

원전 증기발생기 전열관용 INCONEL™ Alloy 600의 1차측 응력부식균열에 미치는 냉간변형의 영향

이덕현 · 한정호 · 김경모 · 김정수 · 이은철*

한국원자력연구소 증기발생기재료과

*서울대학교 원자핵공학과

The Effect of Cold Work on Primary Water Stress Corrosion Cracking of INCONEL™ Alloy 600 Nuclear Power Steam Generator Tube Material

Deok Hyun Lee, Jung Ho Han, Kyung Mo Kim, Joung Soo Kim and Un Chul Lee*

Steam Generator Materials Project, Korea Atomic Energy Research Institute, Taejeon 305-353

*Dept. of Nuclear Engineering, Seoul National University, Seoul 151-742

(1998년 5월 12일 받음, 1998년 6월 17일 최종수정본 받음)

초 록 가압 경수로형 원전에 사용되는 Alloy 600 증기발생기 전열관재료의 입계응력부식균열 거동에 미치는 냉간변형의 영향을 1차 냉각수 모사조건에서 정속인장시험방법으로 조사하였다. 인장 냉간변형은 응력부식균열을 크게 가속화 시키지는 않았으며 변형률이 25% 이상인 경우에는 응력부식균열이 발생하지 않았다. 이 현상은 냉간 변형량 및 형태에 따른 미소변형 및 응력의 불균질성에 영향을 받는 것으로 사려되며 응력의 크기는 직접적인 영향을 주지 않는 것으로 보인다. 국부적인 큰 응력구배가 존재하는 경우 균열의 생성 및 성장이 현저히 가속화되었는데 이는 원전 1차측 응력부식균열 기구가 응력구배에 의존하는 과정과 연관되어 있다는 증거이다. Hump시편을 이용한 정속인장시험방법은 짧은 실험기간내에 원전 1차측 응력부식균열 특성을 평가할 수 있는 방법이었다.

Abstract The effect of cold work on the intergranular stress corrosion cracking of Alloy 600 steam generator tube material of pressurized water reactor in nuclear power plant was studied through constant extension rate test under simulated primary water condition. The cracking susceptibility was not greatly increased by the tensile cold work and cracks did not nucleated in the specimens tensile cold worked greater than 25%. It was inferred that the cracking process was affected by the inhomogeneity of micro-stress/deformation depending upon the amount and the type of cold work, and was not directly influenced by the magnitude of applied stresses. The crack initiation and propagation were greatly accelerated by the local and high stress gradient across the specimen thickness, and this implied that the mechanism of stress corrosion cracking was related to the process controlled by the stress gradient. It was also shown that the constant extension rate test with hump specimen was a timesaving method for evaluating the stress corrosion cracking susceptibility of Alloy 600 under primary water.

1. 서 론

INCONEL Alloy 600은 가압 경수로형 원자력 발전소의 증기발생기 전열관 및 노즐 등 압력경계 재료로 널리 사용되고 있으나 고온 고압의 원자로 1차측 냉각수와 장기간 접촉하게 되면 입계(intergranular) 응력부식균열이 발생하는데^{1,2)} 이 현상을 1차측 응력부식균열(primary water stress corrosion cracking, 이하 "PWSCC"로 서술)이라고 한다. Alloy 600의 PWSCC 민감도(susceptibility)는 재료의 화학조성, 미세조직, 냉간가공도 등 여러 금속학적 인자들과 응력의 크기, 용액온도, pH, 용존수소농도 등 환경적 인자들의 영향을 크게 받으며³⁾ 이에 대한 실험적인 평가에서는 입계균열의 생성 또는 이에 의한 파단까지 수개월 또는 수년 이상의 장시간이 요구되기 때문에 응력 및 실험온도를 높이는 가속화된 실험방법이 적용되고 있다.

냉간변형은 전기화학적으로는 소둔재료에 비해 용액과의 반응성을 증가시켜 낮은 부식전위와 높은 속도의 부식과정을 야기하며 강도 측면에서는 응력의 증가, 특히 결정입계에 국부적인 응력집중을 증가시킨다. 이러한 관점에서 PWSCC 민감도와 냉간변형량 사이에 비례관계가 있을 것으로 추측되나, 5% 냉간가공한 경우가 20% 이상 냉간가공한 경우보다 민감도가 더 컸으며,⁴⁾ 3% 냉간압연으로 민감도가 증가된 재료를 추가로 10% 냉간압연한 경우 더 이상 민감도를 증가시키지 않았다는⁵⁾ 정속인장시험(constant extension rate test : CERT) 결과들을 보면 재료 조건에 따라 다소 차이는 있겠지만 5% 내외의 낮은 냉간변형량에서 PWSCC에 대한 민감도가 가장 커지는 것으로 보인다. 반면에 국부적인 굽힘변형은 민감도를 현저히 증가시키며 굽힘 변형량에 비례하여 민감도가 증가한다는 보고가 있다.⁴⁾ 이상과 같은 기존 연구결과들을 보면 PWSCC는

냉간변형에 의한 미세조직 및 강도 변화 그 자체보다는 압연, 인장, 굽힘 등 변형의 형태에 따라 달리 주어지는 미시적 응력분포의 변화에 의해 더 큰 영향을 받게 되는 현상일 가능성이 크다. 그러나 현재까지 이러한 관점으로 접근한 연구결과는 거의 없다.

