2000 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

2상역 열처리를 통한 원전용 탄소강 배관재의 물성개선 연구

A study on the Improved Mechanical Properties of Nuclear Carbon Steel Piping through the Intercritical Heat Treatment

이주석, 김인섭
한국과학기술원
대전광역시 유성구 구성동 373-1

김진원, 박치용
한국전력공사 전력연구원
대전광역시 유성구 문지동 103-16

요 약

본 연구에서는 2상역 열처리를 원전주증기 배관재로 사용되는 SA106 Gr.C에 적용하여 열처리 전후의 재료 인성과 동적변형시효 현상에 대한 민감도를 조사하였다. 열처리의 효과를 평가하기 위해 정적변형시효시험과 파괴시험을 수행하였다. 시효시험 결과로, 열처리 후의 시효지표는 낮은 시효 온도조건에서는 as-received 보다 낮게 나왔으며 활성화에너지는 113.9 및 122.8 kJ/mol로 열처리 전 후 각각 관찰되었다. 파괴시험에서는 하중속도 0.4mm/min의 경우, 289℃에서 최소의 J-R, Ji와 dJ/da 값을 보였고 4.0mm/min의 경우는 350℃ 부근에서 최소가 되었다. 이는 as-received 와 비교하여 볼 때 최저의 파괴인성치를 보이는 온도영역이 열처리 효과로 인해 고온으로 이동하였음을 나타내고 있다.

Abstract

In this study the intercritical heat treatment was applied to the SA106 Gr.C main steam line piping steel to investigate the improvement of toughness and the DSA sensitivity resulted from the heat treatment. Static strain aging (SSA) and J-R test were conducted to measure the material properties. The intercritical heat treatment gave a lower aging index than the as received condition at the lower aging temperature and activation energy determined by SSA experiment was 113.9 and 122.8 kJ/mol before and after heat treatment, respectively. Fracture tests show that the minimum value of J-R, Ji and dJ/da were observed at 289℃ when the load-load line displacement rate was 0.4mm/min, while there were minimum at 350℃ and 4.0mm/min. Compared to the as-received condition, temperature for the minimum fracture properties was shifted to higher temperature with the heat treatment.

1. 서 론

원자력발전소에서 많은 기기 및 배관등의 구조물에 탄소강 재질이 사용되고 있고, 주요 압력경계를 이루고 있다. 일반적으로 탄소강은 값이 저렴하고 가공성이 용이한 반면, 파괴인성이 부족하며 변형시효(strain aging)의 영향을 받아 취화되는 단점을 가지고 있다[1]. 탄소강 배관의 건전성확보를 위한 노력이 그 동안 각 나라에서 수행되어 왔는데 최근의 수행결과가 미국 원자력규제위원회(USNRC) 주도하의 국제공동연구로 진행된 IPRIG (International Piping Integrity Research Group) 프로그램이었다. 연구결과에 의하면 동적변형시효(dynamic strain aging; DSA) 현상은 지진하중시와 같은 빠른 변형속도와 300℃ 근처에서 파괴인성과 균열전파에 큰 영향을 줄 수 있음이 확인되었다[2]. 저합금 탄소강 배관재의 물성 저하기구인 DSA 현상은 배관재 합금원소의 종류와 량, 미세구조, 제조공정, 열처리 이력에 따라 그 양상이 많이 달라진다고 논의되었다. 그러나 이의 구체적인 개선방안은 확립하지 못한 상태이다.

탄소강 배관재의 사용온도에서 발생하는 DSA 현상은 load drop, crack jumping과 같은 불균일한 균열 진전을 가져오므로 배관재의 정확한 파괴거동을 예측하는 것이 중요한 문제가 되고 있다[1]. 최근의 연구결과를 보면 SA516 Gr.70 강의 시험결과 파괴저항이 우수하지 못하고, 고온에서 동적변형시효로 인한 파괴저항의 변화가 큰 것으로 알려졌다[2]. 또한 288℃에서 동적변형시효에 의한 불안정한 균열성장과 점프가 보고되었고, weld 부위는 빠른 냉각속도 하에서 녹아있는 탄소와 질소 침입형 원자의 양이 많기 때문에 동적변형시효에 더 민감한 것으로 나타났다. 특히, 프랑스 CLI에서 제작된 강의 경우, 상온에서 동적하중시 불안정 취성파괴 현상까지 보였으며, 주증기 배관재로 사용되는 SA106 Gr.C강의 경우는 파괴인성이 모재와 용접재 모두 상온에 비해 약 40% 정도의 감소를 보였다[3, 4].

탄소강 배관의 경우 DSA에 의한 연성 및 파괴인성 감소를 완전히 제거하는 것은 거의 불가능하므로 초기의 배관재 파괴저항치를 높이는 동시에 동적변형시효에 의한 물성 저하, 특히 지진하중과 같은 동적하중시에서 파괴인성의 감소가 최소로 되도록 배관 가공 열처리공정을 개선하는 것이 중요하다.

