2001 추계학술발표회 논문집

한국원자력학회

CANDU 압력관의 파괴인성에 미치는 수소화물의 영향

Effect of Hydride on Fracture Toughness of CANDU Pressure Tube

오승진, 김인섭

한국과학기술원

대전시 유성구 구성동 373-1

김영석

한국원자력연구소

대전시 유성구 덕진동 150

요약

CANDU형 원자로 압력관은 수소화물의 생성되는 경우에 상온에서는 취성파괴가 발생하는 반면 고온의 경우에는 이 파괴인성의 감소가 회복하는 현상이 나타난다. 이러한 현상을 보다 명확히 규명하기 위해서 수소 장입량 및 온도를 변화시켜 가면서 압력관 재료의 파괴인성을 측정하였다. 수소는 Sieverts 장치를 이용하여 50ppm과 100ppm 을 장입하였으며 상온부터 300°C 구간까지 단계적으로 시험을 수행하였다. 시험 결과 수소 장입량의 증가에 따라 전 실험 온도구간에서 파괴인성이 감소하였으며, 온도가 증가함에 따라 유동응력의 감소로 파괴인성이 회복되는 구간이 나타났으며 수소함량이 증가함에 따라 이 온도 구간은 증가하였다. 50ppm을 장입한 시편의 경우에는 고온에서 기지내 고용된 수소량이 증가하여 기지의 연성을 증가시켜 as-received에 비해 파괴인성이 높게 나타났다.

Abstract

Fracture toughness of hydrided CANDU pressure tube drops little at room temperature. The hydride effects of fracture toughness disappear at elevated temperatures. The fracture toughness decreases with increase of hydrogen. In order to investigate mechanism of this phenomenon, fracture test was carried out with hydrogen charging amounts of 50ppm,100ppm and at test temperature from 25℃ to 300°C. With increasing temperature, the ductile-brittle transition occurred due to the difference of mechanical properties between hydride and matrix at the transition temperature. Also the transition temperature increased with increasing amounts of hydrogen. On the other hand, at high temperature fracture toughness of specimen with 50ppm hydrogen was higher than that of as-received specimen because hydrogen in matrix may offset the barriers to dislocation motion, thereby increase the amount of deformation that occurs in a localized region near the fracture surface.

1.서론

CANDU원자로에서 압력관은 일반적인 경수로에서 압력용기에 해당하는 1차 압력 경계이다[1]. 따라서 압력관은 CANDU의 전체 수명기간동안에 핵연료의 하중을 견딜 수 있는 충분한 강도, 핵연료 교체시나 운전중에 일어날 수 있는 마모를 견디어 낼 수 있는 충분한 내마모성, 고온의 중수에 대한 내부식성, 작은 중성자 포획 단면적, 그리고 경수로의 경우보다 훨씬 높은 중성자속에 의한 조사 크립에 대한 저항성을 가지고 있어야만 한다.

CANDU원자로의 압력관은 초기에는 Zircaloy-2로 만들어졌으나 현재는 좋은 강도와 크립 특성, 낮은 수소흡수속도를 갖는 Zr-2.5Nb합금으로 만들어져 있다. Zircaloy-2의 경우는 석출물들의 영향으로 인하여 가동년수에 따라 수소흡수량이 급격히 증가하는 경향을 가지고 있다[2]. 한편 Zr-2.5Nb합금도 장시간의 운전시 제조과정시 존재하는 수소와 가동 중에 흡수되거나 압력관의 처짐에 의한 수소의 집중에 의하여 수소의 양이 증가하므로 수소화물에 의한 열화현상이 관찰되고 있다.

수소화물에 의한 열화는 크게 수소화물의 영향에 의한 파괴인성의 감소와 지체균열전파로 구분된다. 수소의 양이 용해도를 넘게 되면 수소화물이 압력관내에 석출하게 된다. 수소화물은 대부분의 온도구간에서 대단히 낮은 파괴인성을 갖으므로 압력관의 파괴인성을 낮추게 되나, 높은 온도구간에서는 수소화물의 영향으로 인한 파괴인성 감소 효과가 완화되어 파괴인성이 회복되는 현상이 나타나게 된다.

