

< 논문 >

Zr-2.5Nb 압력관의 수소화물에 의한 고온 크리프의 열화거동

오동준[†] · 마영화^{*} · 윤기봉^{*} · 김영석^{**}

(2006년 3월 31일 접수, 2006년 9월 25일 심사완료)

Degradation of Thermal Creep by Hydrides of Zr-2/5Nb Pressure Tube

Dong Joon Oh, Young Wha Ma, Kee Bong Yoon and Young Suk Kim

Key Words : Hydride(수소화물), Pressure Tube(압력관), Small Punch Creep Test(소형펀치 크리프 시험)
Degradation(열화), Thermal Creep(고온 크리프), Hydrogen Embrittlement(수소취화)

Abstract

The aim of this research was to confirm the existence of the thermal creep degradation by hydrides of Zr-2.5Nb pressure tube materials. Small punch creep tests were performed to obtain the relationship between a creep displacement and a loading period at 300°C. A creep stress and a creep strain rate were also converted from the previous results. The creep material constants and the creep stress exponents at the different hydride contents were compared. Finally the hydrides of the axial and circumferential section were observed using OM, SEM and TEM. The following conclusions were made: 1) The degradation of the thermal creep by hydrides was existed and it strongly depended on the hydride contents. 2) As the hydride contents were increased, the creep stress exponents (m) were also increased. 3) Even though the hydride was not precipitated in 50 ppm materials at 300°C, the degradation of thermal creep was found. Therefore, it was believed that this phenomenon strongly related to the hydride precipitation at room temperature.

1. 서 론

국내의 월성 중수로 원자로가 상업발전을 시작한지 벌써 25년이 지났지만, 원자로 기계 부품들의 재료적 열화에 의하여 원자로의 안전성에 대한 우려의 목소리가 높아지고 있다. 중수로 원자로의 핵심 부품인 압력관 재료는 현재 Zr-2.5Nb로 핵연료 및 냉각재를 지지하는 역할 등으로 인해 중수로 안전성 평가에 가장 중요한 부품중의 하나이다. 그러나 이런 압력관은 노내에서 10년 이상 가동되면 압력관은 사용 중 고온 고압의 냉각재와 화학반응을 통해서 수소를 흡수하게 되며, 이러한

수소흡수는 수소화물(hydride)의 석출을 유발시킨다. 이러한 수소화물 석출은 다시 압력관 재료의 기계적 물성을 감소시킨다.^(1,2) 또한, 압력관과 핵연료 그리고 냉각수의 하중에 의한 처짐과 열(heat)과 조사(irradiation)에 의한 처짐인 새깅(sagging)과 수소지체균열(delayed hydride cracking, DHC)에 의해 중수 누설사고 및 압력관 파열사고 등의 문제점을 유발하고 있다.

새깅 현상은 중수로 압력관의 원자로의 특성상 수평으로 위치하고 있는 칼란드리아관과 압력관 사이에 있는 가터 스프링(garter spring)이 설계위치를 벗어나게 되어, 높은 하중의 핵연료에 의해 압력관과 칼란드리아관이 접촉하고 중력방향으로 늘어나게 되는 현상이다.⁽³⁾ 따라서, 중수로 원자로 안전성에 치명적인 이런 새깅 현상의 방지를 위해 압력관 재료가 충족시켜야 하는 변수로서 Zr-2.5Nb 압력관의 파괴인성이나 크리프 강도 등을 이야기할 수 있다.⁽⁴⁾

Zr-2.5Nb 압력관 재료에서 수소화물로 인한 기계

[†] 책임저자, 회원, 안동대학교 기계교육과
E-mail : djoh@andong.ac.kr
TEL : (054)820-6016 FAX : (054)823-1766

^{*} 회원, 중앙대학교 기계공학부

^{**} 회원, 한국원자력연구소

적물성의 열화에 대한 특성을 규명하기 위해서 수소화물의 함유량이 다른 압력관 재료의 온도에 따른 파괴인성의 열화특성이 연구되기도 하였다.⁽¹⁾ 또한 재료의 수소취화(hydrogen embrittlement)에 의한 CCL(critical crack length)과 LBB(leak before break)시간에 대한 영향을 규명하였고, 수소함유량과 LBB 시간과의 예측식이 제안되었다.⁽²⁾ 그러나 변형률 속도가 절대적으로 매우 느린 정적변형 상태인 고온 크리프의 경우에 수소화물에 의한 열화특성이 존재하는지 또는 그 특성이 어떠한지에 대한 연구는 아직 이루어지지 않고 있는 실정이다.⁽³⁾ 따라서 수소화물을 포함하고 있는 Zr-2.5Nb 압력관의 고온 크리프의 열화거동에 대한 연구의 필요성이 점차 중요시 되고 있다.

한편, 이축 응력 상태인 직경 105 mm, 두께 4.2 mm 인 압력관 재료의 크리프 강도를 직접 평가하는 방법으로는 표준 크리프 시험의 결과와 동일한 결과를 얻을 수 있는 소형 디스크 크리프 시험법(miniature disk creep test)이 최적으로 여겨진다. 이 시험법은 1990 년도 초반에 제안된 것으로,^(6,7) 소형펀치 크리프 시험법(small punch creep test) 또는 SP 크리프 시험이라고 한다.

