2004 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

수소농도 및 방위에 따른 캔두 **Zr-2.5Nb** 압력관의 **K_{IH}**

K_{IH} Dependence on Hydrogen Concentration and Orientation in CANDU Zr-2.5Nb Tubes

김영석, 김상재, 임경수, 정용무, 김성수
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

캔두 Zr-2.5Nb 압력관을 대상으로 delayed hydride cracking (DHC)를 일으키는 임계응력집중세기 (threshold stress intensity factor), K_{IH}를 수소농도의 함수로 관의 반경방향 및 축방향에서, 온도는 160-280 °C 온도 범위에서 각각 측정하였다. 시편은 compact tension형 시편 및 캔티레버빔형 시편의 두 종류를 사용하였으며, 시편 내에 전기분해방식으로 장입시킨 수소농도는 60-100 ppm로 변화되었다. K_{IH}는 초기에 20 MPa√m의 응력집중세기를 크랙선단에 부하한 후 크랙이 진전함에 따라 응력집중세기를 0.5 MPa√m 만큼 단계적으로 감소시켜 크랙진전이 멈취지는 응력집중세기로 정의하였다. 캔두 Zr-2.5Nb 압력관의 K_{IH}는 과포화 수소농도가 30 ppm 이상인 조건에서는 온도에 무관하게 반경방향에서는 8.4 MPa√m 및 축방향에서는 5.8 MPa√m로 일정하였다. 그러나 과포화 수소농도가 30 ppm 보다 적은 조건에서는 과포화수소농도가 감소함에 따라 K_{IH}는 감소함수적으로 지수함수적으로 증대되었다. 수소농도 및 방향에 따른 캔두 Zr-2.5Nb 압력관의 K_{IH}를 수소화물 크기에 따른 파괴강도 및 수소화물 석출면과 크랙진전면의 방위 관점에서 토의되었다.

Abstract

The threshold stress intensity factor, K_{IH} of the CANDU Zr-2.5Nb tubes were investigated in their radial and axial directions as a function of the hydrogen concentration at temperatures ranging from 160 to 280 °C. Compact tension and cantilever beam specimens that were electrolytically charged to 60 to 100 ppm hydrogen were used to determine the axial and radial K_{IH}, respectively. The K_{IH} were determined using a load-decreasing method where the applied stress intensity factor decreased from 20 MPa√m step-wisely by 0.5 MPa√m until no crack growth was detected by an acoustic emission sensor or the direct current potential drop method. The K_{IH} of CANDU Zr-2.5Nb tubes in the radial direction was 8.4 MPa$\sqrt{m}$ which is higher than that in the axial direction or 5.8 MPa$\sqrt{m}$ at the supersaturated hydrogen concentration in excess of around 30 ppm H. However, when the supersaturated hydrogen concentration was less than 30 ppm H, the K_{IH} exponentially increased with the decreasing supersaturation of hydrogen concentration. The K_{IH} dependence on the orientation and the hydrogen concentration was discussed from viewpoints of the angle between the hydride habit plane and the cracking plane and a hydride fracture stress dependence on the hydride size.

1. 서론

Zr-2.5Nb 압력관은 가동 중 수소흡수로 표면결함 또는 rolled joint 부위와 같은 높은 잔류인장응력이 존재하는 곳에서 DHC (delayed hydride cracking)현상으로 쉽게 크랙을 성장시켜 파손된다. 특히 캔두 Zr-2.5Nb 압력관은 러시아의 RBMK Zr-2.5Nb 압력관에 비하여 DHC에 매우 취약하여 [1], 가동 압력관에 표면결함이 발견되면 가동 조건에서 크랙 성장 여부 및 크랙성장속도 등의 DHC 건전성 평가를 통하여 결함 압력관의 교체여부 및 잔여수명 등의 정략적 평가를 중수로 안전성 확보 차원에서 반드시 수행해야 한다 [2]. 캔두 Zr-2.5Nb 압력관의 DHC 건전성 평가 시 가장 중요한 재료 특성인자의 하나는 DHC를 일으키는 임계응력집중세기 (threshold stress intensity factor), K_{IH} 이므로, 본 연구에서는 캔두 Zr-2.5Nb 압력관의 K_{IH}를 압력관의 반경방향 및 축방향 두 방향에서 결정하였다. 아울러 가동시간에 길어짐에 따라 압력관내 수소농도는 지속적으로 증대되므로 수소농도에 따른 압력관의 K_{IH} 의존성도 조사하였다.

