2000 춘계 학술대회 논문집
한국원자력학회

# 파면 분석을 통한 압력용기강재의 환경유기 균열성장에 관한 연구

# Study on the environmentally assisted crack growth of reactor pressure vessel steel with fractography

이 상 규, 김 인 섭
한국과학기술원
대전광역시 유성구 구성동 373-1

김 진 원, 박 치 용
한국전력공사 전력연구원
대전시 유성구 문지동 103-16

[요약]

고온수화학분위기에서 피로균열성장 시험이 수행되었으며, 시험 변수는 하중주파수였다. 균열성장 속도가 최대치가 되는 임계하중주파수가 존재하였으며, 임계하중주파수보다 큰 영역에서는 하중주파수가 감소할 때 균열성장 속도가 증가하였다. 파면관찰을 통해 균열성장 속도가 수소취성에 의해 증가됨을 확인하였다. 환경유기 균열은 하중조건 및 황이온 활성도에 따라 여러가지 형태를 나타내었다. 황이온 활성도는 낮은 하중영역에서 균열성장 속도를 지배하였으며, 중간 정도의 하중영역인 18 $MPam^{0.5}$ ~ 22 $MPam^{0.5}$ 의 영역에서 하중의 영향과 황이온 활성도의 상호상승작용이 균열성장 속도를 지배하였다.

[Abstract]

To assess fatigue crack growth behavior of reactor pressure vessel steel at the LWR operating condition, corrosion fatigue tests were performed in air saturated hot water. The main test parameter was loading frequency. Crack growth rate was increased with decreasing frequency until a critical frequency. It was found through fractographic study that the enhancement of crack growth rate was environmentally assisted by the hydrogen embrittlement, since brittle striations and cleavage like facets with microvoid were formed in the crack growth process. The types of EAC were dependent on the electrochemical condition and loading condition at crack tip and several types of EAC were found, such as small-large cleavage and brittle striation. At low load condition, sulfur activity controlled the crack growth rate while there would be a synergism between and sulfur activity  and load condition at intermediate load condition.

## 1.서론

환경유기 균열 성장은 수화학인자, 하중변수, 온도 그리고 재료의 미세조직 및 조성 등에 의해 결정된다. 원자로 가동 조건에서 발생하는 환경유기 균열은 주로 재료내의 황개재물, 용존산소량 그리고 하중주파수( 균열선단에서의 변형율 속도) 조합에 의해 발생하는 것으로 보고되고 있다[1].

특히 재료내의 황 개재물로 인해 많은 연구자들간의 연구결과에 분산이 있었다. 황개재물은 양 뿐만 아니라 석출양상 또한 중요한 인자로 작용하기 때문에 유사한 조성의 재료라 하더라도 제조이력의 차이로 인해 균열성장 속도의 분산이 발생한 것이다[1, 2].

기존의 원자로에 사용 중인 재료들은 황원자 함량이 높았으며, 제조이력의 차이로 개재물의 석출양상도 차이가 많았다. 이러한 이유로 균열선단에서의 황원자의 용해로 인한 황이온의 작용에 대한 연구가 많이 진행되었다. 하지만 주로 황함량이 높은 재료에 국한되어 있으며, 낮은 황함량의 재료에 대한 고려가 부족하다. 또한 하중조건에 따른 재료의 기계적인 성질의 변화와 황원자 이온의 전기 화학적 성질 변화의 상호작용에 대한 고려가 부족하다.

최근 불순물 제거 기술의 개발로 인해 황원자 함량은 아주 낮은 수준으로 조절되고 있기 때문에 황개재물의 용해로 인한 화학적 작용의 영향과 재료의 기계적인 인자의 상호작용이 황함량이 높은 재료와 다를 수 있다. 낮은 황함량의 재료의 경우 국부적으로 제한된 곳에서 기계적 인자와 작용하여 균열을 전파할 것이기 때문이다.

본 연구에서는 낮은 황함량의 재료를 이용하여 환경인자 및 하중변수에 따른 균열성장 속도 자료를 생산하고 이를 파면 관찰과 상관하여 환경유기 균열에 미치는 인자들의 상호작용을 이해하려고 하였다.

## 2. 실험방법

### 2.1 시험 재료

시험에 이용된 재료는 한국중공업에서 제작된 압력용기용 SA508 –3 저합금강이었다. 실험재료의 화학조성을 표 1 에 나타내었다. 열처리 이력은 880°C + 7hr → water quenching → 655°C+9hr → air cooling 이며 기계적인 성질은 표 2 에 나타내었다. 재료의 조직은 템퍼드 베이나이트 조직이었다.