본 연구의 목적은 인위적으로 수소화물을 석출하게 한 Zr-2.5Nb 압력관의 시험편을 이용하여 중수로 주가동 온도인 300°C 에서 작용하중이 상이한 소형 펀치 크리프 시험을 행하여, 수소화물 함유량에 의한 크리프 강도의 열화 현상의 존재여부와 그 영향을 규명하고자 한다. 그러기 위해서 기존의 SP 크리프 시험분석 방법에 의한 크리프 변위와 시간과의 관계, 크리프 변형률과 크리프 응력간의 관계 등을 살펴본 후에 수소화물의 석출형상을 미시적으로 관찰하고자 한다.

2. 재료 및 시험

2.1 재료 및 시험편

본 연구에 사용된 재료는 캔두(CANDU) 4 차 용해 냉간가공(cold-worked)된 Zr-2.5Nb 압력관이다. 인위적인 농도의 수소화물을 석출 시키기 위하여 KAERI 의 표준 수소 장입 절차서⁽⁸⁾에 의해 고온 음극 수소 장입 방법(cathodic hydrogen charging method)으로 수소를 50, 100 ppm 이 되게끔 장입하였다. 시험표면에 형성된 수소화물 층으로부터 수소를 내부로 확산시키기 위해 관상의 진공로를 사용하여 균질화 처리를 수행하였다. 균질화 열처리 후 장입된 수소량을 분석하여 수소 함유량을 확인하였다.

Fig. 1 은 광학현미경으로 관찰한 Zr-2.5Nb 압력관의 미세조직과 재료에 장입된 조대한 수소화물(검게 표시된 부분)을 함께 보여주고 있다. 수소화물은 Zr-2.5Nb 합금의 표준 미세조직과 형태상으로 유사한 조직을 나타낸다. 광학현미경으로 관

찰되어진 조대한 수소화물들은 축에 수직면에서 길게 늘어진 α -Zr 에 평행한 방향으로 정렬되어 있다는 사실로부터, 초기 압력관의 미세조직이 수소화물의 석출과 분포에 밀접한 관련이 있다는 것을 추측할 수 있다. 원주 방향면에서도 수소화물이 원주방향을 따라 분포한 것을 확인할 수 있다.

SP 크리프 시험법은 작은 디스크형 시편(보통 10×10×0.5 mm)이 사용되므로 설비 부재에서 시편의 채취가 매우 용이하고 또한 직접적인 크리프 강도의 측정이 가능하다. Fig. 2 는 SP 크리프 시험편의 형상을 보여주고 있다. 초기에 압력관에 수소를 장입하기 위하여 Fig. 2(a)에 보인 바와 같이 두께 4.2 mm 인 시료를 채취한 후 와이어 커팅에 의해 10×10×0.6 mm 로 절단하여 압력관의 두께 방향으로 3 개의 시험편을 얻었다. 화학적 수소 장입과 와이어 커팅에 의해서 수소화물의 분포가 불균일해진 영역과 열영향부 등을 제거하기 위하여 연마지를 사용하여 시험편 양쪽 표면을 두께가 0.5 mm 가 되게끔 연마하였다. 시험편의 채취방향을 표시하기 위하여 오른쪽 두 모서리에 대하여 1 mm 모따기를 행하였다. SP 크리프 시험에 사용한 최종 시험편 형상 및 치수를 Fig. 2(b)에 나타내었다.

2.2 시험 장치 및 방법

2.2.1 시험장치

SP 크리프 시험은 직접하중식 SP 크리프 시험기를 사용하였다. SP 크리프 시험장치는 최대하중용량이 3000 N 이며 크리프 시험부 내의 지그와 볼은 인코넬(inconel) 재질을 사용하여 제작하였다. 지그는 시험편을 지지하는 상부 다이 및 하부 다이, 그리고 시험편에 하중을 부가하기 위한 펀치와 볼로 구성되어 있다(Fig. 3). 시험편의 크기는 10×10×0.5 mm, 하부 다이의 구멍 직경은 4 mm, 다이 모서리 반경은 0.2 mm 이다.

펀치와 볼을 통해 시험편에 일정하중을 가하면 시험편 중앙에서의 처짐을 1 μ m 의 분해능을 가진 LVDT(linear variable displacement transducer)로



(a) Axial Section (b) Circumferential Section

Fig. 1 Typical microstructure of Zr-2.5Nb pressure tube

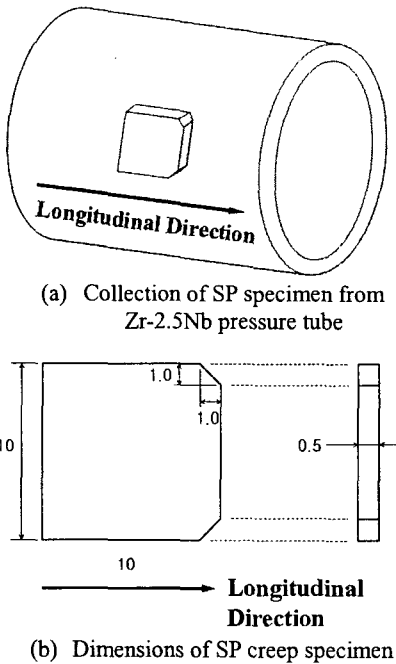


Fig. 2 Small punch creep specimen

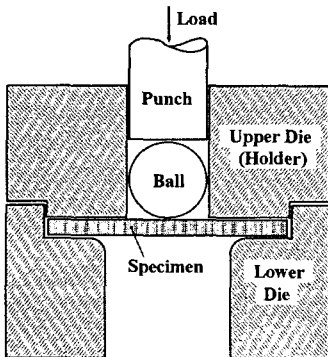


Fig. 3 Schematic diagram of small punch testing jig

측정하여 일정한 시간 주기마다 컴퓨터에 측정값을 저장하였다. 시험편 온도의 오차범위는 $\pm 1^\circ\text{C}$ 이며 고온에서 발생하는 시험편의 표면산화에 따른 두께감소 등의 오차를 제거하기 위해 알곤 불활성 가스 분위기에서 시험을 실시하였다.

