

니켈 합금 모재 및 용접재의 일차수응력부식균열 균열성장속도 시험

이 중 훈[†]

한국수력원자력(주) 중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70
(2019년 2월 17일 접수, 2019년 2월 20일 수정, 2019년 2월 20일 채택)

Primary Water Stress Corrosion Crack Growth Rate Tests for Base Metal and Weld of Ni-Cr-Fe Alloy

Jong Hoon Lee[†]

Central Research Institute, Korea Hydro & Nuclear Power Co., Ltd, 70, 1312-gil, Yuseong-daero, Yuseong-gu, Daejeon, Korea
(Received February 17, 2019; Revised February 20, 2019; Accepted February 20, 2019)

Alloy 600/182 with excellent mechanical/chemical properties have been utilized for nuclear power plants. Although both alloys are known to have superior corrosion resistance, stress corrosion cracking failure has been an issue in primary water environment of nuclear power plants. Therefore, primary water stress corrosion crack (PWSCC) growth rate tests were conducted to investigate crack growth properties of Alloy 600/182. To investigate PWSCC growth rate, test facilities including water chemistry loop, autoclave, and loading system were constructed. In PWSCC crack growth rate tests, half compact-tension specimens were manufactured. These specimens were then placed inside of the autoclave connected to the loop to provide primary water environment. Tested conditions were set at temperature of 360°C and pressure of 20MPa. Real time crack growth rates of specimens inside the autoclave were measured by Direct Current potential drop (DCPD) method. To confirm inter-granular (IG) crack as a characteristic of PWSCC, fracture surfaces of tested specimens were observed by SEM. Finally, crack growth rate was derived in a specific stress intensity factor (K) range and similarity with overseas database was identified.

Keywords: Primary water stress corrosion cracking, Crack growth rate, Inter-granular crack, Ni-base alloy, Nuclear power plants

1. 서론

가압경수형 원자력발전소는 연료에서 얻는 열에너지를 전달하는 1차측과 열에너지로 터빈을 기동해 전기를 생산하는 2차측으로 구분할 수 있다. 그 중 1차측에는 반응 속도를 제어하기 위해 붕산수가 주입되어 있으며, 기기들의 부식을 억제하기 위해서 용존산소와 pH 등을 제어하고 있다. 1차측에 주입된 붕산수 (일차수)는 정상운전 중에 최대 325 °C의 온도와 15MPa의 압력을 유지하기 때문에 주요기기들의 재료는 고온/고압 환경에서 우수한 기계적/화학적 특성이 필요하다. Alloy 600 니켈합금 재료는 고온 기계적 특성과 부식 저항성이 우수하여 증기발생기 전열관이나 원자로 상부헤드 관통노즐 등의 주요기에 널리 활용되어왔

다. 하지만 Alloy 600 재료가 일차수 환경에 장시간 노출되면 일차수응력부식균열 (PWSCC)에 취약해지기 때문에 1970년대부터 응력부식균열의 발생 사례가 빈번히 보고되었다 [1,2]. 원전 주요기기에서 Alloy 600의 문제점이 드러나면서 최근 건설된 원전에는 Alloy 600 대신 크롬 함량을 약 30%로 높은 Alloy 690 재료를 사용하고 있지만, 기존에 건설된 원전에는 아직까지 Alloy 600 재료가 사용되고 있으므로 PWSCC 문제는 여전히 해결되지 않고 있다.

PWSCC의 생성과 성장을 억제하고 예측하기 위해서 Alloy 600과 182 재료에 대해 PWSCC 균열성장 특성을 조사하기 위해서 전 세계적으로 재료와 미세조직, 온도, 용존 산소, 용존 수소, pH 등의 다양한 변수에 대해서 균열성장 시험을 수행하였고, 최근 미국 전력연구소에서 연구 결과물들을 취합하여 데이터베이스를 구축하고 추세식을 정립하였다 [3,4]. 국내의 연구기관에서도 원자력발전소 증