그러나 높은 온도구간에서의 파괴인성이 회복되는 원인에 대해서 명확히 규명되어 있지 않으며, 수소화물이 영향이 크게 작용하는 저온구간에서 수소함량에 따른 파괴인성의 거동 및 고온 구간에서의 수소화물과 기지내에 고용되는 수소가 파괴인성에 미치는 영향에 대한 연구가 이뤄지지 않은 상태이다. 본 실험에서는 수소함량 및 여러 온도구간에서 압력관의 파괴인성 시험을 수행하여 압력관내의 수소가 파괴인성에 미치는 영향에 대해서 알아보았다.

2. 실험 과정

실험에 사용된 재료는 현재 월성에서 가동되는 CANDU 원자로에서 사용되는 Zr-2.5Nb이다. 제조 공정은 810℃에서 11:1로 압출 후 cold drawing한 다음 400℃에서 24시간동안 어닐링한 재료이다.

파괴시험에 사용한 시편은 Fig. 1과 같이 compact tension (CT) 시편으로 W=17mm를 기준으로 ASTM E399-83에 준하여 제작하였다[3]. 두께의 경우 압력관 자체의 두께의 제한으로 3.4mm가 되었으며 균열진전방향이 압력관의 축 방향을 향하도록 제작되었다. Precrack은 하중을 네 단계로 나누어서 마지막 단계의 최대 하중이 $10MPa \cdot m^{1/2}$가 넘지 않게 하면서 a/W=0.5가 되도록 내었다.

시편 중에 일부는 Sieverts 장치를 이용하여 각각 50ppm과 100ppm의 수소를 장입하였다. 실험은 상온에서 300℃사이의 온도 구간에서 0.3mm/min의 변위율로 수행되었다. 파괴시험 중 균열의 진전은 직류전압강하법(DCPD, direct current potential drop)을 사용하여 측정되었다[4]. 균열이 진전되기 시작할 때의 파괴인성, Ji(crack initiation toughness)를 구하기 위하여 균열시작점은 Fig.

2에서와 같이 전압강하의 선형성에서 벗어나는 첫 번째 점으로 정했다. 정확한 전압강하와 실제균열과의 관계를 구하기 위하여 각 시편의 시험 후 300℃에서 heat tinting을 하여 각각의 시편에 대하여 실제 균열 길이를 측정하여 보정을 했다. J-R곡선의 기울기인 dJ/da는 a=0.15와 1.5mm에서 blunt line를 그어서 그 사이의 J값들을 사용하여 구했다.

3. 실험 결과 및 토의

3-1. As-received 시편의 파괴인성 변화

As-received 시편의 파괴시험결과 온도에 상관없이 모두 연성파괴 거동을 보였다. 파면에서는 fissure를 관찰할 수 없었으며 파면 상에서 기지조직의 연성파괴에 의한 dimple들이 관찰되었다. Fig. 2의 J-R curve를 보면 상온에서 약간 낮게 나타나는 것을 제외하고 온도에 따른 변화를 크게 보이지 않고 거의 같은 값을 가지는 것을 볼 수 있었다. J-R curve의 기울기인 dJ/da 값 또한 상온에서 270Mpa로 다른 온도구간에 비해 작게 나타났을 뿐 나머지 온도 구간에서는 300MPa 전후의 값을 가지는 것을 볼 수 있다.

3-2. 50ppm의 수소를 장입한 시편의 파괴인성 변화

50ppm의 수소를 장입한 경우, Fig. 3과 같이 130℃이상에서의 파괴인성은 거의 동일하게 나타났다. J-R 곡선에서 균열이 진행함에 따라 J값이 계속 증가하는 것을 볼 수 있었다. 그러나, 상온과 100℃의 파괴인성은 매우 낮게 나타났다. 상온에서의 J-R 곡선의 경우 균열의 진행함에 따라 J값이 거의 증가하지 않고 일정한 값을 가지는 것을 볼 수 있다. 100℃의 경우에는 균열초기에는 J 값이 130℃이상의 온도구간의 J값과 거의 유사하게 증가하다 상온의 J-R곡선과 마찬가지로 J값이 일정해졌다. 특이할 만한 점은 수소화물에 의한 파괴인성 감소가 회복되었다고 생각되어지는 130℃이상의 온도구간에서는 같은 온도 구간에서의 as-received의 dJ/da 값보다 20MPa 정도 높게 나타났다. 상온에서의 파면(Fig. 7)은 as-received 파면과는 달리(Fig. 6) 균열진행 방향과 평행하게 fissure 가 형성되어 있었으며 fissure 사이에서는 연성파괴의 흔적이 나타났다. 100℃의 경우 상온에 비해 fissure의 크기와 fissure간의 거리가 증가하였다(Fig. 8).