2.2.2 시험 방법

Zr-2.5Nb 압력관 재료에 수소를 전혀 장입하지 않은 재료인 AR(As-received)재와, 수소를 인위적으로 장입시켜 상온에서 50 ppm, 100 ppm의 수소화물이 석출되는 2 종류의 시험편 재료를 중수로의 사용온도인 300°C 에서 SP 크리프 시험을 하여 시간의 경과에 따른 변위를 측정하였다. 시험하중

은 $P \approx 0.5\sigma$ 임을 고려하여 시험 온도인 300°C 에서의 AR 재의 길이방향 항복강도($\sigma_{ys}=640\text{ MPa}$)에 해당하는 하중($P=1280\text{ N}$)보다 낮은 정하중을 부가하였다.⁽⁹⁾ AR 재의 경우에는 850 N, 900 N, 950 N, 1000 N의 4가지 종류, 50 ppm 재료는 800 N, 850 N, 900 N으로 3 종류 그리고 100 ppm의 경우에는 750 N, 800 N, 850 N의 하중으로 실험하였다. 위 3가지 재료에서 공통적으로 부가된 하중은 850 N이었다. 시험은 정상상태 크리프 거동에 주안점을 두기 때문에 선형구간이 잘 나타나는 500 시간 이전에 시험을 중단시켰다.

3. SP 크리프 시험 결과

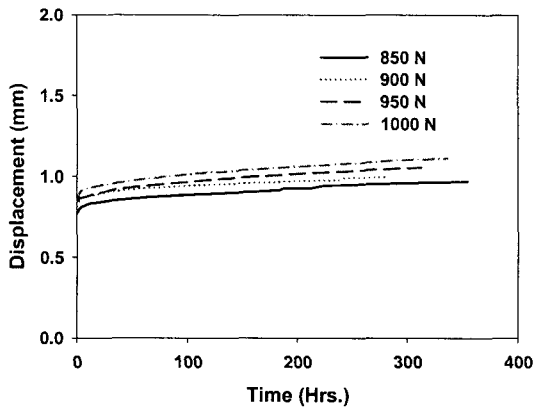
Fig. 4(a)는 Zr-2.5Nb의 AR 재료에 대하여 850 N, 900 N, 950 N, 및 1000 N 등 4가지 하중 조건에 대해 부하시간에 따른 SP 펀치의 변위선도를 나타내었다. 부하시간이 경과함에 따라 초기 비선형 구간, 선형구간, 파단 시의 비선형 구간의 세단계 크리프 거동이 나타나는 것이 정상이나, 세번째 단계인 비선형 구간 전에 시험을 중단시킴에 따라 본 연구의 관심사인 선형구간까지 만이 나타났다. 부하시간이 경과함에 따라 2차 정상 크리프 거동과 유사한 변위 속도가 일정한 선형구간이 나타났다. 하중이 증가함에 따라 이러한 선형구간의 크리프 변위 속도도 증가하였다.

SP 크리프 변위 선도에서 선형구간의 크리프 변위 속도는 일반적인 일축 크리프 시험에서와 마찬가지로 멍급수법칙(power law)을 따른다고 보고되고 있다.⁽⁷⁾ Fig. 4(b)와 (c)는 각각 상온에서 수소화물이 50 ppm과 100 ppm 석출되는 재료를 이용하여 300°C 에서의 작용하중과 크리프 변위속도와 관계를 보여주고 있다. Fig. 4(b)와 (c)에서 선형구간이 지난 후에 최종 파단 시까지 크리프 속도가 현저하게 증가하는 제 3기와 비슷한 현상을 보여주고 있으나 그 구간은 매우 짧았다. 따라서 본 연구 재료는 1차 및 2차 크리프 거동 재료임을 알 수 있다.

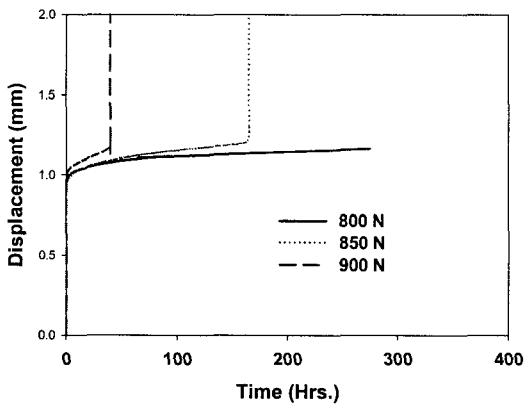
SP 크리프 시험의 결과는 이축 응력의 분석이 난해한 이유로 일반적인 일축 크리프 시험에서 구할 수 있는 크리프 응력과 변형률 사이의 관계를 바로 얻을 수가 없다. 따라서 SP 크리프 시험 결과인 변위속도와 작용 하중간의 관계를 나타내는 식(1)을 구한 뒤, 이것을 이용하여 실험적인 환산식을 사용하여 일반적인 크리프 응력과 변형률 관계로 변환할 수 있다.⁽⁷⁾

SP 시험의 선형구간에서 어떤 작용하중 하에서의 단위시간 당 변위의 변화량으로 표현되는 변위 속도($\dot{\delta}$)는 작용하중(P)에 의존적이며, 관계는 (1)식으로 표현할 수 있다.

