

노내구조물 보관재인 type 304 스테인리스강의
중성자 조사 고온 기계적 특성

Neutron-Irradiation Mechanical Properties of In-Reactor
Archive Type 304 Stainless Steels

김우곤, 류우석, 안상복, 주기남
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

원전 노내 구조물 보관재인 304UC(울진 5/6호기) 및 304YG(영광 5/6호기) 강의 조사 후의 고온 기계적 특성을 인장시험을 수행하여 평가하였다. 조사시험은 하나로 IR2 시험공에서 24MW 출력으로 11일간 300°C, 10×10^{19} n/cm² (E>1.0 MeV) 조사량으로 조사되었으며, 고온 인장시험은 IMEF 핫셀내에서 상온에서부터 700°C까지 2×10^{-3} /sec 변형속도로 수행하였다. 시험결과, 스테인리스강에서 전형적으로 관찰되는 조사경화와 연성저하의 거동을 보였으며, 특히 항복강도가 크게 증가되었다. 그러나 600°C 이상에서는 비조사재와 거의 같은 값으로 회복됨을 알 수 있었다. 고온에서의 이러한 결과는 열 활성화에 따른 조사결함의 회복에 기인하는 것으로 판단되었다. 온도별 가공경화지수, n 값은 비조사재가 조사재에 비해 높았으며, 고온인 600°C가 되면 비조사재와 같은 값으로 회복되었다.

Abstract

Mechanical properties of archive type 304UC and 304YG stainless steels, irradiated to 10×10^{19} n/cm² (E>1.0 MeV) fluence for 11 days at 300°C, were evaluated by high-temperature tensile tests. Irradiated 304UC and 304YG archive steels showed typical irradiation hardening and low elongation, especially yield strength increased largely. However, the strength above 600°C was recovered to that of origin material. The reason for this was attributed to the recovery of irradiation defects by thermal activation. Strain hardening exponent, n value of irradiated steels was lower than that of unirradiated ones.

1. 서론

우리나라는 1960대 초에 소형의 연구용 원자로가 가동되어 원자력에 대한 기초연구가 시작된 지 30년이 지났지만, 그 동안 충분한 연구시설을 갖추지 못해 조사거동 연구를 거의 수행되지 못했다. 다행히 1995년 4월 최대 중성자속 2.1×10^{14} n/cm²·sec인 대형 연구용 원자로인 하나로(HANARO)가 준공되고 조사재시험시설(IMEF)의 가동으로 우리도 노내 시험 연구를 할 수 있는 기반이 마련되었다.¹⁻⁴⁾ 연구로를 활용한 캡슐조사시험은 다양한 운전조건을 구현할 수 있기 때문에 조사시험 변수를 조절하여 여러 가지 원자력 재료의 실제 사용조건을 그대로 모사 할 수 있고, 또한 중성자속을 높여 조사시험 기간을 크게 단축하여 단기간에 원자력 재료 및 구조물의 조사성능을 예측 및 평가하는 것이 가능하다.

원자력발전소의 1차계 재료로는 고온강도, 인성, 연성, 내식성이 우수하고 사용 경험이 많은 오스테나이트 스테인리스강이 주요 기기에 널리 사용되고 있다. 가압경수로의 경우 노내구조물, 노심조 및 노심지지판, 배관류에 304나 316 스테인리스강이 사용되고 있으며, 최근에는 질소가 첨가된 'LN' 스테인리스강이 차세대 원자로로 개발중인 액체금속로(LMR)의 원자로 용기, 1차계 배관류에 적용하고자 개발되고 있다.⁵⁾ 이러한 1차계 노내 구조물 재료는 원자력 특유의 환경 즉 고온, 고압, 특히 중성자의 조사에 의한 최대 10^{23} n/cm² ($E > 0.1$ MeV, E : 중성자에너지) 누적 조사량을 받으며 수 십년 이상의 설계수명 동안 건전성을 유지하여야 한다. 그러나 중성자 조사는 재료 내에 다량의 원자 공공, 격자간 원자, thermal spike, 불순물 원자를 형성하고 이들은 다른 결함과 상호 작용하여 전위루프, void, cluster, 석출물 등을 만들어 항복강도를 증가시키고 연성, 파괴인성, 크리프 등 기계적 성질을 감소시켜 수명을 단축시킨다. 따라서 핵재료를 포함한 원자로 구조재에 대한 방사선 조사에 따른 조사거동 연구가 반드시 필요하다.

