2003 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

Zr-2.5%Nb 합금 압력관 재료에서 균열 진전 방향에 따른 수소지연파괴 및 파괴 인성 거동

DHC and fracture toughness behavior along the cracking direction in Zr-2.5%Nb pressure tube materials

김성수*, 임경수, 정용무, 김영석
한국원자력연구소
대전 유성구 덕진동 150

요약

Zr-2.5%Nb 합금 중수로 압력관에서 길이 및 반경 방향으로 DHC 거동 이방성의 원인을 조사하기 위하여 균열의 진전 방향이 길이(T-L) 및 반경 (T-R)인 두 종류의 three point bend 시험편을 제작하고 60ppm 정도의 수소를 투입한 후 균열 진전 방향에 따른 DHC 및 파괴 인성 시험을 수행하였다. DHC 시험 결과, 길이 방향 시험편(T-L)에 대한 250°C에서의 DHC 속도는 기존에 보고된 바와 같이 반경 방향에 비하여 약 2배 정도 크게 나타났다. 이것은 T-L 및 T-R 시험편의 균열면이 동일한 면임에도 불구하고 나타나는 현상으로 이 차이는 DHC 과정에서 수소의 석출 특성에 기인한 것이라기보다는 파괴 과정의 차이에 기인한 것이라는 점을 암시하는 것이다. 상온 및 250°C에서 실시된 three point bend 시험 결과, 온도에 관계없이 T-R 시험편의 dj/da는 T-L 시험편에 비하여 약 40% 정도 높은 값을 나타내었다. 따라서 균열의 진전 방향에 따른 DHC 이방성은 DHC 기구에 의한 파괴 과정에서와 마찬가지로 소성 변형 기구의 차이에 의한 것으로 결정립의 분포를 포괄적으로 나타내는 집합조직의 차이에 의한 것이다.

Abstract

To investigate the reason for the anisotropy of delayed hydride cracking (DHC) behavior in the longitudinal and radial directions in Zr-2.5%Nb pressure tube materials, two series of specimens of which cracking directions are the radial (T-R) and the longitudinal (T-L) one were machined and were hydrated with 60 ppm, and then DHC and fracture tests were carried out. The DHC results show that DHC velocity in the T-L specimens is two times faster than that of T-R specimens at 250°C, as reported earlier. Even though cracking direction is identical except cracking direction, the fact showing the anisotropy of DHC behavior suggests that DHC process is not controlled only by precipitation of hydride but may be controlled by the directional fracture behavior. The fracture test results shows that the dJ/da of T-R specimens is about 40% higher than that of T-L at RT and 250°C. This seems to be due to the difference in deformation mechanisms during fracture processes. Thus, the reason for the anisotropy of DHC seems be due to the difference in deformation mechanisms operated during cracking process along the cracking direction, namely, due to the difference in texture.

1.서론

Zr-2.5%Nb 합금의 중수로 압력관 재료에서 DHC에 의한 균열의 전파가 CT 시험편의 경우와 같이 압력관의 길이 방향인 지 아니면 CB 시험편의 경우와 같이 압력관의 반경 방향인지에 따라 DHC 균열 전파 거동이 다르다고 보고되어 있다 [1, 2]. 이는 구체적으로 길이 방향으로의 DHCV는 반경 방향으로의 DHCV에 비하여 약 2배 정도 크다는 이는 Fig. 1에 보인 바와 같다. DHC 기구에 의한 균열의 진전 여부를 결정하는 임계 응력 확대 계수(K_{IH})는 집합조직에 의존하는 것으로 알려져 있지만 동일한 균열면에서 발생하는 DHC 현상이고 동일한 집합조직이 지만 반경 방향으로의 K_{IH}가 약 50% 정도 높게 나타나는 것으로 확인되었으며 Fig. 2[2-7]와 같다.

CT와 CB 시험편은 횡 방향에 수직한 면이 균열의 진전면이고 균열의 진전 방향만 CT 시험편의 경우 길이 방향, CB 시험편의 경우 반경 방향이라는 것이 다르다. 그러므로 DHC 거동의 이방성은 균열의 진전 방향과 관계되어 있다는 것은 분명하다고 할 수 있다.

Zr-2.5%Nb 합금의 K_{IH}에 미치는 집합조직의 영향은 균열 진전면에 수직한 방향에서의 기저면 성분의 증가에 따라 직선적인 감소를 보인다고 보고되어 있다[3]. 이 거동은 기저면 성분(F)은 취성을 나타내는 부피로 취급되고 나머지 부피(1-F)는 연성 기지로 취급하여 DHC를 일으키는 재료를 취성의 수소화물과 연성의 기지가 혼합된 혼합물로 생각하고 혼합물의 법칙으로 이 거동을 설명하였다.

$$K_{IH} = K_{IC\ of\ ductile\ matrix} \times (1-F) + K_{IC\ of\ brittle\ hydride} \times F \qquad (1)$$

이와 같이 K_{IH}가 기저면 성분의 증가에 따라 직선적으로 감소하는 것은 다른 Coleman 등에 의해서도 보고된 바 있으나 이에 대한 적절한 설명은 제시하지 않았다 [8].

