중수로 압력관 LBB 평가에서의 수소화물에 의한 취화거동

오 동준† · 김 영석*

Hydride Embrittlement Behavior at the LBB Evaluation of PHWR Pressure Tube

Dongjoon Oh and Youngsuk Kim

Key Words : Leak-Before-BreakK(파단전 누수), PHWR(중수로), Pressure Tube(압력관), Critical Crack Length(임계균열길이), Delayed-Hydride-Cracking(지체수소균열전파)

Abstract

The aim of this study is to investigate the hydride embrittlement when the LBB evaluation is carried out for the integrity of PHWR Pressure Tubes. The transverse tensile and CCT tests were performed at three hydrogen concentrations while the test temperatures were changed (RT to 300℃). The specimens were directly machined from the pressure tube retaining original curvature. Both the transverse tensile and the fracture toughness tests showed the hydrogen embrittlement clearly at RT but this phenomenon was disappeared while the test temperature arrived over 250℃. Using the DHC test results, the CCL and LBB time were calculated and compared. The hydride embrittlement behavior at the LBB evaluation was definitely showed.

1. 서 론

현재 가동 20 년이 된 월성 1 호기의 (CANDU 형 원자로) 압력관 재질인 Zr-2.5wt%Nb 합금은 (이후 Zr-2.5Nb) 원자로내의 고온냉각수 분위기에서 장기간 사용되는 중 여러 이유들에 의해 수소 및 중수소의 흡수가 발생하게 되고, 이들 함량이 기지 내의 고용한도를 넘게되면 Delayed Hydride Cracking (DHC)의 유발과 수소화물(Hydride)에 의한 파괴인성치의 취화로 인하여 압력관 파손사고를 일으키는 것으로 보고되고 있다. 따라서 국내의 월성 1,2,3,4 호기를 포함한 모든 CANDU 형 원자로의 경우 정기적으로 압력관내 수소흡수량 측정 및 균열발생 여부를 점검하도록 규정하고 있으며, 수소화물에 따른 압력관의 거동에 대한 연구의 필요성이 증가하고 있다.

† 안동대학교
E-mail : djoh@andong.ac.kr
TEL : (054)820-6016 FAX : (054)823-1766
* 한국원자력연구소 Zr 팀

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[1,2]. 이 실험법의 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 원자로 가동 온도 구간에서의 파괴인성 시험을 행하여, 수소화물에 의한 파괴인성 취화에 대한 거동의 특성과 석출 수소화물에 의한 DHC 균열전파가 압력관 가동 안전기준에 적용되는 Leak-Before-Break(LBB) 평가에 어떤 영향을 주는가를 시험에서 얻은 결과를 이용하여 보여주고자

하는데 있다.

2. 재료 및 시험

2.1 재료 및 시험편

본 연구에 사용된 재료는 CANDU 4 차 용해된 cold-worked Zr-2.5Nb 압력관이다. 캔두 압력관의 제조공정은 800°C 에서 11:1 로 Hot Extrusion 과 Cold Drawing (26%) 후에 400 °C 에서 24 시간 Autoclave 처리를 하였다. 캔두 압력관은 압출시의 심한 소성변형 (11:1 의 압출비율)으로 축 방향으로 길게 늘어진 결정립이 관찰된다. 이때 길게 축 방향으로 늘어진 결정입자는 α-Zr 이며, α-Zr 와 α-Zr 사이에 β-Zr 입자들이 길게 늘어져 있다.

Fig. 1 은 광학현미경으로 관찰한 조대한 수화물의 조직 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 있었다. 또한 원주 방향면에서도 수화물이 원주방향을 따라 분포한 것을 확인할 수 있었다.