따라서 본 연구에서는 PWSCC 민감도가 비교적 큰 Alloy 600 전열관 재료 1종에 대해 냉간변형의 형태가 PWSCC 거동에 미치는 영향을 조사하였으며 이를 통하여 재료 및 환경별 영향은 물론 균열 억제제의 효과 등을 단시간에 평가할 수 있는 실험방법을 도출하고 또한 이 현상의 가속화 인자를 보다 정확히 이해함으로써 현재까지 밝혀지지 않은 PWSCC기구규명으로서 접근을 목적으로 하였다.

2. 실험 방법

본 실험에서 사용한 Alloy 600은 표 1과 같은 조성과 기계적 성질을 갖는 외경 22.2mm, 두께 1.27mm의 수입 상용 tube로서 982℃에서 2분 15초 동안 최종 열처리 (mill annealing)한 재료이다. 그림 1에는 이 재료의 길이방향 단면 미세조직사진을 나타냈는데 결정입내에 다수의 쌍정과 더불어 많은 탄화물이 분포하고 있으며 입계 탄화물은 상대적으로 매우 적어 탄소 고용온도 이하에서 최종 열처리된 PWSCC 민감성이 비교적 큰 재료임을 조직상으로도 유추할 수 있다.⁶⁾ 평균 결정립 크기는 약 25~30 μ m였다.

Table 1. Chemical composition in wt.% and room temperature tensile properties of Alloy 600 tube specimen.

Ni	Cr	Fe	C	S	Mn	Cu	Si	Y.S	U.T.S	Elongation
75.34	15.7	8.03	0.04	0.001	0.21	0.11	0.30	27.7kgf/mm ²	68.1kgf/mm ²	50%



Fig. 1. Microstructure of Alloy 600MA tube, 2% bromine-methanol etching.

PWSCC 특성의 비교 평가를 위해서는 정속인장시험 방법을 적용하였으며 인장시편을 그림 2와 같은 규격으로 tube로부터 wire 가공하여 제작하였다. 인장 냉간변형의 영향을 평가하기 위하여 가공된 시편을 상온에서 각각 5, 10, 25, 34% 인장변형시켜 (탄성변형량 포함) 모재와 함께 5종의 시편을 준비하였다. 또한 굽힘 냉간변형의 영향을 조사하기 위해서는 OSU의 Smialowska group이 사용한 hump시편⁷⁾ 형상을 보완 교정하여, 인장시편의 gauge 중앙부위를 그림 3과 같은 규격의 금형으로 tube 내경 면이 hump안쪽 면이 되도록 굽힘변형을 가하여 제작하였다. 이 시편의 형상으로부터 계산된⁸⁾ 공학적 굽힘변형량은 34%이다. 정속인장시험은 그림 4와 같이 pressure balanced pull rod 및 관련 치수가 부착된 1리터 용량의 316 스테인레스강 압력용기 (autoclave) 내에서 수행하였으며, loop system을 제작, 연결하여 원전 1차측 냉각수와 동일한 수질조건을 실험용액이 순환되도록 하였다. 실험용액은 전기저항 18M Ω ·cm 이상의 초순수에 LiOH와 H₃BO₃를 첨가하여 2.0ppm Li+1200ppm B의 농도를 갖도록 준비하였

으며 이 용액을 시간당 160cc의 속도로 흘러 배출함으로서 실험중 용액조건이 항상 일정하게 유지될 수 있도록 하였다. 인장시험 부위 용액의 온도 및 압력은 각각 360 \pm 1℃ 및 2,900 \pm 50psig로 조절하였고 용존수소는 35cc STP/kg H₂O, 용존산소농도는 10ppb이하로 유지하였다. 시편은 zirconia를 사용하여 압력용기 몸체 및 pull rod와 전기적으로 절연시켰으며 인장속도는 본 실험재료 (모재)가 PWSCC에 의한 입계파괴양상을 보이기 시작하는 최대속도인 0.3 μ m/min. 으로 실험하였다. 시편들의 실험전 gauge length는 냉간변형량 및 변형방법에 따라 19~26.8mm로 일정하지 않았기 때문에 정속인장시험시 초기 변형률 속도 (strain rate)는 2.63~1.87 $\times 10^{-7}$ /sec의 범위에서 시편에 따라 약간의 차이가 있었다.

