2000 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

CANDU 압력관의 수소취화에 의한 파괴인성 저하에 관한 연구

Degradation of Fracture Toughness by Hydride Embrittlement in CANDU Pressure Tube

오 동준 • 안 상복 • 박 순삼 • 안 창윤 • 김 영석

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요약

CANDU 압력관은 고온 냉각수 분위기에서 발생되는 수소 또는 중수의 흡수로 인한 재료의 DHC (Delayed Hydride Cracking)나 수소로 인한 재료의 취화로 급작스러운 파손을 유발한다. 본 연구는 이런 수화물에 의한 압력관의 수소 취화 현상을 규명하기 위하여, AR 와 100 과, 200 ppm 의 수소를 장입한 CANDU Zr-2.5Nb 압력관 재료를 이용하여 횡방향 인장실험과 파괴인성 실험을 상온과 300°C 구간에서 행하였다. 수소장입량의 증가에 따라 횡방향 항복강도와 인장강도는 증가하였으며, 실험 온도를 상승시킴에 따라 횡방향 항복강도와 인장강도는 선형적으로 감소하였다. 한편 수소를 장입한 시험편은 상온에서 수화물에 의한 취성파괴의 특성을 보이며 파괴인성치가 급격히 감소하였으나, 온도를 증가함에 따라 파괴특성은 AR 의 경우와 유사한 연성파괴의 경향을 보여주었다.

Abstract

Unpredictable failures can occur due to the DHC (delayed hydride cracking) or the degradation of fracture toughness by hydride embrittlement in CANDU pressure tube which can result from the absorption of hydrogen or deuterium in the high temperature coolant. To investigate the hydride embrittlement of CANDU Zr-2.5Nb pressure tube, the transverse tensile test and the fracture toughness test were performed from room temperature to 300°C using three different specimens which have an AR (As Received), 100, and 200 ppm hydrogen. As the amount of absorbed hydrogen was increased, the transverse yield strength and the ultimate tensile strength were also increased. In addition, as the test temperature became higher they were decreased linearly. While, at room temperature, the hydrogen-absorbed specimens represented the embrittlement which resulted in sudden decreasing of fracture toughness, the fracture characteristics became ductile such as AR specimen at high temperatures.

1. 서 론

현재 가동 18 년째인 CANDU 형 원자로인 월성 1 호기에 장착된 압력관 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 수화물(Hydride)에 의한 파괴인성치의 취화로 인하여 압력관 파손사고를 일으키는 것으로 보고되고 있다[2]. 따라서 국내의 월성 1,2,3,4 호기를 포함한 모든 CANDU 형 원자로의 경우 정기적으로 압력관내 수소흡수량 측정 및 균열발생 여부를 점검하도록 규정하고 있으며[3,4], 수화물에 따른 압력관의 거동에 대한 연구의 필요성이 증가하고 있다.

한편, 압력관의 파괴인성 실험은 압력관의 제한된 제원 때문에, ASTM 표준시험 방법에 제시된 시험편 규격을 따르는데 어려움이 있다. 캐나다의 AECL 에서는 압력관의 곡면을 살린 Curved Compact Tension (CCT) 시험편을 이용하여 ASTM 에서 규정한 파괴인성 실험에 준한 파괴인성 실험법을 개발하였다[5,6]. 이 실험법에 의한 CCT 시험편은 ASTM 의 평면 응력 조건하에서의 파괴인성시험편의 제약조건을 완전히 만족하지는 않을지라도 일반적인 파괴인성치의 경향을 잘 나타내므로, 압력관의 대형 burst test 에 의한 파괴인성 실험과 병행하여 실험실에서의 소형 시험편을 이용한 파괴 인성치를 얻기 위해서 주로 이용되고 있다.

