

초음파공명분광법에 의한 Zr-2.5Nb 압력관 재료의 고온 이방성 탄성계수 측정

Measurement of High Temperature Anisotropic Elastic Constants of Zr-2.5Nb Pressure Tube Materials by Resonant Ultrasound Spectroscopy

정용무*[†], 김성수*, 김영석*

Yong-Moo Cheong*[†], Sung-Soo Kim* and Young-Suk Kim*

초 록 증수로 압력관으로 사용되는 Zr-2.5Nb 재료의 고온 이방성 탄성계수를 고온 초음파공명분광법(RUS)로 측정하였다. 소형 가열로 내에 알루미늄 waveguide와 광대역 초음파 센서를 사용하여 초음파에너지를 시편에 가하고 시편의 공명주파수를 측정하였다. 압력관의 축 방향, 반경 방향, 원주 방향에 일치하도록 장방형 시편을 가공하였으며 각 방향에 대한 탄성계수 텐서 9개의 값을 상온 ~ 500°C 온도 구간에서 측정하였다. 탄성계수 텐서, c_{ij} 는 모두 온도가 증가함에 따라 점진적으로 감소하며 원주 방향의 탄성계수가 축 방향 및 반경 방향의 탄성계수보다 높았다. 이것은 Young's modulus 나 shear modulus 의 경우에도 일치하였으며 축 방향과 반경 방향의 경우 큰 차이를 나타내지 않았다. 축 방향 및 반경 방향의 비틀림 탄성계수가 150°C 부근에서 서로 교차하였으며 이는 단결정 지르코늄의 c_{44} 및 c_{66} 의 교차 현상과 일치하였다.

주요용어: 초음파공명분광법, 이방성 탄성계수, 지르코늄합금

Abstract Anisotropic elastic constants of Zr-2.5Nb pressure tube materials were determined by a high temperature resonant ultrasound spectroscopy (RUS). The resonant frequencies were measured using alumina wave-guides and wide band ultrasonic transducers in a small furnace. The rectangular parallelepiped specimens were fabricated along with the axial, radial and circumferential direction of the pressure tube. A nine elastic stiffness tensor for orthotropic symmetry was determined in the range of room temperature ~ 500°C. As the temperature increases, the elastic constant tensor, c_{ij} gradually decreases. Higher elastic constants along the transverse direction compared to those along the axial or radial direction are similar to the case of Young's modulus or shear modulus. A crossing of shear elastic constants along axial direction and radial direction was observed near 150°C. This fact corresponds to the crossing of c_{44} and c_{66} of single crystal zirconium.

Keywords: resonant ultrasound spectroscopy (RUS), anisotropic elastic constants, zirconium alloy

1. 서 론

탄성계수 측정은 일반적인 재료시험법으로 응력-변위

관계에서 구하는 방법과 비파괴적인 측정법이 있는 데 복합재료나 집합조직(texture)을 갖는 재료의 이방성 탄성계수는 이들 재료가 가지는 고유한 방향에 따른 이방

성으로 인하여 합금 조성, 제조 공정, 열처리 등의 다양한 재료 변수를 가지는 수많은 시편이 필요로 하며 판형, 원통형 등과 같이 가공 형태에 따라 모든 방향의 시편을 제작하기 어려운 경우도 있다. 또한 등방성 재료일지라도 재료의 조성, 가공, 열처리 등과 같이 다양한 재료 변수에 대해 일일이 재료시험을 통하여 탄성계수를 구하는 것은 상당한 노력과 시간이 필요하다. 초음파를 이용한 탄성계수의 측정은 비파괴적 측정법이라는 측면 이외에 재료 시험법으로 측정하는 것에 비해서 소성 변형에 의한 영향이 배제된 엄격한 의미에서의 탄성계수를 측정한다는 점에서 유리하다. 특히 초음파 공명분광법 (resonant ultrasound spectroscopy; RUS)는 다른 초음파 방법에 비해서 1) 여러 시편 형상 (구형, 원통형, 장방형 등)에 대해서 적용 가능하며, 2) 시편 크기가 1mm 정도로 작은 경우에도 측정 가능하며, 3) 작은 단결정 시편에도 적용할 수 있고, 4) 단 한번의 측정으로 최대 21개의 이방성 탄성계수 텐서를 모두 구할 수 있다는 장점이 있다[1]. 이러한 장점 때문에 일반적인 등방성 금속은 물론 대칭성이 낮은 단결정이나 집합조직을 갖는 다결정 재료의 이방성 탄성계수를 측정하는 것이 가능하다. 그러나 정밀 탄성계수 측정을 위해서는 1) 시편의 크기 및 형상을 정밀 가공하여야 하고, 2) 실제 값과 근접한 초기 추정 탄성계수를 미리 알고 있어야 한다는 단점도 있다. 이것은 추정 탄성계수, 시편의 치수, 밀도를 사용하여 계산된 공명 모드 및 공명 주파수와 실제 측정된 공명 모드 주파수가 거의 일치하여야 반복 알고리즘에 의해서 탄성계수 값이 수렴하며 오차가 낮은 정밀 탄성계수의 계산이 가능하기 때문이다.

