2002 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

Zr-2.5%Nb 합금 압력관에서 방향에 따른 변형 거동이 수소지연파괴 거동에 미치는 영향

The effects of directional deformation behavior on DHC behavior in Zr-2.5%Nb pressure tube

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

요약

Zr-2.5%Nb 합금 중수로 압력관 재료에서 나타나는 DHC 거동의 이방성을 설명하기 위하여 반경 방향으로의 변형 거동과 DHC 파면에 대한 집합조직의 변화가 조사되었다. 반경 방향의 변형 거동은 횡 방향의 변형 거동과 유사하게 나타났으며, 반경 방향의 항복 강도는 100-400°C의 범위에서 길이나 횡 방향에 비하여 가장 낮은 값을 보이는 것으로 나타났다. DHC 파면에 대한 집합조직 변화의 관찰 결과는 DHC에 의한 파괴 과정에도 소성 변형이 수반된다는 것을 보여주고 있으며, 길이 및 반경 방향으로의 균열 전파 과정에서 다른 변형 기구가 작용한다는 것을 보였다. 균열 진전 방향이 다른 CT 및 CB 시험편에서 나타나는 DHC 균열 전파 거동의 차이는 파괴 과정에 수반되는 변형 기구의 차이 때문이라고 결론 지을 수 있다.

Abstract

To explain the anisotropy of delayed hydride cracking (DHC) behavior in the longitudinal and radial directions in Zr-2.5%Nb pressure tube materials, tensile behavior in the radial direction and the texture change in the DHC surfaces have been examined. The deformation behavior in the radial direction appeared similar to that of transverse direction and the yield strength in the radial direction is minimum in the range of 100-400°C. It has been found that plastic deformation occurs during DHC process and the deformation mechanisms operating during the cracking process were clearly different in both specimens. Therefore, it can be concluded that the differences in crack propagation behavior between CT and CB specimens are due to the differences in deformation mechanisms.

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 큰 것으로 나타난다고 보고되었으며 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 균열면에서의 집합조직이 동일하지만 반경 방향으로의 K_{IH}가 약 50% 정도 높게 나타나는 것으로 확인되었으며 이를 Fig. 2[2-7]에 나타내었다.

CT와 CB 시험편은 균열의 진전 양상을 본다면 압력관의 횡 방향에 수직한 면이 균열의 진전면이고 다만 차이점은 균열의 진전 방향에 CT 시험편의 경우 길이 방향, CB 시험편의 경우 반경 방향이라는 것이다. 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 보고된 바 있다 [3]. 여기서 기저면 성분(F)은 취성을 나타내는 부피로 취급하고 나머지 부피(1-F)는 연성 기지로 취급하여 취성 수소화물과 연성기지가 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 체계적인 연구가 이루어진 바는 없었다. 따라서 본 연구는 균열 진전 방향으로의 변형 거동을 파악하고 DHC 균열 면에 대한 XRD 조사를 통하여 DHC 이방성의 원인을 추적하였으며 균열 진전 방향에 따른 변형 기구의 작용에 대하여 논의하였다.

2. 실험

DHC 시험은 수소농도가 60ppm 정도인 CT와 CB 시험편을 사용하였으며, 시험편의 형상은 Fig. 3에 보인 바와 같다. CT 시험편은 일정 하중이 가해지는 creep 시험기를 사용하여 시험하였으며, CB 시험편은 음향 방출 (AE, acoustic emission) 신호를 사용하여 균열의 전파를 확인하는 하중을 조절하는 computer controlled tester를 사용하였다.

DHC 균열면에 대한 XRD 시험 결과를 바탕으로 균열면에서의 집합조직의 변화를 확인하였으며, DHC 균열 전파에 의한 기저면 성분의 변화를 확인하였다. 균열 전파에 따른 집합조직의 변화와 파괴 과정에서 작용한 변형 기구의 작용을 명확히 볼 수 있도록 파면에 대한 집합조직의 계수를 압력관 재료의 집합조직 계수로 나누어 역극점도(inverse pole figure)를 작성하였다.

반경 방향으로의 인장 성질을 측정하기 위하여 시험편의 Fig. 4에 보인 gage section의 길이가 2mm 정도의 미소 시험편을 사용하여 인장 성질을 측정하였으며, 길이 및 횡 방향으로의 인장 성질도 측정하여 함께 비교하였다. 미소 시험편은 방전 가공 (electric discharge machining, EDM)을 사용하였으며, EDM 가공된 표면의 0.1mm 정도는 제거되었다. 인장 시험은 상온에서 560°C까지 수행되었으며, 변형율은 $5x10^{-4}$/s로 시험하였다. 항복 강도의 결정에는 변위를 사용하였다.

3. 결과 및 논의

Zr-2.5%Nb CANDU 압력관의 집합조직을 Fig. 5에 역극점도로 나타내었다. HCP 결정 구조의 á-Zr의 c축 방향은 압력관의 횡 방향으로 집중되어 있으며, prism plane에 수직한 [10.1] 방향은 압력관의 길이 방향으로 집중되어 있다. 또한 Fig. 5는 압력관의 길이, 횡, 반경 방향으로의 결정립의 방위 분포가 어떻게 되어 있는지를 보인다.

