

Proceedings of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting
Seoul, Korea, October 1999

Zr-2.5%Nb 압력관 재료에서 DHC 거동에 미치는 집합조직 이방성의 영향
(The effect of the anisotropy of texture on the DHC behavior in Zr-2.5%Nb pressure tube materials)

김성수, 주기남, 임경수, 정용무, 김영석
중수로압력관재료, 한국원자력연구소
대전 유성우체국 사서함 105호 305-353

요약

Zr-2.5%Nb 합금 CANDU 압력관에서 균열 전진 방향에 따른 수소 지연 파괴 (DHC) 거동의 이방성을 설명하기 위하여 DHC 파면에서의 집합조직 변화를 시험하였다. 균열 전진 과정에서 작용하는 변형 기구는 길이 및 반경 방향에서 현저히 다른 것으로 확인되었다. 균열이 압력관의 길이 방향으로 전파할 때는 (1012) 쌍정 계가 작용하고 반경 방향으로 전파할 때는 (1121) 및 (1012) 쌍정 계가 작용하였다. 한편, 압력관 재료의 길이 방향과 횡 방향에서 나타나는 강도의 차이는 주로 집합조직의 이방성에 기인함을 확인하였다. 따라서 두 방향의 균열 전파 과정에서 작용하는 DHC 균열 전파 거동의 차이는 sub-sized CT 및 cantilever beam (CB) 시험편에서 균열 전파 방향으로의 집합조직의 이방성에 기인한 변형 기구의 차이에 의한 것이라고 결론지을 수 있었다.

Abstract

In order to explain the anisotropy of delayed hydride cracking (DHC) behavior in the longitudinal and in the radial direction in Zr-2.5%Nb pressure tube materials, the texture variations in cracking surfaces have been examined. It have been found that the deformation mechanisms operated during cracking process were significantly different in both directions. (1012) twinning system operated when the DHC crack propagate in the longitudinal direction and both (1121) and (1012) twinning system operated when the DHC crack propagate in the radial direction. Meanwhile, it could be confirmed that the differences in strength are mainly attributed to the anisotropy of the texture. Therefore, it can be concluded that the differences in crack propagation behavior between the compact tension (CT) and the cantilever specimen (CB) is due to the differences in deformation mechanisms which are resulted from the anisotropy of the texture.

1. 서론

Zr-2.5%Nb 합금 압력관 재료에서 DHC 균열 성장 속도 (DHCV)와 임계 응력 확대 계수(K_{IH})는 가동중인 압력관에서 허용되는 균열의 크기나 균열의 성장이 원자로의 안정성을 어떻게 저해하게 되는지를 판단하는데 필요한 근거 자료이다 [1,2]. 현재까지 압력관에서 길이 방향으로의 DHCV는 반경 방향으로의 DHCV에 비하여 2배정도 크고 반경 방향의 K_{IH} 는 직경 방향의 K_{IH} 에 비하여 약 1.5배정도 크다 (Fig. 1, 2) [2-8]. 또한 파괴 역학 적인 측면에서 균열의 성장은 균열면에 수직한 방향으로 가해지는 응력에 의하여 조절된다고 이해되고 있으며, 이 균열면에 수직한 방향에서의 기저면 성분이 높아지면 DHCV가 커지고 K_{IH} 는 낮아진다는 것은 이미 확인되어 있다 [3,4].

DHC에 의한 균열 성장 방향이 압력관의 길이 방향이나 반경 방향이나 하는 차이가 있지만 실제로 DHC에 의한 균열 성장 면은 같은 면이므로 이 면에서 측정된 기저면 성분은 같다는 점은 균열면에 수직한 방향에서의 기저면 성분 이외에 다른 인자가 DHCV나 K_{IH} 에 영향을 미치고 있음을 암시하고 있다. 그러나 현재까지 이것의 원인 규명이나 설명은 거의 시도되지 않았으며 아직까지 이 영향이 적절히 설명되지 않고 있는 상황이다.

따라서 본 연구에서는 길이 방향 및 반경 방향으로 성장한 DHC 균열면에 대한 XRD 조사 결과를 토대로 길이 방향과 반경 방향에서 나타나는 소성 변형의 특성을 조사하고 이 특성의 차이가 평면 변형 하에서의 균열의 성장 특성 (DHCV 및 K_{IH})에 어떻게 영향을 미치는지를 규명하고자 하였다.