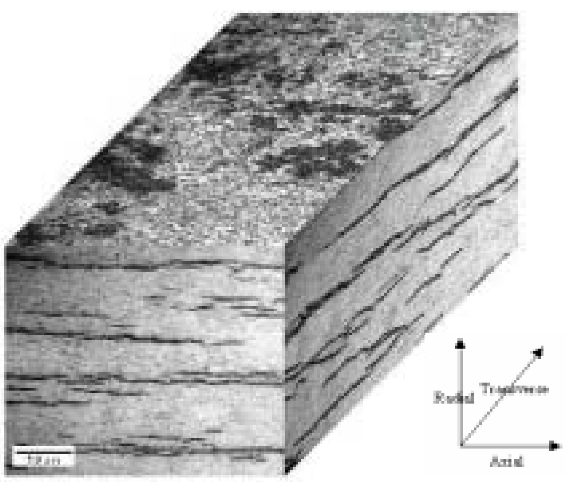
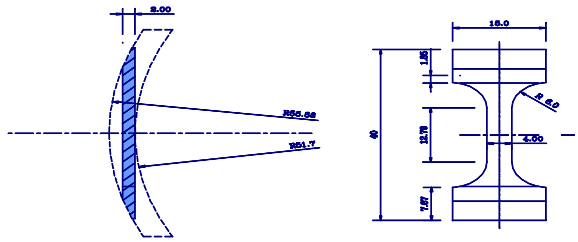
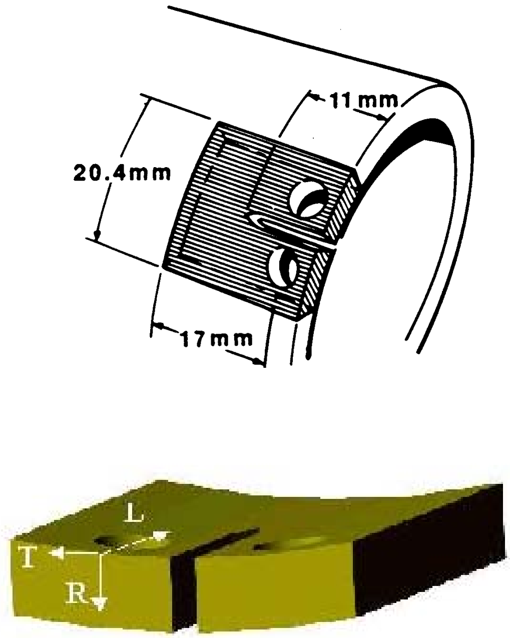


Fig. 1 Typical Microstructure of Hydride on Zr-2.5Nb Pressure Tube



(a) Geometry of Transverse Tensile Specimen



(b) Collection of CCT Specimen

Fig. 2 Transverse Tensile and CCT Toughness Specimen

Fig. 2(a)는 횡방향 소형 인장시편의 형상을 보여주고 있다. 압력관의 횡방향을 따라 약 두께 2 mm 의 소형 인장 시험편을 제작하였다. Fig. 2(b)는 파괴인성시험을 위해서, 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 균열 진전방향은 axial 방향이며, W 는 17 mm, 균열비 (a_i/W)는 0.4 이다

2.2 시험 장치 및 방법

2.2.1 시험장치

사용된 인장 및 파괴인성 시험장치는 Instron 8501 이며, 실험 시 사용된 Grip 은 Zr-2.5Nb 합금을 사용하여 가공하였으며, DCPD 측정 시에 전류의 절연을 위하여 800 °C 에서 3 시간 열처리 후

에 공랭하여 산화막 처리를 하였다. 피로균열은 0.5° 테이퍼 핀을 이용하여 균일하게 만들었으며, 피로 균열의 측정은 Visual Method 에 의해 양방향에서 측정하였다[3]. 파괴인성 시험 및 DHCV 측정을 위한 시험 시, 시험 동안의 균열 진전은 DCPD 방식에 의하여 측정하였으며, 시험이 끝난 후에는 Nine point average method [3] 에 의하여 실제 균열 길이를 측정한 후에 DCPD 의 보정이 이루어졌다.

