

## 중수로 압력관에서 초음파 속도비 방법을 적용한 수소화물 블리스터의 비파괴적 탐지 및 평가

### Non-Destructive Detection and Evaluation of Hydride Blisters in PHWR Pressure Tubes using a Ultrasonic Velocity Ratio Method

정용무, 이동훈, 김상재, 김영석

한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

#### 요 약

중수로 압력관이 주위를 둘러싸고 있는 칼란드리아관과 접촉될 경우, 압력관의 내면과 외면의 온도차로 인하여 수소(중수소)의 열확산이 발생하며 결과적으로 압력관 외면에 수소화물 블리스터가 형성된다. 수소화물 블리스터는 음향학적으로 지르코늄 매트릭스와 연속성을 가지기 때문에 일반적인 초음파 검사법으로는 탐지하기가 어렵다. 지르코늄 압력관 외면에 발생한 작은 수소화물 블리스터를 압력관 내면에서 탐지하기 위하여 초음파 속도비 방법을 개발하였다. 정적인 열확산 실험장치를 사용하여 압력관 외면에 수소화물 블리스터를 성장시켰다. 종파 에코의 비행시간과 모드변환된 반사횡파 에코의 비행시간을 측정하여 종파대 횡파의 속도비를 계산하였으며 이를 속도비를 수정된 C-scan 표현 방식으로 나타냈다. 초음파 속도비 방법이 일반적인 종파 비행시간 방법보다 수소화물 블리스터 탐지 감도가 우수하며 블리스터 형상화 측면에서도 실제 형상과 유사하게 재현하고 있음을 알 수 있었다.

#### Abstract

When the pressure tubes(PT) contact to the calandria tube(CT) in the pressurized heavy water reactor(PHWR), the temperature difference between inner and outer wall of PT results in a thermal diffusion of hydrogen (deuterium) and hydride blisters are formed on the outer surface of PT. Because the hydride blisters are acoustically continued to zirconium matrix, it is not easy to detect the blisters with conventional ultrasonic method. An ultrasonic velocity ratio method was developed to detect small hydride blisters on the zirconium pressure tube. Hydride blisters were grown in the PT specimen with a steady state thermal diffusion device. Ultrasonic velocity ratio method was developed for detection of hydride blisters. The flight time of longitudinal echo and reflected shear echo from the outer surface were measured and calculated to the parameter of velocity ratio of longitudinal wave to shear wave. The velocity ratio was plotted to modified c-scan display and converted to contour plot. Compare to the conventional

longitudinal wave flight time method, the velocity ratio method shows superior sensitivity to detect smaller blisters as well as images of the blister shapes.

## 1. 서론

중수로 압력관은 원자로 운전 중에 중성자 조사에 의한 크리프가 발생하여 축방향 길이 팽창이 일어난다. 또한 압력관과 칼란드리아관 사이에 간격을 유지하기 위하여 설치된 garter spring 이 설계 위치에서 이동하는 경우 압력관 처짐이 발생하며 칼란드리아관과 접촉하는 경우가 발생한다. 중수로 압력관이 칼란드리아관과 접촉할 경우 압력관 내면과 외면에 온도 구배가 발생하며 접촉 부위(냉점)으로 수소가 확산하여 수소화물로 모이게 되는 데 이때 수소화물의 부피 팽창으로 인하여 냉점 표면이 부풀어 오르는 현상을 수소화물 블리스터라고 한다. Fig. 1에 수소화물 블리스터 발생 단계를 보였으며 이러한 블리스터는 부피 팽창에 의한 부풀어오름과 동시에 균열이 발생하기 때문에 지연수소균열(Delayed Hydride Cracking)의 원인이 되는 등 중수로 압력관의 안전성에 중요한 영향을 끼치는 인자이다.

1983년도에 캐나다 Pickering 원전 2호기에서 발생한 압력관 파열 사고의 원인이 수소화물 블리스터에 의한 것이라고 밝혀지면서 [1] 압력관과 칼란드리아관의 접촉으로 발생하는 냉점과 수소 확산, 블리스터 형성한계, 잔류응력 분포 등에 관한 종합적인 연구가 수행된 바 있다[2-7]. 한편 이렇게 발생한 블리스터는 그 표면에 균열이 존재할 가능성이 높고 그 자체를 결함으로 간주하기 때문에 가동중검사에서 초음파 탐상법으로 탐지하여야 한다. 그러나 지르코늄 압력관은 그 두께가 4.2 mm로 얇은 튜브에 속하고 블리스터 깊이도 최대 수백  $\mu\text{m}$  이다. 게다가  $\delta$ -상으로 표현되는 수소화물 블리스터는 압력관 재료인  $\alpha$ -지르코늄 매질과 음향학적으로 연속성을 가지기 때문에 일반적인 초음파 탐상법으로는 이를 탐지할 수 없다.