본 연구에서는 영광 5/6호기 및 울진 5/6호기 원전 발전소의 노내 구조재로 사용된 304YG(영광) 및 304UC(울진) 보관재(archive material)를 사용하여 10×10^{19} n/cm² ($E > 1$ MeV) 조사량으로 중성자 조사시켜 조사 전·후의 고온 기계적 특성 변화를 조사하였다. 이를 위해 상온에서 700°C 까지의 온도별로 고온 인장 특성치를 각각 얻고, 이를 비조사재와 비교 분석하여 조사거동에 대한 기초자료를 마련하였다. 또한 조사재의 온도별 재료 거동 변화를 파악하기 위하여 소성영역에서의 가공경화지수 n 값을 각각 구하고, 이를 비조사재와 비교하여 조사재의 가공경화 거동을 조사하였다.

2. 실험 방법

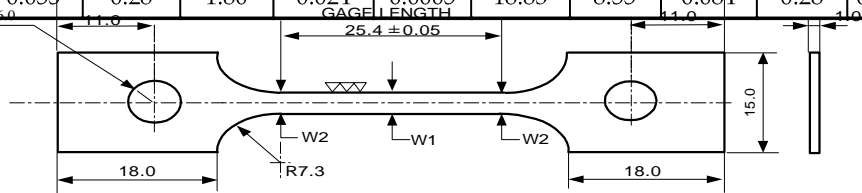
2.1 재료 및 시편 제작

본 시험에 사용된 시편은 영광 5/6호기 및 울진 5/6호기 원전 발전소의 노내 구조물 archive 재료인 304YG 및 304UC 스테인리스강 판재이다. 304YG 강 두께는 4.76 mm,

304UC 강은 22.23 mm 로 두 강의 화학적 조성은 Table 1과 같다. 인장시편의 채취는 압연방향이 길이 방향이 되도록 하였다. 조사 인장시편의 설계는 장입할 캡슐의 크기 및 시편의 size effect 를 고려하여 외국의 시편치수를 조사 분석하고 ASTM E8/E21 standard^{6,7)}을 참고하여 Fig. 1과 같은 치수로 최종 결정하였다. 본 시편은 인장시험 시 jaw 의 미끄럼을 방지할 수 있는 pin 타입으로서 게이지 길이가 1 인치이고, 게이지 길이 평행부의 바깥쪽은 게이지 중심부 보다 0.004 mm 크게 taper 를 주어 과단시 게이지 중심에서 과단이 되도록 설계하였다. 제작된 조사 시편은 조사 인장 시험시 발생될 문제 점을 미연에 파악하기 위해 예비시편을 제작하여 실제 시험조건과 같은 조건에서 모의 예비시험을 수행 실시하여 시편의 과단상태와 특성 결과치를 얻어 기존의 결과와 비교하여 양호함을 확인하였다.

Table 1 Chemical compositions of archive type 304UC and 304YG stainless steels

Specimens	C	Si	Mn	P	S	Cr	Ni	N	Mo	B	Fe
304UC	0.050	0.56	1.28	0.026	0.003	18.25	8.56	-	-	-	Bal.
316YG	0.055	0.28	1.80	0.024	0.0005	18.83	8.55	0.084	0.28	0.0015	Bal.



$$W1 = 3.7$$

$$W2 = 3.7^{+0.04} \text{ (gradual taper from the end to center)}$$

Fig. Pin-Loaded Tension Test Specimen with 1 In. Gage Length

Fig. 1 Pin-loaded tensile specimen with 1-inch gage length

2.2 시험방법

중성자 조사시험을 위해 시편을 장입한 캡슐은 00M-03K 캡슐로서 24MW 출력의 하나로 IR2 조사 시험 공에 설치되어 약 11일간 조사되었다. 조사온도는 경수로 운전온도 영역 부근인 300°C 이었으며, 고속 중성자 조사량은 $10 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2 (E > 1 \text{ MeV})$ 이었다. 인장시험 온도는 R.T., 200°C, 300°C, 400°C, 500°C, 600°C, 700°C의 온도로 하였으며, 인장 변형속도는 $2 \times 10^{-3} / \text{sec}$ 조건으로 시험을 수행하였다. 본시험을 위해서 Instron 8561에

