

Zr-2.5%Nb 압력관 재료에서 반경 방향 K_{IH} 의 집합조직 의존성

**The texture dependence of K_{IH} in the radial direction
in Zr-2.5%Nb pressure tube materials**

김성수, 김영석, 정용무, 권상철, 주기남

한국원자력연구소

대전 유성구 유성우체국 사서함 105호

요약

Zr-2.5%Nb CANDU 압력관에서 반경 방향으로의 K_{IH} 에 대한 집합조직 의존성을 조사하였다. 압력관을 reverse bend 방법으로 펴고 cantilever beam 시험편의 가공 방향을 다르게 변화시킴으로써 균열 면에서의 집합조직을 변화시켰다. 250°C에서 측정된 K_{IH} 는 기저면 성분의 증가에 따라 직선적으로 감소하였다. 균열 면이 기저면 성분이 가장 높은 횡 방향에 수직인 시편의 경우 K_{IH} 는 가장 낮았으며 $K_{IH} = 9 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 정도로 나타났다. K_{IH} 의 집합조직 의존성은 기저면 성분 (F)과 연성 기지의 분률 (1-F)을 혼합물 법칙에 적용하여 적절히 설명할 수 있었다.

Abstract

The texture dependency of K_{IH} in the radial direction was investigated in Zr-2.5%Nb pressure tube materials. The flat cantilever beam specimens were machined at various angles from the longitudinal direction using flattened pressure tube materials, and therefore, the textures of the cracking planes in the cantilever specimens varied. The K_{IH} 's measured at 250°C decrease linearly with an increase in the basal pole components. The K_{IH} in the transverse direction specimen having the highest basal pole component showed the lowest values, $\sim 9 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$. The texture dependency of K_{IH} can be explained by the rule of mixture using the basal pole component (F) and a fraction of the ductile matrix (1-F).

1. Introduction

CANDU 원자로에서 압력 용기로 사용되고 있는 Zr-2.5%Nb 합금 압력관은 수소 지연 파괴 (delayed hydride cracking, DHC) 기구에 의한 손상으로 Canada에서는 냉각재 누설 사고를 일으킨 바 있다. DHC 기구는 부식 과정에 의한 수소의 발생, 흡수, 고용한도 이상의 수소 농도에서 수소화물이 석출하는 조건이 만족될 때, 수소화물 파괴와 석출의 반복 과정으로 나타나는 것으로 이해되고 있다 [1].

압력관에서 DHC 균열 성장 속도 (DHCV)와 임계 응력 확대 계수(K_{IH})는 압력관에서 허용되는 균열의 크기나 균열의 성장이 원자로의 안정성을 어떻게 또는 얼마나 빨리 불안정 상태로 가게 되는지를 판단하는데 필요한 근거자료이다. 현재까지 압력관의 길이 방향으로의 DHCV는 반경 방향으로의 DHCV에 비하여 2배정도 크고 K_{IH} 는 직경 방향에서 약 1.5-2배정도 큰 것으로 보고되어 있다 [2]. 또한 CT 시험편에서 균열 면에 수직인 방향에서의 기저면 성분이 높아지면 DHCV가 커지고 K_{IH} 는 낮아진다는 것은 잘 확인되어 있다 [3-6].

그러나 cantilever beam specimen(CB)을 사용하여 균열 면에서의 집합조직의 변화가 반경 방향으로의 K_{IH} 변화에 미치는 영향은 아직까지 조사되지 않았다. 따라서 본 연구에서는 Zr-2.5%Nb 합금의 CANDU 압력관을 reverse bend 방법으로 펴고 CB specimen을 압력관의 횡 방향으로부터 여러 방향으로 가공하여 CB 시험편의 균열 면에서의 집합조직을 변화시킨 후 K_{IH} 에 미치는 집합조직의 영향을 체계적으로 조사하였다. K_{IH} 에 미치는 집합조직의 영향은 균열 면에 수직인 방향에서의 기저면 성분 (F)과 연성 기지 분률 (1-F)을 혼합물 법칙에 적용하여 적절히 설명할 수 있었다.

2. 실험

CANDU 원자로에 사용되는 Zr-2.5%Nb 압력관을 reverse bend 방법으로 편 후, flat cantilever 시험편을 균열 진전 면이 초기 압력관의 횡 방향에 대해서 0, 30, 45, 60, 90° 회전되도록 가공하여 균열 진전 면에서의 집합조직을 변화 시켰다 (Fig. 1). 시험편의 길이는 25.4mm, 폭은 3.2mm, 균열 진전 방향으로의 두께는 4.2mm 정도로 가공하였다.

