중성자 조사에 따른 Zr-2.5Nb 압력관의 b-Zr 상분해 및 크립 거동

Behavior of b-Zr Decomposition and Diametral Creep of Zr-2.5Nb Pressure Tubes with Neutron Irradiation

김영석, 서용찬, 임경수, 정용무, 김성수

한국원자력연구소, 대전시 유성구 덕진동 150 번지

Young Suk Kim, Yong Chan, Suh, Kyung Soo Im, Yong Moo Cheong, Sung Soo Kim
(Korea Atomic Energy Research Institute)

요약

가압 중수로 원전에서 운전되고 있는 Zr-2.5Nb 압력관은 가동 시간에 따라 미세조직 변화를 평가하고, 이러한 미세조직의 변화가 압력관의 크립거동에 미치는 영향을 조사하였다. 이를 위하여 월성 1 호기 원전에서 10 년 운전 후 인출된 압력관의 미세조직을 TEM 으로 분석하였으며, 이때 온도 및 조사선량 효과를 평가하고자 압력관의 inlet, middle 및 outlet 부위에서 β-Zr 상분해 정도를 측정하였다. 중성자 조사에 따른 효과를 비교 평가하기 위하여 조사재 압력관과 더불어 off-cut 시편을 이용하여 조사 전 미세조직도 조사하였다. 중성자 조사는 β-Zr 의 상분해를 억제하는 효과를 일으키지만 열적 효과는 반대로 가속화 시켰다. 이러한 Zr-2.5Nb 압력관에서의 β-Zr 상분해가 크립거동에 미치는 영향을 평가하고자, 4 가지 다른 제조공정으로 Zr-2.5Nb 판재를 제작하여 β-Zr 내에 Nb 농도를 49-82 %로 변화시킨 후 크립시험을 623-670 K 에서 120 MPa 조건에서 수행하였다. β-Zr 상분해가 클수록 즉 β-Zr 내 Nb 농도가 클수록 Zr-2.5Nb 판재의 크립강도는 감소하였다. 이러한 연구결과를 토대로, 가동 Zr-2.5Nb 압력관의 노내 크립 강도의 변화를 토의하였다.

ABSTRACT

The objective of this study is to investigate the microstructural evolution of Zr-2.5Nb tubes with neutron fluence and temperature and its effect on the in-reactor creep of the Zr-2.5Nb tubes with the operational time. To this end, we investigated the phase decomposition of β-Zr with the elevation in a Zr-2.5Nb tube irradiated in the Wolsong Unit1 for a 10-year operation. To find out the effects of neutron fluence and temperature on the β-Zr decomposition, three tube rings that were taken from the inlet, middle and outlet parts of the irradiated tube were subjected to TEM analyses on thin foils an the carbon replicas with extracted particles along with the off-cut tube ring. Neutron irradiation suppressed the decomposition of β-Zr phase while a thermal effect speeds it up especially at the outlet part of the tube exposed to the highest channel temperature. To evaluate the effect of β-Zr decomposition on the creep of pressure tubes, supplementary creep tests were conducted at temperatures ranging from 623 to 673 K under 120 MPa on the Zr-2.5Nb sheets made with different Nb contents in the β-Zr phase from 49 to 82 %. A degree of decomposition of the β-Zr phase or the Nb content in the β-Zr phase governs the creep of the Zr-2.5Nb sheets. Based on these results, the acceleration of the in-reactor creep of the Zr-2.5Nb tubes is suggested after a long-term operation.

1. 서론

가압 중수로 Zr-2.5Nb 압력관의 건전성을 저해하는 핵심 열화현상은 delayed hydride cracking, 파괴인성 저하, 크립 및 길이성장 등이 제시되고 있다. 이중 크립은 압력관과 캘란드리아관을 비롯한 핵연료채널 전부를 처지게하고(sag), 아울러 압력관의 직경을 크게 한다. 이러한 처짐의 발생은 핵연료채널 내의 압력관과 이를 둘러싸고 있는 캘란드리아관의 접촉을 야기시켜, 접촉지점에서 hydride blister 형성으로 인하여 압력관 파손을 초래한다 [1-2]. 아울러 압력관의 직경이 커지면 핵연료채널 내의 냉각재 유량이 커져 핵연료채널의 출력분포를 비정상적으로 변화되는 문제를 야기시킨다 [3]. 따라서 가동시간에 따른 압력관의 크립 거동을 추적해야 하며, 특히 30 년 수명 말까지는 크립 관련 안전 요건을 모두 만족시킨

다는 것을 주기적인 안전성 검사를 통하여 보증하여야 한다.