사용될 고온 3-zone 전기로와 각종 고온용 치구들을 초기 설치 제작하였다. 고온 인장시험은 IMEF의 핫셀(hot cell)에서 원격제어장치로 하였으며, 본 시험 전 모의시험을 수행하여 각종 치구나 장치들의 작동상태를 사전에 점검하여 실험에 만전을 기하였다. 그리고 중성자 조사시 시편에 영향을 미칠 온도 및 열전도도의 편차를 방지하기 위하여 측면 및 pin hole 구멍을 시편과 동일한 재질의 space bar를 가공하여 모든 공간을 막았다. 조사된 시편의 식별을 위해 시편 측면에 고유번호를 각인하였으며, 조사 수량은 각 시편별로 10개씩이었다.

3. 결과 및 고찰

3.1 조사재의 파단 연신율 보정과 검증

중성자 조사된 시편의 경우 실제 총 파단 연신율(total elongation)의 측정은 시편의 취급이 곤란하므로 파단 시편에 대해 직접 측정하는 것이 곤란하다. 그래서 시험에서 얻어지는 공칭응력(nominal stress)-변형률 인장곡선의 그래프를 이용하여 간접적으로 구하여야 한다. 이론적으로 총 파단 연신율 값의 의미는 응력-변형률 곡선에서 최종 파단지점으로 부터 탄성영역의 기울기와 같은 기울기로 변형률 x축으로 그었을 때 탄성 변형률의 기울기를 뺀 변형률 값이 총 파단 연신율이 된다. 그러나 실제로는 시험 중 기계적 compliance에 의해 파단 후의 시편에서 직접 측정된 총 연신율 값(ϵ_m)은 응력-변형률 그래프에서 얻어지는 이론 값(ϵ_{th})보다 다소 낮은 값을 경험적으로 보여왔다.

그래서 본 연구에서는 조사된 시편의 총 파단 연신율 값을 응력-변형률곡선을 이용하여 간접적인 방법으로 구하였다. 이를 위해 본시험에 사용될 시편과 같은 형상과 치수를 갖는 304 강의 조사전의 비 조사재 시편을 사용하여 본 시험과 같은 온도인 R.T.~700°C에서 인장 응력-변형률 곡선을 얻고, 이 그래프를 이용하여 얻는 이론적인 연신율 값과 실제 파단된 시편에서 측정된 실험 연신율 값을 비교하여 보정치를 구하였다.

보정상수(correction constant), R 은

$$R = \frac{\epsilon_m}{\epsilon_{th}} \quad (1)$$

이며, ϵ_m 은 파단 후의 시편에서 직접 측정된 연신율 값(measurement elongation)이고, ϵ_{th} 는 응력-변형률 곡선으로부터 탄성곡선의 기울기를 뺀 변형률 값으로부터 얻어지는 이론 연신율 값(theoretical elongation)이다. 조사전 시편에 대하여 각 온도별 ϵ_m , 및 ϵ_{th} 를 구하고 보정 상수 R 값을 구하였다. 온도별 비교 결과 보정상수 R 은 평균 0.8997로써 약 0.90로 나타났으며, 온도별로는 R 의 변화가 거의 없음을 확인할 수 있었다. 이러한 의미는 공칭 응력-변형률 곡선에서의 탄성기울기 값은 스테인리스강의 경우 온도별로 큰 차이가 없다는 것을 의미한다. 따라서 기계에서 읽어들이는 파단지점의 변형률로부터 보

정상수 R 값을 적용하면 총 파단 연신율을 구할 수 있다. 향후 이들 보정 상수 자료를 이용하여 조사재의 파단 연신율을 구하는데 활용하고자 한다.

3.2 조사재의 고온 인장 특성

Fig. 2 및 3은 300°C에서 $10 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ 으로 중성자 조사된 30UC 및 304YG 강의 전체 인장시험 결과 곡선을 온도별로 나타낸 것이다. 두 강에 대하여 전체적인 인장 곡선의 변화 경향을 보면 온도가 증가될수록 강도 값은 낮아지고 있으며, 연신율은 온도의 증가에 따라서 감소하는 경향을 보이다가 약 500°C 이후부터는 온도의 증가에 따라 약간씩 증가되고 있음을 보인다. 이들 변화 관계를 비조사재와 함께 좀더 자세히 나타내면 Fig. 4~7과 같다.

