

Zr-2.5wt.% Nb 합금의 인장강도 특성

김경호, 김성수, 정용환, 김영석, 국일현
한국원자력연구소

요 약

중수로 원자로에서 핵심 구조물인 압력관은 합금이 사용되고 있는데, 고온, 고압의 방사선 분위기에서 사용되기 때문에 가동중 변형을 받는다. 따라서 본 연구에서는 압력관의 건전성 평가기술을 확보하기 위하여 Zr-2.5wt.% Nb 압력관의 집합조직과 온도 변화에 따른 강도 특성을 조사하였다. 집합조직의 변화는 시편의 채취방향을 달리하여 네 가지의 집합조직 변화를 주었으며, 이들 시편에 대해 상온에서부터 450°C까지 온도를 변화시키면서 인장시험을 실시하였다. 온도가 증가함에 따라 시편의 집합조직과 관계없이 네 종류의 시편 모두가 300°C까지는 강도가 직선적으로 감소하는 현상을 보이며, 300°C에서 370°C 사이의 온도에서 강도가 약간 증가하는 현상을 보였다. 또한 370°C 이상의 온도에서는 강도가 다시 직선적으로 감소하는 경향을 나타냈다. 이 같은 현상은 300°C까지는 프리즘 슬립(<a>-slip)으로 전위가 움직이다가 300°C 이상의 온도에서부터 370°C까지는 피라미드 슬립(<a+c>-slip)계의 경쟁 상호작용에 의한 추가적인 응력이 필요하여 나타난 현상이라 사료된다. 온도의 변화에 따른 강도와 연신율의 curve에서 300°C와 370°C의 범위에 서 plateaus region과 연신율이 최소값을 갖는 것은 동적변형시효(dynamic strain ageing)현상과 관련이 있는 것으로 생각되나 추가적인 연구가 필요하다. 집합도가 변함에 따라 인장강도는 $T(\text{transverse}) > L(\text{longitudinal}) > 30^\circ > 45^\circ$ 순으로 나타났으며 이는 slip과 twin의 복합적인 작용에 의한 것으로 해석된다.

1. 서론

Zr-2.5wt.% Nb 합금은 고온강도, 우수한 내식성, 낮은 중성자흡수성을 가지고 있는 특성 때문에 CANDU 압력관(pressure tube)재료로 이용되고 있다[1,2,3]. 압력관은 운전중 중성자 조사, 냉각재와 감속재인 중수의 압력관내 침투로 인한 수소지연파괴(delayed hydride cracking), 고온 및 고내압으로 부터 발생하는 크립으로 인한 길이방향의 제원변화, 핵연료 집합체 및 냉각재를 포함한 자중으로 인한 처짐(sagging) 때문에 calandria tube와의 접촉 등으로 열화된다. 이러한 문제점을 해결하기 위한 연구가 국내는 물론 전 세계적인 원자력 산업국들이 활발히 진행중에 있다[4]. 압력관의 주요 관심사는 수소흡수에 의해 발생하는 수소지연파괴와 고온에서 크립변형에 의해 발생하는 제원 변화이기 때문에 저수소흡수와 고온강도가 요구된다.

중수로 압력관으로 사용되는 Zr-2.5 Nb 재료는 HCP 결정구조의 α -Zr이다. 제조공정상 열간 압출은 ($\alpha + \beta$) 온도 구역에서 실시되기 때문에 α 상과 β 상이 길게 늘어선 형태의 조직을 가지며, 집합조직은 c축이 원주방향으로 배열된다. 따라서 원주방향의 항복강도가 a축이 집중되어 있는 길이방향보다 높게 나타난다. 그러나 주방향에서의 미세조직이 다르기 때문에 강도의 차이가 단순히 집합조직의 차에서 오는 것인지 아니면 미세조직 등의 다른 요인에 의한 것인지 명확하지 않다.

따라서 집합조직 변화에 따른 강도 특성 변화를 평가하는 것은 가동중 압력관의 건전성 평가 및 신합금의 성능향상 관점에서 매우 중요한 의미를 갖는다. 압력관은 약 300°C의 고온에서 가동되며 가동중에 많은 열적 변화를 받는다. 압력관 파손의 중요한 기구인 DHC 거동에서도 집합조직과 온도변화는 중요한 변수로 작용한다. 따라서 본 연구에서는 집합조직과 온도의 변화에 따른

강도특성을 조사하였으며, 인장시험후의 집합조직 변화, 파단면 특성 등을 조사하여 현상학적인 거동을 재료특성 관점에서 고찰하였다.