[†]Corresponding author: jonghoon.lee@khnp.co.kr

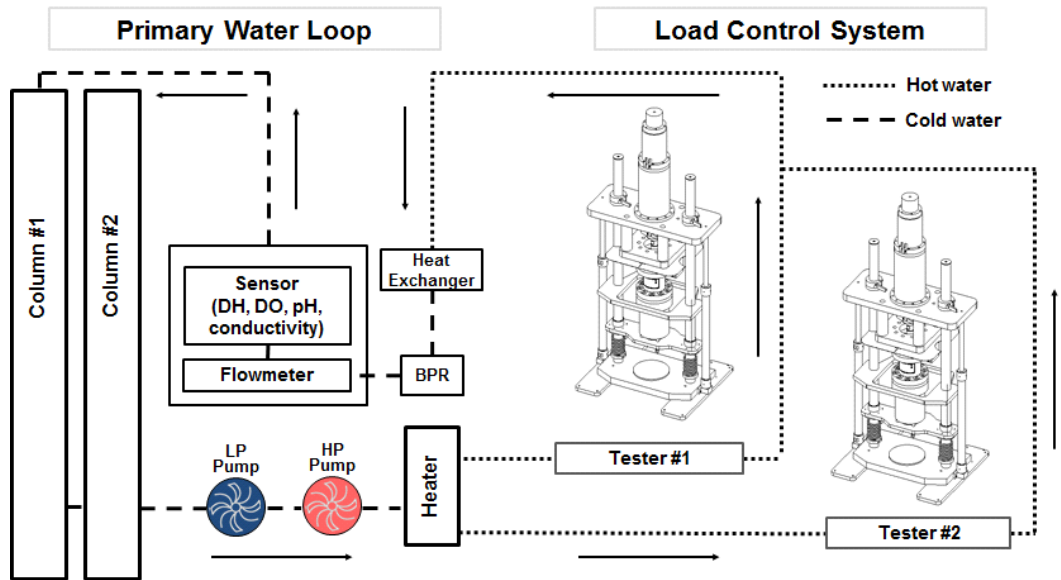


Fig. 1 Schematic of PWSCC crack growth rate(CGR) test machine.

기발생기의 전열관에 사용되는 High Temperature Mill Annealed (HTMA) Alloy 600 재료를 대상으로 PWSCC 균열성장 특성을 조사하고 결과를 발표한 바 있다 [5]. 이러한 노력들로 인해 Alloy 600과 182 재료의 PWSCC 균열성장 특성은 어느정도 예측 가능한 수준까지 규명이 되었다고 볼 수 있다. 다만 PWSCC 균열성장 연구는 고온고압 환경에서 복잡한 설비를 장시간 운영해야하기 때문에 실험의 안정성이나 재현성이 떨어지고, 다양한 변수와 재료에 대해서 아직까지 밝혀지지 않았기 때문에 추가 연구가 필요하다. 그리고 원전을 운영하는 과정의 다양한 상황에서 발생하는 PWSCC 발생 원인을 규명하거나 국내 원전에 적용된 재료들에 대한 자체 고유데이터 확보, 검사 주기 완화, Alloy 690이나 용접 dillusion zone과 같은 다양한 재료와 미세조직에 대한 PWSCC 균열성장 데이터 확보를 위해서는 자체 시험 기술과 인프라를 확보할 필요가 있다. 실험이 원활하게 수행되고 의미 있는 결과를 얻기 위해서는 응력부식균열이 발생하는 수화학 조건과 적절한 응력 조건이 필요하다. 수화학 조건을 만족시키기 위해서는 루프 및 계측기를 적절하게 설계하고 실험실 환경에 맞도록 개선/관리가 필요하다. 응력 조건은 실험에서 오토클레이브를 사용하기 때문에 마찰력과 하중 보상 기능의 불안정성 때문에 하중을 시편에 정확히 전달하는 것이 하드웨어적으로 쉽지 않다. 시편에 작용하는 하중이 지나치게 높으면 연성 파괴가 일어날 수 있고, 반대로 낮으면 장시간 실험을 수행하여도 균열이 성장하지 않을 수 있다. 적절한 하중을 전달하기 위해서는 오차를 최대한 줄일 수 있도록 시험기의 성능 테스트가 수반되어야 한다. 즉 신뢰성 있는 PWSCC 균열성장 평가를 위해서는 전문 지식과 경험, 시험 설비의 검증이 필요하다.