2.2.2 수소장입

인위적인 농도의 수화물을 석출 시키기 위하여 고온 음극 수소 장입 방법 (Cathodic Hydrogen Charging Method)을 이용하여 수소를 50, 100 ppm 이 되게끔 장입하였다. 이 방법은 전기화학적 방법으로, 시편 표면에 수화물 층을 형성시키고자 KAERI 의 표준 수소 장입 절차서에 [4] 의해 시편은 음극에 설치하고 음극의 2 배 면적을 갖는 양극(납)을 65±5°C 로 일정하게 유지되는 0.1~0.2 molar 의 황산용액(전해액)에 담근 후, 150 mA/cm^2 의 전류밀도를 23 시간 이상 가해, 이론치보다 50% 두껍게 시편표면에 수화물 층이 형성되도록 하였다.

시편표면에 형성된 수화물 층으로부터 수소를 내부로 확산시키기 위해 관상의 진공로를 사용하여 균질화 처리를 수행하였다. 균질화 시간과 온도는 확산방정식을 이용하여 50 ppm 을 얻기 위해서는 292°C 에서 30 시간동안 열처리하였다. 균질화 열처리 후 Hot Vacuum Extraction 장치를 사용하여 장입된 수소량을 분석하였다.

2.2.3 횡방향 인장시험

본 시험은 상온에서는 ASTM E 8 [5], 250°C 와 300°C 에서는 ASTM E 21 [6]에 준하여 인장시험을 행하였다. 시험 시 사용된 프로그램은 Instron 의 Series IX 이었으며, 하중과 하중변위곡선이 자동으로 그려졌으며, 0.2% 항복강도와 UTS(인장강도) 등이 자동으로 계산되었다. 인장실험의 결과는 파괴인성치의 계산에 필수적인 데이터이다

2.2.4 파괴인성 시험

본 시험은 ASTM E 1737-96 [7]에 준하여 single-specimen method 에 의해 상온과 250°C, 300°C 에서 수행하였다. 고온시험의 경우에, 하중제어방식에 의해 초기 하중을 0.2 KN 을 가한 후에 바라는 시험온도가 되기를 기다렸다. 시험온도에 달하면, 평형상태를 얻기 위해서 1 시간이상의 soaking time 을 주었으며, 시험온도의 오차는 ±3 °C 이었다. 시험이 이루어지는 동안에 하중치, 하중 변위값, potential drop 과 온도 등은 Instron 의 Fast Track J_{IC} 프로그램에 의하여 측정되었다. 시험이 끝난 후에는 약 300°C 에서 10 분간 heat-tinting 작업을 하였으며, 시편의 추가적인 변형을 방지하기 위하여 하중비, 0.7 에서 피로균열 작업을 하여 시험편을 파단시켰다. 파단된 시험편의 최종 크랙길이를 9-point average method 에 의해 측정하였다. *J-R curve* 는 ASTM E-1152 [8]의 *J* 계산식에 의해 구할 수 있다

2.2.5 CCL 계산법

균열 구동력 (Crack Driving Force: CDF) 평가법은 실험적으로 측정되는 균열진전 저항력 (*J-R*) 값과 역학적으로 계산되는 균열 구동력 *J* 값을 비교함으로써 균열의 성장 및 파괴과정을 평가하는 방법이다. CDF 에서 하중이 고정되어 있는 경우, 균열의 불안정 성장조건은 다음과 같다.

$$\left(\frac{\partial J}{\partial a}\right)_P \geq \frac{\partial J_R}{\partial a} \tag{1}$$

$$J = \frac{K_I^2}{E} = \frac{8}{\pi}\frac{\sigma_f^2}{E} a \cdot \ln[\sec(\frac{\pi}{2}\frac{M \cdot \sigma_h}{\sigma_f})]$$

