

인코넬600 합금의 응력부식균열 탐지

성계용*, 이승혁*, 김인섭**, 윤용구**

* 한국원자력안전기술원 검사부

** 한국과학기술원 원자력공학과

요 약

인코넬600 합금을 열처리상태 및 변형속도등이 서로 다른 응력부식균열(SCC) 발생 조건하에서 정변형속도 시험법으로 인장시켜 그때 발생하는 AE신호와 부식전류를 측정하여 균열거동과 비교하으로서 SCC 발생 및 진전을 AE로서 적절히 탐지할 수 있는가를 연구하였다. 그 결과 SCC, 연성파괴 및 기계적인 변형에서 발생하는 AE는 amplitude 준위에 의해 식별가능하며, 이것은 AE amplitude 준위가 AE발생원을 식별할 수 있는 중요한 변수가 될 수있음을 의미한다. 또한 AE 발생시점과 전기 화학적 전류변동이 잘 일치하는 것으로 나타나 임계응력부식 균열 진전이 AE에 의해 적절히 탐지될 수 있음을 알 수 있다.

1. 서 론

인코넬 600은 니켈기 합금으로 내부식성, 고강도, 고열전도도의 특성이 있어 원자력발전소의 증기발생기 전열관, 제어봉 동작계통의 노즐, 일차계통의 관통슬리브 등에 많이 사용된다. 그러나 인코넬 600은 특정 운전 조건에서 임계근방에 크롬고갈 현상이 나타나 임계응력 부식균열이 많이 나타나고 최근 원전구조물에서도 이에 따른 손상이 많이 보고 되고 있다[1,2].

음향방출(acoustic emission : AE)은 균열진전과 같은 고체내부의 국부적 응력 변화에 의해 순간적으로 방출, 전파되는 탄성 응력과 혹은 이러한 현상을 일컫는 것으로서, AE측정을 통하여 구조물의 결함을 가동중에 조기에 발견할 수 있다는 이점이 있다. AE측정변수, 즉 AE event, AE amplitude, AE count 그리고 AE energy 등의 거동은 응력부식균열의 진전거동을 탐지하는데 매우 유용한 시험 방법으로 제시되고있다[3~8]. 그러나 AE는 환경 영향에 의한 잡음신호와 식별이 어려워 AE신호가 SCC에 의한 것인지의 신뢰성에 많은 의문이 제기되고있다.

본 연구에서는 인코넬 600 합금을 열처리 및 변형속도등의 서로 다른 SCC 발생 조건하에서 정변형속도 시험법(constant extension rate test : CERT)으로 인장시켜 그때 발생하는 AE신호와 부식전류와의 관계를 분석하여 응력부식균열 탐지에 있어서 AE의 유용성을 평가하고자 하였다.

2. 실험

열처리 및 인장율이 인코넬600 합금의 응력부식균열에 미치는 영향은 Was 등[9]에 의하여 연구되었다. 본 연구에서는 이를 이용하여, 시편의 열처리를 650°C에서 6시간, 700°C에서 1시간동안 각각 다르게 열처리하

로서 입계부근의 예민화도(degree of sensitization)를 다르게 하였다. 변형속도도 1.25×10^{-4} 및 2.5×10^{-5} (mm/s)의 2가지 조건을 이용함으로써 SCC민감도를 달리하였다. 이렇게 다른 열처리조건 및 변형속도를 적용한 것은 시편의 예민화도 및 부식침투정도에 따라 SCC 발생 및 진전 형태가 달라지기 때문에, 그때 발생하는 AE신호의 특성을 비교 하기 위해서이다. 각 실험에 대한 실험조건은 Table1에 나타나있다. 부식장치는 Fig.1과 같이 인장 시편을 부식셀에 실리콘 실란트로 고정, 밀봉시켜 부식용액이 새는 것을 방지하였다. 부식용액은 0.01M의 sodium tetrathionate ($\text{Na}_2\text{S}_4\text{O}_6$) 이고 전기화학적 전위차는 정전위 200mV를 사용하였다.