본 연구에서는 이러한 수소화물 블리스터를 탐지하기 위하여 종파/횡파 속도비를 이용한 블리스터를 탐지 방법을 개발하였다. 실험실적으로 제조한 블리스터 시편에 대해 이 방법을 적용한 결과 매우 우수한 탐지 성능을 나타낸 것은 물론 블리스터의 형상까지도 정확히 알아낼 수 있음을 밝혀냈다.

## 2. 초음파 속도비에 의한 블리스터 탐지

일반적으로 종파 모드로 초음파 탐상을 수행할 경우 저면 (압력관 외면)에서 반사된 종파와 더불어 종파에서 횡파로 모드 변환된 반사횡파가 나타난다. [11]. Fig. 2에 보인 바와 같이 수침 초점형 탐촉자를 사용하여 블리스터를 함유한 지르코늄 압력관에 초음파를 송신하면 Fig. 3와 같은 종파 반사 에코와 더불어 종파-횡파 모드 변환된 에코가 동시에 나타난다. Fig. 3에서 A 는 물/시편 계면 에코,  $B_1$  은 첫번째 종파-종파 저면 반사 에코 (L-L), RS (Reflected Shear) 는 저면에서 모드 변환된 종파-횡파 저면 반사 에코 (L-S),  $B_2$  는 두 번째 종파 저면 반사 에코 (L-L-L-L)을 의미한다.

Fig. 3에 보인 각각의 신호에 해당하는 비행 시간을 계산하여 이를 종파 속도/횡파 속도 비율로 표현하면 다음과 같다.

$$\frac{V_L}{V_S} = 1 + \frac{2(RS - B_1)}{B_2 - B_1} \quad (1)$$

, 여기서  $V_L$ ,  $V_S$  는 각각 종파 속도 및 횡파 속도이며, RS,  $B_1$ ,  $B_2$  는 각 반사파의 비행 시간을 의미한다.

윗 식에서 보인 바와 같이 각각의 모드 신호에 해당하는 비행 시간 차이를 측정하면 종파/횡파 속도비를 계산할 수 있으며 초음파 센서를 압력관 내면에서 정밀 주사하면서 plot하면 블리스터의 형상을 표현할 수 있다. 특히 블리스터 부위는 외면이 부풀어오르기 때문에 압력관 두께가 변화하는 데 윗 식은 시편 두께에 무관하기 때문에 일반적인 초음파 탐상법 보다 정밀한 결과를 얻을 수 있다.

Table 1에 보인 바와 같이 지르코늄 매질과 수소화물간의 속도는 종파의 경우 수소화물이 빠른 반면에 횡파의 경우에는 수소화물이 느리다. 즉 수소화물 블리스터의 비율이 증가함에 딸 종파 속도는 빨라지고 횡파 속도는 느려지기 때문에 종파/횡파 속도 비율을 측정인자로 선택하면 지르코늄 매질과 수소화물 블리스터의 차이를 극대화할 수 있다. Table 1 에 따라 압력관의 건전 부위와 블리스터 부위에 대한 속도비를 구하면 블리스터의 깊이 또는 비율에 따라  $V_L/V_S = 2.0 \sim 2.8$  사이의 값을 가지게 된다.

### 3. 실험 방법

#### 3.1. 수소 장입

중수로에서 실제 사용되는 Zr-2.5Nb 압력관 (직경 112 mm, 두께 4.2 mm)을 시편으로 사용하여 압력관 특성시험 절차서 KAERI-ZR-100-1에 의거하여 전해법으로 수소를 장입하였다[8]. 장입할 목표 수소 농도에 따라 전해법으로 시편 표면에 수소화물을 형성한 뒤 이를 진공 밀봉 후 annealing하여 균질화 처리함으로써 수소가 시편 전체에 고르게 확산하도록 하였다. 균질화에 소요되는 시간은 시간에 따른 농도 profile을 기초한 확산 거리 공식을 적용하여 시편 중앙에서의 수소 농도가 표면에 대해 97%가 되는 시간을 계산하였다.

