 182 °C) than non-irradiated specimen. These DHCV results also show slight faster than one of specimen from Pickering plant (average DHCV: $4.5E-8$ m/s: 182 °C). This faster DHCV can be explained with the fact that Wolsung Unit-1 have been operated in a severe conditions(higher cooling water temperature, high power and efficiency) than Pickering one. The striation spacing which was seen DHC fracture surface at irradiated specimen showed much smaller than non-irradiated one at same testing temperature(8 μ m). After comparing these results with yield stress of specimen, faster DHCV and smaller striation spacing of irradiated pressure tube would be explained by yield stress change due to irradiation embrittlement of tube material during operation period.

1. 서론

월성원자력발전소와 같은 가압 중수로형 발전소의 압력관 재료로 CANDU Zr-2.5Nb 합금이 사용되고 있다. 이 중수로 압력관은 핵연료 집합체 및 냉각재인 중수를 지지하는 부품으로, 1차 계통의 압력경계 부품 중 가장 핵심이 되는 부품이다. 이 압력관의 설계수명은 30년이지만 설계수명 이전에 압력관이 파손되어 교체되는 사례가 캐나다에서 빈번하게 발생하고 있으며 지금까지 보고된 압력관 파손의 주원인중에 표면결함 주위나 rolled joint 부위와 같이 응력이 집중된 곳에 수소가 집중되어 나타나는 delayed hydride cracking(DHC) 가 있다. 이러한 DHC에 의한 사고는 이미 Pickering 발전소 등에서 이미 실현된 바 있으므로 10년 이상 된 월성원자력 발전소의 조사된 압력관의 임계 크랙 길이(CCL)에 의한 안전 수명을 좀더 정확히 예측하기 위해서는 조사재 압력관의 DHC 속도를 정확히 측정하는 것은 필수적인 것이다^{1,2)}. 그러나 이런 조사재의 경우 실험에 사용할 수 있는 시편의 량이 제한되어 있으므로 비조사재를 통한 제반 특성 파악을 파악한 후 이를 조사재 실험결과와 비교하여 조사재 시편의 DHC 속도에 주된 영향을 미치는 인자가 무엇인지 파악하는 것이 가장 중요한 일 중의 하나라고 할 수 있다.³⁻⁶⁾

월성 원자력발전소 1호기에는 제작 시 CANDU 2차용해 cold-worked Zr-2.5Nb 압력관이 사용되었으나, 추후에 결함이 발견된 압력관에 대해서 4차 용해 Zr-2.5Nb 압력관으로 교체되어 조성은 같더라도 공정이 다른 2종류의 Zr-2.5Nb 압력관이 같이 사용되고 있다. 한편 월성 1호기의 경우 현재 Pickering에서 수집된 정보를 토대로 안전수명을 예측하고 있으나 실제로는 Pickering 발전소에 비해 가혹한 조건에서 작동을 하고 있으므로 월성 고유의 안전수명 예측을 위한 데이터가 필요한 실정이다.⁷⁻⁹⁾ 그러므로, 월성 중수로 원자로의 안전하고 경제적인 건전성 평가를 위하여, 본 연구에서는 월성 1호기 중수로에서 운

전중에 인출된 M-11 압력관의 냉각수 인입부, 중간부 및 출구부에서 채취된 Zr-2.5Nb 압력관 시편과 비조사된 시편의 DHC 거동을 평가하여 실제 가동 중에 있는 중수로 압력관의 파괴과정을 예측하고자 하였다.

3. 실험 재료 및 방법

3-1 재료 및 시험편

본 연구에 사용한 재료는 실제 가동중인 월성 1호기로부터 추출한 CANDU Zr-2.5Nb 압력관의 여러 부위에서 CT시험편을 만들어 실험에 사용하였다. 본 연구의 DHC 실험에서는 Fig. 1(a)와 같이 위치에서 축방향의 노치를 갖는 Fig. 1(b)와 같은 CCT(Curved Compact Tension)시험편을 제작하여 사용하였다. CCT시험편의 크랙진전방향은 Axial방향이며, W 는 17 mm, 크랙비 (a_i/W)는 0.4이었다.