실험에 사용된 시편은 판형 인장시험편으로 시편의 길이는 220mm, 두께 1.6mm이고, 인장부위의 규격은 길이 20mm, 폭 2.5mm이다. AE센서는 시편중심부로 부터 50mm 떨어진곳에 양쪽으로 부착하였다. AE센서는 300kHz에서 공진 주파수를 갖는 압전형이고 AE신호 감시, 취득 및 분석은 PAC(Physical Acoustic Co.)의 LOCAN320 장비를 이용하였다. 실험에 이용한 전자증폭기는 이득(gain)이 60dB이고 200~400 kHz의 대역통과 필터링 기능도 겸하고 있다. 주변잡음의 진폭이 38~39dB인 점을 고려하여 AE신호 탐지 문턱값을 40dB(탐촉자에서 0.1 mV)로 설정하였고 이외에 count 5개이상, rise time $5\mu\text{s}$ 이상, duration time $20\mu\text{s}$ 이상의 AE신호만 탐지되도록 잡음필터를 설정하였다. 인장시험기의 고정부에서 발생하는 불필요한 신호를 식별하기 위하여 양 탐촉자사이의 신호도달시간차가 $10\mu\text{s}$ 이하인 것만 유효한 AE신호로 간주하였다. 또한 카이저 효과[1]의 원리를 이용하여 SCC시험전에 시편을 항복응력의 1.1배 (~0.7 kN) 까지 미리 인장시켜 탄성변형에서 발생하는 AE신호를 제거함으로써 균열에 의한 신호만 발생하도록 하였다.

3. 실험 결과 및 고찰

3.1 SCC시 AE 거동

본 연구에서 수행된 실험조건 및 결과는 Table1에 나타나있다. 실험1은 열처리된 시편을 공기 중에 인장하여 연성파괴를 유발한 실험으로 실험중 발생한 AE신호의 발생수, 진폭값 및 인장력등이 Fig.2에 나타나 있다. Fig.2에서 보는바와 같이 항복응력 근방에서 상당수의 AE가 발생되었고 이것은 전형적으로 인장시험중에 나타나는 AE발생 유형이다. 인장력이 감소하기 전까지 발생한 AE신호는 진폭값이 48dB이하에 주로 분포되어 있고 대부분 소성변형에 의한 것이며, 그 후에는 연성파괴 및 소성변형이 혼합된 양상의 진폭값을 보이고 있다. 파단면 IGSCC분율은 0%를 보이고 있으며 전형적인 연성파괴 단면을 보여주고 있다.

실험2는 650°C에서 6시간 열처리한 시편을 부식용액내에서 2.5×10^{-5} (mm/s) 변형속도로 인장하였다. 실험중 발생한 AE변수값이 Fig.3(a)에 나타나 있다. 실험2에서의 AE신호는 탄성 혹은 소성변형이 아닌 대부분 IGSCC진전시 발생한 것으로 추정되며 그 이유는 최대인장력이 1.1배의 항복응력 이하이고 최대 인장력의 90%가 될 때까지 AE신호가 전혀 발생하지 않았다는 점이다. 실제로 응력부식 시험전 1.1배의 항복응력까지 사전 응력시 탄성변형 부위에서는 약 300~700개 정도의 AE가 발생되고 있으며, 부식 실험중에는 이러한 신호들이 카이저 효과에 의해 모두 제거되었음이 확인되었다. 아울러 공기중에서 수행한 실험1의 결과로 확인한 바에 의하면 탄소성 변형시에 발생하는 AE 최대진폭값은 약 48dB 이하에 지배적으로 분포하는데 비하여, 실험2에서는 인장력이 감소하기 전의 약간의 AE신호를 제외하고는 대부분 48dB이상의 높은 진폭값에서 지배적으로 분포하고 있으므로 이것들은 SCC 균열진전에서 발생한 것으로 추정할 수있다. 또한 Fig.3(b)에서 보는 바와 같이 부식전류가 변형을 0.2% 근방에서 증가하는 것으로 보아 이미 이 부근에서 IGSCC가 발생됨을 확인할 수 있으며, 실제 파단부분을 주사전자현미경(SEM)으로 촬영한 결과가 100% IGSCC를 나타내고 있다.