### 2.2 균열성장 시험

피로균열성장 시험은 ASTM E647 에 따라 수행되었으며, ICCGR(international cyclic crack growth rate) 그룹의 권고사항을 준수하였다[3]. 하중비 R=0.5, 하중주파수 1, 0.1 및 0.05Hz 의 조건에서 수행되었다. 수화학 조건은 공기포화된 288°C 순수한 물이었으며, 이온교환수지를 이용하여 전기전도도를 0.1μS 이하로 조절하였다.

Precracking 은 공기분위기에서 수행되었다. 공기분위기에서 만든 Precracking 의 영향을 제거하기

위하여 고온고압 수화학에 시편을 24hr 이상 시효처리한 후 시험을 시작하였으며, 2.5mm 정도 수화학 분위기에서 균열성장 후, 자료를 획득하여 해석에 이용하였다.

2. 3 파면 관찰 및 분석

시험이 끝난 시편을 액체질소에서 파단한 후, 시험후 균열교정을 수행하였다. 또한 SEM 장비를 이용하여 파면을 관찰하였고, 특정 파면에 대해 성분 분석을 하였다. 일부 시편의 경우, 산화막 제거를 위해 초음파 세척을 1 시간 수행 후, ENDOX 용액에서 음전위 분극을 수행하여 산화막 제거 처리를 하였다 [4]. 음전위 분극으로 인한 파면 손상을 최소화 하기 위하여 짧은 시간 분극을 반복하였으며 중간에 SEM 으로 상태를 확인하였다.

3. 시험 결과 및 토의

3.1 피로균열성장 속도 결과

그림 1 에 시험결과를 나타내었다. 하중 주파수가 낮을 수록 균열성장 속도는 크게 증가하는 경향을 보이고 있으나, 0.01 ~ 0.05Hz 사이에서 임계값이 존재하며, 임계 하중주파수 이하에서 균열성장 속도가 감소하였다. 1Hz 조건의 경우는 공기분위기 결과와 동일하였다. 이러한 경향은 고온수화학분위기에서의 저합금강의 피로균열성장 거동 경향에 잘 일치하고 있다[ 1-3,5].

균열성장 속도는 균열선단의 황이온 함량에 크게 영향을 받는다[1-3, 5-7]. 황이온 함량은 용존산소가 증가할 수록 커지고 하중주파수가 감소할 수록 낮아지므로, 균열성장 속도의 용존산소 및 하중주파수에 대한 의존성은 해석된다. 임계하중주파수가 존재하는 것은 하중주파수가 지나치게 낮아질 경우 황이온이 하중이 가해지는 동안에 확산될 시간되어 균열성장 속도에 기여하는 정도가 감소하며 또한 균열선단에 산화막 형성속도가 파괴속도보다 빠르게 되기 때문이다[5].

본 연구 결과에서 특기할 사항은 균열성장 속도의 하중 의존성이다. 288 ºC 및 0.05Hz 조건의 경우 하중에 대한 균열성장 속도 의존성이 변화 되었으며, ~18MPam$^{0.5}$ 이하의 영역과 22 MPam$^{0.5}$ 이상의 영역에서 하중에 대한 의존성이 적고 일정한 균열성장 속도를 보였다. 18 MPam$^{0.5}$ ~ 22 MPam$^{0.5}$ 의 영역에서는 0.1Hz 및 1Hz 시험결과에 비해 0.05Hz 에서 보다 큰 하중 의존성이 나타내었다.

균열선단의 황이온 함량은 0.05Hz 조건이 1Hz 조건에 비해 높을 것으로 예측되며 이로인해 낮은 하중 영역에서 균열성장 속도가 0.05Hz 의 경우 하중의존성이 없어진 것으로 판단된다. 하지만 18 MPam$^{0.5}$ ~ 22 MPam$^{0.5}$ 의 영역에서 0.05Hz 조건에서의 균열성장속도의 하중의존성이 1Hz 에 비해 큰 것은 균열선단의 황이온 함량이 높을 경우 전기화학 인자의 영향이 지배적이게 될 것이므로 하중의존성이 낮아진다는 모델[5]에 벗어나는 경향을 보이는 것이다. 0.05Hz 시험에서 보인 하중의존성의 증가는 수화학인자와 기계적인 인자의 상호 상승작용에 의해 일어날 수 있는 것으로 사료된다.