2. 실험

길이 방향의 DHC 특성 시험에는 sub-sized compact tension (CT, $W=17\text{mm}$) 시험편을, 반경 방향의 DHC 특성 시험에는 cantilever beam (CB) 시험편을 사용하였다 (Fig. 3).

시험편에 수소를 투입하기 위하여 수용액에서 전해 방법으로 약 $20\mu\text{m}$ 정도의 수소화물은 형성시킨 후 300°C 에서 96시간 균질화 처리하여 약 60ppm 정도의 수소를 투입하였다.

CT 시험편은 일정 하중이 가해지는 creep tester에 CT 시험편을 장착하여 DHC 균열을 성장시켰으며, CB 시험편은 균열의 성장에 따른 음향 방출을 탐지하여 균열의 길이를 유추하고 CB 시험편에 가해지는 하중을 줄이는 시험기를 사용하였다.

DHC 시험이 끝난 후 균열 면을 XRD로 검사하여 이 각각의 시험편에서의 역극점도를 측정함으로써 이 변형 층에서 나타내는 집합조직의 변화를 측정하였다 [9]. 또한 변형 전후의 집합조직 계수를 비교하여 작성한 normalized 역극점도를 이용하여 DHC 균열 전과 과정에서 작용한 변형 기구를 확인하였다.

3. 결과 및 고찰

As-received 압력관의 역극점도는 Fig. 4에 보인 바와 같이 길이 방향에는 (1010), 반경 방향에는 (1120), 원주 방향에는 (0002) pole이 집중되어 있다.

As-received 시험편과 DHC 시험 후 균열 면에서 측정된 집합조직을 길이 방향과 반경 방향 균열에 대하여 Fig. 5 및 6에 각각 보였다. 균열 면에서 측정된 기저면 성분은 as-received 재료의 기저면 성분에 비하여 반경 방향 균열 면에서 약 10%정도, 길이 방향 균열 면에서 약 20%정도 감소하였다. DHC에 의한 균열의 전파 과정은 완전 취성 파괴 과정이 아니라 파괴 과정 중 연성 파괴가 수반된다는 것을 알 수 있다. 반경 방향으로 균열이 진전하는 CB 시험편의 경우에는 길이 방향으로 균열이 진전한 CT 시험편보다는 쌍정 변형의 작용이 적다는 것을 알 수 있다. 왜냐하면, 쌍정 변형이 일어나면 HCP 결정 구조의 c축의 회전이 일어나 기저면 성분의 변화가 나타나는데 CT 시험편에서 기저면 성분의 변화가 크게 나타났기 때문이다.

Fig. 5 c) 및 6 c)에 나타난 바와 같이 파괴 전, 후의 집합조직 계수를 비교하여 도시한 normalized 역극점도는 CB 시험편과 CT 시험편의 균열 성장 과정에서 주도적으로 작용하는 변형 기구의 차이를 명확히 나타낸다. CB 시험편에서는 (1121) 및 (1012) 쌍정 계가 작용하고 CT 시험편의 경우에는 주로 (1012) 쌍정 계가 작용한다. 또한 반경 방향으로 균열이 진전하는 경우 (1012) 쌍정 계의 작용이 분산되어 나타나는 반면 길이 방향으로 균열이 진전하는 경우에는 (1012) 쌍정 계의 작용이 집중적으로 나타난다.

Fig. 3에 보인 바와 같이 균열 진전 면에서의 집합조직은 같으나 균열 진전 방향으로의 결정 방위의 차이는 존재함을 알 수 있으며, 결정의 방위를 고려하면 길이 방향으로의 변형이 일어나는 경우 (1012) 쌍정 계에 대한 Schmid factor가 0.5로 최대가 되는 결정립이 집중되어 있다. 그러나 반경 방향으로 변형될 때는 (1012) 쌍정 계에 대한 Schmid factor가 0.5 정도 되고 (1121) 쌍정 계에 대한 Schmid factor는 0.3 정도가 되는 결정립이 분산되어 공존한다는 것을 감안하면 균열의 진행 방향에 따라 다른 쌍정 계가 작용하게 된다는 것을 예상할 수 있다 [10].