본 연구를 통해 Andresen [6]이 제안하여 현재 General Electric (GE)과 Pacific Northwest National Laboratory (PNNL) 등에서 활용되고 있는 SCC 시험 가이드를 참조하여 자체적으로 실험을 수행할 수 있는 시험설비를 구축하였으며, 해외에서 비교적 많은 데이터가 축적된 Alloy 600과 182 재료를 대상으로 실험을 수행하였다. 그리고 연구 결과를 EPRI에서 발간한 MRP-420 [3] 보고서에 수록된 해외 연구기관 실험데이터 및 추세식과 비교하여 신뢰성을 확인하였다.

2. 연구방법

2.1 시험 설비 구축

PWSCC 균열성장 시험 설비 개략도 (Fig. 1) 처럼 일차수를 제조하고 오토클레이브로 공급하는 수화학 루프와 하중을 오토클레이브 내부 시편으로 전달하는 응력 구동부로 구성되어있다. 수화학 루프는 가압경수형 원전의 1차측 환경을 모사하기 위한 설비로, 붕산과 수산화 리튬을 첨가한 붕산수 용액에 수소와 아르곤 가스를 주입하면서 수화학을 조절할 수 있다. 루프는 1,000시간 내외의 장시간이 소요되는 PWSCC 균열성장 실험시간 동안 용존수소, 용존산소, pH, 전도도 등의 인자를 일정하게 유지하면서 용액을 오토클레이브로 안정적으로 공급할 수 있어야 하며, 특정한 조건에서는 환경 변수를 조절할 수 있도록 구성되어야 한다. 장시간 실험 중 부식과 누수를 방지하기 위하여 수화학 루프를 구성하는 배관과 밸브 등은 스테인리스 재질로 제작하였으며, 지속적으로 변화하는 수화학 조건을 안정적으로 유지하기 위해 새로운 용액을 주입할 수 있는 컬럼을 일차수의

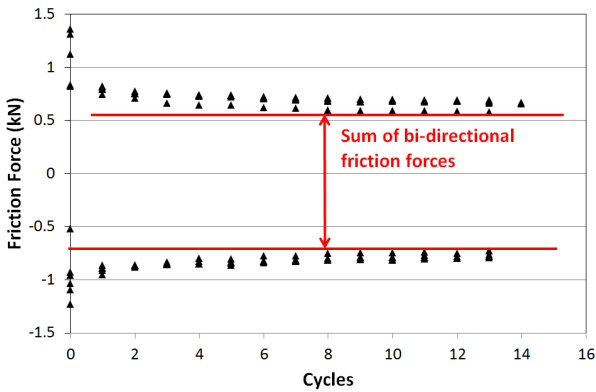


Fig. 2 Friction force of loading system at high temperature.

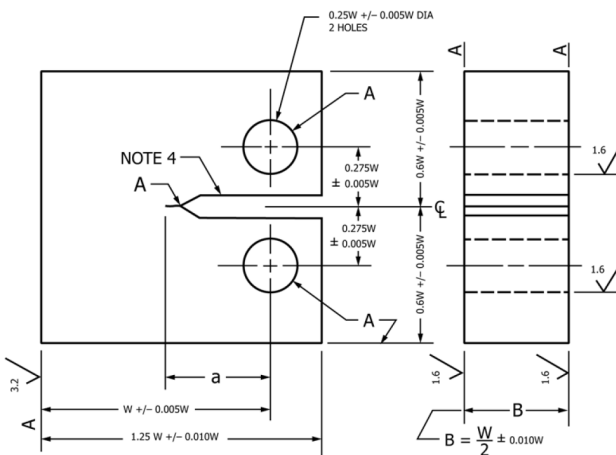


Fig. 3 Shape of CT Specimen in ASTM E399 [7].

