

Zr-2.5Nb 압력관의 DHC 특성

DHC Characteristics of Zr-2.5Nb pressure tubes

김영석, 권상철, 김성수, 주기남

한국원자력연구소, 대전시 유성구 덕진동 150 번지

요 약

조성은 Zr-2.5Nb으로 같더라도 다른 제조공정으로 제조된 2종류의 Zr-2.5Nb 압력관 및 신합금 (Zr-1Nb-1.2Sn-0.4Fe)의 압력관에 대하여 DHC 특성시험이 수행되었다. DHC 특성 시험은 200 °C에서 수행되었으며, 시험온도에 도달하는 방식은 300 °C에서 냉각하여 도달하는 cool-down 방식과 상온에서 온도를 올리면서 시험온도인 200 °C에 도달하는 heat-up방식의 2가지로 수행되었다. 가장 높은 강도를 나타내는 Zr-2.5Nb압력관 A가 가장 취약한 DHC 저항성을 나타냈으며, 강도가 낮은 Zr-2.5Nb 압력관 B 및 신합금의 압력관 C가 높은 DHC 저항성을 보였다. 압력관 A는 압력관 B 또는 C에 비하여 시험온도에 도달하는 방식에 따라 8배-26배 정도의 빠른 delayed hydride cracking velocity를 보였다. DHC 특성의 차이를 압력관의 미세구조 및 압력관의 강도에 따른 크랙주위에서의 소성역의 크기 관점에서 토의하였다.

Abstract

Delayed hydride cracking testing was carried out on Zr-2.5Nb pressure tubes with different manufacturing procedure as well as on pressure tube of Zr-1Nb-1.2Sn-0.4Fe.. Testing temperature was kept constant at 200 °C either with a cool-down approach from 300 °C or with a heat-up approach from room temperature. Pressure Tube A of Zr-2.5Nb with the higher tensile strength showed the highest DHC velocity compared to the Pressure Tubes B and C of Zr-2.5Nb and Zr-1Nb-1.2Sn-0.4Fe, respectively, with lower strength. Delayed hydride cracking behavior of Zr-2.5Nb pressure tubes with two different kinds of manufacturing procedure was discussed in terms of microstructure and the plastic zone size.

1. 서론

Zr-2.5Nb 캔두 압력관은 월성원자력발전소와 같은 가압중수로형 발전소의 압력관으로 사용되고 있으나, delayed hydride cracking 저항성이 매우 낮아 DHC로 인한 압력관의 많은 파손사례를 보여주고 있다. 이와는 달리 러시아의 RBMK형 발전소에 사용되는 Zr-2.5Nb 압력관은 DHC에 의한 압력관 파손사례가 거의 보고되지 않고 있으며, 압력관의 수명을 결정하는 주요인자는 DHC가 아니라 압력관의 원주방향의 크립이다 [1,2]. 이처럼

조성은 Zr-2.5Nb로 같더라도 캔두 및 러시아 압력관이 보여주는 노내 특성이 크게 다르다는 것은 주목할 만한 사실이다. 따라서 이와 같은 특성의 차이를 야기하는 것은 조성은 같더라도 제조 공정이 다르기 때문이며 특히 이로 인한 미세조직 및 제반 특성이 서로 다르기 때문이다. 다시 말해 특성의 차이를 야기하는 원인을 이해를 한다면, 캔두 압력관의 취약한 DHC 저항성을 향상시키는 방안을 도출할 수 있을 것으로 사료된다.

본 연구의 목적은 조성은 Zr-2.5Nb으로 같지만 제조공정이 다르게 제조된 압력관의 DHC 특성의 차이점을 파악하고, DHC 저항성에 미치는 인자를 규명하는 것이다. 대상 시험압력관은 모두 3종류이다: 810 °C에서 압출한 후, 30%의 냉간 인발하여 제조된 압력관 A, 760 °C에서 압출 후, 1차 냉간압연 및 중간 열처리, 2차 냉간 압연 및 870 °C에서 균질화 처리/급냉, 20% 냉연 및 550 °C에서 최종열처리를 거쳐 제조된 압력관 B (Zr-2.5Nb) 및 압력관 B와 같은 제조공정으로 제조되었지만, 신탄금 조성의 압력관 C (Zr-1Nb-1.2Sn-0.4Fe)이다.

