

2001 추계학술발표회 논문집

한국원자력학회

Zr-2.5Nb CANDU압력관의 수소량에 따른 파괴인성거동

Fracture Toughness Behavior with Hydrogen Concentration of Zr-2.5Nb CANDU Pressure Tubes

부명환, 오동준, 안창윤, 정용무, 김영석

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

요약

중수로압력관은 고온, 고압 및 중성자조사등과 같은 가혹한 환경에 사용되고 있으며 이러한 환경에 의해 여러 가지 형태의 파손 및 파괴가 발생한다. 본 연구에서는 수소화물이 압력관의 파괴인성에 미치는 영향을 규명하기 위하여 여러 농도의 수소를 장입한 CANDU Zr-2.5Nb압력관의 재료를 사용하여 상온에서 파괴인성실험을 행하였다. 그 결과, 수소의 농도가 증가함에 따라 파괴인성값은 감소하며 약 70~80ppm이후에서는 일정한 값을 나타내었다. SEM에 의한 파면 결과, AR재는 연성적인 특성을 나타내는 dimple이 관찰되며, 수소가 삽입된 시험편의 경우, 취성적인 특성인 quasi-cleavage 와 함께 fissure가 관찰되었다. 또한 fissure는 수소의 농도에 따라 그 크기가 증가하지만 인성의 실험결과와 비슷하게 약 70~80ppm에서 일정한 경향을 나타내었다.

Abstract

The aim of his study is to investigate the effect of hydrogen embrittlement of Zr-2.5Nb CANDU pressure tube. The tests were performed at various of hydrogen contents for CCT specimens. The specimens were directly machined from the tube retaining original curvature using electric discharge machine. From the fracture toughness test, it was found that fracture toughness dJ/da was decreased with speedily increasing hydrogen content. And it observed constant value about 70~80ppm of hydrogen content. In fractography by SEM, we observed dimple fracture in AR materials, dimple and short fissure in 30ppm, and quasi-cleavage and

large fissure in 80ppm. The decrease of fracture toughness with the addition of hydrogen is due the distribution of hydride and habit plane(10.7) of zirconium grain.

1. 서론

월성원자력발전소와 같은 가압 중수로형 발전소의 압력관은 핵연료 집합체 및 냉각재인 중수를 지지하는 부품으로, 중수로 원자력발전소의 안정성 및 가동률의 관점에서 1차 계통의 압력경계 부품 중 가장 핵심이 되는 부품이다. 압력관은 중수로 내의 핵연료와 칼란드리아 튜브(Calandria tube)사이에 설치되어 있고 핵연료에서 발생된 열을 전달하기 위한 중수(D₂O)가 흐르고 있다. 또한 약 10MPa의 압력, 250~310℃의 고온의 냉각수 및 최대 $30 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ (E>1MeV, E:중성자에너지)의 누적조사량을 받으며 설계수명 30년 동안 운전되도록 되어 있다. 이러한 가혹한 사용환경을 만족시키기 위하여 고온에서 기계적 특성과 내식성이 우수하고 중성자 흡수단면적이 작은 Zr-2.5Nb합금을 개발하여 사용하고 있다.

한편, 중수로 압력관의 건전성에 치명적인 영향을 미치는 요소로는 중성자 조사조건에 의한 제원변화, 사용환경에 의한 파괴인성 감소, DHC(Delayed Hydride Cracking, 지체균열전파)등이 있다^(1,2). 이중 파괴인성의 감소와 DHC현상은 수소화물에 의한 것이다⁽³⁾. 중수로 압력관내부의 수소양이 용해한도를 넘게 되면 수소화물이 압력관내에 석출하게 된다. 수소화물은 대부분의 온도구간에서 대단히 낮은 파괴인성을 가지므로 압력관의 파괴인성을 낮추게 된다. 압력관의 파괴인성은 파단전 누설(LBB, leak-before- break) 개념에서 대단히 중요한 역할을 하게 된다. CANDU(CANada Deuterium Uranium) 압력관에서는 불안정 파괴가 일어나기 시작하는 길이인 CCL(critical crack length)⁽⁴⁾보다 짧은 관통균열이 발생하여 중수의 누출이 감지되고 적절한 조치가 취해질 때까지 균열의 성장이 CCL을 넘지 않을 경우에 파단전 누설 개념을 보장한다. 여기서 CCL은 파괴인성과 매우 밀접한 관계가 있다. 이 값은 압력관의 대형 Burst Test나 소형 CCT 시험편의 파괴인성 시험을 통하여 구할 수 있으며 압력관의 파괴거동에 대한 연구는 원자로의 경제성과 안전성에 매우 중요한 부분을 차지하게 된다.

