2003 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

Zr-2.5Nb 압력관에서 과포화된 수소량에 따른 K_{1H}

Behaviors of K_{1H} by Supersaturated Concentration of Hydrogen in Zr-2.5Nb Pressure Tube

김상재*, 김성수, 임경수, 정용무, 김영석

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150 번지

요약

Zr-2.5Nb 압력관에서 DHC 현상을 이해하기 위해, 수소량을 달리하여 DHC 실험을 하였다. 수소를 60ppm, 80ppm, 100ppm 장입한 Zr-2.5Nb 압력관을 사용하여, 균열 방향이 길이방향인 CCT 시편과 반경방향인 CB 시험편으로 제작하였다. DHC 실험은 280 °C 에서 실험하여 임계응력 집중 계수, K_{1H} 값을 구하였다. 수소량이 60ppm 일때 길이 방향에서는 비정상적인 높은 K_{1H} 값을 가졌고, 반경방향에서는 균열이 일어나지 않았다. 수소량이 80ppm, 100ppm 으로 증가될수록 K_{1H} 값은 길이방향으로 5.84 $MPa\sqrt{m}$, 반경반향으로 8.4 $MPa\sqrt{m}$ 의 값으로 수렴하였고, 수소량에 영향을 받지 않았다. 이상의 결과를 파단면 분석과 지르코늄 기지내의 과포화 된 수소량으로 토론하였다.

Abstract

The aim of this study was to obtain a better understanding of delayed hydride cracking (DHC) of Zr-2.5Nb pressure tube with hydrogen concentration. DHC tests were conducted at 280 °C on Curved Compact Tension (CCT) and Cantilever Beam (CB) specimens with 60, 80, 100 ppm H to determine the threshold stress intensity factor, K_{1H} in axial and radial directions of the Zr-2.5Nb tube, respectively. Over a hydrogen concentraion range of 80 ~ 100 ppm, K_{1H} for the Zr-2.5Nb tube 5.84 $MPa\sqrt{m}$ in the axial direction and 8.4 $MPa\sqrt{m}$ in the radial direction, both of which were constant independent of hydrogen concentraion, However, at 60ppm, K_{1H} increased unexpectedly to a higher value. Based on the results, K_{1H} for Zr-2.5Nb tube is discussed with the fracture surface and a supersaturated concentration of hydrogen.

1. 서론

Zr-2.5wt%Nb 합금은 원자로내의 고온냉각수 분위기에서 장기간 사용되는 동안 여러 이유들에 의해

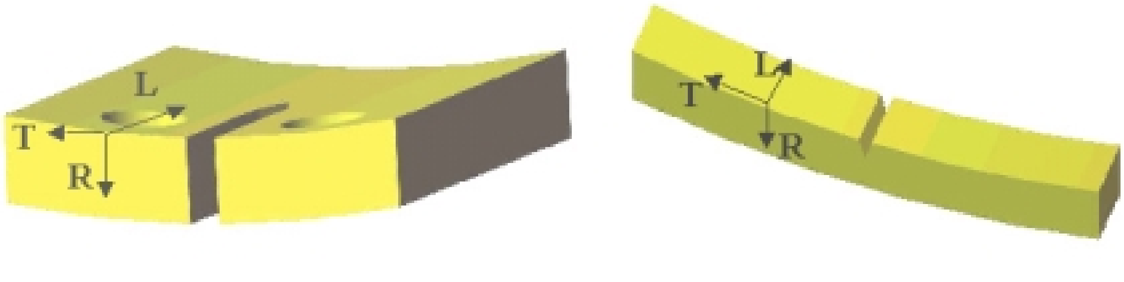
수소 및 중수소의 흡수가 발생하게 되고[1], 이들 함량이 matrix 내의 고용한도를 넘게되면 Delayed Hydride Cracking (DHC)의 유발과 수화물(Hydride)에 의한 파괴인성치의 취화로 인하여 압력관 파손사고를 일으키는 것으로 보고되고 있다[2]. 특히, rolled joint 부위 또는 표면결함 부위와 같이 높은 인장잔류응력이 존재하거나, 캘란드리아 관과의 접촉으로 온도 구배가 형성된 지역에서는 DHC 로 인한 빠른 크랙 성장으로 관통결함이 생성되어 압력관 파손이 발생하였다. 1983 년에는 압력관이 온도가 낮은 캘란드리아 관과의 접촉한 후에 형성된 hydride blister 에 의해 파단 전 누설의 안전설계 개념을 만족시키지 않고 파열된 사고도 발생한 바 있다[3]. 따라서 국내의 월성 1, 2, 3, 4 호기를 포함한 모든 CANDU 형 원자로의 경우 정기적으로 압력관내 수소흡수량 측정 및 균열발생 여부를 점검하도록 규정하고 있으며[4], 수소량에 따른 압력관의 DHC 거동에 대한 연구의 필요성이 증가하고 있다. 현재 수소량에 따른 K_{IH} 가 명확히 규명되어 있지 않는 실정이며, 본 연구에서는 장입된 수소량이 K_{IH} 에 미치는 영향을 알아보고자 했다.