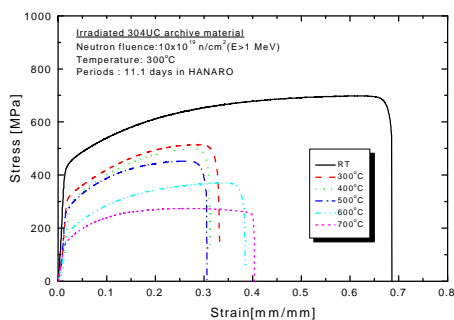


Fig. 2 Tensile curves of irradiated 304UC SS

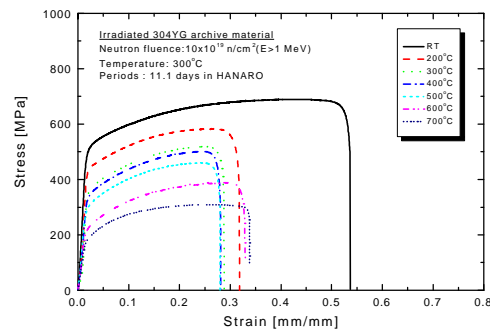


Fig. 3 Tensile curves of irradiated 304YG SS

Fig. 4~7은 304UC 및 304YG 강의 조사전 baseline 결과 및 조사후의 인장특성 결과를 각각 비교하여 나타낸 것이다. 조사재의 온도별 변화 경향은 비조사재와 유사한 거동곡선을 보인다. 두 강에 대해 비조사재와 조사재의 강도 결과치를 비교하여 보면, 두 시편 모두 조사시편에서 높은 강도치를 보였으며, 연신율은 반대로 낮은 결과치를 보이고 있다. 여기서 주목할 점은 항복 강도치가 조사시편에서 크게 높아짐을 알 수가 있으며, 온도가 600°C 이상이 되면 조사재나 비조사재가 거의 같은 값을 가짐을 알 수 있다. 600°C 이후에서의 이러한 결과는 열 활성화에 따른 조사결함의 회복에 기인하는 것으로 볼 수 있다. 즉 조사 후에 온도를 상승시키면 격자간 원자와 원자공공의 이동이 없던 점결함들이 열 활성화에 의해 불안정하게 되고, 조사시에 생성된 점결함들이 이동하여 결함들이 소멸되어 조사전의 상태로 회복되기 때문으로 볼 수 있다.

결국 스테인리스강의 경우 중성자 조사된 시편에서 전형적으로 나타나는 강도증가의 조사경화(irradiation hardening)로 연성이 약화되는 조사취화(irradiation embrittlement)가 일어남을 확인할 수 있다. 중성자 조사에 의한 경화나 연성의 저하는 원자로 재료로 수명

을 크게 단축시키는 원인이 되는데, 조사 경화 현상은 주로 조사시에 발생하는 블랙스포트, 전위루프, 전위망, 보이드 등과 같은 결함 집합체가 전위의 이동을 방해하기 때문에 발생한다.^{4,8)}