앞에서 언급한대로 길이 방향으로의 균열 성장 속도는 길이 방향에서 약 2배정도 높고, K_{IH} 는 반경 방향에서 50%정도 높은 것으로 알려져 있다 [1, 2]. 이와 같은 차이는 반드시 균열 진전 방향으로의 집합조직의 차이와 관련이 있을 것이며, 집합조직의 이방성에 따른 변형의 용이성에 기인하는 것으로 보인다.

평면 변형 조건으로 균열이 진전하는 과정에서 집합조직의 이방성(강도의 이방성)을 고려하는 것은 의미 있다. 균열이 진전하는 방향을 x 축, 균열의 진전 면에 수직한 방향을 y축, notch의 방향과 평행한 방향을 z축이라고 하고 논의를 간략화하기 위하여 각 방향에서의 응력 및 변형만을 고려한다.

파괴 과정에서의 응력의 크기는 $\sigma_{yy} > \sigma_{zz} > \sigma_{xx}$ 의 순서로 알려져 있으며, 변형 과정에서 나

타나는 변형의 합은 $\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz} = 0$ 이다. 평면 변형 과정이라면 두께 방향으로의 변형 $\epsilon_{zz} = 0$ 이므로 $\epsilon_{xx} = -\epsilon_{yy}$ 의 관계를 가진다. 즉 평면 변형 하에서는 균열 진전 면에 수직인 방향으로의 변형의 크기는 균열 진전 방향으로의 변형의 크기와 절대 값이 같고 성분은 반대이다.

균열 진전 면에 수직인 방향으로의 강도는 CB 및 CT 시험편에서 동일하고 다만 파괴 과정의 x축의 강도는 다르다. 즉, CT 시험편의 경우 압력관의 길이 방향, CB 시험편의 경우 압력관의 반경 방향이 x축이며, 집합조직의 이방성 때문에 반경 방향에서의 항복 강도가 길이 방향의 항복 강도보다 높다. 반경 방향으로의 시험편을 가공하는 것이 거의 불가능하므로 정확한 항복 강도는 알려져 있지 않지만 항복 강도와 기저면 성분의 관계를 이용하면 반경 방향에서의 항복 강도를 개략적으로 유추하는 것이 가능하다 [11].

상온에서의 항복 강도는 Fig. 7에 보인 바와 같이 기저면 성분의 증가에 따라 거의 직선적으로 증가하는 것으로 나타났으며 항복 강도는 기저면 성분에 따라 $\sigma_{ys} = 600 + 390F$ 의 관계를 가진다. 또한 750℃에서 24시간 동안 열처리하여 결정립의 모양이 등축에 가까운 정도로 성장한 시험편에 대한 시험 결과에서도 항복 강도는 $\sigma_{ys} = 400 + 420F$ 의 관계를 갖는 것으로 나타났다. 이 두 관계에서 annealing에 의한 강도의 감소는 약 200MPa로 나타났으나, 기저면 성분의 의존성을 나타내는 기울기는 390에서 420으로 약간 증가하여 오히려 annealing 처리는 기저면 성분의 의존성을 더 높이는 것으로 나타났다. 따라서 압력관의 길이 방향과 횡 방향 사이에서 나타나는 강도의 차이는 집합조직의 차이에 기인한다는 것은 잘 확인된다.

이 관계에 따르면 상온에서 반경 방향에서의 항복 강도는 길이 방향과 횡 방향의 중간 값을 가질 것으로 판단되며 기저면 성분을 근거로 유추한 반경 방향에서의 항복 강도는 상온에서 약 700MPa 정도이다. 상온에서는 반경 방향에서 길이 방향보다 약 150MPa정도 높은 값을 갖는다. 그러나 이 차이는 온도의 증가에 따라 줄어들어 Fig. 8에 나타낸 바와 같이 250℃ 정도에서는 약 10%정도 높은 것으로 예상된다.

이와 같은 반경 방향과 길이 방향의 항복 강도 차이는 파괴 과정에서 수반되는 변형에 영향을 미칠 것이며, 파괴 과정에서 x축으로 항복 강도가 높은 경우에 x축으로의 변형이 적을 것이며 파괴에 대한 저항성이 클 것이다. 왜냐하면, 어떤 응력이 주어졌을 때 항복 강도가 낮은 방향으로 먼저 변형이 일어나고 가해진 응력이 일정하다면 항복 강도가 낮은 방향에서 더 큰 변형이 나타날 것이기 때문이다. 이것은 횡 방향으로의 일 방향 인장 시험에서도 쌍정에 의한 결정립의 회전이 반경 방향보다는 길이 방향으로 더욱 현저히 나타나는 것과 유사한 현상이다 (Fig. 9).