DHC에 의한 파면에서의 기저면 성분의 변화는 CB 시험편과 CT 시험편과 에서 각각 10% 및 20% 정도의 감소를 보였으며, 이들 파면에서 측정한 집합조직을 Fig. 6 과 Fig. 7에 나타내었다. 이 결과들은 취성 파괴 기구로 인정되어온 수소지연파괴 기구에 의한 파괴 과정에도 소성 변형이 수반된다는 것을 알 수 있다. 이와 같이 수소지연파괴 과정에서 소성 변형이 일어난다는 것은 파면에 대한 XRD 시험에 의한 확인 과정 이외에도 앞서 언급한 바와 같이 균열 진전면에서의 집합조직에 따라 임계 응력 확대 계수가 달라지는 것으로부터 유추가 가능하다.

Fig. 6 c)와 Fig. 7 c)에 보인 바와 같이 균열이 길이 방향으로 전파하는 CT 시험편과 반경 방향으로 전파하는 CB 시험편의 파괴 과정에는 다른 변형 기구가 작용한다는 것을 알 수 있다. CT 시험편의 경우에는 $(10\bar{1}2)$ 쌍정 변형 기구가 작용하고, CB 시험편의 경우에는 $(11\bar{2}1)$ 쌍정과 $(10\bar{1}2)$ 쌍정 변형이 작용한다는 것을 알 수 있다.

CT나 CB 시험편에서 DHC에 의한 균열이 전파하는 과정은 평면 변형 과정이다. CT 시험편의 경우에는 반경 방향으로의 변형은 없이 횡 방향으로의 인장 변형과 길이 방향으로의 압축 변형이 수반될 것이다. 그러므로 이 과정은 Fig. 5 b)와 c)를 참조하면 결정립의 c 축 방향은 주로 횡-반경 방향에 모여 있으므로 $(10\bar{1}2)$ 쌍정에 대한 Schmid factor가 최대가 되고 $(10\bar{1}2)$ 쌍정 변형만 일어날 수 있다. 반면, CB 시험편의 경우에는 파괴 과정에서 횡 방향으로 인장 변형이 일어나고 반경 방향으로는 압축 변형이 일어날 것이며 Fig. 5 a)와 b)를 참조하면 결정립이 횡 방향으로부터 반경 방향으로 다양하게 분포되어 있으므로 $(11\bar{2}1)$ 쌍정과 $(10\bar{1}2)$ 쌍정 변형이 일어나게 된다. 이 경우 결정립의 c 축이 횡 방향으로부터 약 30°정도 떨어진 결정립은 $(11\bar{2}1)$ 쌍정 변형 기구에 대한 Schmid factor가 최대가 되며, 횡 방향에 가까운 결정립은 $(10\bar{1}2)$ 쌍정 변형 기구에 대한 Schmid factor가 최대값이 된다.

Fig. 8, 9 에는 미소 시험편으로부터 구한 반경, 횡, 길이 방향의 항복 및 인장 강도를 시험 온도에 대해 각각 나타내었다. 반경 방향 및 횡 방향에서의 측정한 항복 및 인장 강도의 온도 의존성은 길이 방향과는 약간 다른 것으로 나타났으며, 150℃이하에서는 반경 및 횡 방향의 항복 및 인장 강도는 길이 방향에 비하여 온도의 증가에 따라 급격히 감소하다가 약 400℃까지는 완만하게 감소하고 그 이상의 온도에서는 온도의 증가에 따라 다시 급격히 감소하였다.

미소 인장 시험편으로부터 구한 항복 및 인장 강도를 Fig. 10 및 11에 비교하여 나타내었다. 반경 방향의 항복 강도는 100-400°C의 범위에서 최저 값을 가지며, 안장 강도는 전 온도 범위에서 가장 낮은 값을 갖는다. 반경 방향 시험편에 대한 가공 경화의 경향은 길이 방향이나 횡 방향과는 다르게 나타났다. 특히 총 연신률은 반경 방향에서 가장 낮았다.

이와 같이 관찰한 결과는 다음과 같이 요약할 수 있다. 1) DHC 기구에 의한 파면에서 소성 변형이 일어난다, 2) 균열 진전 방향이 다른 CT와 CB 시험편에서 작용한 변형 기구는 다르며 CB 시험편의 경우에는 적어도 한가지 이상의 변형 기구가 더 작용한다, 3) 횡, 길이, 반경 방향으로의 강도와 가공 경화 거동은

다르다. 이와 같은 차이는 인장 방향에 따른 결정립의 분포 차이에 의한 것으로 보이며 이 차이가 DHC 거동의 차이로 나타나는 것으로 보인다.