따라서, 본 연구에서는 가공열처리공정의 개선을 통해 파괴저항치와 동적변형시효에 대한 민감도 변화를 측정하여 원전배관 설계시 탄소성 파괴역학에 의한 파단전누설(LBB) 설개개념 적용의 기초자료로 제공하고자 하였다.

2. 실험방법

2.1 시험편 제작 및 열처리

본 시험에 사용된 재료는 한국중공업으로부터 공급을 받은 영광 원자력발전소 3, 4호기의 주증기 배관에 사용되고 남은 보관재료인 SA106 Gr.C 탄소강이다. 재료의 화학적 조성은 표 1에 나타내었다. 시편의 열처리 방법은 오스테나이트 단상 영역인 950℃에서 1시간동안 균질화 처리를 한 후 상온까지 노냉(furnace cooling)을 하였으며, 다시 2상역 온도인 760℃에서 40분간 소둔(annealing) 처리한 후 노냉을 하였다. 인장 시험편은 배관의 길이방향과 일치하게(L-방향), 파괴시험편은 배관 균열이 원주방향 (L-C방향)으로 진전한다고 가정을 하여 시편을 채취하였다. 시

편 열처리에 따른 탈탄(decaburizing)과 산화효과를 배제하기 위해 인장시편과 CT 시험편 모두 열처리 후 최종 가공하였다. 시효지표(aging index)를 측정하기 위한 인장시험편의 가공은 게이지 길이가 20mm이고 지름이 4mm인 봉상으로, J-R 시험편은 ASTM E-1820에 의거 1T CT로 제작을 하였다.

2.1 시험장비 및 장치

시험에는 10톤 용량의 만능재료시험기 (AG-10TA, Shimadzu Co.)를 사용하였다. 인장시험시 하중-변위 곡선에서 항복점 강하(yield drop)와 J-R 시험시 하중천이 등을 보다 명확히 관찰하기 위해서 하중-변위곡선을 chart-recorder를 사용하여 함께 그렸다. 고온 파괴시험에는 3영역제어 전기저항로를 사용하였고, 시험편의 온도는 열전대를 시편의 위와 아래에 용접하여 측정하였다. 시편내 온도의 평형을 유지하기 위해 시편의 온도를 시험온도의 ±1.5℃이내에서 30분 이상 유지 후 시험을 실시하였다. J-R 시험시 하중선 변위는 고온 COD gage를 사용하여 측정하였고, 균열의 시작과 성장을 측정하기 위해 DCPD(Direct Current Potential Drop) 방법을 사용하였으며, 50A 용량의 HP-DC power supply를 사용하여 정전류를 공급하였다.

2.2 정적변형시효 시험

정적변형시효 시험은 열처리된 시험편과 as-received 시험편을 각각 $2\times10^{-3}s^{-1}$의 하중속도로 7% 정도 예비변형 시킨 직후 ±1℃로 온도 설정된 fan이 달린 강제순환방식의 dry oven에 넣어 132, 150, 170 및 289℃에서 다양한 시간동안 시효처리 하였다. 시효처리 후 시험편이 파단 될 때까지 인장시험을 다시 수행하였으며, 시효후의 응력은 시험편의 예비변형 전 즉 4mm의 직경으로 계산되었다.

2.3 J-R 시험

모든 시편은 ASTM E1820-96에 따라 유압식재료시험기(Instron 8501)를 사용하여 a/W=0.55 0.58까지 피로균열을 성장시켰다. 예비피로균열을 성장시킨 후 시편의 양 표면에서 시편 두께의 10% 깊이로 45° 각도의 side-groove를 만들어 평면변형 조건을 만족하도록 하였다. 실험은 상온과 200℃, 가동온도인 289℃, 그리고 350℃와 0.4, 4.0 mm/min의 하중선변위 속도에서 수행되었다. 균열시작에 대한 저항치(J_i)는 실제 균열이 성장하는 시점에서의 J값으로 나타내었으며, 균열성장에 대한 저항치(dJ/da)는 J-R 곡선에서 균열증분량이 0.5 2.5mm 사이의 데이터 값들을 1차 선형회귀하여 구하였다.

3. 결과 및 토의

2상역 열처리 후 인장실험의 결과로 톱니모양의 응력-변형률곡선, 높은 가공경화율, 음의 변형속도 의존성, 연성의 감소 및 경화현상 등 동적변형시효 현상의 전형적인 형태가 여전히 관찰됨에도 불구하고 as-received 시편과 비교해서 연신률이 우수하고 변형시효 민감도가 줄어든 것으로 보고되었다[5]. 이는 2상역 열처리를 통해서 상대적으로 탄소고용도가 낮은 'retained' 페라이트상(phase)에 기인한 것으로 사료되며, 이를 확인하기 위해서 정적변형시효시험을 통한 시효지표

와 J-R 시험을 수행하였다.

