

중수로 압력관 재료의 조사 열화에 따른 인장거동 특성

안상복[†] · 김영석^{*} · 김정규^{**}
(2001년 6월 20일 접수, 2001년 10월 25일 심사완료)

Tensile Behavior Characteristics of CANDU Pressure Tube Material Degraded by Neutron Irradiations

Sang-Bok AHN, Young-Suk KIM and Jung-Kyu KIM

Key Words: Hot Cell(핫셀), Irradiation(조사), Unirradiation(비조사), Neutron(중성자), Pressure Tube(압력관), Irradiation Hardening and Embrittlement (조사경화 및 취화)

Abstract

To investigate the degradation of mechanical properties induced mainly by neutron irradiation, the tensile tests were conducted from room temperature to 300°C using the irradiated and the unirradiated Zr-2.5Nb pressure tube materials. The irradiated longitudinal and transverse specimens were collected from the coolant inlet, middle, and outlet parts of M-11 tube which had been operated in Wolsung CANDU Unit-1 and exposed to different operating temperatures and irradiation fluences. The different tensile behavior was characterized not by the fluences of irradiation but by the tensile loading direction. The transverse specimen showed the higher strength and lower elongation than those of the longitudinal one. It was believed that these phenomena resulted from the microstructure anisotropy caused by the extrusion process. The increased strength hardening and decreased elongation embrittlement of the irradiated material were compared to those of the unirradiated one. While the tensile strength of the inlet was higher than that of the outlet, the elongation of the inlet was lower than that of outlet. Considering the operation condition, it was proposed that the operating temperature could be a more effective parameter than the irradiation fluence for long-time life. Through the TEM observation, it was found that while the a-type dislocation density was increased, the c-type dislocation was not changed in the irradiated. The fact that the higher dislocation density was sequentially distributed over the inlet, the middle, and the outlet parts was consistent with the distribution of the tensile strength.

1. 서론

국내에는 1983년에 월성 1호기의 운전을 시작한 이후로 현재 총 4기의 가압 중수로(Pressurized Heavy Water Reactor, PHWR)형 원자로가 가동되고 있다. 월성 1호기에는 380개의 압력관이 핵연료와 칼란드리아 튜브(calandria tube) 사이에 설치되어 있고, 이 내부에는 핵연료에서 발생된 열

을 전달하기 위한 중수(D₂O)의 냉각수가 흐르고 있다. 압력관은 약 10 MPa의 고압과 250~310 °C의 고온의 냉각수 그리고 최대 30x10²⁵ n/m² (E > 1MeV, E:중성자에너지)의 누적조사량을 받으며 설계수명 30년 동안 운전된다. 따라서 압력관은 고온, 고압 및 수소침입 그리고 중성자 조사로 인하여 기계적 성질이 저하된다.⁽¹⁾ 특히 중성자 조사(neutron irradiation)는 재료 내에 다량의 원자 공공과 격자간 원자등의 결함으로 인한 전위 루프등을 형성하여 재료의 기계적 성질을 저하시키는 주원인이 된다.⁽²⁾ 따라서 압력관의 운전 건전성을 평가하기 위해서는 중성자의 조사에 따른 열화거동의 파악이 필수적으로 요구된다.⁽³⁾

[†] 책임저자, 회원, 한국원자력연구소

E-mail : sbahn@kaeri.re.kr

TEL : (042)868-8454 FAX : (042)868-8420

^{*} 회원, 한국원자력연구소

^{**} 회원, 한양대학교 기계공학부

따라서 본 연구에서는 중성자 조사에 따른 압력관 재료의 열화거동을 평가하기 위하여, 비조사(unirradiated) 신재와 월성 1호기 중수로에서 운전중(irradiated)에 인출된 M-11 압력관의 냉각수 인입부, 중간부 및 출구부에서 방향별로 시험편을 채취하여 이들의 인장특성을 검토하였다. 또한 각 채취위치의 운전조건을 고려하여 조사열화에 미치는 운전온도의 영향 및 조사에 따른 미세조직의 변화도 함께 검토하였다.