수화학을 제어하기 위한 컬럼과 분리하여 2개로 설치하였다. 루프의 저온부에는 온도와 압력, 용존수소, 용존산소, pH, 전도도 계측기를 설치하여 수시로 값을 기록하였다. 고온부에는 Pre-heater를 설치하여 오토클레이브에 급격한 온도변화가 일어나는 것을 방지하였으며, 압력 맥동을 감소시키기 위해서 완충장치를 설치하였다. 루프에 시험기 두대를 병렬로 연결해두었기 때문에 펌프와 역압력조절기, 열교환기 등은 두 세트씩 구성하였다.

응력 구동부는 정하중과 동하중을 모두 적용할 수 있도록 최대 하중 60kN 용량의 모터식으로 제작되었다. 모터에서 오토클레이브 내부에 설치된 시편으로 하중이 전달되어야 하는데, 오토클레이브 내부의 축과 축 프레임 사이에서 유

체가 새어나오는 것을 방지하기 위해서 설치하는 밀봉부에서 마찰력이 상당히 높게 작용하기 때문에 시편에 가해지는 하중이 상당량 상쇄된다. 게다가 초기에는 삼각파형과 사다리꼴 파형의 동하중 조건으로 실험을 수행하는데, 동하중에 대한 마찰력의 변화를 반영할 수가 없기 때문에 정확한 파형으로 하중을 전달하는 것은 현실적으로 불가능하다. 설정한 시험 하중과 실제 시편에 가해지는 하중 간 오차를 줄이기 위해서는 작용하는 마찰력을 측정 후 이를 보정하여 하중을 입력하는 것이 중요하다. 밀봉부에 작용하는 마찰력은 시험편을 설치하지 않은 상태로 오토클레이브를 실험 조건까지 가열/가압한 후 실제 실험과 동일한 주기로 변위를 왕복시키는 방법으로 측정하였고, 출력되는 하중을 그래프 (Fig. 2)와 같이 정리하였다. 이 결과로부터 실제 실험 환경에서는 약 0.65 kN의 마찰력이 작용한다고 볼 수 있다. 하지만 밀봉부품은 소모품이기 때문에 매 시험마다 마찰력은 조금씩 차이가 나며 교체 이후에는 값이 크게 변하기 때문에 정기적으로 마찰력의 측정이 필요하다는 결론을 내렸다. 또한 오토클레이브는 특성상 가열/가압 과정에서 시편이 밀려나면서 응력이 가해지는데, 이 응력과 마찰력이 0 N이 되는 지점을 파악하기 어렵다. 이는 오토클레이브를 가열하는 과정에서 시편에 큰 하중이 작용하지 않는 범위에서 LVDT를 조금씩 움직이면서 출력되는 하중 변화를 관찰하는 방법으로 해결하였다.

수화학 루프와 응력 구동부 외에도 시험기 제어 및 데이터 처리 프로그램이 설치된 서버를 구축하였다. 서버는 장시간 실험의 안정성을 확보하기 위해서 시험설비 제어용 서버와 데이터 서버를 분리하여 설치하였다. 그리고 오토클레이브 내부에 설치된 시편의 균열을 측정하기 위한 전위차법 (DCPD : Direct Current Potential Drop method) 시스템도 구축하였다. DCPD 시스템은 전원을 공급하는 장치와 나노 볼트미터, 스위칭 장치로 구성하고 백금 와이어로 시편과 연결하였다. 미세한 균열의 성장을 정밀하게 측정하기 위해서 접지를 설치하였으며, 데이터의 평균을 자동으로 계산하도록 하여 전기 신호의 노이즈를 최소화 시켰다.