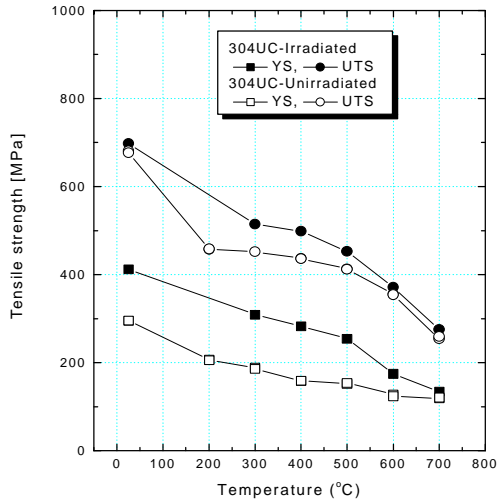


Fig. 4 Tensile strength of unirradiated and irradiated 304UC stainless steels

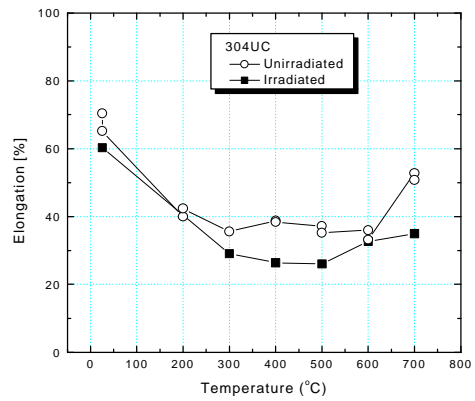


Fig. 5 Elongation of unirradiated and irradiated 304UC stainless steels

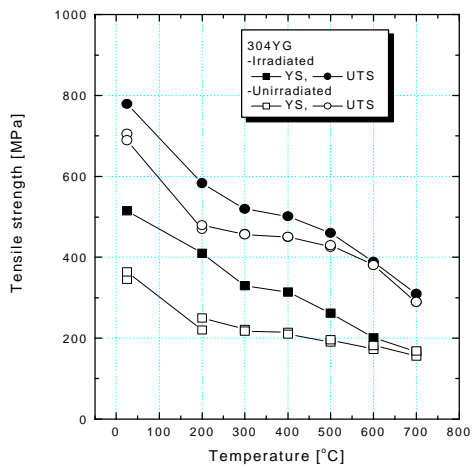


Fig. 6 Tensile strength of unirradiated and irradiated 304YG stainless steels

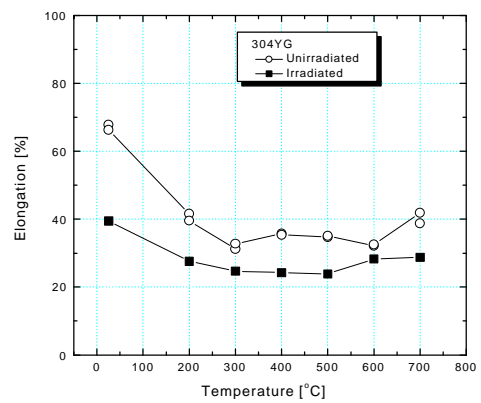


Fig. 7 Elongation of unirradiated and irradiated 304YG stainless steels

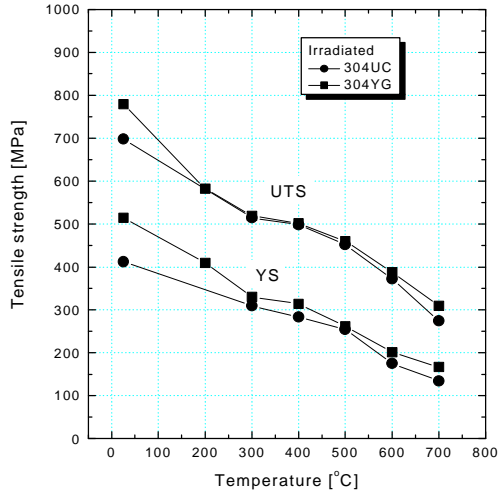


Fig. 8 Tensile strength of irradiated 304UC and 304YG stainless steels

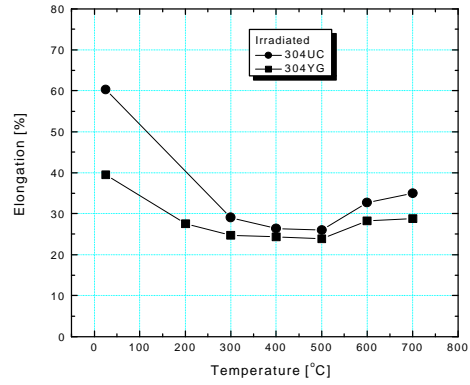


Fig. 9 Elongation of irradiated 304UC and 304YG stainless steels

Fig. 8 ~ 9는 두 강의 조사재의 항복강도, 최대인장강도, 파단 연신율을 비교하여 나타낸 것이다. 항복강도 및 최대인장 강도 값은 304YG 강이 304UC 강보다 전 온도구간에서 높은 값을 보이고 있다. 연신율은 반대로 304UC강이 304YG강에 비하여 높으며, 특히 상온에서 큰 차이를 보이다가 온도가 400°C 가 되면서 두강의 연신율 값은 큰 차이가 없음을 알 수 있다.

Fig. 10은 304UC 강의 R.T, 300°C, 500°C, 700°C 온도에 대하여 소성 유동곡선을 진응력(true stress)-진변형률(true strain)곡선으로 바꾸어 나타낸 것이다. 중성자 조사된 시편은 비조사 시편에 비해 전 온도 구간에서 유동응력(flow stress)의 상승 즉 경화되어 강도가 증가됨을 분명하게 볼 수 있다. 항복응력 및 유동응력의 증가 $\Delta\sigma$ 는 식으로 설명 될 수 있다.

$$\Delta\sigma = \frac{\alpha\mu b}{l} \quad (2)$$

여기서, α 는 상수이고 b 는 버그스 벡타, l 은 전위가 이동하는 슬립면에서 장애물 간격, μ 는 강성율이다. 중성자 조사를 시키면 루프, 전위선, 및 보이드 등과 같은 조사결함이 생성되는데, 이러한 결함은 전위이동에 장애물로 작용하여 전위밀도가 증가하고 l 이 감소하므로 응력이 증가되는 조사경화가 일어난다.