실험3은 실험2와는 달리 700°C에서 1시간 열처리한 시편을 사용하였고 이외의 조건은 실험 2와 같다. 실험3 시편의 열처리 조건은 실험2보다 낮은 IGSCC 민감도를 유발하는 것으로 보고되고 있으며[9] 실험결과도 Table1 및 Fig.3과 같이 연신을, 최대인장력이 실험2보다 매우 높고 파단면의 IGSCC분율이 실험2의 결과에 비

하여 낮은 것으로 보아 이러한 사실을 뒷받침한다고 할 수 있다. AE 발생수는 실험2에 비하여 4배이상 증가하였고 이것은 IGSCC뿐이 아니고 인장부위의 기계적 변형 및 연성파괴와 같은 다른 AE발생원이 있음을 나타내는 것이다. Fig.3(b)에서와 같이 AE발생수 및 진폭값은 인장력이 떨어지는 시점부터 급격히 증가하고 있으며 최대 인장력 이전의 진폭값이 대개 48dB이하에 주로 분포된 점을 고려할 때 최대 인장력 이전의 AE발생원은 주로 소성변형과 같은 기계적인 변형이고, 그 이후에는 IGSCC와 연성파괴에 의한 것으로 판단된다. 이것은 파단부분의 SEM 결과가 약 70% IGSCC를 나타낸다는 사실과, Fig.4(b)에서 변형률 10%이전에는 부식전류의 변화가 거의 없고 10%이후에 전류가 증가한다는 사실로서 확인 할 수있다. 또한 소성변형에 의한 AE 진폭값은 대략 44~48dB에 지배적으로 분포되어 있고, 상대적으로 IGSCC와 연성파괴에 의한 것은 이 보다 높은 준위에 분포됨을 본 실험에서 알 수 있다.

실험4는 600℃에서 30시간 열처리한 시편을 부식용액내에서 실험2 나 3 보다 5배 증가한 변형속도 1.25×10^{-4} (mm/s)를 적용하여 실험하였다. 실험결과, Table1에서와 같이 연신율, 최대인장력이 실험2보다 비교적 높고 파단면의 IGSCC분율 및 민감도가 실험2의 결과에 비하여 낮지만 실험3의 결과보다는 더 IGSCC에 민감함을 알 수 있다. AE발생수도 실험2와 3의 중간값정도 발생하였고, AE발생원은 실험3과 같이 IGSCC 뿐만이 아니고 인장부위의 기계적 변형 및 연성파괴등이 포함된 것으로 판단된다. 그러나 실험3의 결과와 다른 점은 실험3의 경우 최대 인장력이전의 AE발생원은 주로 소성변형과 같은 기계적인 변형에 기인한 것이나 실험4의 경우에는 기계적인 변형에 의한 것뿐만 아니라 IGSCC에 의한 AE발생도 포함되었다는 점이다. 이는 Fig.4(c)에서 알 수 있듯이 변형률 1.2% 및 1.9%근방에서 약간의 부식전류의 변동이 있었으며 3.5%부근에서 전류가 증가하는 것으로 보아 이러한 사실을 입증한다고 할 수 있다. 따라서 최대 인장력 이전에 발생한 48dB이상의 진폭값을 가진 AE신호는 IGSCC에 의해 발생된 것으로 설명될 수 있다. 이러한 실험 3과 4의 차이는 실험4의 시편이 실험3의 시편보다 열처리 영향으로 더 IGSCC에 민감하기 때문인 것으로 판단된다. 파단면 IGSCC분율은 약 80%로서 70%인 실험3의 결과보다 IGSCC에 약간 더 민감한 것으로 나타나고 있다. 아울러 최대인장력 이후에는 IGSCC와 연성파괴가 AE의 주 발생원으로 추정할 수 있다.

