

지르코늄합금의 DHC 현상

Young Suk Kim, Sang Bok Ahn and Sung Soo Kim
Zirconium Team, Korea Atomic Energy Research Institute, Nuclear
P.O. Box 105, Yusoeng, Daejeon, Korea, 305-353

1. Introduction

70년대 DHC로 다수의 Zr-2.5Nb 압력관이 손상되어 교체된 후부터 [1] 지금까지 DHC 현상에 대한 많은 연구가 수행되었다. Dutton과 Puls는 처음으로, 인장응력에 따라 수소의 고용도가 달라진다는 가정 하에, DHC를 일으키는 구동력은 높은 인장응력을 받는 크랙선단과 인장응력이 매우 낮거나 거의 작용하지 않은 벌크지역 간에 존재하는 응력구배라고 주장하였다 [2,3]. 그러나 지르코늄 기지 내에 고용된 수소의 원자 부피와 수소화물의 수소원자 부피의 차이가 거의 없다는 것이 실험적으로 밝혀짐에 따라 [4], 인장응력에 따른 수소고용도 차이가 DHC를 일으키는 구동력이라는 이들의 주장은 틀린 것이 밝혀졌다. 특히, Puls의 DHC모델 [3,5-6]로서는 크랙선단에 부하된 응력집중세기에 무관하게 일정한 DHC 속도 현상을 설명할 수 없으므로, 이러한 DHC 관련 미 규명 현상을 완벽하게 이해할 수 있는 새로운 DHC 모델이 요구된다.

2. Kim's DHC Model

δ -수소화물의 부피는 지르코늄 기지상에 비하여 17%정도 크므로 [7], 부피가 큰 수소화물이 지르코늄 기지상에 석출했을 때 발생하는 격자변형에너지 증가($\Delta\epsilon_{\text{hydride}}$)가 인장응력에 의한 소성변형 에너지 (ϵ_w) 및 과냉각으로 기지상 수축에 따른 과포화 용해수소를 지르코늄 기지에서 석출시킴에 따른 변형에너지의 감소 ($\Delta\epsilon_{\Delta T}$)와 같을 때 석출한다:

$$\epsilon_{\text{hydride}} + \epsilon_w + \epsilon_{\Delta T} = 0 \quad (1)$$

따라서 수소화물이 크랙선단에서만 우선적으로 석출하기 위해서는 크랙선단에만 작용하는 인장응력과 더불어 식(1)에 기술한 바와 같은 과냉각(supercooling)이 반드시 요구된다. 이처럼 크랙선단에서만 수소화물 석출로 발생하는 크랙선단과 벌크지역 간의 수소농도 최대 차이는 TSSP-TSSD이므로 (그림 1), 이것이 DHC의 최대 구동력이다:

$$\text{최대 구동력 or } \Delta C_m = \text{TSSP} - \text{TSSD} \quad (2)$$

따라서 시편 내에 장입된 수소농도가 피크온도에서의 TSSP보다 크더라도 최대 구동력은 ΔC_m 이므로 DHC속도는 수소농도의 영향을 받지 않겠지만 [11], 수소농도가 피크온도에서의 TSSP보다 낮으면 구동력은 ΔC_m 보다 작아져 DHC속도는 수소농도 의존성을 보일 것이다. 따라서 DHC속

도를 결정하는 중요한 인자는 Shi [5]가 주장한과는 달리 전체 수소농도가 아니라 TSSD 이상으로 고용된 과포화 수소농도 즉 ΔC 이다.