현재까지는 DHC 거동의 이방성에 대한 원인을 규명하기 위하여 미소 인장 시험편을 이용하여 반경 방향의 변형 거동을 조사하여 반경 방향의 인장 성질이 길이 및 횡 방향과는 다르며 이것은 변형 과정에서 작용하는 변형 기구의 차이에 의한 것이라는 점이 밝혀져 있다[9]. 이 결과로부터 반경 방향으로 인장 응력이 가해지는 경우에는 더 낮은 응력에서 변형이 시작된다는 것이 확인되었으며 이는 균열 선단에서의 파괴 과정이 평면 변형에 가까운 변형을 수반한다는 것을 고려하면 반경 방향으로 균열이 성장하는 CB 시험편의 경우에 균열 선단에 집중되는 응력의 준위가 낮을 것이며 이로 인해 균열 선단에서 수소화물의 석출 거동을 변화시켜 DHC 거동이 다르게 나타날 것이라는 알 수 있었다.

따라서 본 연구는 균열 진전 방향을 변화시킨 시험편을 three point bend 시험편을 사용하여 방향에 따른 파괴 거동을 체계적으로 조사하여 DHC와 파괴 저항성과의 상관 관계를 조사하고자 하였다.

2. 실험

압력관 재료의 DHC 균열 전파 거동을 길이 및 반경 방향으로 시험하고 three point bend를 이용한 파괴 저항성을 측정하기 위하여 Zr-2.5%Nb 중수로 압력관을 압연에 의하여 10% 정도 가공하여 폈다. 압연에 의한 냉간 가공의 효과를 제거하고 α-Zr 상 주위에 결정립을 따라 놓여 있는 β-Zr 망을 분해시킴으로써 수소의 우선적인 이동 통로를 제거하기 위하여 400℃에서 72시간 열처리하였다. 이와 같이 열처리가 끝난 압력관 재료에 수소를 투입하기 위하여 전기 분해법으로

재료 표면에 수소화물을 석출시킨 후 300℃에서 96시간 유지하여 균질화 시킨 후 분석한 결과는 약 60 ppm의 수소를 함유한 것으로 분석되었다.

균열 면은 압력관의 횡 방향에 수직하고 균열의 진전 방향은 길이 방향(T-L)과 반경 방향(T-R) 시험편이 Fig. 3과 같이 가공되었다. 이 시험편은 DHC 속도 측정 시험과 three point bend를 이용한 파괴 저항성의 시험에 사용하였다. 압력관 재료를 편 형태의 제한으로 인하여 시험편의 너비(b)와 깊이(W)는 4mm로 하였다.

이 시험편을 사용하여 길이 및 반경 방향으로의 DHCV를 시험하였으며, 이 시험에는 균열의 전파 과정을 on-line으로 감지하고 이를 균열 길이로 환산한 후 시험편에 가해지는 하중을 조절할 수 있도록 제작되어 computer로 제어되는 장치를 사용하였다.

파괴 저항성 시험은 25℃와 250℃에서 수소가 포함되지 않은 시험편과 수소가 포함된 시험편에 대하여 각각 수행되었으며 시험중 균열의 전파 과정은 DC potential drop 방법을 이용하였다. Three point bend 시험으로부터 구한 하중 변위 곡선으로부터 J-integral vs 균열 길이의 관계를 도출하였다.

파면에 대한 XRD 시험에 의하여 역극점도를 작성하고 분석함으로써 균열면에서의 소성 변형의 발생 여부를 확인할 수 있었으며 이를 토대로 기저면 성분의 변화를 조사하였다. 파괴 과정에서 작용한 변형 기구를 추적하기 위하여 균열면에서의 집합조직 계수를 압력관 재료의 집합조직 계수로 나누어 도시하였다.

3. 결과 및 논의

길이와 반경 방향에서의 DHCV는 Fig. 4에 함께 비교하여 나타내었다. 앞서 언급한 바와 같이 길이 방향으로의 DHCV는 반경 방향에 비하여 약 2배정도 높은 값을 가지는 것으로 나타났다. 본 연구에 사용한 재료는 압연에 의하여 편 후 냉간 가공의 효과와 β-상의 분해를 위하여 열처리를 실시한 상태이므로 이 차이는 β-상의 분포에 의한 것이 아니다.