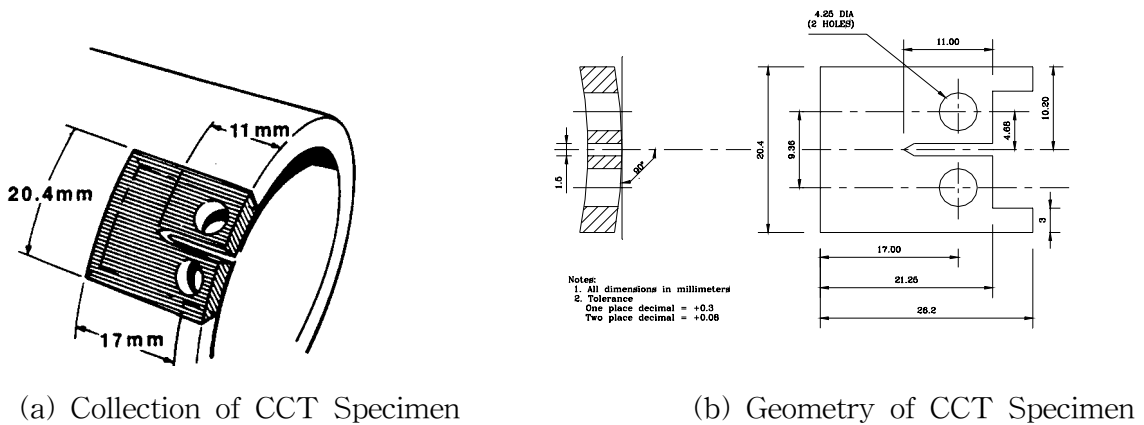


Fig. 1 CCT Specimen for DHC

3-2 수소 장입

인위적으로 두 종류 농도의 수화물을 석출 시키기 위하여 고온 음극 수소 장입 방법 (Cathodic Hydrogen Charging Method)을 이용하여 수소를 50 ppm을 장입하였다. 이 방법은 전기화학적 방법으로 시편 표면에 수화물 층을 형성시키고자 KAERI의 표준 수소 장입 절차서에¹⁰⁾ 의해 시편은 음극에 설치하고 음극의 2배 면적을 갖는 양극(납)을 65(5C로 일정하게 유지되는 0.1~0.2 molar의 황산용액(전해액)에 담근 후, 150 mA/cm²의 전류밀도를 120시간 가해, 이론치보다 50% 두껍게 시편표면에 수화물층이 형성되도록 하였다.

시편표면에 형성된 수화물 층으로부터 수소를 내부로 확산시키기 위해 균질화 처리를 수행하였다. 비조사재 시편의 경우 균질화 시간과 온도는 확산방정식을 이용하여 34 ppm을 얻기 위해 267(C에서 54 시간열처리 하였으며 조사재의 경우는 비조사재와 같은 온도와 시간에서 균질화 처리를 하였지만 McMinn등이 보고한 조사된 Zircaloy계열의 TSSD를 참고하여 약 50 ppm의 수소가 장입된 것으로 판단하였다. 따라서 비조사재와 조사재의 경우 수소농도가 약 16 ppm 정도 차이를 보이지만 그림 2(IAEA Annual Report)에서 알 수 있듯이 비조사재에서 실험한 결과 34 ppm 이상의 수소가 장입되더라도 수소농도에 의한 DHCV에서의 차이는 거의 없는 것으로 판단된다.

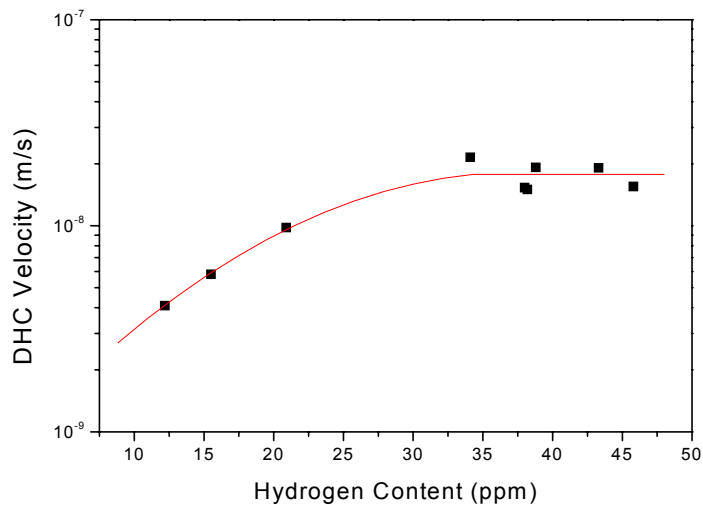


Fig. 2. Dependence of DHCV on hydrogen content at 182 °C.

