

2001 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

Zr-2.5Nb 압력관에서 DHC 균열방향에 따른 수소화물의 영향

Effect of Hydride in DHC Crack Directions at Zr-2.5Nb Pressure Tube

김상재*, 정용무, 오동준, 임경수, 김영석,

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요약

Zr-2.5Nb 압력관에서 균열방향에 따른 DHC(Delayed Hydride Cracking)거동을 조사하였다. 압력관에 60 ppm 수소를 장입한 후 균열이 길이방향으로 진행되는 CCT(Curved Compact Tension)시험편과 반경방향으로 진행되는 CB(Cantilever Beam)시험편을 제작하였다. 각각의 시험편으로 DHC 실험을 250 °C 에서 수행한 후, 방향에 따른 DHC 속도, 잠복시간(Incubation Time) 및 줄무늬간격(Striation Spacing)을 측정하였다. DHC 속도는 길이방향이 반경방향보다 4 배 더 빨랐고, 잠복시간은 길이방향에서 5 배 더 빨랐다. 이와 같이 Zr-2.5Nb 압력관에서 균열 성장 방향에 따른 이방성을 수소화물 생성 및 성장패턴으로 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 crack growth direction. Curved compact tension (CCT) and cantilever beam (CB) specimens were used to determine the DHC velocity in the longitudinal and radial directions, respectively. DHC tests were conducted at 250 °C after charging the specimens with hydrogen to 60 ppm H. The DHC velocity of the Zr-2.5Nb tube depended on the crack growth direction due to the anisotropic characteristic of pressure tube. DHCV in the axial direction was 4 times faster than that in the radial direction and the incubation time for the DHC crack growth in the axial direction was 5 times faster than that in the radial direction. This anisotropic DHC behavior of the Zr-2.5Nb tube with crack growth direction was discussed using the nucleation and growth pattern of hydrides on the cracking plane.

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 수소화물(Hydride)에 의한 파괴인성치의 취화로 인하여 압력관 파손사고를

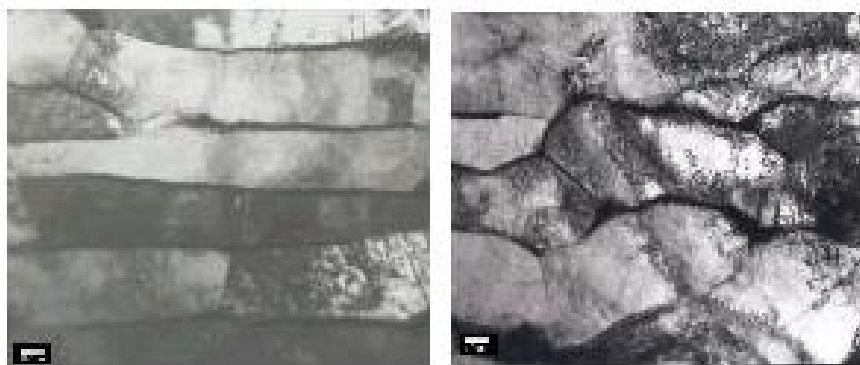
일으키는 것으로 보고되고 있다[2]. 특히, rolled joint 부위 또는 표면결함 부위와 같이 높은 인장응력이 존재하거나, 캘란드리아 관과의 접촉으로 온도 구배가 형성된 지역에서는 DHC로 인한 빠른 크랙 성장으로 관통결함이 생성되어 압력관 파손이 발생하였다. 특히, 1983년에는 압력관이 온도가 낮은 캘란드리아 관과의 접촉한 후에 파단 전 누설의 안전설계 개념을 만족시키지 않고 파열된 사고도 발생한 바 있다[3].

따라서 국내의 월성 1,2,3,4 호기를 포함한 모든 CANDU 형 원자로의 경우 정기적으로 압력관내 수소 흡수량 측정 및 균열발생 여부를 점검하도록 규정하고 있으며[4], 결함 압력관의 DHC 전파속도에 대한 연구의 필요성이 증가하고 있다. 이와 같은 이유로, 본 연구는 Zr-2.5Nb 압력관에서 DHC 특성을 이해하기 위해 균열전진 방향 즉, 균열 전진을 길이방향과 반경방향에 따른 DHC 속도, 파단면 및 줄무늬 (striation)등을 조사하였다.