2.2 실험 재료 및 조건

실험 재료는 원전 1차측 주유기에 적용되는 Ni-Cr-Fe 합금인 Alloy 600과 용접재인 Alloy 182이며 화학조성표 (Table 1)에 나타내었다. 각 재료들은 ASTM E399 [7]에

Table 1 Chemical composition of testing materials (wt%)

Material	Ni	Cr	Fe	C	Mn	S	Si
Alloy 600	72.0[min]	14.0-17.0	6.0-10.0	0.15[max]	1.0[max]	0.015[max]	0.5[max]
Alloy 182	59.0[min]	13.0-17.0	10.0[max]	0.10[max]	5.0-9.5	0.015[max]	1.0[max]

Table 2 Load control history for each step at high temperature

Step	Load Ratio	Frequency	Crack Increment
1	0.7(Triangle)	0.001 Hz	0.2 mm
2	0.7(Trapezoid)	0.001 Hz + 9,000s hold time	0.1 mm
3	1	-	Measure

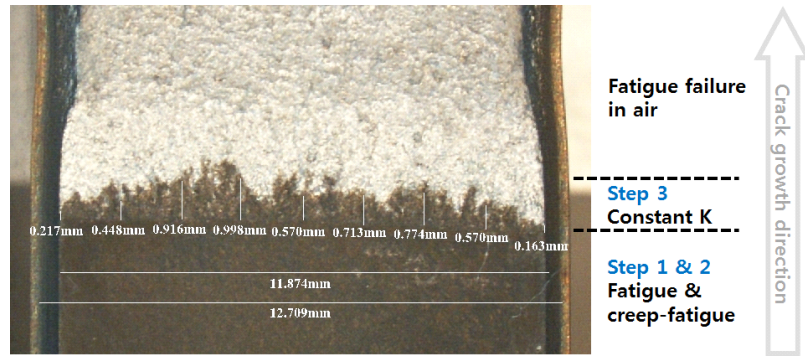


Fig. 4 Crack length measurement by 9-point method in Alloy 600.

제시된 0.5T CT 시편으로 가공하였으며 형상은 ASTM 도면 (Fig. 3)과 같다. 그리고 균열의 직진성을 확보하고 균열 터널링 현상을 방지하기 위해서 시편 측면에 side-groove를 가공하였다.

PWSCC 균열성장 실험은 가속 실험을 위해서 온도 360 °C와 압력 20 MPa 환경에서 수행하였고, MRP-420 [3]에 수록된 equation (1)을 활용하여 325 °C 데이터로 환산하였다. 아래 식에서 온도항인 지수항을 계산하면 360 °C의 균열성장은 325 °C에 비해 약 3.8배 빠르다고 볼 수 있다.

$$\dot{a} = \alpha K^{\beta} \exp\left(\frac{-Q}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{ref}}\right)\right) \quad (1)$$

where :

$$\alpha = 1.19 \times 10^{-13} \text{ (m/s) at } 325^{\circ}\text{C and } 30 \text{ cc/kg H}_2$$

$$\beta = 2.0$$

$$Q = 120 \text{ (kJ/mol)}$$

$$T_{ref} = 598.15 \text{ (K)}$$

수화환 환경은 H₃BO₃와 LiOH·H₂O를 첨가하여 제조한 붕산수 (붕소 농도 1,000 ppm, 리튬 농도 2 ppm)를 루프에 주입하고 용존수소 농도 30 cc/kg, 용존산소 농도 5 ppb 이하, 상온에서 pH는 6.42, 전기전도도는 20.69 μS/cm를 목표치로 설정하였다.

균열성장 실험은 먼저 상온에서 피로 예비균열을 가공한 후 오토클레이브에 시편을 설치하고 고온/고압 실험을 수행하였다. 실험 하중은 시험법 가이드 [6]에서 제시한 내용을 바탕으로 표 (Table 2)에 나타난 것처럼 가장 먼저 응력비

0.7, 주파수 0.001Hz 조건의 삼각파형에서 시작하여 삼각파형에서 하중 유지시간 9000초를 적용한 사다리꼴 파형을 적용하는 단계를 사용하여 응력부식균열의 성장을 활성화시키고 직진성을 확보한 후 최종적으로 정하중 조건으로 실험을 수행하였다. 하중 제어 과정에서 앞서 설명한 것과 같이 파형을 정밀하게 시편에 전달하기 어려우므로 하중은 최대와 최소 하중만을 마찰력을 고려해서 보정한 후 DCPD로 출력되는 균열 길이에 초점을 맞추어서 실험을 진행하였다. Step 3 일정 응력확대계수(K) 조건 실험은 특정 하중에서 균열성장실험을 진행하다가 실시간 DCPD 신호로 균열의 성장이 관찰되어 K값이 0.5 ~ 1 MPa√m 증가할 때 마다 하중을 감소시키는 방법으로 수행하였다.