3.1 정적변형시효

열처리 전 as-received 시험편의 정적변형시효 시험에서, 시효온도와 시간이 증가함에 따라 1) 항복응력은 증가하고, 2) Luder's strain 이라 불리는 항복점 연신이 다시 나타나며, 3) 인장강도의 증가와 4) 총연신률의 감소 등 전형적인 정적변형시효 현상이 관찰되었다(그림 1). 낮은 온도인 150℃와 132℃에서의 시효 및 발전소 가동온도인 289℃에서의 시효결과도 시간의 완급에 의존 할 뿐 동일한 결과를 얻었다. 열처리 후에도 시효처리로 나타나는 변형시효의 특징이 as-received 와 유사한 경향을 보였으나, 같은 시효온도와 시간에서의 항복응력 증가는 상대적으로 작았다.

시효시간과 온도에 의존하여 항복응력 증가의 정량적인 값의 무차원 수를 시효 지표로 정의하였으며 다음과 같다.

$$\frac{\Delta\sigma}{\bar{\sigma}} \equiv \text{시효지표}$$

$$\text{여기서 } \Delta\sigma = (\sigma_y + \sigma_f), \quad \bar{\sigma} = (\sigma_y + \sigma_f)/2 \tag{1}$$

σ_y = 시효후 항복응력, σ_f = 예비변형 끝 유동응력

그림 2는 온도와 시간에 따른 시효지표(aging index)의 변화를 as-received 와 열처리 후의 결과로 나타내었다. 그림에서 관찰되듯이 두 시험편 모두 시간이 증가함에 따라 시효지표의 증가량이 둔화되고 있으며, 289℃에서 시효 처리한 경우, 초기의 수백초 까지는 시효가 급작스럽게 일어나며 이후에는 용질원자들이 석출 또는 편석되어 시효지표가 더 이상 증가하지 않는 3단계시효에 이른 후 시간이 지남에 따라 시효정도가 오히려 감소하는 과시효(over aging)현상이 관찰되었다. 더불어 시효온도가 낮아질수록 침입형원자 이동에 필요한 구동력이 떨어짐에 기인하여 동일 시효지표를 얻는데 필요한 시간이 길어지는 것을 알 수 있으며, 열처리 후의 시험편도 as-received 와 동일한 경향을 나타내었으나 전체적으로 시효시간이 지연됨을 보여주었다.

그림 3은 as-received 와 열처리된 시험편을 시효온도에 따라 각각 비교한 것이다. 시효온도가 낮을 경우, 열처리한 시험편이 as-received 보다 낮은 시효지표를 나타내었고, 289℃에서 시효 처리한 경우는 초기의 수백초 범위에서는 열처리한 시험편이 낮은 시효정도를 보여주었고 이후에는 동일한 시효량을 나타내었다. 이는 시효온도가 낮을 경우, 열처리로 인하여 페라이트 기지내의 고용탄소량이 줄어들어 고용탄소가 전위로의 확산에 필요한 시간이 늘어남에 기인하여 상대적으로 낮은 시효지표를 보여 준 것으로 생각된다[6]. 반면 289℃에서처럼 시효온도가 높을 경우, 줄어든 고용탄소량보다 확산에 필요한 구동력이 커서 초기의 짧은 시효시간 이후에는 열처리 전후 같은 정도의 시효지표를 보여주고 있다.

일반적으로 정적변형시효는 3단계의 시효 과정을 겪는 것으로 알려져 있는데, 이중 Snoek 정렬로 불리는 1단계와, 침입형원자가 전위주변으로 장거리 확산하는 2단계 과정은 Cottrell-Bilby 모델에 의해 $(\text{시간})^{2/3}$ 에 의존하는 것으로 알려져 있다[7]. 본 연구에서 관찰된 시효결과도 이와 동일하였다. 그림 4의 1차 직선회기 된 부분이 2단계 시효가 진행중인 부분으로 판단되며, 1단계

시효인 Snoek 정렬은 매우 짧은시간(수초) 내에 이루어짐으로 본 실험에서의 높은 시효온도를 감안하여 볼 때 관찰 할 수 없었다.
1966년에 Hartley가 몇 가지 가정을 통해 Cottrell-Bilby 모델을 다음 식으로 유도하였으며[5],

$$\frac{\Delta\sigma}{\sigma} = K_1 + K_2 \left(\frac{D\,t}{T_a}\right)^{2/3} \quad ; \text{시효지표(aging index)} \qquad (2)$$

위의 관계식으로부터 활성화에너지를 구하면, as-received 와 열처리 후의 시험편에서 활성화 에너지가 각각 113.9 와 122.8 [kJ/mol]로 다소 높은 값이 측정되었다(그림 5). 이는 탄·질소원자의 망간(Mn)친화력에 기인한 것으로 사료되며, 고온인장실험을 통해 구해진 활성화에너지와 유사한 값을 나타내고 있다[4].