2. 실험방법

2.1 재료 및 시험편

본 연구에 사용된 비조사 압력관은 진공 용해 후에 815 °C에서 10.5:1의 비율로 압출한 후에 상온에서 냉간 가공한 Zr-2.5Nb 재료로서 화학적 성분은 Table 1과 같으며, 제원은 길이 약 6.3 m, 안지름 103.4 mm 그리고 두께 4.19 mm이다. 한편 조사재 시험편은 월성 1호기 원자로에서 인출한 M-11 압력관으로, 시험편의 채취 위치에 따른 주요 운전이력은 Table 2와 같다.

조사재 시험편은 핫셀용으로 개발한 전극형 방전가공기를 이용하여 제작하였다. 시험편의 형상은 핫셀 내에서 원격 조종으로 시험편의 탈착이 용이하도록 Fig. 1과 2와 같이 어깨걸이형

(shoulder girder type)으로 하였으며, 특히 횡방향 시험편은 표점거리 내의 곡면부위를 평면으로 별도 가공을 실시하였다. 조사재는 각각의 링에서 12시~3시 부근의 우상단 위치에서 종방향 시험편을, 6시~9시 방향의 좌하단 위치에서 횡방향 시험편을 채취하여 위치를 구분하였으며, 비조사재는 위치의 구분없이 각 방향으로 시험편을 채취하였다.

2.2 시험 방법

시험은 원격 조종이 가능한 핫셀용 만능시험기를 이용하였으며, 핫셀 내에서 사용하기 위한 어깨걸이형 지그를 별도로 제작하여, 0.12 mm/min의 변위속도로 실시하였다. 시험온도는 -150~300 °C의 온도범위를 갖는 챔버를 이용하여 상온, 100, 150, 200, 250 및 300 °C로 조절하였다. 한편 시험 중에 별도의 신장계를 부착하지 않고 시험 후에 지그의 하중에 따른 변위량을 별도로 측정하여 결과를 보정하였다. 한편 미세조직은 200

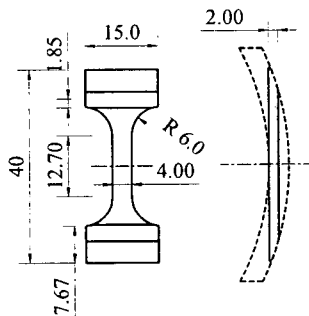
Table 1 Chemical compositions of Zr-2.5Nb pressure tube material (unirradiated)⁽⁴⁾

Nb (wt%)	O	C	Cr	H	Fe	Ni	N	Si	Ta	Zr and Impurities
2.4 ~ 2.8	900 ~ 1300	< 270	< 200	< 25	< 1500	< 70	< 65	< 120	< 200	Balance

* ppm by weight

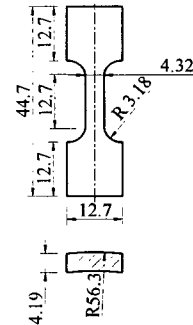
Table 2 Operation history and cutted ring positions in M-11 pressure tube

Ring Part Identification	Distance from inlet (mm)	Operating temp. (°C)	Accumulated neutron fluence (E > 1MeV)	Effective full power years (yrs)
Inlet	1730~1900	275	7.66 x 10 ²⁵ n/m ²	9.3
Middle	2660~2830	285	8.91 x 10 ²⁵ n/m ²	"
Outlet	4560~4830	302	6.84 x 10 ²⁵ n/m ²	"



(unit: mm)

Fig. 1 Configuration of transverse tensile specimen



(unit:mm)

Fig. 2 Configuration of longitudinal tensile specimen

kV의 투과전압을 갖는 전자 투과 현미경을 이용하여 관찰하였다.

3. 실험결과 및 고찰

3.1 비조사재의 인장거동 특성

Fig. 3은 비조사재 시험편을 대상으로 온도에 따른 횡방향 및 종방향 시험편의 응력-변형률 선도의 대표적인 예이다.

