99 년춘계학술발표회논문집
한국원자력학회

Zr-2.5Nb 합금에서 DHC 시작 임계 응력집중세기

Critical Stress Intensity Factor, K_{1H} for an Initiation of Delayed Hydride Cracking in Zr-2.5Nb Alloy

김영석, 권상철, 김성수, 정용무, 주기남
지르코늄팀, 한국원자력연구소, 대전시 유성구 덕진동 150 번지

요약

본 연구의 목적은 Zr-2.5Nb 합금에서 DHC 시작 임계 응력집중세기, K_{1H}를 결정하는 제어인자를 규명하는 것이다. 200 ppm의 수소가 장입된 17mm 폭의 compact tension 시편에서 피로크랙을 Zr-2.5Nb 압력관의 길이방향에서 원주방향으로 변화시켰다. 길이방향의 피로크랙에서는 DHC 크랙은 응력에 수직하게 전파되었으며, 5 MPa√m 의 낮은 K_{1H}가 얻어졌다. 그러나 피로크랙이 원주방향으로 존재할 때, DHC 크랙은 응력방향의 수직하게 진전되지 않고 피로크랙면에서 상.하로 75 도로 기울어진 2 개의 새로운 크랙이 형성되면서 그 각도로 진행하였고, 18 MPa√m 의 높은 K_{1H}가 얻어졌다. Zr-2.5Nb 압력관의 K_{1H} 값이 크랙면에 따라 변화되는 것을 수화물의 상주면 $\{10\bar{1}7\}$이 크랙면과 만나는 각도의 관점 즉 크랙면에서 평행한 기저면 성분의 크기 관점에서 토의하였다.

ABSTRACT

The objective of this study is to determine a controlling factor to K_{1H} for an initiation of Delayed Hydride Cracking (DHC) in Zr-2.5Nb alloy. The fatigue crack of the compact tension specimen (17mm width) charged with 200 ppm H changed from the longitudinal to the circumferential directions. The Zr-2.5Nb specimen with a fatigue crack lying in the longitudinal direction had the lowest K_{1H} of 5.5 MPa√m with the DHC crack growing normal to the tensile load. To the contrary, the Zr-2.5Nb specimen with a fatigue crack lying in the circumferential direction showed the highest K_{1H} of 18 MPa√m with the DHC crack branching into 2 cracks tilting at a 75 degree to the fatigue crack plane. Dependence of K_{1H} for Zr-2.5Nb alloy with the angle of the longitudinal direction and the fatigue crack plane was discussed on the basis of the angle of the crack habit plane $\{10\bar{1}7\}$ and the fatigue crack plane, or the magnitude of basal component on the fatigue crack plane.

1. 서론

가압중수로 Zr-2.5Nb 압력관은 가동 중 수소를 흡수하기에 흡수된 수소로 인한 취성 즉 Delayed Hydride Cracking(DHC)로 인한 많은 손상 사례를 보이고있다 [1]. 따라서 DHC 저항성을 향상시키고자 많은 연구가 수행되어왔지만, 지금까지도 DHC 현상을 명확히 이해하지 못하고 있

는 실정이다. DHC 현상이 일어나기 위해서는 크랙 선단에서의 높은 응력이 필요하며 아울러 DHC 크랙은 항상 응력 방향의 수직한 면으로 진전한다고 것이 지금까지의 DHC 현상을 이해하고 있는 실정이다 [2]. 그러나 DHC 크랙은, 수화물이 크랙 선단에서 재배열과 파손되므로써, 성장하므로, DHC 현상을 이해하기 위하여는 지르코늄 결정립에서의 수화물의 석출패턴을 이해하는 것이 필요하다. 수화물은 지르코늄 결정면에 무질서하게 석출하는 것이 아니며, 상주면 즉 $\{10\bar{1}7\}$면에 우선적으로 석출하는 것으로 알려져있다 [3]. 따라서 인장응력 방향에 수직하게 수화물이 상주면 $\{10\bar{1}7\}$이 존재한다면 DHC는 낮은 응력하에서도 시작될 것으로 예상된다. 반대로, 인장응력 방향과 상주면의 각도가 커지면 커질수록 DHC 크랙의 성장은 비례하여 일어나기 어려울 것으로 예상된다. 따라서 본 연구에서는 이를 입증하기 위하여 (0001)면이 원주방향으로 잘 발달된 Zr-2.5Nb 압력관에서 피로크랙을 길이방향에서 점차 원주방향까지 변화시켜, 즉 상주면과 인장응력과의 각도를 0-90 도까지 변화시켜, 임계 응력집중크기를 조사하였다.

