CF8M 주조 오스테나이트 스테인리스강의 열취화에 따른 재료물성치 평가

김 철†· 박흥배* · 진태은* · 정일석** · 석창성*** · 박재실***

Evaluation of Material Properties due to Thermal Embrittlement in CF8M Cast Austenitic Stainless Steel

C. Kim, H. B. Park, T. E. Jin, I. S. Jeong, C. S. Seok and J. S. Park

Key Words : Thermal Embrittlement(열취화), Cast Austenitic Stainless Steel(주조 오스테나이트 스테인리스강), J-R curve (J-R선도), Charpy Impact Energy(샤피 충격에너지), Arrhenius Equation(아레니우스 방정식)

Abstract

CF8M cast austenitic stainless steel is used for several components such as primary coolant piping, elbow, pump casing, and valve bodies in light water reactors. These components are subject to thermal aging at the reactor operating temperature. Thermal aging results in spinodal decomposition of the delta-ferrite leading to increased strength and decreased toughness. In this study, three kinds of the aged CF8M specimen were prepared using an artificially simulated aging method. The objective of this study is to summarize the method of estimating ferrite contents, Charpy impact energy and J-R curve, and to evaluate the thermal embrittlement of the CF8M cast austenitic stainless steel piping used in the domestic nuclear power plants.

1. 서 론

원자력발전소 설비 중 1차계통 배관은 원자로 냉각재의 유로 제공과 압력경계 유지 기능을 수행하는 것으로서 방사성 물질의 오염 및 확산을 방지하는데 있어서 매우 중요하다. 이에 따라 1차계통 배관에는 내식성과 기계적 성질이 우수한 스테인리스강 소재를 주로 사용하고 있으며 특히 배관, 엘보우, 펌프 케이싱, 밸브 몸체 등에는 주조 오스테나이트 스테인리스강(CASS, Cast Austenitic Stainless Steel)이 많이 사용되고 있다.

† 한국전력기술(주) 재료기술연구그룹
E-mail : chlkim@kopec.co.kr
TEL : (031)289-4682 FAX : (031)289-3189
* 한국전력기술(주) 재료기술연구그룹
** 전력연구원 원자력연구실
*** 성균관대학교 기계공학부

CASS는 가공성이 좋고 응력부식균열에 대한 뛰어난 저항성이 있으며 기계적 성질이 우수한 장점이 있다. 그러나 고온에서 장시간 사용될 경우 열취화 현상이 발생한다는 연구 결과들이 발표됨에 따라 최근 건설되고 있는 발전소 배관에는 CASS 대신 다른 재료가 사용되고 있다. 국내 원전에서도 이러한 CASS의 문제점으로 인하여 근래 건설된 원전의 1차계통 배관에는 스테인리스강으로 클래딩(cladding)된 SA508 Gr.1a 등을 사용하였으나, 초기에 건설된 고리 1~4호기, 영광 1, 2호기에는 CF8M과 CF8A 주조 오스테나이트 스테인리스강이 배관 재료로 사용되어졌다.

열취화 현상은 CASS가 고온에서 장시간 노출되었을 때 페라이트 상의 스피노달 분해(spinodal decomposition)로 인하여 Cr-rich상(α′)과 Fe-rich상(α)으로 분리되어 충격강도, 파괴인성이 저하되고 강도가 증가하는 현상을 말한다. 이러한 열취화 현상은 특히 475℃에서 가장 크게 발생하는데, 경수로의 원자로냉각재 온도인 300℃ 내외에서도 페라이트 함량에 따라 열취화 현상이 발생

하는 것으로 보고되고 있다.[1] 이와 같은 재료물성치의 변화는 CASS로 제작된 배관의 건전성에 큰 영향을 미칠 수 있으므로 열취화에 따른 재료물성치를 정확하게 예측하는 것은 매우 중요하다.