시험 동안 횡방향은 변형 초기에 부분적으로 인장방향과 약 45°의 변형밴드가 연속적으로 생성되면서 네킹이 발생되어 파단에 이르는 현상이

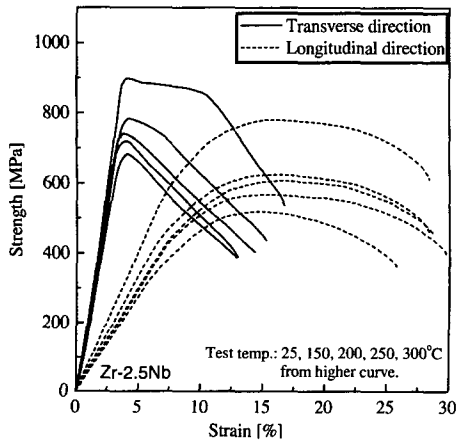


Fig. 3 Typical tensile stress-strain curves in the transverse and longitudinal direction specimens from the unirradiated tube

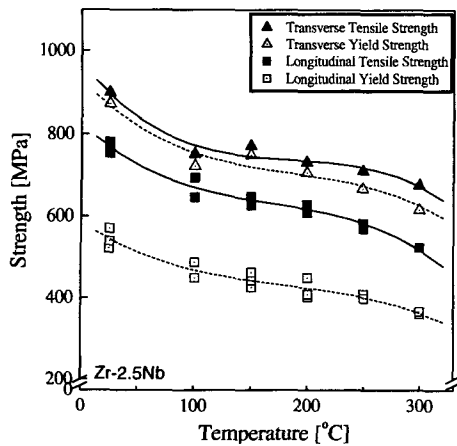


Fig. 4 Yield and tensile strength variations in the unirradiated transverse and longitudinal directions with temperatures

관찰되었으며, 종방향에서는 변형초기에 부분적인 변형밴드는 발생치 않고 표점거리 내에 변형이 균일하게 분포되면서 파단에 이르는 현상을 거시적으로 관찰할 수 있었다. 따라서 그림에서와 같이 횡방향은 초기변형률 ~1% 이내의 구간에서 가공 경화 현상이 발생된 후 응력이 급속히 감소되는 양상이, 그리고 종방향에서는 횡방향에 비해 상대적으로 5~7%의 넓은 구간에서 가공경화 현상이 발생한 후 하중이 완만하게 감소하는 현상이 나타내었다. 이러한 현상은 압출 제작공정으로 인하여 결정립이 종방향으로 길게 배열되어 나타난 이방성 현상으로 고찰된다.⁽⁵⁾

Fig. 4는 각 방향에서 온도에 따른 0.2%의 소성변형에 해당하는 항복강도와 인장강도의 변화를 나타낸 선도이다. 항복강도는 횡방향에 비해 종방향에 비하여 약 40~50%, 그리고 인장강도는 20~30% 정도의 높은 값을 나타냈다. Fig. 5는 각 방향에서 온도변화에 따른 균일(uniform) 및 최대연신율(max. elongation)의 분포를 나타낸 것이다. 이들 연신율은 온도의 증가에 따라 약간 감소하는 경향을 나타냈으나, 강도에 비하여 비교적 온도 의존성이 적게 나타났다. 특히 네킹이 발생되기 시작하는 최대 하중점에서의 변형률인 균일연신율은 횡방향에 약 0.5~1%의 낮은데 비하여, 종방향은 5~7% 정도로 비교적 높은 값이 나타났다. 비조사 압력관은 횡방향에 상대적으로 높은 강도와 낮은 변형률을 갖는 이방성 거동특성이 나타남을 알 수 있다.

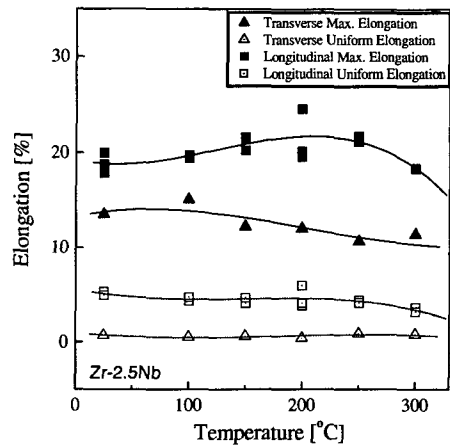


Fig. 5 Uniform and maximum elongation variations in the unirradiated transverse and longitudinal directions with temperatures