2. 실험 방법

본 연구에 사용된 재료는 4회 용해된 잉곳을 약 800 °C에서 11:1로 압출 및 20-25%의 냉간가공 (cold drawing) 후 400℃에서 24시간 응력제거 열처리된 Zr-2.5Nb 압력관이다. 축방향 및 반경방향 K_{IH} 측정은 너비 20.4 mm 및 길이 17mm compact tension 시편과 너비 3.5 mm 및 길이 38 mm 크기의 캔티레버빔 시편을 각각 사용하였다 [3,4]. 시편내 수소장입은 전기분해법으로 시편 표면에 수소화물 층을 형성시킨 후 균질화처리 온도 및 시간을 제어하여 이루어졌다. 보다 자세한 수소장입절차는 KAERI의 압력관 특성시험절차서에 기술되어있다 [5]. 가동 시간에 따른 압력관 내 수소농도 증가가 캔두압력관의 K_{IH}에 미치는 효과를 모사하고자 수소농도를

60, 80 및 100 ppm H 의 세가지 농도로 변화시켰으며, 그림 1은 수소장입 후 노냉시켰을 때 수소화물 분포를 보여준다.

캔티레버빔시편에서는 음향방출 (acoustic emission)법으로, compact tension 시편에서는 직류전위차법 (direct current potential drop method)으로 크랙성장을 감지하여 K_{IH}를 결정하였다. 동일 조건에서 실험의 재현성을 높이고자 안정적인 균열성장을 보이는 응력집중세기 구간인 12-25 MPa$\sqrt{m}$ 구간 중 상위 영역에 있는 20 MPa$\sqrt{m}$에 해당하는 초기하중을 시편에 걸었다. 하중을 부가하기 전에 그림 2에 나타낸 바와 같이 열적이력을 주어 과포화수소농도를 시편이 유지하도록 하였다: 0.5-5 ^{o}C/min의 속도로 시편을 피크온도인 310-380 ^{o}C까지 시편을 승온시킨 후 1시간 유지시켜 석출된 수소화물을 모두 고용시킨 후 1-2 ^{o}C/min 속도로 서냉시켜 시험온도에 도달하였으며, 시험온도에 도달 후 30분이 경과하면 20 MPa$\sqrt{m}$를 시편에 부과하였다. 20 MPa$\sqrt{m}$ 응력집중세기를 시편에 걸은 후 크랙이 성장하면 단계별로 0.5 MPa$\sqrt{m}$ 만큼 응력집중세기가 감소되도록 하중을 수동으로 감소시켰으며, 이러한 하중감소법을 사용하였을 때 크랙성장이 더 이상 발생되지 않는 최소 응력집중세기를 K_{IH}로 정의하였다. K_{IH} 값은 DHC 시험이 끝난 후 파단면에서 결정한 초기크랙길이, 최종크랙길이를 사용하여 KAERI의 특성시험절차서 [5]를 따라 결정되었다.

3. 결과 및 고찰

3.1. K_{IH}의 수소농도 의존성

그림3은 280 ^{o}C 일정한 온도에서 수소농도에 따른 캔두 Zr-2.5Nb 압력관의 K_{IH}를 보여준다. 수소농도가 60 ppm일 때, 반경방향 및 축방향 K_{IH} 모두 증가하지만, 수소농도가 100 ppm 이상으로 커지면 K_{IH} 는 감소하다가 일정한 값으로 수렴하였다. 이러한 K_{IH}의 수소농도 의존성은 Shi가 보고한 것과 일치한다. Kim이 제시한 DHC 모델에 따르면 [6], DHC의 구동력은 크랙선단과 크랙선단에서 먼지역의 수소농도 차이이므로 그림 3에 나타낸 바와 같이 K_{IH}를 장입된 수소농도의 함수로 나타내기 보다는 280 ^{o}C의 평형 수소고용도 (terminal solid solubility for dissolution of hydrogen)이상으로 지르코늄 기지상에 과포화된 수소농도, ΔC (=장입된 수소농도-기지상에 용해되는 수소농도 or 280 ^{o}C의 TSSD)의 함수로 K_{IH}를 다시 나타내었다 (그림 4). 그림 4에 나타낸 바와 같이 K_{IH}는 과포화된 수소농도, ΔC가 30 ppm 이상이되면 일정한 값으로 수렴하였으며, ΔC가 30 ppm 보다 적으면 지수함수적으로 커졌다. 그림 5는 280 ^{o}C 뿐만 아니라 160-250 ^{o}C 온도 구간에서 측정한 K_{IH}를 단지 과포화수소농도, ΔC의 함수로만 나타낸 것이다. 온도에 무관하게 캔두 Zr-2.5Nb 압력관의 K_{IH}는 과포화수소농도, ΔC에 결정된다.