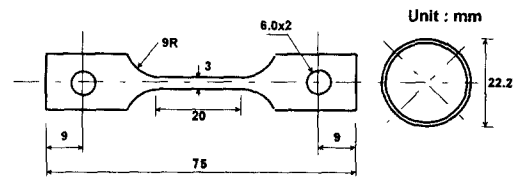


Fig. 2. Dimension of CERT specimen.

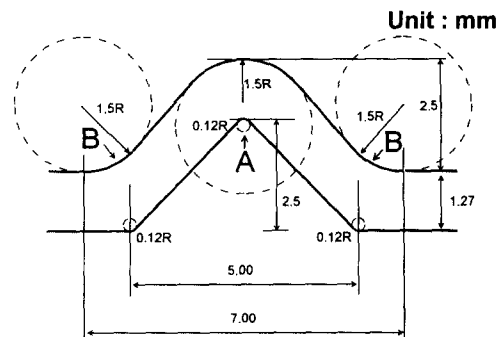


Fig. 3. Design diagram of hump dies.

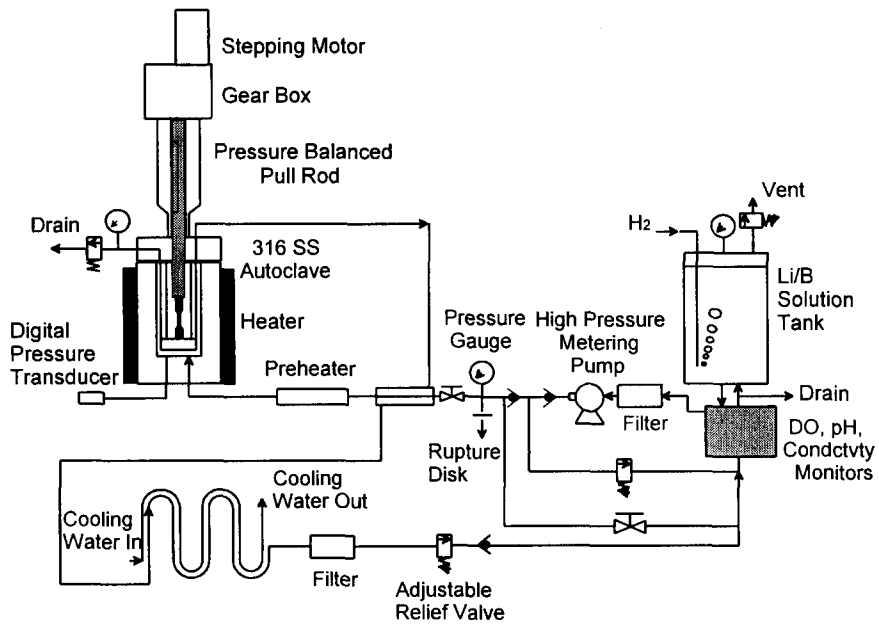


Fig. 4. Schematic of test setup for CERT under simulated primary water condition.

3. 결과 및 고찰

정속인장시험

Alloy 600 모재 (As-Received ; A/R) 시편, 5%, 10%, 25%, 34% 인장시편, 그리고 hump 시편 각각에 대한 원전 1차측 모사 수질 조건에서의 정속인장시험 결과를 그림 5에 나타냈다. 각 시편들의 초기 gauge length 및 단면적이 냉간변형 형태 및 변형량에 따라 서로 달랐기 때문에 실험결과를 하중-변위 곡선으로 통일하여 표시하였다. 인장 냉간변형을 많이 가한 시편일수록 파단시간은 감소하였

으며 최대하중은 증가하였다. 반면에 굽힘 냉간변형을 가한 hump 시편은 매우 작은 파단하중과 짧은 파단수명을 보였다. 각 시편에서 냉간변형 변위와 정속인장시험시 파단변위, 그리고 이들의 합인 총 변형변위값은 표 2와 같다.

인장시편의 최초 gauge length (20mm)를 기준으로 할 때 연신율을 나타내는 총 인장변위값 (냉간변형량과 정속인장시험에 의한 변형량의 합)은 인장 냉간변형량이 10% 이내의 시편에서는 9mm (연신율 45%) 미만이었으나 25% 이상인 시편에서는 오히려 11mm (연신율 55%) 내외로 증가하여 10% 이내의 인장변형시편이 PWSCC에 더 민감함을 예상할 수 있다. 또한 hump 시편은 0.9mm의 매우 작은 총 변형변위 (연신율 4.5%)로 파단되어 국부적인 굽힘변형 지역에서 우선적인 파괴과정이 진행되었음을 추측할 수 있다. 이상과 같은 경향을 확인하기 위하여 각 실험시편의 파단형태를 조사하였다.