2. 실험방법

본 연구에서 사용된 시편은 NU-TECH 사에서 제조한 Zr-2.5Nb 상용 압력관이다. 여러방향에서 인장시편을 제조하기 위하여 냉간 압연기를 이용하여 평탄작업을 실시한 후 와이어컷 방전가공기로 Fig.1과 같은 형상으로 가공하였다. 소성 및 절단가공시 생성될 수 있는 잔류응력을 제거하기 위하여 400℃에서 24시간 동안 stress relieved ageing(응력제거 열처리)을 실시하였다. 인장시편은 압력관의 원주방향을 기준으로 하여 0° (Transverse), 30°, 45°, 90° (Longitudinal) 가 되도록 가공하였다.

인장시험은 Instron사(10 ton)의 인장시험기를 사용하여 1.0×10^{-3} /s의 변형 속도로 실시하였으며, 상온, 200℃, 300℃, 320℃, 370℃, 450℃에서 30분간 유지후 시험하였다. 인장시험 전.후의 집합도 변화를 조사하기 위하여 XRD를 이용하여 diffraction pattern을 관찰하였다. 집합조직은 본연구에서 사용한 시편의 diffraction pattern으로 부터 얻은 data와 random한 집합조직을 갖는 Zr 분말로 부터 얻은 data를 이용하여 inverse pole figure를 작성하고 기저면 성분(basal pole component, F)의 크기를 다음의 식으로 부터 구하였다[5].

$$F_i = \sum_{\alpha=1}^n V_{\alpha} \cos^2 \alpha$$

여기서 F_i : L, N, T 방향에서의 기저면 성분

α : L, N, T 방향과 같은 방향으로 부터의 경사각

V_{α} : L, N, T 방향으로 부터 각도 α 만큼 기울어진 결정립의 부피이다.

인장시험후의 파단면 특성을 조사하기 위해 파단면에 대한 SED관찰도 아울러 실시 하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 온도 변화에 따른 인장변형 거동

Zr-2.5wt.% Nb 압력관의 온도 변화에 따른 인장강도 변화를 Fig.2에 나타내었다. as-received 압력관재료의 온도의 변화에 따른 인장강도(UTS)는 상온에서부터 300℃까지는 온도의 증가에 따라 거의 직선적으로 감소하다가 320℃에서는 300℃의 강도값 보다도 오히려 증가하는 현상을 보였다. 또한 320℃를 정점으로 하여 370℃부터 다시 강도는 급격히 감소하였다. 온도변화에 따른 항복강도(YS)의 변화도 이와 유사한 거동을 나타내었다. 이는 변형모드 관점으로는 300℃까지는 프리즘 슬립(<a>-slip)으로 전위가 움직이다가 300℃ 이상의 온도에서부터 370℃까지는 피라미드 슬립(<a+c>-slip)계의 경쟁 작용에 의한 추가적인 응력이 필요하여 나타난 현상이라 사료된다. 이에 대한 해석은 XRD 결과에 의한 inverse pole figure를 통해서 가능하였다. 그러나 온도의 변화에 따른 연신율의 변화를 살펴보면 Fig. 3에서 보는 바와 같이 300℃ 근처에서 연신율이 감소하는 현상을 나타내는 것을 알 수 있다. 이와같이 300℃와 370℃의 범위에서 온도의 변화에 따른 강도의 증가는 plateaus가 나온 현상과 온도에 따른 연신율의 변화에서 최저값이 나타나는 현상은, 일반적으로 Zircaloy 합금의 300℃ 근처에서 전형적으로 나타나는 동적변형시효(dynamic strain ageing)현상과 매우 유사한 현상으로서 동적변형시효 관점에서 300℃와 370℃ 온도에서 설명할 수도 있다. 즉 Zr-2.5Nb 압력관내에는 산소가 약 1,000ppm 들어가는데 이들 침입형 원자들이 고온에서의 확산에 의해 전위를 고착(pinning)시키기 때문에 강도는 증가한다고 생각된다. 그러나 이에 대해서는 변형속도를 변화시킨 조건에서의 시험을 통한 항복점과 serration의 출현 관찰과 TEM을 이용한 미세조직 관찰 등의 체계적인 연구가 추가로 요구된다.