2. 실험방법

길이 100 mm, 폭 33mm의 ring을 Zr-2.5Nb 캔두 압력관에서 절단하고, 프레스로 눌러 판재로 만든 후, 400 °C, 48 h 열처리를 통하여 잔류응력을 제거하였다. 이렇게 제조된 4mm 두께의 판재에서 compact tension 시편을 ASTM E-399-83의 절차에 맞게 제조하였다. 이때, 크랙 방향 (또는 크랙 면)을 압력관의 길이방향에서 원주방향으로 변화되도록 다음과 같은 4종류의 시편을 제작하였다: L0, L30, L45 및 L90 시편. 여기서 L 다음에 나타낸 숫자는 압력관의 길이방향 (L-방향)과 피로크랙 방향과의 각도를 말한다. Sievert 장치를 사용하여 수소를 200±20 ppm을 시편에 장입시키고, 10^{-5} torr의 진공에서 400 °C, 24h 소둔처리 하였다. 피로크랙을 Instron의 인장시험기 (Model No. 8562)로 12 MPa√m 하에서 형성시켰으며, 피로크랙이 진전됨에 따라 응력집중세기를 점차 7 MPa√m까지 낮추었다. 피로크랙이 형성된 compact tension 시편을 일정하중의 크립시험기에서 일정 하중 하에서 크랙을 성장시켰으며, 크랙성장을 DCPD(direct current potential drop) 방법으로 측정하였다. 이때, 열 이력은 300 °C에서 1시간 유지시키고 시험 온도인 200 °C까지 냉각시킨 후 24시간 만에 8-20 MPa√m의 하중을 걸었다. 크랙이 초기 0.5 mm에서 2mm까지 성장하면, 하중을 제거하고 300 °C에서 1시간 가열하여 시편을 heat tinting 하였다.

3. 결과 및 토의

그림 1은 4종류의 시편에서 관찰된 DHC 크랙성장 패턴을 보여준다. L0 시편은 그림 1에 보여준 바와 같이 인장응력의 수직방향으로 DHC 크랙은 성장하였으며, 이것은 지금까지 보고한 결과와 일치한다 [4, 5]. 그러나 피로크랙이 압력관의 길이방향에서 30 또는 45 도 기울어진 L30 또는 L45 시편에서는 DHC 크랙은 예상과는 달리 인장방향에 수직하게 진행하지 않고 길이방향 쪽으로 기울어져 성장하였다. 심지어 피로크랙이 길이방향과 90도 기울어진 L90 시편, 즉 피로크랙이 원주방향에 놓여있는 시편, 에서는 DHC 크랙은 피로크랙 방향과 상하로 75도로 기울어진 2개의 크랙이 발생하는 즉 일종의 crack branching이 일어났다. 그림 2는 L0 및 L90 시편에 대한 크랙성장속도 및 K_{1H}를 보여준다. L0 시편은 8 MPa√m 이상에서는 K_{1H}값에 무관하게 일정

한 크랙성장속도를 보이며, 5.5 MPa√m 의 낮은 K_{1H} 값이 얻어졌다. 이에 반하여 L90 시편은 18 MPa√m 정도의 높은 응력집중세기에서도 148 h 정도 유지시킨 후에도 크랙성장은 없었으며, 그 이상으로 응력집중세기를 증가시키면 비로서 크랙성장이 일어났기에 18 MPa√m 를 K_{1H} 로 결정하였다. 또한 크랙성장속도도 매우 낮았다. 이것은 정성적으로는 압력관의 길이방향으로 하중을 가하였을 때 15 MPa√m 의 높은 K_{1H} 를 보인다는 Coleman 의 결과와 일치한다 [6].