2. 재료 및 실험

2.1 재료 및 시험편

본 연구에 사용된 재료는 CANDU 4 차 용해된 cold-worked Zr-2.5Nb 압력관이다. 캔두 압력관의 제조 공정은 800°C 에서 11:1 로 Hot Extrusion 과 Cold Drawing (25%) 후에 400 °C 에서 24 시간 Auto clave 처리를 하였다. CANDU 압력관은 807Mpa 의 강도를 가지며 원주방향의 집합도 ($f_r=0.61$, $f_t=0.33$, $f_l=0.07$)를 보인다. 또한, 압출시의 심한 소성변형 (11:1 의 압출비율)으로 축 방향으로 길게 늘어진 결정립자를 관찰할 수 있다 (그림. 1).



(a) Axial Section (b) Circumferential Section

Fig. 1 Typical Microstructure of Zr-2.5Nb Pressure Tube

길게 축 방향으로 늘어진 결정립자는 폭 1 μ m 이하의 미세한 α -Zr 이었으며, α -Zr 와 α -Zr 사이에 β -Zr (β_1) 입자들이 길게 늘어져 있다.

그림 2 는 전자현미경으로 관찰한 조대한 수소화물의 미세조직 사진이다. 이것은 Zr-2.5Nb 합금의 표준 미세조직과 형태상으로 유사한 조직을 나타낸다. 그림 2a 에서 관찰되어진 조대한 수소화물들은 Axial-section 에서 길게 늘어진 α -Zr 에 평행한 방향으로 정렬되어 있다는 사실로부터, 초기 압력관의 미세조직이 수소화물의 석출과 분포에 밀접한 관련이 있다는 것을 알 수 있다. Fig. 2b 는 DHC 실험을 한 후 재 배열된 수소화물을 전자현미경 관찰하였다. 그림 2a 와 달리 수소화물은 α -Zr 에 수직하게 수소화물이

재배열된 것을 볼 수 있다.

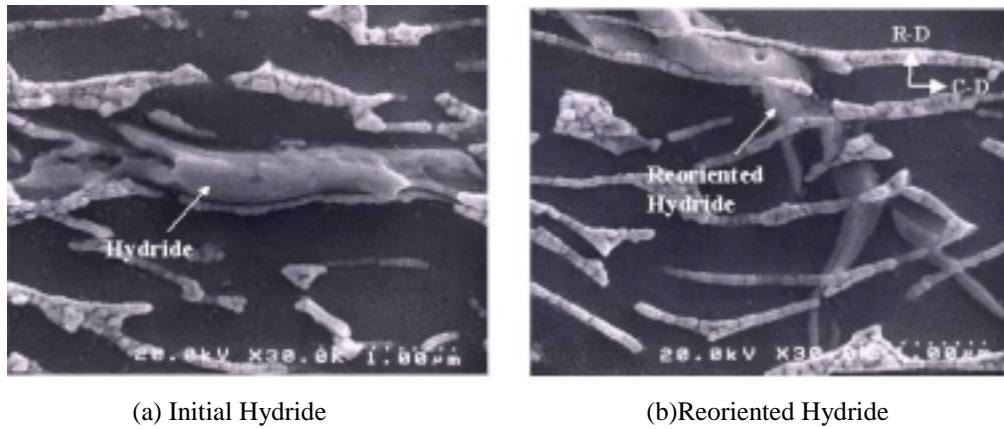


Fig. 2 Typical Microstructure of Circumferential Hydride and Reoriented Hydride on Zr-2.5Nb Pressure Tube by SEM images

그림 3은 CANDU 압력관에서 균열전진 방향이 반경방향과 길이방향으로 향하도록 제작된 CB(Cantilever Beam) 및 CCT(Curved Compact Tension) 시험편을 보여준다. 그림 3a는 CB 시험편으로 너비 3.5 mm, 길이 38 mm 이고, 그림 3b는 CCT 시험편으로 너비 20.4mm, 길이 17mm)이다.