3.2 파괴시험

가공 열처리 공정이 파괴인성에 미치는 영향을 평가하기 위해 몇 가지 온도와 하중속도에서 J-R 시험을 수행하였다. 하중-하중선변위 곡선을 각 하중속도에서 온도에 따라 관찰한 결과, 하중-하중선변위 곡선에서 불안정 균열점프는 관찰되지 않았다. 그림 6의 하중-하중선변위 곡선에서와 같이 시험온도와 하중속도에 민감하고, 일부 온도 영역에서 하중지탱 능력이 감소하고 있음을 보이는데 이는 재료의 동적변형시효 특성으로 판단된다. 그림 7의 하중속도 0.4 mm/min 일때는 온도가 증가함에 따라 J-R곡선이 떨어져 289℃에서 최소가 되었으나 350℃에서의 J-R 곡선은 오히려 상온에서보다 큰 값을 보였다. 4.0mm/min에서는 온도가 증가함에 따라 J-R곡선이 떨어져 289℃ 350℃의 J-R 값이 최소가 되었다. 이 결과로 하중속도가 증가함에 따라 동적변형시효의 영역이 고온으로 이동하고 있다는 것을 보여주고 있다.
열처리로 DSA가 파괴인성에 미치는 효과를 정량적으로 평가하기 위해 균열 시작에 대한 저항치 Ji를 as-received의 시험결과와[10] 그림 8에 비교하였다. 0.4mm/min 경우, 상온에서의 Ji 값은 비슷하였으나 as-received의 Ji 최저치는 200℃ 부근에서 열처리 후에는 289℃ 부근으로, 4.0 mm/min의 경우는 Ji 최저치가 250℃ 에서 350℃ 부근으로 이동하였음이 관찰되었다. Ji 최저 값이 열처리 후에 고온으로 이동한 것은 동적변형시효 현상의 온도영역이 고온으로 이동한 것을 의미하며, 이는 페라이트 기지내의 고용탄소량의 저감에 기인한 것이다. 실제로 고용원자의 저감으로 인한 동적변형시효 영역의 고온이동 현상은 원자로 압력용기강에 중성자 조사를 할 경우 발생하는 것으로 보고되어 있다[9].
그림 9는 균열성장에 대한 저항치(dJ/da)를 온도와 하중속도에 따라 나타내었다. 0.4mm/min의 하중속도에서 dJ/da값의 온도 의존성은 시험온도가 증가함에 따라 감소하다가 289℃에서 최소가 되고 350℃에서 다시 증가하였다. 하중속도 4.0 mm/min에서는 온도증가에 따라 dJ/da값이 감소하여 289℃와 350℃에서 최소 값을 보였다. dJ/da의 온도와 하중속도 의존성은 Ji의 그것과 매우 유사하게 일치하고 있다.

4. 결 론

저합금 탄소강 배관재인 SA106 Gr.C강을 균질화 열처리와 2상역 열처리를 수행한 후 다양한 온도와 시간동안 시효처리 하여 정적변형시효 시험을 수행하였다. 아울러 상온, 200℃, 289℃ 그리고 350℃에서, 하중속도는 0.4 와 4.0 mm/min로 파괴시험을 수행하였다. 결론은 다음과 같다.

2상역 열처리 후 노랭시킨 시편이 as-received 보다 각각의 온도와 시간에 따라 시효지표가 낮았으며 이는 열처리 후 침입형 원자의 고용화 정도가 줄어들었음을 의미한다. 정적변형시효 시험을 통해 구한 활성화 에너지는 열처리 전후에 각각 113.9 와 122.8 kJ/mol 정도로 다소 높은 값을 나타내었다.
열처리 후 수행한 파괴시험에서 하중-하중선변위 곡선과 J-R곡선은 동적변형시효의 특성인 온도와 하중속도에 강한 의존성을 보였다. 하중속도 0.4mm/min의 경우는 발전소 가동온도인 289℃에서 최소의 J-R, Ji와 dJ/da 값을 보였고, 4.0 mm/min의 경우는 350℃ 부근에서 최소가 되었다. 시험 결과를 as-received 와 비교하여 볼 때 상온에서 J-R과 dJ/da 값은 증가하였고, 최저의 Ji값을 가져오는 온도영역은 0.4mm/min의 하중속도로 시험된 경우, 200℃ 부근에서 289℃부근으로, 하중속도가 4.0 mm/min 는 250℃부근에서 350℃부근으로 이동하였다.