본 실험에 사용된 온도와 수소농도사이에서 상대적 시편간의 수소영향을 줄이고자,

각각의 실험온도에서의 잔존 수소량을 약 25ppmH로 유사하게 설정하였다.

모든 실험은 Hot cell 내에서 이루어졌다. DHC 테스트를 위해 사용한 실험기는 Instron 8562이며, DHC 실험을 위한 그림은 Zr-2.5Nb합금을 사용하여 가공하였으며 DCPD사용시에 전류의 절연을 위하여 800°C에서 3시간 열처리 후에 공랭하여 산화막 처리를 하였다. DHC 실험 중에는 크랙 진전을 DCPD장치와 Instron 장비의 Load Line Displacement(LLD)를 이용하여 측정하였으며 실험이 끝난 후에는 image analysis 을 이용한 면적 계산법을 실제 균열길이를 측정하여 DCPD값과 LLD를 보정하였다.

3-5 DHCV (Delayed Hydride Cracking Velocity) test

재료의 수소취화 현상을 실험하기 위한 방법의 하나인 DCPD 방법을 이용하여 재료의 DHCV를 측정하였다. DHC 실험에 사용한 CCT시편의 피로예비균열은 약 1.5mm 정도 생성시켰고, 이 때 a_0/W 가 약 0.5 정도이다. 균일한 피로 균열을 생성시키기 위하여 0.5도의 tapered 핀을 이용하였다. tapered 핀은 시편의 곡률로 인하여 생기는 bending stress를 보상하기 위하여 압력관의 외부에 더 많은 힘이 분포하도록 하는 역할을 한다. 이렇게 제작한 시편은 out-put용 wire로 0.5mm ϕ 의 Zr-2.5Nb wire를 spot welding으로 부착하여 크랙이 진행됨에 따른 potential drop을 측정하였다.

DHC 시험시, 시험온도는 최소 50°C 이상 높은 온도에서 1시간 이상 유지한 후, 1~2°C/min의 속도로 냉각시켜 도달하도록 하였다. 냉각시 undercooling은 1°C 이하가 되도록 하였고, 시험온도에 도달 한 후 최소한 30분간 유지한 후에 실험하중을 가하였다. 실험하중은 K1 값이 약 15MPa $m^{1/2}$ 가 되도록 하였다. 모든 가열-냉각 과정은 컴퓨터로 제어되는 온도 controller를 이용하여 자동으로 제어하였다. 전형적인 시간에 따른 온도와 하중의 변화를 그림 3에 나타내었다. 크랙의 성장은 DCPD와 LLD를 사용하여 측정하였다. 4mA의 정전류를 공급하여 크랙의 진행에 따른 DCPD의 변화를 측정하여 크랙의 길이를 예측하였다. 실험은 DHC 균열의 길이가 1.5~2mm 정도가 되면 중단하였다.

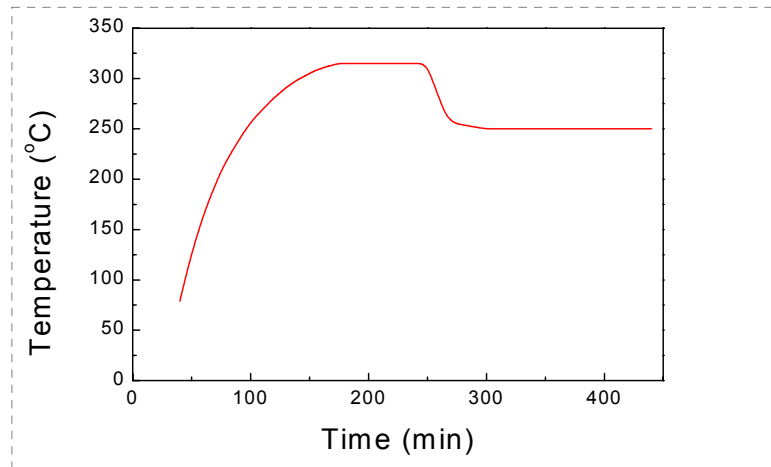


Fig. 3. Schematic diagram of specimen temperature and applied loading during DHC Testing.