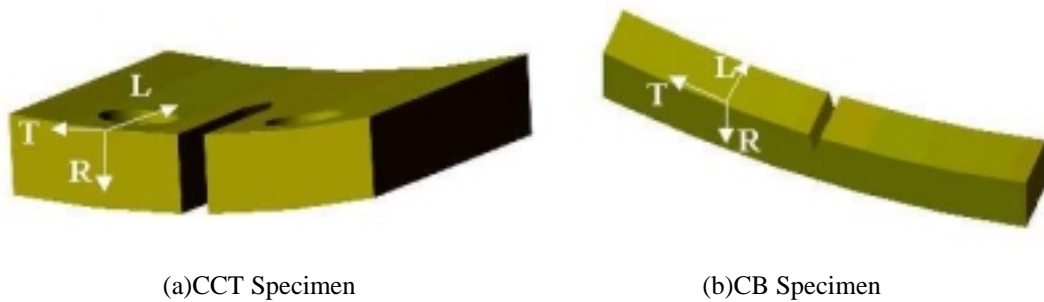


Fig. 3 Schematic Illustration of Cantilever Beam (CB) and Curved Compact Tension (CCT)

2.2.1 수소 장입

인위적인 농도의 수화물을 석출 시키기 위하여 고온 음극 수소 장입 방법 (Cathodic Hydrogen Charging Method)을 이용하여 수소를 60 ppm 이 되게끔 장입하였다. 이 방법은 전기화학적 방법으로, 시편 표면에 수화물 층을 형성시키고자 KAERI의 표준 수소 장입 절차서에 [5] 의해 시편은 음극에 설치하고 음극의 2 배 면적을 갖는 양극(납)을 $65\pm 5^{\circ}\text{C}$ 로 일정하게 유지되는 0.1~0.2 molar 의 황산용액(전해액)에 담근 후, $150\text{ mA}/\text{cm}^2$ 의 전류밀도를 23 시간 가해, 이론치보다 50% 두껍게 시편표면에 수화물 층이 형성되도록 하였다.

시편표면에 형성된 수화물 층으로부터 수소를 내부로 확산시키기 위해 염욕에서 균질화 처리를 수행하였다. 균질화 시간과 온도는 확산방정식을 이용하여 60 ppm 을 얻기 위해 302°C 에서 33 시간동안 열처리하였다. 열처리 후 시편은 노냉(furnace cooling)하여 그림 4 와 같은 수소화물을 만들었다. 이 경우 길이 방향으로 길게 성장한 수소화물이 잘 관찰되었다. 균질화 열처리 후 Hot Vacuum Extraction 장치를

사용하여 장입된 수소량을 분석하였다.

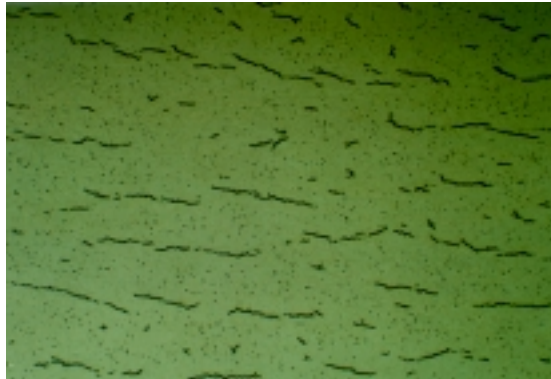


Fig. 4 Morphology Comparison of 60 ppm Hydride after Furnace Cooling

2.3 DHC 실험 방법

균열방향이 반경방향인 CB 시험편에서 음향방출(Acoustic Emission)장치를 부착한 DHC 시험기를 사용하여 균열성장을 측정하였고, 균열성장이 길이방향인 CCT 시험편에서는 DCPD 법을 사용하여 균열성장을 측정하였다. DHC 실험은 그림 5 와 같이 수행하였다.