변형 거동의 이방성은 DHC 기구에 의한 파괴 과정에서 다른 소성 거동을 일으킬 것이다. 반경 방향에 수직한 면에서의 결정립의 방위 분포는 Fig. 5 a)에 보인 바와 같이 길이나 횡 방향과 다르다. 이와 같은 결정립의 분포는 반경 방향으로의 변형 거동의 측면에서 상대적으로 등방적인 성질을 나타낼 뿐만 아니라 수소화물의 석출과 파괴에 대해서도 차이를 가질 것이므로, DHC에 대한 저항성이 높아지는 것으로 보인다.

반경 방향으로의 항복이나 인장 강도는 길이 방향에 비하여 낮고, 가공 경화 거동도 낮음에도 CB 시험편이 더 높은 DHC 저항성을 가진다는 것은 균열 선단에 응력이 집중될 때 CT 시험편보다 더 낮은 값에서 균열 선단의 변형이 시작된다는 것을 의미하므로 DHC 거동은 재료의 강도만에 의해서 결정되는 것이 아니라 결정립의 방위의 차이에 따른 수소화물의 석출 거동의 차이에 의한 것으로 보인다.

Fig. 12에는 three point bend 시험편을 사용하여 길이 및 반경 방향으로의 균열 성장에 대한 저항성을 나타내는 j-integral과 균열에 대하여 도시하였다. 250℃에서 약 60 ppm의 수소를 함유하고 있는 시험편의 반경 방향 파괴 저항성은 수소를 함유한 길이 방향 시험편보다 높은 파괴 저항성을 나타낸다는 것을 알 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 250℃에서의 three point bend 시험 결과는 연성 파괴가 주도하는 파괴 과정이라고 할 수 있다. 이와 같이 반경 방향으로의 파괴 저항성이 높다는 것이 반경 방향으로의 DHC 균열 전파 속도를 낮추는 원인으로 보인다.

따라서 CT 시험편과 CB 시험편 사이의 DHC 거동의 차이는 집합조직의 특성이라고 할 수 있는 결정립의 방위 차이로 인하여 파괴 과정에서 작용하는 변형 기구가 다르고 수소화물의 석출 거동의 차이로 나타나는 것이라고 결론 지을 수 있다.

4. 결론

1) Zr-2.5%Nb 합금 압력관 재료에서 DHC 기구에 의한 균열 전파 과정에 소성 변형이 일어나며 길이 방향으로 균열이 진전하는 CT 시험편의 경우에는 $(10\bar{1}2)$ 쌍정 변형이, CB 시험편의 경우에는 $(11\bar{2}1)$과 $(10\bar{1}2)$ 쌍정 변형이 작용한다.
2) 균열의 진전 방향에 따른 DHC 거동의 차이는 길이 및 반경 방향으로의 결정립의 방위 차이로 인한 변형 기구와 수소화물의 석출 거동의 차이로 나타난다.

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, Vols 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 A 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.

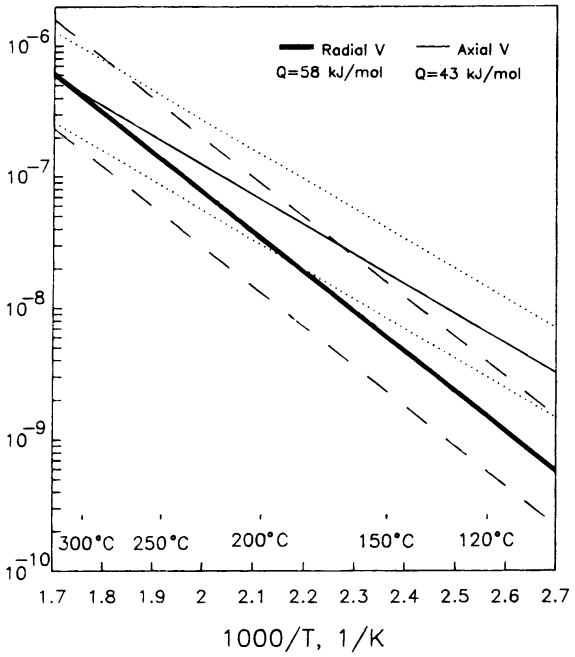

Fig. 1. Comparison of DHC velocity in the radial and longitudinal direction [1].

