

Striation Spacing과 DHC 거동과의 관계에 관한 고찰

Study of Relationship between Striation Spacing and DHC behavior

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

요 약

본 연구에서는 중수형 원자로에서 압력관 재료로 사용되는 Zr-2.5Nb 합금의 DHC 파단과 동시에 특징적으로 보여지는 striation line과 DHC 발생 온도 및 응력의 관계를 규명하고자 하였다. 실험에 사용된 재료는 CANDU Zr-2.5Nb 압력관 재료를 사용하였으며 보다 정확한 결과의 판정을 위하여 8개국에서 round robin test를 실시한 후 이중 신뢰성이 확보된 결과만을 추출하였다. DHC 실험은 100, 144, 182, 250, 280 그리고 300도에서 실시하였으며 각 온도에서 3개 이상의 시편을 DHC 실험을 행한 후 이를 파단하여 stereographic scope를 이용하여 striation spacing을 측정하였다. 한편 중성자 조사 후의 시편은 182도에서 DHC 실험을 행하였으며 이때 striation spacing은 SEM 관찰을 통하여 확인하였다. 측정된 결과로 본 실험에서 얻어진 striation spacing은 round robin test에서 얻어진 결과들 중에서 가장 신뢰성이 있는 것으로 평가되어진 AECL의 자료와 유사한 결과를 보여주어 실험결과의 타당성을 입증하였으며 DHC 실험 온도가 증가할수록 striation spacing이 커지는 것을 확인하였다. 또한 조사재의 경우 더욱 작은 striation spacing을 관찰할 수 있었는데 이는 조사손상에 의한 재료의 취화에 의해 인장강도가 증가하기 때문인 것으로 생각된다. 이와 같은 결과로 striation spacing에 미치는 영향 인자로서는 재료의 항복강도가 가장 큰 영향을 미치고 있다는 것을 확인할 수 있었다.

Abstract

The objective of this study is to evaluate the relationship between striation spacing and DHC behavior at CANDU Zr-2.5Nb pressure tube materials. In order to evaluate accurate striation spacing, Round Robin test was carried out at 8 different countries. All of DHC test were done more than 3 times at 6 different temperatures (100, 144, 182, 250, 280 and 300 °C). From the results, the our value of striation spacing were

similar to AECL results which is considered more accurate than results from other countries. It means our results and experimental procedure were certified internationally. On the basis of our confirmed results, we found out that striation spacing become bigger by increasing testing temperature from 12 μm to 35 μm at the temperature 100 $^{\circ}\text{C}$ to 300 $^{\circ}\text{C}$. Also neutron irradiated pressure tube material showed much smaller striation spacing than non-irradiated specimen. It is considerable that embrittlement of tube materials by irradiation affect the striation spacing. From these results, it is found that striation spacing depend on yield stress of material heavily.

1. 서론

Zr-2.5Nb 합금은 CANDU형 가압중수로 압력관재료로 사용되며 원자로의 일차압력경계 재료로서 압력용기의 기능을 하는 재료이다. Zr-2.5Nb 합금은 열중성자에 대한 포획단면적이 낮고 강도와 연성이 좋으며, 고온의 중수에 대한 부식저항성도 좋아 최초의 설계수명은 30년을 보장하는 것으로 되어 있다.¹⁾ 그러나 중성자 조사에 의한 Zr-Nb 압력관 재료의 성장과 rolled joint 부위의 잔류응력과 압력관 자중 및 핵연료에 의한 처짐으로 calandria tube와 접촉하여 응력구배 및 온도구배를 형성하여 수소와 중수소를 국부적으로 흡수하거나 부식반응을 통해 수소를 흡수해²⁾ 평형 고용도 이상이 되면 지르코늄 수소화물로 석출한다.³⁾ 이렇게 석출한 지르코늄 수소화물은 재료를 취약화시키며 또한 원자로에서 압력관의 주된 파손 기구인 지체균열 전파(Delayed Hydride Cracking, DHC)현상의 원인이 된다.⁴⁾