참고문헌

[1] I.S. Kim, Proc. of the Seventh Conference on Mechanical Behaviors of Materials, Pusan, Korea, November, 1993.

[2] 원자로 냉각재 배관 엘보우용 KSC SA516-Gr.70 시제 강판의 정적/동적 파괴저항(J-R)특성, 한국원자력연구소, 1998. 11.

[3] 울진 3/4호기 RCS Pipe 소재의 동적파괴저항(J-R)특성, 한국원자력연구소, 1997. 9.

[4] J.W. Kim, I.S. Kim, Nuclear Engineering and Design, Vol.172, 1997, p49.

[5] J.S. Lee, et al., J of Korean Nuclear Society, Vol. 32, No.1, 2000, p77 87.

[6] M.L. Weaver, et al., Materials Science and Engineering A, 192/193, 1995, p179 185.

[7] H.E. Rosinger, Metal Science, Vol.9, 1975, p1 7.

[8] S. Hartley, Acta Metallurgica, 1966, Vol. 14, p1237.

[9] P.S. Godavariti, Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors, 1988, p105 109.

[10] 주증기배관 LBB 개념적용을 위한 연구의 동적변형시효 시험분석, 한국전력기술주식회사, 1996. 8.

표 1 SA106 Gr.C 배관재의 화학조성

C	Mn	P	S	Si	Ni	Cr	Mo	V	Al	Cu	H_{ppm}
0.19	1.22	0.009	0.007	0.27	0.11	0.05	0.03	0.004	0.029	0.13	1.60

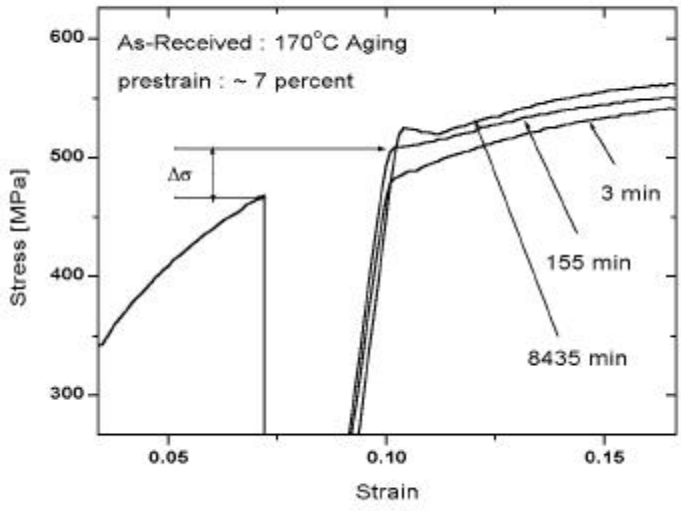
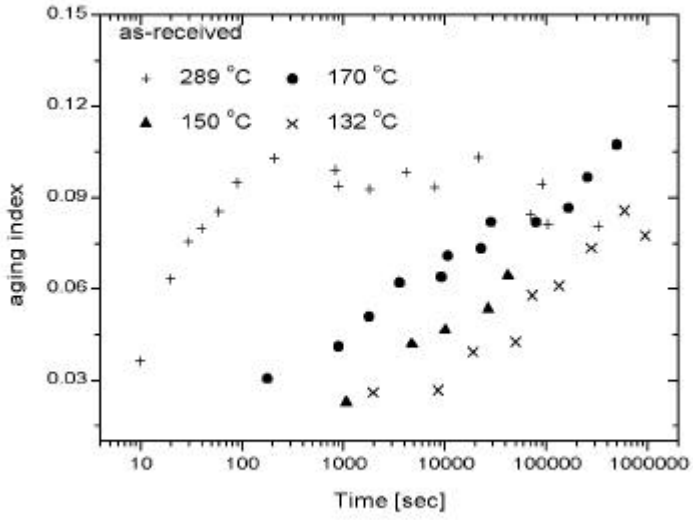
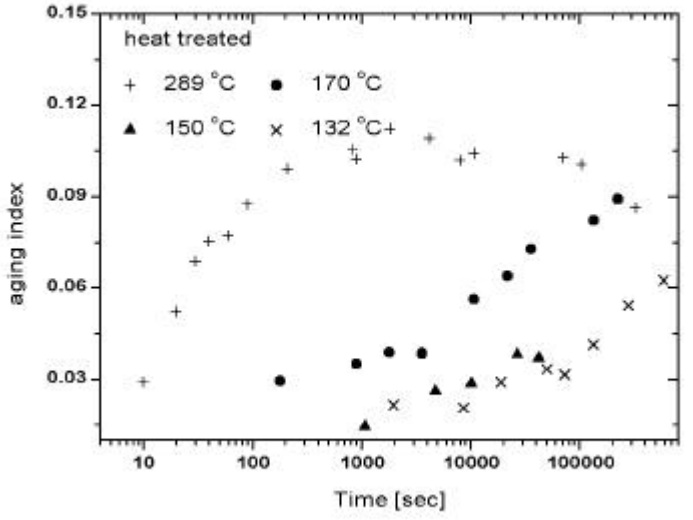


