

수소화물의 파괴가 압력관 재료들의 파괴인성에 미치는 영향

오제용, 김인섭

한국과학기술원

김영석

한국원자력연구소

요약

본 연구에서는 수소화물의 파괴가 일어나는 조건과 수소화물의 파괴가 압력관 재료의 파괴인성에 미치는 영향에 대하여 알아보았다. 사용된 재료들은 상용 캐나다 압력관 재료와 러시아에서 개발된 E635, E125라는 재료로서 균열진전방향이 압력관의 축방향을 향하도록 CT 시편을 제작하여 파괴시험을 하였다. 상온에서 파괴인성은 캐나다 압력관재료, E125, E635의 순서로 크게 나왔다. 100ppm의 수소를 장입한 경우 상온에서의 파괴인성은 크게 감소하여 세 재료들 모두 비슷한 평평한 J-R 커브를 보였으며, 캐나다 재료와 E635의 파면에서 관찰되는 fissure의 간격은 150~200 μ m로 수소화물의 간격과 비슷하였으며 tunnelling 현상이 일어났다. E125는 불규칙한 짧은 fissure들이 관찰되었다. 200 $^{\circ}$ C에서는 수소화물의 파괴에 의한 fissure들이 관찰되지 않았으며 수소화물이 파괴인성에 영향을 미치지 않는 것으로 나타났다. E125는 상온과 200 $^{\circ}$ C에서의 J-R커브가 비슷하게 나타났다.

1. 서론

캐나다에서 개발한 Zr-2.5Nb 합금은 현재 CANDU형 원자로의 압력관재료로 사용되고 있으나 여러 가지 원인들에 의하여 설계수명 이전에 교체되는 경우가 있다. 국내에서도 월성 1호기의 압력관이 가동후 약 10년만에 교체된 적이 있다. 압력관의 열화원인 중의 하나인 수소의 흡수는 가동중 부식반응에서 의하여 일어나는 것으로 생각되며, delayed hydride cracking과 수소화물의 형성에 의한 파괴인성의 감소가 일어나서 압력관의 건전성에 영향을 미치게 된다. 본 연구에서는 수소화

물의 파괴가 일어나는 조건과 수소화물의 파괴가 압력관 재료의 파괴인성에 미치는 영향에 대하여 알아보았다.

2. 실험방법

사용된 재료들은 상용 캐나다 압력관 재료와 러시아에서 개발된 E635, E125라는 재료로서 화학조성은 E635의 경우 $Zr-1Nb-1Sn-0.4Fe$ 이며, E125는 $Zr-2.5Nb$ 로 캐나다 압력관 재료와 비슷한 조성이나 TMT 공정으로 처리가 되어 캐나다 압력관 재료보다는 안정화된 미세조직을 갖고 있다.

파괴시험에 사용한 시편은 compact tension (CT) 시편으로 두께이외에는 러시아 압력관 재료들의 경우 $W=15mm$, 캐나다 압력관 재료의 경우는 $W=17mm$ 를 기준으로 ASTM E399-83에 준하여 제작하였다. 두께의 경우 압력관 자체의 두께의 제한으로 3.4mm가 되었으며 균열진전방향이 압력관의 축방향을 향하도록 제작되었다. Precrack은 $a/W=0.5$ 가 되도록 내었다. 시편 중에 일부는 sieverts장치를 이용하여 100ppm의 수소가 장입되어 400°C에서 하루 동안 균질화 처리를 하였다.

파괴 시험은 상온과 200°C에서 0.3mm/min의 변위율로 수행되었다. 파괴시험중 균열의 진전은 2A의 정전류를 사용하여 DCPD방법으로 측정되었다. 균열시작점은 전압강하의 선형성에서 벗어나는 첫 번째 점으로 정하였으며 정확한 균열시작점을 구하기 위해서 하중그래프에서 균열이 시작하는 하중이 탄성영역보다는 위이고 최대하중보다는 아래인 것을 확인하였다. [1] 이런 방법으로 초기 J 적분값, J_i 를 구할 수 있었으며, $\Delta a=0.15mm$ 와 1.5mm offset line사이의 J-R커브의 기울기, dJ/da 를 구하였으며 같은 조건에서의 결과들은 평균을 내어서 정리하였다. J_i 와 dJ/da 는 파괴인성을 나타내는 중요한 인자들이다.