이에 대한 분명한 근거 자료는 파면에 대한 집합조직의 변화 조사 결과라고 할 수 있다. CT 및 CB 시험편의 DHC 균열 면에 대한 집합조직의 조사 결과를 Fig. 5 및 6에 보였다. 동일한 기구에 의한 균열의 성장임에도 불구하고 집합조직의 변화는 다르게 나타난다는 것을 알 수 있다. 길이 방향으로 균열이 성장하는 CT 시험편은 주로 $(10\underline{1}2)$ 쌍정 기구가 작용한 것을 보여주고 있는 반면 반경 방향으로 균열이 성장한 CB 시험편은 $(10\underline{1}2)$ 및 $(11\underline{2}1)$ 쌍정 기구가 동시에 작용하고 있음을 보여준다. 이것은 반경 방향으로 균열이 진전하는 경우 균열 선단에서의 소성 변형은 횡 방향으로의 인장 변형과 반경 방향으로의 압축 변형이 수반되며 이 때 횡 방향에 가까운 결정립은 $(10\underline{1}2)$ 쌍정 기구가 작용하고 횡 방향으로부터 약 30 ̊정도 떨어진 결정립은 $(11\underline{2}1)$ 쌍정 기구가 작용할 것이다. 그 반면 길이 방향으로 균열이 진전하는 경우 횡 방향으로의 인장 변형과 길이 방향으로의 압축 변형이 일어날 것이며 대다수의 결정립이 길이 방향으로부터 약 90 ̊에 가까운 방향에 놓여 있으므로 $(10\underline{1}2)$ 쌍정 기구가 작용할 것이다.

이 결과는 동일하게 DHC 기구에 의해 균열이 성장한 균열 면에서도 방향이 다르면 다른 변형 기구가 작용할 수 있다는 것을 보이는 것이며 이것은 DHC 과정이 수소화물의 석출과 파괴의 과정에 의해서만 결정되는 것이 아니라는 것을 의미한다. 따라서 이 결과는 DHC에 대한 K_{IH}의 집합조직 의존성과 일맥 상통한다고 할 수 있다. 즉 DHC 기구에 의한 균열의 시작에 대한 임계 값이 수소화물의 석출에 의해서만 결정되지 않고 그 과정에 수반되는 변형 기구의 차이에 의해서

달라질 수 있다는 의미이다. 그러므로 식 (1)과 같이 K_{IH}는 기저면 성분이 낮아 균열 선단에서의 변형이 용이한 집합조직을 갖는 경우(높은 K_I) 높은 값을 나타내고 반대로 기저면 성분이 높아 균열 선단에서의 변형이 어려운 경우(낮은 K_I) 낮게 나타난다.

이와 같은 결과와 추론들은 DHC 기구에 의한 파괴 과정이 단순히 수소화물의 석출과 파괴라는 관점에서의 해석은 집합조직의 영향이나 균열 성장 방향에 따른 DHC 거동의 차이와 같은 관찰 결과를 적절히 설명할 수 없다는 것을 보여주는 것이라고 할 수 있다.

Three point bend를 이용한 파괴 저항성 시험은 상온 및 250℃에서 실시되었으며 응력-변위 곡선을 Fig. 7에 나타내었다. 수소를 포함하지 않은 시험편은 균열의 진전에 대하여 상당한 저항성을 내는 반면 상온에서 수소를 함유한 시험편의 경우 균열의 전파가 시작되면 파괴 저항성이 매우 약해지며 이는 재료 내에 함유된 수소가 수소화물을 석출하여 소성 변형에 대한 재료의 호응을 제한하게 되어 나타나는 현상으로 보인다. 그 반면 시험 온도가 250℃인 경우에는 균열의 전파가 시작된 이후에도 상당히 높은 파괴 저항성을 나타내고 있다. 또한 반경 방향으로의 파괴 저항성은 길이 방향으로의 파괴 저항성보다 큰 것으로 나타났다.

하중-변위 곡선으로부터 구한 J-integral-균열 길이의 곡선을 Fig. 8에 나타내었다. 시험편의 한계(W = 4mm)로 인하여 균열의 성장은 CT 시험편과 같이 수 mm에 이르도록 시험할 수 는 없어 균열의 성장은 약 1mm 미만이었다. 균열의 성장이 시작된 이후 전 구간에서 구한 T-R 시험편의 dJ/da는 T-L 시험편보다 약 40% 정도 큰 것으로 나타났다. 앞서 방향에 따른 DHC 거동과 관련하여 논의한 바와 같이 파괴 과정에서도 방향에 따라 큰 차이를 나타내는 것은 파괴 과정에 수반되는 변형 과정이 다르다는 것을 의미한다고 할 수 있다.