가압중수형 원자로의 노심부인 압력관으로 사용되는 Zr-2.5Nb 합금은 제조 공정의 최종 단계인 압출 과정에서 심한 가공이 수반되는 한편 가공에 대한 slip system이 제한되기 때문에 심한 집합조직을 나타낸다. 이렇게 집합조직을 가지는 재료의 물성, 예컨대 탄성계수, 열팽창계수 등의 물성은 각 결정립의 방위분포에 따른 이방성을 나타낸다. 이러한 이방성을 알아보기 위해서 압력관의 방향별 탄성계수를 정밀하게 측정할 필요성이 있다. 초음파 공명분광법으로 Zr-2.5Nb 압력관의 이방성 탄성계수를 측정하기 위해서는 실제와 근접한 초기 추정 탄성계수를 구하는 것이 중요한 데 압력관의 좌표계를 축 방향, 반경 방향, 원주 방향으로 이방성이 나타나는 사방정계 대칭 (orthorhombic symmetry)으로 가정한 뒤 단결정 지르코늄의 탄성계수 값[2]을 기초로 하고 X-선 회절법으로 측

정한 극점 자료를 바탕으로 구한 방위분포함수 (ODF; Orientation Distribution Function)을 반영하여 시편 좌표계에 대한 방향별 이론 추정 탄성계수로 적용하여 초음파 공명분광법으로 정밀 탄성계수를 구한 바 있다[3].

본 연구에서는 앞서 구한 Zr-2.5Nb 압력관 재료의 이방성 탄성계수를 바탕으로 새로 제작한 고온/진공/정밀하중 제어 초음파 공명분광 실험 장치를 사용하여 상온 ~ 500°C 온도 구간에서 탄성계수를 측정하여 압력관 재료의 탄성계수의 온도 의존성을 측정하였다.

2. 방위분포함수 및 이방성 탄성계수 계산

원통형 Zr-2.5Nb 합금은 육방정계 (hexagonal closed packed; hcp) 다결정 재료로서 원주 방향으로의 집합조직을 가지는 데 시편 좌표계 (축 방향, 반경 방향, 원주 방향)에 대해서 이방성을 가진 사방정계 대칭으로 다음과 같은 탄성계수 텐서를 가진다.

$$c_{ij} = \begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & 0 & 0 & 0 \\ c_{12} & c_{22} & c_{23} & 0 & 0 & 0 \\ c_{13} & c_{23} & c_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & c_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & c_{55} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & c_{66} \end{bmatrix} \quad (1)$$

이러한 다결정 집합조직의 물성 이방성은 개개 결정립 간의 상호 작용을 무시할 경우 이들 결정립에 대응하는 물성의 평균량으로 계산될 수 있다. 결정립의 분포를 나타내는 방위분포함수는 X-선이나 중성자 회절법으로 측정된 극점에서 구할 수 있으며 여기에 단결정 상태의 탄성계수를 알면 비교적 정확한 시편 좌표계에서의 이방성 탄성계수를 예측할 수 있다. 실제로 단결정 상태의 탄성계수를 가지고 다결정 상태에서의 탄성계수를 예측하는 방법으로는 각각 결정립에 가해지는 응력의 평균 개념을 적용하는 Voigt 근사법과 각각 결정립에서 발생하는 변위의 평균 개념을 적용하는 Reuss 근사법이 있다. 그러나 실제 재료의 탄성계수는 이러한 두 극단적인 경우의 중간에 존재하므로 이를 설명하는 다양한 모델, 계산식이 제안되었다[4].

Zr-2.5Nb 압력관 재료에 대한 극점도 자료를 가지고 방위분포함수를 계산한 뒤 Voigt 근사, Reuss 근사 및 반복에 의한 self-consistent method에 의한 근사 등 3가지 방법으로 시편 방위별 평균 탄성계수 값을 계산한 뒤

초음파 공명분광 실험에 입력값 (초기 추정 탄성계수)로 적용해 본 결과 self-consistent method에 의한 결과가 가장 작은 오차를 나타냈으므로 본 실험에서도 이 결과 [3]를 초기 추정 탄성계수로 적용했다.

3. 초음파공명분광법에 의한 이방성 탄성계수 측정

초음파공명분광법은 고체의 진동 모드, 또는 공명이 물질의 미시적, 거시적 특성에 대해서 대단히 민감하여 정밀한 탄성계수, 초음파 감쇠 등을 측정할 수 있다는 특성 때문에 1990년대에 들어오면서 재료 물성 평가, 비파괴 검사에 적용되기 시작하였다[5]. 고체의 밀도, 칫수, 탄성계수를 알고있는 고체의 공명주파수를 계산하기 위한 자유진동 문제에 대한 완벽한 해석적인 해를 구하는 방법은 아직까지는 존재하지 않으며 비해석적인 방법으로 수치해석법 (유한요소법)이나 에너지 최소화법을 사용하여 해를 구할 수 있다. 역사적으로 초음파공명분광이론은 지질학에 근거를 두며 구형체의 자유진동에 대한 연구에서 시작되었는데 중심적인 이론은 J. D. Maynard[6]에 의해서 전개되었으며 Holland[7]와 Demarest[8]는 탄성적으로 등방성인 직육면체의 공명을 이론적으로 계산하고 이를 실험적으로 측정하였는데 이 결과들은 Ohno[9]에 의해서 일반화되었다. 이와 같은 결과들을 종합하여 Migliori[1]가 고체물리 분야에서의 응용을 목적으로 완성하였다.