따라서 본 연구에서는 압력관내에 석출된 수소화물이 파괴인성특성에 미치는 영향을 알아보기 위하여 여러농도의 수소화물을 장입하여 캐나다의 AECL(Atomic Energy of Canada Limits)에서 개발한 소형 CCT시험편을 제작하여 파괴인성 실험을 행하였다.

2. 재료 및 실험

2.1 재료 및 시험편

본 연구에 사용한 재료는 CANDU Zr-2.5Nb 압력관 중에서 4차 용해재(Quad-melted)를

사용하였으며 표1에 압력관의 조성을 나타내었다. CANDU 압력관은 800℃에서 11:1로 Hot Extrusion과 Cold Drawing (25%) 후에 400℃에서 24시간 autoclave처리되어 제조된다.

J-R 곡선을 얻기 위한 파괴인성 시험편은 Fig. 1과 같은 위치에서 축방향의 노치를 갖는 CCT (Curved Compact Tension) 시험편을 제작하여 사용하였다. CCT 시험편의 크랙 진전방향은 Axial방향이며, W는 17mm, 크랙비 (a/W)는 0.5이다.

실험조건에 따른 여러 농도의 수소화물을 석출 시키기 위하여 고온 음극 수소 장입 방법 (Cathodic Hydrogen Charging Method)을 이용하여 30~80ppm의 수소를 KAERI의 표준 수소 장입 절차서⁽⁵⁾에 따라 장입하였다.

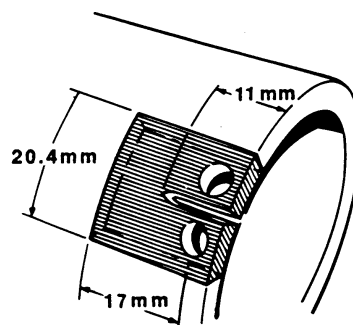


Fig. 1 CCT Specimen for Fracture Toughness

Table 1 Chemical compositions of Cold-worked Zr-2.5Nb pressure tube material

Nb (wt%)	O (ppm)	Fe (ppm)	Sn (ppm)	Hf (ppm)	C (ppm)	Zr
2.8	1100	0.086	<25	<25	60	Bal.

2.2 파괴인성 시험

파괴인성은 ASTM E 1737-96⁽⁶⁾에 준하여 Single-specimen method에 의하여 수행하였다. 파괴인성실험을 위해 사용한 시험기는 Instron 8501이며, 파괴인성 실험을 위한 그림은 Zr-2.5Nb합금을 사용하여 가공하였으며 직류전위차(DCPD, Direct Current Potential Drop)장치의 전류의 절연을 위하여 800℃에서 3시간 열처리 후에 공랭하여 산화막 처리를 하였다. 파괴인성실험을 위해서 피로예비균열을 삽입하였다. 예비균열은 $\Delta K=12\sim 10\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$ 로 ΔK 를 감소시키면서 하중비($R=P_{max}/P_{min}$)를 0.1로 하여 3Hz의 주기로 삽입하였다. 또한 균일한 피로 예비균열을 얻기 위하여 1.5°의 테이퍼 편을 사용하였다. 이때의 피로 크랙의 진전을 측정하기 위해서 2대의 travelling microscope를 사용하였으며, 파괴인성 실험 중에는 크랙

진전을 DCPD장치를 이용하여 측정하였으며 실험이 끝난 후에는 9점 평균 균열길이 측정 방식에 의해 실제 균열길이를 측정하여 DCPD값을 보정하였다.