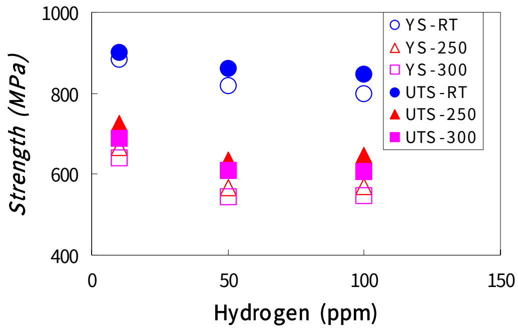
$$M = \sqrt{[1 + 1.255(a^2/(r_m \cdot t)) - 0.0135(a^4/(r_m \cdot t)^2]} \tag{2}$$

이때, σ_h 는 압력관에 작용하는 hoop stress 이며, σ_f 는 flow stress 이다. *2a* 는 균열길이이며, *M* 은 압력관의 곡률을 고려한 수정계수이다.

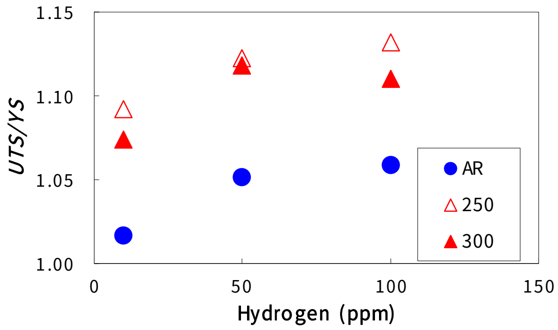
3. 시험 결과

3.1 횡방향 인장시험

Fig. 3 은 3 가지 종류의 시험편에 대한 횡방향 인장실험 결과를 보여주는 그림이다. 수소를 장입하지 않은 AR (As Received)시편, 50, 100 ppm 의 두 종류의 수소를 장입한 시편 등의 0.2% 항복강도와 UTS 의 수소농도와 온도의 의존성을 보여주고 있다. Fig. 3(a)는 항복강도와 인장강도가 수소함유량에 따라 어떤 변화가 생기는가를 한 그림에 같이 보여주고 있다. 또한 Fig. 3(b) 는 가공경화율(UTS/YS)이 수소농도가 증가함에 따라 선형적으로 증가하는 경향을 보여주고 있다. 이것은 수소함유량과 재료의 취화와 연관관계가 있음을 암시하는 것이다.



(a) YS and UTS Depending on Hydrogen Concentrations



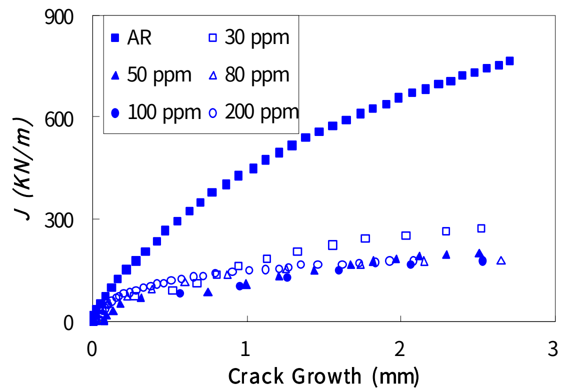
(b) UTS/YS Depending on Hydrogen Concentration

Fig. 3 Transverse Tensile Test Results with Temperature and Hydrogen Concentration