탄성고체에 대한 기계적 Lagrange 해는 물체의 자유진동 즉 자유 표면 경계 조건을 가진 탄성 방정식의 해로서 다음 식으로 표현된다.

$$\rho \omega^2 u_i + \sum_{j,k,l} c_{ijkl} \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_i \partial x_j} = 0 \quad (2)$$

$$\sum_{j,k,l} \vec{n}_j c_{ijkl} \frac{\partial u_k}{\partial x_l} = \sum_j \vec{n}_j \sigma_{ij} = 0 \quad (3)$$

, 여기서 ρ 는 ω 는 u_i 는 c_{ijkl} 는 \vec{n}_j 는 σ_{ij} 는 응력이다. 위 식에서 주어진 물체의 고유주파수(eigenfrequency)를 구하기 위해서는 그 에너지가 최소화되는 주파수를 구해야 하는데 Rayleigh-Ritz 방법을 적용하여 진동하는 물체의 고유주파수를 계산하는 알고리즘이 Damarest[8]에 의해서 개발되었다. 이외에도 초음파공명분광법이 실용화되기까지는 고유치(eigenvalue), 고유벡터(eigenvector)

문제에 대한 복잡한 계산을 단순화하기 위한 대칭성을 도입하였고, 여러 가지 구체적인 실험[9]를 통해 검증되었다.

초음파공명분광법을 사용한 탄성계수 측정 과정은 우선 시편의 칫수, 밀도, 추정 탄성계수를 가지고 추정 고유주파수 또는 추정 공명주파수를 계산한다. 계산된 공명주파수를 기초로 하여 실제 측정된 공명주파수와와의 비교를 통하여 정확한 탄성계수를 추출해야 하는 데 컴퓨터 수치해석에서 널리 사용되는 Levenberg-Marquardt법을 사용하여 다차원 탄성계수 공간에서 figure of merit의 최소값을 결정한다. 측정된 공명주파수로부터 정확한 탄성계수를 구하기 위해서는 다음과 같은 figure of merit, F 를 정의한다[10].

$$F = \sum_{i=1}^N \omega_i (f_i - g_i)^2 \quad (4)$$

, 여기서 g_i 와 f_i 는 i 번째 측정주파수와 계산주파수, N 은 측정된 주파수의 총 개수이며 ω_i 는 측정주파수 g_i 에 있어서 신뢰도를 반영하는 가중치이다.

Levenberg-Marquardt 방법[1]을 사용하여 다차원 탄성계수 공간에서 F 의 최소값을 결정해야 하는 데 탄성계수 c_{ijkl} 의 정밀도는 최소값 근방 F 의 형상을 고려하여 되도록 많은 개수의 공명주파수를 측정함으로써 정확한 탄성계수를 최소자승법으로 구할 수 있다. 여기서 정확한 탄성계수를 구하기 위해서는 탄성계수의 초기 추정값을 가능한 한 실제 참값과 비슷하게 선정하여야 반복 계산시 빠르게 참값에 수렴할 수 있으며 계산 공명주파수를 측정주파수에 정확히 대응하여 시편의 탄성계수를 구할 수 있다.

Zr-25Nb 압력관은 심한 집합조직을 가지므로 축방향, 반경방향, 원주방향으로의 이방성이 존재하므로 이를 사방정계 대칭(orthotropic symmetry)으로 간주할 수 있다. 따라서 9개의 독립된 성분을 가진 탄성계수 텐서 값이 필요한 데 앞서 X-선 회절 극점도 및 방위분포 함수를 기초로 계산된 탄성계수를 추정 탄성계수로 사용하여 초음파공명분광법으로 탄성계수를 구했다.

4. 실험 방법

4.1. 실험 재료

본 실험에 사용된 시편은 중수로에서 실제 사용되는

Zr-2.5Nb 압력관 재료로 화학 성분 및 30년 이상 원자로 운전에서 필요한 요구 사항은 Table 1 및 2와 같다. 이 재료는 용해 및 단조 후에 직경 약 240mm 의 봉 형태 ingot를 β -quenching (1285°K ~ 1335°K 가열 후 수냉) 한 뒤 + 영역(약 1090°K) 까지 재가열하여 압력관 billet 크기 (약 200mm) 까지 단조 가공한다. 지르코늄의 산화를 방지하기 위해서 얇은 철판을 부착한 구리판을 접합 시켜서 1090°K 에서 billet 압출을 수행하며 강도 증가를 위해서 약 20 ~ 30% 냉간 가공을 수행한 뒤 마무리 가공; 세척, 응력 이완 소둔을 통하여 제조되는 데 이 재료가 심한 집합조직을 가지는 것은 바로 압출 과정에서 발생한다.

4.2. 고온 이방성 탄성계수 측정

Zr-2.5Nb 압력관 재료에서 이방성 탄성계수의 온도에 따른 변화를 측정하기 위하여 Fig. 1과 같은 장치를 제작 하였다. 초음파 공명분광 시스템은 기본적으로 연속적인 주파수를 발생시키는 synthesizer, 발생된 신호를 초음파 에너지로 변환하여 시편에 가해주는 송신용 광대역 초음파 센서와 수신용 초음파 센서 및 제어용 PC로 구성된다. 사용된 센서는 대역폭이 0.1~2.0MHz 대역폭을 가진 광대역 초음파 센서를 사용하였으며 여기에 고온 탄성계수를 측정하기 위하여 소형 가열로 및 온도 제어 장치를 부착

하였다. 초음파 센서로 사용되는 압전 소자는 Curie온도 이상에서는 압전 성질을 잃어버리므로 Fig. 1과 같이 알루미늄 봉을 wave guide로 사용하여 furnace 내의 시편에 초음파가 전달되도록 하였다. 시편을 지지하는 힘은 스프링 완충 장치와 정밀 하중계어 장치로 조절하고 load cell 에서 감지하도록 하였으며 자유로운 시편 진동을 유지하기 위하여 가능한 한 작은 힘이 시편에 가해지도록 하였다. 소형 가열로는 1000°C까지 가열할 수 있도록 설계하였으나 시편의 산화 등을 고려하여 상온 ~ 500°C 범위에서 동적 탄성계수 측정이 가능하도록 하였다.

