

원자력급 304NG/316NG 스테인리스강의 조사 인장거동

Postirradiation Tensile Behavior of Nuclear Type 304NG and 316NG Stainless Steels

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

요 약

원자력급으로 제조된 304NG 및 316NG 스테인리스강의 중성자 조사후 고온 인장거동을 조사하였다. 조사시험은 320°C에서 8.8×10^{19} n/cm² 조사량으로 조사시켰으며, 인장시험은 조사재시험시설의 핫셀내에서 RT, 200°C, 300°C, 400°C, 500°C, 600°C, 700°C 각 온도별로 수행하였다. 시험결과, 중성자 조사된 시편에서 전형적으로 나타나는 조사경화와 연성저하의 거동을 보였으며, 특히 항복강도가 크게 증가되었다. 그러나 500°C 이상에서는 비조사재와 거의 같은 값으로 회복됨을 알 수 있었다. 500°C 이상에서의 이러한 결과는 열활성화에 따른 조사결함의 회복에 기인하는 것으로 판단되었다. 조사후 두 강의 인장강도 값은 316NG강이 304NG강에 비해 높았으며 연신율도 우수하였다. 본 조사 조건에서 316NG 강의 온도별 가공경화지수는 0.32 ~ 0.55의 범위로 비조사재의 0.38 ~ 0.54 범위와 거의 차이가 없음을 확인하였다.

Abstract

High-temperature tensile behavior of nuclear type 304NG and 316NG stainless steels, irradiated in 8.8×10^{19} n/cm² fluence at 320°C, was investigated. Tensile tests were conducted with R.T to 700°C in IMEF hot cell. Tensile behavior of the irradiated two steels showed typical irradiation hardening and low elongation, especially yield strength increased largely. However, yield strength above 500°C recovered an origin strength. The reason for this was attributed to the recovery of irradiation defects by thermal activation. Type 316NG steel was superior in irradiated mechanical properties to type 304NG steel. Strain hardening exponent, n value of type 316NG steel was similar as 0.32 ~ 0.55 in irradiated materials to 0.38 ~ 0.54 in unirradiated ones.

1. 서론

가압경수로(PWR)인 고리원자력 1호기가 1978. 4. 29일 상업가동을 시작한 이래 24년이 경과되었고, 현재 국내에는 가압경수로 14기, 가압중수로(PHWR) 4기, 총 18기가 가동중이며, PWR 2기인 울진 5, 6호기가 각각 2004년과 2005년에 상업운전을 목표로 건설 중에 있다. 2002년 현재 우리나라는 전력공급의 50%이상을 원자력발전이 차지하고 있어 원자력발전은 이제 전력공급의 중핵적 역할을 담당하고 있다. 따라서 모든 원자력 계통 특히 노후화 되어 가는 원자력 계통을 구성하는 원자로 구조재를 포함한 핵재료에 대한 중성자 조사거동 연구를 수행해야할 시점에 와 있다. 그러나 우리나라는 1960대 초에 소형의 연구용 원자로가 가동되어 원자력에 대한 기초연구가 시작된 지 30년이 지났지만, 그동안 충분한 연구시설을 갖추지 못해 조사거동 연구를 거의 수행되지 못했다. 다행히 1995년 4월 최대 중성자속 2.1×10^{14} n/cm²-sec인 대형 원자로인 하나로(HANARO)가 준공되고 조사재시험시설(IMEF)의 가동으로 우리도 노내시험 연구를 할 수 있는 기반이 마련되었다.¹⁻⁴⁾

원자력발전소의 주요 구성 재료는 원자로형에 따라서 차이가 있지만 고온강도, 인성, 연성, 내식성이 우수한 오스테나이트 스테인리스강이 주요 기기에 널리 사용되고 있다. PWR의 경우 노내구조물, 노심조 및 노심지지판, 배관류에 304나 316강이 이미 많이 사용되어 왔으며, 차세대 원자로로 개발중인 액체금속로(LMR)의 경우는 가동온도가 550°C 이상에서 운전되므로 고온강도 관점을 중요시한 질소가 첨가된 316LN 강이 원자로 용기, 1차계 배관류에 적용되고 있다.⁵⁾ 이러한 1차계 원자력 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 감소시킨다. 따라서 원자력 구조재료로 유망한 304LN 및 316LN스테인리스강(이하 304NG 및 316NG로 표기)의 중성자 조사에 의한 열화거동을 조사 평가하는 것이 필요하다.