DHC 시험을 종료한 후, 시편을 파단하여 피로균열의 길이와 DHC 크랙의 길이는 High scope를 이용하여 이미지를 얻은 후 이를 Image analyzer를 이용하여 측정하였다. 측정된 피로크랙과 DHC 크랙의 길이는 초기 K1값과 시험이 종료될 때의 K1값을 계산하는데 이용하였다.

본 실험에서는 Inlet, Middle 그리고 outlet 모두 182도의 해당 온도 구간에서 실험을 수행하였다. 각 조건에 대하여 2개의 시편을 원칙으로 실험하고, 필요에 의해 추가적인 실험을 하였다.

3. 실험 결과

3.1 DHCV(Delayed Hydride Cracking Velocity) 결과

본 실험에서는 종방향에 대해 CCT 시편을 제작하여, 50ppm의 수소농도와 182도의 온도구간에 대해 DHC의 특성을 조사하였다. 또한 측정된 data는 기존의 Zr-2.5Nb 압력관의 data와의 상대 비교를 통해 그 특성을 분석하였다.

각 부위별 및 온도별 DHCV를 그림 4에 그래프로 도식하였다. 이를 DHC에 대한 Simpson-Puls 모델에 적용한 후 이때 $D_H C_H^S$ 만이 온도에 크게 영향을 받는 것으로 가정하여 균열전파속도를 $constant \cdot \exp(-Q/RT)$ 의 열적 활성화과정으로 표현할 경우 Inlet은 $Q=41KJ/mol$ 이며 Outlet은 $Q=38KJ/mol$ 인 것을 확인할 수 있었다. 위의 표와 그래프에서 알 수 있듯이 DHCV 속도는 기존에 알려진 Sagat 등의 결과(Inlet>Middle>Outlet)와는 다르게 Outlet쪽이 가장 빠르고 그 다음으로 Middle, Inlet으로 역순인 것으로 나타났다. 하지만 그림 5에서 확인할 수 있듯이 각각의 차이는 작았으며 데이터 모두가 Sagat 등이 실험 했던 결과의 실험 결과 범위내에 들어 있는 것을 확인할 수 있었다. 이때 조사된 월성압력관 튜브의 활성화 에너지는 $Q=39KJ/mol$ 로 Sagat 등의 $Q=41KJ/mol$ 로 거의 차이

가 없음을 확인할 수 있었다. 이때 DHCV에 대한 K값의 영향을 평가하기 위하여 가해진 K값에 대한 DHCV 속도를 그림 6에 나타내었다. 그림 6에서도 알 수 있듯이 비조사재와 마찬가지로 K값은 DHCV에 영향을 미치지 않음을 알 수 있었다.