K_{IH}가 일정한 값으로 수렴하는 임계 과포화수소농도는 그림 4 및 5에 나타낸 결과에 따르면 온도에 무관하게 대체로 30 ppm H이다. 160-280 ^{o}C 구간에서 Zr-

2.5Nb 합금에서 나타날 수 있는 최대 과포화수소농도는 석출수소고용도 (TSSP)-용해수소고용도 (TSSD)이므로, Pan [7]등이 보고한 TSSP 값을 사용할 때 8.4-26.3ppm이다. 따라서 가장 보수적인 값인 26.3 ppm과 그림 5에 제시된 결과에서 결정한 임계 과포화수소농도 30 ppm 을 비교하면 비교적 예측치와 실측치가 잘 일치하는 것으로 보인다. 이상의 결과로 볼 때, 저온에서는 과포화수소농도가 작아 과포화수소농도 효과를 보기 어렵지만, 고온에서는 기지상이 갖을 수 있는 과포화수소농도가 꽤 커서 그 효과가 보다 뚜렷하게 나타나는 것으로 보인다. 주목해야 할 것은 가동 중 수소농도 증가에 따른 캔두압력관의 K_{IH} 변화는 그림 4에 결과에 따르면 거의 없다는 것이다.

K_{IH}값의 수소농도 의존성은 아마도 수소화물 파괴강도가 수소화물 크기에 따라 다르기 때문에 나타나는 것으로 보인다. 과포화수소농도, ΔC가 작으면 크랙선단과 기지상 간의 수소농도차이가 작아 크랙선단에 작은 수소화물이 형성될 것이고, 작은 수소화물은 보다 큰 수소화물에 비하여 높은 인장응력에서 파단될 것이다. 반대로 기지상에 과포화된 수소농도가 평형치인 TSSP-TSSD이상이라면 크랙선단에 비교적 큰 수소화물이 석출되고 이 큰 수소화물의 파단강도는 작은 수소화물에 비하여 감소하여 낮은 인장응력에서도 파단될 것이다. 주목해야할 것은 초기 장입수소농도가 일정량 이상으로 커지게 되면 과포화수소농도, ΔC는 일정하므로 크랙선단에 석출되는 크기는 일정하게 나타나므로 수소화물을 파단시키기 위한 파단강도는 일정해져 그림 3-5 에 나타낸 바와 같이 K_{IH}는 초기 수소농도 및 과포화 수소농도가 커지더라도 일정한 값으로 수렴하는 것이다.

3.2. K_{IH}의 방위 의존성

그림 4 및 5에 나타낸 결과는 캔두 압력관의 K_{IH}는 반경방향에서는 8.4±0.7 MPa√m이며 5.8±0.4MPa√m (95% 신뢰 구간)으로 반경방향에서의 K_{IH}가 더 높다는 것을 실험적으로 보여준다. 크랙면과 수소화물 상주면과의 각도에 따라 K_{IH}가 달라지지만 [8], 크랙방향 역시 매우 중요하다. 그 이유는 대다수의 수소화물 상주면이 길이방향에 평행하게 놓여있기에, 크랙이 길이방향으로 성장하는 것이 보다 쉽지만 반경방향으로 성장할 때에는 크랙이 반경방향으로 성장하더라도 지속적으로 길이방향으로 방향을 전환하려 하기 때문에 크랙면이 훨씬 울퉁불퉁하게 굴곡져 나타나게 된다 [9]. 요약하면, 압력관 반경방향의 K_{IH}가 축방향 K_{IH}보다 크게 나타난 것은 크랙면은 같더라도 크랙성장시 크랙면과 수소화물 상주면의 공간분포가 길이방향에서 훨씬 높은 밀도를 나타내어 낮은 응력조건에서 쉽게 수소화물이 깨지기 때문이며, 이것이 그림 6에 나타내듯이 축방향 파단면을 매우 편평한 면으로 나타나게 하는 것이다. 이에 반하여 반경방향으로 크랙이 성장할 때에는 길이방향으로 크랙진전 방향을 전환하려 하기에 반경방향 파단면은 그림 6에 나타낸 바와 같이 울퉁불퉁하고 심하게 굴곡진 파단면을 보인다. 다시말하면, 수소화물의 크기가 같더라도 수소