수소화물의 분포는 에칭후 광학현미경으로 관찰되었으며 파괴시험후 주사전자현미경을 통하여 파단면을 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 상온에서의 파괴인성

각 압력관재료들을 수소 장입 없이 상온에서 파괴시험을 한 결과 모두 연성 파괴 거동을 보였다. Fig. 1의 J-R커브에서 볼 수 있듯이 캐나다 재료가 제일 좋은 파괴인성을 보였으며 중간은 E125, 가장 나쁜 것은 E635였으며 각 재료의 위치에 따른 파괴인성의 차이는 크지 않았다. 수소를 장입하지 않은 시편들은 재료의 종류와는 상관없이 Cl과 C의 양이 작기 때문에 Cl과 C의 microsegregation에 의한 fissure[2]가 발생하지 않았다. 그러나 수소가 장입된 경우에는 Fig. 2에서와 같이

수소화물의 파괴에 의한 파괴인성의 감소가 관찰되었다.

Cottrell[3]의 분류에 의하면 소성파괴방식은 non-cumulative와 cumulative 두가지로 분류할 수 있다. non-cumulative방식은 소성균열이 성장하기 위해서는 더 많은 전위가 slip line들로 들어와야 하며, 이동시 이미 존재하는 전위를 밀게된다. 그리고 소성영역은 점점 더 커지게 된다. 따라서 J-R 커브에서의 기울기는 매우 커지게 된다.

반면 cumulative방식은 항복강도에 도달함이 없이 균열이 전파되는 것으로 전위가 이동한 거리가 증가함에 따라 계속 전위가 축적되는 경우이다. 이것의 예는 얇은 판의 파괴에서 관찰할 수 있으며 이 모드로 균열이 전파하는 경우에는 J-R 커브의 기울기는 매우 작아지게 된다.

판상태로 존재하는 수소화물은 원주방향으로 배열되어 있을 경우, 즉 캐나다 압력관 재료와 E635의 경우에는 수소화물의 수직이 인장축과 직각을 유지해서 직접적으로 파괴인성에 영향을 미치지 못하는 못한다. 그러나 균열선단에서의 삼축응력에 의하여 수소화물들은 파괴되어 Fig. 3에서 보듯이 fissure들을 형성한다. 따라서 균열선단은 여러 개의 가는 ligament들로 나누어지며 최후에는 ductile shearing-off에 의하여 얇은 판들의 파괴가 일어나게 된다. [4] 이것은 cumulative 모드에 해당하며 따라서 Fig. 2에서 관찰되는 평평한 J-R 커브를 보이는 원인이 된다. fissure들은 시편 중앙 부근에서 관찰되며 표면에서는 거의 관찰되지 않았고 따라서 시편 중심부에서 균열이 진전해 들어가는 tunnelling현상이 관찰되었다. 캐나다 압력관 재료와 E635의 경우는 수소화물간의 간격은 대략 $100\mu\text{m}$ 정도이었으며 fissure들간의 거리는 $150\sim 200\mu\text{m}$ 정도로 수소화물간의 거리와 비슷하였다. 한편 Table 1에서 보듯이 상온에서 100ppm의 수소를 가진 재료의 경우 J_i 는 약간 증가하는 경향을 보였으며 dJ/da 는 크게 감소하였다.

E125의 경우 불규칙한 수소화물의 분포에 의하여 fissure 또한 짧고 불규칙한 방향으로 나타났으나 역시 평평한 J-R 커브를 나타냈었다.