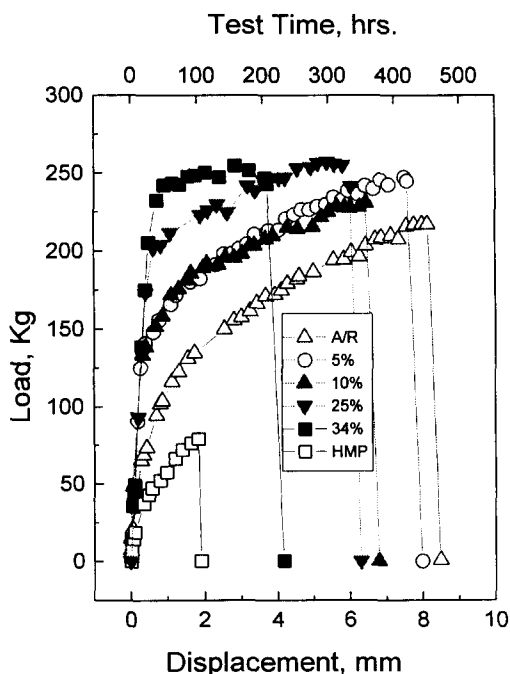


Fig. 5. Load-displacement curves.

Table 2. Tensile displacement values of CERT specimens. Unit : mm

Specimen	Displacement by Cold Work Before CERT (A)	Displacement by CERT (B)	Total Displacement (A + B)
A/R	0.00	8.50	8.50
5%	1.00	7.98	8.98
10%	2.00	6.78	8.78
25%	5.00	6.28	11.28
34%	6.80	4.17	10.97
Hump	~-1.0*	1.90	0.90

*Hump specimen suffered gauge length shrinkage due to complex bending deformation

파단면 분석

그림 6-a는 모재시편의 파단면 사진으로 그림 6-b, c의 확대사진에서 알 수 있듯이 시편의 내외경 표면에서 두께방향으로 부분적인 입계파괴가 진행되었음을 보여주고 있다. 5% 및 10% 인장 냉간변형시편의 파단면 사진을 각각 그림 7과 8에 나타냈는데 이 시편들도 내외경 표면에서 입계파괴가 진행되었으며, 특히 10% 변형시편(그림 8)의 경우 외경표면에서 입계파괴과정이 국부적으로 진행되어 시편 두께방향으로 상당히 깊은 균열이 성장한 양상을 보였다. 이러한 내외경 표면부근의 입계파괴양상은 냉간변형량이 큰 시편에서는 관찰되지 않았는데, 25% 변형시편에서는 그림 9와 같이 입계파괴양상이 현저하게 줄어들어 내외경 표면에 부분적으로 결정립 한 개 크기 이내의 미소한 입계균열들을 보였으며, 34% 변형시편은 그림 10과 같은 입계파괴의 증거가 전혀 없는 순수한 연성파괴양상을 나타냈

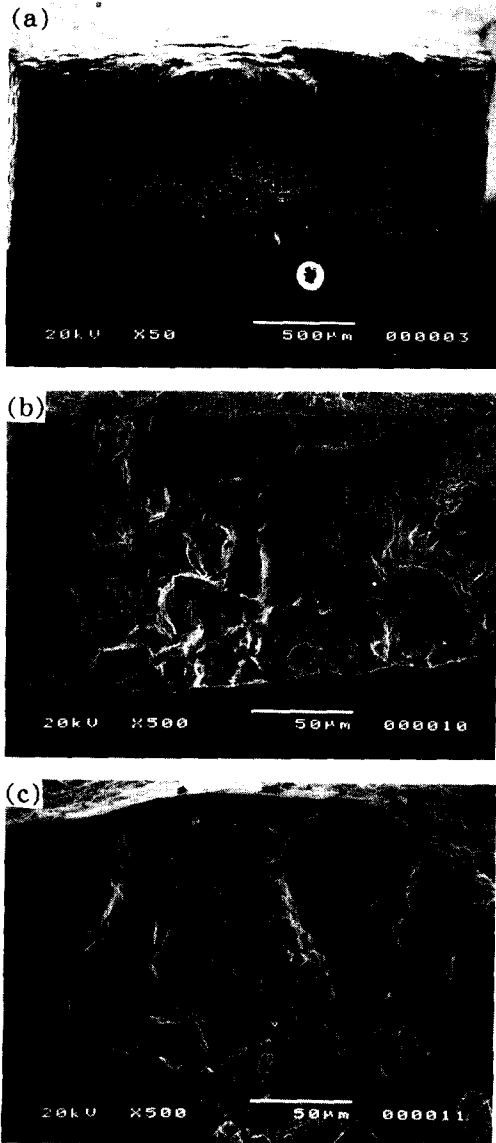


Fig. 6. Fractographs of (a): A/R specimen after CERT, (b): magnified view of lower(ID) edge in (a), and (c): magnified view of upper(OD) edge in (a).