화물의 파단강도는 크랙면과 수소화물의 상주면의 분포와의 각도분포에 따라서 결정되며 특히 크랙면과 수소화물 상주면의 분포와 잘 일치하면 낮은 파단강도를 보이지만 반대로 크랙면이 수소화물 상주면와 잘 일치하지 않으면 높은 파단강도를 야기시켜, 반경방향 K_{IH}가 축방향 K_{IH}에 비하여 높게 나타난다는 결론이다.

4. 결론

Zr-2.5Nb 압력관의 DHC 임계응력집중세기 K_{IH}는 지르코늄 기지상 내의 과포화 수소농도, ΔC에 비례하여 지수함수적으로 감소하였으며 ΔC가 30 ppm 이상이면 일정한 값으로 수렴하였다. 30 ppm 정도의 임계 과포화 수소농도, ΔC는 석출수소고용도–용해수소고용도 (=TSSP-TSSD)와 일치하였으며, 저온에서의 ΔC는 매우 적어 K_{IH}의 수소농도 의존성을 보기 어렵지만 고온에서는 ΔC가 비교적 커서 K_{IH}의 수소농도 효과가 훨씬 뚜렷하게 나타날 것으로 예상할 수 있다. 과포화 수소농도에 따른 캔두압력관의 K_{IH} 값의 변화는 수소화물 크기에 따른 파단강도의 크기 의존성 때문에 나타난다고 설명하였다. 캔두압력관의 반경방향 K_{IH}는 8.4±0.7 MPa√m이었으며, 5.8±0.4MPa√m의 축방향 K_{IH}에 비하여 훨씬 크게 나타났다. 이처럼 캔두압력관의 K_{IH} 방위 의존성은 크랙성장 방향과 수소화물 상주면 주 분포방향과의 각도가 커짐에 따른 수소화물 파단강도 값의 변화 때문에 발생한다는 결론을 도출하였으며, 이에 대한 실험적 증거로 방위에 따른 압력관 파단면의 패턴 차이를 제시하였다.

참고문헌

1. Y.S. Kim et al., “Delayed Hydride Cracking Velocity of TMT-1 Zr-2.5Nb Pressure Tube”, KAERI/TR-1941/2001 (2001).
2. KINS, “월성원자력 1호기 정기 검사보고서” (1994).
3. S. Sagat, C.E. Coleman, M. Griffiths and B.J.S. Wilkins, “Zirconium in the Nuclear Industry, Tenth International Symposium, ASTM STP 1245, p.89, (1994).
4. S.J. Kim, Y.S. Kim, K.S. Im, S.S. Kim and Y.M, Cheong, “Delayed Hydride Cracking of Zr-2.5Nb tubes with the Notch Tip Shape and Cooling Rate”, J.Kor. Inst. Met.& Mater., 41, 21 (2003).
5. Y.S. Kim et al., “A Manual for Characterization Tests for Zr-2.5Nb Pressure Tubes”, KAERI Technical Report, KAERI/TR-1329/99 (1999).
6. Y.S. Kim et al., “DHC Velocity and K_{IH} of Zr-2.5Nb Tubes with Hydrogen”, Journal of Metals, 55 (2), 383 (2003).
7. Z.L. Pan, I.G. Ritchie and M.P. Puls, “The Terminal Solid Solubility of Hydrogen and Deuterium in Zr-2.5Nb Alloys”, J. Nucl. Mater., 228, 227 (1996).
8. Y.S. Kim, S.C. Kwon and S.S. Kim, “Crack Growth Pattern and Threshold Stress Intensity

Factor, KIH, of Zr-2.5Nb Alloy with the Notch Direction", Nucl. Mater., 280, 304 (2001).