2. 실험 방법

2.1 재료 및 시험 준비

본 연구에 사용된 재료는 CANDU 4 차 용해된 cold-worked Zr-2.5Nb 압력관이다. 캔두 압력관의 제조공정은 800°C 에서 11:1 로 Hot Extrusion 과 Cold Drawing (25%) 후에 400 °C 에서 24 시간 Auto clave 처리를 하였다. CANDU 압력관의 설계 최소요구 인장강도는 450 *Mpa* 이상 이어야 한다. 실제 인장 강도는 약 800 *MPa* 의 강도를 이며 원주방향의 집합도($f_t=0.61$, $f_r=0.33$, $f_l=0.07$)를 보인다. 또한, 압출시의 심한 소성변형 (11:1 의 압출비율)으로 축 방향으로 길게 늘어진 결정립자로 이루어 져있다.

Fig. 1 은 CANDU 압력관에서 균열전진 방향이 길이방향과 반경방향으로 향하도록 제작된 CCT(Curved Compact Tension) 및 CB(Cantilever Beam) 시험편을 보여준다. Fig. 1(a)는 CCT 시험편으로 너비 20.4mm, 길이 17mm 이며, Fig. 1(b)은 CB 시험편으로 너비 3.5 mm, 길이 38 mm 이다.



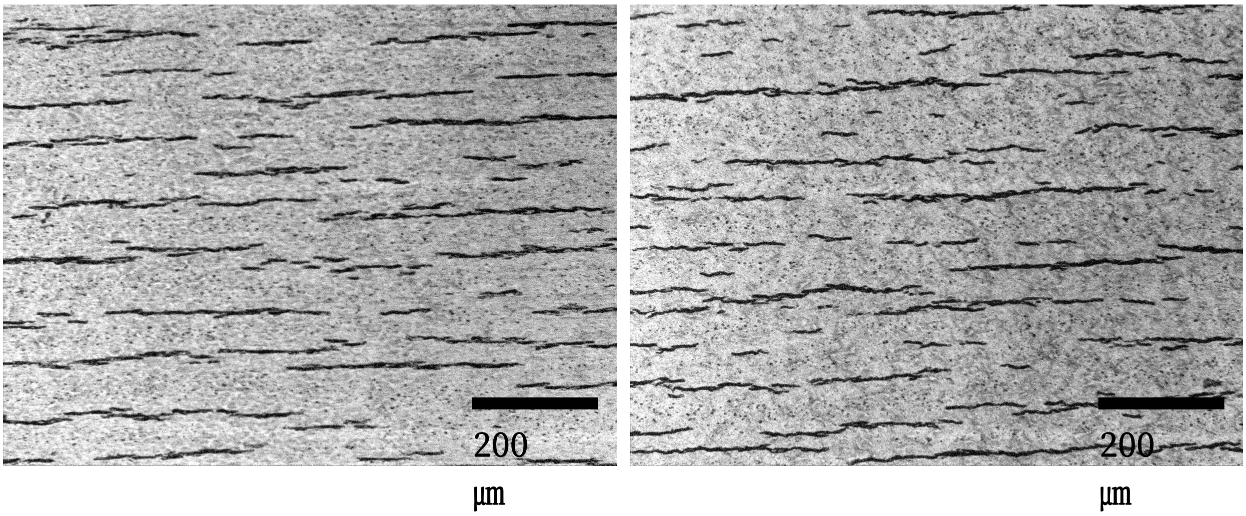
(a) CCT (b) CB

Fig. 1 Schematic Illustration of Cantilever Beam (CB) and Curved Compact Tension (CCT)