2. 실험방법

압력관 A, B, C의 조성은 표1에 나타난 바와 같으며, 압력관 A는 표2에 나타난 바와 같이 M1 공정으로, 압력관 B, C는 M2 공정으로 제조되었다.

DHC 시험은 ASTM E399-90에 맞게 제작된 Compact Tension (CT) 시편에서 수행되었으며, 피로크랙을 형성시키기 전에 수소를 Sieverts 방법으로 100 ppm H를 장입시켰다. 400 °C에서 24-72시간 균질화 처리를 한 후, 인장시험기에서 2mm 정도의 피로크랙을 형성시켰다. 크랙진전방향은 압력관의 길이방향과 일치하였으며, DHC 시험은 $K=5 - 20 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 로 범위에서 수행되었고 시험온도에 도달하는 방식도 다음의 2가지로 변화되었다: 시험온도에 도달하기 전에 먼저 300 °C까지 온도를 올린 후, 시험온도인 200 °C로 냉각시키는 방식 cool-down 방식과 상온에서 300 °C로 온도를 올리지 않고 시험온도인 200 °C에 바로 접근하는 heat-up 방식이다.

3. 실험결과

그림 1, 2, 3은 압력관 A, B 및 C의 미세조직을 보여준다. 압력관 A는 길이방향으로 elongated α -Zr과 α -Zr과 α -Zr사이에는 β -Zr이 연속적으로 존재하는 미세조직을 보여준다. α -Zr의 크기는 길이방향의 단면에서 $0.25-0.6 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m}$ 이다. β -Zr 구조는 80%Zr-20%Nb 조성의 평형상이었으며 α -Zr과 β -Zr의 상 경계에 석출된 구형의 β -Nb (35%Zr-65%Nb)도 관찰된다. 압력관 B는 $\alpha+\beta$ 의 이상영역에서의 열처리로 등축정의 큰 primary α (60 vol.%)와 미세한 판상의 변태된 α (40 vol.%)으로 구성되어있어 다른 압력관에 비하여 비교적 불 균일한 미세조직을 보인다. 압력관 C는 압력관 C와 마찬가지로 $\alpha+\beta$ 의 이상영역에서의 열처리로 재결정된 α -Zr과 심하게 변형된 α -Zr을 보여준다. 특히 압력관 D에서는 Zr(Nb,Fe)성분의 입자들이 일렬로 늘어져있는 stringer들이 관찰된다 (그림 4).

표3은 4종류의 압력관에 대한 항복강도 및 인장강도를 보여준다. 압력관 A가 가장 높은 항복강도 및 인장강도를 나타냈으며, 상대적으로 압력관 B 및 C는 압력관 A에 비하여 훨씬 낮은 강도를 나타냈다. 주목할 만한 것은 압력관의 B 와 C가 거의 비슷한 항복강도 및 인장강도를 갖는다는 것이다.

그림 5는 압력관 A, B 및 C에서의 200 °C에서 측정된 DHCV(delayed hydride cracking velocity) 결과를 보여준다. 이결과는 300 oC에서 1시간 유지시킨 후 시험온도인 200 oC가

지 냉각하고 $K=6 - 30 \text{ MP}\sqrt{\text{m}}$ 의 응력세기인자 하에서 얻어진 것이다. 압력관 A는 200 oC에서 $1.1 \times 10^{-8} \text{ m/s}$, 압력관 B 및 C는 $1.4 \times 10^{-9} \text{ m/s}$ 로 나타났다. 즉, 압력관 A는 압력관 B와 C에 비하여 약 8배 정도의 빠른 DHCV를 보여준다. 한편 압력관 B와 C는 거의 동일한 DHCV를 보이지만, 근소한 차이긴 하지만, 압력관 B가 약간 낮은 DHCV를 보였다.