9. Y.S. Kim, Y. Perlovich, M. Isaenkova, S.S. Kim and Y.M. Cheong, "Precipitation of Reoriented Hydrides and Textural Change of α-Zirconium Grains during Delayed Hydride Cracking of Zr-2.5%Nb Pressure Tube", J. Nucl. Mater., 297, 292 (2001).

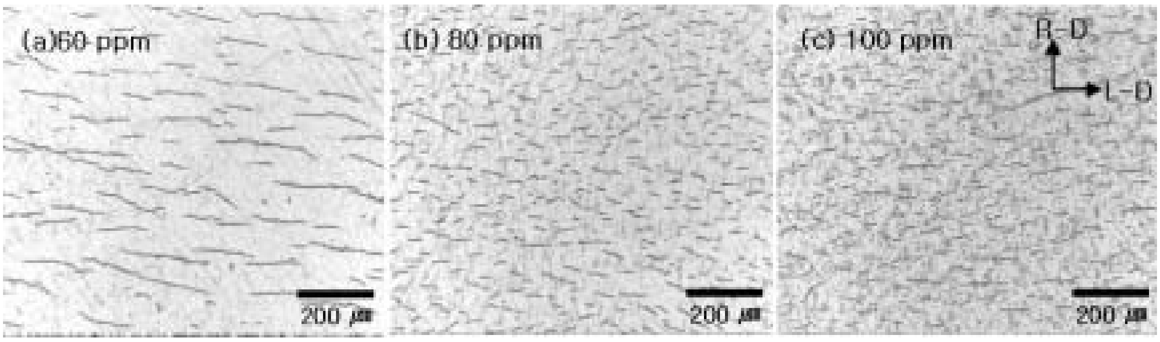


Fig. 1. Distribution of hydrides precipitated in the specimens after charging of 60, 80 and 100 ppm H.

T_{test} varied from 260 to 280 °C

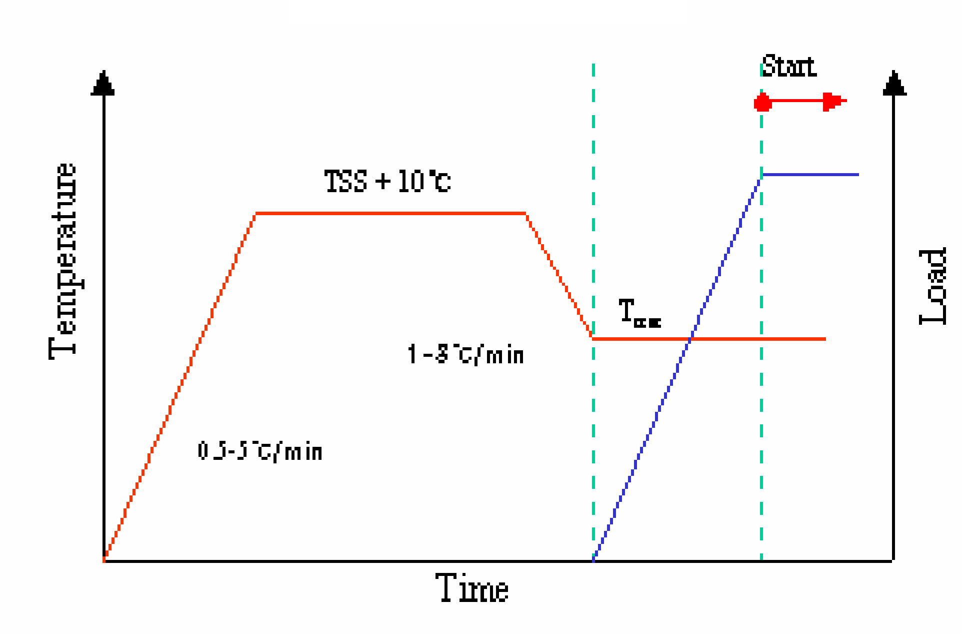


Fig. 2. Schematic diagram of a thermal cycle and loading schedule applied during DHC tests.