#### 3.2. Hydride Blister 형성

압력관 시편 외면에 수소화물을 형성, 성장시키기 위하여 Fig. 4에 보인 열확산 장치를 통하여 steady thermal field를 시편에 가했다.  $415 \pm 2^\circ\text{C}$ 로 유지되는 항온 알루미늄 블록 위에 시편을 놓고 시편-블록 간에 열접촉을 균일화하기 위하여 알루미늄 분말을 도포하였으며 시편 상부 중앙을 평평하도록 연마한 뒤 수냉 알루미늄 finger를 사용하여 냉점을 구성하였다. 냉각수 온도는  $14 \sim 16^\circ\text{C}$ 로 유지되었으며 블리스터가 충분히 성장하도록 하기 위하여 30일 동안 열확산을 실시하였다. 별도의 온도 측정을 실시하지는 않았으나 유한요소법으로 온도 분포를 분석한 결과 냉점 위치에서  $173^\circ\text{C}$ , 고온 블록과 시편 접촉면에서  $369^\circ\text{C}$ 로 나타났으며[9] 이는 다른 연구 결과 [10]와도 유사하다.

#### 3.3. 초음파 속도비 방법에 의한 블리스터 탐지 실험

본 실험에서는 직경 6.35 mm, 주파수 10 MHz, 구면형 초점거리 20.3 mm인 수침형 탐촉자를 사용하였다. 초음파 펄스 발진을 위해서는 JSR DPR-50 plus 장비(최대 발진 주파수 50 MHz)

를 사용하였으며 디지털 오실로스코프(Lecroy LC 574A, 샘플링 주파수 = 1 GHz)로 반사파의 비행 시간을 측정하였다. Fig. 5에 본 실험 조건에 대한 빔 초점 크기를 계산한 결과를 보였다. 압력관 저면 (압력관 외면 또는 블리스터) 에서의 종파-횡파 모드 변환된 반사파가 최대가 되도록 탐촉자-압력관 내면 사이의 물거리를 조정한 상태에서 각각 신호에 대한 비행 시간은  $10^{-9}$  second의 정밀도로 다중 에코 신호의 첫 번째 peak의 최저점을 기준으로 하여 측정하였다. 실제로 종파-횡파 모드 변환된 횡파의 감도가 가장 좋은 물거리 (water distance)는 약 10 mm 였으며 이 조건에서 실제로 측정된 오실로스코프 파형을 Fig. 6에 보였다. 또한 이 실험 조건에서 초점형 탐촉자에서 발생한 초음파가 지르코늄 압력관 내면에서 굴절되어 들어가는 형상을 빔 퍼짐 현상을 무시하고 계산한 결과, 압력관 외면 또는 블리스터 위치에서 defocused 되는 길이는 약 0.5 mm 이며 정확한 초점 위치는 외면에서 내부로 약 1 mm 정도 들어간 위치로 계산되었다.

#### 4. 실험 결과 및 고찰

Fig. 7에 전형적인 수소화물 블리스터의 단면 사진을 보였다. 냉점 주위로 수소화물이 몰려들면서 압력관 외면에 약간 부풀은 형상을 나타내고 있으며 외면에서 발생한 균열도 관찰된다. 블리스터 균열은 표면에서 시작하며 블리스터 내부로 전진하고 있음을 알 수 있으며 그럼에도 불구하고 어떤 경우에도 균열은 블리스터와 지르코늄 매질의 경계면을 넘지 않는다.

Fig. 8 (a) 에 실험실적으로 제작된 블리스터 시편의 외면 사진을 보였다. 이 시편은 초기 수소농도 200 ppm 으로 415°C에서 1 개월 동안 블리스터로 성장시킨 시편이다.

정밀 scanner를 사용하여 초음파 센서를 이동하면서 각각의 모드별 비행 시간을 측정하면서 블리스터 주위를 주사한 뒤 속도비 방법으로 계산한 뒤 x-y 면에서 contour plotting 한 결과를 Fig. 8(b)에 보였으며 종파 비행시간 측정하여 이를 contour plot 한 결과를 Fig. 8(c)에 보였다. 초음파 속도비 측정 결과와 종파 비행시간 측정 결과 모두 실제 블리스터 외관 형상과 거의 비슷한 contour plot 를 얻었다. 다만 초음파 속도비 방법이 보다 높은 감도를 보임을 알 수 있다.