3.2 AE발생과 부식전류와의 상관관계

니켈기합금에서 IGSCC발생 및 전전기구는 부동태피막(passive film)의 형성 및 파괴와 깊은 관련이 있는 것으로 알려져왔다[7,11]. 슬립(slip) 등에 의해 시편표면에 형성된 부동태피막이 깨지게되면 금속용해가 국부적으로 일어나고 예민화된 입계에서는 IGSCC로 발전하게 된다. IGSCC에 의해 새 금속표면이 노출되면 다시 부동태화 되려는 성질 때문에 양극용해(anodic dissolution) 과정에서 전기화학적 전류가 발생하게 된다. Stewart 등[8]은 예민화된 304스테인레스 스틸에서 작은 균열의 진전을 감시하기 위하여 전류변동이 이용될 수 있음을 제시하였고, Jones 등[6]은 Stewart의 결과와 AE시험 결과를 간접적으로 비교하여 균열진전 감시에 있어서 두 시험 방법간의 양호한 대응성을 제시하였다.

본 연구에서는 IGSCC실험중 전류신호를 측정하여 전류변동과 AE거동과의 관계를 직접적으로 비교하였다. Fig.4(a) 및 (c)는 실험2 및 4의 변형률에 대한 부식전류를 나타낸 것으로 부식전류가 증가되는 것으로부터 IGSCC의 발생여부 및 발생시점을 알 수있으며 Fig.3(a) 및(c)의 AE와 비교할 때 부식전류와 IGSCC발생이 밀접한 관계가 있음을 알 수 있다. Fig.4(a)에서는 변형률 1.4% 부근에서 전류신호 취득이 중단되어 그 이후의 전류값은 확인할 수 없다. Fig.4(b)는 실험3의 전류거동을 보여주는 것으로서 변형률 10%까지는 전류값의 변화가 없는 것으로 보아 IGSCC발생이 없음을 알 수 있다. Fig.5는 실험3의 마지막 부분을 확대하여 AE 발생시점, 진폭, 부식전류의 거동 및 인장력 등을 함께 도시하였다. Fig.5에 도시된 영역은 IGSCC, 소성변형, 연성파괴등에서 발생한 AE 신호가 혼재된 상태로서, 부식전류가 부동태 피막에 의하여 흐르지 않고 안정된 상태로 유지되다가 균열 등에 의하여 새 금속표면이 노출되면서 부식전류가 증가하는 현상을 관찰할 수 있다. 이 부분에서

전류가 증가하고 감소하는 변화가 연속적으로 나타나는데 전류가 감소하다가 증가하는 시점이 진폭 48dB이상의 값을 가진 AE신호 발생시점과 거의 일치함을 알 수 있다. 즉 48dB이상의 AE신호는 통계적으로 IGSCC에서 발생되기 때문에 IGSCC에 의한 AE발생 시점과 전류증가 시점과의 상관관계가 높음을 알 수 있다.

따라서 측정된 AE신호는 IGSCC진전시 발생된 것임이 입증되었고, AE가 응력부식균열 진전 감시에 적절한 방법임이 다시 한번 확인되었다. 또한 전류 과도변동(transient)을 감시하는 것 보다 AE방법이 균열진전 시점을 적시에 조속히 판단할 수 있도록 해줄 수 있는 유용한 방법이라는 것을 이 사실로 알 수 있다. 아울러 인코넬600의 IGSCC기구는 부동태막의 생성 및 파열과 깊은 관련이 있음을 확인할 수 있었다.