DHC 시험온도에 도달하는 방식이 heat-up 방식일 경우에는 그림 5에 나타낸 바와 같이 압력관 A 및 B의 DHCV가 그림 5에 제시된 것 보다는 매우 낮은 DHCV가 얻어졌다: 즉 압력관 A의 DHCV는 $2.5 \times 10^{-9} \text{ m/s}$, 압력관 B의 DHCV는 $9.5 \times 10^{-11} \text{ m/s}$ 로 매우 낮아졌다. 결론적으로 heat-up 방식 하에서 DHCV는 cool-down 방식 하에서 측정된 DHCV보다 4-14배 정도 감소하였다. 그림 6은 DHC시험 후 압력관 A, B 및 C에서의 찍은 파면사진을 보여준다. 압력관 A에서는 압력관의 길이방향으로 길게 늘어진 void가 많이 보이고 동시에 길이 방향의 수직 방향으로도 일종의 striation이 잘 보인다. 이와 같은 void의 형성은 그림 1에 나타내 바와 같이 압력관 A에서의 판상의 길게 길이방향으로 늘어진 미세한 α -Zr 결정립 형태 때문이다. 이에 반해 결정립의 크기가 크고 등축정의 primary α -Zr과 판상의 변태 α -Zr으로 구성된 압력관 B 또는 C에서는 둥근 모양의 void가 관찰된다. 특히 둥근 형태의 void중 일부에서는 마치 압력관 A에서 나타난 것 같은 판상의 void들도 보인다. 이것은 판상의 변태 α -Zr이 깨지면서 나타나는 void이다. DHC 파면의 결과는 α -Zr 결정립의 모양에 따라 void 형태가 결정되며 이에 따라 전체적인 파면의 형태가 결정된다는 것을 보여준다.

4. 결 론

1) 압력관 A는 압출시의 높은 압출 비로 α -Zr 결정립이 길이방향으로 길게 늘어졌으며, α -Zr 결정립간에는 얇은 층의 β -Zr이 거의 연속적으로 구성되어있고 β -Zr의 일부는 분해되어 형성된 α -Nb 입자도 관찰된다. 이에 반하여 압력관 B 및 C는 최종 냉간가공 과정 이전에 $\alpha + \beta$ 이상 영역에서 열처리과정 때문에 결정립이 큰 구형의 primary α 와 β -Zr이 변태 되어 생성된 판상의 α -Zr으로 구성되어있으며, β -Zr 또는 β -Nb 석출상의 분포는 캔두 압력관에서와는 달리 불연속이다.

2) Delayed hydride cracking 저항성 관점에서 볼 때, 압력관 A는 압력관 B/C에 비하여 낮은 저항성을 보였다. 즉, 압력관 A의 DHC 크랙진전속도는 압력관 B 또는 C에 비하여 약 8배 정도 높게 측정되었으며, 압력관 A의 높은 delayed hydride cracking velocity는 α -Zr 결정립의 모양 및 분포, 아울러 크랙선단에서의 수화물 석출의 habit plane이 크랙 진전면과 일치하기에 때문 인 것으로 판단된다. 이에 반해 압력관 B/C는 α -Zr이 길이방향에 길게 늘어져 있지 않고 다만 변태된 α -Zr (판상 모양)의 일부만이 길이방향으로 누워있어 크랙선단에 수소의 확산이 어려울 뿐만 아니라 항복응력이 낮아 수소화물을 깨트리는 임계응력도 낮기 때문인 것으로 설명된다.

5. 참고문헌

[1]. A. V. Nikulina et al, Process of RBMK pressure tube fabrication from Zr-2.5% Nb alloy, ISSN 0324-222x, 1990.
 [2]. S. V. Ivanova, Factors affecting delayed hydride cracking in Zr-2.5Nb pressure tubes, presented at the poster session of the 11th symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, 1995, Germany.
 [3] B. C. Skinner and R. Dutton, Hydrogen diffusivity in α - β zirconium alloys and its

role in delayed hydride cracking, Hydrogen Effects on Material Behavior, ed. by N. R. Moody and A. W. Thompson, The Minerals, Metals & Materials Society, 1990, p. 73.