수용액에서 전해 방법으로 시험편의 표면에 수소화물을 형성시킨 후 300°C에서 96시간 동안 균질화 처리한 후 수소 함량을 분석한 결과 수소는 60ppm으로 나타났다. 이 방법으로 수소를 장입한 후에도 표면에는 수소화물이 잔류하고 있지만 수소량과 동일한 고용한도 이내에서 시험하는 경우에는 soaking 처리 온도를 적절히 선택하면 이 표면 수소화물의 영향을 무시할 수 있다. Reverse bend 방법에 의한 냉간 가공의 영향을 제거하기 위하여 400°C에서 88시간 동안 응력 제거 처리하였다.

집합조직은 Cu K α radiation을 사용하여 측정된 회절 강도 자료와 Zr 합금 분말로부터 구한 random 시험편의 회절 강도를 사용하여 inverse pole figure를 작성하였으며, 이로부터 기저면 성분(basal pole component, F)을 계산하였다 [7].

K_{IH} 측정에는 하중 감소법(load reducing method)이 사용되었으며 시험은 AECL-CRL에 절차에 따라 60ppm인 경우 307°C에서 1시간 동안 유지(soaking)후 냉각되어 250°C에서 측정되었다. 시험기의 개략도

는 Fig. 2에 보인 바와 같다. 균열의 전파 여부는 음향 검출 (acoustic emission, AE)에 의하여 확인하였으며 24시간 균열이 전파하지 않는 K_{II} 를 K_{III} 로 정의하였다.

K_{III} 시험기에서 하중을 가하거나 제거하는 데는 stepper motor가 사용되었으며 하중을 감지하는 데는 load cell이 사용되었다. 이들 신호는 컴퓨터로 감시되어 조절되며 AE count로부터 계산된 균열의 길이가 $3\mu\text{m}$ 에 이르면 하중을 3% 줄이도록 조건을 설정하였다.

시험 중 실제의 균열 길이는 알 수 없으므로 정확한 K_{III} 는 시험이 끝난 후 시편을 파괴하여 crack area를 측정하고 이 면적을 균열 길이로 환산하여 K_{II} 를 재 계산하였다. K_{III} 의 계산에는 다음의 관계식이 사용되었다 [8].

$$K_{II} = 4.12 M(X^{-3}-X^3)^{0.5}/BD^{1.5} \quad (1)$$

여기서 M은 bending moment (grip weight x length of center of gravity of bar + applied force x distance from notch to loading point)이고, B는 시편의 폭, D는 시편의 살 두께, A는 균열의 깊이, $X=1-A/D$ 이다.

3. 결과

시험편에서의 수소화물의 분포는 Fig. 3에 보인 바와 같이 시편의 기울임 각도에 따라 약간 차이를 나타냈다. 균열 면이 횡 방향에 수직한 시편을 제외하고는 수소화물의 배열 방향이 시편 두께의 1/2 정도 되는 부분에서 다르게 나타났다. 이것은 reverse bend 과정에서 발생한 변형과 관련한 잔류 응력의 차이 때문인 것으로 추측된다.

시험편의 가공 각도에 따른 K_{III} 를 Fig. 4에 나타내었다. 기울임 각도가 90° (T)인 경우에는 curved cantilever specimen에서 균열이 성장하는 경우와 거의 같으므로 잘 알려진 바와 같이 가장 낮은 K_{III} 를 나타내었다. Tilt angle이 증가함에 따라 K_{III} 는 감소하였으며, 이는 시험편의 회전에 따라 균열 면에 수직한 방향에서의 기저면 성분의 증가에 기인한 것으로 보인다.

그림에는 나타내지 않았지만 균열 면에 수직한 방향에서의 집합조직은 횡 방향으로 회전각이 증가함에 따라 결정의 방위가 (0002) pole로부터 멀어지며 기저면 성분은 감소하였다.

기저면 성분에 따른 K_{III} 는 Fig. 5에 나타내었다. 예측된 바와 같이 회전각이 증가함에 따라 기저면 성분은 감소하였으며, 기저면 성분이 증가함에 따라 K_{III} 는 직선적으로 감소하였다. 균열 면에서의 기저면 성분이 0.06 정도인 길이 방향 시편에서는 DHC에 의한 균열을 형성시킬 수 없었다.

Tilt angle에 따른 파면의 변화 양상을 Fig. 6에 저 배율 광학 사진으로 비교하여 나타내었다. 90° 회전한 시편에서 균열의 진전이 가장 잘 일어나며, 이것은 균열 진전 면에서의 기저면 성분이 가장 높은 것에 기인하는 것으로 보인다. 시험편이 회전에 따라 균열의 진전은 회전한 각도와 관련되어 비틀어지는 것으로 보이며, 회전 각도가 작아짐에 따라 균열 면에서 대해서 DHC 균열의 각도가 커지는 것으로 보인다.