이때 DHC에 의해서 형성된 파면에서는 균열진전 방향에 수직인 면에서 피로파면과 유사한 물결무늬(striation)가 형성되는데 이러한 striation은 수소화물파괴와 남아있는 연성기지조직의 파괴에 의한 불연속적인 균열전파과정의 결과로 생성되는 것으로 알려져 있다.⁵⁾ 김 등도 striation은 크랙선단에서 응력구배에 의해 파괴에 필요한 임계길이가 성장한 수소화물의 파괴 후 연성기지조직에 의한 균열멈춤 과정에서 일어난 기지조직의 연성파괴에 의한 것이라고 보고하였다.⁶⁾

즉 이와같은 내용을 토대로 하여 살펴보면 DHC 파면, 특히 striation spacing이 실제 DHC 파괴가 어떠한 형태로 발생하였는지를 이해할 수 있도록 해주는 중요한 증거라고 할 수 있다. 따라서 본 실험에서는 striation spacing과 DHC 파괴거동과의 관계를 더욱 명확히 하고자 각각 다른 온도에서 DHC 실험이 행해진 시편의 파면을 분석하여 이의 관계를 분석하고 조사 열화된 시편의 striation spacing도 측정하여 이를 데이터 베이스화하고자 하였다. 이의 결과를 토대로 striation과 인장강도의 관계를 추론하고 주어진 응력 및 온도가 striation spacing에 미치는 영향을 알아보하고자 하였다.

2. 실험방법

Curved Compact Tension(CCT) 시편

본 연구에 사용된 재료는 냉간 가공 후 400 oC에서 24시간 응력제거 열처리된 Zr-2.5Nb 압력관이며, 축방향에서 DHC 속도를 측정하기 위하여 그림 1과 같은 W 는 17 mm, 크랙비 (a_i/W)는 0.4의 CCT 시편을 사용하였다.

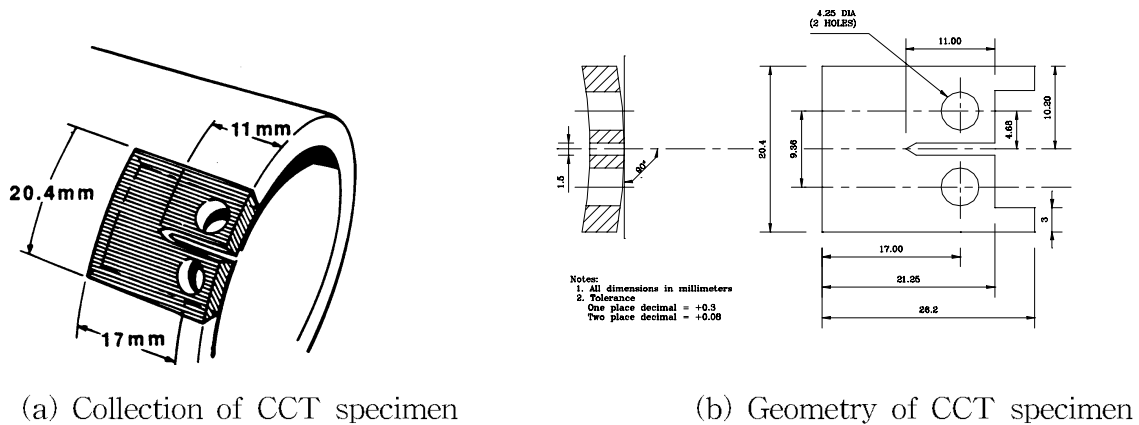


Fig. 1 CCT specimen for DHC

수소장입

재료에 수소장입은 전기분해 방식을 사용하여 충분한 두께의 수소화물 피를 시편 표면에 형성시킨 후 장입시키고자 하는 수소의 량(27, 29, 34, 60, 72, 87 ppm)에 맞는 균질화 온도 동안 진공중에서 균질화처리를 행하여 실시하였다. 보다 자세한 수소장입 절차는 한국원자력 연구소 절차서에 기술되어 있다.⁷⁾ 실제 시편 내 수소량은 LECO RH 404 수소 장치를 이용하여 최소 5번 측정하여 측정치의 평균값으로 결정하여 이론적인 수소장입량과 실제 수소장입량을 비교하였다.