3.2 조사재의 인장거동 특성

3.2.1 조사경화 및 취화 특성

Fig. 6 및 7은 냉각수 인입부의 조사재와 비조사재 신재에서 횡방향 및 종방향으로 채취한 시험편으로부터 얻은 응력-변형률 선도의 대표적인 예이다. 조사재의 인장특성은 비조사재와 유사하나, 조사재는 비조사재에 비하여 강도가 상승하고 연신율이 급격히 감소되는 특징이 나타났다. 이는 중성자 조사에 의해 생성된 각종 결함이 전위의 이동을 방해하여 나타나는 조사경화 및 조사취화에 따른 현상으로 해석된다. 또한 종방향

에서의 경화 현상이 횡방향에 비하여 상대적으로 크게 나타났다. 이는 본 재료의 집합조직의 특징에 의해 나타나는 현상으로 보고되고 있다.^(6,7) Tenckhoff 및 Jensen 등은^(8,9) 육방정계(HCP) 입자 구조를 갖는 지르코늄 재료에서 횡방향 변형에 지배적인 <c+a>의 쌍정과 종방향 변형에 지배적인 슬립변형계에 따른 현상으로 설명한 바 있다.

시험온도에 따른 조사재의 인장 특성을 검토하기 위하여, 온도에 따른 인장강도 및 연신율의 분포를 Fig 8 및 9에 나타냈다. 조사재의 인장강도는 시험온도가 높아짐에 따라 감소하였다. 조사취화에 따른 강도의 상승률은 온도에 따라

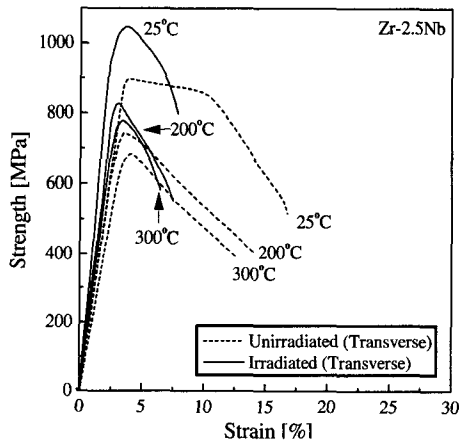


Fig. 6 Typical transverse tensile stress and strain curves from the irradiated and unirradiated specimens

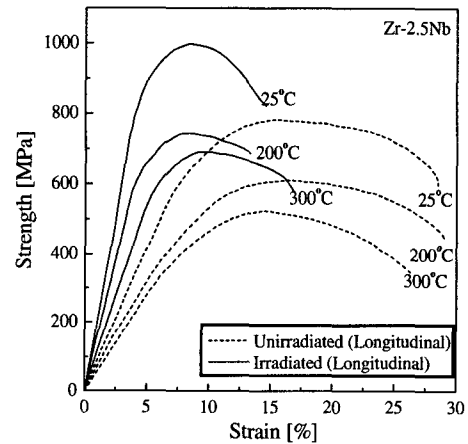


Fig. 7 Typical longitudinal tensile stress and strain curves from the irradiated and unirradiated specimens

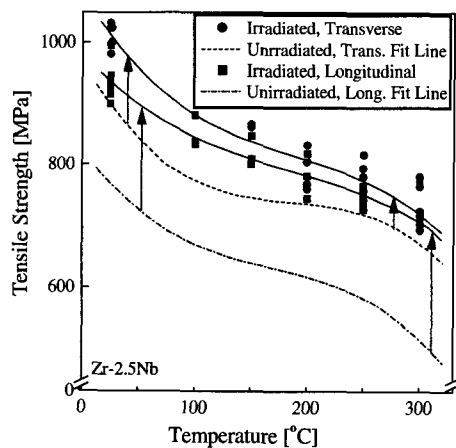


Fig. 8 Comparison of tensile strength distributions between the unirradiated and the irradiated specimens