2.3 파괴인성 평가

파괴인성시험은 0.05mm/min의 하중선변위(Load Line Displacement, LLD)속도로 변위량을 0.025~ 0.01mm의 간격으로 조절하여 실시하였다. LLD의 측정은 지그에 부착된 2개의 선형변위측정장치(LVDT)를 이용하였으며, 안전균열 성장량은 DCPD장치를 이용하였다. 실험이 끝난 후에는 약 300℃에서 10분간 heat-tinting작업을 하였으며, 시편의 추가적인 변형을 방지하기 위하여 하중비, 0.7에서 피로크랙 작업을 하여 시험편을 파단시켰다. 파단된 시험편의 최종 크랙길이를 9-point average method에 의해 측정하였다.

J - R 곡선은 ASTM E-1152⁽⁷⁾의 J 계산식에 의해 구할 수 있다. J 값은 식(1)을 이용하여 하중, 하중변위값, 그리고 그 시점에서의 크랙길이에 의해 구할 수 있다.

$$J = J_{el} + J_{pl} \quad (1)$$

여기서 J_{el} 과 J_{pl} 은 각각 탄성 및 소성에 해당되는 J 의 값이다. J_{el} 값은 작용하중, P_i 와 크랙 길이, a_i 의 함수이며, 식(2)에 의해 구해진다.

$$J_{el} = \frac{P_i(1-\nu)}{EB\sqrt{W}} f\left(\frac{a_i}{W}\right) \quad (2)$$

B 는 시편의 두께이며, ν 는 Poisson's ratio, W 는 시편의 폭, 그리고 E 는 Young's Modulus이다. 그리고

$$f\left(\frac{a_i}{W}\right) = \frac{2+a_i/W}{(1-a_i/W)^{3/2}} (0.866 + 4.64\frac{a_i}{W} - 13.32\left(\frac{a_i}{W}\right)^2 + 14.72\left(\frac{a_i}{W}\right)^3 - 5.6\left(\frac{a_i}{W}\right)^4) \quad (3)$$

J_{pl} 은 하중점 변위에 의해 구해진다.

$$J_{pl} = [J_{pl(i-1)} + \left(\frac{\eta}{b}\right) \frac{A_{pl(i)} - A_{pl(i-1)}}{B}] [1 - \gamma_i \frac{(a_i - a_{i-1})}{b}] \quad (4)$$

여기서

$$\eta_i = 2.0 + 0.522 \frac{b}{W}, \quad \gamma_i = 1.0 + 0.76 \frac{b}{W} \quad (5)$$

이때, $A_{pl(i)} - A_{pl(i-1)}$ 은 하중과 하중점 변위 곡선상의 소성역 부분의 면적 증가분으로 식(6)에 의해 구할 수 있다.

$$A_{pl(i)} = A_{pl(i-1)} + [P_i + P_{i-1}] [\delta_{pl(i)} - \delta_{pl(i-1)}] / 2 \quad (6)$$

$\delta_{pl(i)}$ 는 전체 하중점 변위, δ 의 소성영역에 해당되는 부분이며, 현재 크랙에 대한 탄성 컴플라이언스로부터 구할 수 있다.

$$\delta_{pl(i)} = \delta_i - P_i C_i \quad (7)$$

또한, C_i 는 시험편의 컴플라이언스로 식(8)에 의해 계산된다.

$$C_i = \frac{1}{E^* B} \left(\frac{W + a_i}{W - a_i} \right)^2 \left[2.1630 + 12.219 \frac{a_i}{W} - 20.065 \left(\frac{a_i}{W} \right)^2 - 0.9925 \left(\frac{a_i}{W} \right)^3 + 20.609 \left(\frac{a_i}{W} \right)^4 - 9.9314 \left(\frac{a_i}{W} \right)^5 \right] \quad (8)$$

식(8)의 E^* 은 시험방법의 불확실성을 고려한 Effective Young's Modulus이다. 이 값은 초기 시험편의 컴플라이언스의 값, C_0 ,와 원래 크랙길이 a_0 에 의해 구해진다.