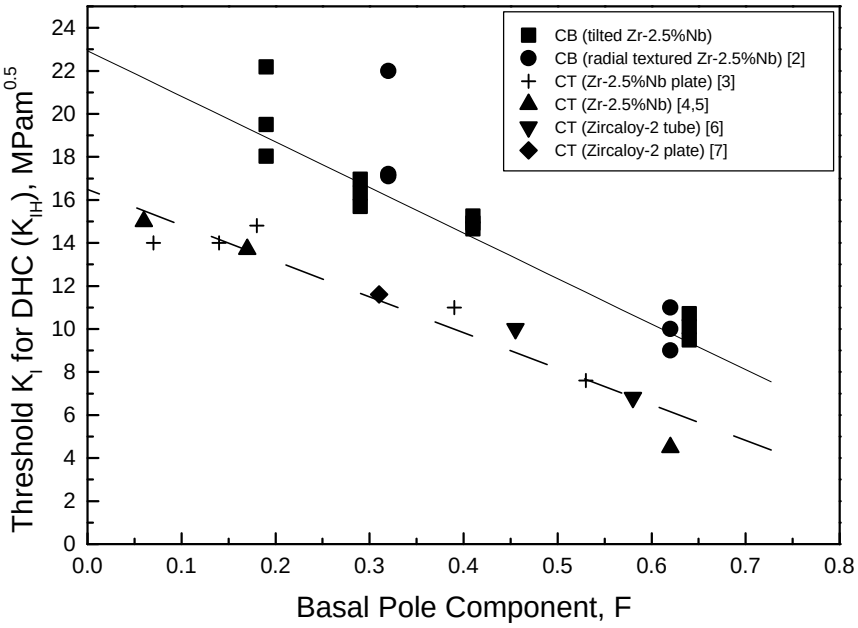

Fig. 2. Comparisons of K_{IH} measured from CT and CB specimens with the basal pole components in Zircaloy-2 and Zr-2.5%Nb materials [2-7].

a) cantilever beam specimen

b) curved compact tension specimen

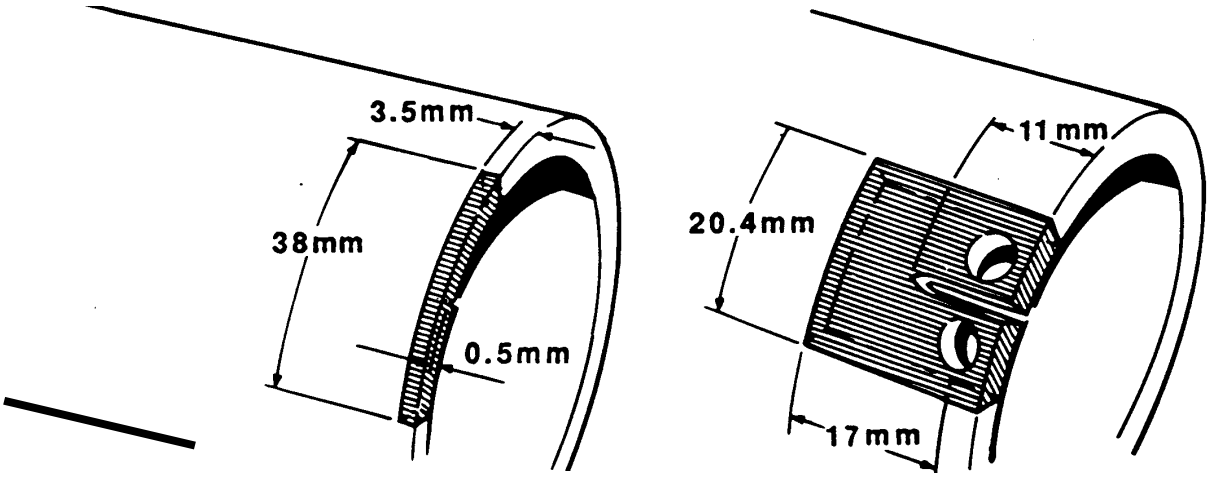

Fig. 3. Schematic illustration of a) cantilever beam (CB) and b) curved compact tension (CCT) specimens [1].