3.2 산화막 제거 전의 시편 파면 관찰 결과

산화막을 제거하기 전의 시편은 그림 2 에서와 같이 산화막의 조성 차이에 따른 전자 빔 간섭의 차이로 인한 band 가 관찰되었다. 개재물의 용해 흔적인 공구(hole)에서 band 가 시작되었고, 공구가 큰 경우 및 작은 공구가 여러개 뭉쳐있을 경우에만 band 가 관찰되었다. 1Hz 조건에서는 공구가 관찰되었지만 Band 는 관찰되지 않았다. Band 내부의 산화막에는 Mn, S 원자 함량이 다소 높게 나타났음을 화학분석을 통해 확인하였다[10]. 자세한 균열성장 경로를 확인하기 어렵지만, 공구가 황개재물의 용해 흔적이며, 하중주파수가 감소함에 따라 더 많은 황이온이 파면에 남게 되는 것을 확인할 수 있다.

### 3.3 산화막 제거의 안전성

그림 3(a)는 산화막 제거 전의 파면 관찰 결과이며, 그림 3(b)는 산화막 제거 후의 파면 관찰 결과이다. 두 결과를 비교한 결과 산화막 제거로 인한 파면의 손상은 무시할 수 있었다.

### 3.4 산화막 제거된 파면관찰 결과

#### 가. 1Hz 파면관찰 결과

그림 4 에 1Hz 에서의 파면특성을 나타내었다. 1Hz 조건에서 수행된 시편의 경우, 하중의 증가에 따른 파면의 차이는 없었으며, 그림 4(a)와 같이 ductile striation 을 잘 형성하면서 균열이 전파되었으며, 그림 4(b)와 같이 아주 좁은 영역에서 벽계면 파괴가 이루어졌다.

#### 나. 0.05Hz 파면 관찰 결과

그림 5 와 6 에 파면 관찰 결과를 나타내었다. 파면의 특징은 하중 크기 및 개재물 용해 지역과의 거리에 상관하였다. 그림 5 는 약 $15MPam^{0.5}$ 하중 영역에서의 관찰된 결과이다. 낮은 배율에서 그림 5(a)와 같이 흠모양(groove type) 양상을 보이며, 그림 5(b)와 같이 높은 배율에서 흠 주위에 연성찢김(ductile tear ridge)이 관찰되었으며, 흠 내부에 경우 결정방향에 편향된 취성 파면들이 관찰되었다. 그림 5(c)와 같이 국부적인 벽계면이 개재물 용해로 인해 생성된 공구 주위에서 관찰되었다.

그림 6 은 $20\ MPam^{0.5}$ 하중영역에서 관찰된 결과이다. 6(a)는 공구와 다소 멀리 떨어진 영역에서 관찰된 파면이며, Brittle striated type 이며[6], 기공 주위에 작은 벽계면이 관찰되었다. 그림 6(b)는 공구 근처의 파면을 나타내며, 공구근처에서 그림 6(c)와 같이 넓은 벽계면이 관찰되었다.

### 3.5 피로균열성장 속도와 파면의 상관관계

하중 주파수가 1Hz 인 경우 좁은 영역에서의 벽계면 파괴가 관찰되었으며, 넓은 영역에서 연성피로파괴가 이루어졌기 때문에 피로균열성장 속도는 그림 1 에서와 같이 수화학 인자의 영향에 따른 균열속도 증가는 크지 않았다. 또한 하중의 증가에 따른 파면형태의 변화는 없었으므로 단일 하중의 존성을 가지는 것으로 판단된다.

이에 비해 0.05Hz 에서 수행된 경우, 피로균열성장 속도의 하중 의존성은 하중영역에 따라 변하였고,

파면 특징 또한 하중영역에 따라 변화되었음을 관찰할 수 있었다. 낮은 하중의 경우 일정한 폭의 홈 모양을 이루면서 균열이 전파되었으며, 홈 내부는 취성파면을 나타내었으며, 홈 주위에 연성 찟김 양상을 나타내었다. 홈내부의 취성파면은 결정방향에 편향된 면이었고, 면의 폭은 베이나이트 래쓰 경계 크기(0.7μm)와 유사하였다.