지금까지 국내외에서 수행한 CASS의 열취화에 관한 연구로서, NRC의 Chopra[2]는 85종의 CASS에 대하여 290~350℃ 범위에서 최대 58,000시간까지 열화시킨 후 인장, 충격, 파괴인성 등의 재료물성치를 측정하고 분석하였다. 또한 Westinghouse[3]에서도 상당수의 CASS에 대하여 재료물성치를 측정, 분석하고 자체 데이터베이스를 구축하였으나 이를 공개하지는 않고 있다. 국내[4~6]에서는 권재도, 박윤원 등이 일부 CASS에 대하여 모의 열화시킨 후 재료물성치 측정과 피로실험을 수행하여 열취화 영향을 평가한 바 있다. 그러나 지금까지 해외에서 수행한 열취화 관련 연구들은 그 결과 중 일부만 공개되고 있는 바, 국내 원전 사용재료인 CF8M 및 CF8A CASS의 열취화에 따른 재료물성치를 평가하기 위한 연구가 필요한 실정이다.

따라서, 본 연구에서는 고리 1호기의 1차계통 배관 사용재료인 CF8M CASS를 30년에서 60년까지 모의 열화시키고 충격시험 및 J-R시험을 수행하여 재료물성치를 측정하고 결과를 고찰하였다. 또한 기존의 국내외 열취화 관련 연구결과 및 열취화 재료물성치의 예측방법으로 예측한 물성치와 비교 평가하였다.

2. 시편제작 및 모의열화

지금까지 국내 원전 중 고리 1호기에는 CF8M, 고리 2~4호기와 영광 1~2호기에는 CF8A CASS가 1차계통 배관 재료로 사용되었다. 이에 따라 본 연구에서는 CF8M CASS 재료를 실험 재료로 선정하고 먼저 정적주조 방식(statically cast)으로 주괴(ingot)를 제작하였으며 이로부터 시편을 제작하여 모의 열화시켰다. Table 1은 제작한 CASS의 화학조성을 정리한 것이다.

열화에 의한 재료물성치를 평가하기 위해서는 일반적으로 모의 열화시험(simulated aging test)을 수행한다. 이는 짧은 시간 내에 실제 환경에서 받는 손상보다 훨씬 큰 손상을 주는 환경을 적용하여 기기가 실제 환경에서 받는 손상과 동일한 효과를 주도록 하는 것으로서 가속열화(accelerated aging) 라고도 한다.

Table 1 Chemical composition of CF8M (wt. %)

Index	C	Mn	Si	Cr	Ni	Mo	S	P	Co
Ingot A	0.042	0.6	1.21	20.04	9.01	2.52	0.021	0.03	0.042
Ingot B	0.041	0.61	1.22	19.84	8.96	2.52	0.022	0.03	0.041

아레니우스 모델은 이러한 모의 열화시 가장 보편적으로 사용되고 있는 방법으로서 NRC (Nuclear Regulatory Commission)에서도 식 (1)의 아레니우스 방정식(Arrhenius equation)을 이용한 모의 열화가 적합한 방법이라고 제시하고 있다.[7]

$$\frac{dr}{dt} = A e^{-\frac{Q}{RT}} \tag{1}$$

여기서, A : constant

R : gas constant (8.31J/moleK)

Q : activation energy (kJ/mole)

T : temperature (K)

식 (1)에서 dr/dt은 반응속도를 의미하며 이로부터 모의 열화시의 반응속도($\bar{r}_{age}$)와 운전시의 반응속도($\bar{r}_{ser}$)를 각각 구하면 식 (2) ~ (3)과 같다.

$$\bar{r}_{age} = A e^{-\frac{Q}{RT_{age}}} \tag{2}$$

$$\bar{r}_{ser} = A e^{-\frac{Q}{RT_{ser}}} \tag{3}$$

여기서, T_{age} : 모의 열화온도 (K)

T_{ser} : 운전온도 (K)

모의 열화시와 실제 운전시에 있어서 열화에 의한 재료의 반응은 동일해야하므로 식 (4)와 같은 관계식으로부터 식 (5)와 같이 모의 열화에 필요한 시간을 구할 수 있다. 결과적으로 식 (5)를 이용하여 운전온도, 운전시간, 모의 열화온도 및 재료의 활성화에너지로부터 모의 열화시간을 결정할 수 있다.