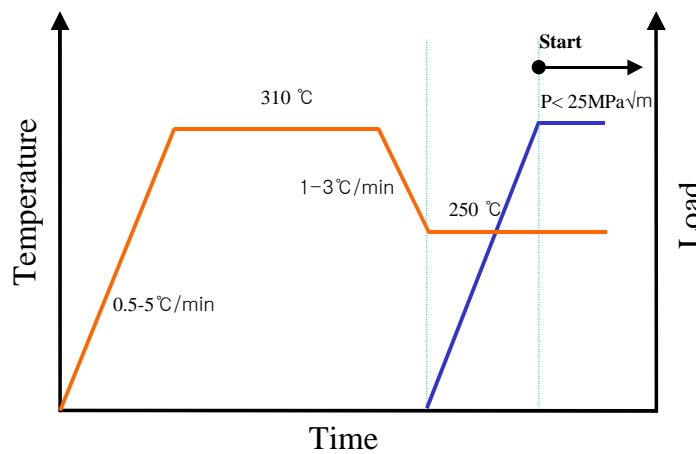


Fig. 5 DHC Condition

즉, 초기의 K 값은 동일 조건하에서의 실험의 재현성을 얻기 위해 안정한 균열성장이 일어나는 구간인 $12 \sim 25 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 의 평균값보다 약간 높은 $20 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 를 선택하였다. 실험온도는 분당 $0.5 \sim 5^\circ\text{C}$ 로 soaking 온도까지 올렸고, soaking 온도는 실험온도보다 50°C 이상 높게 하여 1 시간 유지한 뒤 $1 \sim 2^\circ\text{C}/\text{min}$ 의 냉각속도로 250°C 의 DHC 실험온도에 도달하도록 하였다. 이때 soaking 온도는 재료 내에 석출되어 있는 수소화물이 분해되어 재료 내에 재고용 되도록 하는 열처리이며, 만약 DHC 실험 전에 soaking 열처리가 수행되지 않으면 균열진전속도의 재현성을 확보하기 어려울 수도 있다[8]. 모든 가열-냉각 과정은 컴퓨터로 제어되는 온도 controller를 이용하여 자동으로 제어하였다.

CCT 시험편과 CB 시험편으로 DHC 실험이 끝난 후, 시험편을 파단시켜 stereoscope를 이용하여 파단면 사진을 촬영하였으며, 이때 파단면으로부터 Image analyzer를 이용하여 균열길이(a)를 측정하였다. 이렇게 구한 균열길이는 DHCV를 계산하는데 이용되었다. $\text{DHCV} = a/(t_f - t_i)$ 라는 관계로부터 DHCV는 쉽게 계

산할 수 있었다. 여기서 t_f 는 시험이 끝난 시간을 의미하며 t_i 는 균열이 시작된 시간을 나타내고 있다.

3. 실험 결과

피로 예비균열을 갖는 CB 시험편과 CCT 시험편을 가지고 250 °C 에서 DHC 실험을 행하여 그 DHCV 와 Incubation Time 등을 비교하였다. 각 실험의 결과는 아래 표 1 과 같다.

Table. 1 Summary of DHCV Results

		SPECIMEN I.D.	DHC CRACK LENGTH(mm)	INCUBATION TIME(min)	CRACKING TIME(min)	DHC VEL. (m/s)
CCT	Fatigue-Crack	CCT-1	3.98	15	751	8.80E-08
		CCT-2	2.66	8	417	1.06E-07
		CCT-3	2.4	18	405	9.80E-08
		CCT-4	1.65	5	258	1.06E-07
		CCT-5	1.66	5	287	9.80E-08
		CCT-6	1.63	21	251	1.08E-07
		CCT-7	1.56	5	255	1.02E-07
CB	Fatigue-Crack	CB-1	1.45	96	950	2.54E-08
		CB-2	1.72	103	1237	2.32E-08
		CB-3	1.49	100	9837	2.53E-08
	R=0.1	CB-4	0.71	199	500	2.37E-08
		CB-5	2.87	254	1968	2.43E-08

[H] CONC. (wt. ppm) : 60 ppm
 PEAK TEMP.(°C) : 315 °C // TEST TEMP.(°C) : 250 °C

3.1 DHCV 와 Incubation time 비교

그림 6 은 CB 와 CCT 시험편으로 250 °C 에서 DHC 실험한 다음 파단면을 관찰한 것이다.