3.2 집합조직 변화에 따른 인장변형 거동

Fig. 2의 온도변화에 따른 인장거동을 살펴보면 인장시편의 방향을 달리 했을 경우, 즉 집합조직이 달라지더라도 온도 증가에 따른 강도 감소 현상은 거의 같게 나타남을 알 수 있었다. 그러나 각 온도에서의 강도값은 집합조직이 달라짐에 따라서 크게 차이가 나타나는 것을 알 수 있다. 상온의 경우에 T방향에서 약 880 MPa의 가장 높은 인장강도를 나타내며, 45° 방향에서는 약 710 MPa의 낮은 인장강도를 나타낸다. 이와같이 시편의 방향이 달라짐에 따라 강도가 변하는 것은 집합조직이 강도에 강하게 영향을 미치는 것을 의미한다.

따라서 온도의 변화에 따른 강도값은 집합조직의 함수로서 다시 Fig. 4, 5에 나타내었다. Fig. 4는 시편의 방향이 변화함에 따라 항복강도가 감소하는 현상을 보여준다. 450°C의 고온을 제외하고는 모든 온도에서 집합조직이 변화함에 따라 항복강도는 비슷한 거동을 보인다. Fig. 5는 인장강도의 거동을 보여주고 있는데 집합조직이 변화함에 따라, 즉 집합조직이 T방향에서 L방향으로 변화함에 따라 초기에는 강도가 거의 직선적으로 감소하다가 30° 와 45° 에서 최소값을 나타내며 이보다 방향이 더 커지면 인장강도는 다시 증가하는 거동을 보인다. 이같은 현상은 온도가 변화하더라도 바뀌지 않고 거의 일관된 거동을 보임으로서 온도에는 무관하며, 단지 집합조직에 따라 강도가 변화 하는 것을 알 수 있다. 이같은 결과는 inverse pole figure에서 구한 집합조직 계수와 관련이 있는데 Fig. 6에서 보는 바와 같이 시편이 T방향에서는 (0001) 기저면이 인장축에 거의 수직이며 방향이 L방향으로 변화함에 따라 (0001)의 intensity는 감소하는 것을 알 수 있다.

Zr에서의 주 slip system은 $(10\bar{1}0)\langle 11\bar{2}0\rangle$ 로서 인장축이 (0001)면에 수직일 경우는 slip 이 일어나기 어렵고, 대신에 twin system이 작동한다. 그러나 각도가 커짐에 따라 인장축은 점점 slip system이 작동하기 유리한 조건으로 변하여 L방향에서는 거의 slip에 의한 변형이 일어난다. twin을 일으키기 위한 임계응력이 slip을 일으키기 위한 임계응력보다 크기 때문에 L방향으로 갈수록 항복강도는 낮아진다. 이같이 집합조직이 변화함에 따라서 항복강도와 인장강도가 거동을 달리하는 것은 45°를 기점으로 변형모드가 바뀌기 때문이라 사료된다. 0°에서는 basal pole 이 인장축과 평행하기 때문에 twin 변형이 일어나고 이로인해 강도는 높아지는데, 45°까지는 twin과 slip이 복합적으로 일어나나 twin변형이 더 우세하며 45° 이후 부터는 그 반대 현상이 나타나서 L방향에서는 완전 slip에 의해 변형이 일어난다고 할 수 있다. 이 경우에 slip변형이 일어날 경우 전위증식으로 인해 급격한 가공경화가 발생할 수 있는데 본실험 결과인 Fig. 7의 응력-변형을 선도에서 보이는 바와 같이 앞의 설명을 잘 뒷받침하고 있다. 45° 이후에 인장강도와 항복강도간에 많은 차이를 나타내는데 이는 이때의 slip변형에 의해 지배되며, 가공경화가 급속히 일어나서 인장강도를 다시 증가한다고 사료된다.

3.3 파단면 관찰

상온과 350°C에서 인장시험한 각방향(T, 30°, 45°, L) 시편들의 파단면 양상을 Fig. 8에 나타내었다. 집합조직의 변화 관점에서 파단면 양상은 T, 30°, 45° 방향의 시편은 전형적인 dimple이 관찰 되는 것으로 보아 연성파괴의 특성을 보였으며, L방향의 시편은 다른 시편에 비해 dimple 크기가 작은 것으로 보아 취성파괴 양상을 보였다. 또한 온도의 변화 관점에서는 상온 보다 350°C에서 각시편 모두가 dimple의 크기가 커진 것으로 관찰 되었다.