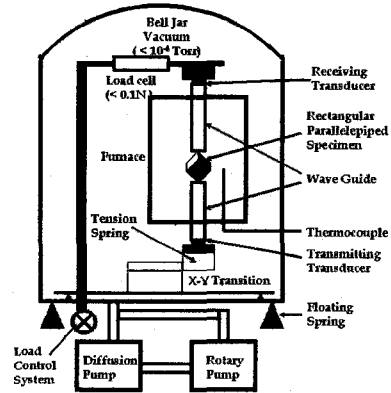


Fig. 1 Design of high temperature device for RUS experiment

Table 1 Chemical composition of Zr-2.5Nb pressure tube materials [11]

Elements	Zr	Nb	O	Fe	Sn	Hf	C		
Wt%	balance	2.5~2.8	0.09~0.13	<1500ppm	<50ppm	< 100ppm	< 125ppm	<50ppm	<35ppm

Table 2 Main requirements for CANDU pressure tubes to provide more than 30 year service [11]

Characteristics	Requirements
Prevention of hydride formation - Initial concentration of H2 - Maximum rate of deuterium absorption	<5 ppm 1 ppm/year
DHC at 250C - KIH in the radial direction - DHCV in the axial direction	>10 MPam <7 x 10 ⁻⁸ m/s
Fracture toughness dJ/da at 250C	>250 MPa
Minimal length of critical crack at 250C and 10 MPa	>80 MPa
Tube diameter variation	<3%
Tube elongation	<100 mm
Tensile properties at 300C - Yield strength - Ultimate tensile strength - Total elongation	>330 MPa >480 MPa >12%

사용된 시편은 2.5mm×3.0mm×3.5mm 크기의 장방향 시편을 가공하였는데 이방성 특성을 측정하기 위하여 시편의 각 면 방향을 압력관의 반경 방향, 축 방향 및 원주 방향에 일치하도록 가공하였다. 시편의 각 변 길이를 다르게 하는 이유는 공명 모드를 degenerated 상태로 유지하여 가능한 한 모드가 다른 공명 주파수들이 중첩되지 않도록 하기 위함이다. 본 시편에 대한 초기 30개 공명주

파수는 대략 200 ~ 600kHz에 존재하며 이를 정밀 측정하여 탄성계수 계산에 사용한다. 초기 30개의 계산된 공명 주파수와 측정된 공명 주파수 및 각각의 공명 모드(k), 측정치와 계산치의 오차, 각 공명 주파수의 특정 모드 의존성, 9개 탄성계수 텐서 값, 시편 크기, 무게, 밀도 등을 알 수 있으며 Table 3에 계산 사례를 보였다. 초음파 공명 분광실험의 정밀도는 일반적으로 RMS error값