본 실험에 사용된 Zr-2.5Nb 압력관은 지르코늄결정립의 약 60%가 기저면 성분이 원주방향으로 배치된 소위 원주방향의 집합도가 잘 발달된 비등방성의 집합도를 갖는다 [7]. 따라서 L0 시편에서는 피로 크랙 면이 기저면 (0001)에 평행하며, 기저면과 14.7 도의 각도를 갖고 기울어진 상주면인 $\{10\bar{1}7\}$에 수화물이 우선적으로 석출한다고 가정하면 [3], DHC 크랙성장은 이론적으로는 약 15 도로 기울어지면서 지그재그 모양으로 성장할 것이다 (그림 3 참조). 그러나 실제의 DHC 크랙은 길이방향에 거의 평행하게 진전하였다. 이것은 DHC 크랙의 성장이 미세하게 진행되기에 실제 15 도로 기울어진다고 하여도 눈에 띌 만큼 현저하기 않기 때문에 거시적인 관찰에서는 거의 평행하게 크랙이 성장하는 것으로 보이기 때문으로 사료된다. 이처럼 DHC 크랙이 기저면에 약 15 도 기울어진 상주면 $\{10\bar{1}7\}$을 따라 성장한다는 주장은 나머지 시편에서의 크랙 성장면과 시편의 길이방향과의 각도를 측정하므로써 검증할 수 있다. 즉, L30 또는 L45 시편에서는 피로크랙은 시편의 길이방향과 각각 30 도와 45 도 기울어졌지만, DHC 크랙의 성장면과 길이방향의 각도를 그림 1 에서 측정한 결과, 표 1 에 나타낸 바와 같이, 각각 12 도 및 15 도 기울어진 것으로 측정되었다. 이것은 측정시의 오류를 포함할 때, 예측한 경사각도 15 도와 매우 잘 일치하는 것이다. 특히 L90 시편에서는 피로 크랙이 길이방향과 90 도 기울어져 있기에 그림 4 에 나타낸 바와 같이 수화물의 상주면은 크랙 면과 75 도 기울어져있다. 따라서 그림 1 에서 보여준 바와 같이 L90 시편에서 DHC 크랙이 피로크랙 면에서 상.하로 75 도 기울어지면서 크랙성장이 일어나는 결과는 결정적으로 DHC 크랙은 상주면 $\{10\bar{1}7\}$을 따라 성장한다는 것을 입증하는 결과이다. 이러한 결과는 지금까지 DHC 현상의 이해 [4,7]-DHC 크랙은 인장응력의 수직하게만 진행된다는 주장-과는 상이한 결과이며, DHC 크랙은 항상 수화물의 상주면을 따라 성장한다는 것을 보여주는 새로운 결과이다.

크랙 면과 일정 각도 θ로 기울어진 상주면 $\{10\bar{1}7\}$에 수화물이 석출되었다고 가정하면 (그림 5), DHC 크랙이 성장하기 위해서는 아래와 같이 조건이 만족되어야만 한다 [8]:

$$\sigma_{\theta\theta} + \sigma^{h} = \sigma_{f}^{h} \qquad (1)$$

여기서 $\sigma_{\theta\theta}$ 는 상주면에 수직하게 작용하는 응력, σ^{h} 는 수화물의 부피 팽장으로 인한 상주면이 받는 압축응력 그리고 σ_{f}^{h} 는 수화물의 임계 파단응력이다. 여기서 σ^{h} 값은 항상 일정하므로 각도 θ 에 따른 이 값의 영향을 무시하고 K_{1H} 값을 계산할 수 있다. Plain strain 조건에서의 $\sigma_{\theta\theta}$ 값은 아래와 같은 식으로 나타낼 수 있다 [9]:

$$\sigma_{\theta\theta} = \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}}\left[\frac{3}{4}\cos\left(\frac{\theta}{2}\right)+\frac{1}{4}\cos\left(\frac{3\theta}{2}\right)\right] \approx \sigma_{f}^{h} \qquad (2)$$

따라서 수화물이 파단되면서 DHC 크랙이 성장하기 시작하는 임계 응력집중세기, K_{1H} 는 아래와 같다:

$$K_{IH} \approx \frac{s_f^h \sqrt{2pr}}{\left[\frac{3}{4}\cos\left(\frac{q}{2}\right)+\frac{1}{4}\cos\left(\frac{3q}{2}\right)\right]} \qquad (3)$$