본 연구에서는 원자력급으로 제조된 304NG 및 316NG 강에 대하여 중성자 조사 열화거동을 인장시험을 수행하여 조사하였다. 이를 위해 상온에서 700°C까지 온도별로 인장특성치를 얻고 이를 비조사재와 비교하였다. 또한 조사재의 소성변형에 따른 재료거동을 조사하기 위하여 가공경화지수 n 값을 온도별로 구하여 얻고 이를 비조사재와 비교하였다.

2. 실험 방법

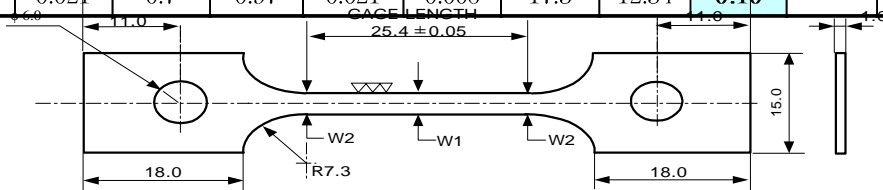
2.1 재료 및 시편 제작

본 시험에 사용된 시편은 원자력급으로 제조된 304NG 강과 316NG 강으로 화학적 조성은 Table 1과 같다. 304NG강은 포철에서 원자력급으로 개발한 시험 상용소재이며, 316NG 강은 당 실에서 개발한 소재이다. 시편의 제조는 진공유도용해 공정으로 용해한 30kg 잉곳을 열간 압연하여 두께를 15mm로 줄인 다음 1100°C에서 1시간 유지 후 수냉하였다. 시편의 채취는 압연방향이 길이 방향이 되도록 하였으며, 장입할 깎술의 크기와 시편의 size effect를 고려하여 적정 크기로 설계, 제작하였다. 이를 위해 외국의 시편치수를 조사 분석하고 ASTM E8/E21 standard^{6,7)} 를 참고하여 Fig. 1과 같은 치수로 결정하였다. 본 시편은 인장시험 시 jaw 의 미끄럼을 방지할 수 있는 pin 타입으로서 게이지 길이가 1 인치이고, 게이지 길이의 평행부 바깥쪽은 게이지 중심부 보다 0.004 mm 크게 taper 를 주어 파단시 게이지 중심에서 파단이 되도록 설계되어져 있다. 설계된 시편은 조사후 시험시 발생될 문제점을 미연에 파악하기 위해 예비시편을 제작하여 실제 시험조건과 같은 조건인 $2 \times 10^{-3}/\text{sec}$ 의 strain rate 로 상온부터 600°C 까지 예비시험을 실시하여 시편의 파단상태와 결과치를 비교하여 양호함을 확인하였다.

그리고 중성자 조사시 시편에 영향을 미칠 온도 및 열전도도의 편차를 방지하기 위하여 space bar를 가공 사용하였다. 각 인장 시편별로 측면 및 pin hole 구멍을 시편과 동일한 재질로 가공하여 조사시 열전도도에 의한 온도편차를 줄이기 위해서 모든 공간을 막았으며, 시편 10개가 1set가 되도록 하고 폭을 15mm로 동일하게 4각 형태로 가공하였다.

Table 1 Chemical compositions of type 304NG and 316NG stainless steels

Specimens	C	Si	Mn	P	S	Cr	Ni	N	Co	Mo	Fe
304NG	0.019	0.52	1.02	0.024	0.002	18.5	9.64	0.08	0.06	-	Bal.
316NG	0.021	0.7	0.97	0.021	0.006	17.3	12.34	0.10	-	2.36	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

시편을 장입한 캡슐은 00M-01U 캡슐로서 24MW 출력의 하나로 IR2 조사 시험 공에 설치되어 약 10일간 조사되었다. 조사온도는 320 ± 5 이었으며, 캡슐 내 시편부에는 14개의 열전대를 설치하여 조사시험 동안 조사시편의 온도 변화를 캡슐온도제어장치에 연속적으로 기록하였다. 각 시편의 조사량은 304NG의 경우는 8.83×10^{19} n/cm², 316NG의 경우는 8.70×10^{19} n/cm² 이었다. 인장시험 온도는 RT, 200°C, 300°C, 400°C, 500°C, 600°C, 700°C의 온도로 하였으며, 인장 변형속도는 2×10^{-3} /sec 조건으로 시험을 수행하였다. 본 시험을 위해서 Instron 8561에 사용될 고온 3-zone 전기로와 각종 고온용 치구들을 초기 설치 제작하였다. IMEF 핫셀 내의 인장시험은 본 시험을 하기 전에 각종 치구나 장치들의 작동상태를 사전에 완벽하게 점검하기 위해서 비 조사 시편을 사용하여 실제 상황과 같은 가상 시험을 수회 실시하여 실험에 만전을 기하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 조사재의 파단 연신율 보정과 검증