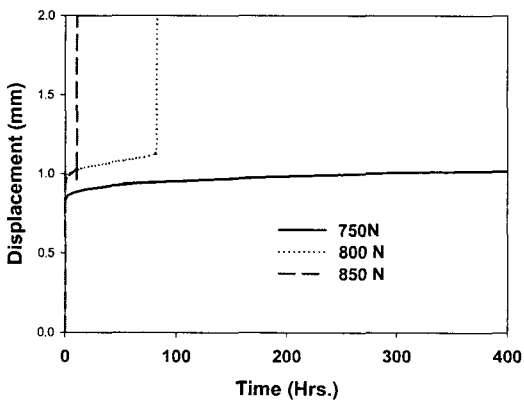
$$\dot{\delta} = \bar{A} \cdot P^{\bar{m}} \quad (1)$$



(a) AR



(b) 50 ppm



(c) 100 ppm

Fig. 4 Punch displacement vs. time curves at different hydrogen concentration

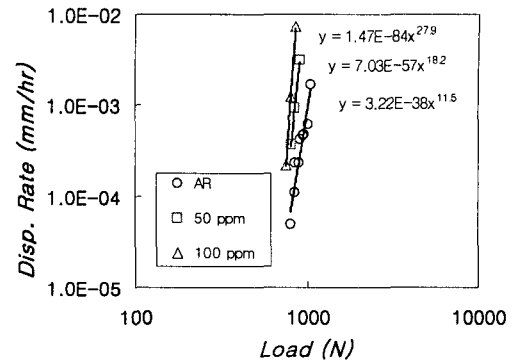


Fig. 5 Displacement rate (mm/hr) and applied load at linear region of SP displacement curves

Table 1 Experimentally measured P and $\dot{\delta}$ values

| P (N) | $\dot{\delta}$ | | |
|---------|----------------|-----------|------------|
| | AR | 50 ppm | 100 ppm |
| 750 | — | — | 2.207E-04 |
| 800 | — | 3.730E-04 | 1.225 E-03 |
| 850 | 3.629E-04 | 9.414E-04 | 7.248E-03 |
| 900 | 4.179E-04 | 3.175E-03 | — |
| 950 | 4.749E-04 | — | — |
| 1000 | 1.120E-03 | — | — |

Table 2 Creep constants determined from P and $\dot{\delta}$ values

| | AR | 50 ppm | 100 ppm |
|------------------------------------|----------|----------|----------|
| \bar{A} ($N^{-\bar{m}}h^{-1}$) | 3.22E-38 | 7.03E-57 | 1.47E-84 |
| \bar{m} | 11.482 | 18.153 | 27.882 |

여기에서 \bar{A} 는 선형구간의 SP 크리프 상수, \bar{m} 은 SP 크리프 하중 지수이다. Table 1에는 이때의 작용하중(P)과 변위속도($\dot{\delta}$)와의 관계를 표로 나타내었다. 같은 하중조건에서 수소화물의 함유량이 증가함에 따라 변위속도가 증가함을 알 수 있다.

선형구간에서의 변위속도와 작용하중 간의 관계를 다시 Log-Log 도표 (Fig. 5)에 표시함으로써 각각의 재료에 따른 선형회귀선을 얻을 수가 있었다. AR 재의 경우에는 이전 연구에서 얻은 결과를 포함시켜서 더욱 정확한 결과를 얻도록 하였다.⁽⁹⁾ Fig. 5에서 선형회귀선으로 표시되는 선형구간의 SP 크리프 상수는 Table 2와 같이 \bar{A} 는 각

각 $3.22\text{E-}38$ (AR), $7.03\text{E-}57$ (50 ppm), $1.47\text{E-}84$ (100 ppm) $N^{-\bar{m}} h^{-1}$ 으로 수소화물의 함유량이 증가함에 따라 크기가 줄어들었다. 반면에, 하중지수 \bar{m} 은 11.482, 18.153, 27.882 로 수소화물의 증가에 따라 점차로 커졌다. 이런 SP 크리프 상수(\bar{A})의 감소와 하중지수(\bar{m})의 증가는 압력관 재료가 수소화물의 증가에 따라 크리프 강도의 열화를 의미한다.