4. 논의

본 연구에서 사용한 집합조직의 변화 방법은 reverse bend에 의하여 압력관을 펴서 사용했다는 것을 제외하고는 동일한 이력을 갖는 재료에서 집합조직을 변화시킨 것이기 때문에 이들 시편에서의 K_{IH} 비교는 집합조직의 영향만을 분리하여 평가하는데 매우 유용한 방법으로 판단된다. 하나의 재료에서 시험편을 채취하기 때문에 집합조직을 제외한 모든 미세조직의 변화를 최소화 할 수 있기 때문이다.

Fig. 5에 보인 바와 같이 임계 응력 확대 계수 K_{IH} 는 $F=0.19\sim 0.64$ 의 기저면 성분 범위에서 기저면 성분의 증가에 따라 직선적으로 감소하였다. 이 결과는 균열 면에 수직인 방향에서의 기저면 성분이 높은 경우 K_{IH} 가 낮다고 보고한 Coleman 등의 실험 결과와 잘 일치하고 있다 [3,4]. Zr-2.5%Nb 합금 및 Zircaloy-2에서의 K_{IH} 를 함께 도시한 Fig. 7에 함께 도시한 경우에도 두 합금의 K_{IH} 는 거의 차이가 나타나지 않았으며 [3,4,8,9,10] 이것은 α -Zr이 두 합금의 중요 상이기 때문으로 보인다.

DHC에 의한 균열의 성장은 균열 선단에서의 수소화물의 성장과 파괴의 반복 과정에 의하여 일어나므로 수소를 함유한 Zr-합금은 균열 면에 평행한 수소화물이 석출하지 않는 연성 기지와 균열 면에 평행한 수소화물이 석출하는 취성 수소화물의 혼합물로 구성된 복합물로 생각될 수 있다. 즉, Fig. 8에 나타난 바와 같이 여기서 취성 수소화물의 방향성을 고려하여 균열 면에 수직인 방향으로의 기저면 성분 (F)은 취성 수소화물의 분률로, 수소화물을 제외한 만큼의 분률($1-F$)은 연성 기지로 생각한다. 따라서 기저면 성분에 따른 K_{IH} 의 감소 거동은 혼합물의 법칙을 사용하여 균일하게 분산된 복합물로 해석하는 것이 가능할 것이다 [6].

위에서 설명한 바와 같이 F 는 DHC에 예민한 부피 분률이고, $(1-F)$ 는 연성 기지의 분률이라면 K_{IH} 는 기저면 성분에 따라 다음과 같이 표시될 수 있다.

$$K_{IH} = F \times K_{IC \text{ of Zr-hydride}} + (1-F) \times K_{IC \text{ of hydrided matrix}} \quad (2)$$

여기서 $K_{IC \text{ of Zr-hydride}}$ 는 수소화물의 파괴 인성으로 $K_{IC} = 1\sim 3 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 정도로 보고되어 있으며, $K_{IC \text{ of hydrided matrix}}$ 는 DHC에 둔감한 연성 기지의 파괴 인성이다. 여기서 연성 기지의 파괴 인성은 통상의 동적 파괴 인성이 아니라 정적 파괴 인성이 적용되어야 할 것으로 사료된다.

식 (2)의 첫째 항은 취성을 가진 수소화물과 관련된 양이고 둘째 항은 수소화물과 섞여 있는 연성 기지와 관련된 양이다. 이 식을 사용하여 기저면 성분의 증가에 따라 K_{IH} 가 감소하는 경향을 적절히 설명할 수 있다.

$K_{IC \text{ of hydrided matrix}}$ 는 CT 시험편에서 측정된 경우 $F=0$ 에서 $\sim 16 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 정도로 나타나고 본 연구에서 반경 방향으로 균열이 진전하는 경우에는 $F=0$ 에서 $\sim 23 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 정도이다 (Fig. 7). 이 값은 $F=0.61$ 인 수소 투입 압력관의 횡 방향에서의 동적 파괴 인성, $K_{IC} = \sim 25 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 보다 낮은 값이다 [11-13]. 이 값은 수소를 함유한 기지의 파괴 인성 ($K_{IC \text{ of hydrided matrix}}$)보다 낮은 값이지만 K_{IC} 는 DHC 시험의 경우보다 동적인 성질을 측정하는 것이므로 차이가 날 수 있다고 사료된다.