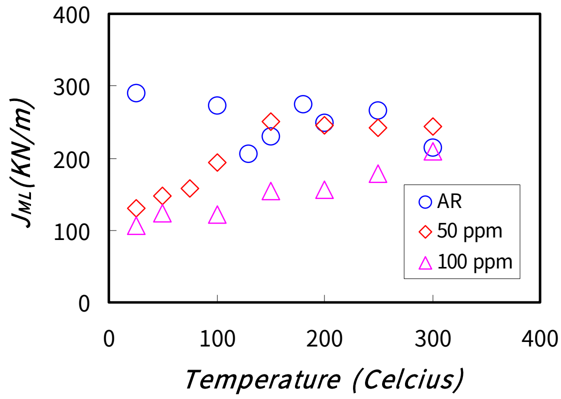
3.2 파괴인성 시험

파괴인성 시험 결과는 *J-R* curves 의 비교, $J_{(ML)}$값 *dJ/da* 의 비교 등의 순서로 이루어졌다. Fig. 4(a)는 Zr-2.5Nb .압력관의 CCT 시험편을 사용하여 상온에서 얻은 *J-resistance* curve 이다. 시험에 의해 얻은 3 가지 종류 (AR, 50 ppm, 100 ppm)와 기존의 시험에 의해 얻은 파괴인성치를 수소함유량에 따라 종합적으로 비교한 그림이다. 상온에서 AR 의 시험편의 인성이 가장 높았으나, 수소함유량이 증가함에 따라 인성이 취화된다는 사실을 확인할 수 있다. 하지만 수소함유량이 점점 증가함에 따라 일정 이상 취화된 재료는 임의의 일정한 인성치 이하로 떨어지는 경향을 나타내고 있다.

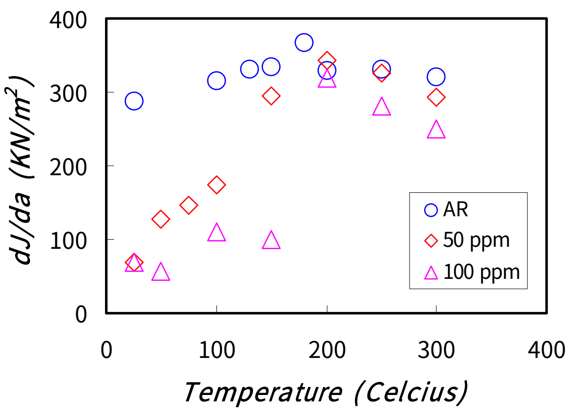
한편 Fig. 4(b)와 (c)는 각각 시험온도를 상온에서 300°C 까지 변화시킴에 따라 최대하중 시에 얻어지는 파괴인성치, J_{ML},와 기울기, *dJ/da*,를 나타내고 있다. 상온에서는 수소함유량에 따른 현격한 파괴인성의 취화특성을 확인할 수 있으나, 온도가 증가함에 따라 수소취화 특성이 감소하고 있음을 알 수 있다.



(a) *J*-resistance Curve



(b) J_{ML} and Temperature



(c) *dJ/da* and Temperature

Fig. 4 Hydrogen Embrittlement of Fracture Toughness

3.3 DHC 시험결과

표 1 에는 180℃, 250°C, 300℃의 온도에서 Zr-2.5Nb 압력관 시편의 기존 데이터 중에서 축방향의 DHC 속도를 나타내고 있다[9]. 이 결과 중에서 LBB 평가의 보수성을 부여하기 위해서는 가장 빠

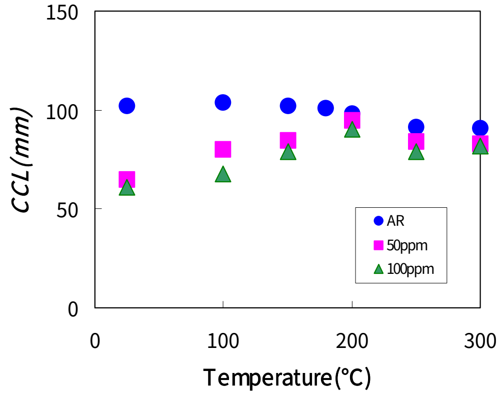
른 상한 DHC 속도를 택해서 계산에 사용하였다. AR 의 시편의 경우에는 약 10 ppm 전후의 수소가 함유된 것으로 간주하였으며, 50 ppm 과 100 ppm 은 각각 250℃와 300℃에서 얻은 실험값들을 이용하였다.