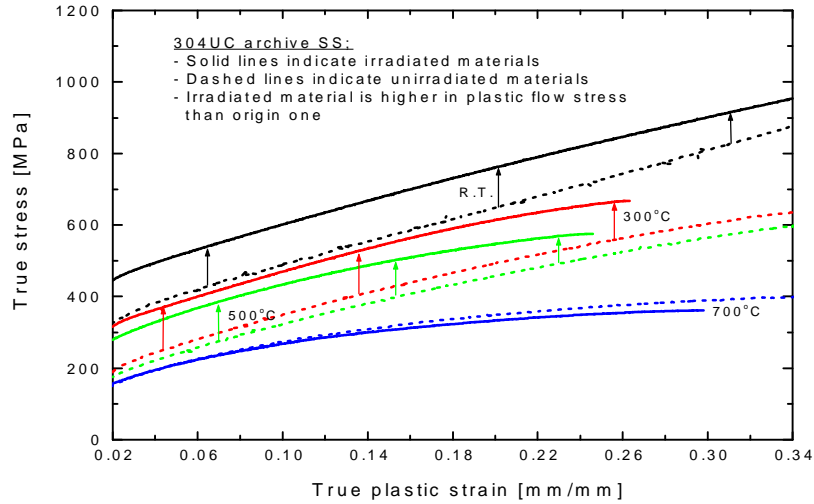


Fig. 10 True stress-strain curves of unirradiated and irradiated 304UC stainless steels

3.3. 조사재의 가공경화거동

조사시편의 조사경화에 의한 가공경화 거동을 조사하는 것은 조사재의 재료거동을 이해하는데 중요하다. 조사된 두 장의 가공경화 지수(strain hardening exponent), n 값을 각 온도별로 구하기 위해 인장시험에서 얻은 공칭 응력-변형률 곡선을 진응력-진변형률 곡선으로 바꾼 후 $\log\sigma - \log\epsilon$ 그래프로 나타내고, Hollomon의 식⁹⁾

$$\sigma = K\epsilon^n \quad (3)$$

을 사용하여 가공경화 지수 값을 구하였다. 여기서 K 는 재료상수로서 변형이 1이 되는 지점에서의 진응력치로 정의되며 강도계수(strength coefficient)이다.

Fig. 11은 조사된 304UC 장의 가공경화지수를 구하기 위하여 온도별 소성 유동곡선을 $\log\sigma - \log\epsilon$ 로 나타낸 것으로 소성영역의 유동곡선의 응력 크기는 온도 의존성을 잘 보이고 있다. 본 그래프를 자세히 보면 소성영역에서 응력-변형 관계는 완전한 직선이 되지 않고 있으며, 2개의 영역으로 나누어짐을 볼 수 있다. 즉 항복응력 바로 이후에서의 낮은 변형률에서는 완전한 소성변형을 위한 천이영역(transition zone)이 존재하며, 이후의 변형률에서는 완전 소성영역(perfect plastic zone)으로서 응력과 변형률은 일정한 관계로서 선형관계를 가진다. 이와 같은 재료거동은 열처리된 재료에서 통상 관찰되는데, 304UC 및 304YG 장은 조사재나 비조사재는 모두 이와 같은 2개의 소성영역이 나타나는

재료거동을 보였다. 그리고 가공경화지수 값은 완전 소성영역에서의 선형 기울기를 구하여 사용하는데, 천이영역이 끝나는 지점 즉 완전소성영역이 시작점을 정확히 결정하는 것이 n 값의 오차를 줄일 수 있다. 본 연구에서는 완전한 소성조건에 놓인 지점으로부터 네킹(necking)이 일어날 때까지의 완전소성영역의 직선영역 부분을 택하여 가공경화 지수를 구하였다. Fig. 12~14는 위에서 기술한 방법으로 가공경화지수 n 값을 조사재와 비조사재에 대하여 구한 비교 결과를 나타내었다.