중성자 조사된 시편의 조사후 실제 파단 연신율의 측정은 시편의 취급이 곤란하므로 직접 측정하는 것이 곤란하다. 그래서 시험에서 얻어지는 응력-변형률 인장곡선의 그래프를 이용하여 간접적으로 구하여야 한다. 이론적으로 파단 연신율 값의 의미는 응력-변형률 곡선에서 파단 응력치에 대하여 탄성영역의 기울기와 같은 기울기로 그었을 때 얻어지는 총 변형률 값이 파단 연신율 값을 나타낸다. 그러나 실제로는 시험중 기계적 compliance에 의해 파단된 시편에서 얻어지는 측정 연신율값(ϵ_m)은 응력-변형률 그래프에서 얻어지는 이론값(ϵ_{th})보다 다소 낮은 값을 보인다. 그래서 본 연구에서는 조사후 시편의 파단 연신율을 간접적인 방법으로 구하기 위해 본시험에 사용될 시편과 같은 형상과 치수의 304강의 비 조사재 시편을 사용하고 시험온도도 본 시험과 같은 온도인 R.T ~ 700°C 로하여 응력-변형률 곡선을 얻었다. 이 그래프를 이용하여 얻는 이론적인 연신율 값과 실제 파단된 시편에서 측정된 실험 연신율 값을 비교하여 보정치를 얻었다. 보정상수(correction constant), R_1 은

$$R_1 = \frac{\epsilon_m}{\epsilon_{th}} \quad (1)$$

이며, ϵ_m 은 파단 후 실제 측정 연신율값(measurement elongation)값이고, ϵ_{th} 는 응력-변형률곡선의 그래프 상에서 탄성곡선의 기울기로부터 얻어지는 이론 연신율값(theoretical elongation)이다. 각 온도별 ϵ_m 및 ϵ_{th} 를 구하고 보정 상수 R_1 을 구하였다. 온도별 비교 결과 보정상수 R_1 은 평균 0.8997로서 약 0.90로 나타났으며, 온도별로는 R_1 의 변화

가 거의 없음을 확인할 수 있었다. 이러한 의미는 공칭 응력-변형을 곡선에서의 탄성기울기 값은 스테인리스강의 경우 온도별로 큰 차이가 없다는 것을 의미한다. 그래서 이들 결과를 바탕으로 보다 편리하게 사용할 수 있는 방법을 생각할 수 있다. 즉 기계에서 읽어들이는 과단 연신율값, ϵ_f 과 과단후 측정 연신율값, ϵ_m 의 비로만 가지고 온도별로 보정 상수 R_2 를 구하는 것이 가능하다. 온도별 비교 결과 보정 상수 R_2 는 0.8534 이었으며 역시 온도별로 큰 차이가 없음을 알 수 있었다. 실제 316NG 스테인리스강의 고온 인장시험에서 얻은 탄성 기울기를 온도별로 확인한 결과 그 기울기는 미미하였으며, 특히 조사된 시편의 경우는 온도별 변화가 거의 없음을 확인할 수 있었다. 따라서 본 방법을 사용하면 응력-변형을 그래프 상의 과단응력 위치에서 탄성 기울기로 연장선을 일일이 그어 변형을 구할 필요가 없기 때문에 시험으로 얻어지는 과단 연신율 값과 보정 상수만 가지고 인장 과단 연신율을 간접적으로 보다 쉽게 구할 수 있다. 본 결과에서는 두 가지 방법에 대하여 보정 상수를 구하여 검증하였으며, 향후 이들 보정 상수 자료를 이용하여 과단 연신율을 편리하게 구하는데 활용하고자 하였다.