따라서 길이 방향보다 항복 강도가 높은 반경 방향으로의 균열 진전은 길이 방향으로의 균열 진전에 비하여 상대적으로 어려울 것이며 균열 성장 속도는 낮고 K_{Ic} 는 높을 것이다. Zr-2.5Nb 압력관의 길이 방향과 반경 방향으로의 균열의 성장 거동의 차이는 균열 진전 방향으로의 항복 강도의 차이에 의한 변형의 용이성의 차이에 의한 것이라는 해석은 타당하다.

4. 결론

1. Zr-2.5%Nb 압력관에서 DHC 균열 성장 거동이 균열 진전 방향에 따라 다른 것은 균열 진전 방향에서 작용하는 변형 기구의 차이에 의한 것이며 이는 집합조직 이방성에 기인한다.
2. DHC 균열 성장 시 균열 면에 나타나는 쌍정 변형은 균열 진전 방향에 따라 다르며, CT 시편에서 (1012) 쌍정 계가, CB 시편에서 (1121) 및 (1012) 쌍정 계가 작용한다.
3. DHC 균열의 성장 거동을 해석하거나 예측하는데 있어서 균열 면에 수직인 방향에서의 강도나 집합조직에 추가하여 균열 진전 방향으로의 물성도 고려하여야 한다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구 개발 사업 중 중수로 압력관 재료 과제에서 수행되었습니다.

References

1. 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.
2. 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.
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. S. S. Kim, K. N. Choo, S. B. Ahn, S. C. Kwon, Y. S. Kim, and I. L. Kook, Proceedings of the Korean Nuclear Society Spring Meeting, Seoul, Korea, May, 1998, 93-98.
9. J. E. Winegar, Measurement of Crystallographic Texture at Chalk River Nuclear Laboratories, Atomic Energy of Canada Limited Report AECL-5626 (1977).
10. E. Tenckhoff, ASTM special technical publication, STP 966, 1988.
11. S. S. Kim, Y. S. Kim, S. C. Kwon, S. B. Ahn, and K. N. Choo, Transactions of the 15th International Conference on SMiRT, 1999, Vol. X, pp.263-274

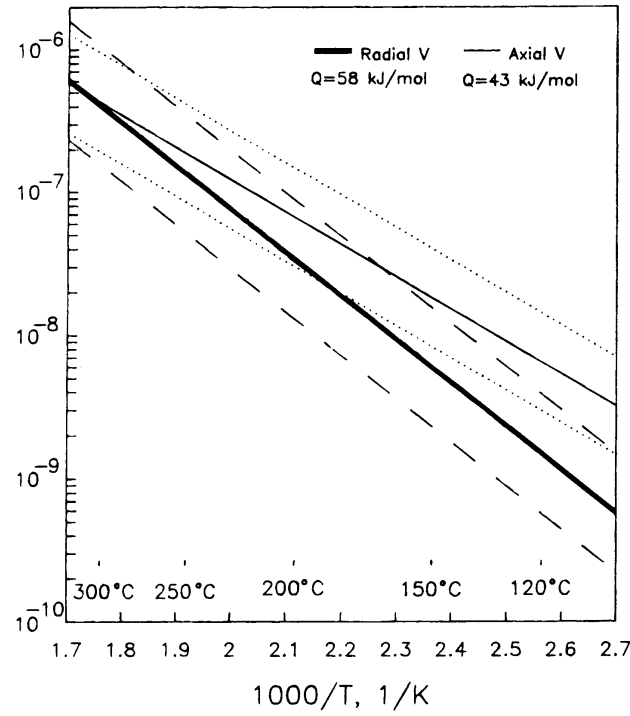


Fig. 1. Comparison between radial and axial DHC velocity [1].