60 ppm의 수소는 250℃에서 상당한 양의 수소화물을 포함하고 있는 상태라는 점과 상온에서는 60 ppm의 수소를 함유한 재료의 경우 매우 낮은 파괴 저항성을 나타낸다는 것을 감안하면 250C에서의 three point bend 시험 과정은 수소화물을 포함하고 있음에도 소성 변형을 수반하는 연성 파괴가 주도하는 파괴 과정이라고 할 수 있다.

미소 인장 시험편을 사용하여 170-250℃의 온도 구간에서 측정한 하중-변위 곡선을 Fig. 9에 비교하여 나타내었다. 반경 방향의 변형 거동은 횡 방향의 변형 거동과 유사한 것으로 나타났으며 반경 방향의 연신율은 가장 낮은 것으로 나타났다. 이와 같은 강도와 변형 거동의 차이는 방향에 따른 결정 방위의 차이에 의한 것으로 보인다. 앞서 논의한 바와 같이 연성 파괴 저항성이 균열 전파의 방향에 따라 다른 것은 방향에 따른 변형 거동의 차이와 관련되어 있다고 할 수 있다. 이것은 균열면을 따라 놓인 결정립 방위의 차이에 따른 효과로 볼 수 있으며 이것은 집합조직의 효과라고 할 수 있다.

이들 관찰 결과를 요약하면 1) DHC 균열 전파 과정에서 소성 변형이 수반되며, 2) 길이 방향과 반경 방향으로의 균열 전파시 작용하는 변형기구가 다르며, 3) 길이 방향과 반경 방향으로의 변형 및 가공 경화 거동이 다르며, 4) 반경 방향 균열 성장에 대한 dj/da는 약 40% 정도 크다는 것이다. 이와 같은 차이는 결정립의 방위 분포에 따른 것으로 이것은 집합조직의 이방성에 기인하는 것이라고 할 수 있으며, 길이 방향과 반경 방향으로의 균열 전파 거동의 차이로 나타난다.

DHC 거동을 예측하는 것은 현재까지 구체적으로 연구되지 않은 상황에 대한 대처 방안을 제시할 것이므로 압력관 재료의 K_{IH}나 DHCV를 예측하는데 사용할 수 있는 모델들이 제시된 바 있었다 [10]. 본 연구와 다른 연구 결과를 참조하면 DHC 거동을 묘사하는 모델들은 균열의 진전 방향과 균열면에서의 변형 기구와 집합조직을 반영되어야 할 것으로 판단된다.

4. 결론

1) 압력과 재료의 길이 방향에서의 DHC 속도는 반경 방향에 비하여 약 2배 정도 빠르다.
2) 집합조직의 변화를 기초로 확인한 결과, 길이 방향으로 DHC 균열 전파가 일어나는 경우에는 (10$\underline{1}$2) 쌍정 기구가 작용하고 반경 방향으로 균열이 전파하는 경우에는 (10$\underline{1}$2)과 (11$\underline{2}$1) 쌍정 기구가 작용한다.
3) 수소를 포함한 three point bend 시험편을 이용하여 파괴 저항성을 시험한 결과 T-R 시험편에서 측정한 반경 방향으로의 dj/da는 길이 방향에 비하여 약 40% 정도 높게 나타났다.
4) DHC 거동의 이방성은 방향에 따른 집합조직의 차이에 의한 DHC 균열 전파 과정에서 나타나는 변형 기구의 차이 때문이다.

감사의 글

이 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 사업중 중수로압력관 과제에서 수행되었습니다.

References

1. S. Sagat, C. E. Coleman, M. Griffiths, and B. J. S. Wilkins, Zirconium in the Nuclear Industry, Tenth International Symposium, ASTM STP 1245, 1994, pp. 35-61.

2. S. S. Kim, S. C. Kwon, K. N. Choo, Y. M. Cheong, and Y. S. Kim, Key Engineering Materials, Vol. 183-187 (2000) pp. 845-850.

3. S. S. Kim, S. C. Kwon, and Y. S. Kim, J. Nucl. Mater. Vol. 273, 1999, pp.52-59.

4. C. E. Coleman, S. Sagat, and K. F. Amouzouvi, Control of Microstructure to Increase the Tolerance of Zirconium Alloys to Hydride Cracking, Atomic Energy of Canada Limited Report AECL-9524 (1987).