본 연구에서는 반경 방향으로의 K_{II} 에 대한 집합조직 의존성을 조사하였지만 Fig. 7에서 CT와 CB 시험편에서의 K_{II} 는 약 30% 정도 높은 값을 나타낸다. CANDU 압력관 재료에서는 결정립의 [0002] 방위가 횡 방향을 중심으로 집중되어 있으며, 아울러 반경 방향으로 40° 정도도 분산되어 있다. 따라서 균열의 성장에 따른 결정 방위의 차이가 발생할 것이며, 균열 성장 방향에 따라 DHC 특성이 다르게 나타날 것으로 보인다

한편 길이 방향 시편의 notch 선단에 피로 균열을 형성시키지 않고 시험한 경우, 시작 조건인 K_I APPLIED = 17 MPa√m에서도 균열이 진전하지 않았으며 시편 notch 주위의 bending이 일어났다. 이것은 시험 중 재료에 가해지는 모멘트로부터 발생하는 notch 선단의 fiber stress가 재료 표면의 항복 강도보다 높아져 시편의 bending이 먼저 일어나기 때문으로 보인다. 시편에 가해지는 fiber stress를 줄이기 위해서는 피로 균열을 성장시켜 일정한 K_I 를 가하는데 필요한 하중을 줄이는 것이 가능하지만, 균열의 성장 면에 수직한 방향이 길이 방향인 시편의 경우와 같이 항복 강도는 낮고 일반적으로 K_{II} 는 높은 시편의 경우 DHC 시험 자체가 매우 어렵다. 이 경우 시험 초기에 20 MPa√m를 가하여도 균열이 진전하지 않으므로 K_{II} 를 측정할 수 없었다.

K_{II} 는 주어진 응력 하에서 DHC 기구에 의하여 균열이 성장하기 시작하는 지에 대한 하나의 판단 조건이다. 통상 K_{II} 는 하나의 값이라기보다는 어느 범위로 보고되며 이는 시험편들의 미세조직 차이에 기인한 것이다. 그러나 만약 결함의 해석에 있어서 보수성이 가장 중요한 판단 기준이라면 균열이 성장하기 시작할 지를 결정하는데 있어서 가장 낮은 값이 더욱 중요할 것이다 [6].

Shi 등에 따르면 균열 선단에 석출하는 수소화물이 두께는 일정한 상태로 수소화물의 길이가 성장하는 조건하에서 균열 선단에 가해지는 응력이 수소화물의 파괴 응력을 초과하면 균열의 성장이 시작된다고 할 때 석출되는 수소화물이 두꺼워지면 두께의 제곱근에 따라 K_{II} 가 증가한다는 것을 제안한 바 있다 [14]. 또한 이 모델은 중성자 조사에 의한 항복 강도의 증가가 약간의 K_{II} 감소를 설명할 수 있으며, 주어진 미세조직에서 실험적인 측정치와 상당히 일치하는 결과를 보인다는 것이다. 그러나 균열의 시작에 있어서의 K_{II} 는 집합조직에 따라 다르다는 사실은 이미 보고되어 있으므로 [6,8,9], K_{II} 를 평가하거나 예측하는 모델에서는 집합조직의 영향을 고려해야만 할 것으로 보인다.

5. 결론

Reverse bend 방법으로 편 압력관을 사용하여 K_{II} 의 집합조직 의존성을 조사한 결과는 균열 면에서의 기저면 성분의 증가에 따라 직선적으로 감소하는 경향을 보여 다른 방법으로 조사한 결과와 잘 일치하는 것으로 나타났다. Zr-2.5%Nb 합금에서의 K_{II} 의 집합조직 의존성은 기저면 성분과 연성 지지 분율을 혼합물 법칙에 적용하여 잘 설명될 수 있다. 따라서 Zr-2.5%Nb 합금의 K_{II} 를 예측하거나 해석하기 위해 개발된 모델에는 집합조직의 효과를 반영할 수 있는 인자를 도입하는 것이 타당하다.

감사의 글

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

참고 문헌

1. C. E. Coleman, and J. F. R. Ambler, Reviews on Coatings and Corrosion III (1979), AECL-6250.
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. C. E. Coleman, S. Sagat, and K. F. Amouzouvi, Control of Microstructure to Increase the Tolerance of Zirconium Alloys to Hydride Cracking, 26th Annual Conference of Metallurgists Canadian Institute of Mining and Metallurgy, Atomic Energy of Canada Limited Report AECL-9524 (1987).
4. 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.
5. C. E. Coleman, Zirconium in the Nuclear Industry, Fifth Conference, ASTM STP 754, 1982, pp. 393-411.
6. S. Sagat, J. F. R. Ambler and C. E. Coleman, Application of Acoustic Emission to Hydride Cracking, AECL report AECL-9258.
7. J. E. Winegar, Measurement of Crystallographic Texture at Chalk River Nuclear Laboratories, AECL-5626, 1977.
8. H. Huang, and W. J. Mills, Metal Transactions A 22A (1991), pp.2149-2060.
9. W. J. Mills, and F. H. Huang, Eng. Frac. Mech, 39(1991), pp. 241-257.
10. S. S. Kim, S. C. Kwon, and Y. S. Kim, J. Nucl. Mater, to be published.
11. A. C. Wallace, G. K. Shek, and O. E. Lepik, Zirconium in the Nuclear Industry, Eighth International Symposium, ASTM STP 1023, 1989, pp.66-88.
12. L. A. Simpson, and C. W. Chow, Fracture Mechanics: Eighteenth Symposium, ASTM STP 939, 1987, pp. 579-596.
13. C. K. Chow, and L. A. Simpson, Case Histories Involving Fatigue and Fracture Mechanics, ASTM STP 918, 1987, pp. 78-101.
14. S. Q. Shi and M. P. Puls, J. of Nucl. Mater, 208 (1994), pp. 232-242.