그림 1 As received 시험편의 시효 시간에 따른 항복응력의 변화

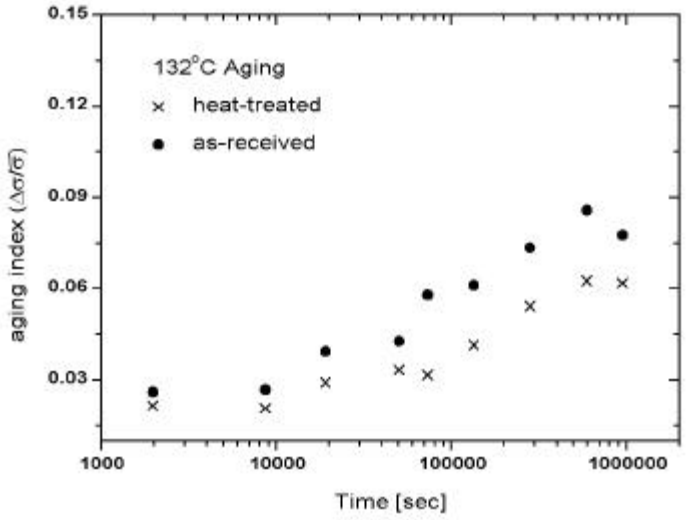


(a)

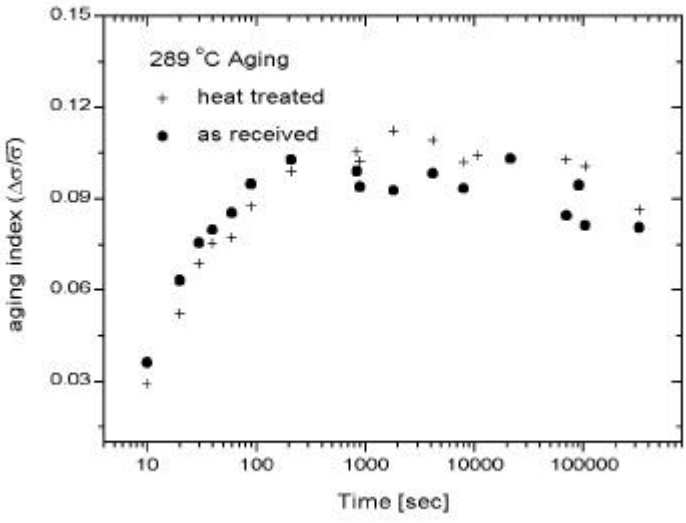


(b)

그림 2 **시효온도와 시간에 따른 시효지표 변화**, (a) as received, (b) heat treated



(a)



(b)