중수로 원전에 사용되는 Zr-2.5Nb 압력관의 초기 미세조직은 그림 1 에 나타낸 바와 같이 길이방향으로 길게 늘어선 α-Zr 결정립과 이들 α-Zr 결정립 사이는 β-Zr 띠로 연속적으로 놓여있다. 그러나 노내에서 가동되면서 점차 α-Zr 결정립 내의 Nb 농도는 점차 과포화 상태에서 평형농도로 감소하고 동시에 β-Zr 결정립 내의 Nb 농도를 증가시켜 β-Zr 을 평형상인 β-Nb 으로 변화된다 [4]. 따라서 이러한 β-Zr 상의 분해는 가동 시간에 비례하여 점차 커질 것이고, 종국에는 압력관의 미세조직은 가장 안정상인 α-Zr 과 β-Nb 의 미세조직으로 변화될 것이다. 따라서 이러한 미세조직의 변화는 가동 압력관의 모든 주요 성능-예를 들면, 부식, 수소흡수거동 및 기계적 특성-에 큰 영향을 미칠 것이고, 특히 부식저항성을 증대시킨다고 주장한 바 있다 [5]. 본 연구의 목적은 월성 1 호기 원전에서 운전된 Zr-2.5Nb 압력관을 대상으로 중성자 조사 및 온도에 따른 β-Zr 상분해를 평가하고 이러한 미세조직의 변화가 Zr-2.5Nb 압력관의 크립강도에 미치는 영향을 평가하는 것이다.

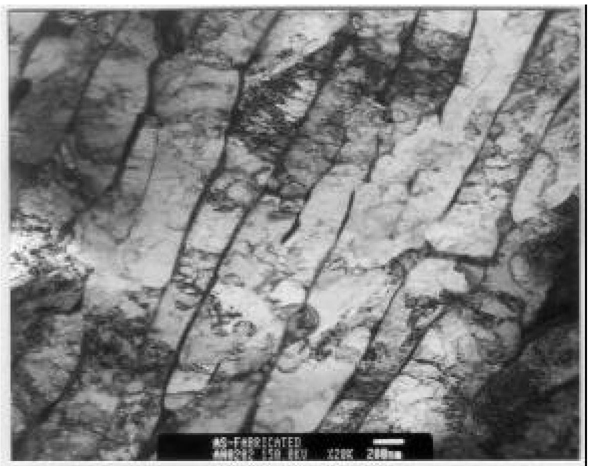

Fig. 1. Initial Microstructure of a Zr-2.5Nb tube operating in the Wolsong Unit 1 (Before Irradiation).

2. 실험방법

월성 1 호기 원전에서 10 년 운전 후 인출된 압력관과 off-cut 시편의 미세조직을 비교하여 중성자 조사에 따른 미세조직의 변화를 평가하였다. 온도 및 중성자 선량을 효과를 보다 명확히 이해하고자 조사재 압력관의 inlet, middle 및 outlet 부분에서 170 mm 크기의 압력관 ring 시편을 절단하여 이들을 대상으로 β-Zr 상의 상분해 (phase decomposition) 정도를 핫셀에서 측정하였다. 이들 3 압력관 ring 시편이 받았던 평균 채널온도 및 중성자 조사선량은 275.4 to 302.1 ^{o}C, 6.84x10^{21} to 8.9x10^{21} n/cm^{2} (E>1MeV) 이었다 (표 1). β-Zr 상의 상분해 정도를 평가하고자, β-Zr 내의 Nb 농도를 다음의 두가지 방법으로 측정하였다: TEM 용 박판에서 α-Zr 상과 β-Zr 상의 회절패턴으로부터 결정된 격자상수로부터 Nb 농도를 결정하는 방법과 carbon replicas 방법을 이용하여 이차상 입자를 carbon 박판에 뜯어내어 기지상의 영향을 완전히 배제한 상태에서 SADP (Selected area diffraction pattern)을 이용하여 Nb 농도를 직접 측정하는 방법의 두 가지 방법을 모두 사용하여, 측정방법에 따른 β-Zr 내의 Nb 농도 값의 신뢰도도 함께 조사하였다.