이러한 파면은 수소취성 기구에 잘 부합된다[6-9]. 수소 취성기구에 의하면 균열선단 소성역에 형성된 수소포획 위치에서 미소 취성균열이 발생하며 이러한 미소취성 균열들이 결합하여 빠르게 전파 및 정지의 불연속적으로 균열이 성장하는 것으로 이해되고 있다. 특히 황개재물 근처에서 벽계면이 미소기공과 결합하여 나타나는 것도 수소취성기구의 특성을 나타내는데, 황개재물은 기지와의 결합력이 낮아 좋은 수소포획 위치가 될 뿐만 아니라 용해될 경우 황이온으로 균열선단에 남게 되어 수소의 흡수속도를 증가시켜 수소취성을 잘 유발시키기 때문이다[7]. 또한 베이나이트 래쓰 경계는 고온에서 좋은 수소포획위치가 되는 것도 파면양상과 잘 부합된다[8].

낮은 하중영역에서는 일정한 홈 모양으로 래쓰 경계를 따라 수소취성이 발생하며, 하중의 증가에 따라 수소포획 위치의 증가로 인해 균열성장 속도가 증가되는데, 0.1 및 1Hz 에 비해 0.05Hz 에서 더 높은 황이온 함량을 갖기 때문에 유사한 하중 조건에서도 수소포획 위치수가 더 증가하기 때문에 0.05Hz 에서 균열성장 속도가 더 빠른 것으로 해석된다.

하지만 18 $MPam^{0.5}$ ~ 22 $MPam^{0.5}$ 의 영역에서의 0.05Hz 시험결과의 하중의존성에 대해서는 연구가 진행되어야 할 것으로 생각되며, 큰 값을 갖는 것은 수화학 인자와 하중인자의 상승작용에 의해.가능한 것으로 판단된다. 즉 적당한 양의 황이온이 균열선단에 존재하고 있을때, 0.05Hz 의 시험하중 조건에서는 하중이 증가할 때 더 많은 수소포획 위치가 형성된다면 높은 하중의존성을 가지게 될 것이기 때문이다. 이 가정은 현재 논의가 진행중에 있으며, 저합금강의 경우 변형율 속도변화에 따른 flow stress 의 증가되는 동적변형시효 현상으로 인해 수소포획위치의 증가가 가능할 것으로 전망된다.

## 5. 결론

고온 수화학 시험 결과 및 파면 분석을 통해 다음과 같은 결론에 도달하였다.

(1) 파면 관찰 결과 다양한 형태의 환경유기 균열이 발생하였다. 환경유기 균열은 빠른 하중주파수에서는 국부적으로 발생하여 균열성장 속도 증가에 기여하지 못하였으나 하중주파수가 느린 경우 다소 넓은 영역에 취성파면을 형성하여 균열성장 속도에 기여하였다.

(2) 낮은 하중영역에서는 일정한 홈 모양으로 래쓰 경계를 따라 수소취성이 발생하며, 하중의 증가에 따라 수소포획 위치의 증가로 인해 균열성장 속도가 증가되는데, 0.1 및 1Hz 에 비해 0.05Hz 에서 더 높은 황이온 함량을 갖기 때문에 유사한 하중 조건에서도 수소포획 위치수가 더 증가하기 때문에 0.05Hz 에서 균열성장 속도가 더 빠른 것으로 해석된다.

(3) 하중 조건과 수화학 조건의 상승작용에 의해 균열 속도가 조절되는 영역이 존재하는 것으로 보

이며 이에 대한 연구가 진행되어야 할 것으로 판단된다.

**References**

1. J. H. Bulloch, Res Mechanica 26(1989) 95
2. R. L. Jones, et. al, Inter. J. of Press. Ves. and Piping, Vol. 40(1989) 375
3. R. W. Nicholes et. al, Inter. J. of Press. Ves. and Piping, Vol. 40(1989) 331
4. ASM International Metal Handbook 9th Vol. 12(1987) 72
5. F. P. Ford, Corr. Sci., Vol.52,No.5(1996) 375.
6. K. Toerroenen, et. al, ASTM STP 770(1982) 460
7.H. Haenninen, et. al, Corr. Sci. Vol.23, No.6(1983) 663.
8. R. P. Wei, et. al, Hydrogen effects on material behavior, (1990) 789.
9. T. J. Marrow, et. al, Acta metall. Mater., Vol.40, No. 8,(1992) 2059.
10 S. G. Lee, et. al, '99 춘계 한국원자력학회 학술대회 (1999) 221