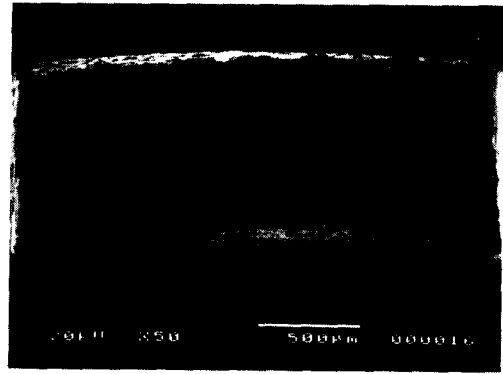


Fig. 7. Fractograph of 5% cold worked specimen after CERT.

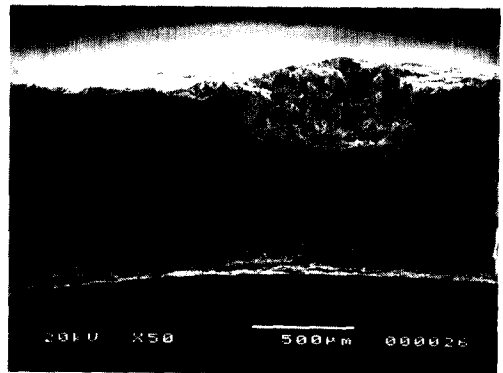


Fig. 8. Fractograph of 10% cold worked specimen after CERT.

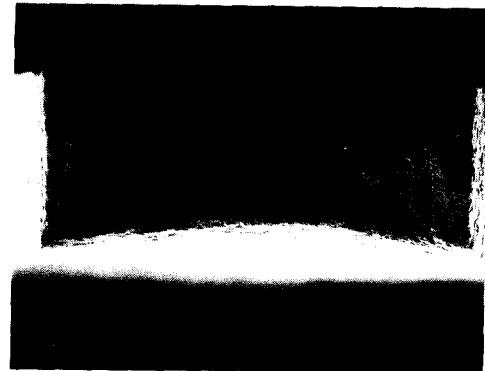


Fig. 9. Fractograph of 25% cold worked specimen after CERT.

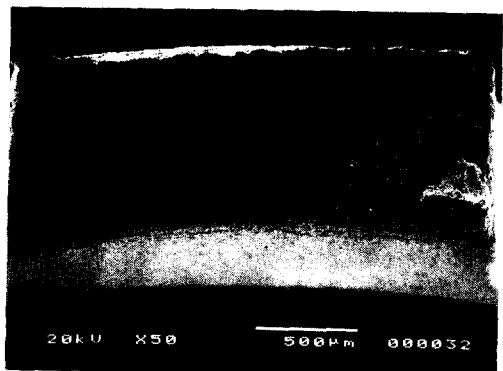


Fig. 10. Fractograph of 34% cold worked specimen after CERT.

다. Hump시편의 경우는 그림 11의 파단면사진에서와 같이 균열이 tube내경(hump안쪽)으로 부터 외경방향으로 성장하였고, 파단면 대부분이 입계파괴 양상을 보여 PWSCC가 현저히 가속화되었음을 보여주고 있다.

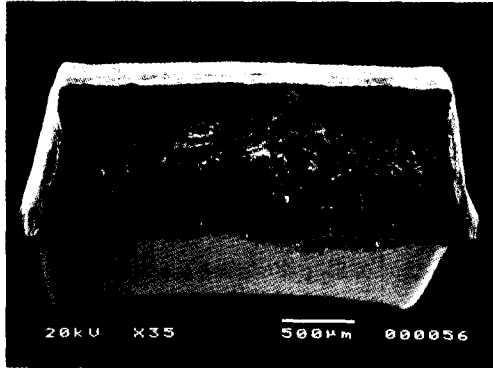


Fig. 11. Fractograph of hump specimen after CERT.