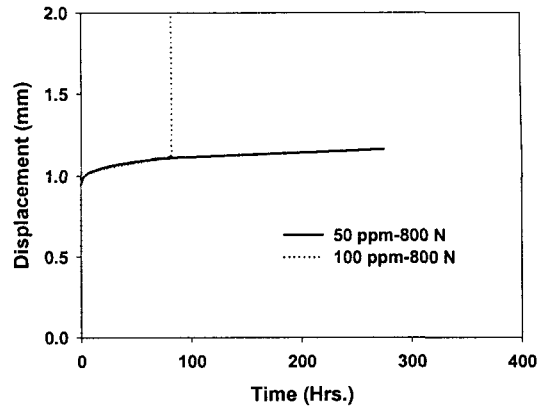
4. 크리프 응력과 변형률 속도의 비교

앞장에서는 300°C 의 온도에서 SP 크리프 실험을 수행하여 수소화물의 함유량이 각각 다른 경우의 변위속도와 부하 시간과의 관계에 의한 2 차 크리프 상수를 비교 분석한 결과를 보여주었다. Fig. 6(a), (b), (c)는 각각 하중이 800 N, 850 N, 900 N 일 경우의 변위 속도와 시간과의 관계를 비교하였다.

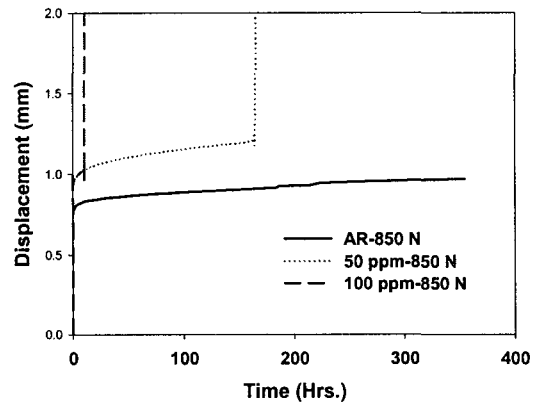
Fig. 6(a)의 경우인 800 N 의 하중이 작용할 때 50 ppm 의 수소화물 시편의 경우에는 2 차 정상 크리프의 거동이 약 300 시간까지 계속 되었으나, 100 ppm 의 수소화물 시편의 경우에는 70 시간 이 지난 후에 급속히 변위속도가 증가하여 파단 되는 양상을 보여주고 있다. Fig. 6(b)에서는 850 N 의 하중이 작용할 경우에 3 가지 수소화물의 함유량이 다른 경우의 열화거동을 더욱 잘 보여주고 있다. AR 보다는 50 ppm 이, 50 ppm 보다는 100 ppm 이 더욱 크리프 강도의 열화가 심화되는 것을 확인할 수 있다. Fig. 6(c)는 이런 열화 현상을 900 N 의 하중이 작용할 때의 크리프 열화거동을 재확인해 주고 있다. 따라서 Fig. 6 으로부터 같은 온도와 같은 하중이 작용하는 경우라도 수소화물의 함유량이 크리프의 열화 정도를 결정하는데 중요한 인자가 된다는 사실을 알 수 있다.

SP 크리프 시험으로부터 구할 수 있는 변위속도는 일축 크리프 시험으로부터 구할 수 있는 크리프 변형률 속도와 매우 유사한 경향을 보인다. 이런 변위속도가 응력 및 온도에 의존성이라는 것은 선행 연구로부터 이미 알고 있는 사실이다.⁽⁵⁾

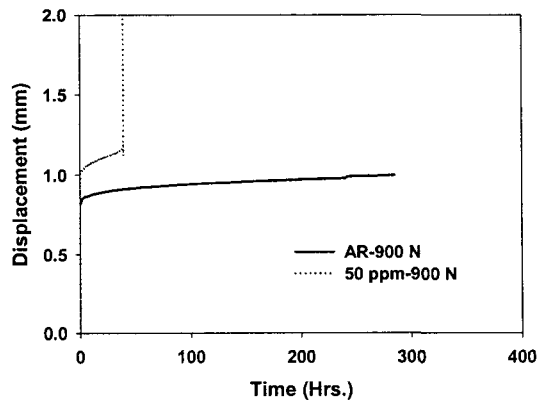
또한, 이전 연구에서는 선형구간에서 편치하중과 네킹부의 유효응력(σ)은 선형적인 관계가 성립하며 변위 속도가 증가함에 따라 네킹부의 등가 크리프 변형률 속도($\dot{\epsilon}$)도 선형적으로 증가한다는 것을 실험적 연구와 유한요소해석을 통해 밝혔다. 이러한 선형적인 관계에서 Zr-2.5Nb 압력관 재료의 경우에 다음의 변환식이 제안되었으며, 본 연구에서도 시험조건과 시험편 그리고 시험재료가 동일할 경우이므로 제안식(2)의 적용이 가능하였다.⁽⁹⁾



(a) 800 N



(b) 850 N



(c) 900 N

Fig. 6 Comparison of punch displacement vs. time curves at different applied load level

$$\sigma = 0.50P - 4.64 \quad (2)$$

$$\dot{\epsilon} = 0.75\dot{\delta} - 5.70 \times 10^{-6}$$

위의 식으로부터 오차 범위 내에서 다음과 같은 간단한 SP 크리프 변환식을 얻을 수 있다.