초음파 속도비 방법의 탐지한계를 알아보기 위해서 보다 작은 블리스터에 대한 실험 결과를 Fig.9에 보였다. Fig. 9(a)에는 수소농도 188 ppm 으로 415°C에서 14일간 블리스터로 성장시킨 시편의 사진을 보였으며 이를 초음파 속도비 방법으로 측정한 결과를 Fig. 9(b)에, 종파 비행시간 측정 결과를 Fig. 9(c) 에 보였다. 블리스터의 크기가 작아짐에 따라 종파 비행시간 측정법으로는 거의 블리스터를 구분하기 어려우나 초음파 속도비 측정 결과에서는 블리스터의 모양을 알 수 있다. Fig. 10에서 이 시편의 단면 사진을 보면 블리스터 크기는 대략 깊이 및 길이가 각각 0.5 mm 정도임을 알 수 있다. 이를 Fig. 5 에서 계산한 초음파 초점 거리와 defocussed된 거리가 대략 0.5 mm 임을 감안해 보면 위와 같은 실험 조건에서 초음파 속도비 방법으로 블리스터를 탐지할 수 있는 한계는 보수적 관점에서 대략 0.5 mm 정도라고 간주할 수 있다.

한편 이러한 작은 블리스터에 대해서 종파 비행시간 측정 결과로는 블리스터의 존재를 알 수 없었으므로 초음파 속도비 방법이 종래의 종파 비행시간 측정법보다는 높은 탐지능 및 분해능을 보임을 알 수 있다.

#### 5. 결론

진해 수소 장입법으로 수소를 장입한 지르코늄 압력관 시편에 대해서 수소화물 블리스터를 성장시켰다. 블리스터를 탐지하기 위한 종파/횡파 속도 비율 방법에 의한 실험 방법을 확립하였으며

저면에서 반사되는 종파 에코에 대한 시간 및 횡과 모드 변환된 에코에 대한 비행 시간을 측정하였다. 종파/횡파 속도비를 x-y 면에서 주사하면서 측정한 데이터를 modified c-scan plot 또는 contour plot로 표현한 결과 수소화물 블리스터를 탐지함은 물론 그 형상도 거의 정확히 알아낼 수 있었다. 한편 본 검사 조건에서 최적화된 초음파 속도비 방법으로 블리스터의 탐지능은 약 0.5 mm 정도로 판단된다.

앞으로 자동화 주사장치를 개발하여 중수로 가동중검사 시에 압력관의 블리스터를 탐지하는데 사용할 수 있을 것이다.

## 후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 사업 중 중수로 압력관 건전성 평가기술 개발 과제에서 수행되었습니다.

## 참고 문헌

1. G. J. Field, J. T. Dunn, B. A. Cheadle, Can. Metall. Q. 24 (3) (1985) 181.
2. Y. M. Cheong, U. S. Gong, K. N. Choo, S. S. Kim, Y. S. Kim, J. Korean Nucl. Soc., 33 (2) (2001) pp.192-200.
3. Y. M. Cheong, S. C. Kwon, H. K. Jung, J. Mater. Sci., 35, (2000) pp.1195-1200.
4. Y. M. Cheong, S. S. Kim, Y. S. Kim, J. Nucl. Mater., 303 (2002) pp.83-91.
5. 정용무, 공운식, 권상철, 김성수, 김영석, Hydride Blister를 함유한 Zr-2.5Nb 압력관 재료의 Cantilever Beam 시험, 한국원자력학회 2000 춘계학술발표회 논문집.
6. 정용무, 공운식, 권상철, 김성수, 김영석, Zr=2.5Nb 압력관 재료에서 Hydride Blister의 생성 및 파괴, 2000 기기건전성 Workshop, KINS (2000.5.9).
7. 정용무, 공운식, 김상재, 김영석, 지르코늄 압력관에서 Hydride Blister 에 의한 잔류응력 측정, 대한기계학회 2001 재료 및 파괴부문 학술대회논문집 (2001) pp. 128-133.
8. 김영석, 정용무, 권상철, 안상복, Zr-2.5Nb 압력관특성시험 절차서, 한국원자력연구소, KAERI/TR-1329-99 (1999).
9. 정용무, 공운식, 주기남, 김성수, 김영석, 한국원자력학회 99 추계학술발표회 논문집 (1999).
10. G. Domizzi, and et al., J. Nucl. Mater. 229 (1996) pp. 36-47.
11. Y. H. Kim and J. K. Lee, H. C. Kim, Rev. Prog. QNDE, 24, (1996) pp.987-994.
12. P. P. Nanekar, et al., Proc. ZIRC-2002, pp.270-274, BARC (Sep. 2002).