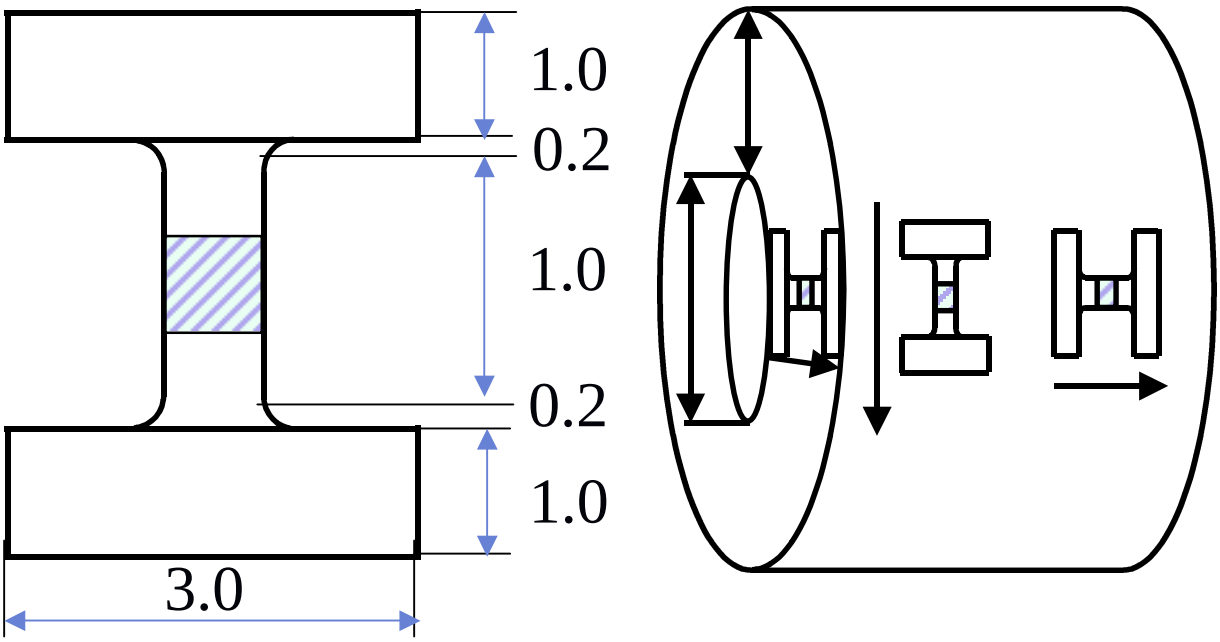

Fig. 4. The geometry of a small tensile specimen and a diagram of the machining in a pressure tube.

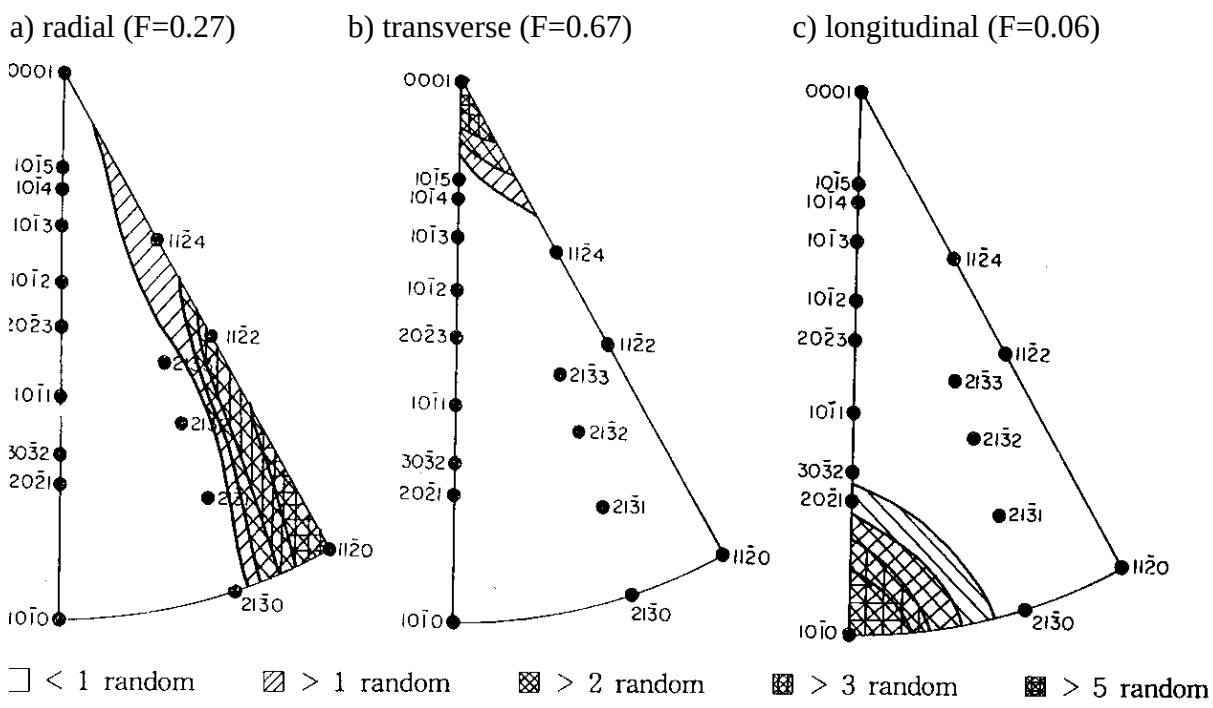

Fig. 5. Inverse pole figures for as-received Zr-2.5%Nb pressure tube material.