Table 3 Typical example of RUS calculation for Zr-2.5Nb pressure tubes

N	k	l	f _{calc} , MHz	f _{meas} , MHz	ZR4B025									
					%err	% of modulus contributing to mode								
					c11	c22	c33	c23	c13	c12	c44	c55	c66	
1	4	1	0.22592	0	0	0.01	0.01	0.01	0	-0.01	-0.01	0.64	0.3	0.05
2	4	2	0.30677	0.30722	-0.15	0.01	0.02	0.04	-0.02	-0.01	0	0.05	0.36	0.55
3	1	1	0.31874	0.31899	-0.08	0.06	0.34	1.06	-0.58	-0.26	0.13	0	0.22	0.02
4	7	1	0.33195	0.33206	-0.03	0.33	0.05	1.08	-0.22	-0.61	0.12	0.24	0	0.01
5	8	2	0.33503	0.33528	-0.07	0.03	0.02	0.05	0	-0.03	-0.01	0.95	0	0
6	2	1	0.36381	0.36401	-0.06	0.02	0.04	0.08	-0.05	-0.01	-0.01	0	0.92	0
7	5	1	0.39311	0.39258	0.13	0.24	0.37	1.41	-0.69	-0.58	0.27	0	0	0
8	6	1	0.39414	0.39407	0.02	0.47	0.95	0.03	-0.11	0.07	-0.67	0.22	0.03	0
9	3	2	0.39424	0.39438	-0.04	0.05	0.08	0.2	-0.11	-0.09	0.03	0.01	0	0.82
10	1	2	0.40886	0.40867	0.05	0.22	0.74	0.07	0.01	-0.05	-0.38	0.01	0.1	0.27
11	3	3	0.42385	0.4239	-0.01	0.07	0.06	0.6	-0.17	-0.2	0.05	0.08	0.09	0.43
12	5	2	0.42416	0.42437	-0.05	0.66	0.68	0.66	-0.25	-0.38	-0.38	0	0	0
13	2	2	0.45094	0.45124	-0.07	0.09	0.89	0.12	-0.32	0.09	-0.27	0.03	0.24	0.12
14	5	3	0.45227	0.45234	-0.02	0.99	1.02	0.01	0.08	-0.09	-1	0	0	0
15	3	4	0.46623	0.4662	0.01	0.08	0.05	0.19	-0.04	-0.1	-0.02	0.35	0.38	0.09
16	7	2	0.47757	0.47711	0.1	0.82	0.16	0.08	0.05	-0.19	-0.33	0.2	0.01	0.2
17	6	2	0.48984	0.48971	0.03	0.67	0.07	0.25	-0.04	-0.38	0	0.19	0.23	0.01
18	8	3	0.49608	0.49645	-0.07	1.14	0.11	0.21	0.14	-0.51	-0.34	0.19	0.01	0.05
19	4	3	0.51632	0.51577	0.11	0.02	0.03	0.04	0	-0.01	-0.01	0.25	0.29	0.4
20	2	3	0.52516	0.52475	0.08	0.11	0.2	0.11	-0.05	-0.06	-0.1	0.39	0.09	0.3
21	5	4	0.52866	0.52928	-0.12	0.58	0.21	0.82	-0.29	-0.54	0.14	0.03	0.04	0.02
22	6	3	0.53954	0	0	0.53	0.62	0.51	-0.31	-0.29	-0.22	0.1	0.07	0
23	1	3	0.54105	0	0	0.21	0.64	0.49	-0.29	-0.14	-0.21	0	0.2	0.09
24	7	3	0.54106	0.5414	-0.06	0.57	0.34	0.53	-0.21	-0.25	-0.25	0.19	0.01	0.06
25	5	5	0.55249	0.55226	0.04	0.81	0.79	0.1	-0.06	-0.05	-0.63	0.02	0.01	0.01
26	8	4	0.56607	0.56557	0.09	0.29	0.2	0.25	-0.09	-0.15	-0.13	0.08	0.32	0.23
27	7	4	0.56638	0.56603	0.06	0.36	0.14	0.43	-0.18	-0.22	-0.02	0.38	0	0.1
28	1	4	0.57873	0.57809	0.11	0.16	0.07	0.45	-0.13	-0.26	0.07	0	0.56	0.08
29	6	4	0.58083	0	0	0.45	0.55	0.12	-0.15	0.01	-0.37	0.27	0.11	0
30	6	5	0.60254	0.60246	0.01	0.64	0.12	0.85	-0.21	-0.75	0.15	0.03	0.16	0
Elastic moduli (dynes × 10 ⁻¹² /cm ^{**2})						1.4737	1.5449	1.4717	0.7429	0.7693	0.7612	0.3338	0.3397	0.3672
Dimensions (cm)				initial	adjusted									
				d1	0.35300	0.35023								
				d2	0.40100	0.40259								
				d3	0.4490	0.45077								
RMS error				0.07420										

으로 판정하며 보통 0.2% 이하로야 유효한 실험으로 간주하고 있다. 본 실험의 경우 Table 3에 보인 바와 같이 대부분 RMS error가 0.05 ~ 0.1% 범위에서 있었으므로 측정된 탄성계수는 신뢰성이 높으며 상당히 정밀한 측정이 이루어졌다고 판단된다.

5. 실험 결과 및 고찰

5.1. Zr-2.5Nb 압력관 재료의 이방성 탄성 계수의 온도 의존성

상온~ 500°C 범위에서 Zr-2.5Nb 압력관 재료의 이방성 탄성계수를 측정하여 Figs. 2~3 에 각각 c_{ij} 를 표현하였으며 여기서 아랫 첨자 l, t, r 은 각각 압력관의 축 방향(longitudinal), 원주 방향(transverse), 및 반경 방향(radial)을 뜻한다. 공학적 관점에서 중요한 Young's modulus 및 shear modulus는 elastic compliance의 역수, 즉, $E_{ii} = 1/S_{ii}$ 이므로 계산된 탄성계수 c_{ij} 의 역행렬 S_{ij} 를 계산한 뒤 이를 다시 역수를 취해서 구한다. 온도에 따른 Young's modulus 및 shear modulus 계산 결과를 Figs. 4~5에 나타냈다.

Zr-2.5Nb 압력관 재료는 Fig. 6에서 보인 바와 같이 극점도를 바탕으로 (0002)면 은 각각 압력관의 축 방향(longitudinal), 원주 방향(transverse), 및 반경 방향(radial) 을 뜻한다. 공학적 관점에서 중요한 Youngs modulus 및 shear modulus는 elastic compliance의 역수, 즉 Zr-2.5Nb 압력관 재료는 Fig. 6에서 보인 바와 같이 극점도를 바탕으로 (0002)면, 즉 c-축으로 결정립이 배열된 정도를 나타내는 f -계수(Kearn's factor)를 구해보면 $f_T = 0.60, f_R = 0.33, f_L = 0.07$ 로 계산된다[11]. 이는 대략 결정립의 [0002] 극점의 60%가 원주 방향, 33%가 반경 방향, 7%가 축방향으로 배열하고 있음을 의미한다. 한편 단결정 zirconium의 탄성계수는 $c_{33} > c_{11}$ (단결정 방위 기준으로 '1' = a-축 방향, '3' = c 축 방향임) 이므로 c-축 배열 비율이 높은 방향, 즉 f 계수가 높을수록 탄성계수가 높아야 한다. Fig. 2에서 c_{ij} 의 온도 의존성을 살펴보면 원주 방향의 탄성계수가 축 방향이나 반경 방향의 탄성계수보다 뚜렷하게 높으며 축 방향이나 반경 방향의 탄성계수는 큰 차이를 나타내지 않고 있으며 세 방향으로의 탄성계수 모두 온도가 증가함에 따라 감소하는 경향이 있다.