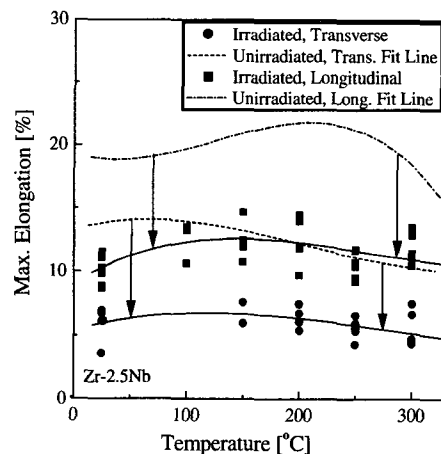


Fig. 9 Comparison of max. elongation distributions between the unirradiated and the irradiated specimens

횡방향은 약 15 ~ 20 %, 종방향은 30 ~ 40 % 정도로 시험편의 채취방향에 따라 달리 나타났다. 또한 횡방향은 시험온도가 높아짐에 따라 조사경화에 따른 강도의 상승폭이 감소되는 경향을 나타내는 반면에, 종방향에서는 큰 차이를 나타내지 않았다. 특히, 시험온도의 상승에 따라 횡방향과 종방향 간의 강도차이가 비조사재에 비하여 조사재에서 감소되는 양상이 관찰되었다. 연구용 원자로의 캡슐을 이용하여 300 °C에서 $6.5 \times 10^{23} \text{ n/m}^2$ ($E > 1 \text{ MeV}$)의 조사량을 갖는 시험편에 대한 Parry의 시험에서도⁽¹⁰⁾ 이와 유사한 경향이 나타났는데, 이는 시험온도가 상승함에 따라 조사결합이 일부 회복되어 나타난 현상으로 생각된다.

최대연신율은 비조사재에 비하여 조사재에서 약 40 ~ 50 % 감소되는 조사취화 현상을 보여 주었으며, 강도와는 달리 채취방향 및 시험온도에 따른 차이도 비교적 적게 나타나는 경향이 나타났다.

3.2.2 조사온도 및 조사량에 따른 거동특성

Fig. 10과 11은 냉각수의 인입, 중간 및 출구 부위로 구분하여 채취한 시험편의 인장강도 변화를 온도에 대해서 나타낸 선도이다. 조사량이 가장 많은 중간부위 보다 상대적으로 운전온도가 낮은 인입부에서 높은 인장강도를 나타내었다. 이는 인입부에서 가장 많은 조사손상이 발생하여 나타난 현상으로 고려된다. Hosbons 등은^(11,12) 연

구용 원자로의 캡슐조사 시험에서 조사량이 $2 \sim 3 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$ 정도까지의 초기 구간에서 인장강도가 급격히 증가된 후에 조사량이 계속 누적되어도 비례하여 증가되지 않고 수렴하는 결과를 보고한 바 있다. 또한 Ibrahim은⁽¹³⁾ $0.9 \sim 1.2 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ 의 조사량을 갖는 조사 압력관의 시험에서 조사온도가 낮은 부위에서 인장강도가 더욱 증가되는 결과를 보여 주었다. 따라서 이들의 연구와 본시험의 결과를 종합해보면 운전온도가 상대적으로 높은 위치에서는 조사결합에 의한 손상이 감소됨을 알 수 있다. 따라서 조사량이 적은 인입부가 중간부나 출구부에 비하여 인장강도가 높은 것은 조사량 보다 조사온도가 낮아 나타난 현상으로 생각된다.

Fig. 12와 13은 냉각수의 인입부와 출구부에서 압력관의 상단과 중간위치의 종방향 시험편과 중간과 하단 위치의 횡방향 시험편의 인장강도 변화를 위치에 따라 나타낸 선도이다. 종방향은 상단에서의 강도가 중간위치 보다 높게 나타났으며, 특히 인입부에서 채취위치에 따른 강도 차이가 출구부 보다 크게 나타났다. 한편 횡방향에서도 중간위치의 인장강도가 하단부보다 높게 나타났으며, 인입부와 출구부간의 강도차이는 종방향과 유사하게 나타났다. 이는 압력관 내에 장전된 핵연료가 자중으로 인하여 관의 하단에 위치하여 연소되기 때문에 상단 위치로 갈수록 냉각수의 온도가 낮아지는 현상,⁽¹⁴⁾ 즉 조사온도가 낮기 때문에 나타난 현상으로 생각된다. 따라서 본 재료