4. 결론

Zr-2.5Nb 압력관을 가지고 온도 및 집합조직이 강도에 미치는 영향을 조사한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 온도가 증가함에 따라 강도는 300°C까지는 직선적으로 감소하다가 300°C- 370°C에서는 약간 증가하는 것으로 보이며, 370°C 이상에서는 다시 감소하는 경향을 나타낸다.
- 2) 온도의 변화에 따른 연신을 변화는 강도가 증가하는 300°C- 370°C 구역에서 최저값을 나타낸다.
- 3) 집합조직의 변화에 따라, 즉 기저면(0001)의 성분이 감소함에 따라 항복강도는 점차 증가하는

경향을 나타내며, 인장강도는 T방향에서 45°까지는 감소하고 45°을 변곡점으로 하여 L방향으로 바뀔에 따라 다시 증가하는 경향을 나타냈는데 이는 변형모드 변화에 따른 가공경화에 의한 것이라 사료된다.

4) 상온에서 파단면 양상은 T, 30°, 45° 방향의 시편은 연성과파괴의 특성을, L방향의 시편은 취성과파괴 양상을 보인 현상은 집합조직이 다르기 때문이며, dimple의 크기는 고온(350°C)에서 크게 나타났다.

참고문헌

1. W.R. THORPE and I.O. SMITH "Static Strain Ageing of Zr-1 wt% Nb Alloy".
Journal of Nuclear Materials, 80, p.35, 1979.
2. C.E. ELLS, ASTM STP551, p. 311-27, 1974.
3. D. SRIVASTAVA, et al, "Evolution of Microstructure during Fabrication of Zr-2.5 wt pct Nb Alloy Pressure Tubes". Metallurgical and Materials Transactions A, vol. 26A, p.2707, October 1995.
4. 김영석 외, "Zr-Nb 합금개발", KAERI RR-1522 94, 1995.
5. Evans, W. M., Gessner, R. F. and Goodwith, J. G., Metal. Transaction vol. 3, p.2879-2887, 1972.

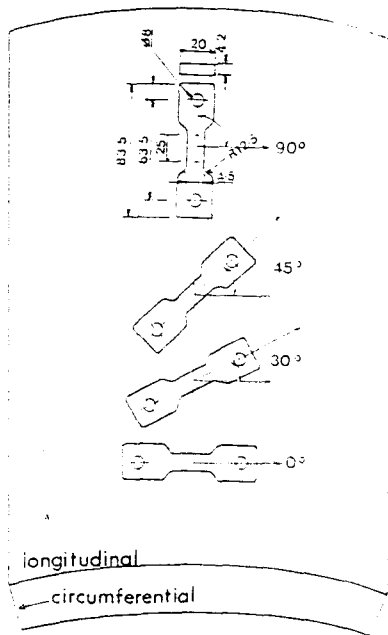


Fig. 1 Spatial Geometry of Various Textured Tensile Specimens in Zr-2.5Nb Pressure Tube.

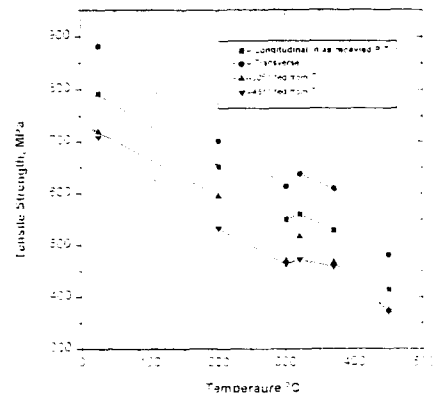


Fig. 2 Comparison of Temperature Dependency of Tensile Strength in Specimen having various Basal Pole Component(F) in as-received Pressure Tube.