2.2 수소 장입

인위적인 농도의 수화물을 석출 시키기 위하여 고온 음극 수소 장입 방법 (Cathodic Hydrogen Charging Method)을 이용하여 수소를 60 ppm, 80ppm, 100ppm 이 되게끔 장입하였다. 이 방법은 전기화학적 방법으

로, 시편 표면에 수화물 층을 형성시키고자 KAERI 의 표준 수소 장입 절차서에 [5] 의해 시편은 음극에 설치하고 음극의 2 배 면적을 갖는 양극(납)을 65±5°C 로 일정하게 유지되는 0.1~0.2 molar 의 황산용액(전해액)에 담근 후, 150 mA/cm^2 의 전류밀도를 23 시간 가해, 이론치보다 50% 두껍게 시편표면에 수화물 층이 형성되도록 하였다.



(a)Axial Section

(b) Circumferential Section

Fig. 2 Morphology Comparison of 100 ppm Hydride after Furnace Cooling

시편표면에 형성된 수화물 층으로부터 수소를 내부로 확산시키기 위해 염욕에서 균질화 처리를 수행하였다. 균질화 시간과 온도는 확산방정식을 이용하여 60 ppm 일때 302°C 에서 33 시간, 80 ppm 일때 320°C 에서 23 시간, 100 ppm 일때 340°C 에서 18 시간동안 열처리하였다. 열처리 후 시편은 노냉(furnace cooling)하여 100ppm 의 수소를 장입한경우 Fig. 2 와 같은 수소화물을 만들었다. 균질화 열처리 후 Hot Vacuum Extraction 장치를 사용하여 장입 된 수소량을 분석하였다.

2.3 응력확대 계수 시험

균열방향이 반경방향인 CB 시험편에서 음향방출(Acoustic Emission)장치를 부착한 DHC 시험기를 사용하여 K_{1H} 을 측정하였고, 균열성장이 길이방향인 CCT 시험편에서는 DCPD 법을 사용하여 K_{1H} 을 측정하였다. 각각의 DHC 실험은 Fig. 3 와 같이 수행하였다. 초기의 K 값은 동일 조건하에서 실험의 재현성을 얻기 위해 안정한 균열성장이 일어나는 구간인 12 ~25 $MPa\sqrt{m}$ 의 평균값보다 약간 높은 20 $MPa\sqrt{m}$ 를 선택하였다. 실험온도는 분당 0.5~5°C 로 soaking 온도까지 올렸고, soaking 온도는 310 °C 에서 1 시간 유지한 뒤 1~2 °C/min 의 냉각속도로 DHC 실험온도에 도달하도록 하였다. 참고로, soaking 온도는 재료 내에 석출되어 있는 수소화물이 분해되어 재료 내에 재고용 되도록 하는 열처리로, 만약 DHC 실험 전에 soaking 열처리가 수행되지 않으면 균열진전속도의 재현성을 확보하기 어려울 수도 있다[6]. 모든 가열-냉각 과정은 컴퓨터로 제어되는 온도 controller 를 이용하여 자동으로 제어하였다. DHC 실험이 끝난 후, Zr-2.5Nb 압력관의 특성시험 절차서[5]를 참고하여 K_{IH} 구하였으며, 시험편의 파단면을 stereoscpe 및 OM

으로 관찰하였다.