PWSCC의 냉간변형 의존성

이상과 같은 파단면 분석 결과를 전체 파단면중 입계파괴 지역이 차지하는 분율과 최대 균열길이를 정량화하여 그림 12와 같은 도표를 얻었다. PWSCC에 비교적 민감한 본 실험재료의 경우, 인장 냉간변형에 의해 민감도가 크게 증가하지는 않았으나 10% 변형시편에서 균열길이의 증가가 관찰되었으며, 특히 기존 연구보고와 유사하게^{4,5)} 변형량이 25% 이상으로 커지면 오히려 민감도가 감소함을 알 수 있다.

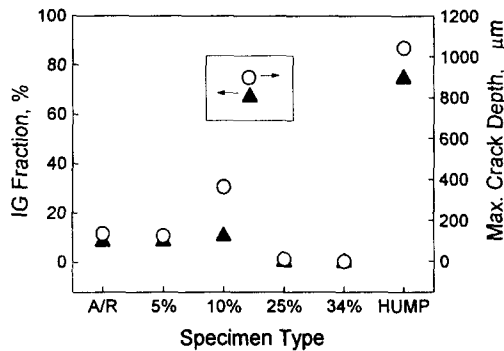


Fig. 12. Intergranular area fraction and maximum crack depth of specimens tested.

이러한 PWSCC의 인장 냉간변형량에 대한 의존성은 현재로서는 정확한 해석이 불가능하다. 그러나 입계탄화물이 적은 저온 최종 열처리된 Alloy 600에서 5% 인장 변형시 입내보다 높은 밀도의 전위가 입계부근에 집적되는 불균질한 전위조직이 형성된다는 연구보고⁹⁾와 25% 이상의 인장 냉간변형시편에서 큰 인장하중을 보였음에도 불구하고 PWSCC 민감도가 오히려 감소한 본 실험결과를 보면 PWSCC과정은 냉간 변형량에 따른 미소변형 및 응력의 불균질성에 큰 영향을 받는 것으로 사려되며 응력의 크기는 직접적인 영향을 주지 않는 것으로 보인다.

한편 hump시편의 파단양상 분석결과를 이 가능성을 뒷

받침해 주고 있다. 그림 13은 파단된 hump시편의 오목한 중심부(그림 3의 A)를 관찰한 사진인데, 굽힘변형의 중심선으로부터 약 200~300μm 떨어진 중심선과 평행한 두 표면부분에서 균열의 생성과 성장이 우선적으로 일어나 파단된 양상을 보여주고 있다. 이 부분들은 굽힘 냉간변형후 hump시편의 두께방향 측면을 관찰한 사진인 그림 14에서 알 수 있듯이 하부굽힘의 중심정점을 기준으로 한 대칭적인 굽힘변형에 의해 가해진 압축소성변형이 가장 큰 곳들이다.

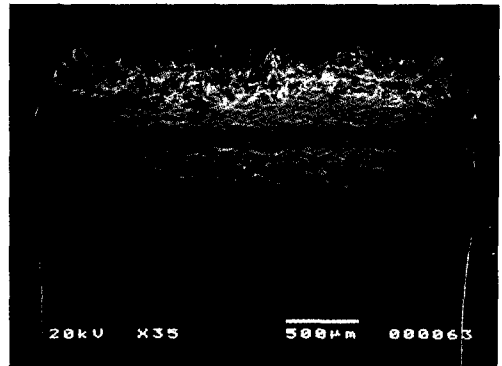


Fig. 13. Surface of the hump inside after CERT.

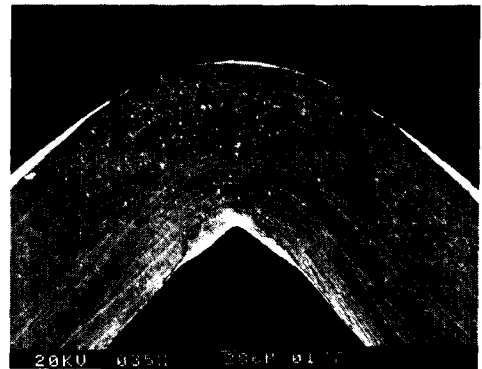


Fig. 14. Lateral surface of as-deformed hump specimen.