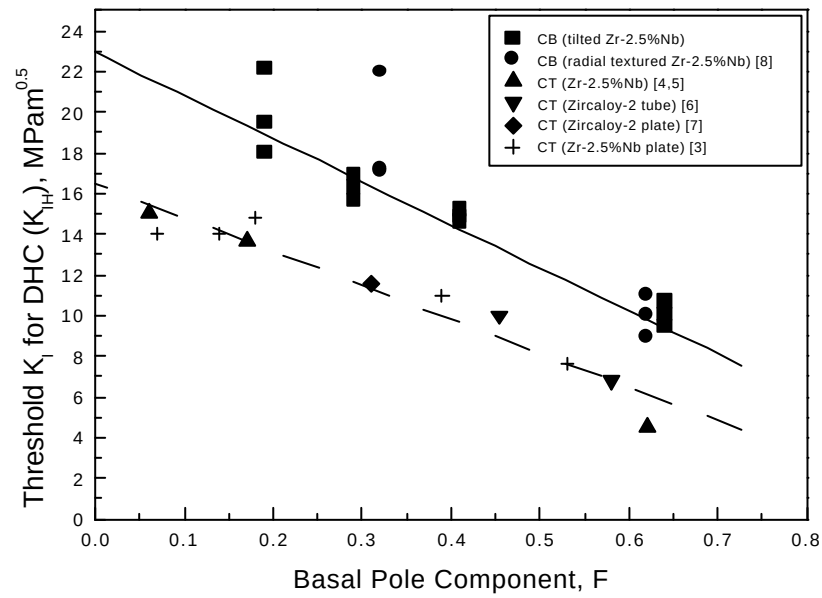


Fig. 2. Comparisons of K_{IH} measured from CT and CB specimens with the basal pole components in Zircaloy-2 and Zr-2.5%Nb materials [2-8].

a) cantilever beam specimen

b) curved compact tension specimen

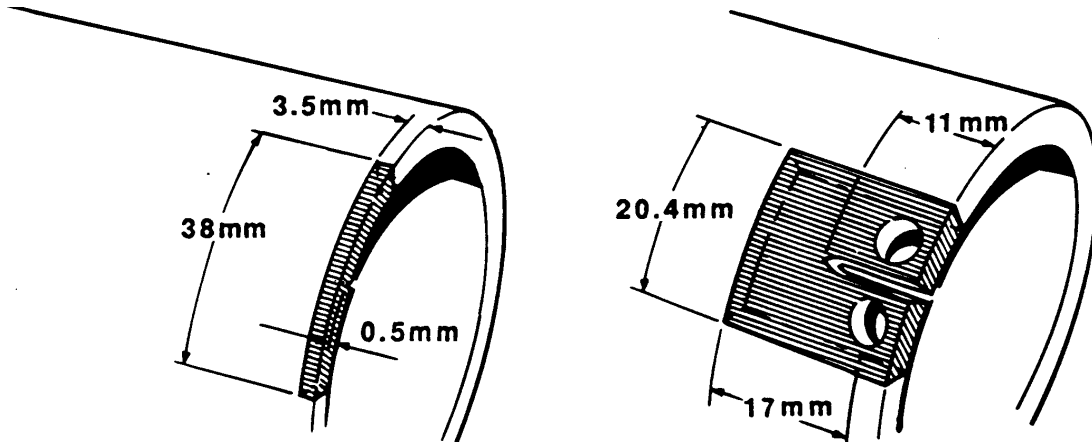


Fig. 2. Schematic illustration of a) cantilever beam (CB) and b) curved compact tension (CCT) specimens [1].