$$E^* = \frac{1}{C_0 B} \left(\frac{W + a_0}{W - a_0} \right)^2 \left[2.1630 + 12.219 \frac{a_0}{W} - 20.065 \left(\frac{a_0}{W} \right)^2 - 0.9925 \left(\frac{a_0}{W} \right)^3 + 20.609 \left(\frac{a_0}{W} \right)^4 - 9.9314 \left(\frac{a_0}{W} \right)^5 \right] \quad (9)$$

3. 실험결과 및 고찰

3.1 파괴인성거동

Fig. 2에 파괴인성실험에서 얻은 하중-하중선 변위선도의 대표적인 예를 나타내었다. 최대하중은 AR(As-Received)재가 가장 크며 80ppm, 30ppm순으로 감소하였으며, 변위량은 AR재, 30ppm, 80ppm 순으로 감소하는 경향을 나타내었다. 수소함량이 80ppm의 경우 중성자 조사재와 비슷한 하중의 불안정한 변화가 나타났다⁽⁸⁾. Fig. 3에 수소농도변화에 따른 파괴인성 실험을 행하여 얻은 $J-R$ 곡선을 나타내었다. AR재는 연성파괴의 양상을 나타내는 안정적인 균열진전을 나타내지만 수소함량이 30ppm과 80ppm의 경우 균열이 발생한 후 저항곡선의 기울기가 감소하는 경향을 보여주고 있다. 또한 30ppm은 균열길이가 0.5mm이상에서는 다시 안정적인 저항곡선의 증가를 나타내지만, 80ppm은 균열길이가 약 1.0mm이상에서는 일정한 값을 나타내고 있다. Fig. 4는 Fig. 3의 $J-R$ 곡선으로부터 결정되어지는 특성 파괴인성치인 dJ/da 의 값을 나타낸 것이다. 여기서 dJ/da 는 0.15mm와

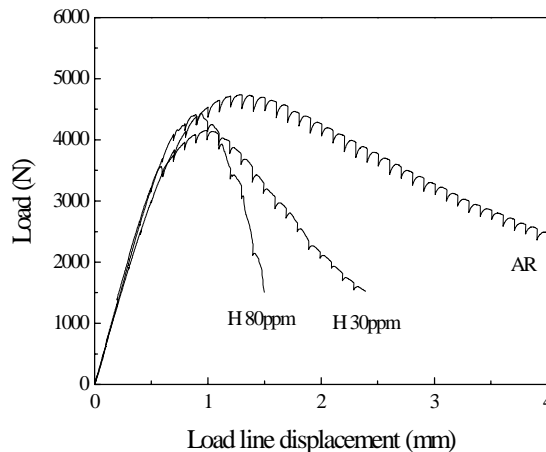


Fig. 2 The behaviors of load and LLD

1.5mm의 균열성장점에서 둔화직선(blunting line)과 같은 기울기의 직선을 그린 후, 두 직선 사이의 $J-R$ Curve의 기울기를 의미한다. dJ/da 는 AR재의 경우 가장 큰 값을 나타내었으며 수소의 함유량이 증가할수록 급격히 감소하며 약 70~80ppm이상에서는 일정한 경향을 나타내고 있다.