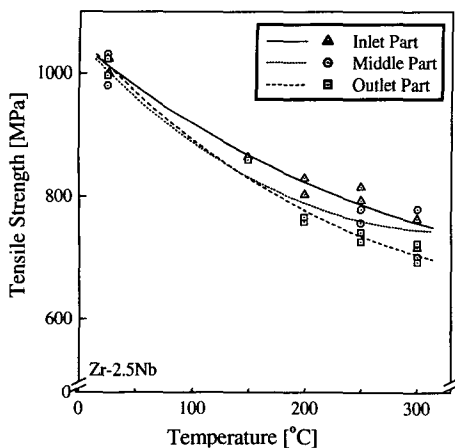


Fig. 10 Transverse tensile strength variations with the irradiated coolant inlet, middle, and outlet parts

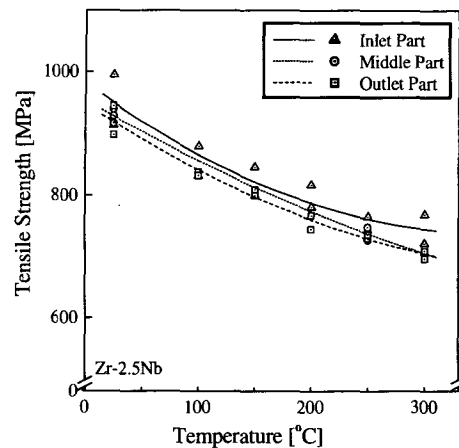


Fig. 11 Longitudinal tensile strength variations with the irradiated coolant inlet, middle, and outlet parts

는 일정량 이상의 조사를 받았을 때 조사량보다 조사온도가 인장강도의 변화에 민감하게 영향을 미치는 인자임을 알 수 있다.

3.3 중성자 조사에 따른 전위밀도의 변화

본 재료의 강도는 주로 집합조직, 전위밀도 및 입계의 크기, 그리고 Nb, O 등의 조성에 따라 영향을 받는 것으로 알려져 있으며, 특히 중성자 조사는 주로 전위밀도의 분포에 영향을 미치는 것으로 보고되고 있다.⁽¹⁵⁾ 따라서 비조사재와 조사재에 대한 전위밀도의 차이를 검토하였다. Fig. 14는 비조사재와 조사재의 인입, 출구 부위의 횡

단면에서 관찰한 전위밀도의 분포를 나타낸 미세 조직사진의 예이다. 그림의 조사재에서 α -Zr 입계 내에 a-type 전위가 증가됨을 관찰할 수 있었다. 각 부위에 존재하는 전위의 분포량을 관찰하기 밀도를 측정된 결과는 Table 3과 같다. 표에서와 같이 조사재의 전위밀도는 비조사재에 비하여 30~90% 정도 증가하였으며, 냉각수의 인입, 중간, 출구부위의 순으로 높게 나타났다. 이를 조사량과 운전온도의 분포와 연계하여 고찰해보면, 전위밀도는 조사량이 비슷한 인입 및 출구부 중에서 온도가 상대적으로 높은 출구부에서 적게 나타남을 알 수 있다.

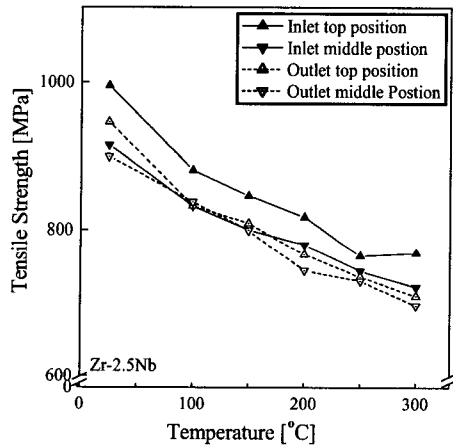


Fig. 12 Longitudinal tensile strength variation with the middle and bottom positions at coolant inlet and outlet parts