3-3. 100ppm의 파괴인성의 변화

Fig. 4는 100ppm의 수소를 장입한 경우의 파괴인성 곡선이다. 앞의 50ppm의 수소를 장입한 결과에 비해 전 온도 구간에서 약간 낮은 파괴 인성을 보였다. 수소 함량의 증가는 석출되는 수소화물의 크기와 수소화물간의 거리를 증가시키게 된다[5]. Puls의 실험 결과[6]에 의하면, 수소화물의 평균길이가 25μm 이하인 경우 수소화물의 파괴 강도는 매우 민감하게 나타난다. 따라서 수소 장입량의 증가는 수소화물의 평균길이를 증가시키기 때문에 파괴인성이 감소하게 되는 것으로 보인다. 파괴인성이 회복되는 천이 온도의 경우 50ppm에 비해 100ppm 을 장입한 시편이 연성-취성 천이 온도구간이 증가하였다. 50ppm의 경우 100℃와 130℃사이에서 천이 온도가 나타나는 반면, 100ppm의 경우 130℃와 150℃의 온도구간 사이가 연성-취성 천이 온도구간으로 나타났다.

3-4 수소화물이 파괴인성에 미치는 영향

수소가 기지내에 수소화물로 존재하는 경우 판 상태로 존재하는 수소화물은 원주방향으로 배열되어 있을 경우, 즉 CANDU 압력관 재료의 경우에는 수소화물 판의 수직방향이 인장축과 직각을 유지하고 있다. 이 경우 균열선단에서의 삼축응력에 의하여 수소화물들은 파괴되어 fissure들을 형성한다. 따라서 균열선단은 여러 개의 가는 ligament들로 나누어지며 최후에는 ductile shearing-off에 의하여 얇은 판들의 파괴가 일어나게 된다.[7] 이것은 cumulative 모드에 해당하며 따라서 평평한 J-R 커브를 만들어서 Fig. 3,4와 같은 낮은 dJ/da값을 보이는 원인이 된다. 이에 반해 고온에서 수소화물의 파괴에 의한 압력관의 파괴인성의 감소가 관찰되지 않는 것은 온도가 증가함에 따른 유동응력의 감소에 해당하는 소성의 증가에 의해 수소화물의 균열 생성에 필요한 하중을 제공할 수 없기 때문이다.

온도가 증가함에 따라 기지의 항복 강도(σ_y)와 수소화물의 파괴 강도(σ_f)는 다음과 같이 감소한다. [3]

$$\sigma_f(MPa) = 650.84 - 0.09096 \times T(^{\circ}C) \quad (1)$$

$$\sigma_y(MPa) = 782.69 - 1.0254 \times T(^{\circ}C) \text{ (Unirradiated)} \quad (2)$$

Fig. 9에서 보면, 150℃ 이하의 온도에서는 σ_y에 비해 σ_f가 낮기 때문에 하중을 가했을 경우 기지의 항복이 일어나기 전에 수소화물의 파괴가 일어나 파괴 인성의 감소를 초래한다. 반면 150℃부근에서는 σ_y가 σ_f 보다 낮아지기 때문에 수소화물의 파괴가 일어나기 전에 기지의 항복이 발생하기 때문에 수소화물의 파괴로 인한 압력관의 파괴 인성 감소가 나타나지 않게 된다. 한편 조사된 압력관에 경우에는 σ_y가 σ_f에 비해 항상 높은 값을 가지기 때문에 고온에서도 수소화물의 파괴가 쉽게 일어나 파괴 인성의 감소가 나타날 것으로 보인다.