DHC TEST

재료의 수소취화 현상을 실험하기 위한 방법의 하나인 DCPD 방법을 이용하여 재료의 DHCV를 측정하였다. DHC 실험을 위하여 CCT 시편에 피로예비균열은 약 1.7mm 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 $^{\circ}$ C 이상 높은 온도에서 2시간 이상 유지한 후, 1~2 $^{\circ}$ C/min의 속도로 냉각시켜 도달하도록 하였다. 냉각시 undercooling은 1 $^{\circ}$ C 이하가 되도록 하였고, 시험온도에 도달 한 후 최소한 30분간 유지한 후에 실험하중을 가하였다. 실험하중은 K_1 값이 약 15MPa $m^{1/2}$ 가 되도록 하였으며 크랙의 성장은 6 mA의 정전류를 공급하여 DCPD를 사용하여 측정하였다. 실험은 DHC 균열의 길이가 1.5~2mm 정도가 되면 중단하였다.

DHC 실험에 사용한 장비는 비조사재의 경우 자체 제작한 6채널 DHC 장치를 이용하였으며 조사재의 경우 hot cell에 설치된 Instron 8562 인장시험기를 이용하여 실험을 실시하였다.

DHC 시험을 종료한 후, 시편을 파단하여 피로균열의 길이와 DHC 크랙의 길이 및 striation spacing은 image analyzer를 이용하여 다시 확인하였다. 측정된 피로크랙과 DHC 크랙의 길이는 초기 K_1 값과 실험이 종료될 때의 K_1 값을 계산하는데 이용하였다. DHCV는 다음식을 이용하여 계산하였다.

$$DHCV = \text{DHC 균열길이} / (\text{DHC 종료시간} - \text{DHC 시작시간}) \text{ [m/sec]}$$

한편 striation spacing은 크랙 발생 초기의 지역과 DHC 중간 부분, 그리고 DHC 완료 지역부근의 것을 각각 측정하여 이를 기록하였고 초기 incubation time 부분의 영향을 제거하고자 5번째 존재하는 striation line부터 마지막 striation line까지의 거리를 측정하여 이를 striation line의 숫자로 나누는 방법을 이용하여 평균길이를 측정하였다.

본 실험에서는 27, 29, 34, 60, 72, 87ppm의 수소함량에 따라 100, 144, 182, 250, 280, 300도의 해당 온도 구간에서 실험을 수행하였다. 각 조건에 대하여 3개의 시편을 원칙으로 실험하고, 필요에 의해 추가적인 실험을 하였다.

결과 및 고찰

Incubation time과 striation spacing과의 관계

그림 2에 300도에서 DHC 실험을 행한 후 시편을 파단한 후에 관찰된 전형적인 DHC 파면을 나타내었다.