Table 1. Ultrasonic velocity and velocity ratio [12].

Material	$V_L$ [m/s]	$V_S$ [m/s]	$V_L/V_S$
$\alpha$ -Zr	4,780	2,380	2.08
$\delta$ -hydride	5,400	1,900	2.80

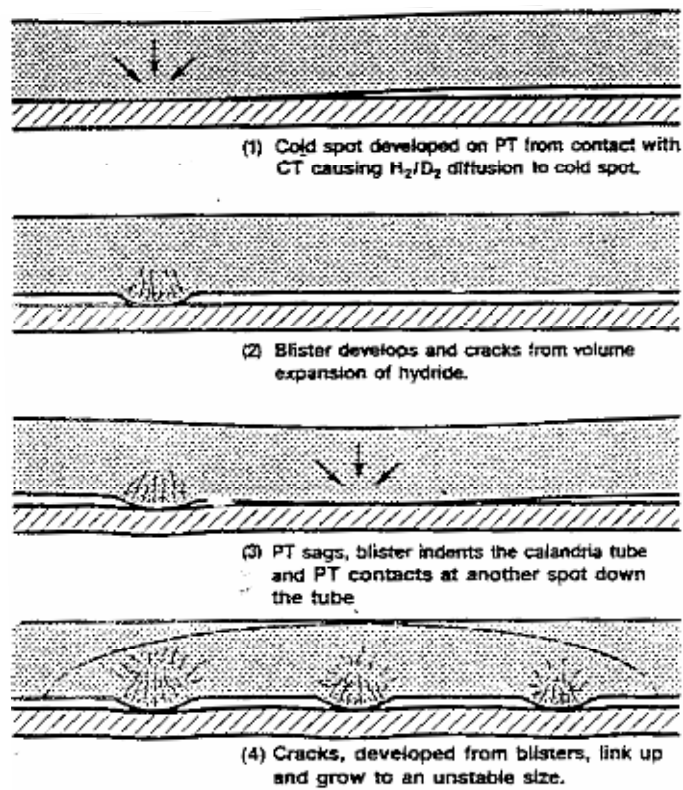


Fig. 1. Mechanism of hydride blister formation and growth.

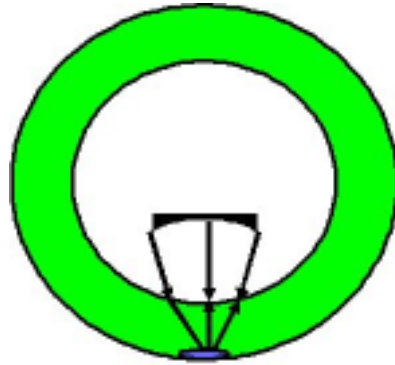


Fig. 2 Ultrasonic velocity ratio measurement for blister detection.

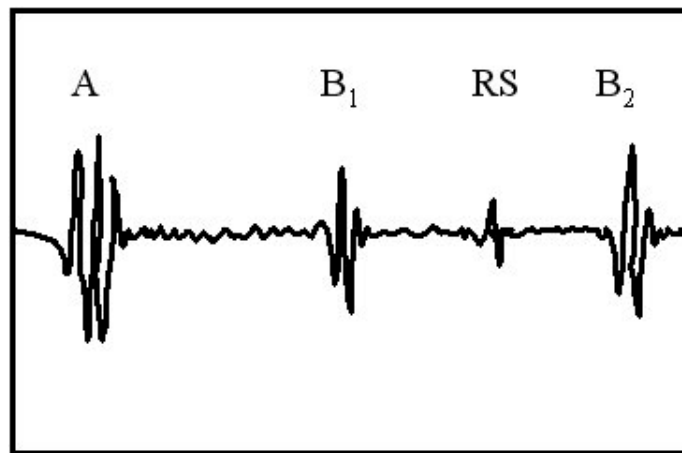


Fig. 3. schematic echo pattern in time domain.