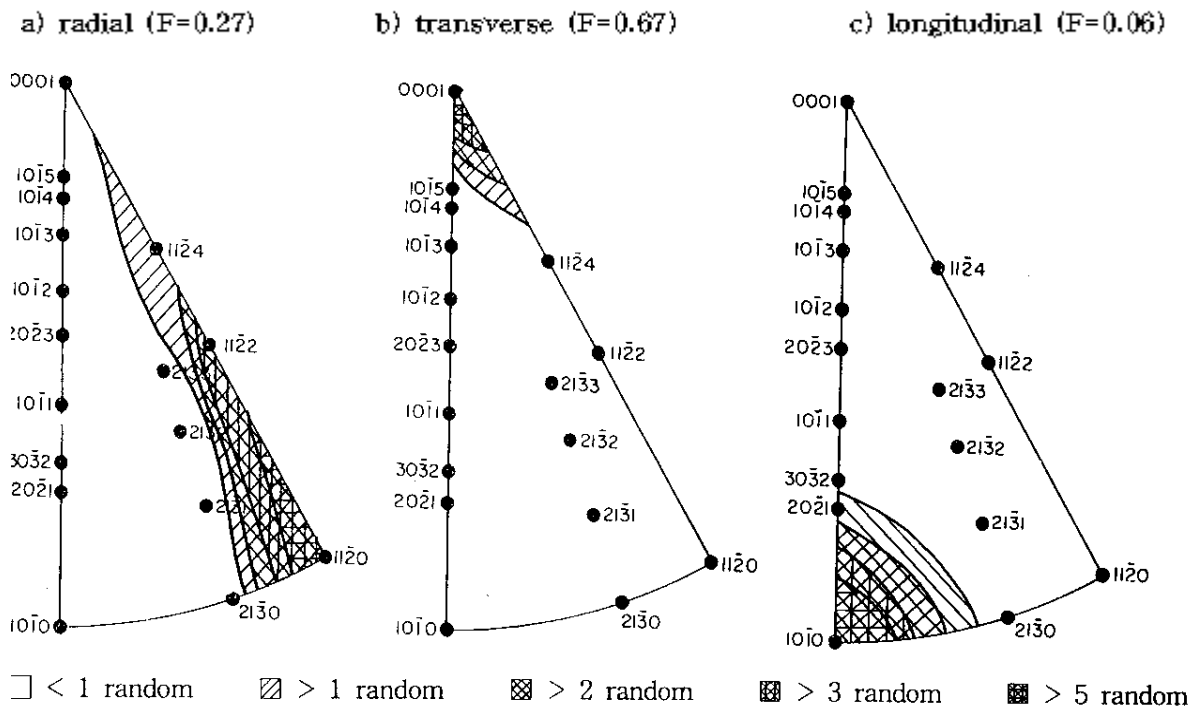


Fig. 4. Inverse pole figures for as-received Zr-2.5%Nb pressure tube material.

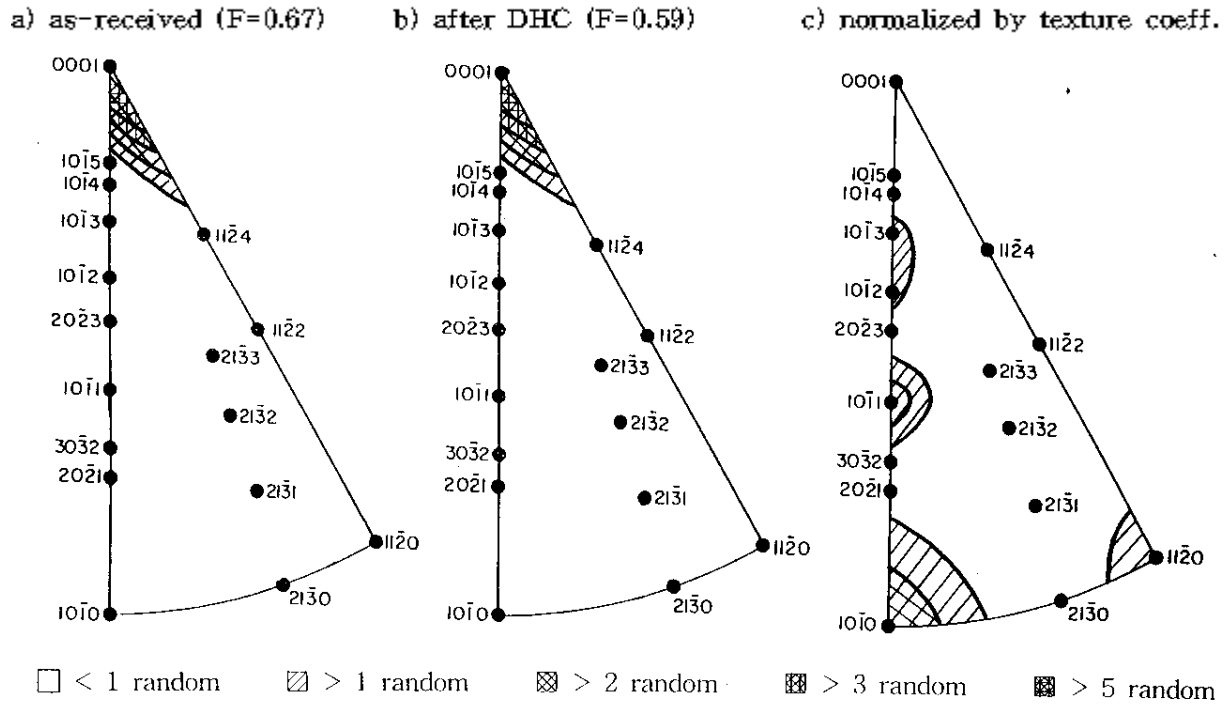


Fig. 5. Comparison of inverse pole figures before and after DHC in the radial direction.