그림 3 시효온도에 따른 열처리 전후의 시효지표 비교, (a) 132℃, (b) 289℃

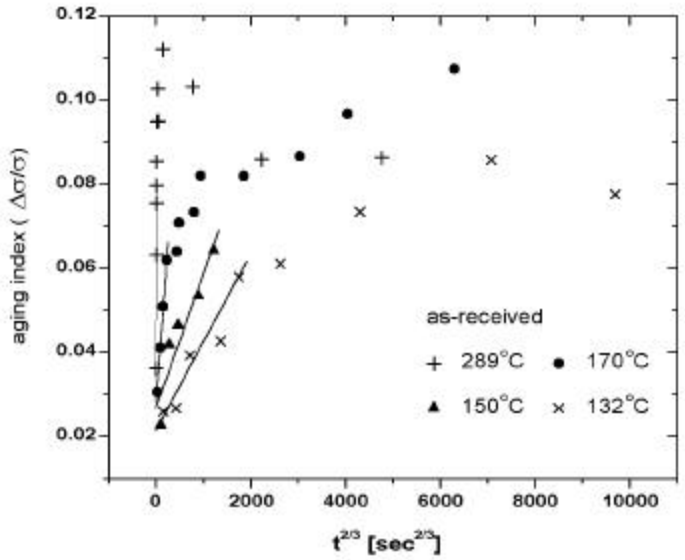


그림 4 시효지표의 온도와 (시간)$^{2/3}$ 의존성

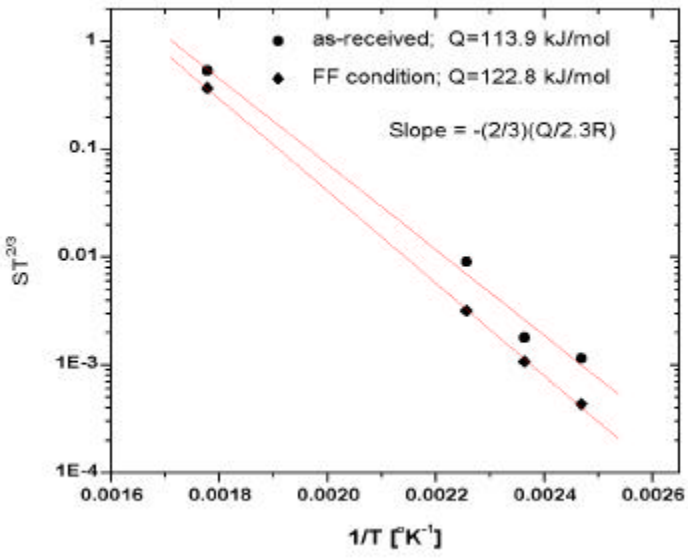
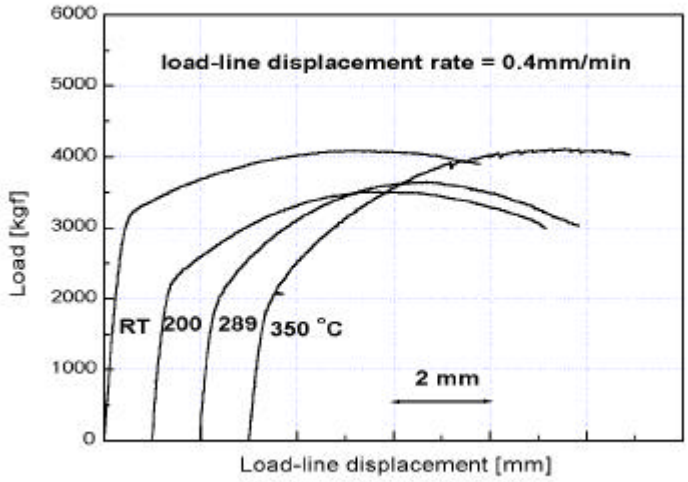
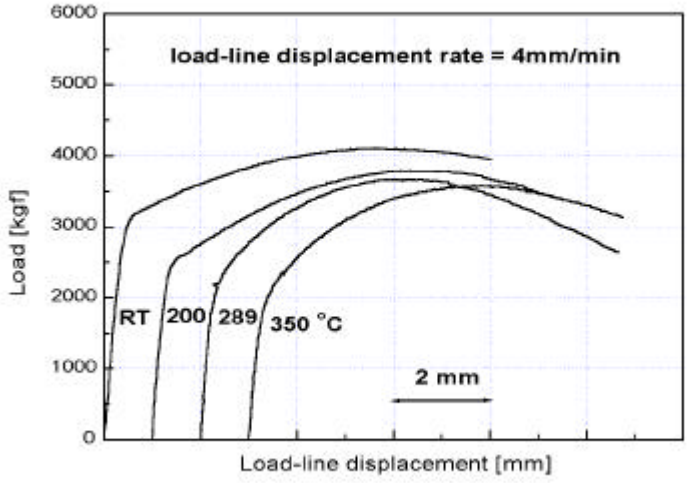


그림 5 Hartley 식에 의한 열처리 전후의 활성화 에너지

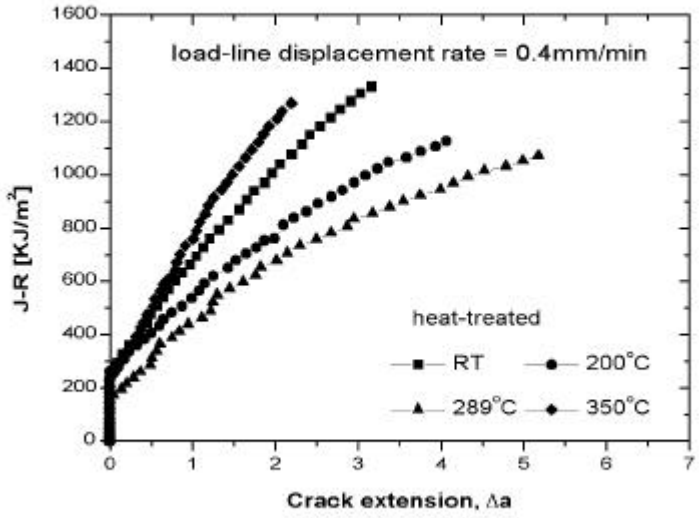


(a)