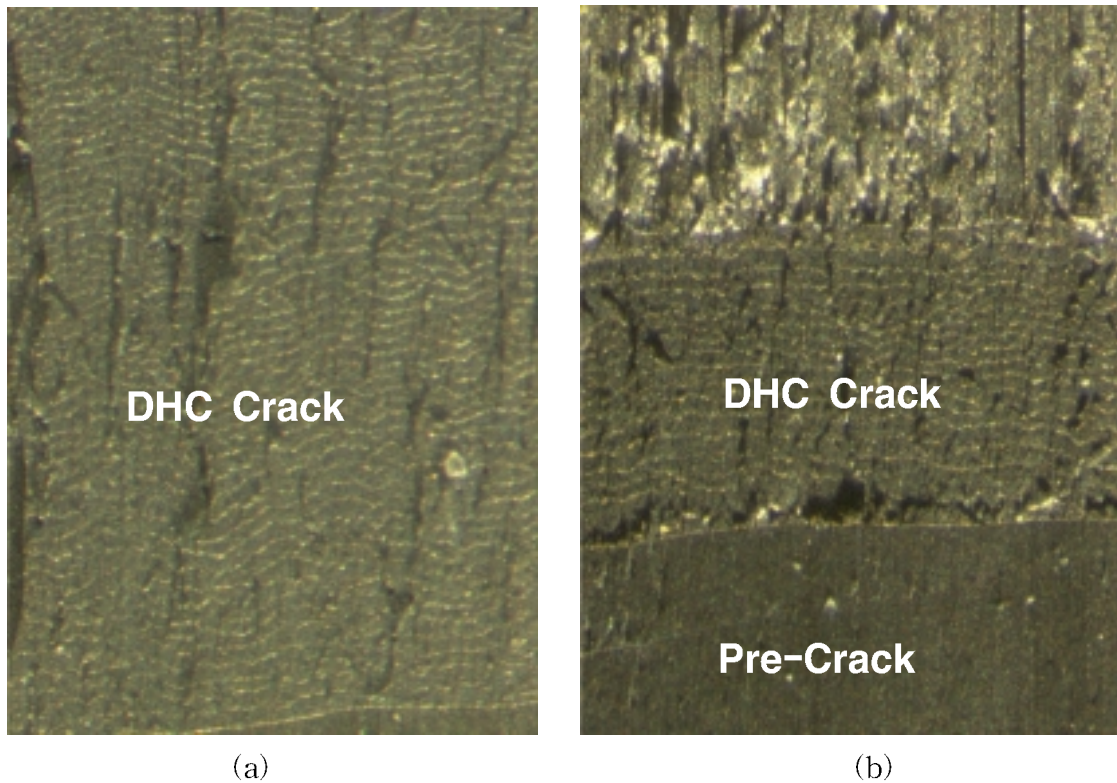


Fig. 2. Typical DHC fracture surfaces at 300 °C ((a)incubation time: 5 min, (b) incubation time: 150 min.)

그림 2에서 알 수 있듯이 같은 재료로 같은 온도에서 DHC 실험을 두 시편 모두 비슷한 크기의 striation spacing을 가지고 있었지만 두 시편은 1st striation spacing의 차이가 매우 크게 나는 것을 확인 할 수 있었다. 두 시편은 DHC 속도에서도 각각 1.963×10^{-7} m/s과 2.566×10^{-7} m/s로 거의 차이를 보이지 않았지만 incubation time은 5분과 150분으로 크게 차이가 나는 것을 확인할 수 있었다. 이는 (b) 시편의 예비크랙을 준비하는 과정에서 발생한 순간적인 하중증가에 의한 노치 둔화 효과에 의한 것으로 추측되는데 김 등⁸⁾이 cantilever beam을 이용한 DHC 실험결과에서 보고한 바와 같이 노치선단의 곡률반경이 커지면 잠복시간이 길어지지만 DHC 속도에는 영향을 미치지 않는다는 결과에 일치한다. 김 등⁹⁾은 DHC 지배하는 구동력은 노치선단과 노치선단에서 먼 지역에서의 수소농도 구배라고 설명하였는데 이 이론에 따르면 DHC 속도는 노치상태의 유무에 상관없이 수소농도가 평형 수소농도인 수소용해고용도에 도달하는 한 일정하여야 하며 단 잠복시간은 노치선단의 노치선단에서의 수소화물 석출속도가 노치선단의 곡률반경에 비례하여 늦어지기 때문이다. 즉 늦어진 수소화물 석출 속도는 초기 파단에 필요한 수소화물의 길이를 증가시켰고 이는 다른 striation spacing에 비해 시간에 비례하여 길어진 striation spacing으로 나타나는 것으로 사료된다.

온도에 따른 striation spacing의 비교

그림 3에 각 온도에 따른 striation spacing을 나타내었다.