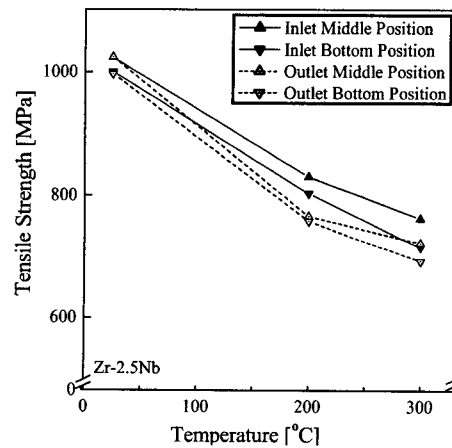


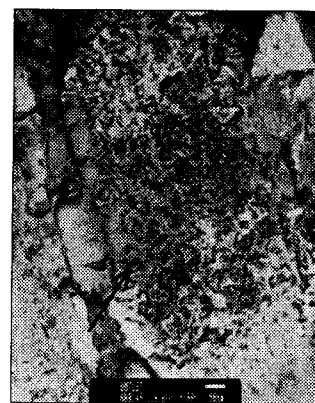
Fig. 13 Transverse tensile strength variation with the middle and bottom positions at coolant inlet and outlet parts



(a) Unirradiated



(b) Inlet part, irradiated



(c) Outlet part, irradiated

Fig. 14 Dislocation distribution comparison in α -zirconium grain between the unirradiated and the irradiated Zr-2.5Nb (Arrows show dislocation distribution shapes)

Table 3 Dislocation density distributions in the unirradiated and the irradiated parts

Part	a-type dislocations [$m^{-2} \times 10^{-14}$]	c-type dislocations [$m^{-2} \times 10^{-14}$]
Unirradiated	4.0	0.97
Inlet	7.5	0.8
Middle	6.2	0.8
Outlet	5.2	0.8

Northwood는⁽¹⁶⁾ 약 $10^{26} n/m^2$ 의 조사량을 갖는 Zircaloy-2 재료를 대상으로 실시한 시험에서 조사손상에 의한 생성된 전위가 약 300°C에서 회복되어 밀도가 감소되는 현상을 보고한 바 있으며, 또한 Chedle 등은⁽¹⁷⁾ 미시적인 관점에서 조사온도가 상승하면 조사결합의 생성이 감소되는 연구 결과를 발표한 바 있다. 따라서 본 재료도 운전온도의 분포에 따라 조사손상으로 증가된 전위에 회복량의 차이가 발생하여 각 위치에서 밀도 변화가 발생된 것으로 생각된다. 또한 이러한 밀도 변화에 의해 시편의 채취위치에 따라 인장거동이 달리 나타난 것으로 고려된다.

4. 결 론

본 연구에서는 월성 1호기 중수로에서 약 10년간 운전된 조사재 및 비조사 신재 Zr-2.5Nb 압력관에서 채취한 종방향 및 횡방향 시험편을 대상으로 인장시험을 실시하여, 운전환경 및 방향에 따른 거동특성을 검토하였다. 이로부터 얻어진 결과를 요약하면 다음과 같다.

(1) 본 압력관은 압출 제작공정으로 인하여 횡방향의 종방향보다 높은 인장강도와 낮은 연신율을 나타내었으나, 조사재에서는 이들 특성의 차이가 감소하였다.

(2) 조사재는 비조사재에 비하여 온도에 따라서 인장강도가 약 15~40% 상승하는 조사경화 현상과, 연신율이 약 40~50% 정도 감소하는 조사취화 현상이 동시에 나타났다.

(3) 각 부위에 따른 인장강도는 조사량이 가장 높은 중간부보다 운전온도가 낮은 인입부에서 높았으며, 동일부에서는 하단부보다 운전온도가 상대적으로 낮은 상단부에서 높게 나타났다. 따라

서 본 조사량 범위에서는 조사온도(운전온도)가 인장특성에 미치는 주요인자임을 알 수 있다.

(4) 조사재의 전위밀도는 비조사재에 비해 증가되었으며 운전온도가 높을수록 상대적으로 낮게 나타나는 온도의존성을 보여주었다.