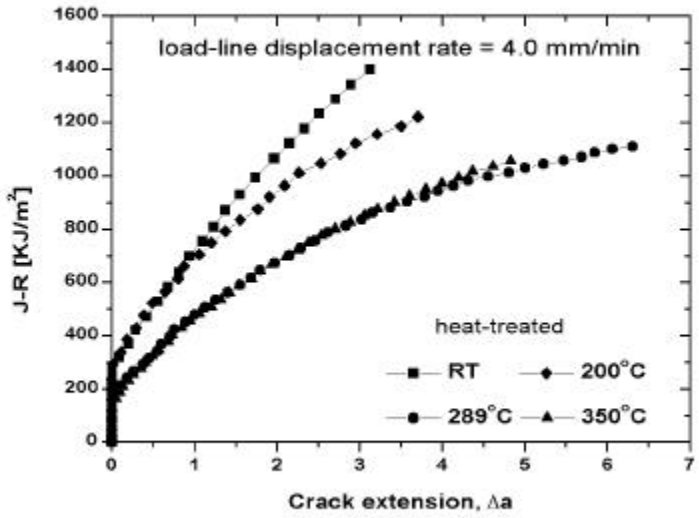


(b)

그림 6 열처리 후 시험온도에 따른 하중-하중선 변위 곡선, (a) 0.4mm/min, (b) 4.0mm/min



(a)



(b)

그림 7 열처리 후 시험온도와 하중선변위 속도에 따른 J-R **곡선**, (a) 0.4mm/min, (b) 4.0mm/min

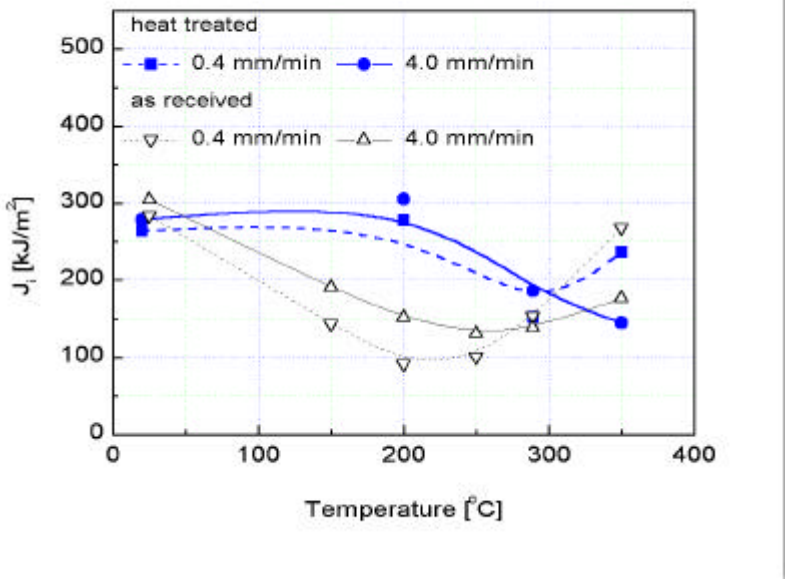


그림 8 열처리 전후의 시험온도에 따른 균열시작에 대한 저항성(Ji) 비교

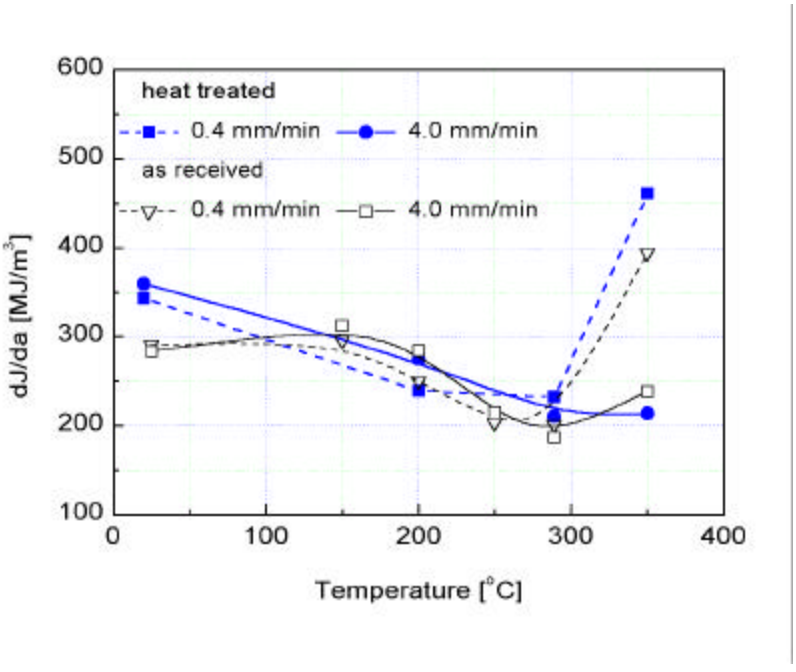


그림 9 열처리 전후의 시험온도에 따른 균열성장에 대한 저항성(dJ/da) 비교