Fig. 2를 살펴보면 모든 방향으로의 탄성계수는 단결정 지르코늄의 c_{11} 값을 하한선으로 하고 c_{33} 값을 상한선으로 하는 영역 안에 있음을 알 수 있다. 이것은 방향별 탄성계수가 단결정 지르코늄의 방향별 탄성계수인 c_{11} 과 c_{33} 값을 기준하여 방위 분포에 따른 가중치, 즉 집합도를 감안하여 정해질 것이라는 예측과 일치한다. [0002] 극점 분포가 가장 높은 원주 방향의 탄성계수 c_{rr} 가 단결정 지르코늄의 c_{33} 값에 근접하고 있으며 반경 방향과 축 방향으로의 탄성계수는 [0002] 극점 분포가 낮으므로 c_{11} 보다 약간 높은 정도를 보인다. 순수 지르코늄은 강도가 낮기 때문에 중수로 압력관 재료에서는 지르코늄에 2.5% Nb 을 첨가하고 심한 냉간가공을 하여 원주방향으로의 집합도를 높여서 특별히 원주방향 강도를 증가시키는 데 본 실험 결과 동적 탄성계수 관점에서 고찰해보면 아무리 집합도를 높이더라도 집합도의 극단적인 경우라 할 수 있는 단결정 지르코늄의 탄성계수 c_{33} 를 능가하지는 못함을 알 수 있다.

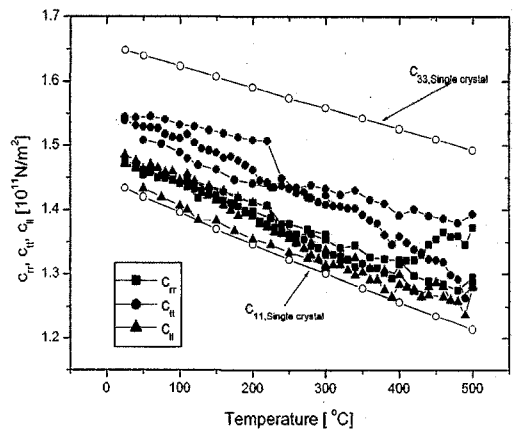


Fig. 2 Temperature dependence of normal elastic moduli of Zr-2.5Nb pressure tube. The elastic moduli of zirconium single crystal are referred from the ref. 2

Fig. 3에서 비틀림 탄성계수를 살펴보아도 위와 유사한 경향을 보이는 데 특히 c_{tr} , 즉 반경-원주 방향으로의 비틀림 탄성계수의 값이 높고 c_{tl} 나 c_{rl} 간에는 큰 차이를 나타내지 않는다. 앞서도 언급한 바와 같이 Zr-2.5Nb 압력관 재료는 원주 방향으로의 f -계수가 다른 방향에 비해 높으므로 탄성계수가 높게 나타난다. 그러나 반경 방향의 탄성계수와 축 방향의 탄성계수가 큰 차이를 보이지 않

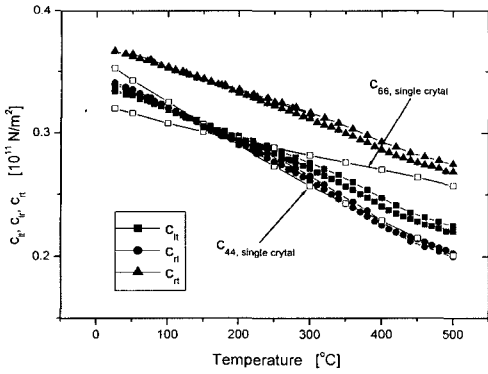


Fig. 3 Temperature dependence of shear elastic moduli of Zr-2.5Nb pressure tube. The elastic moduli of zirconium single crystal are referred from the ref. 2

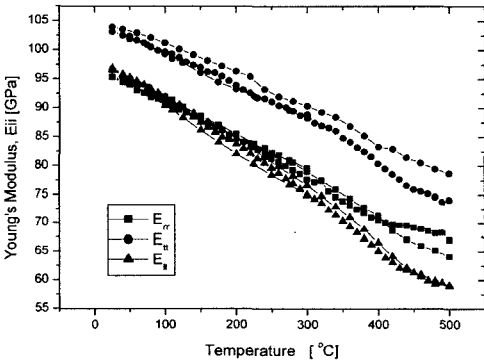


Fig. 4 Temperature dependence of anisotropic Young's moduli of Zr-2.5Nb pressure tube

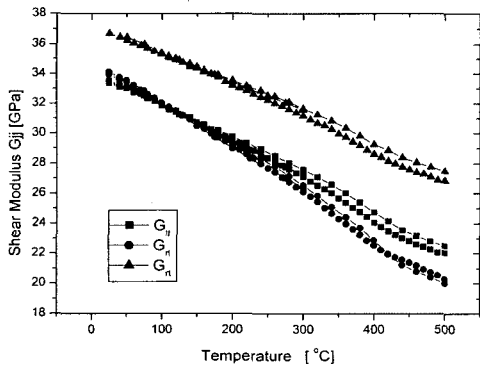


Fig. 5 Temperature dependence of anisotropic shear moduli of Zr-2.5Nb pressure tube

는 것은 두 경우 모두 f -계수가 낮으므로 (0002) 방위를 갖는 결정립보다는 다른 방위를 갖는 결정립들이 훨씬 많으므로 원주 방향에 비교하면 보다 무작위한 방위 분포를 가지기 때문으로 판단된다. 이와 유사한 현상이 Figs. 4 와 5에서 보인 바와 같이 Young's modulus 와 shear modulus 결과에서도 나타나고 있다.