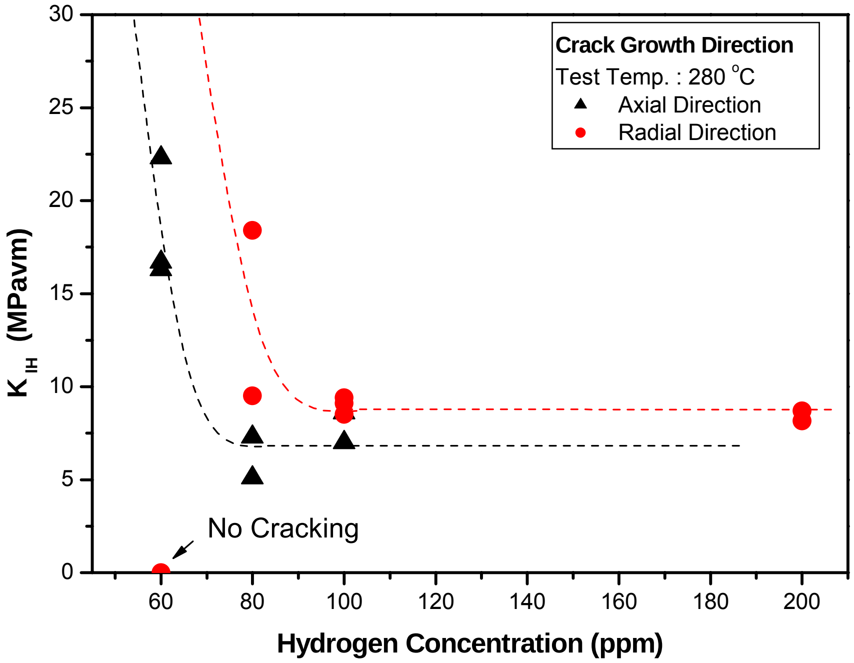


Fig. 3. Axial and radial threshold stress intensity factors, K_{IH} at 280 °C of the Zr-2.5Nb tube with the total charged hydrogen concentration.

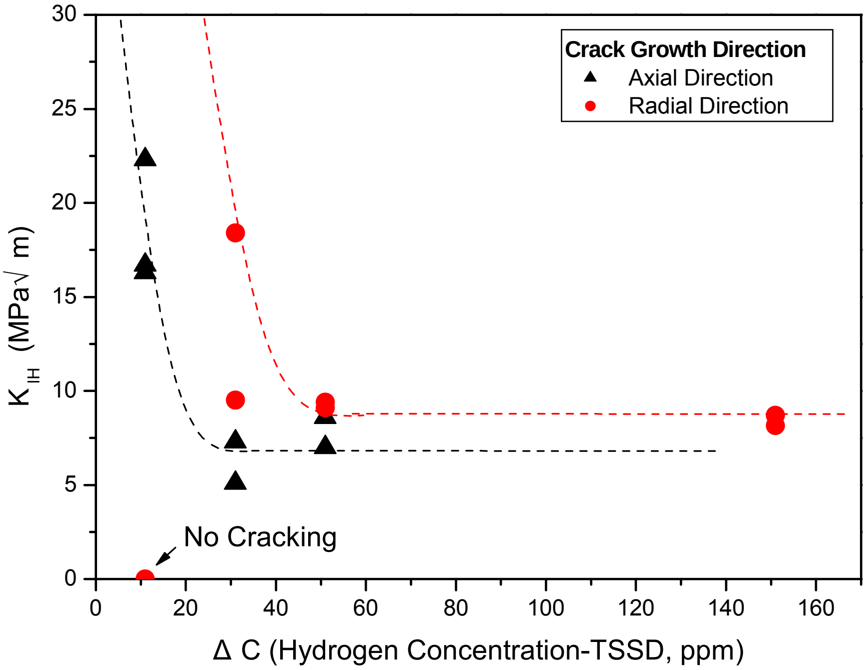


Fig. 4. Threshold stress intensity factors, K_{IH} at 280 °C of the Zr-2.5Nb tube with the supersaturated hydrogen concentration or ΔC over the terminal solid solubility for dissolution of hydrogen at 280 °C.