3. 연구결과 및 고찰

3.1 PWSCC 균열성장 실험 결과

Alloy 600 및 182를 대상으로 일정 K 조건에서 PWSCC 균열성장 실험을 수행하다가 DCPD 신호를 통해 균열이 기준치 (최소 500 μm) 이상 성장한 것으로 판단되었을 때 실험을 중단하고 실제 시편에 존재하는 균열 길이를 측정하였다. DCPD 신호는 이론적으로는 균열 길이를 정확히 측정할 수 있지만 실제 CT시편에서 균열길이를 정확히 측정하는 것은 무리가 있다. 그 이유는 초기에 입력하는 예비균열의 길이가 시편 표면에서 현미경으로 측정하며, 전체 시편 두께에서 동일하게 균열이 성장하지 않기 때문에 오차가 발생하고, SCC 균열이 시편의 두께방향으로 동일하게 성장

Table 3 PWSCC CGR of Alloy 600 and 182

Test No.	Material	K [$MPa\sqrt{m}$]	CGR [m/s], (Test temp., 360 °C)	CGR [m/s], (Converted, 325 °C)
1	Alloy 600	28.5 ~ 28.8	1.71E-10	4.51E-11
2	Alloy 600	33.0 ~ 33.5	1.74E-10	4.60E-11
3	Alloy 600	33.1 ~ 34.5	2.80E-10	7.37E-11
4	Alloy 182	19.5 ~ 20.4	3.47E-10	9.14E-11

하는 것이 아니기 때문이다. 따라서 정확한 균열길이 측정을 위해서는 실험 종료 후 시편을 파단하여 길이를 측정하고 DCPD 신호를 보정하는 것이 중요하다. Alloy 600의 광학 현미경 파면 사진 (Fig. 4)처럼 균열을 두께방향으로 9등분하여 각각의 균열 길이를 측정하고 평균을 내어서 최종 균열 길이를 결정하였다. 측정된 최종 균열길이를 DCPD 신호의 최종 균열길이를 보정하여 실제 시편에 작용한 K값을 계산하고 균열길이를 정하중 시험시간으로 나누어서 PWSCC 균열성장속도를 도출하고 표 (Table 3)에 나타내었다. Alloy 600에 비해 Alloy 182가 더 낮은 K 범위에서도 높은

균열성장속도를 보였는데, 이는 Alloy 182의 PWSCC 저항성이 Alloy 600에 비해 더 낮다는 것을 의미한다.

Alloy 600의 PWSCC 파단면 관찰 사진 (Fig. 5)를 보면 각 하중 Step 별로 확연히 차이가 나는 파괴 형태를 관찰할 수 있었으며, 정하중 영역에서는 전형적인 입계균열과 가지 균열을 관찰할 수 있었다. Alloy 182의 PWSCC 파단면 관찰 사진 (Fig. 6)을 보면 수지상 (dendrite)의 성장 방향과 동일한 결정립이 관찰되며, 마찬가지로 입계균열과 가지 균열이 잘 관찰되었다. 이는 결정립계 크롬 산화물 석출에 의한 PWSCC의 전형적인 특징을 잘 보여주는 것으로 실험

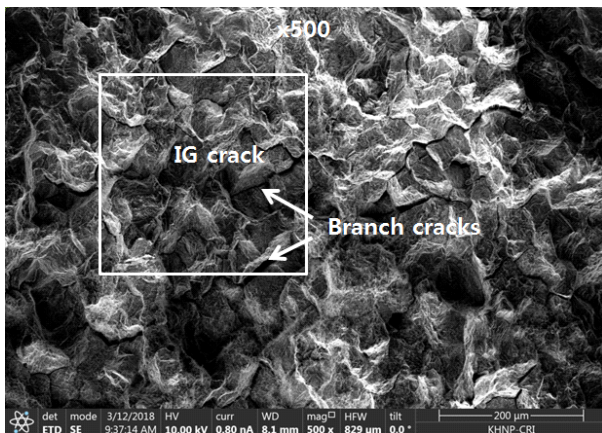


Fig. 5 PWSCC surface of Alloy 600 by SEM.