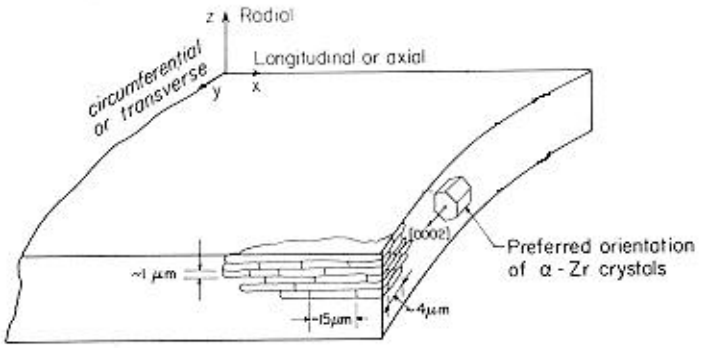
따라서 본 연구의 목적은 인위적으로 수소를 장입한 Zr-2.5Nb 압력관의 CCT 시험편을 이용하여 여러 온도 구간에서의 파괴인성 시험을 행하여 수화물에 의한 파괴인성의 취화에 대한 거동의 특성과 그것에 영향을 주는 변수 등을 규명하는데 있다.

2. 재료 및 실험

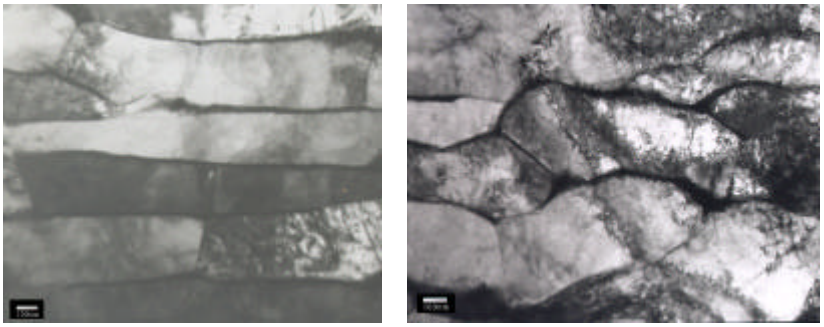
2.1 재료 및 시험편

본 연구에 사용된 재료는 CANDU 4차 용해된 cold-worked Zr-2.5Nb 압력관이다. 캔두 압력관의 제조공정은 800°C 에서 11:1 로 Hot Extrusion 과 Cold Drawing (25%) 후에 400 °C 에서 24 시간 Autoclave 처리를 하였다. CANDU 압력관은 압출시의 심한 소성변형 (11:1 의 압출비율)으로 축 방향으로 길게 늘어진 결정립자를 관찰할 수 있다 (Fig. 1). 또한 길게 축 방향으로 늘어진 결정입자는 α-Zr 이었으며, α-Zr 와 α-Zr 사이에 β-Zr (β_1) 입자들이 길게 늘어져 있다.

Fig. 2는 광학현미경으로 관찰한 조대한 수화물의 미세조직 사진이다. 이것은 Zr-2.5Nb 합금의 표준 미세조직과 형태상으로 유사한 조직을 나타낸다. 광학현미경으로 관찰되어진 조대한 수화물들은 Axial-section 에서 길게 늘어진 α-Zr 에 평행한 방향으로 정렬되어 있다는 사실로부터, 초기 압력관의 미세조직이 수화물의 석출과 분포에 밀접한 관련이 있다는 것을 알 수 있다. 또한 원주 방향면에서도 수화물이 원주방향을 따라 분포된 것을 관찰하였다.