후 기

본 연구는 과학기술부 원자력 중장기 개발 사업의 중수로 압력관재료 개발과제로 수행되었으며, 조사압력관을 제공해준 한국전력 관계자 및 본 시험의 수행에 협조해주신 한국원자력연구소 조사재시험시설 여러분에게 감사드립니다.

참고문헌

- (1) Ellis, C. E., "The pressure tubes in the CANDU reactors," AECL-Report, AECL-7344.
- (2) 이기순, 1997, "조사공학," 문경출판사, pp. 119~126.
- (3) 지세환, 김영진, 1993, "CANDU 압력관의 건전성 평가," 대한기계학회지, 제 33권 제5호, pp. 449~455.
- (4) Davies, P. H., Shewfelt, R. S. W. and Jaevine, A. K., 1995, "Constraint Effects in Testing Different Curved Geometries of Zr-2.5Nb Pressure Tube Material," *Constraint Effects in Fracture: Theory and Application*, ASTM STP 1244, pp. 392~424.
- (5) 오동준, 안상복, 박순삼, 안창윤, 김영석, 2000, "Zr-2.5Nb 압력관의 수화물에 의한 파괴인성 취화에 관한 연구," 대한기계학회 2000년도 추계 학술대회 논문집 A, pp. 93~98.
- (6) Himbeault, D. D., Chow, C. K., and Pulse, M. P., 1996, "Deformation Behavior of Irradiated Zr-2.5Nb Pressure Tube Materials," *Metallurgical and Materials Transaction A*, Vol. 25A, pp. 135~145.
- (7) Lee, D., 1968, "Ductility of Textured Zircaloy-2," *Trans. ASM*, Vol.61, pp. 742~749.
- (8) Tenckoff, E. 1988, "Deformation Mechanism, Texture, and Anisotropy in Zirconium and Zircaloy," ASTM STP 966, pp. 1~77.
- (9) Jensen, J. A. and Backofen, W. A., 1972,

- "Deformation and Fracture of Alpha Zr Alloys," *Can. Metall. Q.*, Vol. 11(1), pp. 39~51.
- (10) Parry, G. W., 1966, "The Effect of Fast Neutron Irradiation on the Tensile Properties of Specimens from Cold-Worked Zirconium-2.5 wt% Niobium Pressure Tubes," *Chalk River, Ontario*, AECL-2625.
- (11) Hosbons, R. R., Davies, P. H., Griffiths, M., Sagat, S., and Coleman, C. E., 2000, "Effect of Long-term Irradiation on the Fracture Properties of Zr-2.5Nb Pressure Tubes," *Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium*, ASTM STP 1354, pp. 122~138.
- (12) Davies, P. H., Hosbons, R. R., Griffith, M., and C. K. Chow., 1994, "Correlation between Irradiated and Unirradiated Fracture Toughness of Zr-2.5Nb Pressure Tubes," *Zirconium in the Nuclear Industry: Tenth International Symposium*, ASTM STP 1245, pp. 135~167.
- (13) Ibrahim, E. F., 1987, "Mechanical Properties of Cold Drawn Zr-2.5Nb Pressure Tubes After up to 12 years in CANDU Reactors," *Materials for Nuclear Reactor Core Applications*, BNES, London, pp. 73~78.
- (14) Nah, B. K., 2001, Private communications, CANDU Reactor Design Group in KOPEC Co.
- (15) Griffith, M., 1988, "A Review of Microstructure Evolution in Zirconium Alloys during Irradiation," *Journal of Nuclear Materials*, Vol. 159, pp. 190~218.
- (16) Northwood, D. D., 1977, "Comments on In-pile Dimensional Changes in Neutron-Irradiated Zr-base Alloys," *Journal of Nuclear Materials*, Vol. 64, p. 316.
- (17) Cheadle, B. A., Ellis, C. E. and J. van der Kurr, 1974, "Plastic Instability in Irradiated Zr-Sn and Zr-Nb Alloys," *Zirconium in Nuclear Applications*, ASTM STP 551, pp. 370~384.