β-Zr 의 상분해 정도 즉 β-Zr 내의 Nb 농도를 변화시키고자, Zr-2.5Nb 합금의 잉곳을 4 회 진공아크용해로 제작한 후 1323 K, 0.5h 용체화 처리 후 4 가지의 다른 제조공정으로 판재로 가공되었다 (표 2) [6]. 이들 Zr-2.5Nb 판재 내의 β-Zr 내의 Nb 농도는 carbon replicas 방법으로 β-Zr 입자 만을 떼어낸 후 EDS 로 분석한 하였다. 크립시험은 압연방향에 평행하게 길이 25 mm 의 크립시편을 사용하여 일정 하중 크립시험기를 이용하여, 623-673 K 에서 120-150 MPa 일축 응력에서 수행되었다.

Table 1. Operating conditions of the examined tube.

Location	Distance from the Inlet (cm)	Temperature (^oC)	Fast neutron fluence (E>1MeV) (x10^{21}n/cm2)
Inlet	173-190	275.4	7.66
Middle	266-283	285.5	8.91
Outlet	456-483	302.1	6.84

Table 2. Manufacturing processes to make Zr-2.5Nb sheets with different Nb contents in the β-Zr phase.

Process	P1	P2	P3	P4
Procedures	Ingot-homogenization treatment at 1323 K-hot rolling at 1132 K-final cold rolling (30%)-final anneal at 723 K for 24h	Ingot-homogenization treatment at 1323 K-hot rolling at 1132 K-cold rolling-intermediate anneal at 865 K-cold rolling-intermediate anneal at 865 K-homogenization 1132 K and water quench-final cold rolling (30%)-final anneal at 723 K for 24 h	Ingot-homogenization treatment at 1323 K-hot rolling at 843 K-intermediate anneal at 865 K-cold rolling-intermediate anneal at 865 K-cold rolling-intermediate anneal at 865 K-final cold rolling (50%)-final anneal at 723 K for 24 h	Ingot-homogenization treatment at 1323 K-hot rolling at 973 K-intermediate anneal at 953 K-cold rolling-intermediate anneal at 865 K-cold rolling-intermediate anneal at 865 K-final cold rolling (50%)-final anneal at 723 K for 24 h

3. 결과 및 토론

그림 1 은 월성 1 호기에서 10 년 운전된 Zr-2.5Nb 압력관에서 위치에 따른 β-Zr 상분해 정도를 보여준다. 그림 1 에는 우리의 결과 이외에 Griffiths 가 캐나다 발전소 (주로 Pickering 발전소)에서 2-12 년 운전된 압력관에서 X-ray 방법으로 결정된 β-Zr 상분해 즉 β-Zr 내의 Nb 농도값도 함께 표시하였다. Griffiths 의 결과에 따르면 β-Zr 상분해는 flux 가 가장 큰 중앙부에서 가장 낮고 양 끝단 (inlet 과 outlet) 에서 오히려 높아지는 경향을 보인다 [7]. 월성 압력관을 대상으로 박판 시편에서 얻은 X-ray 회절패턴으로부터 결정한 위치에 따른 β-Zr 상분해 측정치도 이와 매우 유사한 경향을 나타냈다. 그러나 carbon replicas 로부터 결정한 위치에 따른 β-Zr 상분해는 완전히 다른 경향을 보여, outlet 에서 훨씬 많은 량의 β-Zr 상분해를 그리고 inlet 에서 outlet 로 거리가 증가함에 따른 직선적으로 β-Zr 상분해가 커지는 경향을 나타냈다. Carbon replicas 방법은 기지상의 영향을 완전히 배제할 수 있기에 β-Zr 상분해 평가 시 가장 정확한 방법이라는 점을 고려한다면, 측정방법에 따른 β-Zr 내의 Nb 농도 값의 신뢰도가 매우 중요하다는 것을 시사한다.