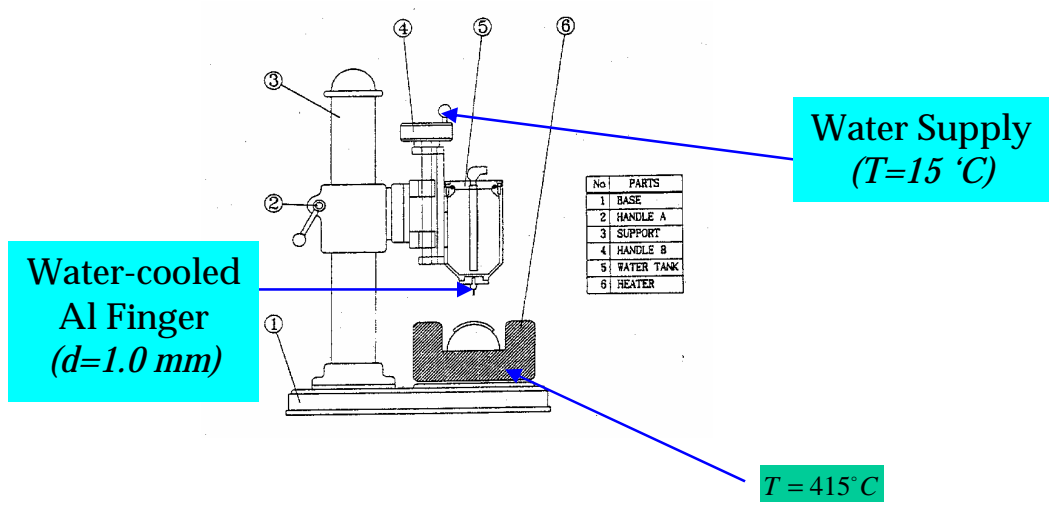


Fig. 4. Thermal diffusion device for formation and growth of hydride blister.

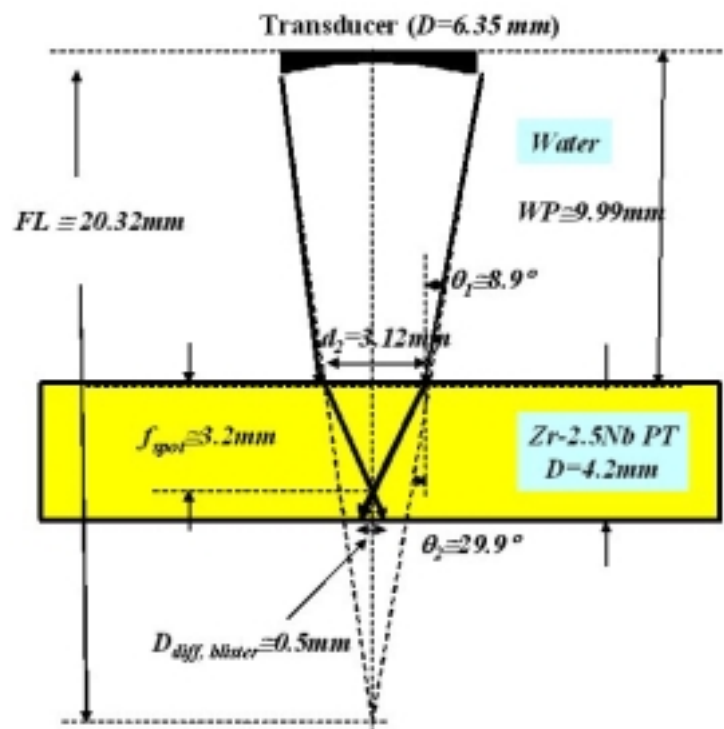


Fig. 5. Calculation of water distance and focal point at the blister in the Zr-2.5Nb pressure tube.