표 1. 재료의 화학성분

| | C | Si | Mn | S | P | Ni | Cr | Mo | Al | Cu | V |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| (wt/o) | 0.21 | 0.25 | 1.24 | 0.002 | 0.007 | 0.88 | 0.21 | 0.47 | 0.008 | 0.03 | 0.004 |

표 2. 상온에서의 기계적인 성질

| | |
|---|---|
| 0.2% Yield Strength | 468.9MPa |
| Tensile Strength | 593MPa |
| Elongation | 29% |
| Reduction of Area | 74% |
| Charpy Energy | 138J |
| $RT_{NDT}$ | -30$^{o}$C |
| Microhardness | 180 ~ 208HB |

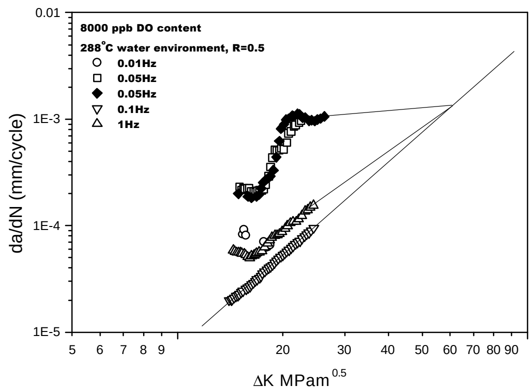



**그림 1.고온고압 수화학분위기에서의 피로균열성장 속도 결과**

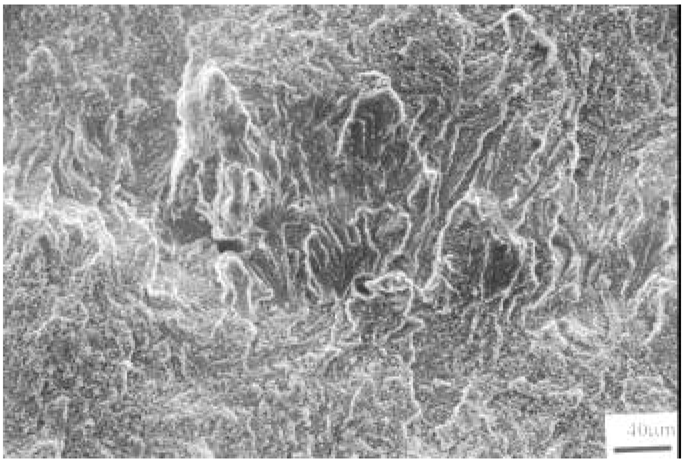
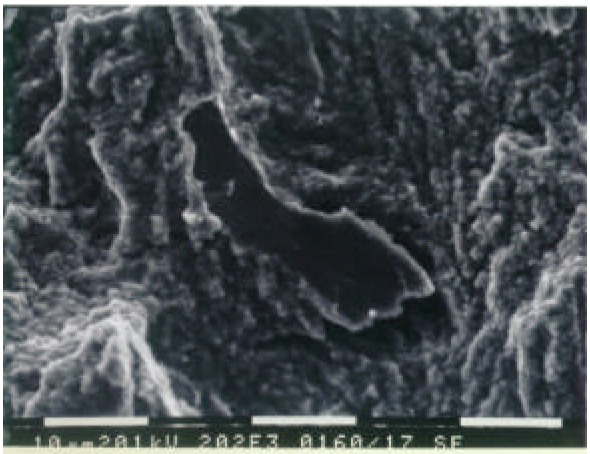
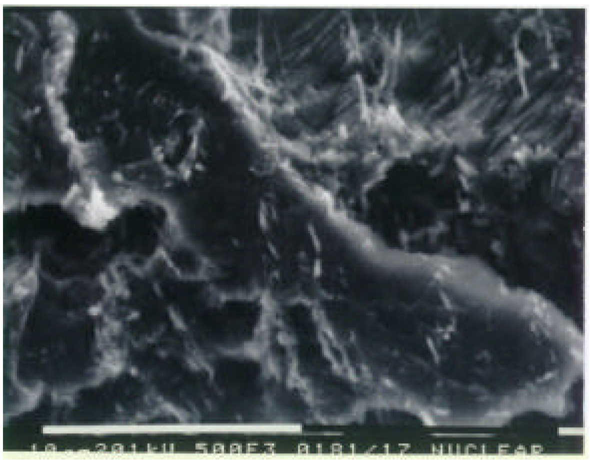