$$t_{age} A e^{-\frac{Q}{RT_{age}}} = t_{ser} A e^{-\frac{Q}{RT_{ser}}} \tag{4}$$

$$t_{age} = \frac{t_{ser}}{e^{\frac{Q}{R}\left(\frac{1}{T_{ser}} - \frac{1}{T_{age}}\right)}} \tag{5}$$

여기서, t_{age} : 모의 열화시간 (hr)

t_{ser} : 운전시간 (hr)

Table 2 Simulated aging time for CF8M(aging temperature 400℃)

Service Time (yrs)	Service Time, t_{ser} (hr)	Service Temp., T_{ser} (℃)	Sim. Aging Temp., T_{age} (℃)	Sim. Aging Time	
				t_{age} (hr)	t_{age} (month)
30	210,240	290	400	2,679	3.7
40	280,320			3,572	5.0
60	420,480			5,359	7.4

제작한 시편의 모의 열화시간을 결정하기 위하여 먼저, CF8M 재료의 활성화에너지(activation energy)를 구하였다. 활성화에너지는 재료의 자기확산(self diffusion)에 필요한 에너지로서 화학조성과 운전이력을 확보하였을 경우의 활성화에너지는 식 (6)과 같이 구할 수 있다.[1,2]

$$Q = 10(74.52 - 7.20\theta - 3.46Si - 1.78Cr - 4.35I_1 Mn + (148 - 125I_1)N - 61I_2 C) \quad (6)$$

식 (6)에서 θ는 운전온도에 따라 달라지는데 운전온도가 280~330℃ 범위에서의 θ는 2.9이다. 또한 CF8M에서 $I_1 = 1, I_2 = 0$ 을 적용한다. 시험재료인 CF8M CASS의 활성화에너지는 식 (6)에 Table 1의 화학조성과 θ, I_1, I_2를 대입하여 125kJ/mole로 계산되었다. 이때 질소 N의 조성은 0.04를 적용하였다.

재료의 활성화에너지를 구한 후 식 (5)를 이용하여 모의 열화시간(t_{age})을 구하였다. 일반적으로 1년 중 2~3개월 동안은 핵연료 장전, 보수, 점검 등을 위하여 원전이 정지하는 것을 고려해서 실제 운전시간(t_{ser})은 전체 운전기간의 80%만 운전되는 것으로 계산하였다. Table 2는 운전온도 290℃에서 30년, 40년, 60년 동안 운전되는 경우에 대하여 400℃에서 모의 열화시간을 계산한 결과로서, 30년의 모의 열화에는 3.7개월이, 60년의 모의 모의열화에는 7.4개월의 기간이 소요되는 것으로 계산되었다. 이때 운전온도는 원자로냉각재의 평균온도를 고려하여 결정하였으며 운전기간은 고리 1호기의 최대 예상 운전기간을 고려하였다. 또한 모의열화 온도는 노화 중에 재료의 상변태가 발생하지 않을 온도로 설정하였다.

3. 페라이트 함량

Table 3 Predicted and measured ferrite contents

Index	Predicted Value		Measured Value
	Aubrey Eq.	Schoefer Eq.	
Ingot A	27.15	25.41	25.4
Ingot B	26.44	25.05	25.8

가장 큰 열취화 발생기구인 스피노달 분해는 페라이트상에서 발생하기 때문에 정확한 페라이트 함량의 예측은 열취화 평가에 있어서 매우 중요하다. 페라이트 함량을 결정하는 방법에는 크게 실험적인 방법과 화학조성을 이용한 방법이 있는데, 일반적으로 페라이트는 재료 내에서 균일하게 분포하고 있지 않으므로 실험적인 방법보다는 화학조성을 이용한 방법이 편리하고 정확하다고 알려져 있다.