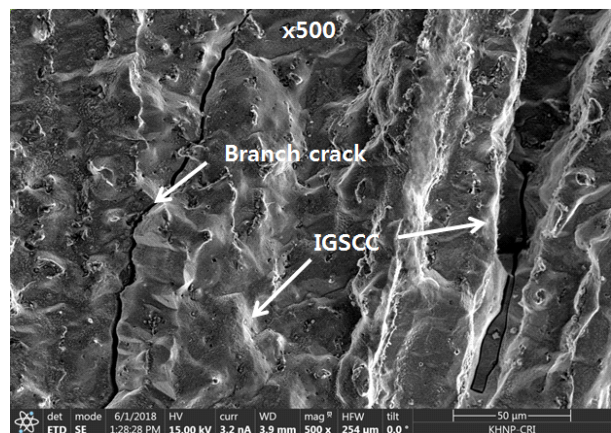
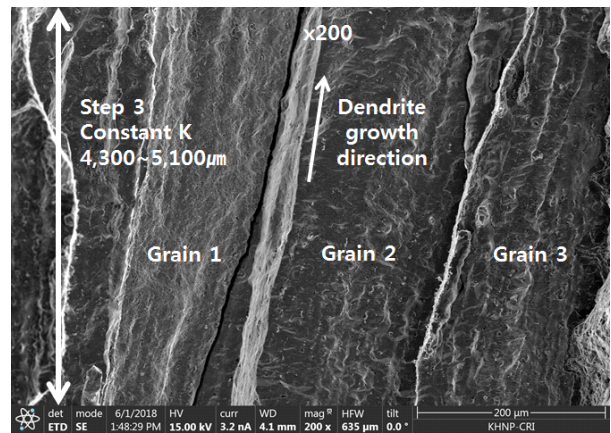


Fig. 6 PWSCC surface of Alloy 182 by SEM.

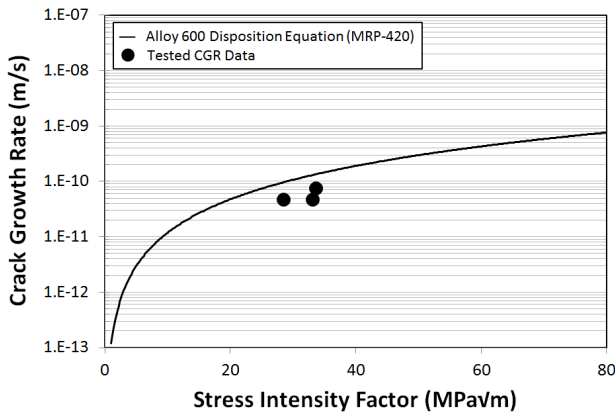


Fig. 7 Alloy 600 PWSCC CGR results vs. trendline of MRP-420 [3].

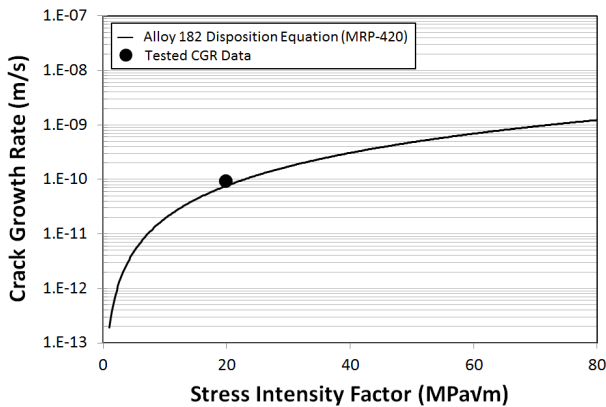


Fig. 8 Alloy 182 PWSCC CGR results vs. trendline of MRP-420 [3].