5. C. E. Coleman, Zirconium in the Nuclear Industry, Fifth Conference, ASTM STP 754, 1982, pp. 393-411.

6. H. Huang, and W. J. Mills, Metal. Transactions 22A (1991), pp.2149-2060.

7. W. J. Mills, and F. H. Huang, Eng. Frac. Mech. 39 (1991), pp. 241-257.

8. C. E. Coleman, B. A. Cheadle, C. D. Cann, and J. R. Theaker, Zirconium in the Nuclear Industry, Eleventh International Symposium, ASTM STP 1295, 1996, pp. 884-898.

9. S. S. Kim, S. C. Kwon, K. N. Choo, Y. M. Cheong, and Y. S. Kim, Canadian Nuclear Society, 2000 Spring, Toronto, Canada

10. Y. S. Kim, Y. G. Matvienko, Y. M. Cheong, S. S. Kim, S. C. Kwon, Journal of Nuclear Materials, Vol. 278 (2000) pp. 251-257.

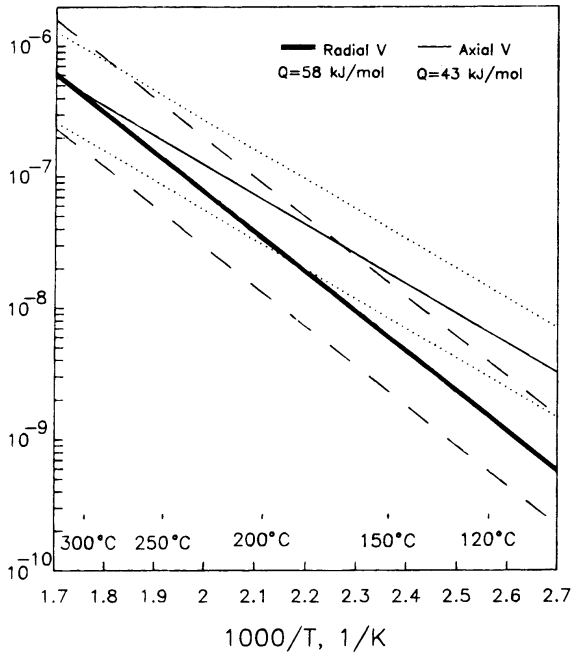

Fig. 1. Comparison of DHC velocity in the radial and longitudinal direction [1].

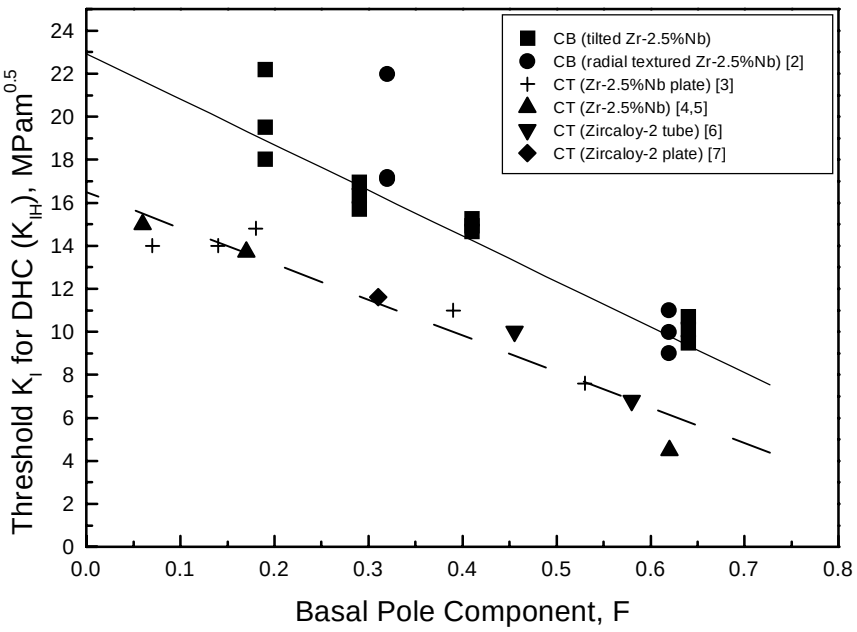

Fig. 2. Comparisons of K_{IH} measured from CT and CB specimens with the basal pole components in Zircaloy-2 and Zr-2.5%Nb materials [2-7].