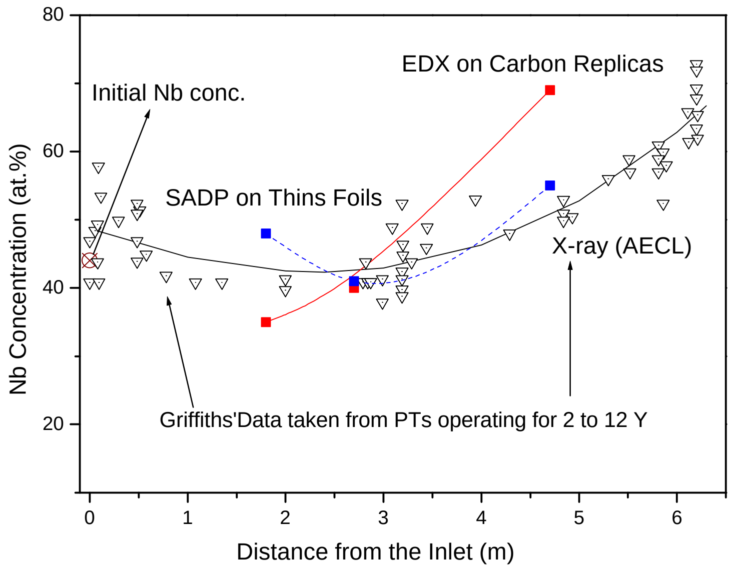

Fig. 1. Distribution of the Nb content in the β-Zr phase with a distance from the inlet of the Z-2.5Nb tube irradiated in Wolsong Unit 1 for 9.3 EFPYs

놀라운 결과는 조사재 압력관의 inlet 부위에서 β-Zr 내의 Nb 농도는 비조사재인 off-cut 압력관의 β-Zr 내의 Nb 농도에 비하여 오히려 감소하였다는 것이며, 조사재 압력관 중앙부위에서의 β-Zr 내의 Nb 농도는 비조사재인 off-cut 압력관의 β-Zr 내의 Nb 농도와 비슷한 값을 나타냈다. 한편 outlet 에서는 비조사재인 off-cut 압력관의 β-Zr 내의 Nb 농도에 비하여 매우 커진 Nb 농도를, 다시말하면 열적상분해 (thermal decomposition)가 빠르게 진행되었다는 것을 보여준다. 그림 1 의 결과는 중성자 조사에 따라 Zr-2.5Nb 압력관은 미세조직의 변화를 겪으며, 온도가 낮으면 중성자 조사 효과로 β-Zr 내의 Nb 을 α-Zr 결정입자로 확산시켜 농도를 감소시키고 그러나 온도가 높으면 열적 상분해의 가속으로 Nb 의 확산을 거꾸로 하여 β-Zr 내의 Nb 농도를 증대시켜 준다는 것을 보여준다. 따라서 중성자 조사효과는 비평형상의 조직을 갖도록, 열적 효과는 평형 안정상을 갖도록 하며, 이 두 효과가 서로 경쟁적으로 작용하여 조사재 Zr-2.5Nb 압력관의 미세조직을 결정하는 것으로 보인다 [8]. 결론적으로 말하면, Zr-2.5Nb 압력관의 미세조직은 운전 조건에 따라 미세조직이 진화하며 아울러 하나의 압력관에서도 온도 및 중성자 조사선량이 위치에 따라 다르기에 위치에 따라 다른 미세조직을 나타낸다. 문제는 이러한 미세조직의 진화에 따른 가동 Zr-2.5Nb 압력관의 크립 거동 영향이 규명되어있지 않다는 것이며, 아울러 크립 관점에서 볼 때 압력관의 어느 위치가 가장 보수적인가가 명확하지 않다는 것이다.

본 연구에서는 이러한 미세조직의 진화가 크립에 미치는 영향을 규명하고자, 4 가지 다른 제조공정으로 Zr-2.5Nb 판재을 제조하였다. 그림 2 는 이들 판재의 미세조직을 보여준다. 그림 2(a)에 나타낸 조직은 조사전 압력관의 미세조직을 모사한 것이며, 그림 2(b)는 변화되는 중간 조직을, 그리고 그림 2 (c,d)는 Zr-2.5Nb 압력관의 열 평형 조직을 각각 모사한 것이다. 이들 4 가지 판재 Zr-2.5Nb 의 β-Zr 내의 Nb 농도는 carbon replicas 방법으로 측정한 결과 49-82 %이었다 (표 2). 그림 3 은 이들 판재의 350-400 °C 온도 구간에서 120 MPa 하중을 걸어주었을 때 측정한 크립속도를 보여준다. β-Zr 내의 Nb 농도에 비례하여 Zr-2.5Nb 판재의 크립속도는 증대하였으며, 특히 49% Nb 의 β-Zr 이 81-82% Nb 의 β-Nb 로 변태되면 크립속도는 무려 10 배 정도 커졌다. 요약하면, β-Zr 내의 Nb 농도가 커져 열평형상인 β-Nb 로 바뀌어지면 Zr-2.5Nb 합금의 크립속도가 매우 빨라졌으며, 반대로 β-Zr 내의 Nb 농도가 낮아 열 평형상이 아닌, 중성자 조사조건에서의 평형 상으로 보이는 β-Zr 상은 느린 크립속도를 보여, 크립강도 측면에서 볼 때는 높은 크립강도를 나타낸다.