3.2 조사재의 고온 인장 거동

IMEF 핫셀 고온 인장시험 장치 Instron 8561을 이용하여 304NG 및 316LN 스테인리스강의 인장시험은 장치의 결함이나 정지 없이 성공적으로 수행되었다. 총 20개의 조사 시편에 대하여 시편의 과단 위치는 모두 게이지 길이의 중앙부에 과단이 이루어졌다. 그래서 향후 조사 시편용 표준시편으로 사용하기에 적합함을 확인할 수 있었다.

Fig. 2 및 3은 중성자 조사후의 304NG 및 316NG강의 전체 인장시험 결과 곡선을 온도별로 나타낸 것이며, Fig. 4~7은 304NG 및 316NG 강 of 비조사재와 조사재의 인장특성 결과를 각각 비교하여 나타낸 것이다.

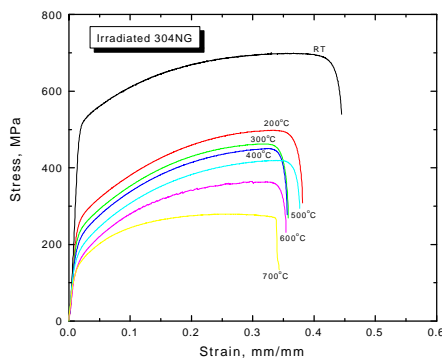


Fig. 2 Tensile curves of irradiated 304NG stainless steel

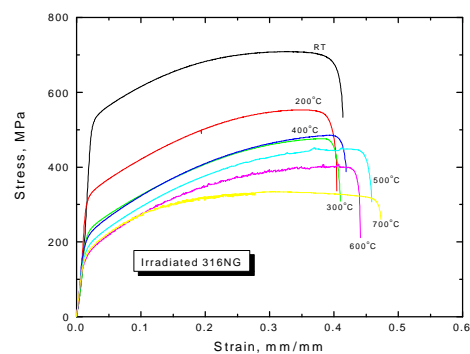


Fig. 3 Tensile curves of irradiated 316NG stainless steel

두 강에 대하여 전체적으로 보면 온도가 증가될수록 강도치는 낮아지고 있으며 연신율의 경우 304NG강은 온도의 증가에 따라서 감소하는 경향을 보이고 있으며, 온도별 거동은 비조사재와 유사한 거동곡선을 보인다. 그러나 316NG강은 상온에서 큰 연신율의 저하를 보이고 있으며, 300°C이상에서는 조사재나 비 조사재의 연신율은 큰 차이가 없음을 보인다.