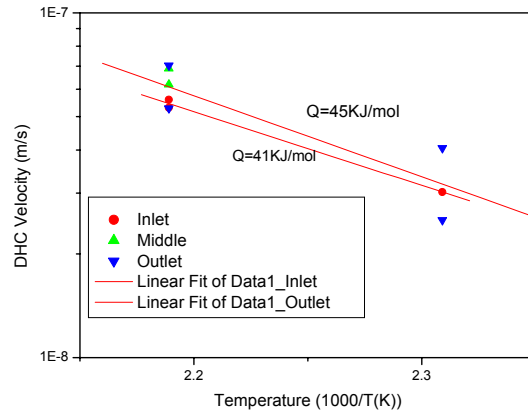


Fig. 4. The DHCV comparison of irradiated pressure tube

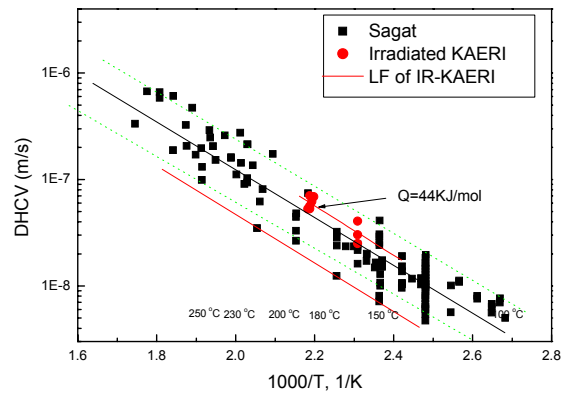


Fig. 5. The DHCV comparison of irradiated pressure tube with Sagat's results

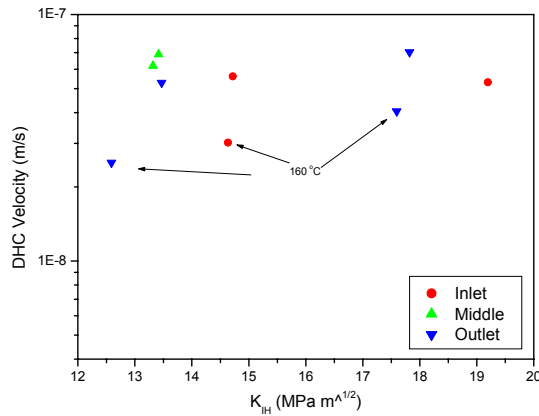


Fig. 6. The K dependency of DHCV

3-2 항복강도와 DHCV와의 비교

인장강도에 따른 DHCV 관계를 알아보기 위하여 조사재 인장거동 실험에서 얻은 데이터를 이전의 논문에서 발췌하여 인장강도에 따른 DHCV 관계를 그림 7에 나타내었다. 그림 7은 온도의존성을 배제하기 위해 기존의 농도와 확산계수 식을 이용하여 plotting한 그래프이다. 여러가지 다른 온도와 항복응력을 가진 재료에서 측정된 DHCV를 diffusion coefficient, 와 terminal solid solubility limit, 로 나누어 주면 항복응력과의 관계를 한 곡선으로 표시할 수 있다. 온도 의존성을 제거하기 위해 온도에 대해 무차원화시킨 일반 공식(1)은 다음과 같다.

$$DHCV = C_H \cdot D_H \cdot \exp(\sigma_{ys}) \text{ [m/s]} \quad (1)$$

Where $C_H = 10.2 \exp(-35000/RT)$ [at%],

$$D_H = 2.17 \times 10^{-7} \exp(-35100/RT) \text{ [m}^2/\text{sec]} \quad \text{and} \quad \sigma_{ys} = \text{yield stress [MPa]}$$

또한 이와 유사한 실험을 통해 안정되고, 신뢰를 얻을 수 있었던 공식(2)을 적용하여⁽⁸⁾, 실험을 통한 data와의 연관성을 비교하였다.

$$DHCV = 2032 C_H \cdot D_H \cdot \exp(0.00782\sigma_{ys}) \text{ [m/s]} \quad (2)$$

그림 7에서 보이는 것과 같이 인장강도의 증가에 따라 DHCV가 감소하는 것을 확인할 수 있었다.