따라서 본 연구의 목적은 지르코늄합금의 DHC를 일으키는 구동력이 응력구배가 아니라 수소농도의 구배이라는 김의 DHC 모델의 타당성을 검증하는 것이다

3. 결과 및 토의

그림 1에 나타난 바와 같은 열적이력 조건 하에서 60 ppm의 CB시편에 인장응력을 가하는 시점을 상온 (그림 1의 A), 피크온도인 380 °C에서 50 시간 유지 후 (그림 1의 B) 및 시험온도인 250 °C (그림 1의 C)로 변화시켰다. 이때, 시편에 가한 응력집중세기는 18 MPa \sqrt{m} 로, 0.5mm 길이 x 0.05 mm 노치반경의 노치를 크랙으로 가정하여 계산하였다. 상온에서부터 인장응력을 가한 경우 그림 2에 나타난 바와 같이 노치선단 뿐만 아니라 벌크지역 전역에 걸쳐 수소화물 재배열이 일어났으며 (그림 2a), 피크온도에서 50 시간 유지 후 시험온도가 냉각하는 순간에 인장응력을 가하였을 때, 비교적 노치선단의 제한지역에서만 배열된 수소화물이 관측되었다 (그림 2b). 그러나 시험온도에서 인장응력을 가하였을 때, 노치선단을 제외하고는 어떠한 수소화물 재배열도 일어나지 않았다 (그림 2c). 여기서 주목할 것은 재배열된 수소화물이 나타나는 것은 외부 인장응력 하에서 인장방향에 수직하게 석출되었다는 것이다. 따라서 상온에서부터 인장응력을 가하면 피크온도에서 50시간 유지 시 18MPa \sqrt{m} 응력집중세기의 하중에서 시편전역에 걸쳐 소성변형이 발생하고 이것이 시편 내에 과포화로 고용된 수소를 수소화물로 석출시켰다는 것을 의미한다. 그러나 피크온도에서 50시간 유지 후 시험온도로 냉각하는 순간 (그림 1b)부터 인장응력을 가하면 상온에서부터 인장응력을 가한 것에 비해 상대적으로 노치선단 인접지역에서만 소성변형이 발생하고 이로 인하여 재배열된 수소화물이 그림 2b에 나타난 바와 같이 노치선단 일부 지역에서만 나타나게 되는 것이다. 이러한

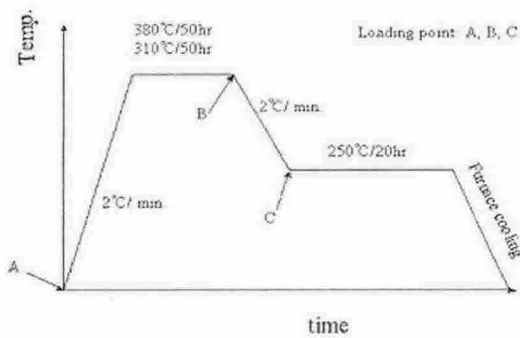


Fig. 1. Thermal cycle treatment to which the Zr-2.5Nb CB specimens were subjected during DHC tests where the loading time with the stress intensity factor of $18.4 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ changed: at RT (A point), at the end of the hold at the peak temperature (B point) and at the test temperature (C point).

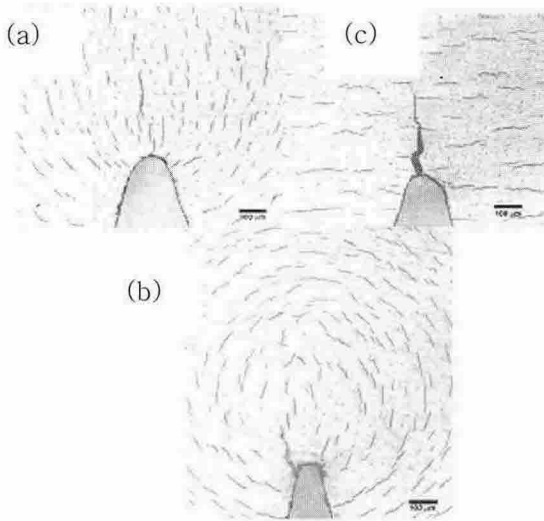


Fig. 2. Reorientation of hydrides in the Zr-2.5Nb tube with when to apply stress intensity factor of $18.4\sqrt{\text{m}}$ MPa on the CB specimens during the thermal cycle treatment shown in Fig. 7: (a) at the beginning of the thermal cycle, (b) at the end of the hold at the peak temperature and (c) at the test temperature of 250°C .