Aubrey는 식 (7)과 같은 페라이트 함량 예측식을 제시하였으며 Schoefer는 식 (8)과 같은 예측식을 제시하였다.[1] 식 (7) ~ (8)에서 페라이트 함량(δ_c)은 vol %이며 Cr_{eq}와 Ni_{eq}는 각각 Cr당량(Cr equivalent factor)과 Ni당량을 의미한다.

$$\delta_c = 100.3(Cr_{eq}/Ni_{eq})^2 - 170.72(Cr_{eq}/Ni_{eq}) + 74.22 \quad (7)$$

여기서,

$$Cr_{eq} = Cr + 1.21Mo + 0.48Si - 4.99$$
$$Ni_{eq} = Ni + 0.11Mn - 0.0086Mn^2 + 18.4N + 24.5C + 2.77$$

$$\delta_c = 42.076(Cr_{eq}/Ni_{eq})^2 - 57.186(Cr_{eq}/Ni_{eq}) + 18.46 \quad (8)$$

여기서,

$$Cr_{eq} = Cr + 1.4Mo + 1.5Si + Nb - 4.99$$
$$Ni_{eq} = Ni + 0.5Mn + 30C + 26(N - 0.02) + 2.77$$

Table 3은 Aubrey와 Schoefer의 예측식으로 페라이트 함량을 예측한 값과 자기측정 방법으로 측정한 페라이트 함량을 정리한 것이다. 표에서 페라이트 함량 예측값은 측정값과 잘 일치하고 있으며 최대 7%의 오차가 있었다. 또한 Aubrey식과 Schoefer식 중 Aubrey식으로 구한 값이 더 크게 예측되었으며 측정값과의 오차는 Schoefer식으로 구한 값이 더 작았다.

4. 샤피 충격에너지

Table 4 Charpy impact test for CF8M

Service Time	Impact Energy, Cv (J)	Rating
As received	150.0	-
30 yrs	14.7	90% ↓
40 yrs	15.8	89% ↓
60 yrs	15.3	90% ↓

건전재(as received)와 30년, 40년, 60년 모의 열화시편에 대하여 샤피 충격시험을 수행하고, 충격에너지 예측식으로부터 구한 예측값과 비교 평가하였다. 충격에너지 예측식은 재료의 화학조성과 페라이트 함량을 이용하여 열취화에 따른 상온 포화 충격에너지(saturation value, $C_{V_{sat}}$)와 임의의 운전온도 및 운전시간에 따른 상온 충격에너지(C_V)를 구할 수 있다.

CF8M CASS에서 상온 포화 충격에너지는 니켈의 함량에 따라 구분되는 식 (9) ~ (10)으로 구한 값과 식 (11)로 구한 값 중에서 낮은 값을 선택한다.

Ni ≤10wt% 인 경우

$$\log_{10} C_{V_{sat}} = 1.10 + 2.12\exp(-0.041\Phi) \quad (9)$$

Ni > 10wt% 인 경우

$$\log_{10} C_{V_{sat}} = 1.10 + 2.64\exp(-0.064\Phi) \quad (10)$$

여기서, $\Phi = \delta_c (Ni + Si + Mn)^2 (C + 0.4N)/5$

$$\log_{10} C_{V_{sat}} = 7.28 - 0.011\delta_c - 0.185Cr + 0.369Mo - 0.451Si - 0.007Ni - 4.71(C + 0.4N) \quad (11)$$

또한 임의의 운전온도 및 운전시간에 따른 상온 충격에너지(C_V)는 화학조성, 상온 포화 충격에너지, 취화 속도론 등을 통해 식 (12)와 같이 예측할 수 있다.

$$\log_{10} C_V = \log_{10} C_{V_{sat}} + \beta[1 - \tanh\{(P - \theta)/\alpha\}] \quad (12)$$

여기서,

$$P = \log_{10}(t_{ser}) - \frac{1000Q}{19.143}\left(\frac{1}{T_{ser}} - \frac{1}{673}\right)$$

$$\alpha = -0.585 + 0.795\log_{10} C_{V_{sat}}$$

$$\beta = (\log_{10} C_{V_{int}} - \log_{10} C_{V_{sat}})/2$$

Table 4는 샤피 충격시험을 통하여 측정한 건전재와 각 열화단계별 충격에너지를 나타낸 것이다. 표에서 열화 시편의 충격에너지는 건전재의 1/10 수준에 불과한 바, 열취화 현상이 크게 발생하였음을 알 수 있다.