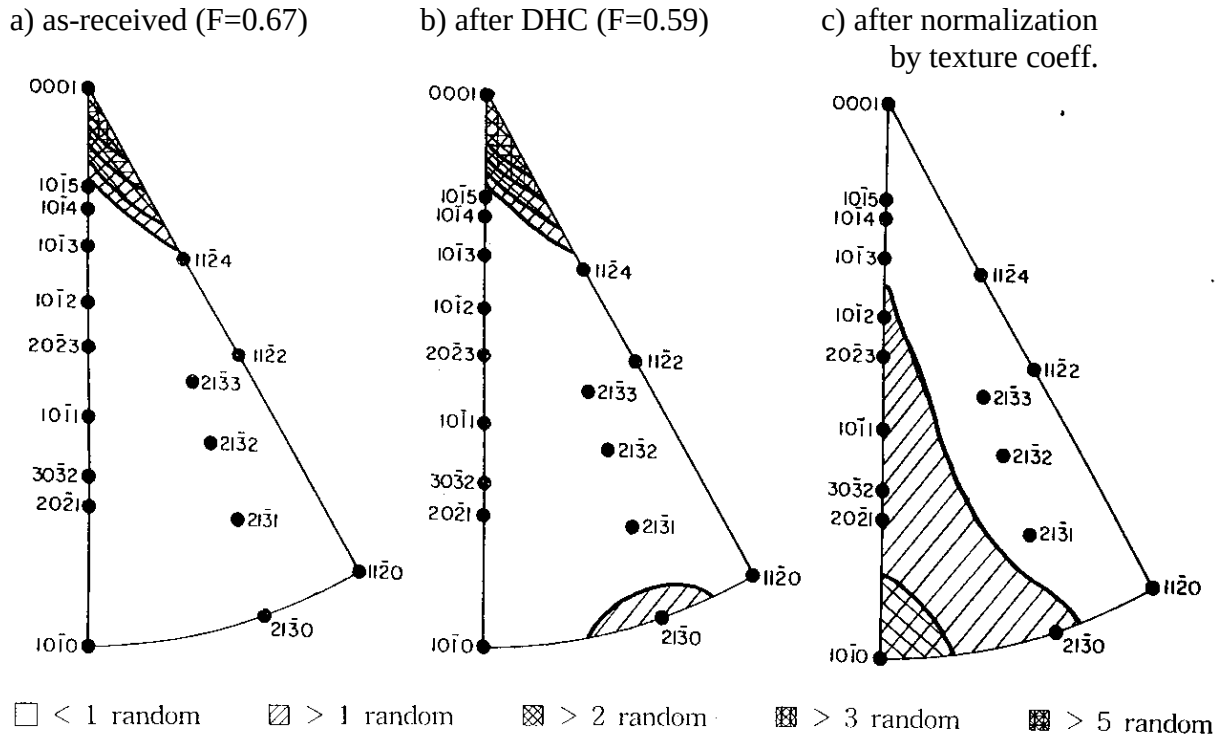

Fig. 6. Comparison of texture before and after DHC cracking in the longitudinal direction (CT).

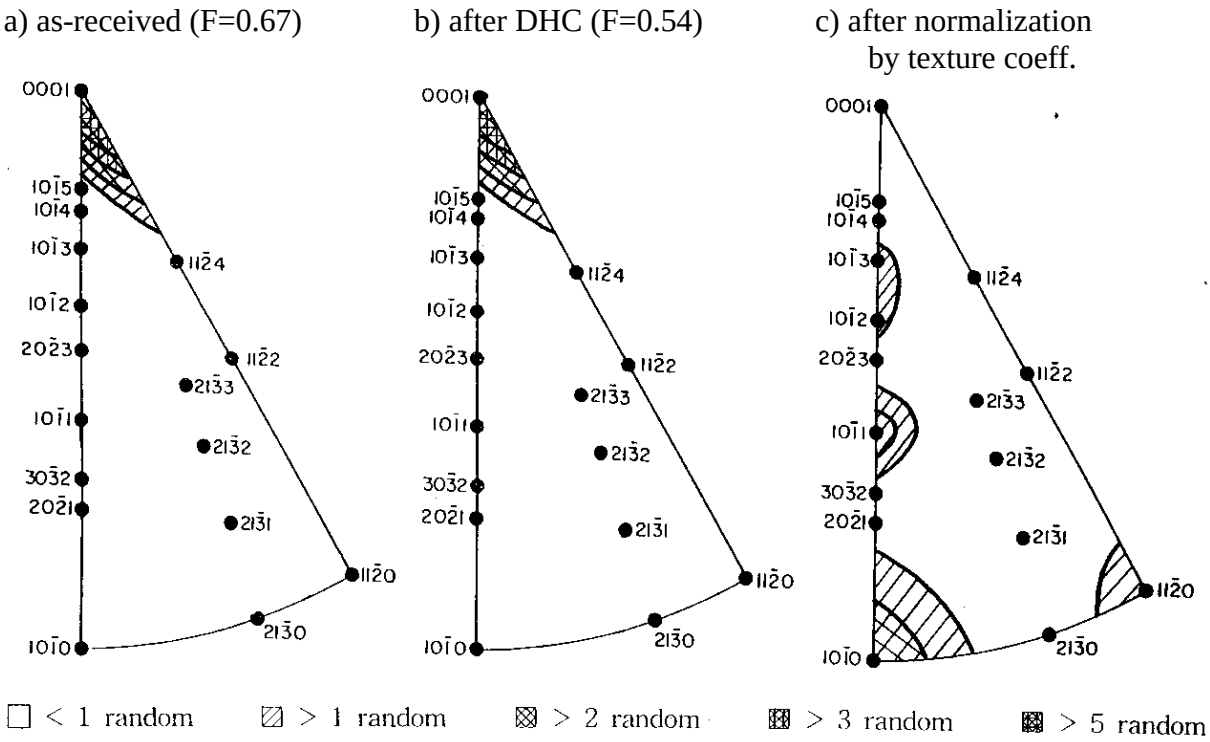

Fig. 7. Comparison of textures before and after DHC cracking in the radial direction (CB).