조건이 PWSCC 성장에 적합하다는 것을 의미한다 [8].

3.2 데이터 검증

실험을 통해 구한 Alloy 600 및 182의 PWSCC 균열성장속도 결과를 해외 추세선과 비교하여 그림 (Fig. 7, 8)에 나타내었다. Alloy 600과 182 재료의 PWSCC 균열성장 실험은 전 세계에서 많은 연구가 되었음에도 불구하고 실험이 복잡하고 시험법 표준이 불명확하며 시험기 구축이 어려워져 데이터간의 오차가 동일한 K와 환경 조건에서 수십에서 최대 천배까지 나는 상황이다. 본 연구는 결과물은 그에 비해 분포가 넓지 않고 추세선과 가장 큰 오차가 Test No.2의 2.85배 차이이므로 추세선과 상당히 유사한 값을 나타낸 점에서 재현성이 우수하며, 결과를 신뢰할 수 있다고 볼 수 있다.

PWSCC 성장속도는 원자로헤드 관통 노즐과 같은 발전소 설비에서 균열이 발생하였을 때 설비의 건전성이 확보되는 기간을 계산할 수 있으므로 비파괴 체적검사 주기 결정이나 연장에 활용될 수 있다. 따라서 구축된 인프라를 활용하여 국내 원전 고유 재료나 Alloy 690 계열의 재료에 대한 연구가 수반된다면 원자력발전소의 건전성과 경제성 확보에 기여할 수 있을 것으로 기대한다.

4. 결론

원전 니켈 합금의 PWSCC 균열성장 연구에 필요한 실험 인프라를 구축하고, Alloy 600과 182 재료를 대상으로 구축된 실험설비로 325℃ 원전 일차수 조건에서 PWSCC 균열성장 실험을 수행하여 자체적으로 데이터를 확보한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) PWSCC 균열성장속도는 Alloy 600 재료의 $K = 28.5 \sim 34.5 \text{ MPa}\sqrt{m}$ 조건에서 $4.5 \sim 7.4 \times 10^{-11} \text{ m/s}$, Alloy 182 재료의 $K = 19.5 \sim 20.4 \text{ MPa}\sqrt{m}$ 조건에서 약 $9.1 \times 10^{-11} \text{ m/s}$ 로 측정되었다.

2) 균열성장 시험 후 파면 관찰 결과 Alloy 600과 182 재료 모두 PWSCC의 전형적인 특징인 입계부식균열과 가지균열을 확인하여 실험 환경과 조건이 PWSCC 성장에 적합한 것으로 판단되었다.

3) 실험데이터를 해외 데이터베이스 추세선과 비교하여 우수한 재현성과 장비에 대한 신뢰성을 확인하였다.

References

1. V. N. Shah, D. B. Lowenstein, A. P. L. Turner, S. R. Ward, J. A. Gorman, P. E. Macdonald and G. H. Weidenhamer, *Nucl. Eng. Design*, **134**, 199 (1992).
2. S. S. Hwang, *J. Nucl. Mater.*, **443**, 321 (2013).
3. EPRI, Materials Reliability Program, MRP-420, Rev.1 (2018).
4. J. H. Kim, C. B. Bahn and I. S. Hwang, *Corros. Sci. Tech.*, **3**, 198 (2004).
5. S. S. Kim, J. S. Kim, S. S. Hwang and H. P. Kim, *Corros. and Protec.*, **7**, 39 (2008).
6. P. L. Andresen, *Experimental Quality Guidelines for SCC Testing* (1998).
7. ASTM E399-12, Standard Test Method for Linear-Elastic Plane-Strain Fracture Toughness K_{Ic} of Metallic Materials, ASTM International (2013).
8. Y. S. Lim, H. P. Kim and S. S. Hwang, *Corros. Sci. Tech.*, **11**, 141 (2012).