5.2. 150°C 부근에서 비틀림 탄성계수의 교차 현상에 대한 고찰

본 연구에서 밝혀진 특이한 현상으로 Fig. 3에서 시편을 가열함에 따라 150°C 부근에서 비틀림 탄성계수 C_{44} 과 C_{66} 가 교차하는 현상을 관측할 수 있다. 이런 현상이 발생하는 원인으로 단결정 지르코늄의 비틀림 탄성계수와 연관지어 볼 수 있다. 단결정 지르코늄의 비틀림 탄성계수를 같은 온도구간에서 그려보면 C_{44} 와 C_{66} 도 150°C 부근에서 교차하는 데 초음파 공명분광법으로 측정된 탄성계수는 지르코늄의 격자 구조인 hcp 구조 내에서 각 방향으로 가해지는 비틀림 힘에 대한 저항성을 의미한다. 앞서 언급한 바와 같이 원주 방향으로 [0002] 극점 분포가 가장 높으므로 원주 방향과 수직인 면에서 축 방향으로 비틀림 힘이 가해지는 것(C_{66}) 은 마치 단결정 지르코늄에서 C_{66} 와 유사하며 원주 방향과 수직인 면에서 반경 방향으로 힘이 가해지는 것(C_{44}) 은 마치 단결정 지르코늄에서 C_{44} 와 유사하다. 물론 [0002] 극점은 반경 방향이나 축 방향으로도 일부 존재하나 60% 이상의 [0002] 극점이 원주 방향으로 배위하기 때문에 이와 같이 단결정 지르코늄의 비틀림 탄성계수와 연관지어 볼 수 있다.

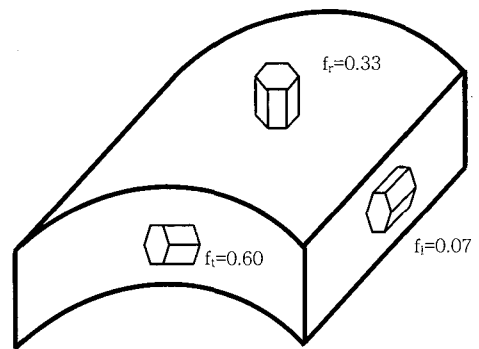


Fig. 6 Keams factor of Zr-2.5Nb pressure tube materials [11]

5.3. 기계 시험법으로 구한 항복 강도에 대한 고찰

기계 시험법으로 구한 항복 강도와 비교하기 위하여 Fig. 7에는 본 실험에서 구한 Young's modulus(Fig. 4)에 0.2% 곱하여 온도에 따른 항복 강도를 그려보았으며 Fig. 8에는 기계 시험에 의한 항복 강도[12]를 표현했다. 두 경우 모두 원주 방향 항복 강도가 반경 방향이나 축 방향의 항복 강도보다 월등히 높게 나타나며 반경 방향 및 축 방향의 항복강도는 실험 오차 범위 안에서 거의 비슷하다. 앞서도 언급한 바와 같이 단순히 f -계수만을 고려하면 Young's modulus 나 항복 강도는 원주 방향이 가장 높고 반경 방향, 축 방향의 순서로 낮아져야 한다. 그러나 5.1. 절에서 보인 바와 같이 실제로 Young's modulus 계산 속에는 탄성계수 텐서의 역행렬을 구해서 다시 역수를 구하는 과정이 있는데 여기서 비틀림 탄성계수 텐서 성분이 포함된다. 즉 반경 방향과 축 방향 탄성계수에 대해 f -계수와 비틀림 탄성계수 텐서 성분이 영향을 미친다고 판단된다.

항복 강도의 절대값도 초음파 공명분광법으로 측정된 것에 비해 기계 시험법의 경우는 약 400 ~ 500MPa 정도 높게 나타나는 데, 정확히 따지기는 어렵지만 두 결과의 차이는 기계 시험법의 경우 변형 초기부터 소성 변형이 발생하는 것으로 추정할 수 있다. 즉 RUS 측정법은 초음파에 의해 원자가 진동할 경우 원자들간에 존재하는 결합 에너지와 연관된 순수한 의미에서의 탄성계수를 측정하는 것이다. 반면에 본 재료를 기계 시험법으로 항복 강도를 측정할 경우 항복점이 뚜렷이 나타나지 않으므로 0.2% 변위가 발생하는 점에서의 강도를 항복 강도로 정의한 것이므로 기계 시험 초기부터 탄소성 변형이 발생하였음을 추정할 수 있다.

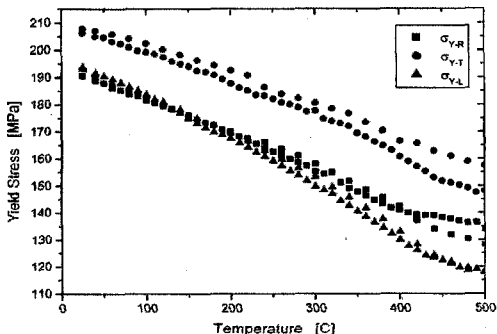


Fig. 7 Temperature dependence of yield stresses of Zr-2.5Nb pressure tube by RUS

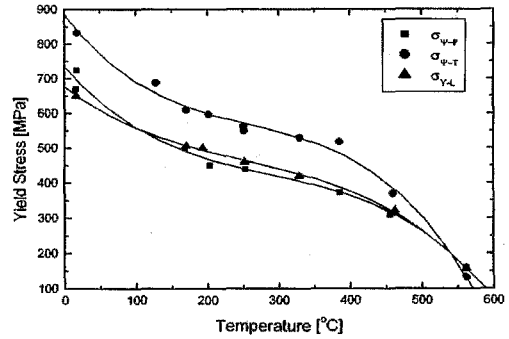


Fig. 8 Temperature dependence of yield stresses of Zr-2.5Nb pressure tube by mechanical testing [12]