Fig. 12~13은 304UC 및 304YG 두 강의 조사 전·후의 n 값을 온도별로 비교하여 나타낸 결과이다. 두 강은 공히 비조사재가 조사재에 비해 n 값이 높으며, 온도가 600°C가 되면서 거의 같은 값으로 수렴이 됨을 보인다. 이러한 결과는 앞에서 언급한 것처럼 고온에서의 열 활성화에 따른 조사결함의 회복에 기인하기 때문이다. 조사 후에 온도를 상승시키면 조사시에 생성된 점결함들이 이동하여 결함들이 소멸되어 조사전의 상태로 회복되기 때문이다. 가공경화지수 값이 높다는 것은 응력-변형률의 기울기 데이터가 클수록 재료가 가공됨에 따라서 강도 및 경도가 커진다는 것을 의미한다. 조사재에서 낮은 n 값을 갖는 이유는 조사결함에 의한 전위의 이동의 장애물로 작용하는 전위밀도의 증가로 인하여 슬립면에서의 장애물 간격 l 이 줄어들은 강도 증가 때문에, 소성 변형중에 일어나는 변형 증분율에 대한 강도 증분율의 비가 비조사재에 비하여 조사재가 상대적으로 낮아지기 때문으로 판단된다.

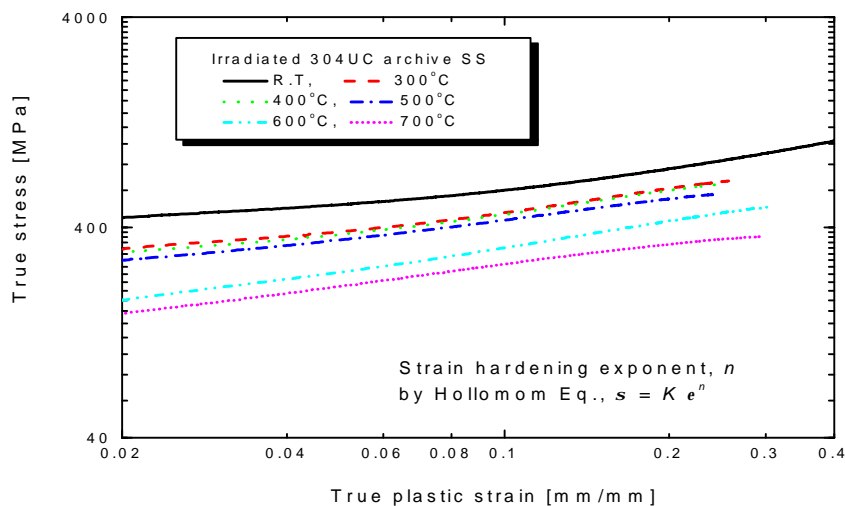


Fig. 11 Log-log plots of true stress-strain curves of unirradiated and irradiated 316UC stainless steels

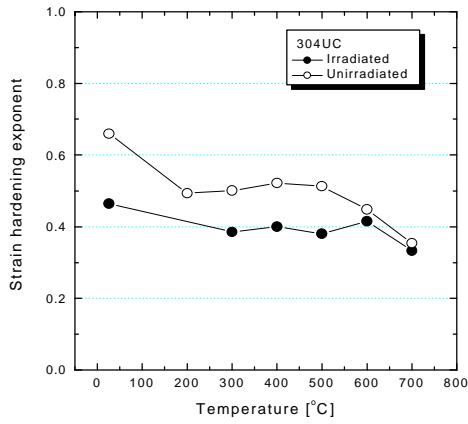


Fig. 12 Strain hardening exponent of unirradiated and irradiated 304UC stainless steels

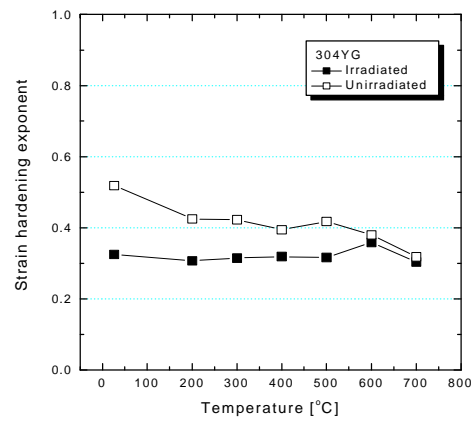


Fig. 13 Strain hardening exponent of unirradiated and irradiated 304YG stainless steels