즉, L90 및 L0 시편에서의 K_{1H} 값의 비는 K_{1H} at θ=75º/K_{1H} at θ=15º = 1.95 으로 나타낼 수 있다. 따라서, L90 및 L0 시편에서의 측정치 K_{1H}값의 비는 3.2 이므로, 예측치가 측정치보다는 작지만 L0 시편에서의 보고된 K_{1H}값의 심한 편차 즉 4.5 – 12 MPa√m 를 고려하면[8], 식 (3)으로 예측된 K_{1H} 값의 비는 꽤 잘 맞는다고 얘기할 수 있다. 여기서 주목할 것은 임계 응력집중세기, K_{1H}는 상주면과 피로크랙 면 (notch plane)의 각도에 따라 변화된다는 것이다. 한편, 각도의 크기는 크랙면에 평행한 기저면의 크기에 따라 결정되기에 식 (3)을 아래와 같이 크랙 면에서의 기저면 성분의 함수로 나타낼 수 있다:

$$K_{IH} = \frac{s_f^h \sqrt{2pr}}{\left[\frac{3}{4}\cos\left(\frac{q}{2}\right)+\frac{1}{4}\cos\left(\frac{3q}{2}\right)\right]} = 18 - cf_r \qquad (4)$$

여기서 f_r=크랙면과 평행한 기저면 성분, c=상수, 그리고 최대 값은 원주방향으로 크랙면이 존재하였을 때의 값 18 MPa√m 으로 가정하였다.

4. 결론

1) 크랙 면이 길이방향으로 있을 때 5.5 MPa√m 의 가장 낮은 K_{1H} 값을, 그리고 원주방향으로 있을 때 18 MPa√m 의 가장 높은 K_{1H} 값을 나타냈다.
2) DHC 크랙성장 패턴은 크랙 면과 길이방향의 각도에 따라 달라졌으며, 그 각도가 커짐에 따라 DHC 크랙의 성장은 크랙 면에 평행하게 진행되는 것이 아니고 길이방향과 15 도의 각도로 기울어지면서 일어났다, 이것은 수화물의 상주면{10$\bar{1}$7}을 따라 수화물이 석출하고 그것이 파단되면서 DHC 크랙이 성장하기 때문에 일어나는 것이다.
3) DHC 의 임계 응력집중세기, K_{1H}는 상주면과 피로크랙 면 간의 각도로 함수로 표시할 수 있으며, L90 시편과 L0 시편에서의 K_{1H}측정값의 비교는 상주면과 크랙 면의 각도의 함수로 예측한 값과 잘 일치하였다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부 원자력 중장기 사업의 중수로 압력관 기술개발 과제의 일환으로 수행된 것으로 연구비 지원에 감사드립니다.

5. 참고문헌

[1] K. N. Choo, S. C. Kwon and Y. S. Kim, J. of KNS, 30 (1998) p. 318.

[2] C. E. Coleman, J. F. R. Ambler, Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM-STP 633, (1977) p. 589.

[3] D. G. Westlake,J. Nucl. Mater., 26 (1968) p. 208.

[4] R. Dutton, K. Nuttal, M. P. Puls and L. A. Simpson, Metall. Trans., 8A (1977) p. 1553.

[5] X. Q. Yuan and K. Tangri, J. Nucl. Mater., 105 (1982) p. 310.

[6] C. E. Coleman, Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM-STP 754, (1982) p. 393.

[7] Y. S. Kim et al., KAERI Report, KAERI/RR-1766/96, 1997.

[8] S. Q. Shi and M. P. Puls, J. Nucl. Mater., 208 (1994) p. 2049.

[9] T. L. Anderson, Fracture Mechanics, CRC Press, Boca. Raton, (1995) p.91.

표 1. Direction of DHC growth and orientation of CT specimen.

Orientation of Specimen (Angle between notch direction and Longitudinal direction)	Crack growth angle to notch direction	Crack growth angle to longitudinal direction
0° (L0)	0°	0°
30° (L30)	18°	12°
45° (L45)	30°	15°
90° (L90)	75°	15°