$$P = 2\sigma \quad \dot{\delta} = 1.34\dot{\epsilon} \quad (3)$$

식 (3)은 SP 크리프 시험의 유한요소해석에서 구한 SP 크리프 상수 평가 변환식에 시험편 형상 관련 상수들 (볼직경 2.4 mm, 시험편 두께 0.5 mm)을 적용하는 경우에도 잘 일치된다는 것이 이미 확인된 바 있다.⁽⁹⁾ 그러나, 유한 요소해석을 이용하여 구한 SP 크리프 변환식은 등방성 재료라는 가정 하에 구한 변환식이므로 압력관 재료로 사용되는 Zr-2.5Nb 압력관 재료와 같은 이방성 재료에는 적용되지 않는 것을 확인할 수 있었다.⁽¹⁰⁾

하지만 위의 변환식에 의한 절대적인 물성치를 구하는 것은 불가능하나, 크리프 상수나 지수를 비교함으로써 수소화물에 의한 크리프의 상대적인 열화거동을 비교 하는 것은 가능하다. Table 3 은 식 (3)에 의해 변위속도를 변형률 속도로 그리고 작용하중을 작용응력으로 환산한 표이다. 여기서 알 수 있듯이 수소화물의 함유량과 응력이 증가할수록 변형률 속도는 증가한다. 또한 응력과 변형률 속도와와의 관계는 일반적인 크리프 관계식인 식 (4)로 표현할 수 있다.

$$\dot{\epsilon} = A \cdot \sigma^m \quad (4)$$

Fig. 7 은 식(4)에 의해서 환산한 응력과 변형률 속도와의 관계를 Log-Log 도표에 표시함으로써 각각의 재료에 따른 선형회귀선을 얻을 수 있다. Fig. 7 에서 선형 회귀선으로 표시되는 선형 구간에서의 SP 크리프 상수는 Table 4 와 같이 A 는 각각 $6.87E-35$ (AR), $1.53E-51$ (50 ppm), $2.72E-76$ (100 ppm) $MPa^{-m}h^{-1}$ 으로 수소화물의 함유량이 증가함에 따라 크기가 감소하였다. 반면에, 응력지수 m 은 11.482, 18.153, 27.882 로 Fig. 5 에서의 하중지수와 거의 동일한 값을 보였으며, 역시 수소화물의 증가에 따라 점차로 커졌다. 따라서 수소화물이 증가할수록 압력관 재료의 크리프 강도의 열화의 정도가 증가함을 확인할 수 있었다.

5. 석출 수소화물의 관찰

Zr-2.5Nb 에서의 수소화물의 석출은 제조 시 열처리에 민감하여 미세구조에 따라 석출양상이 다를 수 있다. Fig. 8(a)는 캔두 압력관에서 발견되는 원주방향(tangential) 수소화물 및 반경방향(radial) 수소화물 등을 그림으로 나타낸 것으로, 이중 반경방향 수소화물은 가동 중 가해지는 후프 응력에 의해 균열성장의 통로를 제공한다. 다행스럽게 캔두 압력관 제조에서는 냉간 인발(cold drawing)에

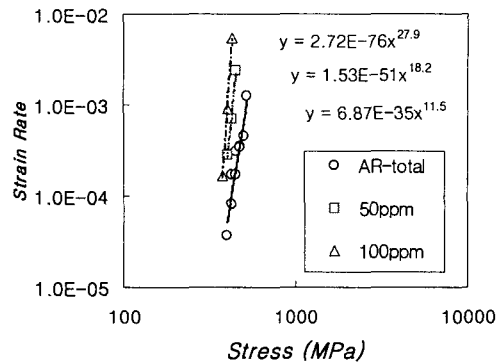


Fig. 7 Strain rate and applied stress at linear region of SP displacement curves

Table 3 Converted σ and $\dot{\epsilon}$ values from SP creep tests

| $\sigma(MPa)$ | $\dot{\epsilon}$ | | |
|---------------|------------------|-----------|-----------|
| | AR | 50 ppm | 100 ppm |
| 375 | — | — | 1.647E-04 |
| 400 | — | 2.784E-04 | 9.143E-04 |
| 425 | 1.711E-04 | 7.025E-04 | 5.409E-03 |
| 450 | 3.119E-04 | 2.370E-03 | — |
| 475 | 3.544E-04 | — | — |
| 500 | 8.358E-04 | — | — |

Table 4 Creep constants determined from converted σ and $\dot{\epsilon}$ value obtained by SP creep tests

| | AR | 50 ppm | 100 ppm |
|----------------------|----------|----------|----------|
| $A (MPa^{-m}h^{-1})$ | 6.87E-35 | 1.53E-51 | 2.72E-76 |
| m | 11.482 | 18.153 | 27.882 |

의해 대부분 원주방향의 수소화물이 석출된다.

Fig. 8(b)와 같이 수소화물은 주로 판상(platelets)으로 석출된다. 좌측 사진은 압력관의 길이방향에 수직인 면에서 관찰한 사진이며, 우측 사진은 원주방향에 수직인 면을 금속현미경으로 촬영한 것이다.