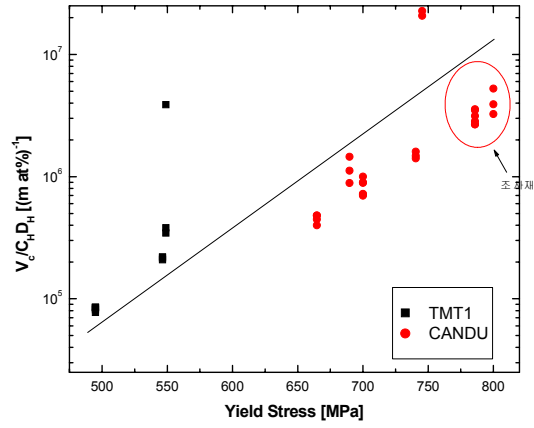
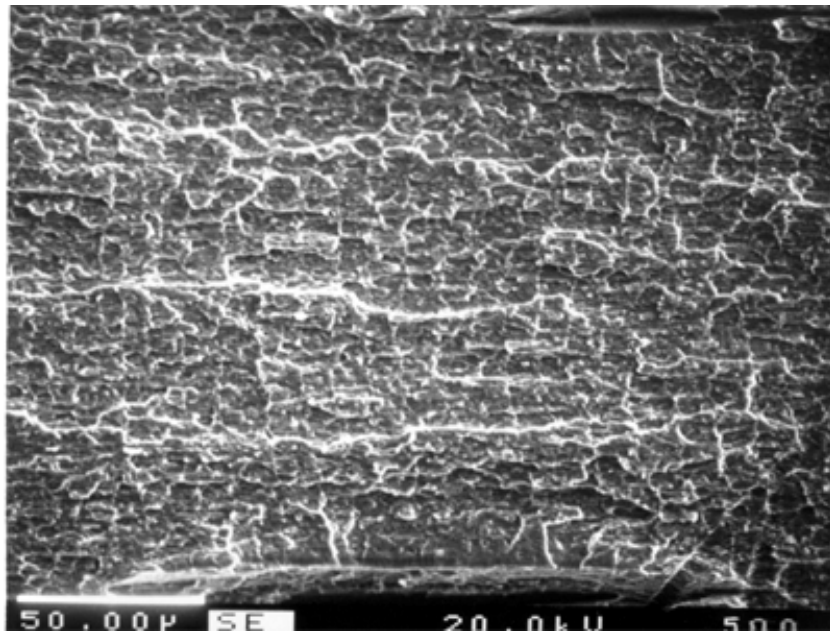


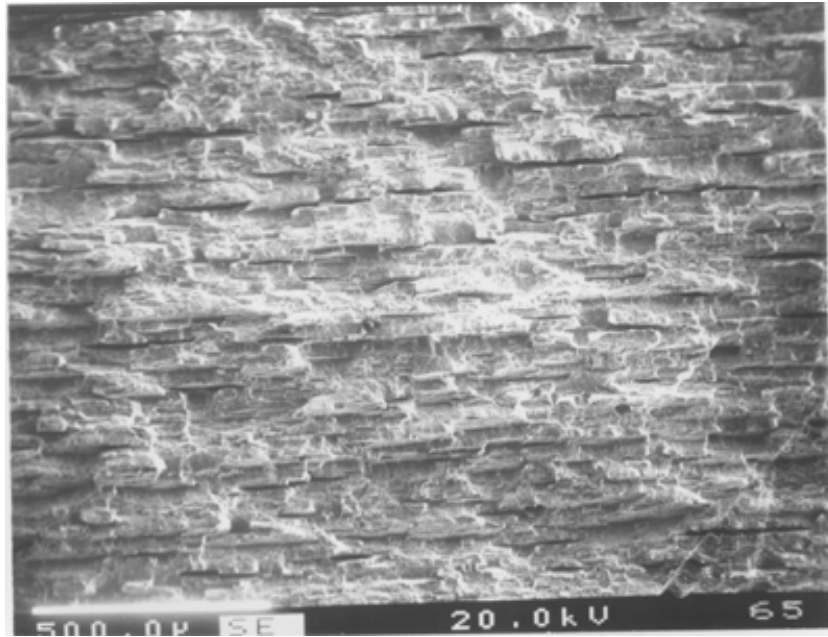
Fig. 7. Relationship between normalized DHCV and Yield stress by C_H and D_H

4. Fractography

조사열화된 M11 압력관의 DHC 파면을 전자현미경을 이용하여 관찰한 결과를 그림 8에 나타내었다.



DHC파면



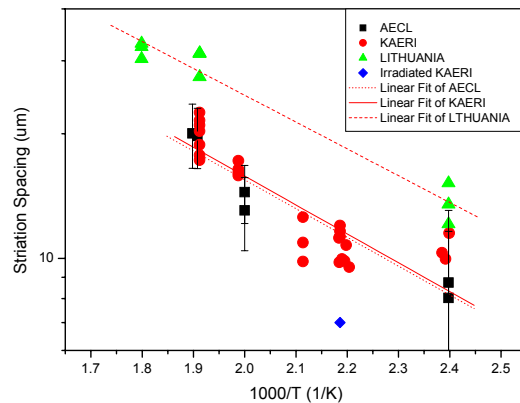
일반 파면

Fig. 8. SEM Image of fractured Specimen

그림 8에서 알 수 있듯이 DHC파면에서는 Striation Spacing이 명확히 드러남을 확인 할 수 있었다. 또한 이 Striation Spacing은 기존의 비조사재 간격보다 훨씬 좁은 것을 알 수 있었다. 한편 일반 파면의 경우 전형적인 취성파괴 형태를 보여주는 것을 확인하였다.