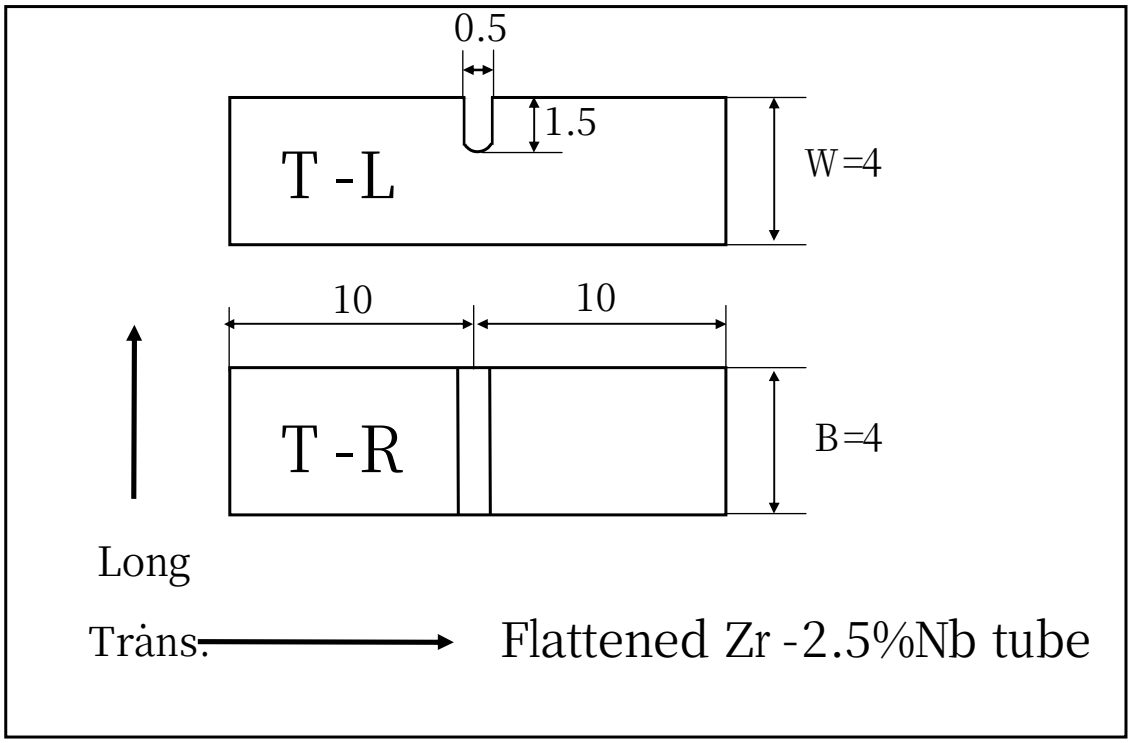

Fig. 3. Schematic illustration of dimension and configuration of three point bend specimens.

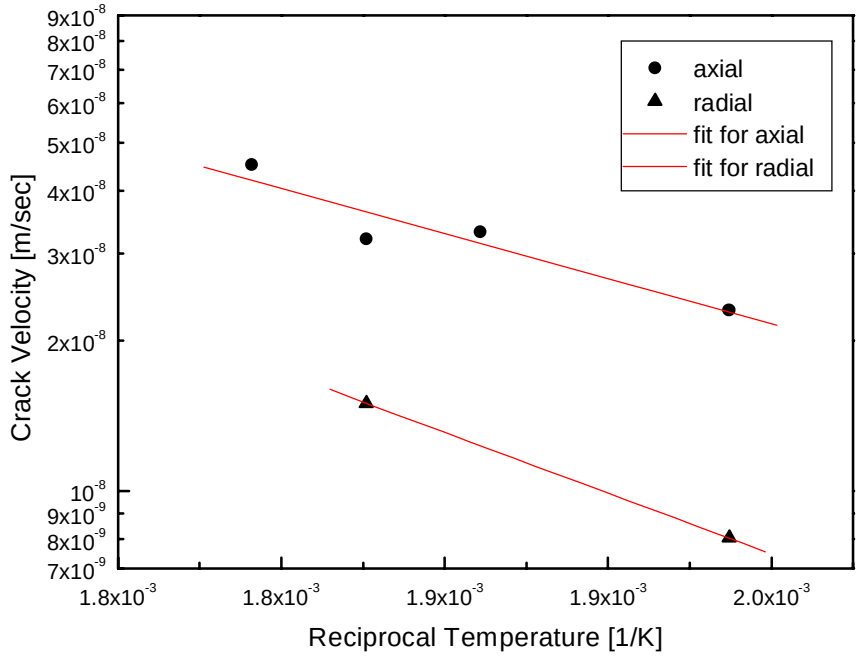

Fig. 4. DHC crack velocity in the T-L and T-R specimens with reciprocal temperature.