이상의 결과는 β-Zr 상분해, 즉 β-Zr 내의 Nb 농도가 크립강도를 결정하는 중요한 인자라는 것을 보여준다. 실제 Zr-2.5Nb 크립속도를 지배하는 직접적인 인자는 α-Zr 내의 Nb 농도일 것으로 보이며, β-Zr 내의 Nb 농도는 α-Zr 내의 Nb 농도를 간접적으로 대변해주는 인자에 지나지 않는다고 사료된다. 그러나 문제는 α-Zr 내의 과포화된 상태로 고용되어있는 Nb 농도가 적은 양이어서 현재의 분석기술로는 적

은 량의 변화를 신뢰성있게 측정하기 어렵다는 것이다. 결론적으로, β-Zr 내의 Nb 농도 또는 β-Zr 상분해 정도는 Zr-2.5Nb 압력관의 크립속도를 결정하는 중요한 거시적 인자이다. 이러한 점을 고려할 때 위치에 따른 압력관의 크립은 온도가 높은 지점에서 가장 많이 일어나므로, 크립속도를 평가하거나 크립 모델식을 제시할 때에는 압력관의 상부지점 즉 3/4 지점에서 측정된 반경방향 크립 값이 사용되어야 한다. 아울러, 가동 시간이 길어짐에 따라 β-Zr 상분해는 지속적으로 일어나고 종국에는 β-Nb 으로 변태되므로, 이러한 평형 조직이 얻어질 때까지는 크립속도는 가동시간에 비례해서 계속해서 증대될 것으로 보인다.

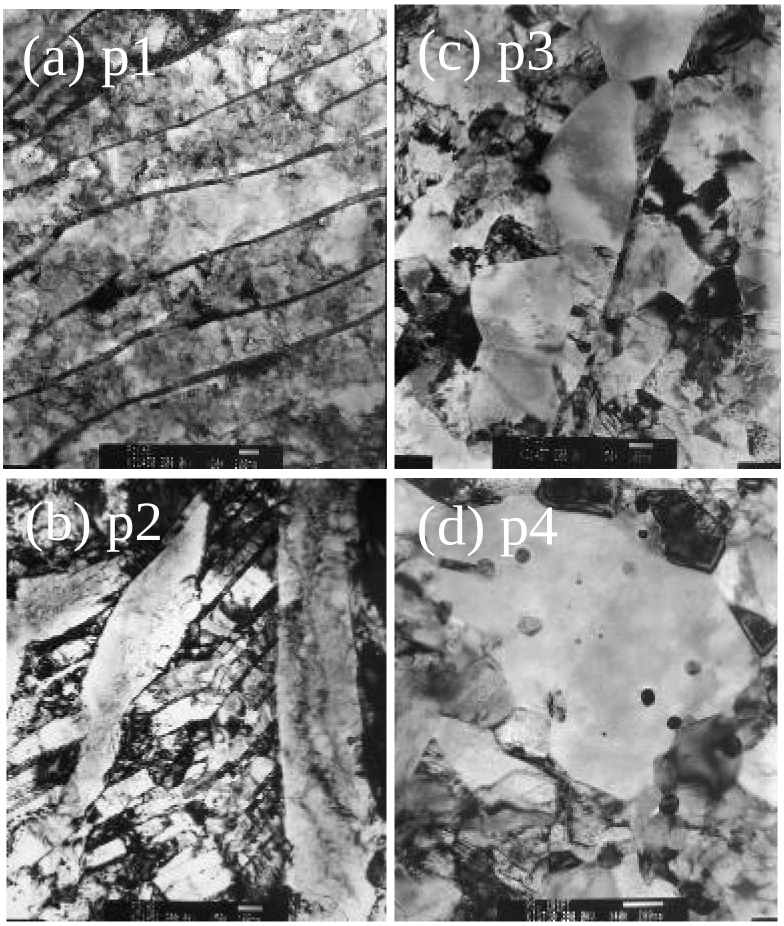

Fig. 2. Microstructures of the Zr-2.5Nb sheets made with 4 different manufacturing processes.

Table 2. Microchemical composition of the β-phase determined by EDX on the extracted particle from the Zr-2.5Nb sheets made with 4 different manufacturing processes.