(a) Zr-2.5Nb **압력관의 표준조직**



(b) Axial Section (c) Circumferential Section

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

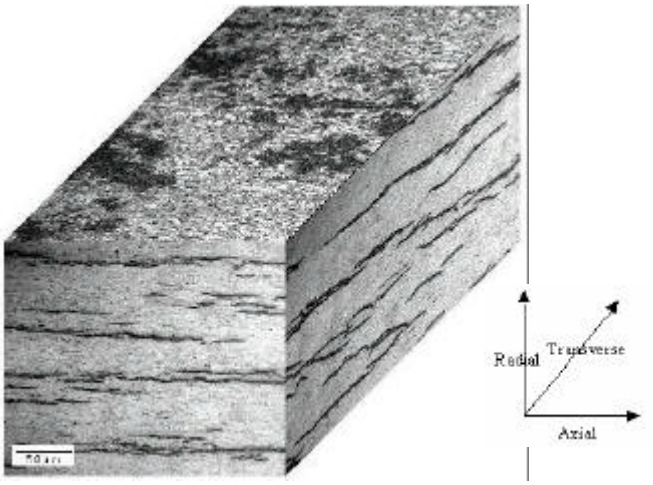
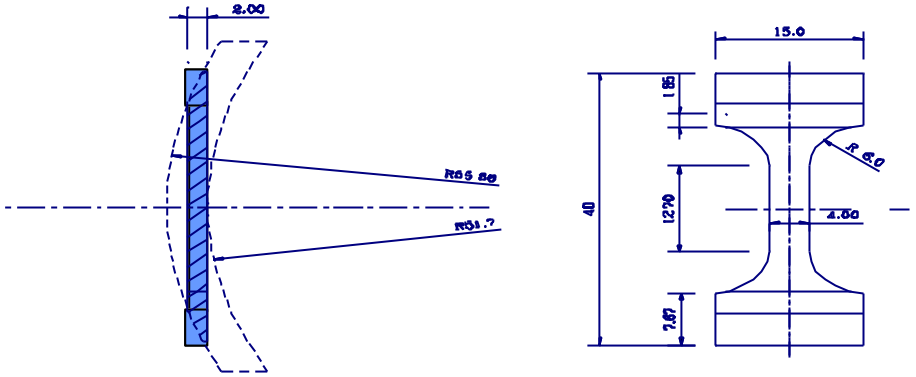


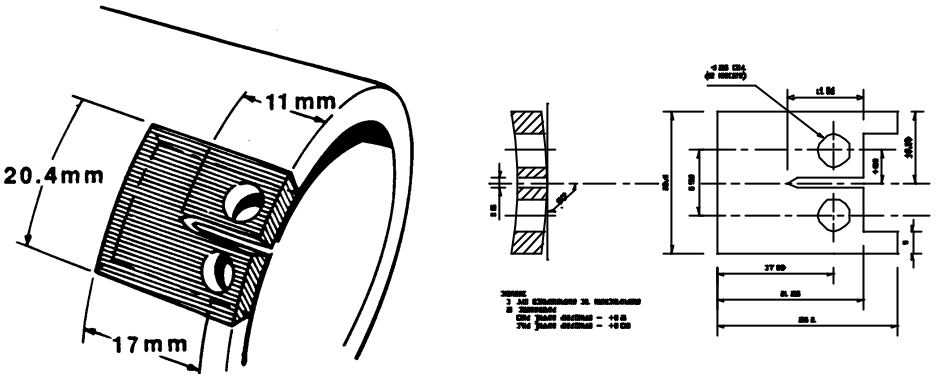
Fig. 2 Typical Microstructure of circumferential Hydride on Zr-2.5Nb Pressure Tube

Fig. 3(a)**는 횡방향 소형 인장시편의 형상을 보여주고 있다. 압력관의 횡방향을 따라 약 두께** 2 mm **의 소형 인장 시험편을 제작하였다.** Fig. 3(b)**는** CANDU **압력관으로부터** CCT **시험편을 채취하는 방향과 위치 그리고** CCT **시험편의 치수를 보여주고 있다. 캔두 압력관의**

내직경은 103 mm 이며, 두께는 4.2~4.4 mm 이다. CCT 시험편의 크랙 진전방향은 Axial 방향이며, W 는 17 mm, 크랙비 (a_f/W)는 0.4 이다.



(a) Transverse Tensile Specimen



(b) Collection and CCT Specimen

Fig. 3 Geometry of Transverse Tensile and CCT Specimen

2.2 실험 장치 및 방법

2.2.1 실험 장치

사용된 실험장치는 Instron 8501 이며, 실험 시 사용된 그립은 Zr-2.5Nb 합금을 사용하여 가공하였으며, DCPD 측정 시에 전류의 절연을 위하여 800 °C 에서 3 시간 열처리 후에 공랭하여 산화막 처리를 하였다. 피로크랙은 0.5° 테이퍼 핀을 이용하여 균일하게 만들었으며, 피로 크랙의 측정은 육안 측정방식에 의해 양방향에서 측정하였다[7]. 파괴인성 실험 시, 실험동안의 크랙 진전은 DCPD 방식에 의하여 측정하였으며, 실험이 끝난 후에는 Nine point average method [8] 에 의하여 실제 크랙 길이를 측정한 후에 DCPD 의 보정이 이루어졌다.