실험결과는 우리가 주장하였던 인장응력에 의한 노치선단의 소성변형이 수소화물의 석출을 촉진시킨다는 것을 검증해주는 결과이다. 아울러 주목할 것은 그림 2a에서 보여주듯이 수소화물이 재배열이 시편 전역에 걸쳐 일어나게 되면, 우리의 DHC 모델에서 주장하였듯이, 시편에 존재하였던 과포화 수소농도를 평형 수소농도 즉 시험온도에 해당하는 TSSD로 감소시켜 노치선단과 벌크지점 간에 어떠한 수소농도 차이를 없애, DHC 크랙을 형성시키지 않았다. 한편, 그림 2b 및 2c에서 보듯이 노치선단 인접지역 또는 노치선단에서만 수소화물 재배열이 일어나면 노치선단을 포함한 인접지역의 수소농도는 TSSD로 감소되지만 여기서 먼 벌크지역은 여전히 과포화

수소농도를 유지하고 있어 DHC 크랙을 생성하였다. 가장 큰 DHC 크랙을 보인 것은 그림 2c에 나타나듯이 시험온도에 도달하였을 때 인장응력을 가한 경우이며, 이것은 시험온도인 250°C 에서 $18\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$ 의 인장응력을 가하였을 때, 노치선단에 형성된 적은 크기의 소성역이 형성되어 수소농도 차이는 그림 2b의 경우와 비교하여 같더라도 수소농도 구배가 크기 때문이다. 이에 반하여 그림 2b에서는 380°C 의 높은 온도에서 $18\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$ 의 하중을 노치선단에 가하면 낮은 항복강도로 노치선단의 매우 넓은 크기의 소성역이 형성되고 이것은 노치선단에서의 수소농도 구배를 작게하여 상대적으로 작은 DHC 크랙을 형성시키는 것이다.

4. 결론

모델실험을 통하여 새롭게 제시한 우리의 DHC 모델의 타당성을 검증하였다: 국부적인 소성변형을 크랙선단에 부가하면, 재배열된 수소화물이 크랙선단에만 석출되어 DHC 크랙이 성장하지만, 소성변형이 시편 전체에 걸쳐 일어나 시편 전역에 걸쳐 재배열된 수소화물을 석출시키면 시편 내에 과포화 수소농도가 모두 평형 수소농도 (TSSD)로 감소되어 DHC 크랙은 성장하지 않았다.

후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 중장기계획사업 일환으로 수행되었습니다.

References

- [1] B.A. Cheadle and E.G. Price, in Proceedings of the IAEA Technical Committee Meeting on the Exchange in Operational Safety Experience of Heavy Water Reactors (Vienna) (1989).
- [2] R. Dutton, K. Nuttal, M.P. Puls and L.A. Simpson, Met. Trans., Vol. 8A, p. 1553, 1997.
- [3] M.P. Puls, L.A. Simpson and R. Dutton, in Fracture Problems and Solutions in the Energy Industry (Ed. Pergamon Press, Oxford) p. 13, 1982.
- [4] S.R. MacEwen, C.E. Coleman, C.E. Ells and J. Faber, Acta Metall., Vol. 33, p. 753, 1985.
- [5] S.Q. Shi and M.P. Puls, J. Nucl. Mater., Vol. 218, p. 30, 1994.
- [6] S. Q. Shi, G.K. Shek and M.P. Puls, J. Nucl. Mater., Vol. 218, p. 189, 1995.
- [7] J.H. Root, W.M. Small, D. Khatamian, O.T. Woo, Acta Mater., Vol. 52, p. 2041, 2003.