3.4 CCL 및 LBB 거동

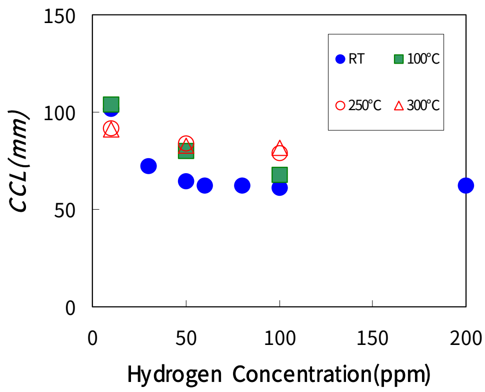
3.4.1 CCL 의 결정

사용압력은 실제 발전소의 outlet 조건인 310°C 에서의 150 MPa 원주응력을 사용하였다. 상온, 250℃, 300°C 에서의 *J-R* curve 와 각 온도에서의 CDF 선도와의 접점에서 CCL 이 결정되었다. CCT 시험편을 사용할 때 치수제한으로 인해 충분한 길이에 대한 *J-R* curve 를 얻기 어려워, CCT 의 *J-resistance* curve 는 실제 저항곡선의 일부분에 대한 정보만을 제공하기에, burst 실험에 의한 실제 CCL 보다 작은 저평가된 CCL 이 예측될 수도 있다는 주장도 있다.

이와 같은 조건 하에서 구한 각각의 CCL 을 Table 2 과 Fig.5 에 나타내었다. 수소의 함유량이 증가함에 따라 CCL 은 감소하는 경향이 있으며, 사용온도가 증가함에 따라 CCL 이 증가하는 경향을 보였다.



(a) CCL and Temperature



(b) CCL and Hydrogen Concentration

Fig. 5 CCL Comparion with Temperature and Hydrogen

Table 1 Temperature Dependency of Axial DHCV(m/s)

	AR	50 ppm	100 ppm
Upper DHCV (m/s)	4.5×10^{-8}	3.5×10^{-7}	1×10^{-6}
Low DHCV (m/s)	1.2×10^{-8}	8×10^{-8}	2×10^{-7}
Average DHCV (m/s)	2.5×10^{-8}	2×10^{-7}	5×10^{-7}

Table 2 CCL (mm) Comparison

	RT	250℃	300℃
AR	101.8	91.6	91
50 ppm	64.6	84	82.9
100 ppm	61	79	81.7

3.4.2 LBB 거동의 비교

사용 중 압력관의 안전수명 평가를 위해 AECL 에서 제안한 LBB 시간을 지금까지 구한 여러 시험 결과를 이용하여 산출 비교하는 작업을 수행하였다. 이것이 안전수명평가를 위한 기초 데이터로써의 사용이 아닌, 하나의 사용 예를 제시함으로써 더욱 안전한 진단의 초석이 되게 하는데 그 의의가 있다고 할 수 있다. 더욱이 본 시험의 결과는 수소취화만을 고려했기 때문에 실제로 중요 변수 중에 하나인 조사(irradiation)에 의한 조사취화 영향을 배제한 것임을 상기해야 할 것이다.

압력관에 결함이 발생하여 관통결함이 된 후에 발전소의 가동을 멈추기 위한 안전시간을 산출하는 LBB 시간은 다음 식(3)에 의해서 구할 수 있다.

$$t = \frac{CCL - LeakCL}{2 \times DHCV} \tag{3}$$

Table 3 Calculated LBB Time(Hours)

	RT	250℃	300℃
AR	200.6	200.6	200.6
50 ppm	17.7	25.4	25.0
100 ppm	5.7	8.2	8.2

이때 *CCL* 은 Table 2 에서 계산된 값을 사용할 수 있으나, *CCL* 의 값이 85 mm 이상인 경우는 정상파괴가 아닌 소성붕괴(plastic collapse)현상이 일어나므로 85mm 이상은 모두 CCL 이 85 mm 로 간주한다. 한편, *LeakCL* 은 AECL 이 제안한 20 mm 를 사용하였다. 그리고 분모부분의 DHCV 는 얻은 결과 중에서 보수성을 주기 위해서 가장 빠른 속도인 상한값을 사용하였다. 식(3)에서 구한 값은 초(sec)단위이므로 이것을 시간으로 환산한 값을 Table 3 에 보여주고 있다.