3.2 고온에서의 파괴인성

100ppm을 장입한 후에도 시험 온도가 200°C 로 오르면 수소화물에 의한 영향이 사라져서 좋은 파괴인성을 가지게 되며 Fig. 4,5와 같이 수소를 장입한 시편과 장입하지 않은 시편들간의 파괴인성의 차이가 사라지게 된다. 파면에서 fissure는 관찰되지 않았다. 200°C 에서 수소의 용해도를 계산[5]하여 보면 13ppm으로 전체 량인 100ppm이 대부분 수소화물의 형태로 남아있는 상태이다. 그럼에도 불구하고 수소화물의 파괴에 의한 압력관의 파괴인성의 감소가 관찰되지 않는 것은 온도가 증가함에 따른 유동응력의 감소에 해당하는 소성의 증가에 의해 균열선단에서의 삼축

응력상태를 상실하기 때문이다. [4] 하중이 증가함에 따라 균열선단에서 시편의 두께를 통과할 때까지 시편 표면에서의 평면응력 영역은 확대되어 fissure를 만들지 못한다. 한편 파면양상은 연성파괴에 의한 dimple구조를 보였으나 초기 균열이 시작되는 부분과 균열의 마지막 부분에서는 큰 dimple들이 관찰되었으며 그 외의 대부분에서는 작은 dimple들이 전 파면에 걸쳐서 비교적 균일하게 존재하였다.

Fig. 6에서 나타났듯이 E635는 온도가 증가함에 따라 파괴인성이 다소 증가하였으나 E125의 경우는 상온과 200℃에서 비슷한 파괴인성을 나타내었다.

4. 결론

본 연구에서는 상온과 200℃에서 수소화물이 압력관 재료의 파괴인성에 어떻게 영향을 미치는지 조사하였다.

- (1) 상온에서 파괴인성은 캐나다 압력관재료, E125, E635 순으로 크게 나왔다.
- (2) 100ppm의 수소를 장입한 경우 상온에서의 파괴인성은 크게 감소하였으며 세 재료들 모두 비슷한 J-R 커브를 보였으며 J-R커브의 모양은 평평하였다.
- (3) 100ppm의 수소를 장입한 경우 캐나다 재료와 E635의 파면에서 관찰되는 fissure의 간격은 150~200 μ m로 수소화물의 간격과 비슷하였으며 tunnelling 현상이 일어났다.
- (4) E125는 불규칙한 짧은 fissure들이 관찰되었다.
- (5) 200℃에서는 수소화물의 파괴에 의한 fissure들이 관찰되지 않았으며 수소화물이 파괴인성에 영향을 미치지 않는 것으로 나타났다.
- (6) E125는 상온과 200℃에서의 J-R커브가 비슷하게 나타났다.

참고문헌

1. 강성식, 한국과학기술원 원자력공학과 박사학위 논문, (1994).
2. I. Aitchison and P.H. Davies, Journal of Nuclear Materials, 203 (1993) 206-220.
3. E. Smith and P.H. Davies, Journal of Materials Science, 30 (1995) 561-567.
4. L.A. Simpson and C.K. Chow, ASTM STP 939 (1987) 579-596.
5. Z.L. Pan, I.G. Ritchie, M.P. Puls, Journal of Nuclear Materials, 228 (1996) 227-237.

Table 1. Summary of fracture toughness data

재료	온도(°C)	H [ppm]	J _i [kJ/m ²]	dJ/da [MPa]
Canadian	RT	As	80.3	308.3
Canadian	RT	100	105.7	33.5
E635	RT	As	38.5	200.8
E635	RT	100	37.9	66.6
E635	200	As	16.1	300.1
E635	200	100	41.3	264.4
E635	300	100	19.6	213.1
E125	RT	As	29.5	256.5
E125	RT	100	42.7	58.7
E125	200	As	26.6	286.4
E125	200	100	35.9	269.9
E125	300	100	19.6	222.5