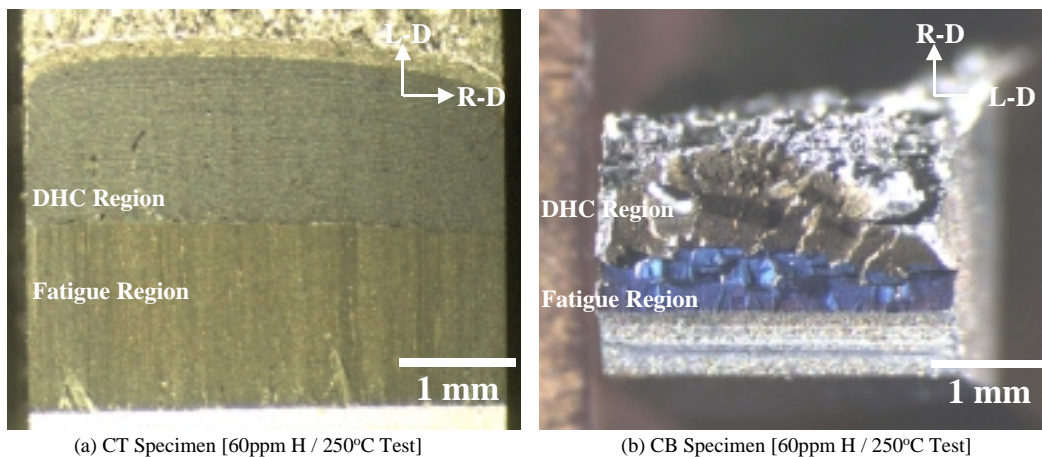


Fig. 6 Fractured Surface of CCT and CB specimen

그림 6a 는 CCT 시험편으로 균열 전진 방향은 길이방향이며, 그림 6b 는 CB 시험편으로 균열 전진방향은 반경방향인 경우를 보여 준다. 길이방향으로 균열이 전진할 때 피로예비균열과 DHC 균열이 반경 방향으로 균열이 전진하는 것 보다 평평함을 알 수 있다. 표 1 은 각 파단면에서 균열길이를 측정하여, 시험장치로부터 얻은 DHC 균열시간으로 DHC 속도를 계산했다. 그림 7 은 DHCV 를 비교한 것이다.

균열이 길이방향인 경우 DHCV 가 약 $1.01 \times 10^{-7} \text{m/sec}$ 였으며, 반경방향의 경우 $2.436 \times 10^{-8} \text{m/sec}$ 로서, 길이 방향으로 DHC 균열이 성장 할 때 반경방향보다 4 배정도 빠르게 성장함을 알 수 있다.

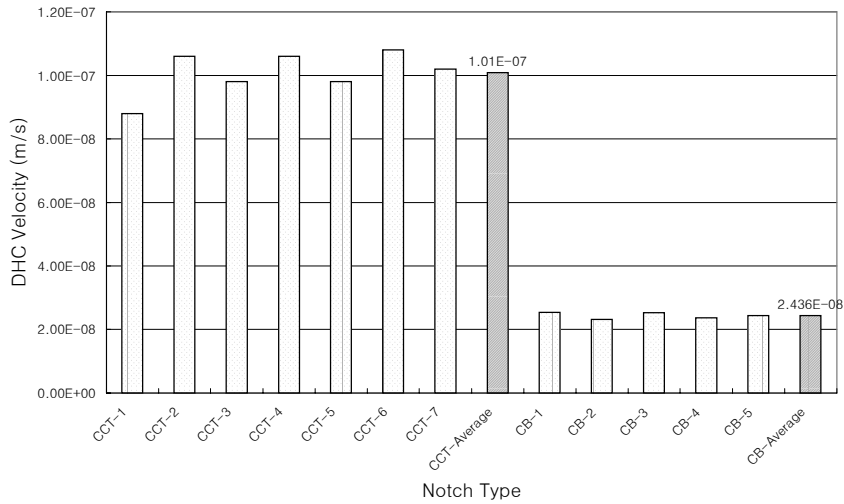


Fig. 7 Comparison of DHCV between CB and CCT

또한 여러 연구에 의하면, 현재까지 압력관의 길이방향의 DHCV 는 반경방향으로의 DHCV 보다 2 배정도 빠르며, 반경방향의 K_{II} 는 길이 방향의 K_{II} 에 비하여 약 1.5 배정도 높다고 보고되고 있다 [9-14]. 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_{II} 는 낮아지는 것으로 보고되어지고 있다 [10, 11].

Zr-2.5Nb 압력관의 두께가 4.2mm 로 반경방향으로 균열이 전진하는 CB 시험편에서 피로예비균열을 만들기 어렵기 때문에, 여러 다른 연구에서는 일반적으로 wire cutting 한 시험편을 사용한다. 그러나, 본 실험에서는 피로예비균열을 형성 시킨 것과 현재 wire cutting 으로 만들 수 있는 가장 작은 노치반경을 만들어 실험하였기에 DHCV 가 다른 연구(2 배)와 달리 4 배 차이가 나지만, 실험값의 신뢰성이 있다고 판단된다. 또한, 그림 8 에서 같은 CB 시험편이라도 노치의 곡율이 증가함에 따라 incubation time 이 급격히 증가하는 것을 알 수 있다. 균열방향에 따른 incubation time 을 비교하면 피로 예비균열을 형성한 CCT 시험편인 경우가 피로예비균열을 형성한 CB 시험편보다 5 배정도 빠르게 나타나고 있다. 이것은 앞서 설명한 DHCV 와 잘 일치하고 있으며, incubation time 이 빠르다는 것은 길이방향인 시험편에서 DHC 균열이 잘 나간다는 것을 시사하고 있다.