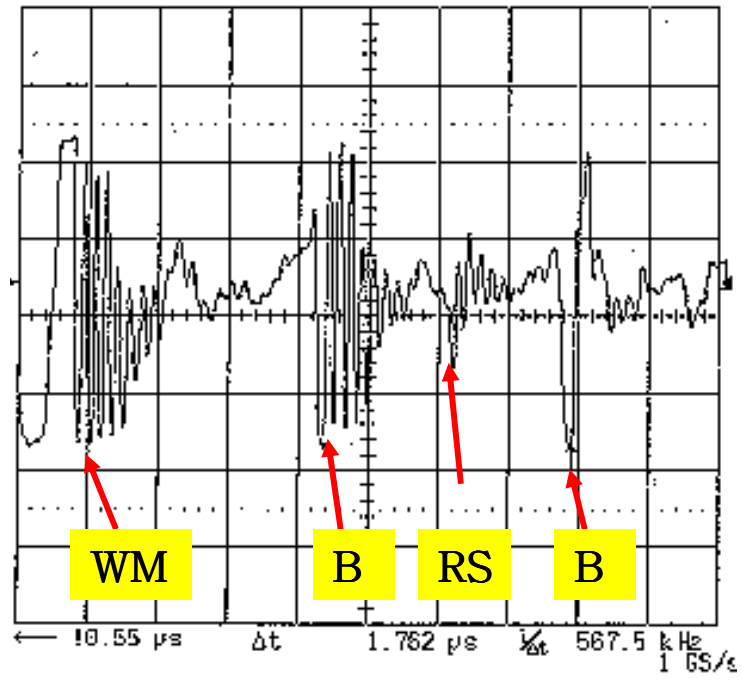


Fig. 6. Typical CRT echo pattern



Fig. 7. Typical cross-sectional view of hydride blister.

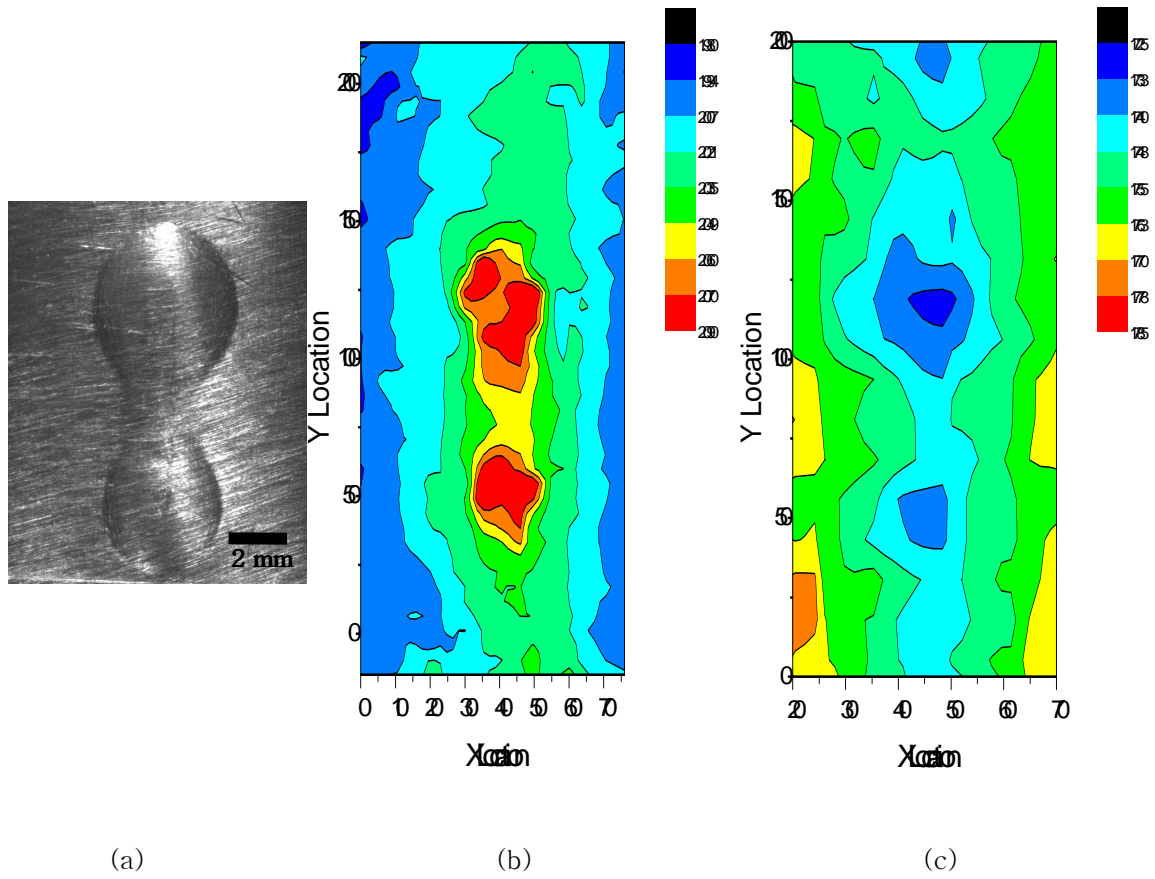


Fig. 8. Comparison of (a) outer shape of blister grown 30 days with  $[H] = 200$  ppm (scale bar = 2 mm), (b) Contour plot of velocity ratio method, (c) Contour plot of time-of-flight of longitudinal wave method.