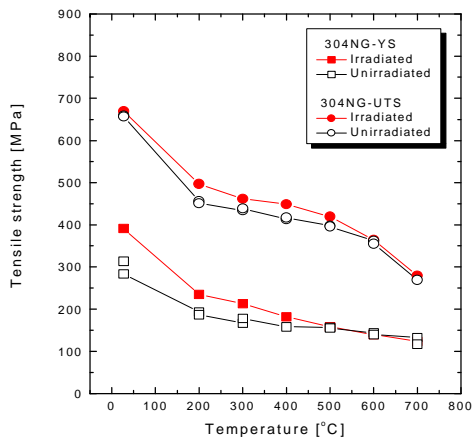


Fig. 4 Tensile strength of un- and irradiated 304NG stainless steel

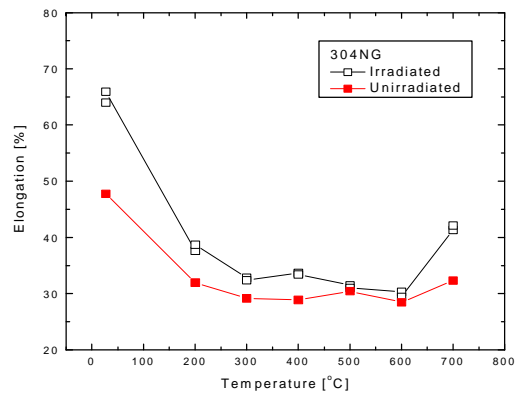


Fig. 5 Elongation of un- and irradiated 304NG stainless steel

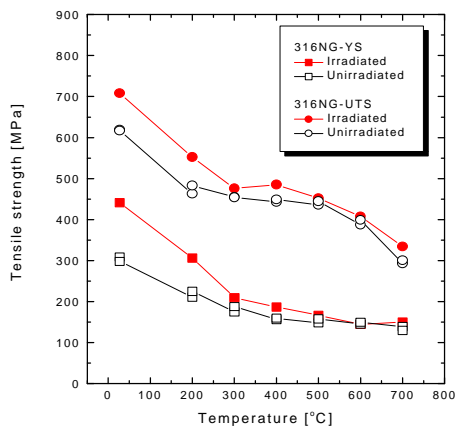


Fig. 6 Tensile strength of un- and irradiated 316NG stainless steel

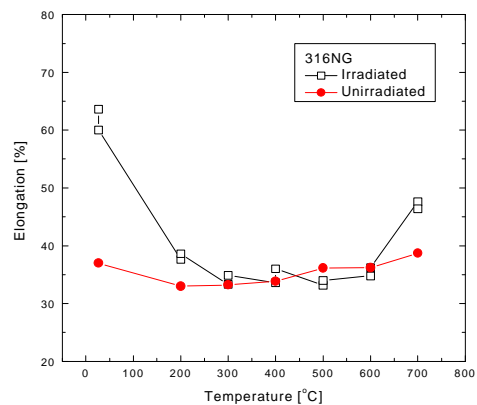


Fig. 7 Elongation of un- and irradiated 316NG stainless steel

비조사재와 조사재의 강도 결과치를 비교하여 보면, 두 시편 모두 조사시편에서 높은 강도치를 보였으며, 연신율은 반대로 낮은 결과치를 보였다. 여기서 주목할 점은 항복 강도치가 조사시편에서 크게 높아짐을 알 수가 있으며, 온도가 500°C 이상이 되면 조사재나 비조사재가 거의 같은 값을 가짐을 알 수 있다. 500°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 경우도 중성자 조사된 시편에서 전형적으로 나타나는 조사경화(irradiation hardening)로 연성이 약화가 수반됨을 확인할 수가 있다. 중성자 조사에 의한 경화나 연성의 저하는 원자로 재료로 수명을 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)}

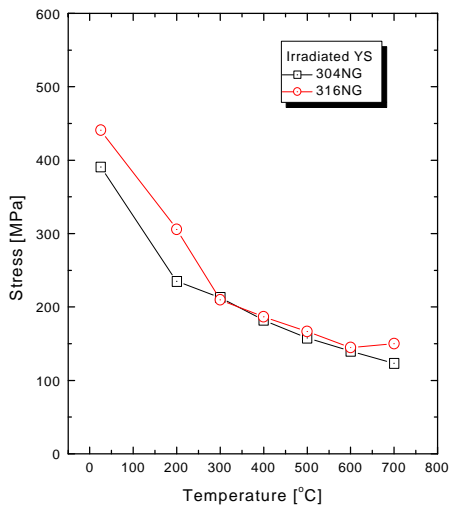


Fig. 8 Yield stress of irradiated 304NG and 316NG stainless steels

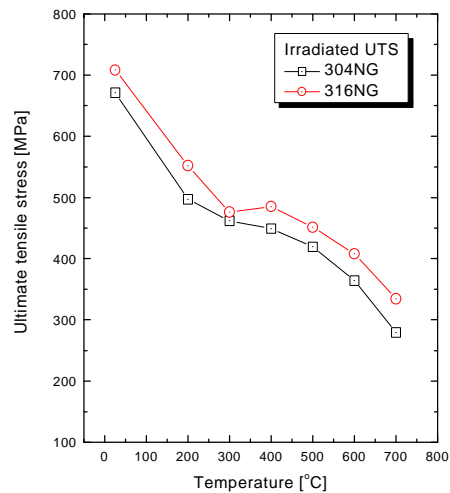


Fig. 9 Ultimate tensile stress of irradiated 304NG and 316NG stainless steels

Fig. 8 ~ 10은 두 강에 대하여 조사후의 항복강도, 최대인장강도, 파단 연신율을 비교하여 나타낸 것이다. 항복 및 인장 강도 치는 316NG가 304NG 보다 전 온도구간에서 높은 값을 보이고 있으며 연신율도 상온을 제외하면 높은 결과치를 보인다. 따라서 본 연구의 조사량인 약 $9.0 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ 조사량에서는 비 조사재의 경향과 같음을 알 수 있다. 그리고 316NG강은 304NG강에 비하여 고온강도가 우수하고 연신율도 좋은 재료임을 알 수 있다.