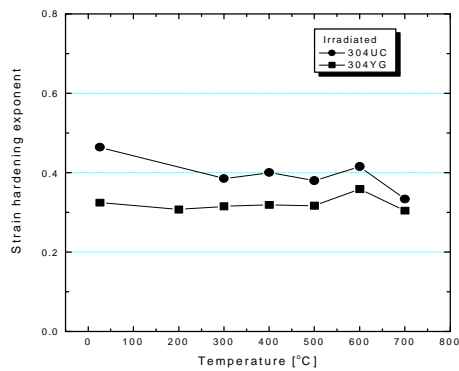


Fig. 14 Strain hardening exponent of irradiated 304UC and 304YG stainless steel

4. 결론

하나로 IR2 시험공에서 24MW 출력으로 11일간 300°C, $10 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ ($E > 1.0 \text{ MeV}$) 중성자 조사량으로 조사시킨 울진 및 영광 5/6호기 노내 구조물 보관재인 304UC 및 304YG 스테인리스강의 중성자 조사후의 고온 인장특성을 평가하였다. 00M-03K 계장 캡

Fig. 14는 중성자 조사된 304UC 및 304YG 두 스테인리스강에 대하여 가공경화지수 n 값의 비교 결과를 온도별로 나타낸 것이다. 항복강도 및 최대 인장강도가 낮고 연신율이 좋았던 304UC 강이 304YG 강에 비하여 높은 n 값을 가지고 있음을 알 수 있다. 그리고 조사된 두 강의 온도별 변화 경향은 거의 유사한 거동을 보이고 있다. 그러나 두 강의 가공경화지수 n 값의 차이 폭은 점차 온도가 증가되면서 조금씩 줄어드는 경향을 보이게 됨을 확인할 수 있다.

슬내에 시편을 장입하고 IMEF 핫셀내에서 상온에서 부터 700°C까지 2×10^{-3} /sec 변형률 속도로 고인 인장시험을 수행하였다. 시험결과, 중성자 조사된 시편에서 전형적으로 나타나는 조사경화와 연성저하의 거동을 보였으며, 특히 항복강도가 크게 증가되었다. 그러나 600°C 이상에서는 비조사재와 거의 같은 값으로 회복되었다. 고온에서의 이러한 결과는 열 활성화에 따른 조사결함의 회복에 기인하는 것으로 판단되었다. 조사재의 두 강의 온도별 인장강도 값은 304YG 강이 304UC 강에 비해 높았으며 연신율은 반대로 304UC 강이 높았다. 온도별 가공경화지수, n 값은 비조사재가 조사재에 비해 높았으며, 고온인 600°C가 되면 비조사재와 같은 값으로 회복됨을 알 수 있었다.

후 기

본 연구는 과기처에서 시행한 원자력 중장기 연구개발 사업중 원자력재료기술개발 과제 고온강도평가 및 신재료기술개발 분야에서 수행한 것입니다.

참고문헌

- [1] 홍준화, "원자로 압력 용기강에서의 조사취화 건전성 확보," 대한금속학회, Vol. 3, No. 2, pp. 159 ~ 168 (1990).
- [2] 한국원자력연구소, "하나로소식(HANARO Newsletter)," 제8권 제3호 통권 제25호, pp. 4 ~ 5 (2001).
- [3] 한국원자력연구소, "연구로 이용기술개발(HANARO) brochure," (2001).
- [4] 이기순, "핵연료/재료 조사공학," 문경출판사, pp. 111 ~ 178 (1997).
- [5] 류우석, 김우곤외, 액체금속로의 구조재료 개요, KAERI/AR-487/98, pp.38 ~ 47 (1998).
- [6] ASTM Standard, "Standard Test Methods for Tension Testing of Metallic Materials," ASTM E8M, pp. 77-97 (1995).
- [7] ASTM Standard, "Standard Test Methods for Tension Testing of Metallic Materials," ASTM E21, pp. 129 ~ 136 (1992).
- [8] F.H. Hung, "Fracture Properties of Irradiated Alloys," Fluor Daniel Northwest, Inc Richland, Washington, pp. 219~246 (1997).
- [9] W.F. Hosford and R. M. Caddell, "Metal Forming," PTR Prentice-Hall, Inc, pp. 61 ~ 66 (1993).