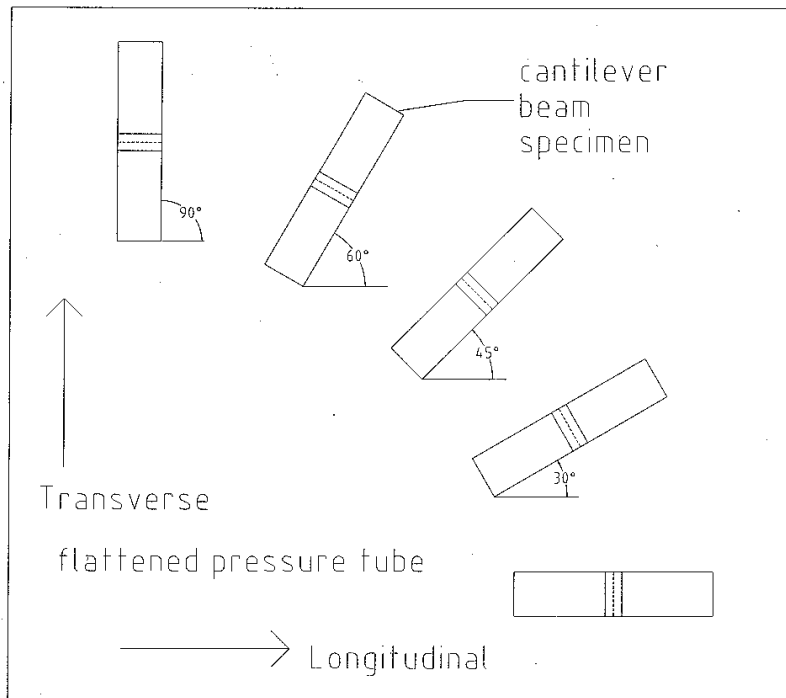


Fig. 1. Schematic illustration of machining of cantilever beam specimen.