5.2 striation Spacing

그림 8에서 관찰한 Striation Spacing을 이용하여 기존의 비조사재 데이터와 비교를 한 것을 그림 9에 나타내었다.



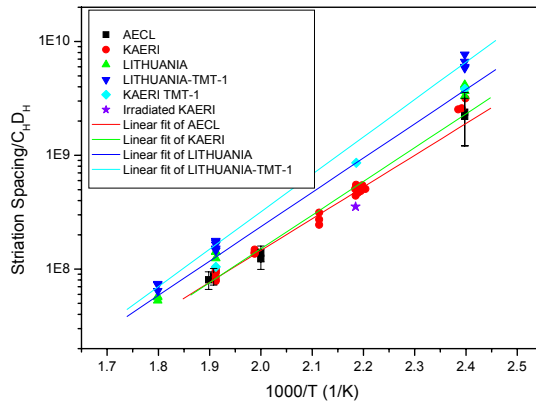


Fig. 9. Striation Spacing of CANDU-type pressure tube

위의 그래프에서 알 수 있듯이 Striation Spacing은 비조사재 시편에 비해 작음을 알 수 있었다.

5. 결론

조사된 CANDU 시편을 가지고, DHC 테스트를 한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

중성자조사된 시편의 경우 비조사재에 비해 DHCV가 빨라짐을 알 수 있었으며 실험 온도가 증가할수록 지수함수적으로 DHCV가 빨라지는 것을 확인하였다. 이때의 DHC 속도는 Outlet > Middle > Inlet 순으로 나타났으나 기존에 보고된 실험결과의 오차 범위에 있는 것으로 실제로는 거의 차이가 나지 않았다. 한편 전체 실험에서 얻어진 DHCV는 Pickering 발전소보다 월성1호기의 경우 가혹한 조건(높은 냉각수 온도, 작동효율 등)에서 운전되기 때문인 것으로 생각된다. 이때 측정된 DHCV를 조사재의 인장강도와 비교하여 보면 온도효과를 제거할 경우 재료의 인장강도가 증가할수록 DHCV가 빨라지는 것을 확인할 수 있었다. 이는 인장강도의 증가에 따라 재료내의 수소의 확산이 빨라지기 때문인 것으로 사료된다. 한편 DHC 과면을 관찰한 결과 DHC 특유의 striation line이 관찰되었으며 이 striation spacing은 기존의 비조사재의 것에 비해 짧은 것으로 나타났다.

후기

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

6. 참고문헌

1. B. G. Parfenov, V.V. Gerasimov and G.I. Venceliktova, "Corrosion of Zirconium and Zirconium Alloys", translated from Russian, Israel Program for Scientific Translations, 1984
2. B. Cox, "Mechanism of Hydrogen Absorption by Zirconium alloys", AECL-8702, 1984
3. M.P. Puls, "Hydrogen-induced Delayed Cracking: 1. Strain Energy Effects on Hydrogen Solubility", AECL-6302, 1975
4. L. A. Simpson, K. Nuttall, ASTM STP 633, 1977, pp. 608-629
5. K. Nuttall and A. Ragwski, Journal of Nuclear Materials, 80, 1979, 279
6. Young Suk Kim, Yuriy Perlovich, Margarita Isaenkova, Sung Soo Kim, Yong Moo Cheong, Journal of Nuclear Materials, 297, 2001, 292-302
7. Y. S. Kim et al., KAERI Report, KAERI/RR-1766/96, Korea Atomic Energy Research Institute, 1997
8. 김상재, 김영석, 임경수, 김성수, 김성수, 정용무, 대한금속재료학회지, 42-2, 2003, 21-27
9. Y. S. Kim, S. S. Park, S. S. Kim, Y. M. Cheong, K. S. Im, in Proceedings of 1st Materials and Fracture Symposium, 82, 2002
10. 김 영석외 4인, Zr-2.5 Nb 압력관의 특성 시험 절차서, KAERI/TR-1329/99, 원자력 연구소, 1999