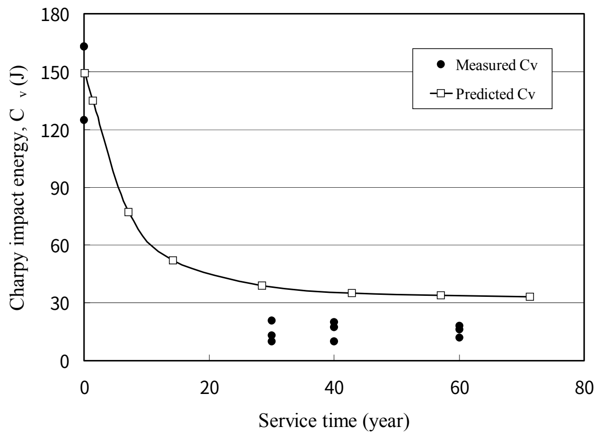

Fig. 1 Measured and predicted Charpy impact energy

충격에너지 예측에 있어서는 Ni ≤10% 경우인 식 (9)로 구한 $C_{V_{sat}}$값과 식 (11)로 구한 $C_{V_{sat}}$값이 각각 38.5J과 30.5J로서 보다 작은 값인 30.5J을 $C_{V_{sat}}$ 예측값으로 결정하였다. 또한, 식 (12)를 이용하여 저온 냉각재 배관온도인 290℃에서 71년(500,000hr)까지 운전되는 경우에 대한 충격에너지 C_V를 구하였다. 이때 초기 충격에너지 $C_{V_{int}}$는 건전재에서 실험으로 구한 값인 150J을 적용하였으며 활성화에너지 Q는 2절에서 계산된 125kJ/mole을 적용하였다.

Fig. 1은 운전시간에 따른 샤피 충격에너지의 실험값과 예측값을 함께 나타낸 것이다. 그림에서 충격에너지는 열화 초기에 급격히 감소된 후 일정해지는 경향을 보이며, 약 30년이 경과된 후에 충격에너지가 포화되고 있음을 볼 수 있다. 또한 열취화 후에는 초기 충격에너지 150J의 10~20%에 불과한 15~30J 정도만 남게 되어 재료가 상당히 취약해졌음을 알 수 있다. 한편, 시험과 예측값을 비교해보면 예측값이 측정값에 비하여 다소 크게 예측되었음을 볼 수 있다.

Fig. 2는 국내외 연구기관에서 수행한 CF8M CASS 재료의 열취화에 따른 충격에너지 측정치를 나타낸 것이다. 그림에서 페라이트 함량이 20% 이상인 본 연구결과, Argonne결과 및 Westinghouse결과는 충격에너지의 경향이 유사하게 나타났으며, KINS/영남대 실험결과와 비교해보면 페라이트 함량에 따라 열취화에 따른 충격

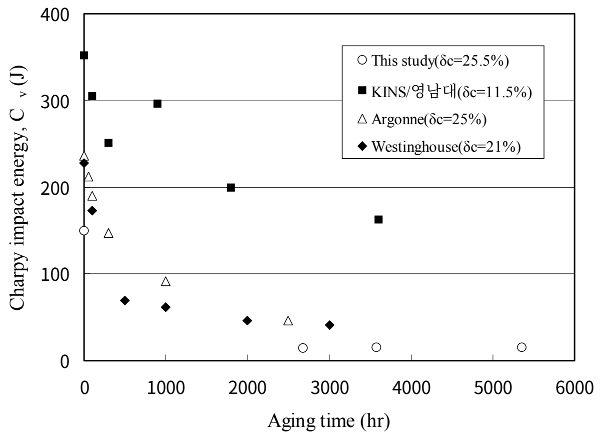

Fig. 2 Comparison of Charpy impact energy

(a) As received (b) 30 yrs Aged

Fig. 3 Specimen after Charpy impact test

에너지의 차이가 매우 크게 발생하는 것을 알 수 있다.