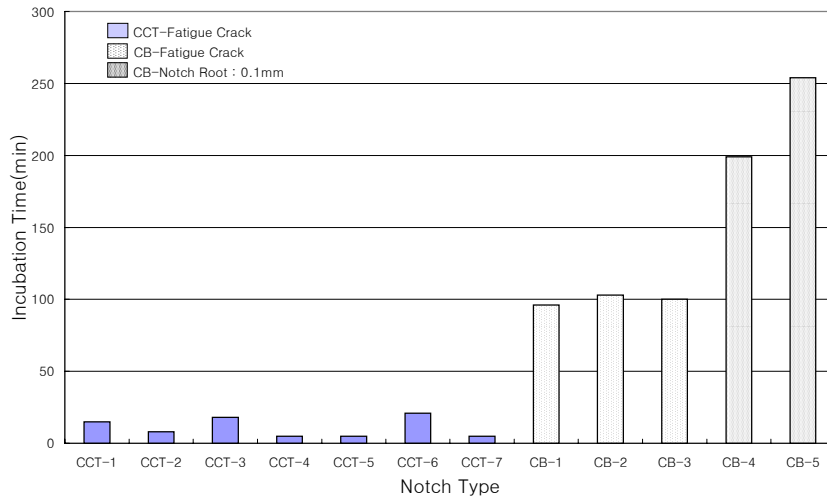


Fig. 8 Comparison of Incubation Time between CB and CCT

3.2 균열 방향에 따른 파단면 비교

DHC 현상을 이해하고자 DHC 실험시 수반되는 수소화물의 재배열 현상(Hydride reorientation)을 조사하였다. 그림 2는 균열성장이 일어난 뒤 하중을 제거하고 서서히 노냉시킨 후, 노치 선단에서 수소화물의 분포를 SEM으로 조사하였다. 기존의 수소화물은 원주방향으로 배열되어 있음에도 불구하고(그림 2a) DHC 실험중 가한 외부응력의 수직 방향인 반경방향으로 수소화물이 새롭게 석출되었다(그림 2b). 이것은 Coleman이 주장하듯이, DHC 현상은 재배열된 수소화물이 깨어져 균열이 성장하는 것을 시사한다. DHC에서 striation은 수소화물의 파괴와 남아있는 연성기지 조직의 파괴에 의한 불연속적인 균열전파에 의해 나타나는 DHC의 특징 중 하나이다. 그림 9은 250°C에서 DHC 실험한 시편의 단면을 나타낸 것으로 균열의 진전방향에 수직인 striation들이 잘 발달되어 있음을 볼 수 있다.

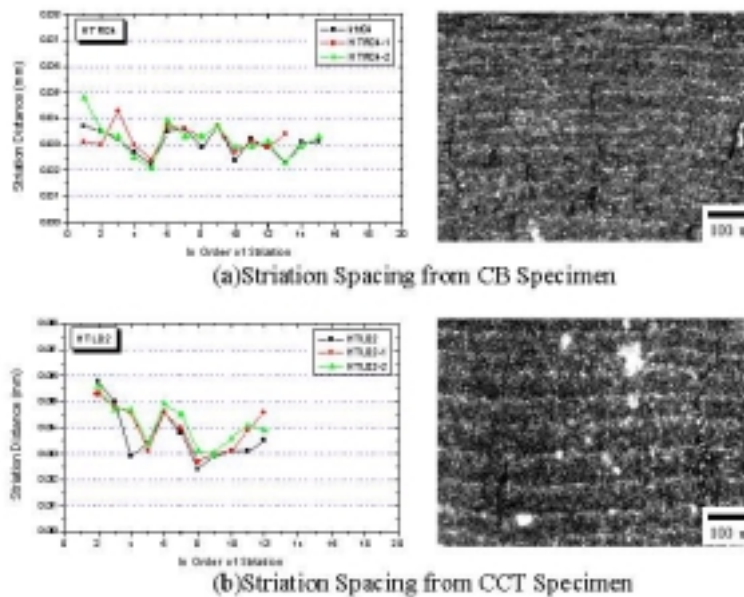


Fig. 9 Comparison of Striation Length between CB and CCT

왼쪽의 그래프는 오른쪽 파면사진으로부터 striation 간격을 Image analyzer 를 사용해 각 시편에 대해 3 번씩 길이를 측정하였다. 그래프에서 X 축은 striation 의 순서를 의미하고, Y 축은 striation 의 간격을 의미 한다. 두 그래프를 비교해보면 균열방향이 길이방향인 것이 반경방향인것보다 평균적으로 10um 정도 더 길며, striation 간격은 일정한 주기를 가지고 균열이 성장할수록 감소하고 있다는 것을 알 수 있다. CB 시편에서 striation 이 더 짧다는 것은 반경방향으로 균열 성장이 더 어렵다는 것을 의미하며, DHCV 가 반 경방향이 더 느린 것과 잘 일치한다.