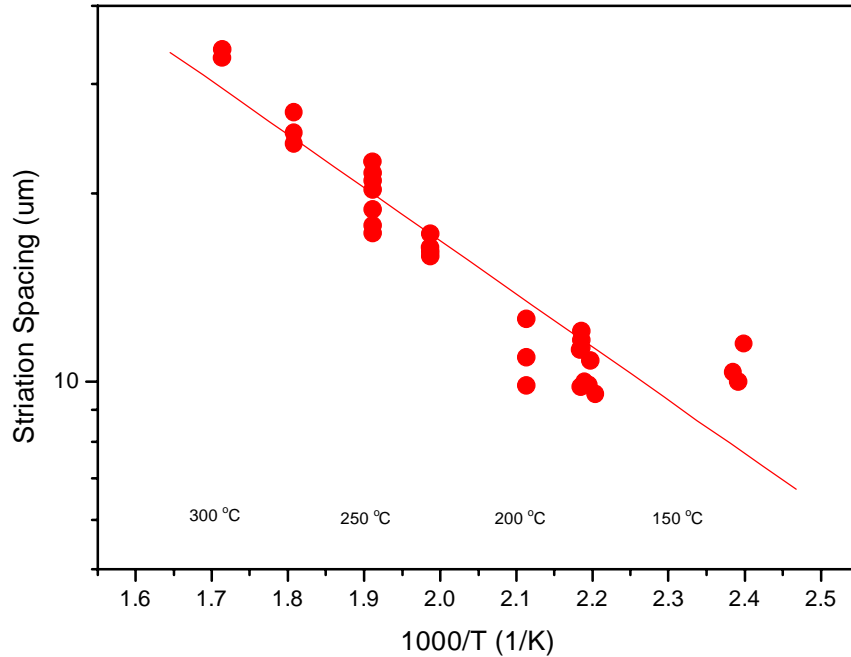


Fig.3. Striation spacing variation with different testing temperature

그림 3에서 알 수 있듯이 striation spacing은 실험온도가 증가함에 따라 지수함수적으로 증가하는 것을 확인할 수 있다. 이는 그림 4에서 나타난 바와 같이 온도가 증가할수록 DHC 속도가 지수함수적으로 증가하는 경향과 일치하고 있다. 이와같은 결과는 역으로 같은 재료, 같은 열처리 상태의 시편의 경우 striation spacing 결과가 DHC 속도를 표현해 줄 수 있는 것을 나타내며 이를 그림 5에서와 같이 비례관계로 표현해 줄 수 있다는 것을 확인하였다.

한편 본 연구에서 얻은 striation spacing 데이터를 신뢰성을 확보하기 위하여 round robin test를 통하여 세계 각국에서 실험한 결과와 비교한 것을 그림 6에 나타내었다. 그림 6에서 알 수 있듯이 KAERI에서 측정된 striation spacing은 AECL의 결과와 매우 유사한 값을 보여주는 것을 확인하였으며 Lithuania에서 얻는 결과에 비해서는 다소 낮은 값을 보여주었다. 하지만 이전의 round robin 테스트를 통하여 DHCV 및 시편에 장입된 수소의 농도 면에서 KAERI의 데이터는 AECL 과 더불어 만족할 만한 신뢰수준을 확보하였으며 본 striation spacing 결과도 마찬가지로 AECL과 유사한 결과를 보여주고 있기 때문에 대단히 신뢰성이 높은 것으로 판단할 수 있다.