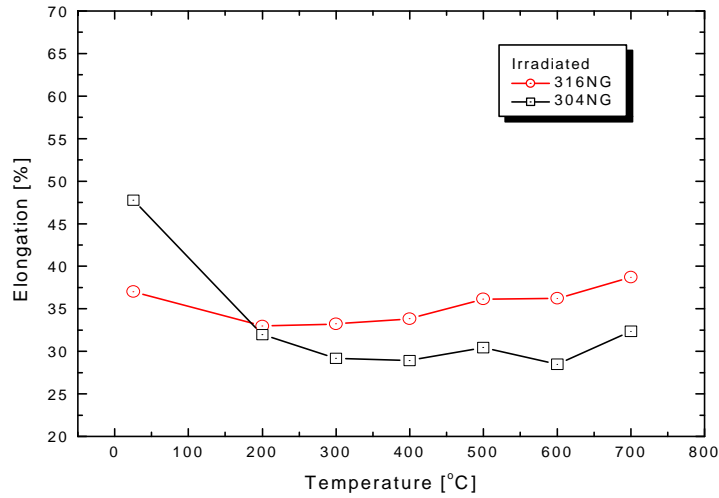


Fig.10 Elongation of irradiated 304NG and 316NG stainless steels

3.3. 조사재의 가공경화거동

조사시편의 조사경화에 의한 가공경화 거동을 조사하는 것은 조사재의 재료거동을 이해하는데 중요하다. 원자력 구조재료로 유망한 316NG강의 조사재의 가공경화 지수, n 을 각 온도별로 구하기 위해 인장시험에서 얻은 공칭 응력-변형률 곡선을 진응력-진변형률 곡선으로 바꾼 후 $\log\sigma$ - $\log\epsilon$ 그래프로 나타내고, Hollomon 의 식⁹⁾

$$\sigma = K\epsilon^n \quad (2)$$

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

Fig. 11은 316NG강의 R.T, 300°C, 500°C, 700°C 온도에서 항복응력부터 최대응력 지점까지를 진응력-진변형률 곡선으로 바꾼 후 $\log\sigma$ - $\log\epsilon$ 로 나타낸 소성 유동곡선이다. 조사재는 비조사재에 비해 유동응력(flow stress)의 상승 즉 경화되어 강도가 증가함을 볼 수 있다. 항복응력 및 유동응력의 증가 $\Delta\sigma$ 는 식(3)으로 설명될 수 있다.

$$\Delta\sigma = \frac{a\mu b}{l} \quad (3)$$

여기서 a 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 증가되어 조사경화가 일어난다.

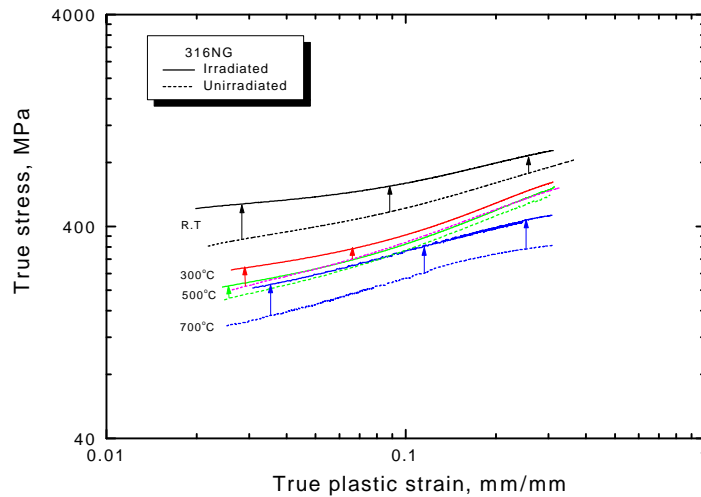


Fig. 11 True stress-strain curves of un- and irradiated 316NG stainless steel

Fig. 12는 조사된 316NG강의 가공경화지수를 구하기 위하여 온도별 소성 유동곡선을 $\log \sigma - \log \epsilon$ 로 나타낸 것이다. 소성영역의 유동곡선은 온도 의존성을 잘 보이고 있으며 Hollomon 의 식(2)으로 가공경화지수 n 을 구하였다. 본 그래프를 이용하여 n 값의 결정하는 있어서 소성 천이구역은 배제하고 완전한 소성조건에 놓인 지점으로부터 네킹 (necking)이 일어날 때까지의 직선부분을 택하여 가공경화 지수를 구하였다.