3-5. 기지 내 수소가 파괴인성에 미치는 영향

수소가 2차상의 수소화물로 존재하지 않고 기지 내 고용되어 있는 경우, 기지내에 존재하는 수소로 인해 국부적으로 소성이 증가하게 된다[8]. 어떤 온도 구간과 변형율하에서 고용체로 존재하는 수소가 기지내의 국부적인 응력을 가해주는데, 이 응력은 전위에 의해 생성되는 응력과 서로 상쇄되어 전위가 운동하는데 필요한 대한 barrier를 감소시켜 파면 근처 지역에서의 변형량을 증가시켜 준다. 이로 인해 기지의 연성이 증가하게 되는 것을 관찰할 수 있다[9].
압력관의 경우 50ppm의 수소를 장입한 시편이 유동응력이 감소한 고온에서 as-received 시편에 비해 파괴인성이 증가하는 이유는 기지내 수소의 고용도가 증가하면서 수소화물내의 수소가 기지내에 녹아 들어 연성을 증가시켜 파괴인성을 증가시켜주는 것으로 보인다.

4. 결론

1. 압력관내에 수소화물이 존재하는 경우 상온에서는 as-received에 비해 파괴인성이 급격히 감

소한다. 온도가 증가함에 따라 수소화물의 파괴강도가 감소하여 파괴인성이 증가하는 현상을 보이며, 온도가 더욱 증가하여 기지의 항복강도가 수소화물의 파괴강도보다 낮아지게 되면 수소화물의 파괴에 의한 균열의 진전보다 기지의 변형에 의해 균열이 진전하기 때문에 파괴인성이 급격히 증가한다. 이러한 파괴인성이 급격히 증가하는 천이 온도는 수소량이 증가함에 따라 소폭으로 증가하는 것을 볼 수 있다.

2. 수소화물이 증가함에 따라 수소화물의 파괴가 지배적인 저온부에서는 파괴인성의 값이 감소한다. 그러나 as-received 시편과 비교한 50ppm 시편의 파괴인성의 감소량에 비해 50ppm 시편과 비교한 100ppm 시편의 파괴인성의 감소량이 적게 나타났다. 이것은 수소화물의 형상에 따른 수소화물의 파괴강도의 감소효과가 수소화물의 길이가 일정 길이 이상이 되면 사라지기 때문이다.

3. 기지의 항복에 의한 파괴가 우세한 고온의 경우에는 as-received 시편에 비해 50ppm의 수소를 장입한 시편의 파괴인성이 높게 나타났다. 그러나 100ppm 시편의 경우 수소화물에의한 파괴인성의 감소가 사라졌음에도 불구하고 파괴인성이 낮게 나타났다. 50ppm의 경우는 온도가 증가하면서 대부분의 수소가 기지내에 고용되어 기지의 연성을 증가시키므로 파면 근처의 지역에서 변형량이 증가함으로써 파괴인성이 증가되는 것으로 생각된다.

Reference

[1] John R. Lamarsh, Introduction to Nuclear Enginering 2nd Ed.,Addison-Wesley, (1983).

[2] E.G. Price, AECL Report, AECL-8338, (1984)

[3] ASTM Designation E 399-83.

[4] L.A. Simpson and C.F. Clarke, AECL Report, AECL-5817 (1979).

[5] E.S Kim : M.S. Thesis, KAIST (1994)

[6] S.Q. Shi and M.P. Puls : J. Nuclear Materials, 312 (1999)

[7] E. Smith and P.H. Davies : J. Mater. Sci., 30 (1995) 561

[8] H.K. Birnbaum and P. Sofronis : Material Science and Engineering, A176(1994)