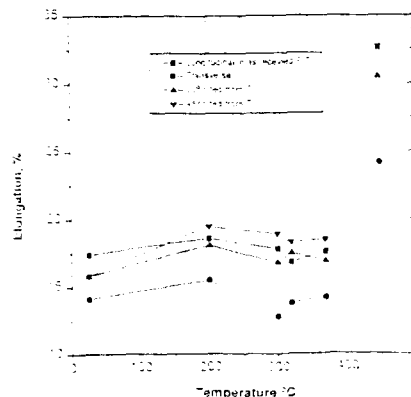


Fig. 3 Comparison of Temperature Dependency of Elongation in Specimen having various Basal Pole Component(F) in as-received Pressure Tube.

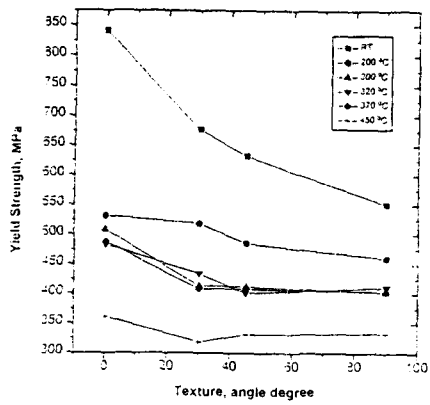


Fig. 4 The Variation of Yield Strength with Varying Texture.

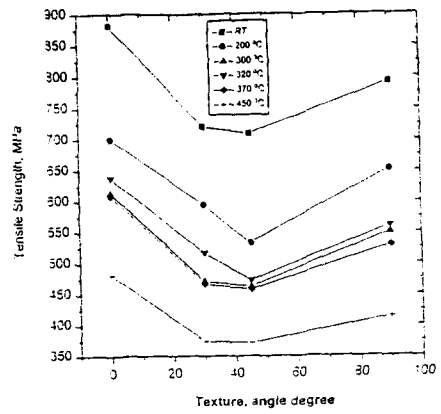


Fig. 5 The Variation of Tensile Strength with Varying Texture.

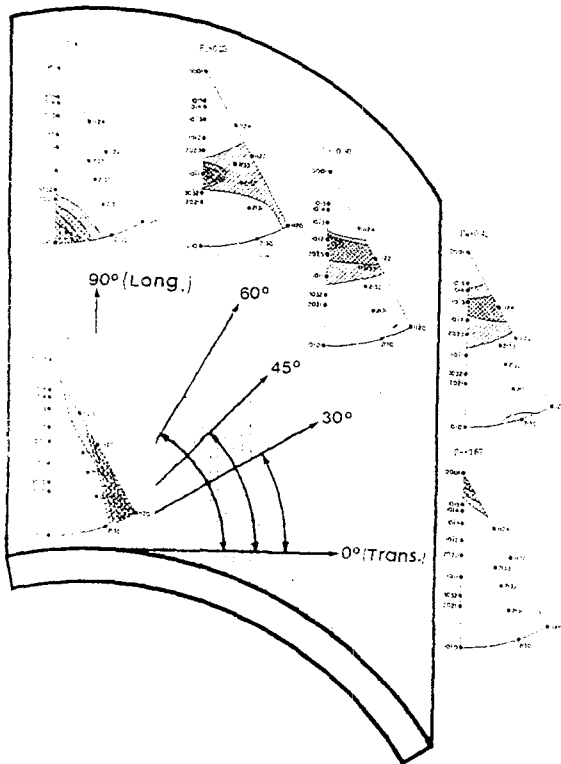


Fig. 6 Spatial Texture Distribution in Pressure Tube.

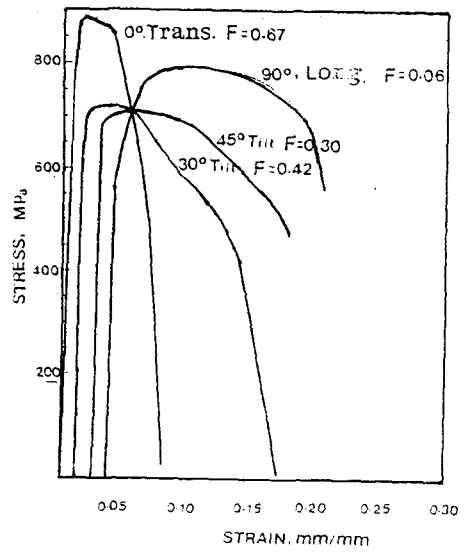


Fig. 7 Strain Stress Curves of as received Zr-2.5Nb Pressure Tube Specimen having Various Basal Pole Component at Room Temperature.