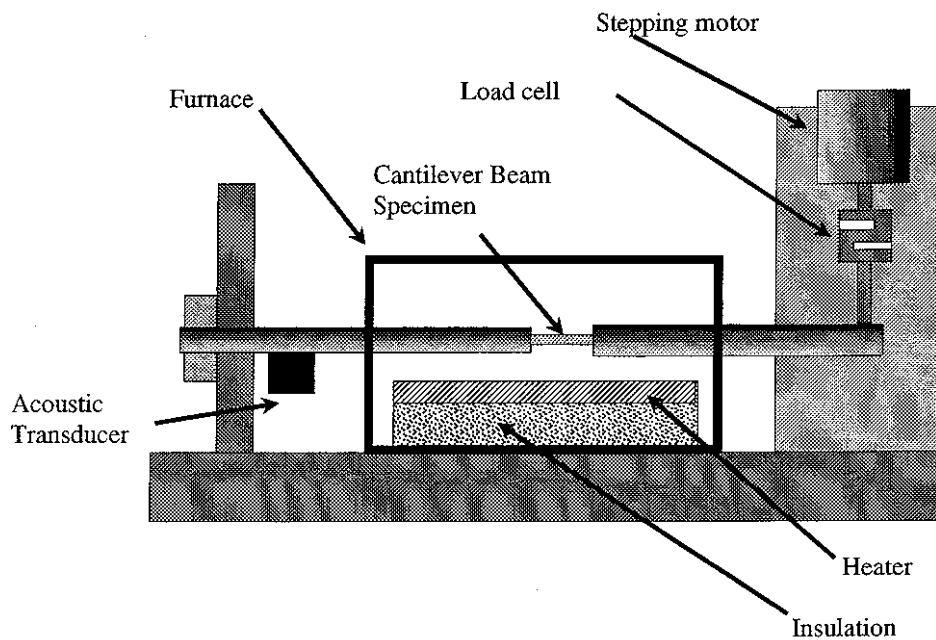
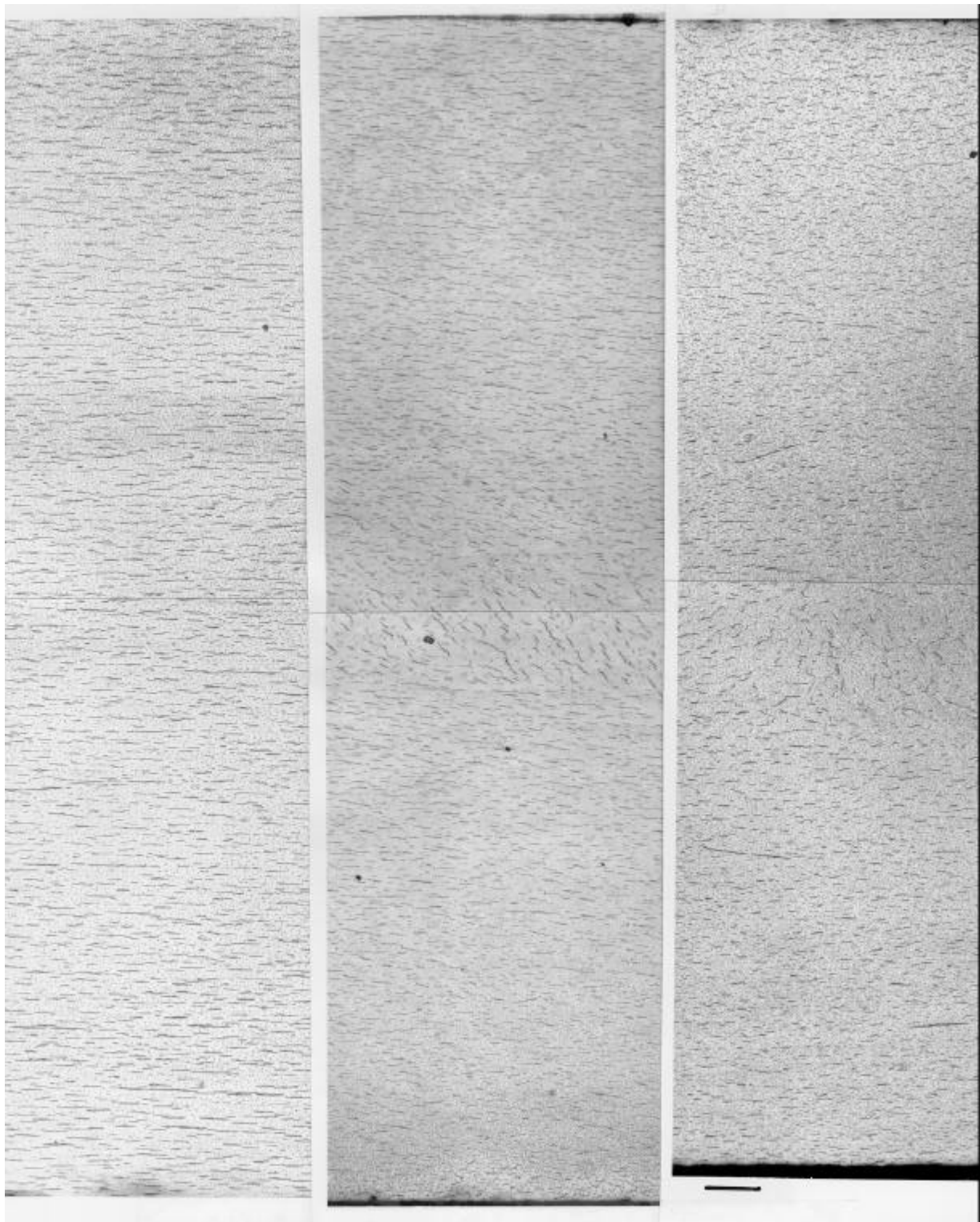


Fig. 2. Flat Cantilever Specimen Machining Diagram in Flatten Pressure Tube.

a) 90° tilt (T)

b) 60° tilt

c) 45° tilt



200 μ m

Fig. 3. Hydride morphologies for cantilever beam specimen, a) 90° (T), b) 60° , c) 45° tilted CB.

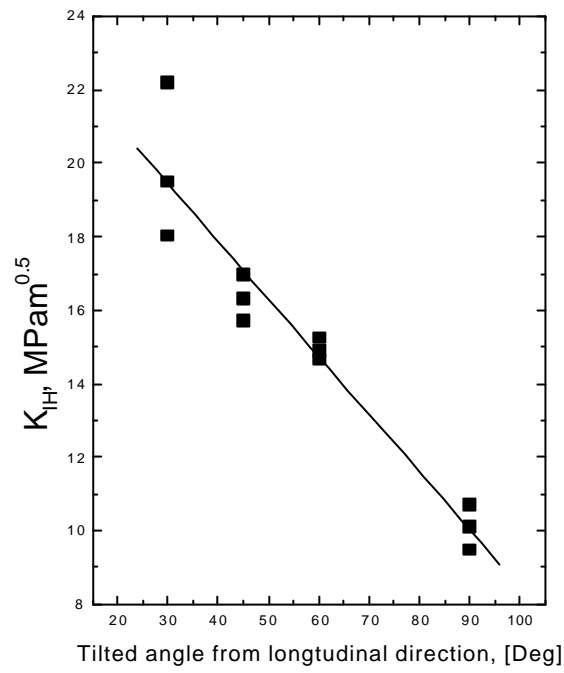


Fig. 4. K_{IH} Variation with Tilted Angle in Flatten Pressure Tube.