[4] S. Sagat, C. E. Coleman, M. Griffiths, and B. J. S. Wilkins, The Effect of fluence and irradiation temperature on delayed hydride cracking in Zr-2.5Nb, Tenth International Symposium, ASTM STP 1245, 1994, p. 35.

Table 1. Chemical composition of pressure tubes

Pressure Tubes Elements	ASTM UNS No. R60901	Tube A	Tube B	Tube C
Nb (wt.%)	2.4 ~2.8	2.7	2.7	1.0
O (wt.%)	0.09-0.13	0.1	0.06	0.07
Fe (wt.%)	<0.15	0.086	0.01	0.4
Sn (wt.%)	<50 ppm	<25 ppm	-	1.2
Zr (wt.%)	-	balance	balance	balance

Table 2. Outline of the manufacturing procedures of Pressure Tubes A, B and C

제조공정	M-1	M-2
압력관	Tube A	Tube B, C
공정조건	<p>Ingot-billet 제조-810 °C에서의 압출 (압출비: 11/1)-cold drawing (20-30%)-최종열처리 (400 °C/24h)</p>	<p>Ingot-billet 제조-760 °C에서의 압출 (압출비: 7.8:1)-냉간압연-중간열처리(580 °C)-냉간압연-870 °C에서의 균질화처리 후 급냉-최종열처리 (535 °C/24h)</p>

Table 3. Tensile Strength of Pressure Tubes A, B and C

Pressure Tubes		YS(MPa)			UTS(MPa)		
		RT	200 °C	300 °C	RT	200 °C	300 °C
A	Longitudinal	626	476	407	797	609	532
	Transverse	861	672	475	863	689	617
B	Longitudinal	288	206	211	525	383	345
	Transverse	339	-	281	556	-	372
C	Longitudinal	279	196	132	535	405	338
	Transverse	321	-	-	546	-	-