소성 굽힘변형시 응력-변형량간의 관계이론⁸⁾에 따르면 굽힘변형후 이완시 springback moment에 의해 시편 길이 방향으로 큰 잔류응력이 형성된다. 즉, 인장소성변형을 받은 부분은 표면으로 부터 두께방향으로 큰 기울기를 갖는 압축-인장잔류응력이 형성되며 압축소성변형을 받은 부분은 반대로 표면으로 부터 두께방향으로 인장-압축잔류응력의 큰 구배가 분포한다. 정속인장시험시 인장하중은 hump시편 성형시 굽힘변형을 받은 부분에 역방향의 굽힘 moment를 형성하여 압축소성변형지역은 인장응력을 받게 된다. 이때 Bauschinger effect로 인해 시편의 두께 방향 각 부위의 유동응력에 차이는 있겠지만 hump시편 성형시 형성된 큰 잔류응력 구배를 유지하면서 응력상태를 인장방향으로 더욱 증가시킨다. Hump시편의 양쪽 어깨부분(그림 3의 B)도 냉간 굽힘변형시 접촉반경의 차이로 인해 변형량과 국부변형의 정도가 중심부분보다는 훨씬 작지만 동일한 양상의 응력상태가 형성되는 지역인데, 그림 15와 같이 정

속인장시험후 이곳에서도 다수의 균열이 보다 넓은 표면지역에서 걸쳐 생성되어 상당히 진전된 모습을 볼 수 있었다. 따라서 이 결과들을 보면 hump시편에서 굽힘 냉간변형에 의해 PWSCC가 가속화된 원인은 기존 해석⁷⁾과 같은 국부적인 냉간변형 그 자체에 의한 것이라기 보다는 이로 인해 표면으로 부터 두께방향으로 형성되는 큰 응력구배 때문일 가능성이 크다.



Fig. 15. Surface of the hump shoulder after CERT.

Hump시편의 인장변형시 응력집중이 가장 심하고 큰 3축응력을 받는 곳은 hump 내면 중심부인데도 불구하고 여기서 200~300 μ m 떨어진 곳에서 PWSCC가 우선적으로 발생된 것은 hump성형시 이 부위에 냉간변형에 의한 미소결함이 집중적으로 형성되었던지 또는 시편형상에 따른 특성상 고응력 또는 국부변형이 이곳에 우선적으로 집중되었기 때문일 수도 있다. 이를 확인하기 위하여 hump시편을 정속인장시험과 동일한 속도로 상온에서 인장시험하였다. 그 결과 그림 16과 같이 hump시편의 안쪽 중심부위에서 연성파괴가 일어나 파단 되었으며 PWSCC가 우선적으로 발생되었던 큰 압축변형을 받은 부분에는 균열이 전혀 생성되지 않았다. 따라서 높은 응력상태하에 놓이는 기계적으로 취약한 부분(hump안쪽 중심부)보다 두께방향으로 큰 응력구배가 형성되는 표면지역에서 PWSCC가 우선적으로 발생되었다는 사실을 확인할 수 있었다.

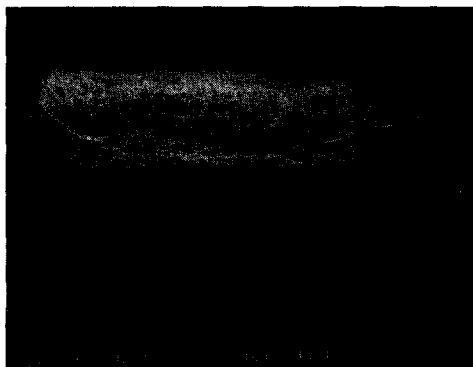


Fig. 16. Surface of the hump inside after tensile test at room temperature.

또한 hump시편은 정속인장시험 초기에 냉간변형된 hump중심부와 양쪽 어깨부위에 변형이 집중되기 때문에

이러한 국부 변형이 PWSCC를 가속화시켰을 가능성도 있다. 이를 확인하기 위하여 34%의 인장 냉간변형을 가한 후 gauge length 중심부에 두께방향으로 직경 0.8mm의 원형 hole을 가공한 center-notched 시편을 제작하여 동일조건으로 정속인장시험 하였다. 그림 17의 파단면 사진에서 볼 수 있듯이 응력집중에 의해 notch 표면 및 그 주변이 국부변형과 3축 응력을 받은 이 시편은 입계파괴 양상이 관찰되지 않음으로서 국부변형 및 3축응력 작용에 의한 PWSCC 가속화 가능성은 배제되었다. 따라서 이상과 같은 결과들을 종합하면 PWSCC는 국부적인 응력구배에 크게 의존하는 현상이라는 결론을 얻을 수 있다.

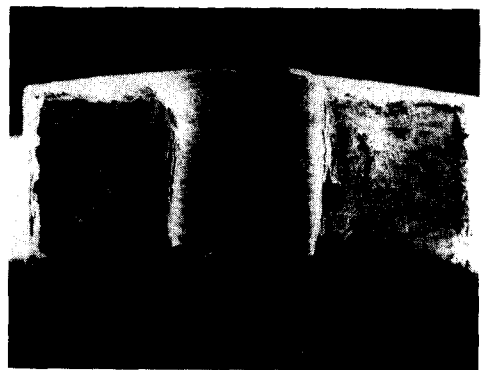


Fig. 17. Fractograph of 34% cold worked/center-holed specimen after CERT.