Fig. 3은 본 연구에서 수행한 건전재와 30년 모의 열화재의 충격시험 후 파면을 보인 것이다. 건전재에서는 소성변형이 수반되면서 파괴가 일어난 반면 열화시편에서는 열취화로 인하여 파단면이 완전히 편평한 벽개파괴가 일어난 것을 볼 수 있다.

5. 파괴저항선도

단일 시편을 이용하는 제하 컴플라이언스법 (unloading compliance method, ASTM E813-87)[8]에 따라 파괴저항시험을 수행하여 건전재와 열화재의 J-R 선도를 구하였다. 원전 배관의 실제 운전온도를 고려하여 실험은 320°C에서 수행하였다. 또한, 포화 충격에너지 $C_{V_{sat}}$를 이용하여 열취화에 따른 최저 J-R선도를 식 (13)과 같이 예측하였으며,[2] 계산에 사용된 상수 a, b, c, d는 Table 5에 정리하였다.

$$J = a(C_{V_{sat}})^{b}(\Delta a)^{n} \qquad (13)$$

여기서, $n = c + d(\log_{10} C_{V_{sat}})$

Fig. 4는 CF8M 건전재의 J-R 시험 후 파단면

Table 5 a, b, c and d for the calculated J-R curve

Index	Statically Cast				Centrifugally Cast			
	R/T		290℃		R/T		290℃	
	a	b	a	b	a	b	a	b
CF8M	16	0.67	49	0.41	20	0.67	57	0.41

Index	R/T		290℃	
	c	d	c	d
CF8M	0.23	0.08	0.23	0.06

Fig. 4 CT specimen after J-R test

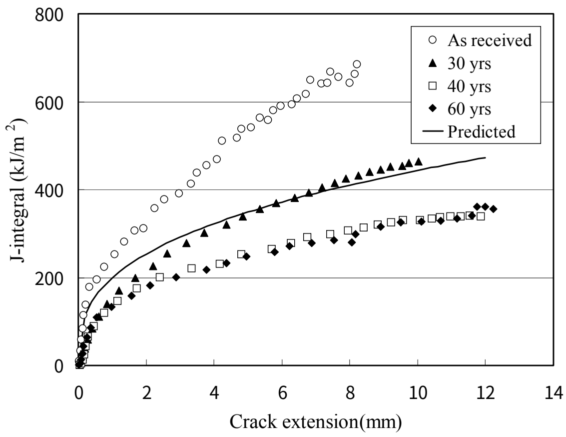

Fig. 5 Tested and predicted J-R curve

사진을 보인 것이며 Fig. 5는 열화단계별 J-R시험 결과와 상온 포화 충격에너지로부터 예측한 J-R 선도를 함께 나타낸 것이다. 그림에서 열화시간이 길어짐에 따라 동일한 균열진전량에서 J값은 저하된다. 또한 J-R선도의 예측값은 30년 열화재의 시험 결과와 근사하며, 40년 및 60년 열화재의 시험 결과보다는 약간 높게 나타났다. NUREG 보고서에서는 저온 냉각재 배관온도인 290°C에서의 J-R선도 예측값인데 반해 시험은 고온 냉각재 배관온도인 320°C에서 수행하였기 때

Table 6 J-R test results for CF8M

Service Time	J_{IC} (kJ/m^2)	Service Time	J_{IC} (kJ/m^2)
As Received	236.6	40 yrs	76.5
30 yrs	74.6	60 yrs	73.0

문에 예측한 최저 J-R선도 보다 다소 낮게 측정된 것으로 판단된다. 한편, 40년 열화재와 60년 열화재의 J값이 거의 일치하고 있는 바, 본 연구에서 제작한 CF8M CASS는 40년 모의 열화조건(400℃×3,572hr)에서 포화되었음을 추측할 수 있다.