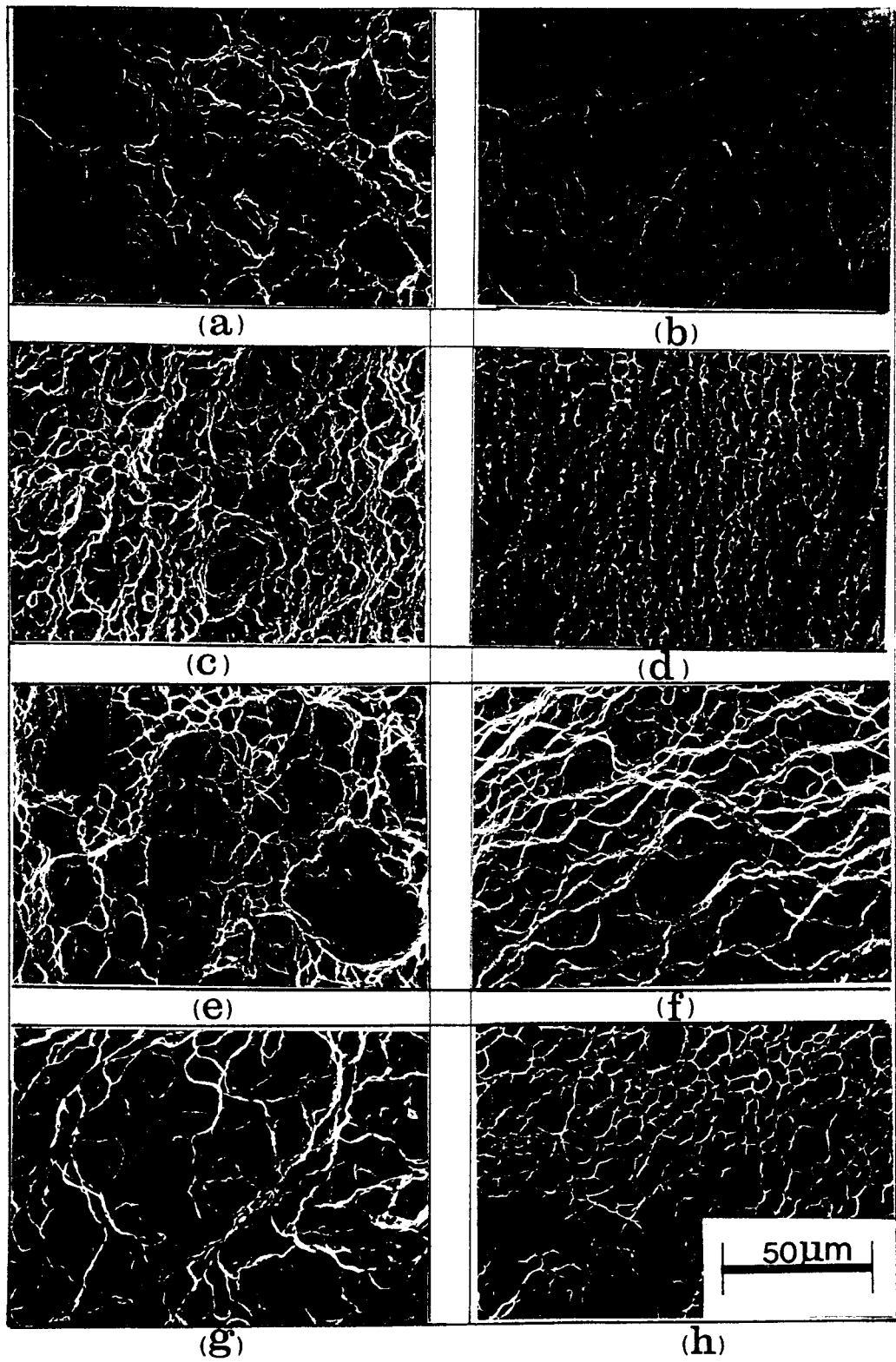


Fig. 8 The Fractographs observed from the Tensile Test Specimens in as received Pressure Tube after Tensile Test. (a) T., RT, (b) 30° tilt, RT, (c) 45° tilt, RT, (d) L., RT, (e) T., 350°C, (f) 30° tilt, 350°C, (g) 45° tilt, 350°C, (h) L., 350°C.