**그림 2. 산화막 제거전의 띠 형상**

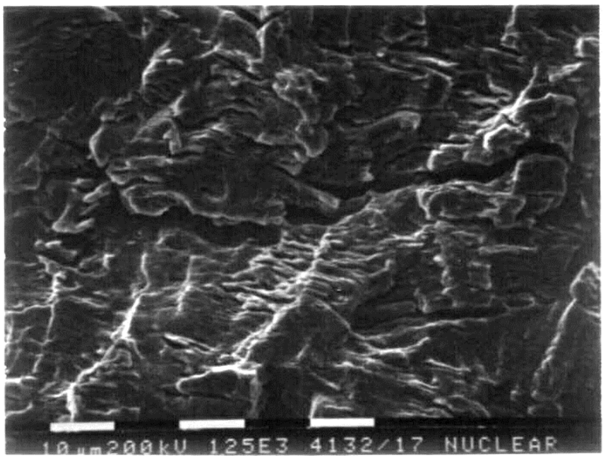


(a)

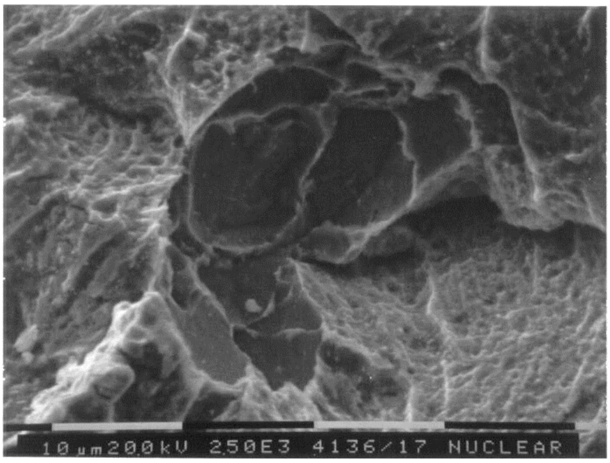


(b)

**그림.3 산화막 제거의 영향**

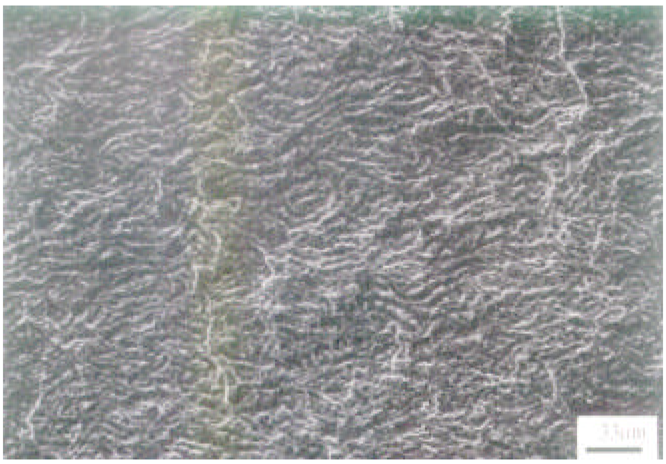



(a)

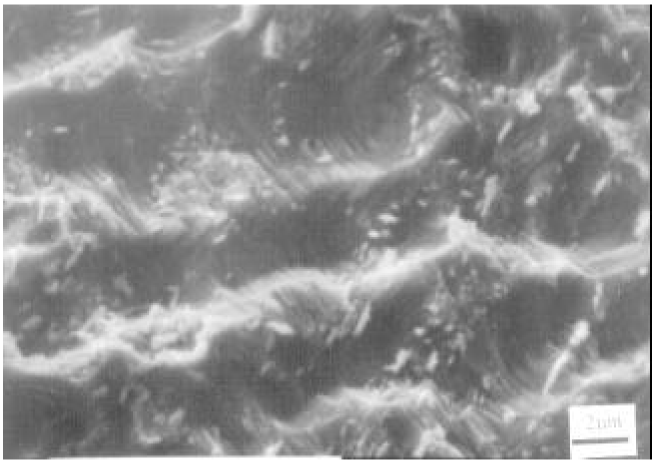



(b)