[9] P.Bouffioux and N.Rupa : ASTM STP 1354(2000)399

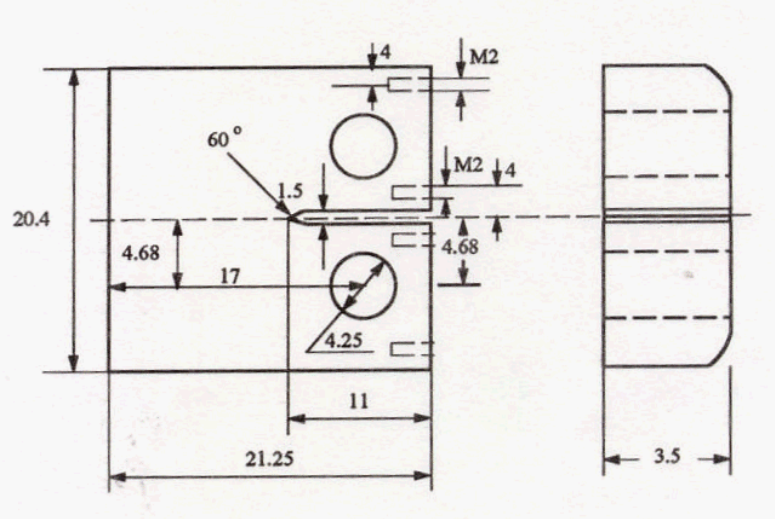

Fig. 1 **compact tension specimen**

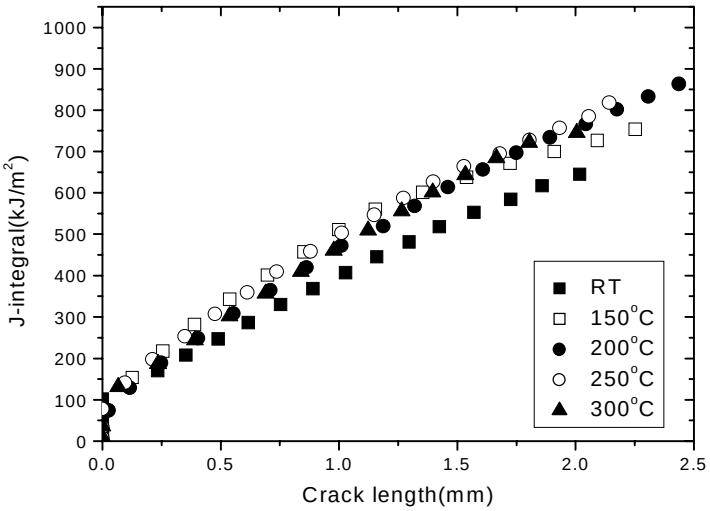

Fig. 2 **J-R curve of as-received speciment with elevated temperature.**

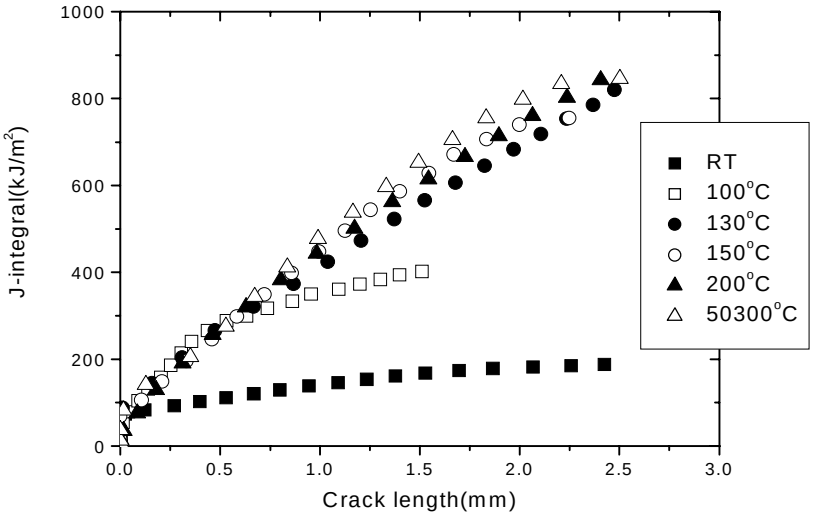

Fig. 3 **J-R curve of 50ppm specimen with elevated temperature**