Fig. 8(c)는 SEM 으로 30,000 배 확대한 수소화물이다. 역시 촬영면은 Fig. 8(b)와 같은 방향이다. Fig. 8(d)는 TEM 으로 관찰한 수소화물로서, 미세한 판상의 내부구조 (finer platelet structure)를 가지고 있다. 수소화물은 입계면에(intergranular) 존재(좌측 사진) 하거나 입계 내부(transgranular)를 관통하여 존재(우측 사진) 한다. 일반적으로 압력관에서 주로 관찰되는 수소화물은 안정상인 δ 수소

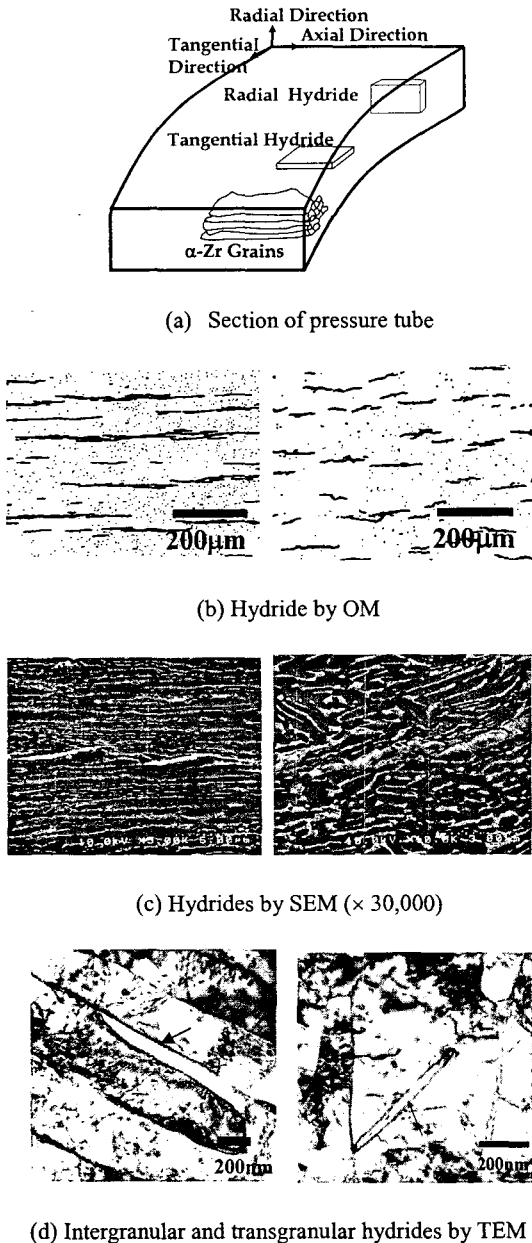


Fig. 8 Hydrides at the axial section (left-side) and the circumferential section (right-side)

화물이다. 지르코늄 내부에 고용되어 있는 수소가 고용온도로부터의 냉각 속도에 따라 δ , γ 수소화물이 석출되며, 이 수소화물들의 상대적인 석출량은 수소량 및 냉각속도의 함수이다. 일반적으로 수소량이 적을수록, 냉각속도가 빠를수록 γ 수소화물의 석출이 촉진된다. γ 수소화물은 수소량이 적은 (100 ppm) Zr 합금을 급냉시킬 때 마르텐사이트

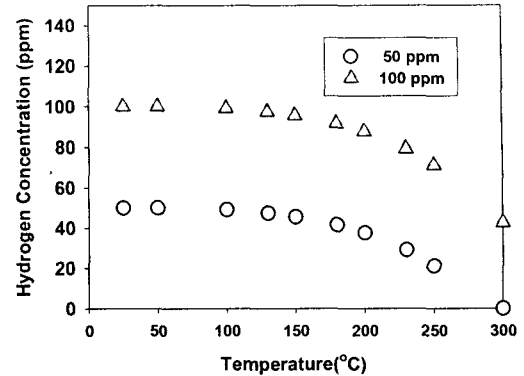


Fig. 9 Participated hydride at different temperatures

에 의해 생성되는 준안정한 상으로 지르코늄 기지에 침상형태로 석출되며, δ 수소화물은 서냉 시 생성되는 FCC (face centered cubic) 구조로서 크기가 큰 판상형태로 석출된다.⁽¹¹⁾

또한, 지르코늄 기지로부터 수소화물이 석출될 때는 체적변화가 발생한다. δ 수소화물의 경우 체적변화는 +17.2%이고, γ 수소화물의 체적변화는 +12.3%이다. 이와 같이 수소화물의 형성에 따른 체적팽창으로 석출 중 인장력이 작용하게 되면 이 인장력은 일을 하게 되어 석출과정이 활성화된다.⁽¹²⁾

Fig. 9 는 온도 변화에 따른 수소화물의 석출량을 나타내고 있다. 상온에서 50 ppm 이 장입된 시험편이 300°C 가 되면 재료에 있던 석출 수소화물은 모두 용해가 되어 석출 수소화물은 없어진다. 그러나 100 ppm 의 경우에는 300°C 가 될지라도 42.5 ppm 의 석출 수소화물이 남게 된다. Zr-2.5Nb 압력관 재료의 크리프 열화가 단지 석출 수소화물의 함유량에 의한 것이라면 50 ppm 인 경우에 석출 수소화물이 없게 되기 때문에 열화거동이 없어져야 할 것이다. 하지만 수소화물이 석출되지 않더라도 상온에서 석출될 때에 생겼던 수소화물의 위치에서의 미소 기공(micro-void)이나 웨지(wedge) 균열 등이 고온에서의 계면(grain boundary)의 미끄럼(sliding) 이나, 확산(diffusion)을 야기시킴으로써 고온 크리프의 열화거동을 촉진시키는 원인을 제공하는 것으로 여겨진다. 실험온도가 지르코늄의 용융온도의 1/3 인 260°C 이상인 300°C 이므로 지르코늄 기지에서의 크리프 파괴 기구는 초기에 미소 기공이 발생하다가 입내 또는 입계파괴에 의해 이루어진다.⁽¹³⁾ 이것은 Fig. 8(d)로부터 수소화물의 입내 및 입계 분포를 관찰함으로써 확인할 수 있다.