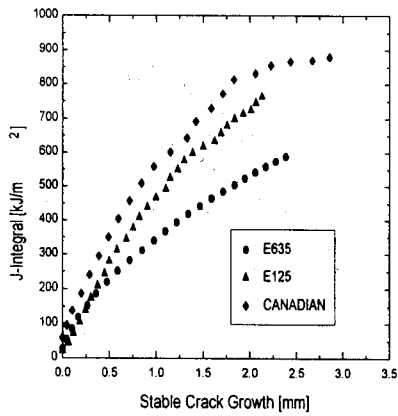


Fig. 1 J-R curve for As-received specimens at R.T

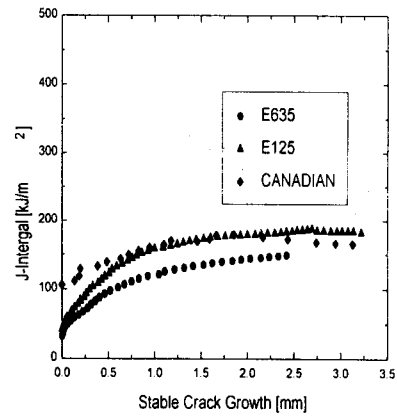


Fig. 2 J-R curve for 100ppm hydrided specimens at R.T

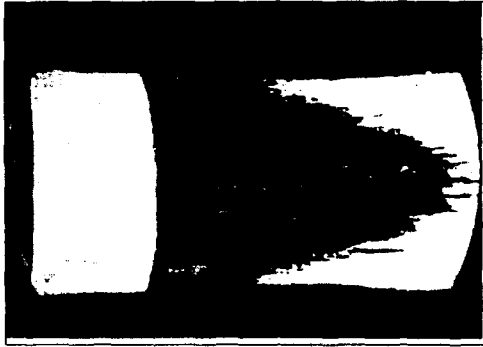


Fig. 3 Fracture surfaces of 100ppm hydrided Canadian at R.T

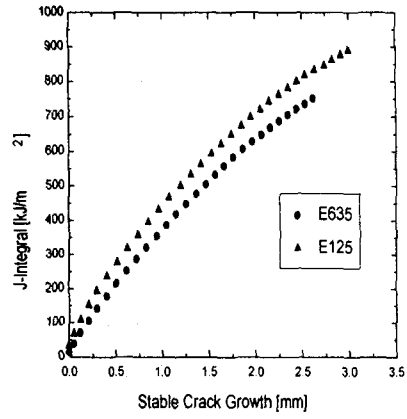


Fig. 4 J-R curve for As-received specimens at 200°C

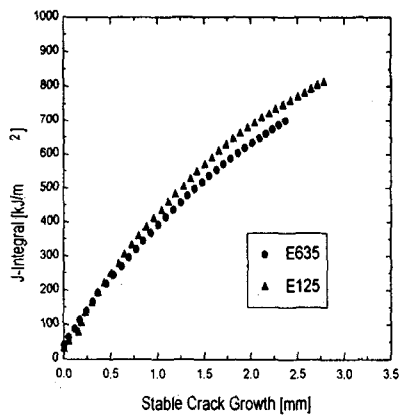


Fig. 5 J-R curve for 100ppm hydrided specimens at 200°C

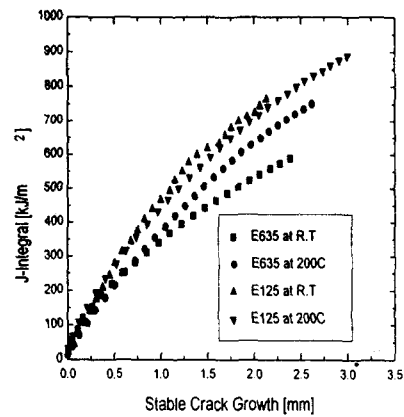


Fig. 6 J-R curve for As-received specimens