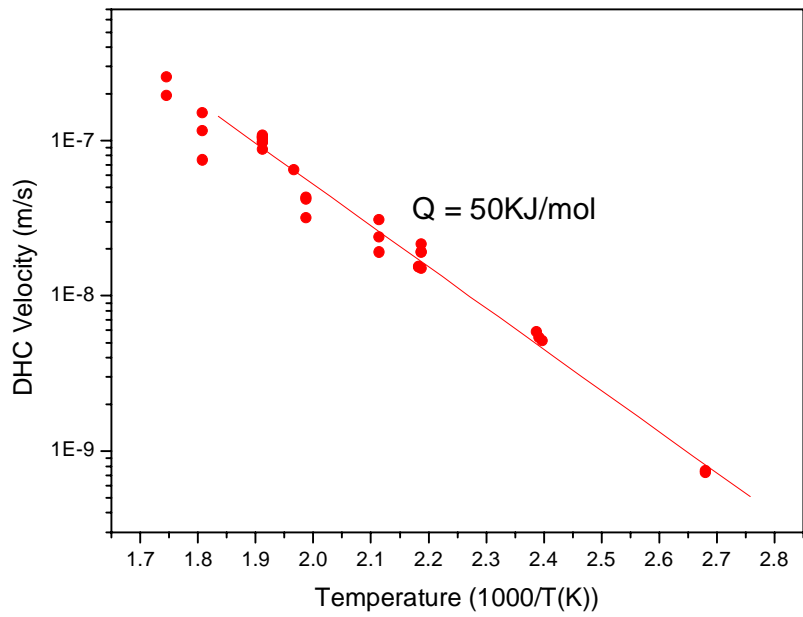


Fig. 4. DHC velocity variation with different testing temperature

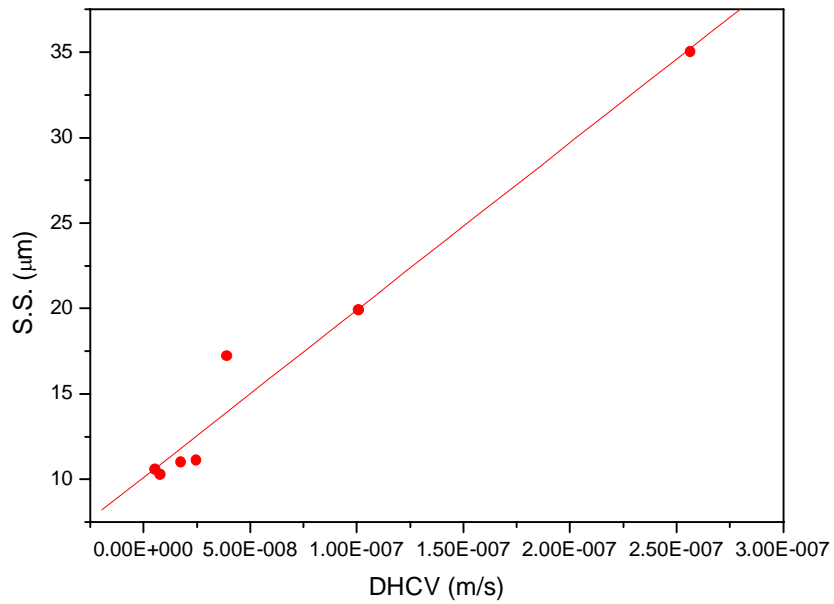


Fig. 5. Relationship between striation spacing and DHCV

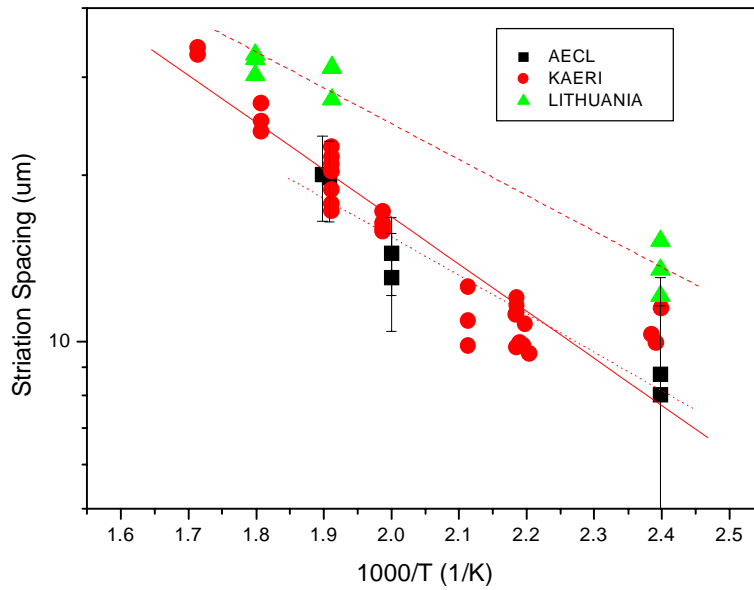


Fig. 6. Striation spacing comparison with results from other countries

또한 본 연구에서 얻어진 striation spacing 데이터는 지수함수적으로 선형관계를 유지하며 100도에서 300도까지 큰 편차없이 데이터를 신뢰할만한 수준으로 얻었다는 것은 KAERI의 DHC 실험절차 및 분석 방법이 안정적이라는 것을 뒷받침 해준다.

조사열화된 CANDU 압력관의 Striation Spacing

그림 7에 조사열화된 CANDU 압력관재료의 182도에서의 DHC 실험 후의 striation spacing 관찰결과를 추가하여 도식하였다.