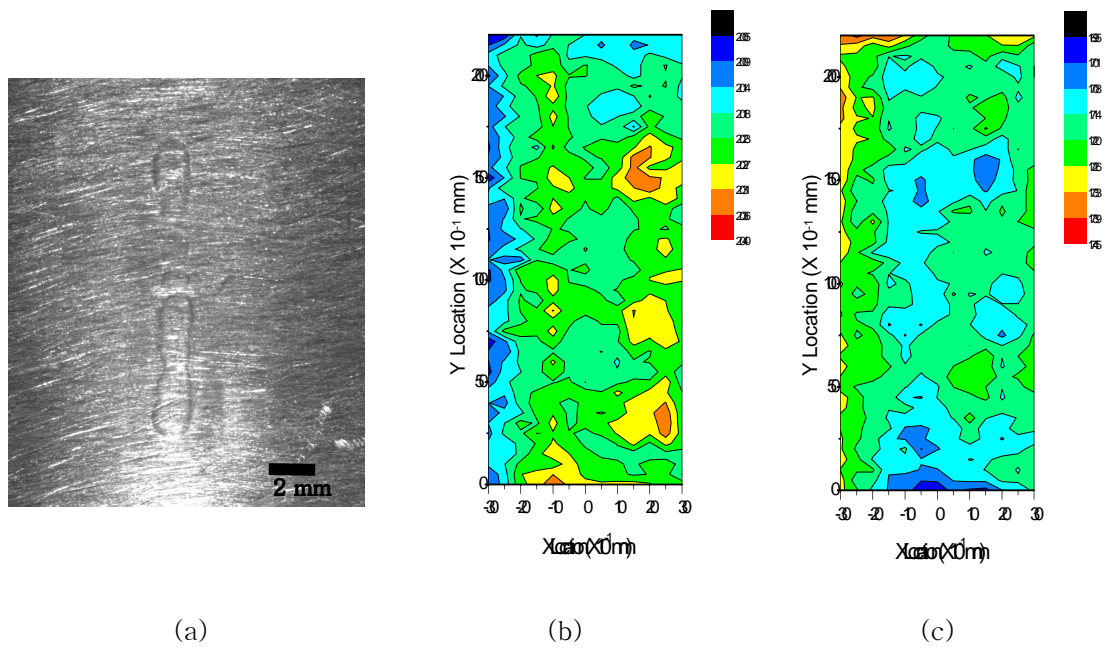


Fig. 8. Comparison of (a) outer shape of blister grown 14 days with  $[H] = 188$  ppm (scale bar = 2 mm), (b) Contour plot of velocity ratio method, (c) Contour plot of time-of-flight of longitudinal wave method.

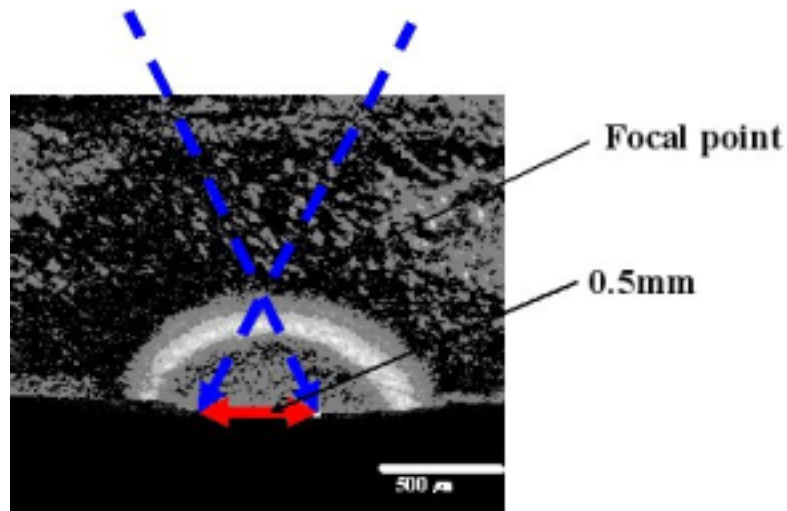


Fig. 10. Cross sectional view of blister grown for 14 days with  $[H] = 188$  ppm. The focal spot and defocused area indicates the resolution of the inspection condition be no greater than 0.5 mm.