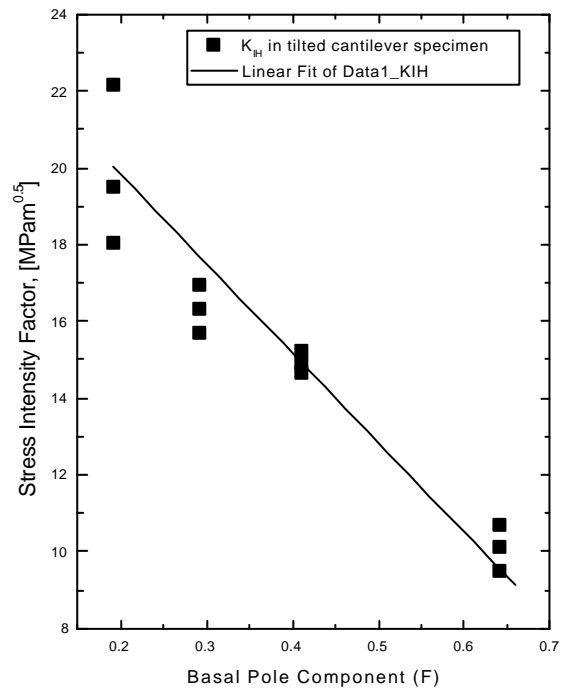


Fig. 5. K_{IH} Variation with Basal Pole Component in Flatten Pressure Tube

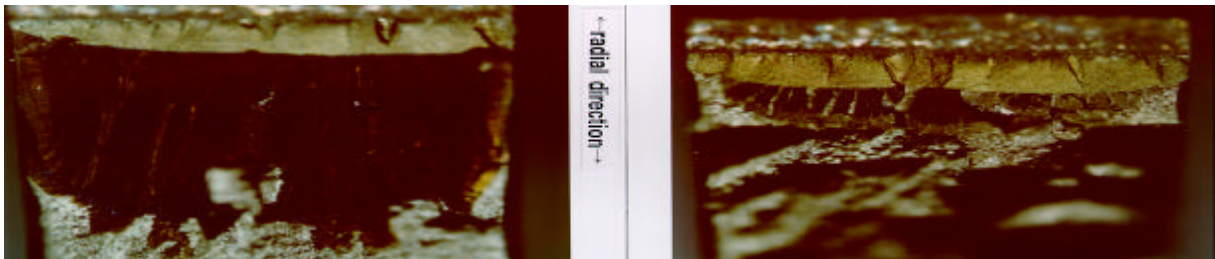
a) 90° tilt (T)



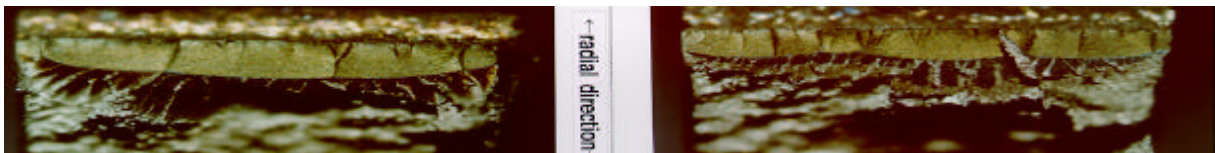
b) 60° tilt



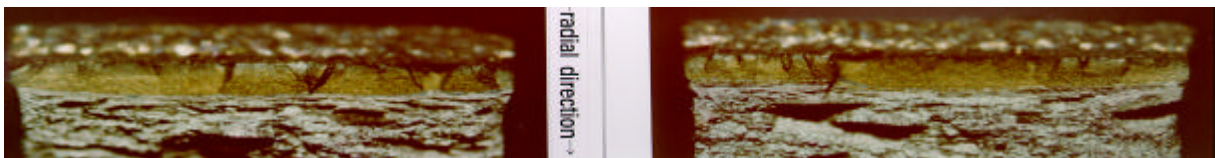
c) 45° tilt



d) 30° tilt



e) 0° tilt (L)



1 mm

Fig. 6. Low Magnified Fracture Surfaces in Tilted Cantilever Specimen, a) 90° (T), b) 60° , c)45° , d) 30° , and e) 0° tilt (L).