2.2.2 수소 장입

인위적으로 두 종류 농도의 수화물을 석출 시키기 위하여 고온 음극 수소 장입 방법(Cathodic Hydrogen Charging Method)을 이용하여 각각 수소를 100, 200 ppm이 되게끔 장입하였다. 이 방법은 전기화학적 방법으로, 시편 표면에 수화물 층을 형성시키고자 KAERI의 표준 수소 장입 절차서에 [9] 의해 시편은 음극에 설치하고 음극의 2배 면적을 갖는 양극(납)을 65±5°C로 일정하게 유지되는 0.1~0.2 molar의 황산용액(전해액)에 담근 후, 150 mA/cm^{2}의 전류밀도를 120 시간 가해, 이론치보다 50% 두껍게 시편표면에 수화물 층이 형성되도록 하였다.

시편표면에 형성된 수화물 층으로부터 수소를 내부로 확산시키기 위해 균질화 처리를 수행하였다. 균질화 시간과 온도는 확산방정식을 이용하여 100 ppm을 얻기 위해 336°C에서 16.3 시간, 200 ppm은 402°C에서 6.9 시간동안 열처리 하였다. 균질화 열처리 후 Hot Vacuum Extraction 장치를 사용하여 장입된 수소량을 분석하였다.

2.2.3 횡방향 인장실험

본 실험은 상온에서는 ASTM E 8 [10], 250°C와 300°C에서는 ASTM E 21 [11]에 준하여 인장실험을 행하였다. 실험 시 사용된 프로그램은 Instron의 Series IX 이었으며, 하중과 하중변위곡선이 자동으로 그려졌으며, 0.2% 항복강도와 UTS 등이 자동으로 계산되었다. 인장실험의 결과는 파괴인성치의 계산에 필수적인 데이터로 이용되었다.

2.2.4 파괴인성실험 및 계산

본 실험은 ASTM E 1737-96 [12]에 준하여 single-specimen method에 의해 상온에서 300°C 구간에서 수행하였다. 고온실험의 경우에, 하중제어방식에 의해 초기 하중을 0.2 KN을 가한 후에 바라는 실험온도가 되기를 기다렸다. 실험온도에 달하면, 평형상태를 얻기 위해서 1 시간이상의 soaking time을 주었으며, 실험온도의 오차는 ±3 °C 이었다. 실험이 이루어지는 동안에 하중치, 하중 변위값, potential drop과 온도 등은 Instron의 Fast Track JIC 프로그램에 의하여 측정되었다. 실험이 끝난 후에는 약 300°C에서 10분간 heat-tinting 작업을 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 [13]의 J 계산식에 의해 구할 수 있다.

3. 실험 결과 및 토의

3.1 횡방향 인장실험

Fig. 4는 3가지 종류의 시험편에 대한 횡방향 인장실험 결과를 보여주는 그림이다. 수소를 장입하지 않은 AR (As Received)시편, 100, 200 ppm의 두 종류의 수소를 장입한 시편 등의

0.2% 항복강도와 UTS 를 1 개의 그림에 나타내었다. 상온과 250, 300°C 에서의 인장 결과는 온도와 선형적인 경향을 잘 보여주고 있었다. 그리고 각각의 항복강도와 인장강도는 100 ppm 이 가장 높았으며, 200 ppm, 그리고 AR 시험편의 순서로 낮아지는 것을 알 수 있었다.