Zr-2.5Nb 압력관 재료는 200 ~ 300°C 구간에서 기계 시험법에 의한 항복 강도가 평편해지는 현상(yield plateau)이 존재하는 것으로 알려져 있다. 그러나 본 실험에서는 이러한 현상이 뚜렷하지 않은 데 이로 비추어 보아 이 현상도 탄성적인 원인이 아닌 다른 인자, 즉 소성적인 원인에 의한 것으로 추정할 수 있다.

6. 결 론

Zr-2.5Nb 압력관 재료의 동적 이방성 탄성계수의 온도 의존성을 실험한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 탄성계수 텐서, c_{ij} 는 모두 온도가 증가함에 따라 점진적으로 감소하며 단결정 지르코늄의 탄성계수 텐서, c_{66} 와 c_{44} 를 각각 상한과 하한으로 하는 구간에 위치하였다. 이러한 경향은 Young's modulus 에서도 일치하였다.
- 2) Zr-2.5Nb 압력관 재료에서 대부분의 [0002] 극점이 원주 방향으로 배위하는 집합 구조 때문에 원주 방향의 탄성계수가 축 방향 및 반경 방향의 탄성계수보다 높게 나온다고 판단된다. 같은 이유로 비틀림 탄성계수 c_{lt} 와 c_{lr} 가 150°C 부근에서 교차하는 현상도 단결정 지르코늄의 탄성계수 c_{66} 와 c_{44} 가 같은 온도 부근에서 교차하는 현상으로 연관지을 수 있다.
- 3) 초음파공명분광법에 의한 Young's modulus를 기초로 계산한 항복 강도와 기계시험법에 의한 항복강도를 비교하면 온도에 따른 감소현상 및 방향별 항복 강도의 경향은 일치하였다. 기계시험법에 의한 항복 강도가 초음파 공명분광법에 의한 항복 강도보다

400 ~ 500MPa 높게 나타났으며 그 차이는 순수한 탄성적 동적 개념인 초음파 공명분광법과 탄성 및 소성 가공 성분을 포함하는 기계 시험법의 특성 때문으로 추정된다. 또한 기계 시험법에서 나타나는 200 ~ 300°C 구간에서의 항복강도가 평편해지는 yield plateau 현상은 초음파 공명분광법에서는 나타나지 않았다.

후 기

본 연구는 과학기술부 원자력 중장기 사업의 중수로 압력관 재료 기술개발 과제 일환으로 수행되었으며 연구비 지원에 감사드립니다.

참고문헌

- [1] A. Migliori and J. Sarrao, Resonant Ultrasound Spectroscopy, John Wiley & Sons Inc., (1997)
- [2] E. S. Fisher and C. J. Renken, Single-crystal elastic moduli and the hcp->bcc transformation in Ti, Zr, and Hf, Phys. Rev. Vol. 135 (2A) pp. A482-A492, (1964)
- [3] Y. M. Cheong, S. K. Kwon, H. K. Jung, Determination of anisotropic elastic moduli of Zr-2.5Nb CANDU pressure tube materials, J. Mater. Sci. Vol. 35 pp. 1195-1200, (2000)
- [4] H. Ledbetter, Monocrystal-polycrystal elastic constant models, ASTM STP 1045, pp. 135-148, (1990)
- [5] A. Miglioli, W. M. Visschur, S. E. Brown, Z. Fisk, S. W. Cheong, B. Alton, E. T. Ahrens, K. A. Kubat-Martin, J. D. Maynard, Y. Huang, D. R. Kirk, K. A. Gillis, H. K. Kim, and M. H. W. Chan. Elastic constants and specific-heat measurement on single crystals of La₂CuO₄, Phys. Rev., Vol. 45, No. 4, pp. 2098-2102, (1990)
- [6] J. D. Maynard, The use of piezoelectric film and ultrasonic resonance to determine the complete elastic tensor on one measurement, J. Acoust. Soc. Am., Vol. 91, No.3, pp.1754-1762 (1992)
- [7] R. Holland, "Resonant properties of piezoelectric ceramic rectangular parallelepipeds", J. Acoust. Soc. Am. Vol. 43, No. 5, pp. 988-997 (1968)
- [8] H. H. Demarest, "Cube-resonance method to determine the elastic constants of solids", J. Acoust. Soc. Am., Vol. 49, No.3, pp. 768-775 (1971)
- [9] I. Ohno, "Free vibration of a rectangular parallelepiped crystal and its application to determination of elastic constants of orthorhombic crystals", J. Phys. Earth, Vol. 24, pp. 355-379 (1976)
- [10] A. miglori, J. L. Sarrao, W. M. Visscher, T. M. Bell, Ming Lei, Z. Fisk and R. G. Leisure, Resonance ultrasound spectroscopic techniques for measurement of the elastic moduli of solids, Physica B 183, pp. 1-24 (1993)
- [11] Y. S. Kim and et al., Characterization of Zr-2.5Nb pressure tubes, Technical Report, KAERI/TR-1137/98, Korea Atomic Energy Research Institute, Korea (1998)
- [12] S. S. Kim, private communication, unpublished data