Hump시편에서의 균열생성시간

PWSCC 민감도가 큰 Alloy 600의 360 $^{\circ}$ C 정속인장시험 결과 균열생성에 소요되는 시간은 $10^{-6} \sim 10^{-9}$ /sec의 변형률 속도 범위에서 약 90~100시간이라고 보고된 바 있다.¹⁰⁾ 이를 참고할 때 균열생성에 필요한 시간 정도의 짧은 실험 기간에 시편 두께의 80% 이상에 도달하는 매우 긴 입계균열을 보인 hump시편에 대한 본 실험결과를 보면, 실험초기에 균열이 매우 빨리 생성되어 실험기간의 대부분을 균열 전파과정이 차지한 것으로 생각된다. 따라서 균열의 생성시간을 조사하기 위하여 hump시편을 10시간 간격으로 정속인장시험한 후 표면을 관찰해 본 결과 10시간(변위: 0.18mm) 시험후에는 균열이 생성되지 않았으나 20시간

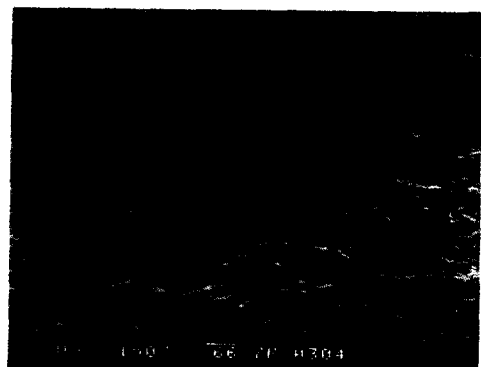


Fig. 18. Surface of the hump inside after CERT for 20 hours, darker area shows the bending center-line.

(변위: 0.36mm) 후에는 그림 18과 같이 hump안쪽 굽힘 중심선으로 부터 약 260 μ m 떨어진 부분에서 이미 균열이 생성되어 수십 μ m 이상의 크기로 성장한 것이 관찰되었다. 즉, hump시편에서 균열은 10~20시간의 매우 짧은 기간 내에 생성되며 응력구배가 균열생성과정을 가속화시킨다는 사실을 확인하였다.

4. 결 론

PWSCC에 민감한 Alloy 600 증기발생기 전열관재료 1종에 대해 정속인장시험을 이용하여 냉간변형의 영향을 조사한 결과는 다음과 같다.

1) 인장 냉간변형은 PWSCC를 크게 가속화 시키지는 않았으며 변형량이 25% 이상으로 아주 큰 경우에는 이 현상이 발생하지 않았다.

2) PWSCC 과정은 냉간 변형량 및 변형 형태에 따른 미소변형 및 응력의 불균질성에 큰 영향을 받는 것으로 사려되며 응력의 크기는 직접적인 영향을 주지 않는 것으로 보인다.

3) 국부적인 큰 응력구배가 존재하는 경우 PWSCC 현상(특히 균열의 생성)이 현저히 가속화되었으며 따라서 이 기구는 응력구배에 크게 의존하는 과정과 연관되어 있음을 알았다.

4) Hump시편을 이용한 정속인장시험방법은 짧은 실험 기간내에 PWSCC특성을 평가할 수 있는 방법이며 본 실험

조건의 경우 균열은 20시간 이내에 생성되었다.

참 고 문 헌

1. H. Coriou, L. Grall, C. Mahieu and M. Pelas, *Corrosion*, **22**, 280 (1966)
2. S.J. Green and J.P. Paine, *Nucl. Technol.*, **55**, 10 (1981)
3. J.M. Gras, *Parkins Symp. on Fundamental Aspects of Stress Corrosion Cracking*, **411**, TMS, (1991)
4. R.B. Rebak, Z. Xia, and Z. Szklarska-Smialowska, *Corrosion*, **5** (9), 689 (1995)
5. T.S. Bulischeck and D. Van Rooyen, *Nucl. Technol.*, **55**, 383 (1981)
6. C.M. Owens, *Corrosion* 85, paper No. **93** (1985)
7. N. Totsuka, E. Lunarska, G. Cragolino and Z. Szklarska-Smialowska, *Scrip. Metall.*, **20**, 1035 (1986)
8. P. Dadras, "Stress-Strain Relationships in Bending," *Metals Handbook*, vol.8, 9th ed., **118**, ASM, (1978)
9. S. Bruemmer, L.A. Charlot and C.H. Henager, Jr., *Corrosion*, **44** (11), 782 (1988)
10. J.M. Boursier, D. Desjardins and F. Vaillant, *Corros. Sci.*, **37** (3), 493 (1995)