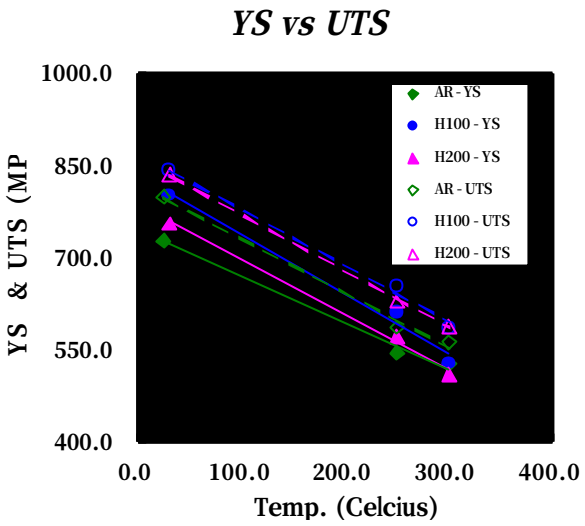


Fig. 4 YS and UTS of Transverse Tensile Test

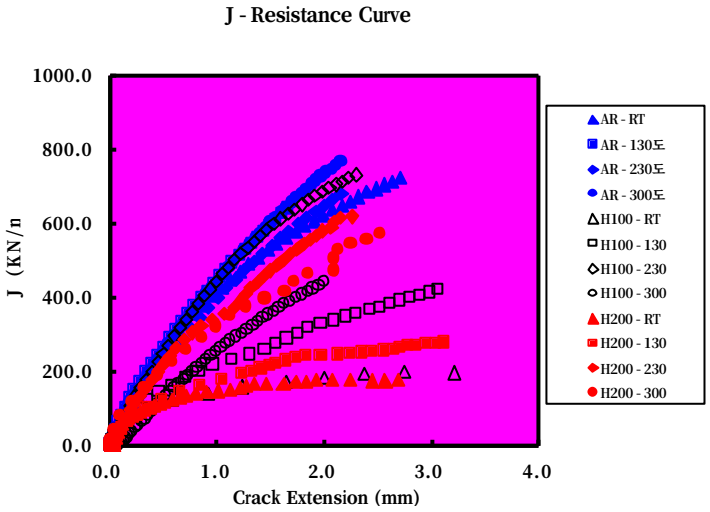


Fig. 5 *J-R* Curve Variation with the Temperatures

3.2 CCT 파괴인성실험

파괴인성 실험 결과는 *J-R* 곡선의 비교, *dJ/da*, tearing modulus, *J*(1.5 mm)값의 비교 등의 순서로 이루어졌다. Fig. 5는 Zr-2.5Nb 압력관의 CCT 시험편을 사용하여 얻은 J-R 곡선이다. 3 가지 종류 (AR, H100, H200)의 파괴인성치를 온도에 따라 종합적으로 나타낸 그림이다. AR

의 시험편은 온도의 영향이 적은 것으로 보이나, 수소장입 시편은 수소량에 따라 차이가 있으며, 온도에 따른 변화가 심한 것을 쉽게 알 수 있었다. 수소 장입 시편의 경우에는 모두 230°C 구간(◆)에서 가장 높은 파괴인성치를 나타냈으며, 이때는 AR 시편과의 차이는 경미하였다.

한편 상온(Δ)에서는 수소 장입 시편의 인성치가 급격히 감소한 것을 알 수 있으며, 130°C의 경우(□)에는 수소량이 증가함에 따라 감소하는 폭이 증가하였음을 알 수 있었다. 반면에 300°C(O)에서는 130°C의 경우와는 달리 수소량이 많은 200 ppm 경우에 100 ppm보다 더 높은 인성치를 보여주었다. 그리고 수소량과 무관하게 모든 시편의 경우에, 상온에서 약 230°C 구간까지 온도가 증가함에 따라 파괴인성치가 증가하는 경향을 보이다가 그 후에는 감소하였다.