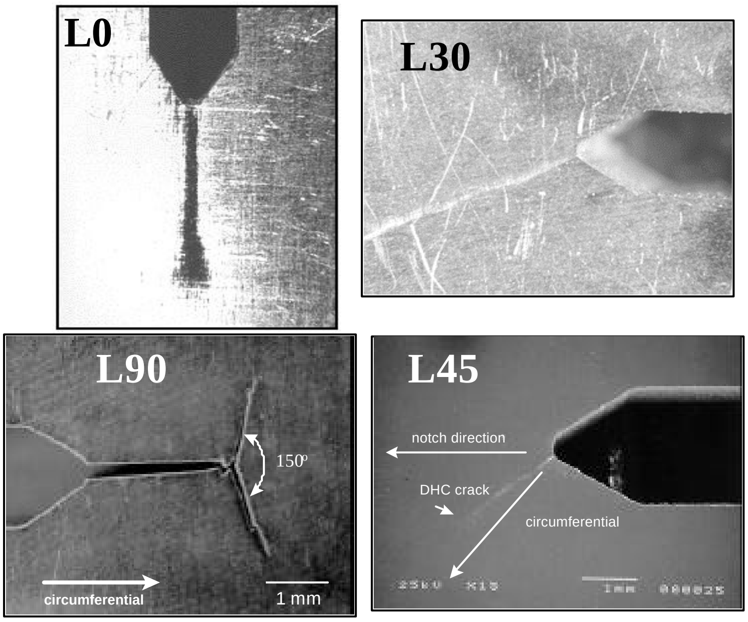

Fig. 1. Crack growth pattern with the angle between the direction of a precrack and the longitudinal direction of Zr-2.5Nb pressure tube

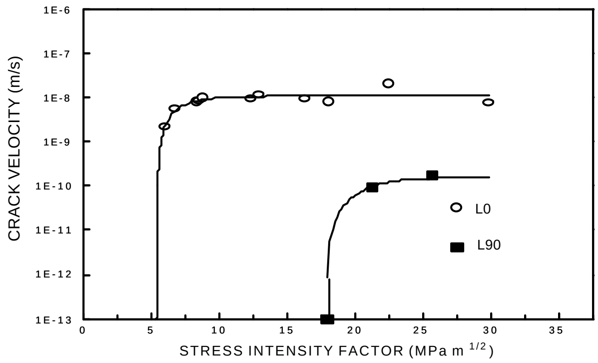

Fig. 2. Crack velocity as a function of stress intensity factor

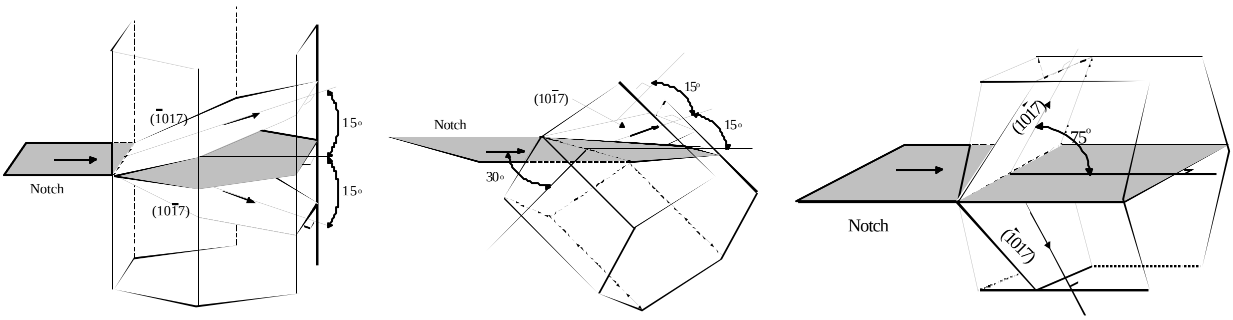

Fig. 4. Angle between the hydride habit plane ($\{10\bar{1}7\}$) and the precrack plane

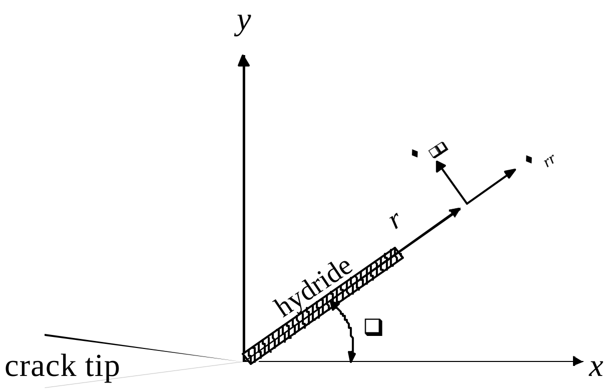

Fig. 6. Hydride platelet precipitated with an angle, θ to the notch direction