4. 토의

그림 2에서 나타낸 바와 같이 DHC 균열이 성장하기 위해 수소화물의 재배열이 선행되어야 한다. Westlake [15] 및 Y. S. Kim [16] 등에 따르면 수소화물의 석출 habit plane 은 $(10\bar{1}7)$ 면이므로, $(10\bar{1}7)$ 면 우선적 으로 석출 할 것이다. 실제 압력관에서 균열전진 방향(그림 3)과 수소화물 habit plan 의 위치를 그림 10 에 나타내었다.

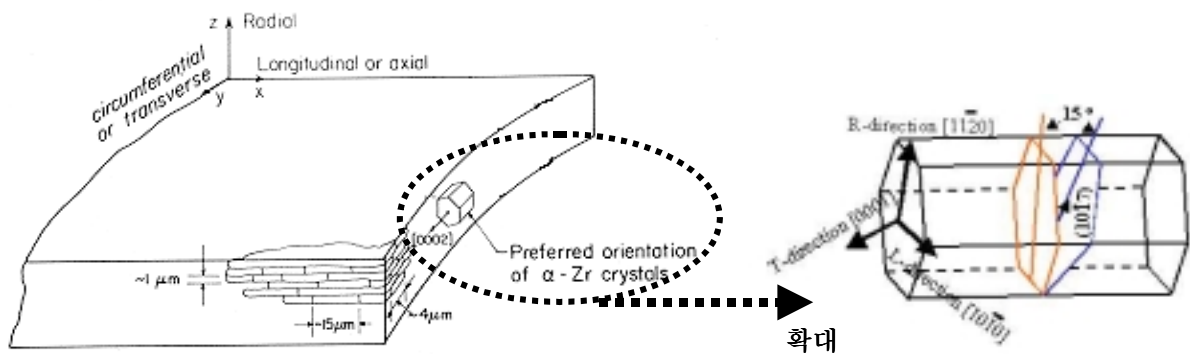


Fig. 10 hydride Habit plane in Zr-2.5Nb

그림 11 은 각각의 균열 방향에 따라 생성된 수소화물을 보여준다. 원주방향(그림 11b)에서는 β -상에서 수소화물이 핵생성 해서 α -상을 가로지르며 성장하고 있다. 그러나 그림 11a 에서 관찰되듯이 길이방향 에서 수소화물의 성장은 원주방향과는 달리 β -상을 따라 성장한다. 이것은 수소화물 habit plane(그림 10) 을 따라 수소화물이 성장한 것을 알 수 있다.

그림 3 에서 반경방향으로 균열이 전진할 때는 노치면(L-R 면) 에 수소화물이 재배열되어 R-방향으로 균열이 전진 할 것이다. 수소화물의 habit plane 은 그림 10 과 같이 응력방향과 평행한 것이 아니라 15° 기울어져 있다. 균열방향이 반경방향인 경우 15° 기울어진 수소화물의 habit plane 을 따라 지그재그로 수 소화물이 석출해 그 면을 따라 균열이 진행해야 하기에 R 방향으로 균열 성장이 어렵다는 것을 의미한 다. 이와 달리 길이방향으로 균열이 진행 할 때, 노치면(그림 3)은 반경방향과 마찬가지로 R-L 면에 수 소화물이 성장하지만 L-방향으로 균열이 진행한다. 그림 10 에서 보듯이 수소화물의 habit plane 이 길이방향 과 평행하게 위치하므로 반경방향에서 지그재그로 균열이 진행되는 것과 달리 길이방향에서는 보다 쉽

계 균열이 성장 할 것 이다. 따라서 반경방향으로 균열이 진행되는 파단면은 요철이 심하며, DHCV 와 Incubation time 이 길이방향으로 균열이 진전할 때보다 느린 사실을 이해 할 수 있다.