6. 결 론

Zr-2.5Nb 중수로 압력관 재료(AR)와 수소를 장입하여 수소화물 (50 ppm, 100 ppm)의 함유량을 달리한 2 종류의 시험편 들을 이용하여 300 °C 에서 SP 크리프 시험을 행하여 크리프 변위와 부하 시간과의 관계를 얻고, 수소화물에 대한 미시적인 관찰을 행하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) SP 크리프 시험으로부터 구한 크리프 변위와 부하 시간과의 관계로부터 수소화물에 의한 압력관 재료의 고온 크리프 열화를 직접 확인할 수가 있었으며, 동일 온도이면서 같은 하중 조건 하에서 수소화물의 함유량이 증가할수록 열화의 정도는 더욱 심해졌다.

(2) 등방성 재료에 사용되는 크리프 응력과 변형률 속도와의 관계로부터 구한 응력지수(m)는 비등방성 재료인 Zr-2.5Nb 압력관의 크리프 열화 특성을 비교하는데 사용가능하며, 이때의 응력 지수(m)는 수소화물의 함유량이 증가할수록 점차 증가하였다.

(3) 수소화물의 석출은 입계의 내면과 입계를 따라 이루어지며, 이것이 크리프 파괴기구와 밀접한 연관이 있는 것으로 여겨진다. 또한, 300 °C 에서 수소화물이 석출되지 않는 50 ppm 재료의 경우에도 열화 특성이 나타난 것은 상온에서 석출되었던 수소화물의 위치가 크리프 파괴균열의 원인을 제공했기 때문이다.

후 기

이 논문은 2004 년도 안동대학교 특별학술연구 지원사업에 의하여 연구되었습니다. 재료와 시험 장비 및 기타 도움을 주신 한국원자력연구소 Zr 팀과 임경수 선생님께 감사 드립니다.

참고문헌

- (1) Oh, D. J., Boo, M. H. and Kim, Y. S., 2003, "Hydrogen Embrittlement of Zr-2.5Nb Pressure Tube at Room Temperature by Precipitated Hydride," *Transaction of KSME (A)*, Vol. 27, No. 3, pp. 455~463.
- (2) Oh, D. J., and Kim, Y. S., 2004, "Effect of Hydride of the PHWR Pressure Tube on the LBB Evaluation," *Transaction of KSME (A)*, Vol. 28, No. 5, pp. 610~616.
- (3) Moan, G. D., Coleman, C. E., Price, E. G., Rodgers, D. K. and Sagat, S., 1990, "Leak-Before-Break in the Pressure Tubes of CANDU Reactors," *International Journal of Pressure Vessel. & Piping*, Vol. 43, pp. 1~21.
- (4) AECL, 1996, "Fitness for Service Guidelines for Zirconium Alloy Pressure Tubes in Operating CANDU Reactor," *AECL Report COG-91-66*.
- (5) Shewfelt, R. S. W., Lyall, L. W. and Godin, D. P., 1984, "A High Temperature Creep Model for Zr-2.5 wt% Nb Pressure Tubes," *Journal of Nuclear Materials*, Vol. 125, pp. 228~235.
- (6) Parker, J. D. and James, J. D., 1993, "Disc-Bend Creep Deformation Behavior of $\frac{1}{2}\text{Cr}$ $\frac{1}{2}\text{Mo}$ $\frac{1}{4}\text{V}$ Low Alloy Steel," *Fifth International Conference on Creep and Fracture of Engineering Material and Structures*, pp. 651~660.
- (7) Parker, J. D. and James, J. D., 1994, "Creep Behavior of Miniature Disc Specimens of Low Alloy Steel," *ASME PVP Vol. 279, Developments in a Progressing Technology*, pp. 167~172.
- (8) KAERI, 1999, "Characterization Testing Procedures of Zr-2.5Nb Pressure Tubes," *KAERI/TR-1329/99*.
- (9) Sim, Sang Hoon, 2003, "Assessment of High Temperature Creep Constants of Isotropic Materials Using Small Punch Creep Testing," *PhD Thesis*, Chung Ang University.
- (10) Park, T. G., Ma, Y. W., Jeong, I. S. and Yoon, K. B., 2003, "A Study on Applicability of SP Creep Testing for Measurement of Creep Properties of Zr-2.5Nb Alloy," *Transaction of KSME (A)*, Vol. 27, No. 1, pp. 94~101.
- (11) KAERI, 1998, "Characterization of Zr-2.5Nb Pressure Tube," *KAERI/TR-1137/98*.
- (12) Urbanic, V. E. and Griffiths, M., 2000, "Micro-Structural Aspects of Corrosion and Hydrogen Ingress in Zr-2.5Nb," *Zirconium in the Nuclear Industry*, ASTM STP 1354, pp. 614~657.
- (13) Betten, J., 2005, *Creep Mechanics*, 2nd Ed., Springer, Berlin.

(1) Oh, D. J., Boo, M. H. and Kim, Y. S., 2003,