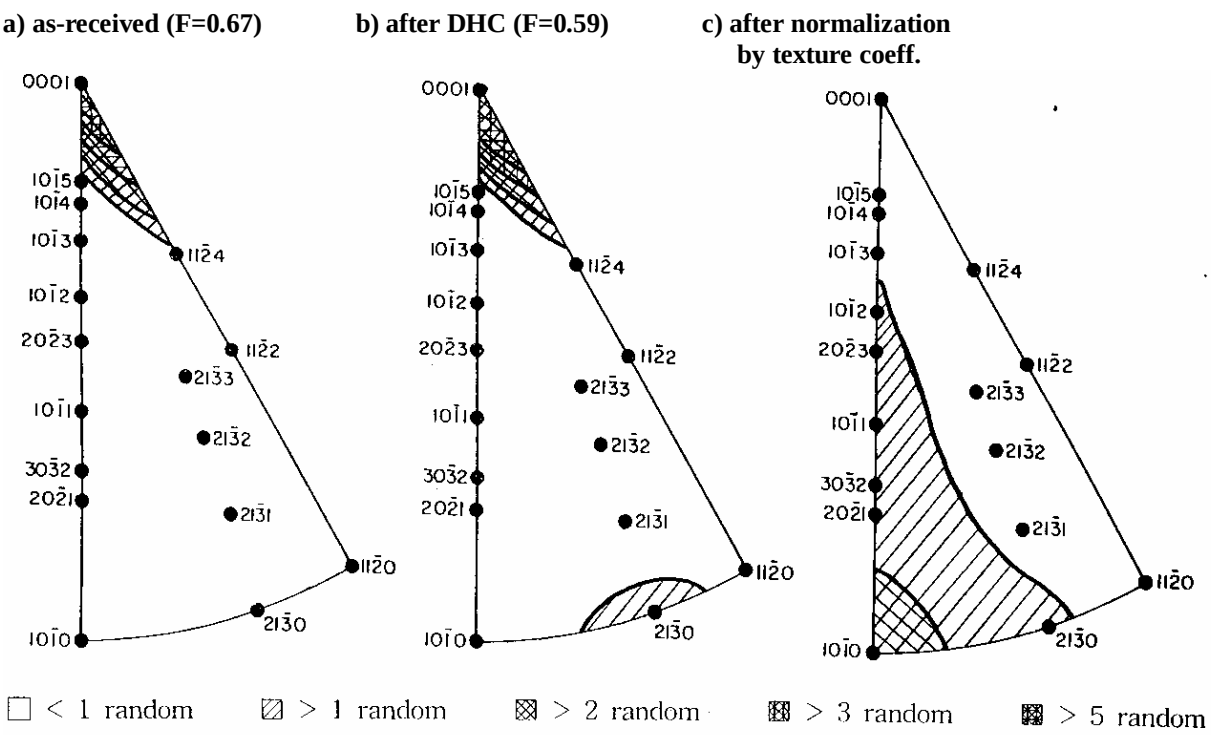

Fig. 5. Comparison of inverse pole figures for CT specimen before and after DHC in the longitudinal direction.