이 표로부터 알 수 있듯이 수소함유량이 증가할수록 LBB 시간이 줄어듬을 알수 있다. 또한 사용온도가 증가함에 따라 CCL 이 증가하므로 LBB 시간 역시 연장됨을 알 수 있다. 이것은 수소화물의 석출에 의한 수소취화의 영향이 온도에 따라 변화하는 사실을 알았지만, 실제의 원자로에서는 수소화물에 의한 수소취화뿐 아니라 조사(irradiation)에 의한 조사취화는 온도와 거의 무관하게 취화됨으로 전 온도구간에서의 CCL 의 감소와 LBB 시간의 단축을 의미한다. 상온에서의 수소취화정도가 조사취화와 비슷하다고 가정할 경우에도 수소가 AR 상태인 경우에 비해 급격히 감소하여 하루 이하로 감소하다가 수소화물이 증가하여 더욱 취화한 경우에는 6 시간 이하로 감소할 수 있음을 보여주고 있다. 따라서 압력관 재료의 취화는 원자로의 안전성과 직결된다는 것을 확인할 수 있다.

4. 결 론

Zr-2.5Nb 중수로 압력관 재료를 사용하여 상온과 고온(250℃, 300℃)에서의 횡방향 인장시험, 파괴인성 시험을 한 후에 CCL 과 LBB 시간을 비교하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) 수화물의 함량에 따라 인장 및 파괴인성은 상온에서 수소취화의 특성이 명백하다가, 고온에서는 석출 수화물의 감소에 따라 취화 정도가 급격히 감소하는 것을 확인하였다.

(2) 이런 파괴인성의 취화는 중수로 압력관의 안전성 평가에 쓰이는 임계균열길이(CCL)의 감소를 초래하며, 결국에는 LBB 시간의 단축을 의미한다. 실제 원자로의 조사취화에 대한 연구를 직접 수행할 수 없는 점을 고려할 때, 수소취화의 특성은 압력관 취화 특성을 이해하는데 도움을 주는 연구이다.

후 기

이 논문은 2002 학년도 안동대학교 학술연구조성비에 의하여 연구되었습니다. 재료와 실험 장비 및 기타 도움을 주신 한국원자력연구소 Zr 팀과 임경수 선생님에게 감사드립니다.

참고문헌

(1) L.A. Simpson, C.K. Chow, and P.H. Davies, 1989, “Standard Test Method for Fracture Toughness of CANDU Pressure Tubes”, AECL Report COG-89-110-I, AECL.

(2) D.D. Himbeault and P.H. Davies, 1999, “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, AECL.

(3) British Standards Institute, 1977, “Plain Strain Fracture Toughness (K_{IC}) of Metallic Materials,” BS5447.

(4) KAERI, 1999, “Characterization Testing Procedures of Zr-2.5Nb Pressure Tubes,” KAERI/TR-1329/99.

(5) American Society for Testing and Materials, “Standard Test Method of Tension Testing of Metallic Materials,” ASTM E 8.

(6) American Society for Testing and Materials, “Standard Recommended Practice for Elevated Temperature Tension Tests of Metallic Materials,” ASTM E 21.

(7) American Society for Testing and Materials, “Standard Test Method for J-Integral Characterization of Fracture Toughness,” ASTM E 1737-96.

(8) American Society for Testing and Materials, “Standard Test Method for Determining J-R Curves,” ASTM E 1152-87.

(9) AECL, 1996, “Fitness for Service Guidelines for Zirconium Alloy Pressure Tubes in Operating CANDU Reactor,” COG-91-66.