Table 6은 J-R 선도로부터 CF8M 재료의 탄소성 파괴인성치(elasto-plastic fracture toughness) J_{IC}를 구한 결과이다. 건전재에서는 236.6kJ/m^{2}이 측정되었으나 30년 모의 열화시편에서는 74.6kJ/m^{2}으로 측정된 바, 열취화로 인하여 건전재의 1/3정도의 파괴인성만이 남아 있었다.

6. 결 론

본 연구에서는 고리 1호기의 1차계통 배관에 사용된 CF8M 주조 오스테나이트 스테인리스강을 30년에서 60년까지 모의 열화시키고 재료물성치를 측정하여 기존의 국내외 열취화 관련 연구결과와 비교 고찰한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) Aubrey식과 Schoefer식을 이용한 페라이트 함량 예측값은 측정치와 잘 일치하며 Aubrey식의 예측값이 더 크게 예측된다.

(2) CF8M 건전재(δ_c=25.5vol%)의 충격에너지는 150J이고, 30 ~ 60년 모의 열화재에서는 열취화로 인하여 초기 충격에너지의 10~20%만 남으며 페라이트 함량이 증가할수록 열취화에 따른 충격에너지 저하가 매우 크게 발생한다.

(3) 포화 충격에너지로부터 예측한 J-R선도는 30년 모의 열화재의 J-R선도와 근사하며 40 ~ 60년 모의 열화재의 측정값보다 약간 높게 예측된다.

(4) CF8M의 초기 파괴인성치는 236.6kJ/m^{2}이며 30 ~ 60년 열화된 이후의 파괴인성치는 초기값의 1/3만 남는다.

(5) CF8M 건전재와 열화재의 재료물성치 측정결과는 원전 배관의 건전성 평가에 유용한 자료를 제공할 것으로 판단되며 향후 영광 1, 2호기 등에 사용된 CF8A 재료에 대해서도 연구를 수행할 예정이다.

후 기

본 연구는 정부 중장기 과제인 ‘주기적안전성 평가 기술개발’의 일부로 수행중인 ‘경년열화 손상평가 기술개발’과 관련하여 한국전력기술(주)와 전력연구원의 공동연구에 의해 이루어졌으며 이에 관계자 여러분들께 감사드립니다.

참고문헌

(1) Shah, V. N. and Macdonald, P. E., 1993, "*Aging and Life Extension of Major Light Water Reactor Components*", ELSEVIER, pp. 146~186.

(2) NRC, 1994, "*Estimation of Fracture Toughness of CASS during Thermal Aging in LWR Systems*," NUREG/CR-4513, Rev. 1., ANL.

(3) Bamford, W. H., Kunka, M. K., et al, 1983, "*The Effect of Thermal Aging on the Structural Integrity of Cast Stainless Steel Piping for Westinghouse Nuclear Steam Supply Systems*," WCAP-10456, Westinghouse Electric Co.

(4) 권재도, 박중철, 이우호 등, 2000, "주조 스테인리스강 CF8M 430℃ 열화거동에 관한 연구Ⅰ-열화기수·정적 및 피로강도평가-," 대한기계학회 논문집 A, Vol. 24, No. 8, pp. 1910~1916.

(5) 권재도, 인재현, 박윤원 등, 2000, "주조 스테인리스강 CF8M 430℃ 열화거동에 관한 연구Ⅲ-탄소성 파괴인성 평가-," 대한기계학회 논문집 A, Vol. 24, No. 10, pp. 2405~2412.

(6) 조선영, 장창희, 정일석 등, 2002, "열취화에 의한 원전배관용 주조 스테인리스강의 기계적 특성 변화 비교," 대한기계학회 2002년도 제2회 재료 및 파괴부문 학술대회 논문집, pp. 169~175.

(7) NRC, 1981, "*Interim Staff Position on Environmental Qualification of Safety-Related Electrical Equipment*," NUREG-0588, ANL.

(8) ASTM, 1989, "Standard Test Method for J_{IC}, A Measure of Fracture Toughness," ASTM E813-87