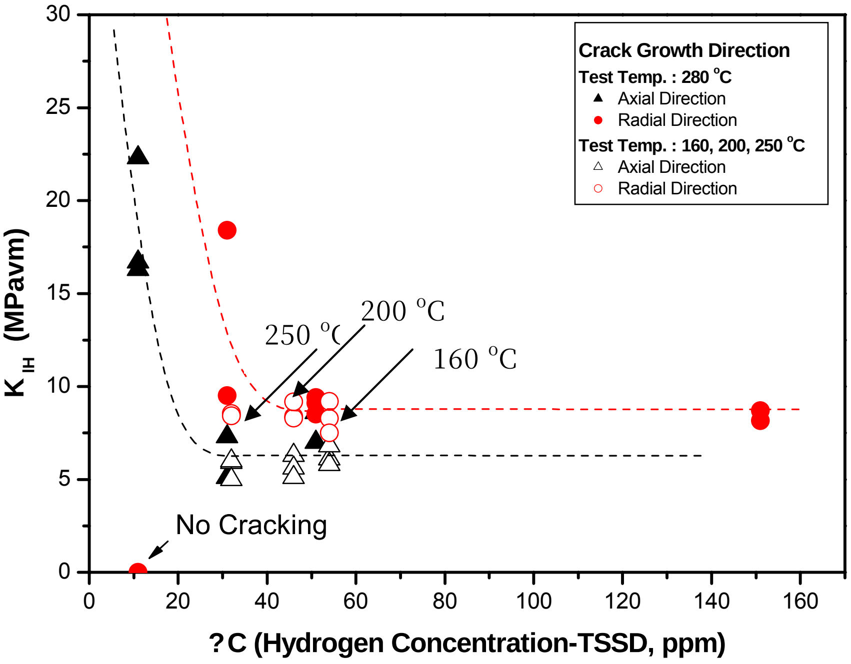
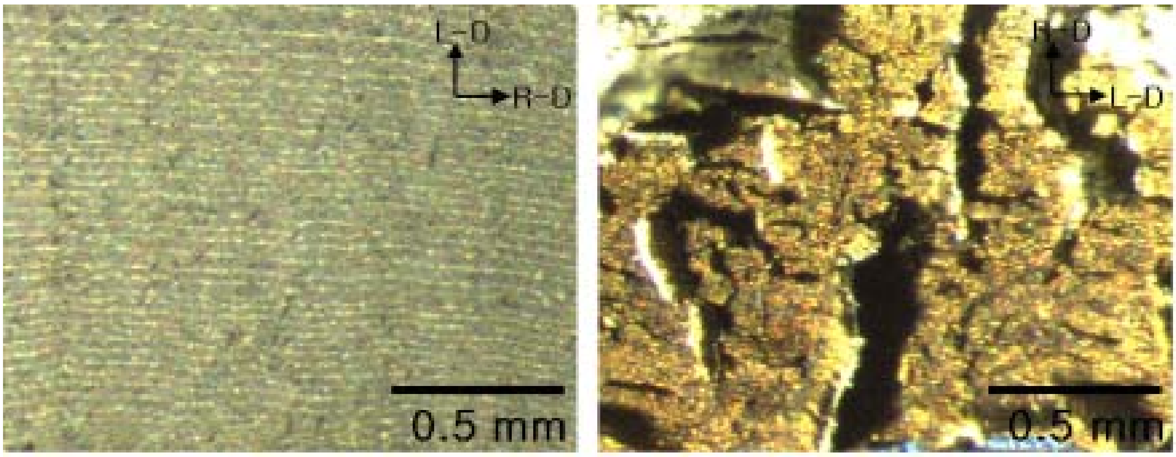


Fig. 5. K_{IH} of the CANDU Zr-2.5Nb tube as a function of the supersaturated hydrogen concentration, ΔC over the terminal solid solubility for dissolution at various temperatures.



(a) (b)

Fig. 6. DHC fracture pattern of the CANDU Zr-2.5Nb tube with the orientation: Flat fracture surface was observed on the CT specimens where the DHC crack grew in the axial direction while the rugged fracture surface appeared on the cantilever beam specimen where the DHC crack grew in the radial direction.