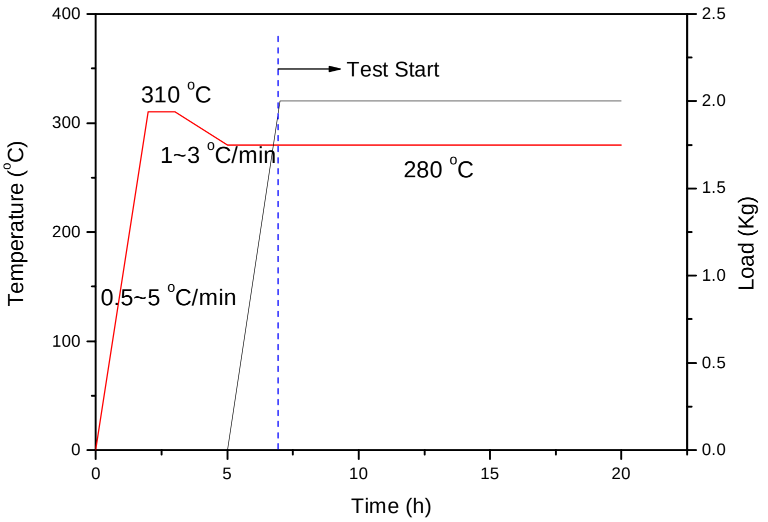


Fig. 3 DHC Test Condition

3. 실험 결과 및 고찰

3.1 균열방향에 따른 K_{IH}

Fig. 4 는 CB 시험편과 CCT 시험편을 가지고 280 °C 에서 DHC 실험을 행하여 균열방향에 따라 K_{IH} 을 비교하였다.

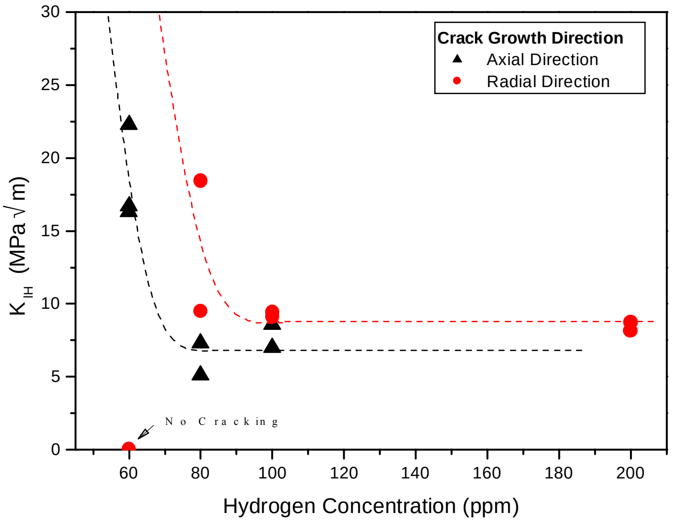


Fig. 5 Comparison of K_{IH} between CB and CCT

수소량이 60 ppm 일때 CCT 시편에서는 16 에서 20 의 높은 값으로 급격이 증가했고, CB 시편에서는 균열이 발생하지 않았다. 장입한 수소량이 60ppm 이상에서는 수소량이 더 증가하여도 K_{IH} 값은 일정하였다. 여기에서 균열이 길이방향인 경우 K_{IH} 는 평균 5.84 $MPa\sqrt{m}$ 였으며, 반경방향인 경우 평균 8.44 $MPa\sqrt{m}$ 를 가졌다. K_{IH} 는 DHC 를 일으키는 최소응력학대계수를 나타내므로, K_{IH} 값이 낮은 길이방향이 반경반향보다 더 쉽게 DHC 현상이 일어남을 이해 할 수 있다.

또한 여러 연구에 의하면, 현재까지 압력관의 길이방향의 DHCV 는 반경방향으로의 DHCV 보다 2 배정도 빠르며, 반경방향의 K_{IH} 는 길이 방향의 K_{IH} 에 비하여 약 1.5 배정도 높다고 보고되고 있다 [7-12]. 이런 결과는 파괴 역학적인 측면에서 균열의 성장은 균열 면에 수직한 방향으로 가해지는 응력에 의하여 조절된다고 이해되고 있으며, 이 균열 면에 수직한 방향에서의 기저면 성분이 높아지면 DHCV 가 커지고 K_{IH} 는 낮아지는 것으로 보고되고 있다 [8, 9].