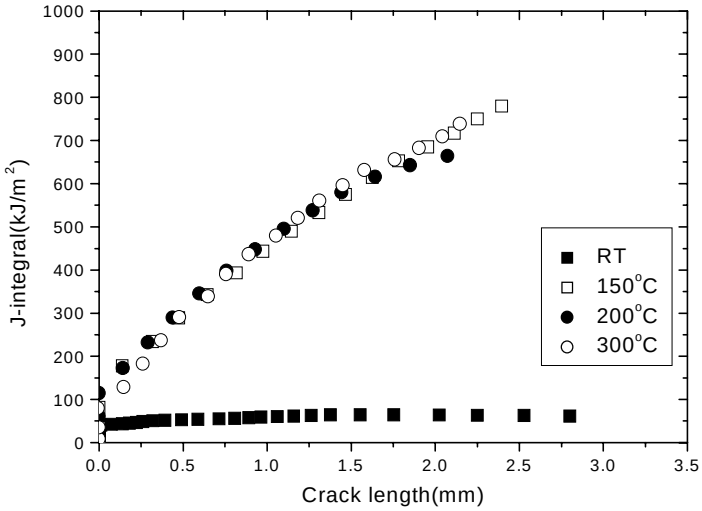

Fig. 4 **J-R curve of 100ppm specimen with elevated temperature**

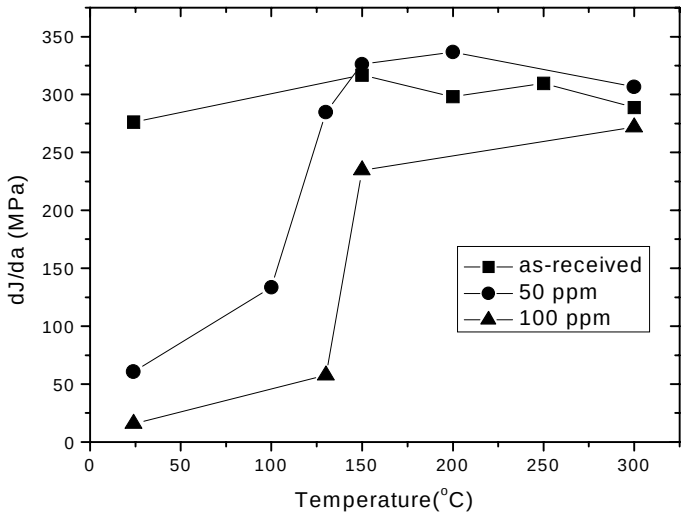

Fig. 5 **Graph of dJ/da with temperature**

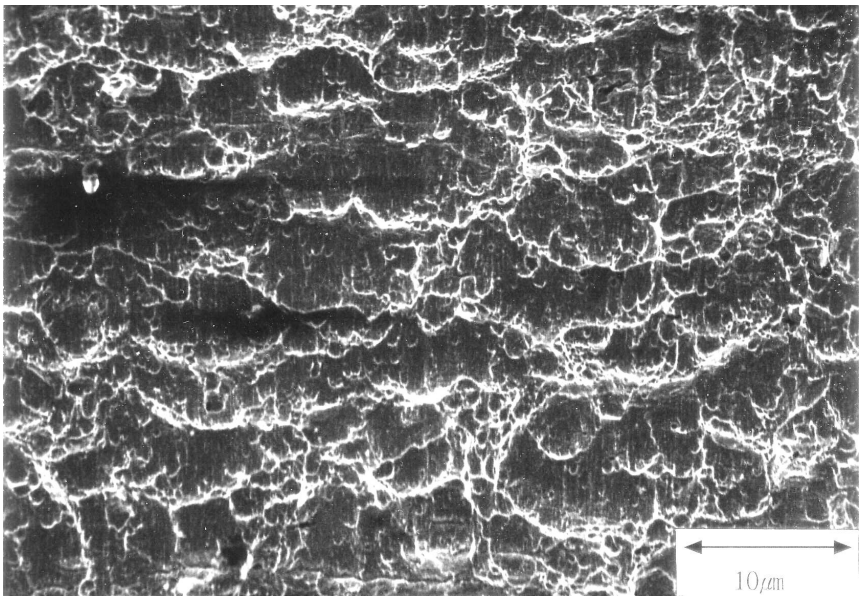

Fig. 6 **Fracture surface of as-received specimen at room temperature.**