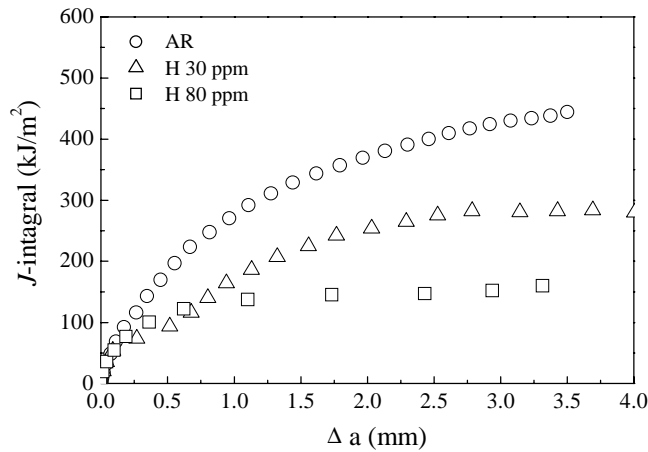


Fig. 3 Crack resistance curves in various hydrogen concentration

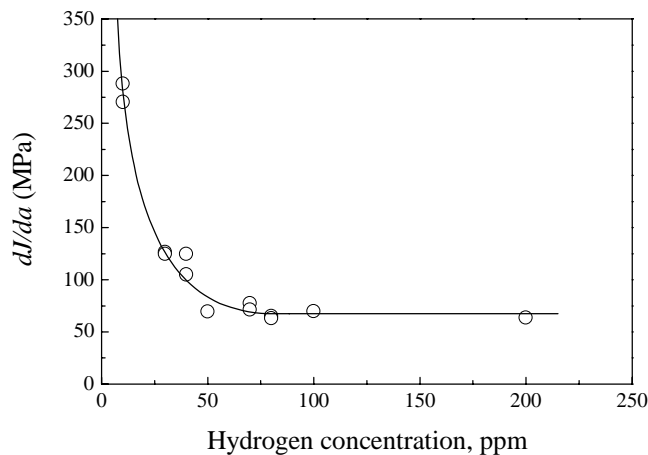


Fig. 4 The dJ/da values with various hydrogen concentration

3.3 파면해석

파괴인성 실험 후에 파면에 대한 특성을 비교 평가하는 것은 파괴인성 특성 연구에 귀중한 정보를 제공한다. 따라서 각 실험 후에는 파면을 SEM을 이용하여 촬영하여 비교 분석하는 파면해석을 행하였다.

Fig. 5는 CANDU 압력관의 수소농도의 따른 상온에서의 파괴인성 실험 후에 얻은 파면을 관찰한 사진들이다. Fig. 5(a)는 AR재의 파면으로 소성변형에 의한 두께의 변화를 보이는 thickness yielding의 특징을 보여준다. 반면, Fig. 5(b)의 경우는 수소함유량이 30ppm의 경우로

파면중앙에서의 균열성장이 표면에서 보다 훨씬 많이 되는 tunneling의 특징을 나타내고 있다, 또한 파단면에서 균열이 진전하는 방향과 같은 방향으로 배열되어 있는 fissure를 확인할 수 있었다. 이런 fissure의 생성은 Zr 합금의 Cl의 성분과 관련이 있는 것으로 보고되고 있다⁹⁾. Fig. 5(c)는 수소함유량이 80ppm인 경우로 수소의 함유량이 증가함에 따라 tunneling의 현상은 감소하고 전체적으로 취성적인 경향을 나타내며 fissure는 더욱 커짐을 알 수 있다.

Fig. 5(d)는 (a) 파단면의 중앙 부위에 대한 확대 사진으로 연성파괴의 특징인 딴플(dimple)이 잘 생성된 것을 확인하였다. Fig. 5(e)와 (f)는 각각 (b)와 (c)의 고배율 사진으로 fissure의 주위를 촬영한 것이다. 수소함유량이 30ppm의 경우는 fissure의 길이는 약 100~200 μm 로 80ppm에 비하여 비교적 짧으며 의벽개(quesi-cleavage)파괴가 일부 관찰되지만 딴플의 형상을 관찰할 수 있다. 수소함유량이 80ppm인 경우는 딴플파괴가 일부 관찰되지만 의벽개파괴와 함께 균열진전방향에 대하여 길게 형성되며 약 700~900 μm 의 fissure가 관찰된다. 또한 수소함유량이 100과 200ppm인 시편의 파면관찰에서도 Fig.5 (c), (f)와 비슷한 파면이 관찰되었다.