3.2 수소효과에 따른 K_{IH}

Fig. 6 은 수소량 ΔC(장입량–TSSD)에 따른 K_{IH} 로 나타내었다. 그 결과 수소화물에 의한 지체 균열전파가 수소량 ΔC(장입량–TSSD)에 의해 영향을 받는다는 것을 알 수 있었다. Puls 의 TSSD[13]에 의한, 온도에 따른 수소 농도를 보면 280 ℃에서 49 ppm 의 고용도(TSS)를 가진다고 보고하였다.

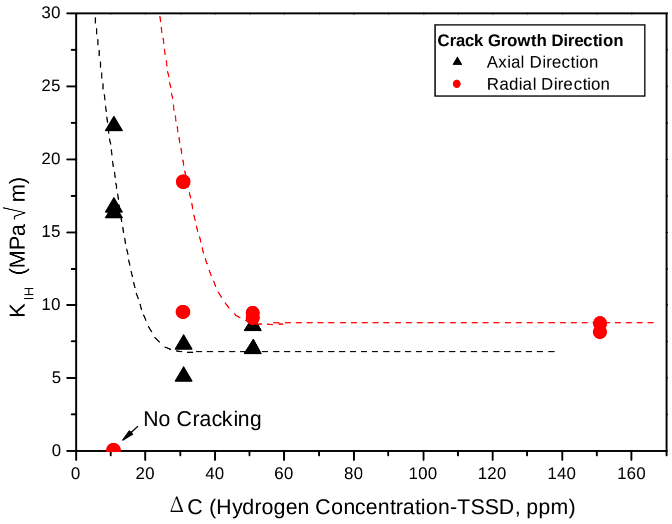


Fig. 6 Hydrogen concentration (ΔC) dependence of K_{IH} for CB and CCT at 280℃

그러므로, 장입한 수소량이 60, 80, 100, 200 ppm 인 경우, Zr 매트릭스 내에 과포화될 수 있는 수소량이 11, 31, 51, 151 ppm 이다. 여기에서 수소량을 60 ppm 장입한 경우, DHC 가 일어나기 위한 충분한 수소가 matrix 내에 없어므로 균열 방향에 관계없이 매우 큰 K_{IH} 을 보이고 있다. 앞의 말을 요약하면, K_{IH} 에 직접적인 영향을 미치는 중요한 인자는 수소량(ΔC)이며, ΔC 가 30 ppm 이상 일때 280 ℃ 에서 DHC 실험을 하면 K_{IH} 값은 일정한 값으로 수렴 하였다.

Fig. 7 은 CB 와 CCT 시험편으로 DHC 실험한 다음 파단면을 관찰한 것이다. CCT 시험편은 균열 전진

방향이 길이방향이며, CB 시험편은 균열 전진방향이 반경방향이다. 반경방향으로 균열이 전진할 때, DHC 파면이 길이방향의 파면 보다 훨씬 더 거칠다. 이것은 반경방향에서 균열 성장이 어렵다는 것을 시사한다