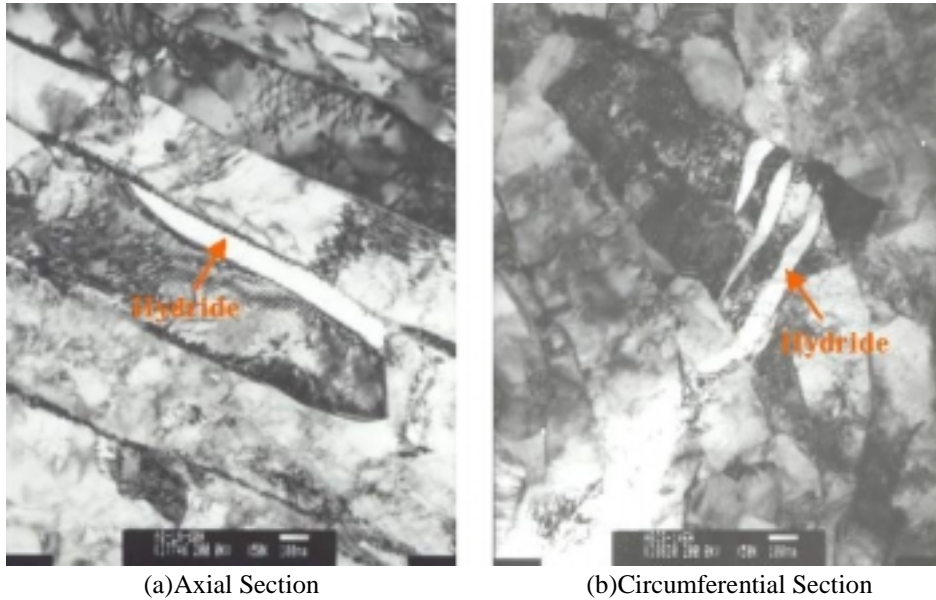


Fig. 11 TEM images of Hydride

5. 결 론

CANDU Zr-2.5Nb 압력관 재료에 60 ppm 수소를 장입한 CCT 와 CB 시험편으로 DHC 실험을 250°C 에서 행한 후에 DHCV 와 Incubation time 을 비교하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

- (1) 신뢰성있는 DHCV 를 구하기 위해 피로예비균열을 만든 다음 DHC 실험을 하였다. DHCV 는 길이방 향이 평균 $1.01 \times 10^{-7} \text{m/sec}$ 였으며, 반경방향이 평균 $2.436 \times 10^{-8} \text{m/sec}$ 를 가졌다.
- (2) Incubation time 은 균열 진전방향이 길이방향인 경우가 5 배정도 빨랐고, 20 분 이내에 균열이 시작되 었다. 피로예비균열을 형성한 반경방향인 경우 100 분정도 걸렸다.
- (3) 파단면은 반경방향으로 균열이 전진한 것에서 매우 심하게 요철져 있었다. Striation 간격은 길이방향 보다 평균 10um 정도 더 짧았다.

이상의 결과에서 균열성장은 길이방향 보다 반경방향으로 성장하기가 더 어렵다는 것을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 중장기계획 사업 중 중수로압력관 재료의 일환으로 수행되었 습니다. 연구비 지원과 관계자 여러분께 감사 드립니다.

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 1 호기 정기 검사보고서 (1994 년도), 1994
- [5] KAERI, "Zr-2.5Nb 압력관의 특성시험 절차서," KAERI/TR-1329/99
- [6] ASTM E399-81: Plane-Strain Fracture Toughness K_{IC}
- [7] BS 5762 (1979), "Methods of test for crack opening displacement (COD) Testing," British Standards Institution, London
- [8] 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
- [9] 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.
- [10] S. S. Kim, S. C. Kwon, and Y. S. Kim, J. Nucl. Mater. Vol. 273, 1999, pp.52-59.
- 4. C. E. Coleman, S. Sagat, and K. F. Amouzouvi, Control of Microstructure to Increase the Tolerance of Zirconium Alloys to Hydride Cracking, Atomic Energy of Canada Limited Report AECL-9524 (1987).
- [11] C. E. Coleman, Zirconium in the Nuclear Industry, Fifth Conference, ASTM STP 754, 1982, pp. 393-411.
- [12] H. Huang, & W. J. Mills, Metal. Transactions A 22A (1991), pp.2149-2060.
- [13] W. J. Mills, and F. H. Huang, Eng. Frac. Mech. 39 (1991), pp. 241-257.
- [14] 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.
- [15] D. G. Westlake : J. Nucl. Mater., 26 (1968) 208
- [16] Young-Suk Kim : J, kor, Inst. Met. & Mater. Vol.38, No.1(2000)