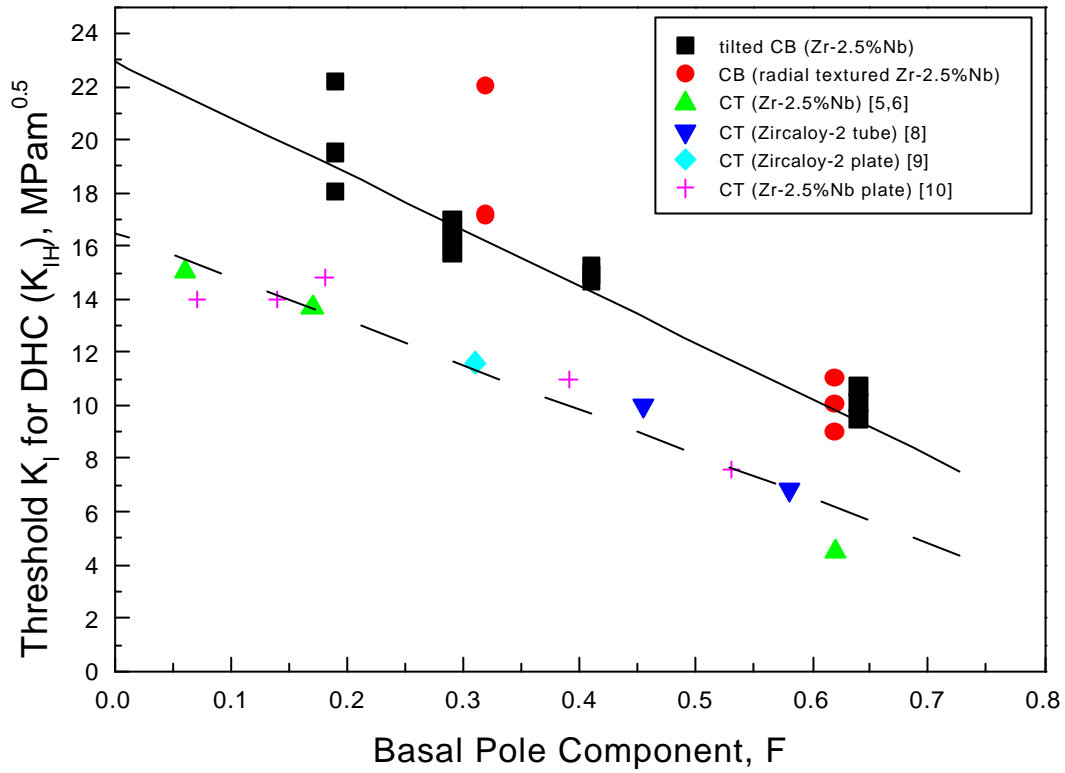


Fig. 7. The texture dependency of K_{IH} in Zr-alloys from CT and CB specimens [3,4,8,9,10].

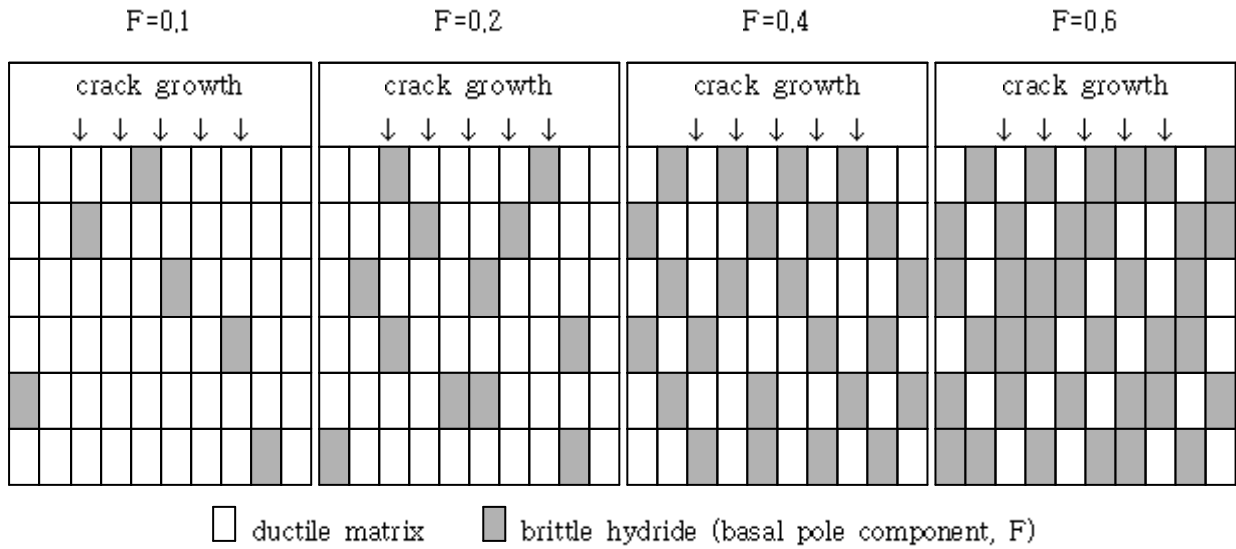


Fig. 8. Schematic illustration of Zr-2.5%Nb material like a mixture composed of the brittle hydride (F) and ductile matrix ($1-F$).