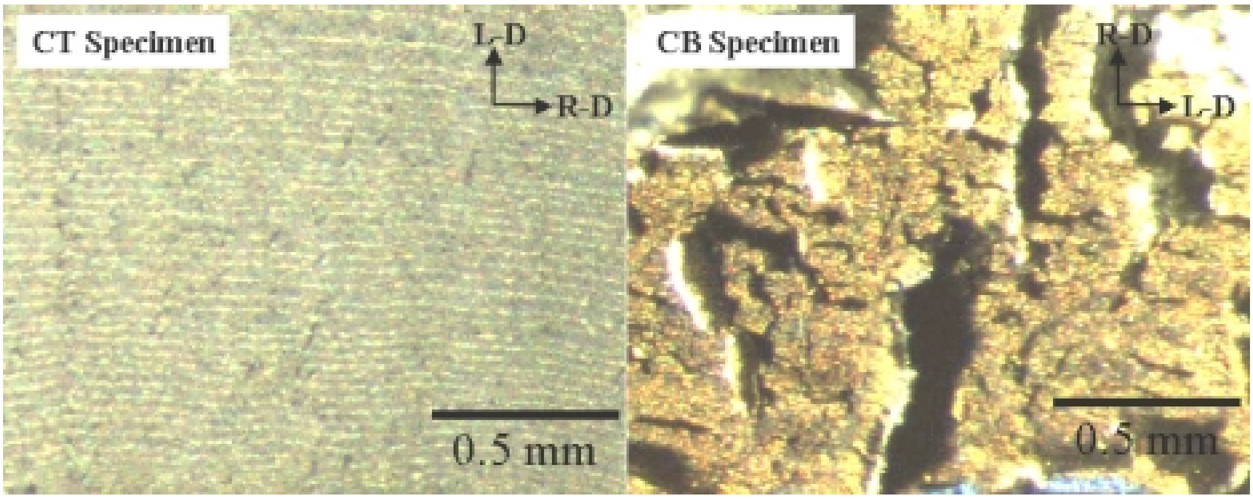


Fig. 7 Fractured Surface of CCT and CB specimen

4. 결론

CANDU Zr-2.5Nb 압력관 재료에 60, 80, 100 ppm 수소를 장입한 CCT 와 CB 시험편으로 DHC 실험을 280 °C 에서 행한 후에 K_{IH} 을 비교하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) K_{IH} 는 ΔC 가 30 ppm 이상인 경우 일정한 값으로 수렴하였다. 그 값은 길이방향이 평균 5.84 $MPa\sqrt{m}$, 반경방향이 평균 8.44 $MPa\sqrt{m}$ 였다.

(2) 파단면은 반경방향으로 균열이 진전한 것에서 매우 심하게 요철져 있었다. 이것은 K_{IH} 가 반경방향에서 더 높은 것과 잘 일치하며, 반경방향에서 균열이 성장하기 어렵다는 것을 시사한다.

후기

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발 사업 중 중수로 압력관 재료 과제에서 수행 되었습니다.

참고문헌

[1] IAEA, IAEA-TECDOC-684, IAEA, Vienna, 1993, pp.7-56.

[2] B.A. Cheadle et als, ASTM STP 939, ASTM, Philadelphia, 1987, pp.224-240.

[3] E. G. Price : AECL Report, AECL-8338 (1984)

[4] KINS, "월성원자력 1호기 정기 검사보고서 , 1994

[5] KAERI, “Zr-2.5Nb 압력관의 특성시험 절차서,” KAERI/TR-1329/99

[6] G.K. Shek and D.B. Graham, “Effects of Loading and Thermal Maneuvers on Delayed Hydride Cracking in Zr-2.5Nb Alloys,” ASTM STP 1023, 1989, pp. 89-110

[7] S. Sagat, C. E. Coleman, M. Griffiths, and B. J. S. Wilkins, Zirconium in the Nuclear Industry, Tenth International Symposium, ASTM STP 1245, 1994, pp. 35-61.

[8] S. S. Kim, S. C. Kwon, and Y. S. Kim, J. Nucl. Mater. Vol. 273, 1999, pp.52-59.

[9] C. E. Coleman, Zirconium in the Nuclear Industry, Fifth Conference, ASTM STP 754, 1982, pp. 393-411.

[10] H. Huang, & W. J. Mills, Metal. Transactions A 22A (1991), pp.2149-2060.

[11] W. J. Mills, and F. H. Huang, Eng. Frac. Mech. 39 (1991), pp. 241-257.

[12] S. S. Kim, K. N. Choo, S. B. Ahn, S. C. Kwon, Y. S. Kim, and I. L. Kook, Proceedings of the Korean Nuclear Society Spring Meeting, Seoul, Korea, May, 1998, 93-98.

[13] Z. L. Pan, M. P. Puls, “The terminal solid solubility of hydrogen and deuterum in Zr-2.5Nb alloys”, J. Nucl. Mater., 228, pp. 227-237.