위의 파면 관찰에서 가장 큰 특징으로 AR재는 상온에서 파괴인성 실험시에 가해지는 하중 방향과 수직인 방향으로 국부적이고 규칙적인 딴플의 영역이 형성되며 연성파괴의 형태를 나타낸다. 그러나, 수소를 장입하였을 경우에는 수소함유량의 정도에 따라 취성파괴를 나타낸다는 것이다. 이것은 앞의 $J-R$ 곡선과 dJ/da 의 실험결과와 분석에 의해서도 수소에 의한 취화특성을 확인할 수 있었다.

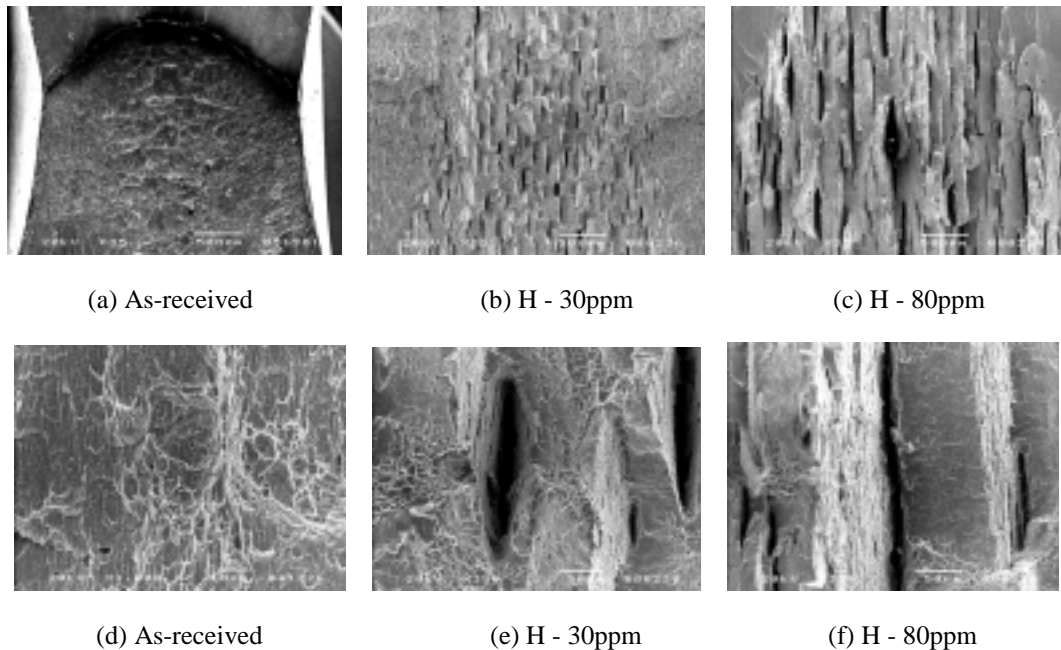


Fig. 5 Fracture Surface of CANDU Pressure Tubes by SEM

3.4 수소취화

수소화물 형성의 영향중에서 가장 중요한 요소는 수소화물과 응력의 방향관계이다. 수소화물이 인장축과 평행하게 석출된 경우에는 인장성질에 영향을 거의 미치지 못하지만 인장축과 수직인 방향으로 석출된 경우는 인성이 급격히 감소한다. 이러한 현상은 특히 압력관에서 수소화물이 반경방향으로 재배열될 때 주요한 문제를 일으킨다. 특히 수소화물이 반경방향으로 석출될 경우는 파괴인성이 연성-취성 천이를 나타낸다. 이러한 천이가 나타나는 이유는 삼축응력하에서 취성과파괴를 일으킨 반경방향의 수소화물이 균열의 경로로 작용하기 때문이다. 또한 수소화물의 간격과 길이가 지르코늄 합금의 수소취화 정도를 제어할 것이다.

CANDU 압력관은 지르코늄결정립의 약 60%가 기저면성분이 원주방향으로 배치된 비등방성의 집합도를 나타내며 기저면(00.1)과 14.7도의 각도를 갖고 기울어진 상주면(habit plane, (10.7))에 수소화물이 우선적으로 석출된다고 알려져 있다⁽¹⁰⁾. 위와 같은 fissure의 발생은 수소화물의 방향 및 상주면과 관련이 있을 것으로 생각하지만 그 발생 메카니즘에 대해서는 아직 명확하지 않으며 추후 많은 고찰이 필요한 부분으로 추후 확인할 예정이다.