Fig. 13은 위에서 기술한 방법으로 가공경화지수 n 을 조사재와 비조사재에 대하여 구한 비교 결과이다. 조사재의 경우 그림에서처럼 온도별로 약간의 차이가 있지만 0.32 ~ 0.55의 범위 값을 가지고 있으며, 비 조사재는 0.38 ~ 0.54 범위로 조사재와 비슷한 결과를 보인다. 차이점으로는 상온에서의 지수 n 값이 조사재에서 현저히 낮아짐을 알 수 있고, 그 외 다른 온도에서는 거의 같은 값을 보이고 있다. 가공경화지수 값이 높다는 것은 응력-변형률의 기울기 데이터가 클수록 재료가 가공됨에 따라서 강도 및 경도가 커진다는 것을 의미하는데, 본 연구의 조사량에서는 비조사재와 n 값이 거의 같으므로 316NG강은 소성영역의 변형 거동이 변화하지 않음을 확인할 수 있다.

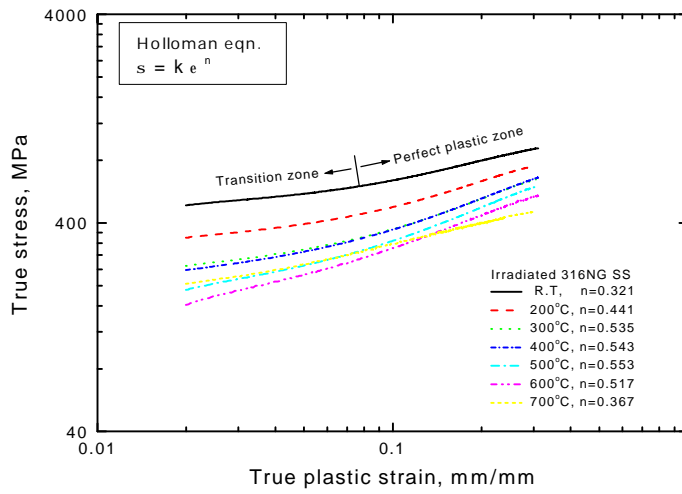


Fig.12 True stress-strain curves of irradiated 316NG stainless steel

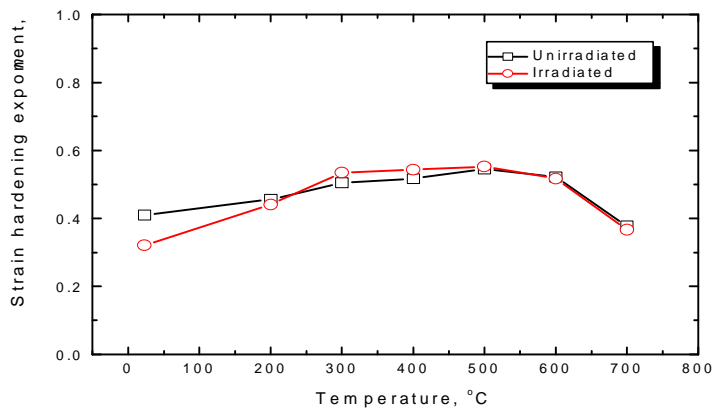


Fig. 13 Strain hardening exponent of un- and irradiated 316NG stainless steel

4. 결론

320°C 온도에서 8.8×10^{19} n/cm² 조사량으로 중성자 조사된 304NG 및 316NG 스테인리스강의 고온 인장강도 특성을 조사하였다. 시험결과, 조사전후의 온도별 고온 인장강도는

조사된 시편에서 조사경화에 기인하여 높은 강도치를 보였으며, 연신율은 반대로 낮았다. 특히 항복 강도치가 조사시편에서 크게 높아짐을 알 수가 있었으며, 온도가 500°C 이상이 되면 비조사재와 거의 같은 값을 가짐을 알 수 있었다. 500°C 이후에서의 이러한 결과는 열 활성화에 따른 조사결함의 회복에 기인하는 것으로 판단되었다. 조사후 두 강의 인장강도치를 비교한 결과 316NG강이 304NG강에 비해 높은 인장강도치를 보였으며 연신율도 우수하였다. 그러나 316NG강의 상온 연신율은 조사된 시편에서 큰 저하를 보였다. 316NG 강의 조사후 온도별 가공경화지수는 0.32 ~ 0.55의 범위로 비조사재의 0.38 ~ 0.54 범위와 거의 차이가 없었다. 이러한 결과로 보아 본 연구의 조사량에서는 소성영역에서의 재료의 변형거동이 변화되지 않는 것으로 판단되었다.

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, 김우곤 외, 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)