조사열화된 시편의 경우 같은 테스트온도에서 비조사된 시편에 비해 매우 짧은 striation spacing(8 um)을 보여주었다. 이는 중성자 조사에 의하여 재료내 결함이 증가하여 취화됨으로써 striation spacing이 짧아진 것으로 생각되며 이를 확인하기 위하여 실험에 사용한 시편의 항복강도 변화에 따른 striation spacing을 그림 8에 나타내었다.

그림 8에서 알 수 있듯이 striation spacing은 재료의 항복강도가 증가함에 따라 지수함수적으로 짧아지는 것을 확인 할 수 있었다. 즉 재료의 striation spacing에 가장 많은 영향을 미치는 인자는 재료의 항복 강도인 것으로 나타났다.

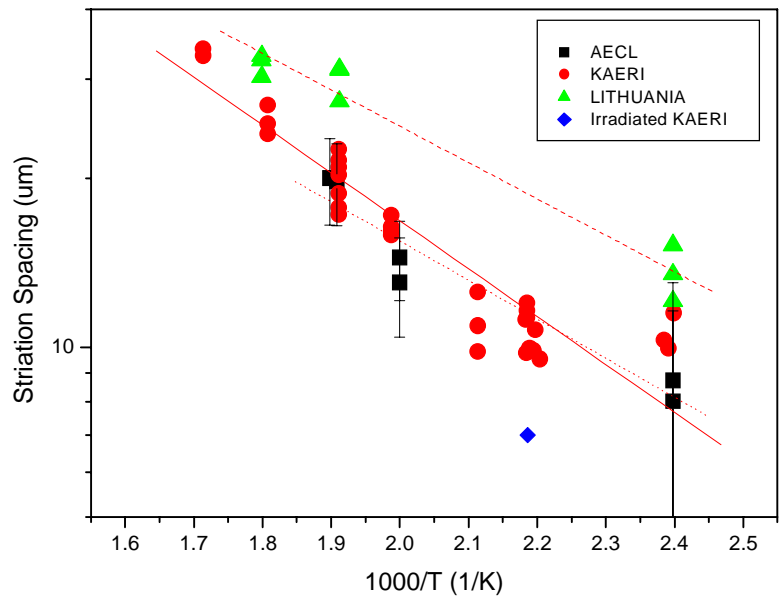


Fig. 7. Striation spacing data with different temperature including irradiated CANDU tube

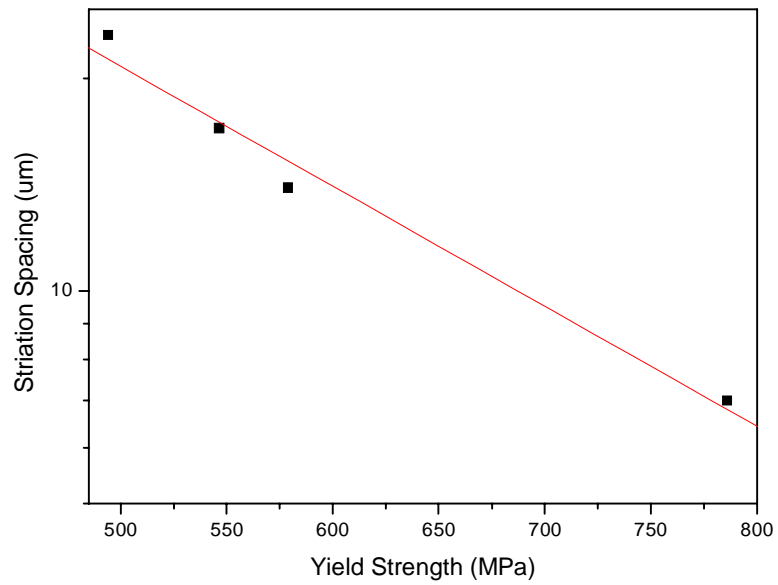


Fig. 8. The relationship between yield stress and S.S

CCT	100, 144, 182, 250, 280	300	3
DHC	stereographic scope		striation
spacing		striation spacing	round
robin test	가	가	AECL
		DHC	가
가	striation spacing		
striation spacing			
가	가		striation spacing
	가		
			가
	DHC	striation spacing	

Reference

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. , , , , , , , , 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