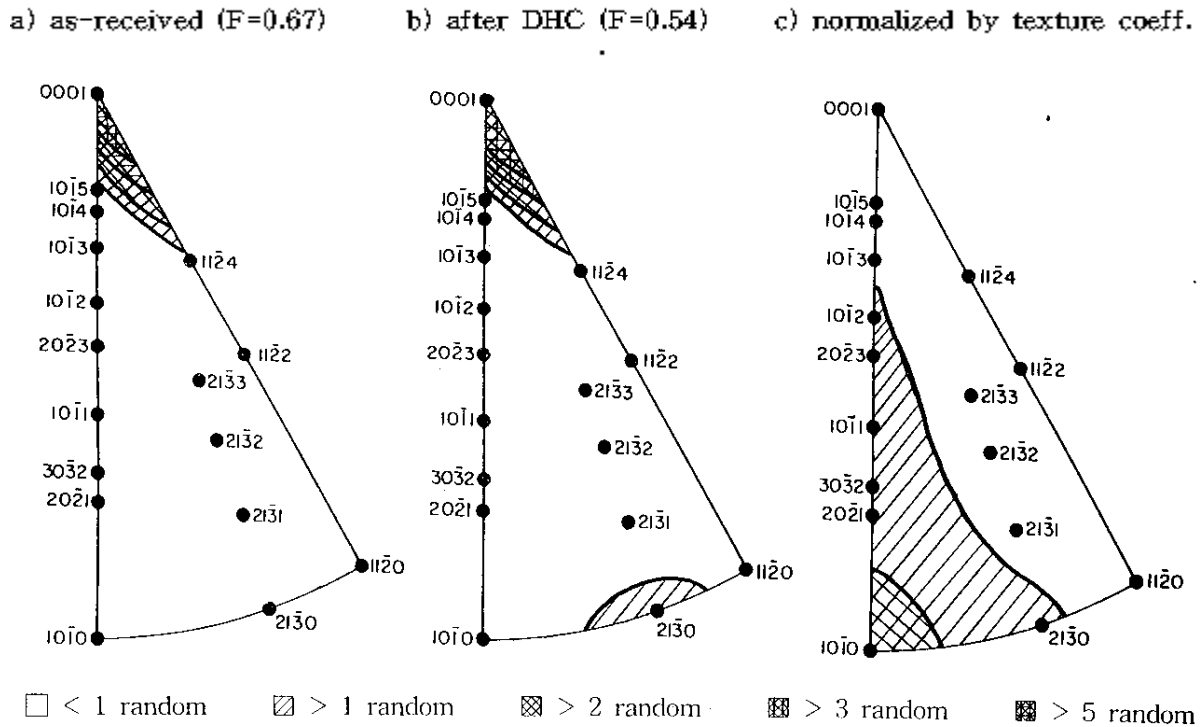


Fig. 6. Comparison of inverse pole figures before and after DHC in the longitudinal direction.

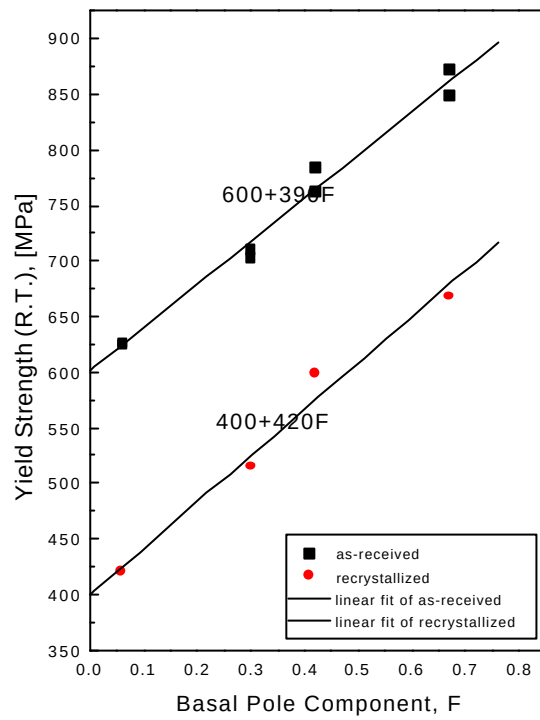


Fig. 7. The basal pole component dependency of yield strength at room temperature.