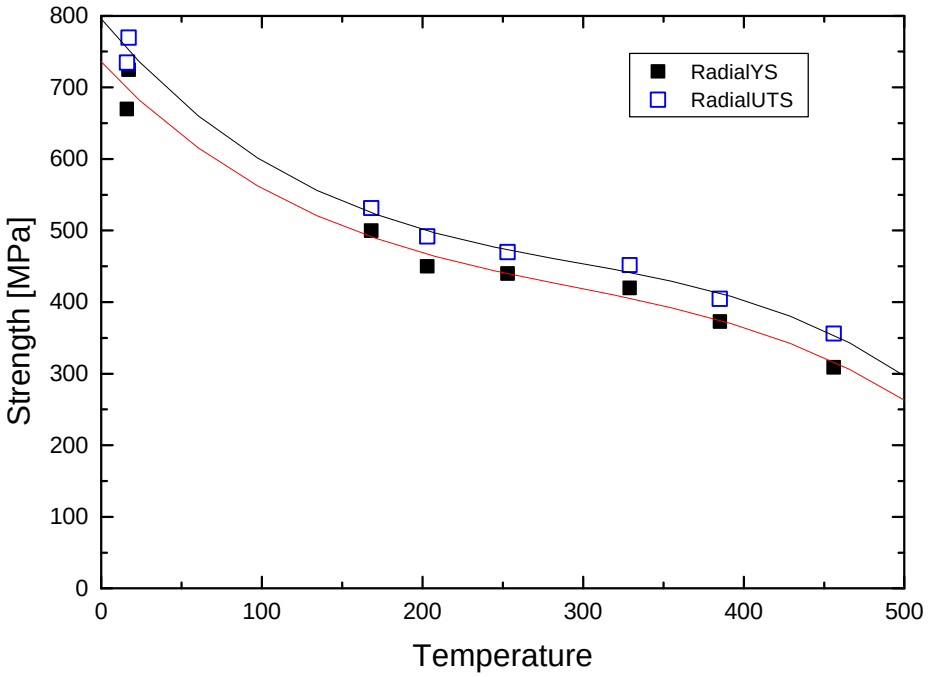

Fig. 8. Yield and tensile strengths measured from small tensile specimens in the radial direction.

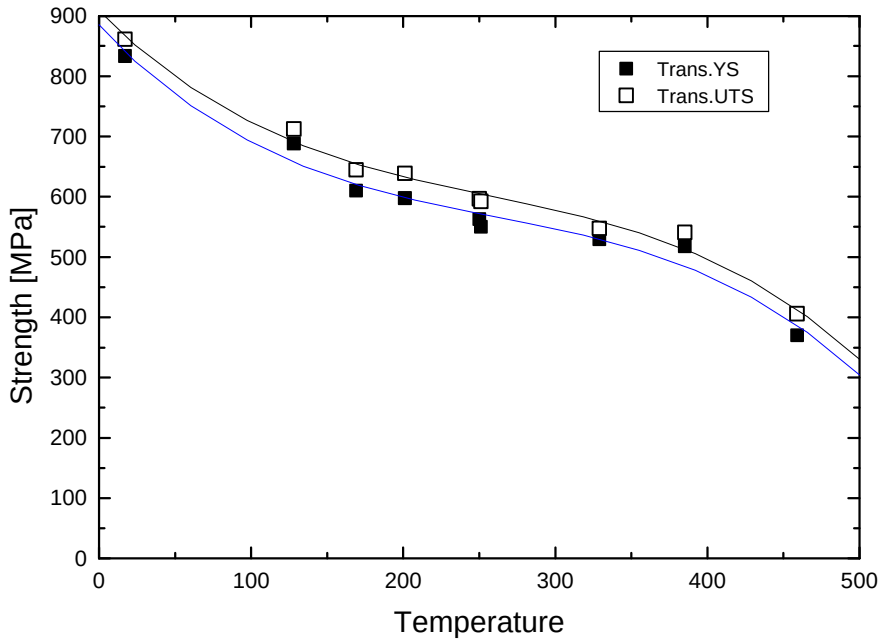

Fig. 9. Yield and tensile strengths measured from small tensile specimens in the transverse direction.