Process	P1	P2	P3	P4
Nb content in the β-Zr phase (at.%)	49	62	82	81

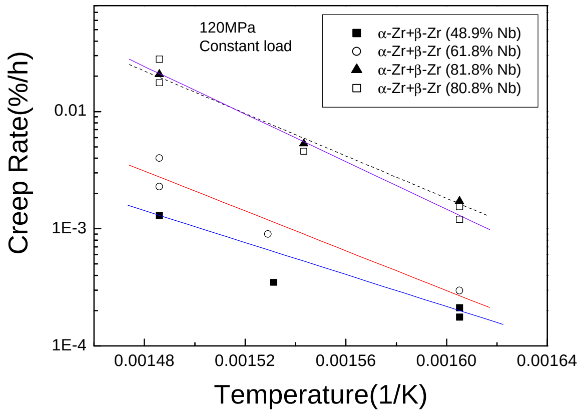

Fig. 3. Creep Rate of the Zr-2.5Nb sheets made with 4 different manufacturing processes under the applied stress of 120 MPa and temeperatures of 350 to 400 ^{o}C.

4. 결 론

월성 원전의 Zr-2.5Nb 압력관은 중성자 조사 시 미세조직의 진화를 일으키며, 이러한 미세조직의 진화는 온도 및 중성자 선량 크기에 따라 다르게 나타났다. 즉, 온도는 Zr-2.5Nb 압력관내에서 β-Zr 상분해를 가속시켜 β-Zr 내의 Nb 농도를 증대시킨 반면, 중성자 선량은 β-Zr 상분해를 억제하여 β-Zr 내의 Nb 농도를 감소시켰다. 따라서 압력관 중 outlet 부분에서는 열적효과로 β-Zr 내의 Nb 농도가 커졌으나, inlet 및 middle 에서와 같이 중성자 선량이 높은 지점에서는 중성자 조사선량 효과를 β-Zr 상분해가 억제되어 β-Zr 내의 Nb 농도는 감소하였다. 이러한 중성자 조사 및 온도조건에 따른 미세조직의 진화가 Zr-2.5Nb 크립에 미치는 영향을 검증하고자, 4 가지 다른 공정으로 Zr-2.5Nb 판재를 제조하여 β-Zr 내의 Nb 농도에 따른 크립속도를 결정하였다. Zr-2.5Nb 합금의 크립 속도는 β-Zr 내의 Nb 농도가 커질수록 감소하여, 특히 β-Zr 이 완전히 β-Nb 로 변태된 경우에 10 배 정도로 커진 크립변형속도를 보였다. 결론적으로, 가동시간에 따라 월성 원전의 Zr-2.5Nb 압력관의 크립속도는 점차 커지며, 특히 β-Zr 상이 β-Nb 으로 변태되면 매우 가속화된 크립변형을 보인다. 아울러, 위치에 따른 크립속도도 β-Zr 상분해가 가장 빠르게 진행된 outlet 부분에서 가장 빠르게 나타날 것으로 예상된다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 중장기계획 사업의 일환으로 수행되었으며, 연구비 지원에 감사드립니다. 아울러 월성 1 호기 압력관을 제공하여주신 월성 1 호기 원자력발전소 기계부 여러분께 감사의 말씀을 드립니다.

5. 참고문헌

(1) Cheong Y. M. et al., 2000, KAERI Report, KAERI/TR-1675/00, Korea Atomic Energy Research Institute, p. 8
(2) Field G. J., Dunn J. T. and Cheadle B. A., 1985, Can. Met. Quar., Vol. 24, pp. 181-188.
(3) Glendening W. R., 1996, AECL Report, XX-31100-400-001, p. 29.
(4) Griffiths, M., Mecke, J. F. and Winegar, J. E., 1996, Zirconium in the Nuclear Industry, Tenth International Symposium , ASTM STP 1295, pp. 580-602.
(5) Urbanic, V. F and Gilbert, R. W., 1990, Proceedings, Technical Committee Meeting on Fundamental Aspects of Corrosion on Zirconium Base Alloys in Water Reactor Environments, IAEA, Vienna, IWGFPT/34, pp. 262-272.
(6) Kim, Y. S., 1999, Transactions of the 15th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology (SmiRT-15), Seoul, Korea.
(7) M. Griffiths, J.F. Mecke and J.E. Winegar,, 1996, Proceedings of the 11th Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1295, p.580.
(8) R.S. Nelson, J.A.Hudson, D.J. Mazey, 1972, J. Nucl. Mater., Vol .44, p.318.