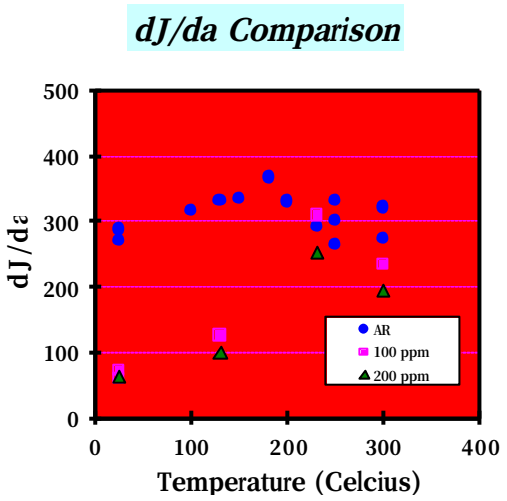


Fig. 6(a) *dJ/da* Variation with Temperature

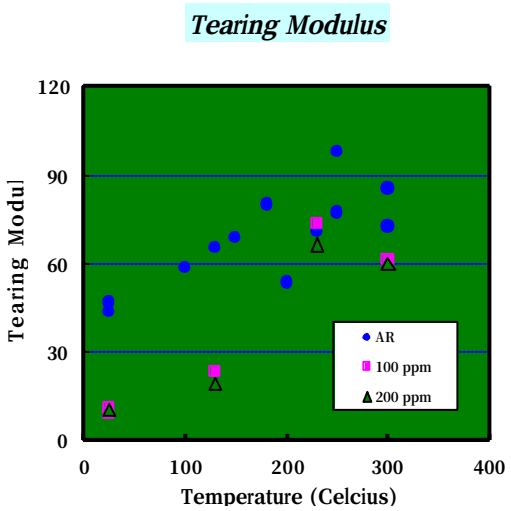


Fig. 6(b) Tearing Modulus Variation with Temperature

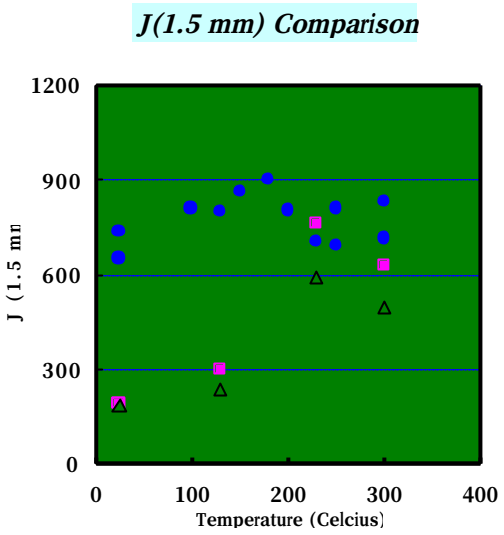


Fig. 6(c) *J(1.5 mm)* Variation with Temperature

파괴 인성치와 온도와의 관계를 보다 쉽게 알기 위하여 Fig. 6 (a)~(c) 에서는 각각의 *dJ/da* 와 tearing modulus 값과 *J*(1.5 mm) 등을 비교하였다. 여기서 *dJ/da* 는 0.15 mm 와 1.5 mm offset-line 사이의 *J-R* 곡선 기울기를 나타내며, 찌어짐 계수 (tearing modulus)는 $T = \frac{E}{s_f^2}\frac{dJ}{da}$ 의 관계로부터 구하였다. *J*(1.5 mm)값은 크랙 길이 1.5 mm 에서의 offset-line 과 *J-R* 곡선과 만나는 점에서의 *J* 값을 의미한다.

Fig. 6(a)는 온도에 따른 *dJ/da* 의 변화를 보여주고 있다. AR 시편(o)의 *dJ/da* 는 상온에서 온도가 증가함에 따라 점차적으로 증가하며, 약 180°C 부근에서 가장 높은 값을 나타내다가 온도를 계속 증가 시키면 감소하는 경향을 잘 보여주고 있다. 수소 장입 시편들은 상온에서 AR 보다 매우 낮은 파괴 인성치를 보이다가 약 230°C 에서는 AR 시편과 거의 같을 정도의 파괴인성치에 이르렀다. 그러다가 다시 300°C 부근에서는 다소 감소하는 경향을 보였다. 그리고 수소량이 증가함에 따라 파괴 인성치는 더욱 큰 폭으로 감소하였음을 확인할 수 있었다. 그리고 수소장입 시편의 온도 의존성이 AR 시편보다 훨씬 높음을 확인할 수 있었다.