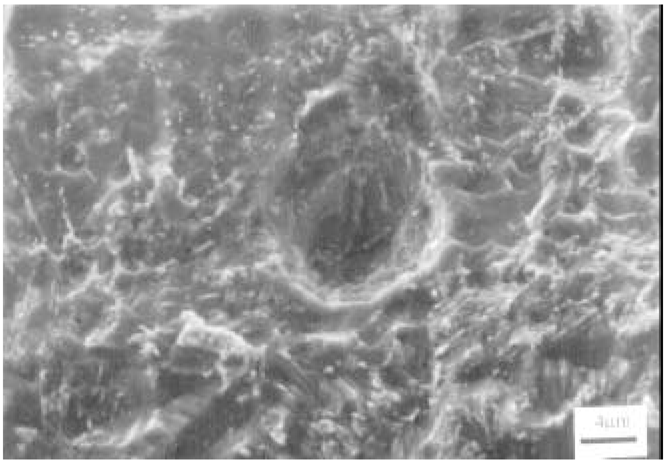
**그림 4. 1Hz 조건에서의 시험결과**



(a)



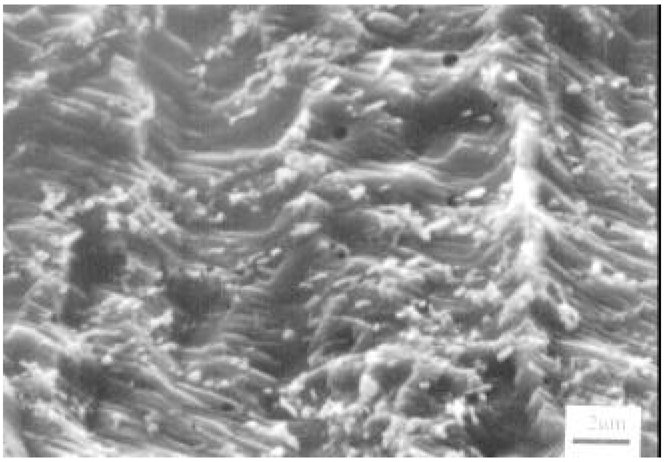
(b)



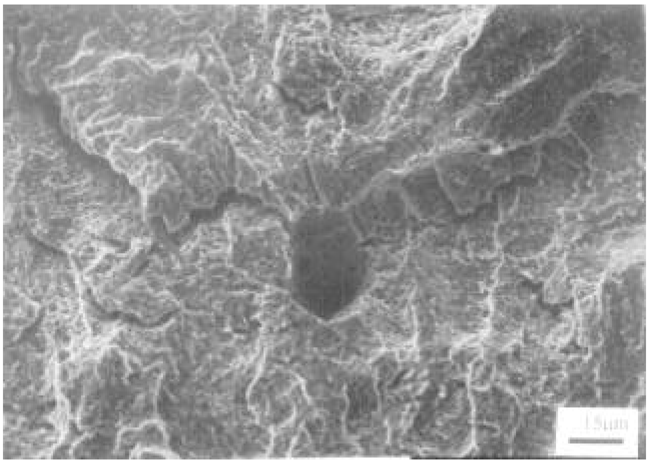
(c)

**그림** 5. **파면관찰- 낮은 하중 조건**, 0.05Hz

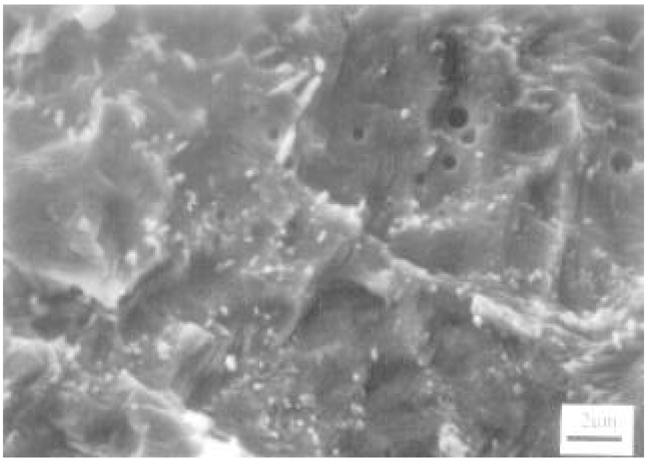
(a) **낮은 배율**, (b)**높은 배율**, (c) **개재물 근처**



(a)



(b)



(c)

**그림** 6. **파면 관찰결과- 높은 하중 조건**, 0.05Hz

(a)brittle striated type, (b) **공구**(Void)**근처 파면**, (c) (b)**의 공구주위를 확대**