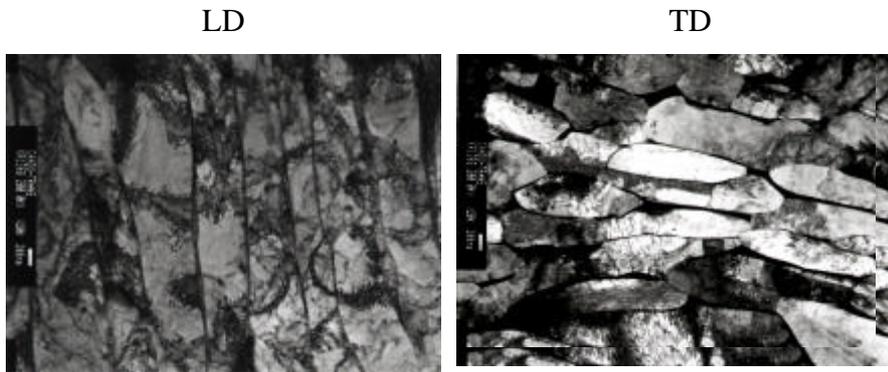


Fig. 1. TEM microstructures of Tube A

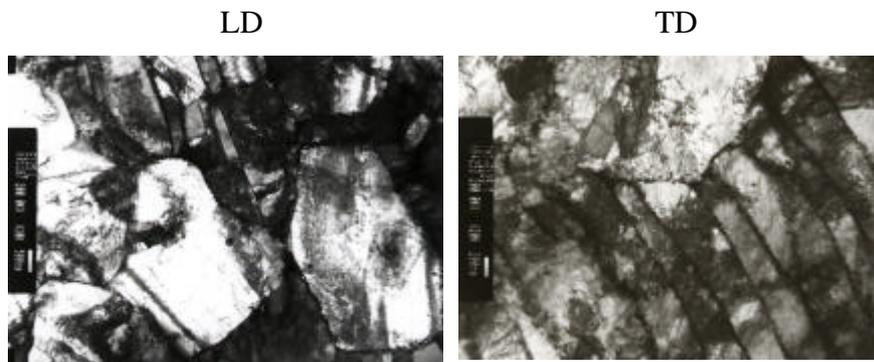


Fig. 2. TEM microstructures of Tube B

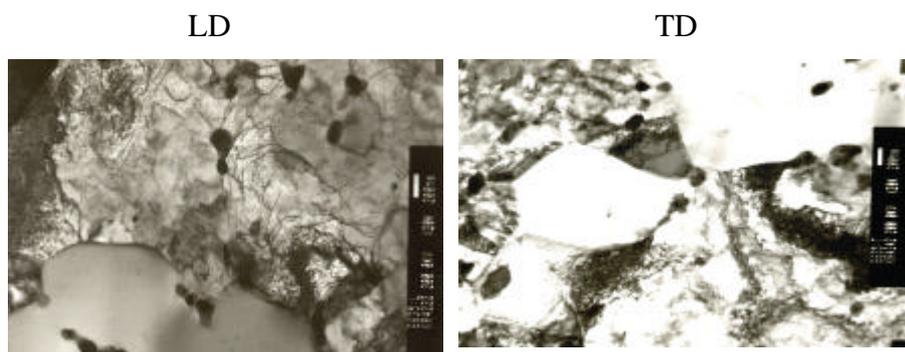


Fig. 3. TEM microstructures of Tube C



Fig. 4. Stringer of precipitates in Tube C

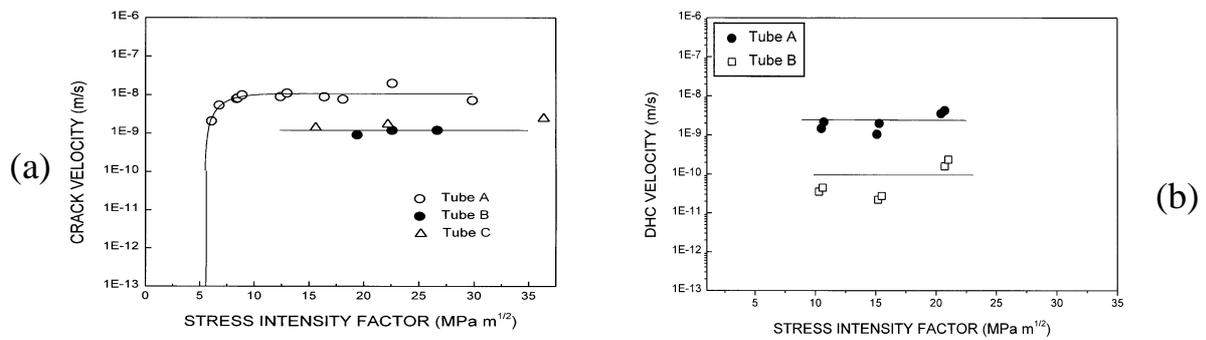


Fig. 5. DHCV of Tubes A at 200 °C with (a) Cool-down and (b) Heat-up Approaches

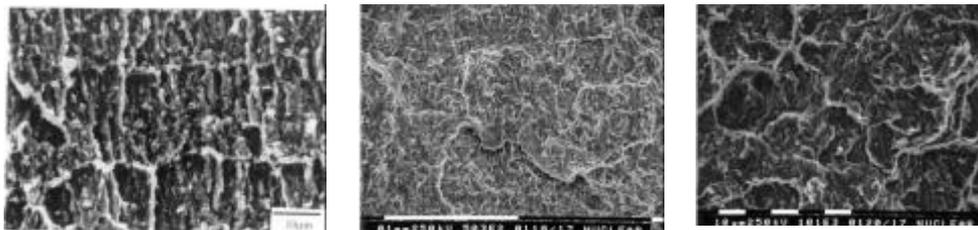


Fig. 6. Appearance of Fractured Surface of Tubes A, B and C after DHC Testing at 200 °C