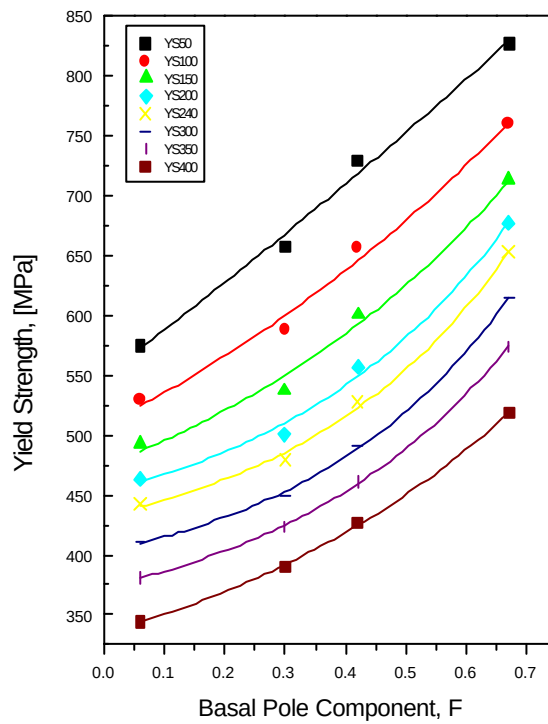
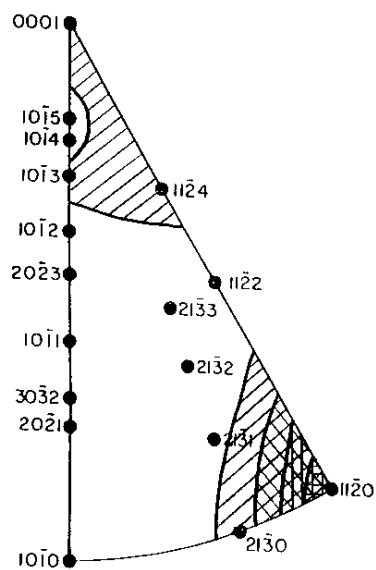
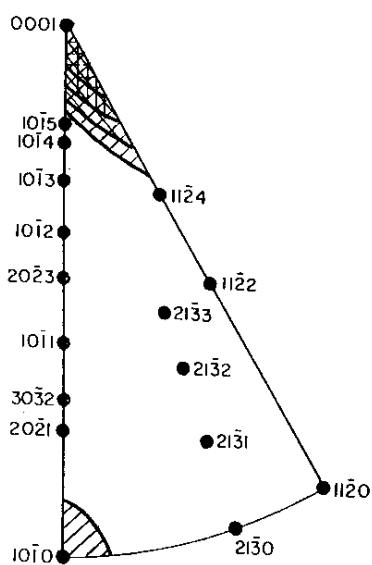


Fig. 8. The basal pole component dependency of yield strength at various temperatures.

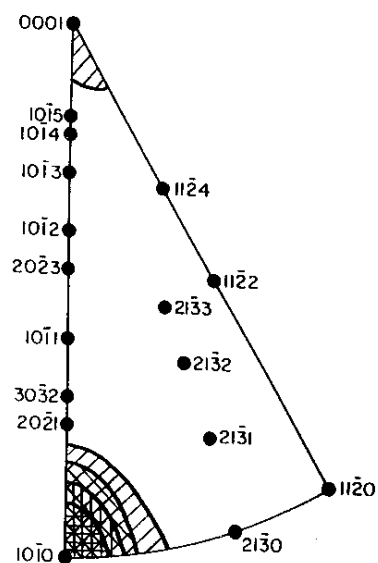
a) radial (F=0.32)



b) transverse (F=0.59)



c) longitudinal (F=0.09)



□ < 1 random ▨ > 1 random ▩ > 2 random ▪ > 3 random ▫ > 5 random

Fig. 9. Inverse pole figures for the tensile specimen after tensile testing at room temperature.