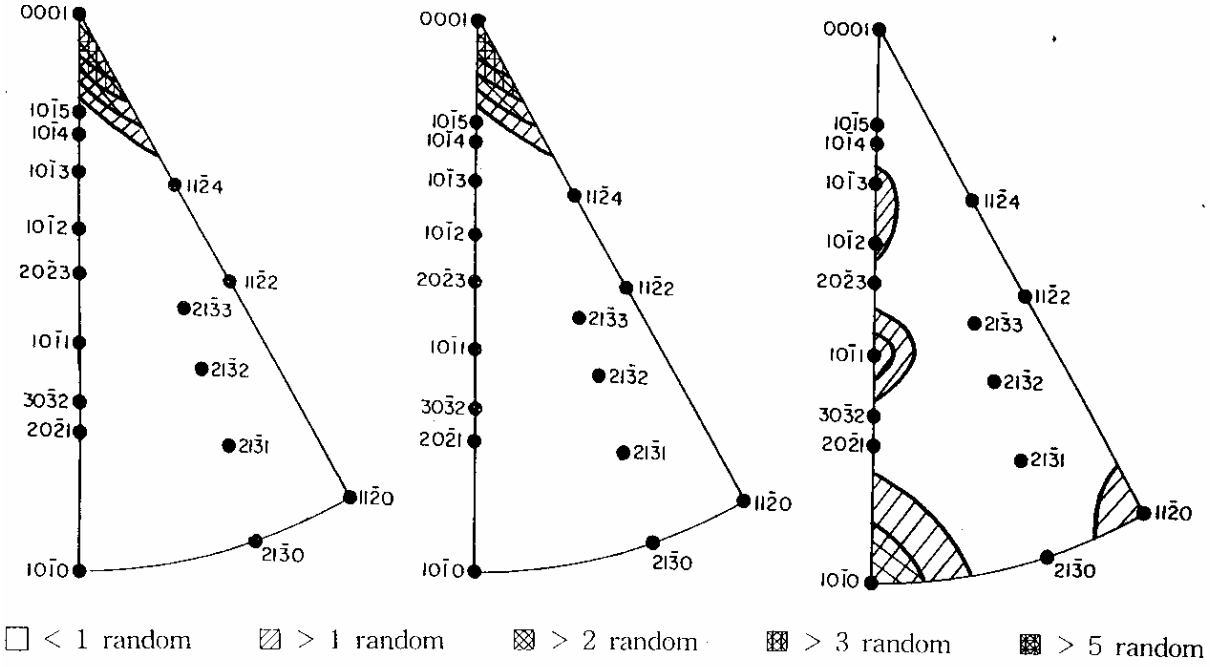

Fig. 6. Comparison of inverse pole figures for CB specimens before and after DHC in the radial direction.

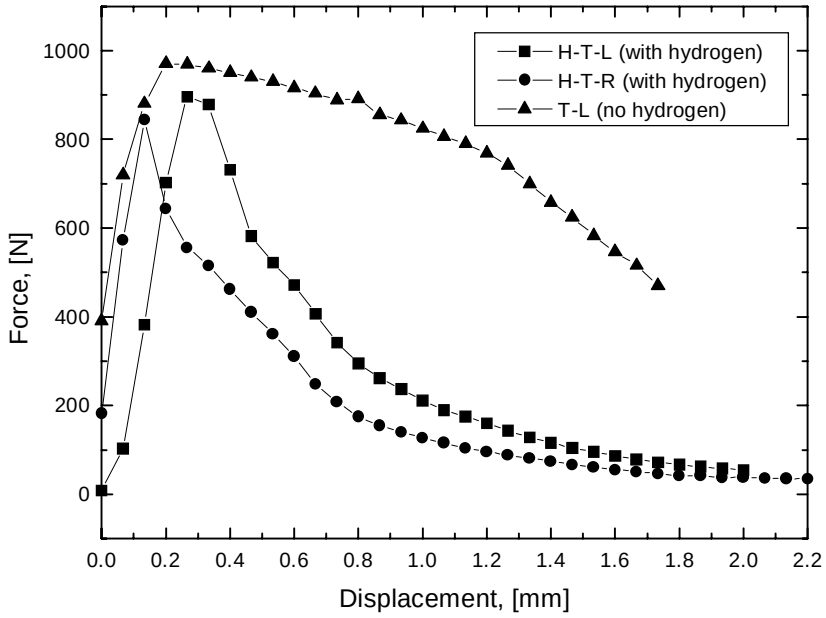

Fig. 7. Force-displacement curves for T-L and T-R specimens with and without hydrogen at RT.

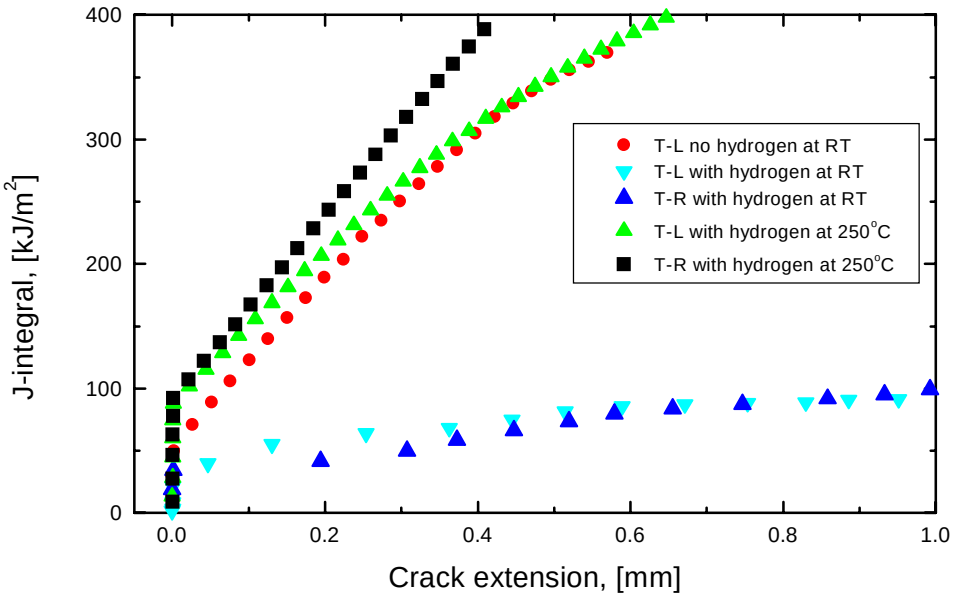

Fig. 8. Comparisons of J-integral and crack extension curves for T-R and T-L specimens at RT and 250°C.