Fig. 6(b)의 tearing modulus 의 경우에는 온도의 증가에 따라 점차적으로 증가함을 알 수 있는데, 이런 경향은 시편의 종류에 따라 T 값의 차이는 있으나 경향은 동일함을 확인할 수 있었다. Paris 등[14]은 *dJ/da* 는 대부분의 재료에 대해 온도 의존성을 보이지만, 이것을 flow stress 로 나눈 항은 비교적 온도에 민감하지 않다고 하여 tearing modulus 가 재료상수가 될 수 있다고 하였다. 하지만 캔두 Zr-2.5Nb 압력관의 경우는 T 값이 온도에 민감하여 재료상수로서의 의미를 부여하는 것은 문제가 있음을 알 수 있다.

Fig. 6(c)는 *J*(1.5 mm)의 값이 온도에 따른 의존성을 나타내는 그림으로, 온도에 따른 경향은 *dJ/da* 나 T 와 유사하였다.

4. 결 론

AR 와 100, 200 ppm 으로 수소장입한 CANDU Zr-2.5Nb 압력관 재료를 사용하여 횡방향 인장실험과 파괴인성 실험을 상온과 300°C 구간에서 행하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) Zr-2.5Nb 압력관의 수화물의 석출은 항복 강도와 인장강도를 증가시켰으며, 상온에서 300°C 까지 온도가 상승함에 따라 선형적으로 항복강도와 인장강도는 감소하였다.

(2) 수소장입 시편의 경우에는 상온에서 수화물의 석출로 인하여 취성파괴의 특성을 보였으나, 온도가 상승함에 따라 AR 시편과 같은 연성 파괴의 특성을 보였다.

.(3) 수소장입 시편도 AR 시편과 같이 온도가 파괴 인성치 (dJ/da, Tearing Modulus, $J_{1.5}$)에 영향을 주는 변수임을 확인하였다.

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] A National Standard of Canada, CAN/CSA-N285.4-M94 (1994).

[4] 한국원자력안전기술원, "월성원자력 1 호기 정기 검사보고서 (1994 년도), 1994

[5] L.A. Simpson, C.K. Chow, and P.H. Davies, "Standard Test Method for Fracture Toughness of CANDU Pressure Tubes", AECL Report COG-89-110-I, September 1989

[6] D.D. Himbeault and P.H. Davies, "Second International Round Robin on Fracture Toughness Testing of Pressure Tube Materials Using 17 mm Curved Compact (Toughness) Specimens," RC-2069, COG-98-161-I, Jan. 1999, AECL

[7] 오 동준외 4 인, " Cold-worked Zr-2.5Nb 압력관의 탄소성 파괴인성과 CCL 거동에 관한 연구," 대한기계학회 2000 년도 제 2 회 재료 및 파괴부문 학술대회 논문집, pp. 239-244, 2000

[8] British Standard Institute BS5447: 1977, "Plain Strain Fracture Toughness (K_{IC}) of Metallic Materials"

[9] KAERI, "Zr-2.5Nb 압력관의 특성시험 절차서," KAERI/TR-1329/99

[10] American Society for Testing and Materials, ASTM E 8, "Standard Test Method of Tension Testing of Metallic Materials,"

[11] American Society for Testing and Materials, ASTM E 8, "Standard Recommended Practice for Elevated Temperature Tension Tests of Metallic Materials"

[12] American Society for Testing and Materials, ASTM E 1737-96, "Standard Test Method for J-Integral Characterization of Fracture Toughness"

[13] American Society for Testing and Materials, ASTM E 1152-87, "Standard Test Method for Determining J-R Curves"

[14] P.C. Paris et al, "The Theory of Instability of the Tearing Mode of Elastic Plastic Crack Growth," Elastic-Plastic Fracture, ASTM STP 668, American Society for Testing and Materials, pp. 5-36, (1979)