Fig.4의 결과에서 수소함량이 약 70~80ppm이하의 경우, 수소화물에 의한 파괴인성의 저하는 Fig. 5(e), (f)와 같이 fissure의 성장과 함께 균열을 blunt시키는데 필요한 연성 기지가 부족하게 되어 하나의 수소화물의 파괴가 인접해 있는 fissure로 상주면을 따라 빠르게 전파되기 때문에 파괴인성값이 급격히 감소하는 것으로 생각한다. 그러나 수소함량이 약 70~80ppm이상에서 파괴인성값이 일정하게 되는 원인은 아직 명확하지 않으며 현재 이에 대한 추가적인 연구가 진행되고 있다.

4. 결 론

CCT시험편을 사용하여 증소로 압력관내에 석출된 수소화물이 파괴인성특성에 미치는 영향에 대하여 검토하였으며 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) CANDU 압력관의 파괴인성 dJ/da 는 AR재에서 가장 큰 값을 나타내었고 수소의 함유량이 증가할수록 급격히 감소하며 약 70~80ppm이상에서는 일정한 경향을 나타내었다.

(2) 파면 관찰에서 AR재는 dimple과 tunneling의 현상이 관찰되며 전반적으로 연성파괴의 특성을 나타내고 있다. 수소를 장입하였을 경우에는 수소취화의 특성을 뚜렷하게 나타내며 fissure는 파괴인성과 유사하게 70~80ppm 정도까지 성장하는 경향을 나타내고 있다.

(3) 수소함량에 따른 CANDU 압력관의 파괴인성 저하는 fissure의 성장 및 상주면의 파괴와 관련이 있는 것으로 생각한다.

후기

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 중장기 사업개발이 지원하는 중수로압력관재료 과제의 연구 결과입니다. 관계자 여러분께 감사 드립니다.

참고문헌

- (1) Ells, C.E., "The Pressure Tubes in CANDU Reactors", *AECL-Report*, AECL-7344.
- (2) Pulse, M.P., "Assessment of Aging of Zr-2.5Nb Pressure Tube in CANDU Reactors", *Nuclear Engineering and Design*, Vol. 71, 1977, pp.137~148.
- (3) Kim, Y. S., Seon, S. M., Kim, S. S. and Kwon, S. C., *J. Kor. Inst. Met. & Mater.*, Vol. 38, 2000, pp. 35.
- (4) Simpson L. A. and Clarke, C. F., "An elastic -plastic R-curve description of fracture in Zr- 2.5%Nb pressure tube alloy," *Elastic Plastic Fracture*, ASTM STP 668, Landes, J. D., Begley, J. A. and Clarke, G. A. Eds., American society for Testing and Materials, Philadelphia,, 1979, pp. 643-662.
- (5) 김 영석외 4인, Zr-2.5 Nb 압력관의 특성 시험 절차서, KAERI/TR-1329/99, 원자력연구소, 1999.
- (6) American Society for Testing and Materials, ASTM E 1737-96, "Standard Test Method for J-Integral Characterization of Fracture Toughness".
- (7) American Society for Testing and Materials, ASTM E 1152-87, "Standard Test Method for Determining J-R Curves".
- (8) 안상복, 김영석, 김정규, "Zr-2.5Nb 중수로 압력관의 조사후 강도 및 파괴거동 특성", *대한기계학회논문집 A권*, 제25권, 제3호, pp.510~519, 2001.
- (9) Davies, P. H. and Shewfelt, R. S. W. "Size, Geometry, and Material Effects in Fracture Toughness Testing of Irradiated Zr-2.5Nb Pressure Tube Material," *Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium*, ASTM STP 1354, Sabol, G. P. and Moan, G. D. Eds., American society for Testing and Materials, Philadelphia, pp. 356-376, 2000.
- (10) D.G. Westlake, *J. Nucl. Mater.*, 26, 1968, p.208.