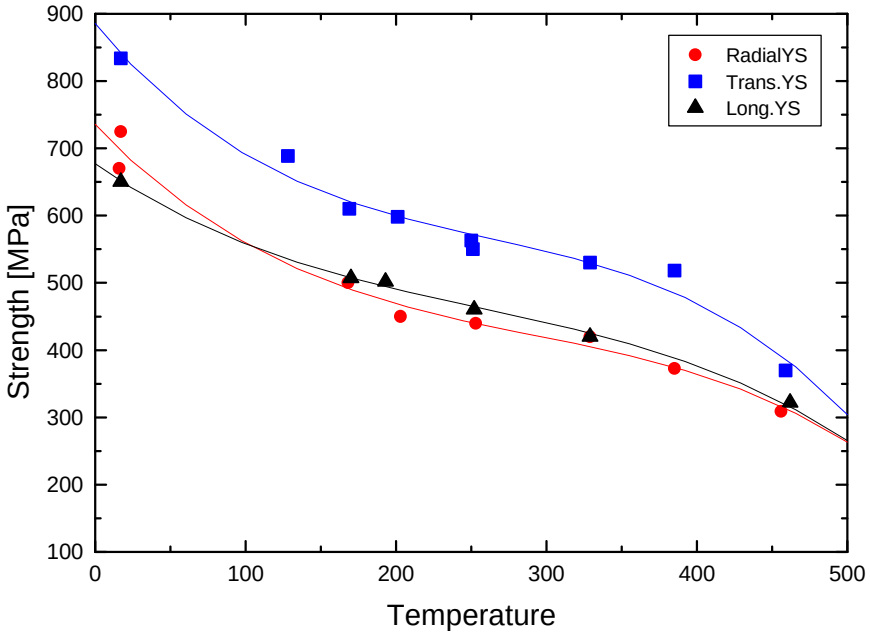

Fig. 10. Comparison of the yield strength in the radial, longitudinal, and transverse direction.

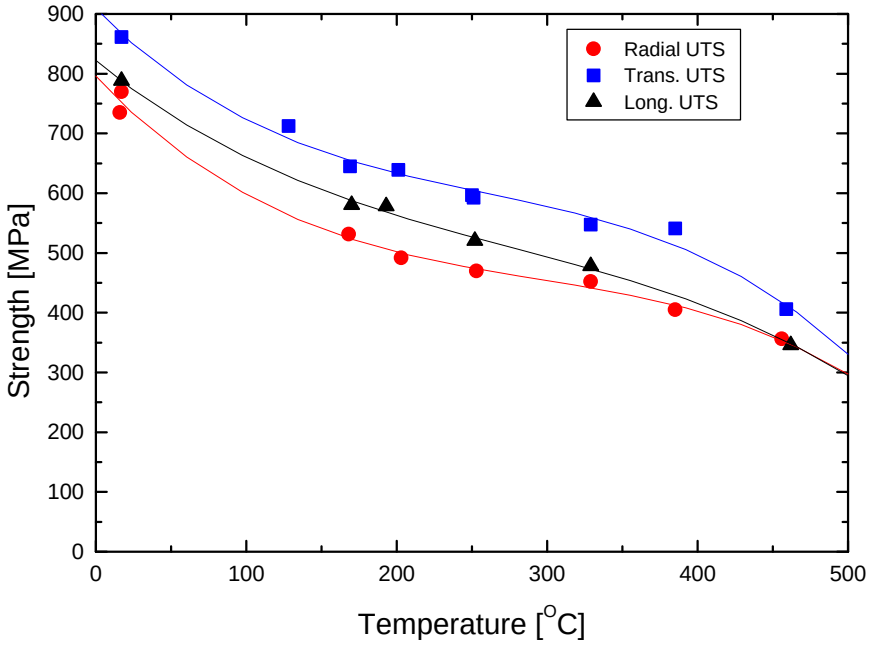

Fig. 11. Comparison of the tensile strength in the radial, longitudinal, and transverse direction.

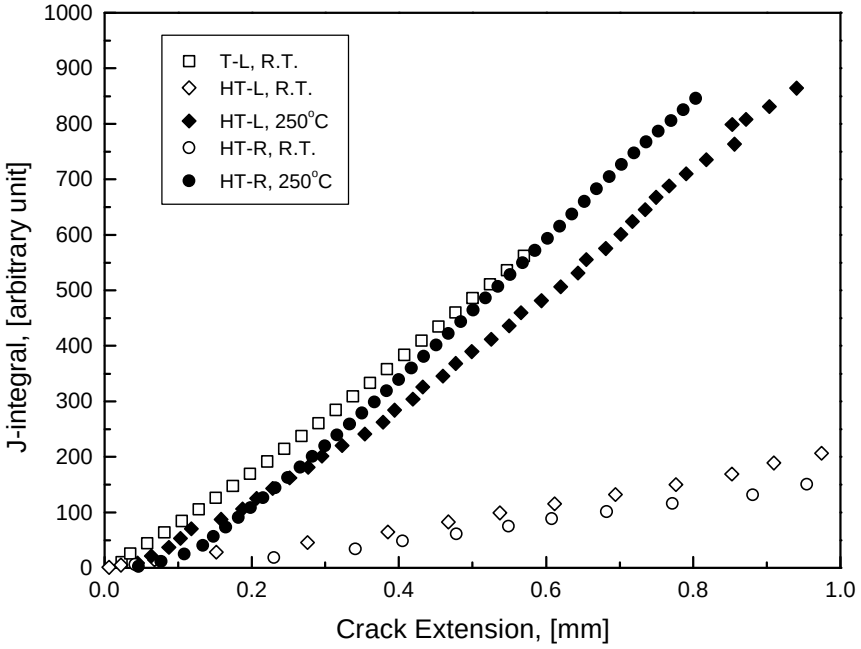

Fig. 12. J-integral and crack extension curves at RT and 250°C.