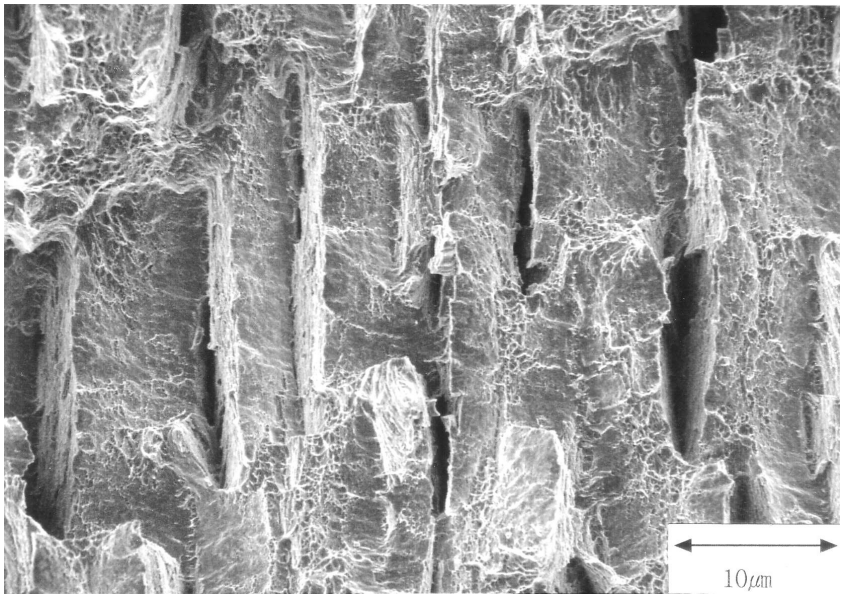

Fig. 7 **Fracture surface of 50 ppm at room temperature**

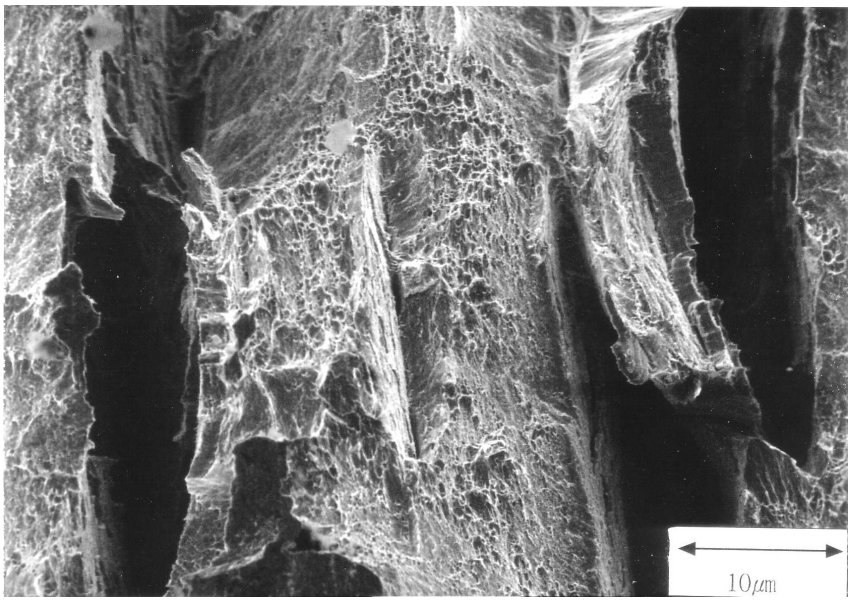

Fig. 8 **Fracture surface of 50ppm at 100℃**

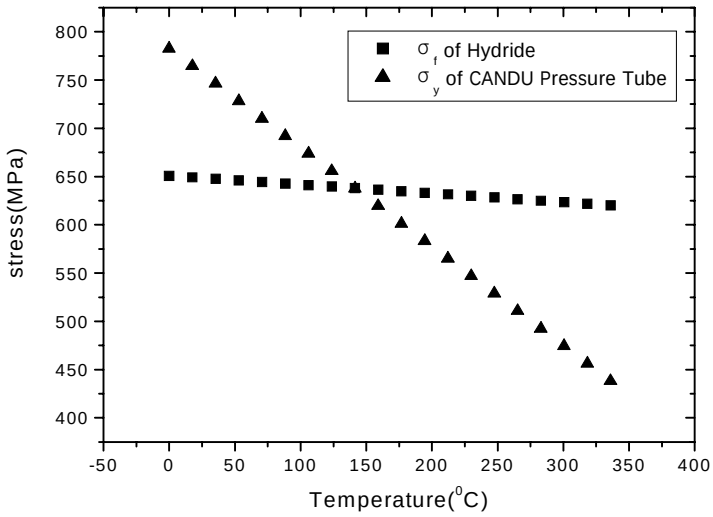

Fig. 9 Graph of fracture strength of hydride & yield stress with temperature.