3-3. 초기 IGSCC의 탐지

실험5는 AE로 탐지 가능한 최소균열크기를 측정하므로써 AE의 균열 탐지능을 알아보려 하는 실험이다. 인장초기의 탄성변형에 의한 불필요한 AE신호를 제거하기 위해 0.7kN까지 사전 인장시켰다. 실험 방법은 몇 개의 AE신호가 처음 탐지된후 시편을 부식셀에서 제거하여 광학현미경 관찰로 균열의 크기를 측정하였다. Fig.6은 초기 AE신호 탐지시점 및 부식전류거동을 나타내는 것으로 처음 4개의 AE신호는 AE 신호 허용기준(양 센서사이의 신호 도달시간차가 10 μ s이하)을 초과하는 신호들이었기 때문에 이후 유효한 2개의 신호가 추가로 탐지된 후 시편을 조사하였다. 그 결과 시편 표면에 길이 200 μ m이하의 균열이 3개, 200~400 μ m 사이의 균열이 2개가 발견되었다. 균열이 발견된 시점의 인장력과 연신율은 각각 0.60 kN 및 0.34%로서 실험2의 초기 신호와 비슷한 시점에 발견되었음을 알 수 있다. 또한 최초의 AE가 발생될 시점에 이미 길이 400 μ m이하의 미소 균열들이 다수 형성되었음이 확인되었고 이것은 Fig.6과 같이 AE가 탐지되기 이전에 부식전류가 증가하는 사실로도 알 수 있다.

이상의 실험 결과로 알 수 있는 것은 AE로 탐지 가능한 최소균열크기는 길이 200~400 μ m 정도의 균열인 것으로 판단되며 이러한 크기의 미소 균열들이 주균열로 성장하기 전에 AE로서 탐지가 가능함을 보여주고 있다. Jones 등[8]은 직경 3mm, 길이 1.25cm의 304 스테인리스 원통형 시편으로 유사한 시험을 수행한 결과, 길이 200~300 μ m, 깊이 50~100 μ m의 균열을 AE로서 측정할 수 있음을 제시한 바 있다. 인코넬600 합금에 대한 본 연구결과는 Jones의 결과와 일치하는 것을 알 수 있었다.

4. 결 론

열처리상태 및 변형속도 등 서로 다른 실험조건하에서 인코넬 600 합금의 입계응력부식균열(IGSCC)중 발생하는 AE신호의 특성을 연구한 결과 입계응력부식균열 진전시 AE 발생시점과 전기 화학적전류 변동이 잘 일치하는 것으로 나타났고, 이것은 입계응력부식 균열이 AE에 의하여 적절히 탐지될수 있음을 나타내고 있다. 또한, AE로 탐지 가능한 IGSCC 최소 균열크기는 길이 200~400 μ m 정도의 균열인 것으로 나타났으며, 최초의 AE가 발생될 시점에 이미 길이 400 μ m이하의 미소균열들이 다수 형성되었음이 관찰되었다.

결론적으로 AE는 응력부식균열의 진전을 조기 탐지할수 있는 효과적인 방법이고, 응력부식균열 발생 및 진전기구를 연구하는 데 있어서도 유용한 수단으로 평가된다

참고 문헌

1. W. W. Park, et al., "Evaluation of Integrity of Penetration in Reactor and Primary Coolant System", KINS/AR-183, Korea Institute of Nuclear Safety, (1993)
2. Shah, et al., "Assessment of Pressurized Water Reactor Control Rod Drive Mechanism Nozzle Cracking", NUREG/CR-6245, U. S. Nuclear Regulatory Commission, (1994)

3. N. J. Magnani, Experimental Mechanics, (1973), pp. 526-530
4. S. Yuyama, ASTM STP 908 (1986), pp. 43-74
5. A. Pollock, ASTM STP 908 (1986), pp. 30-41
6. S. Yuyama, et al., J. Materials for Energy Systems, Vol. 5, No 4 (1984), pp. 212-221
7. R. H. Jones, et al., Meta, Trans. A, Vol. 20A (1989), pp. 637-648
8. R. H. Jones, et al., Corrosion, Vol. 47, No. 2 (1991), pp. 105-115
9. G. S. Was and V. B. Rajan, Meta, Trans. A, Vol. 18A (1987), pp. 1313-1323
10. Nondestructive Handbook Vol. 5, ASNT, (1987)
11. J. H. Lee, et al., "A Study of Safety Evaluation Techniques of Nuclear Power Plant Materials", KINS/GR-063, Ministry of Science and Technology, (1993)
12. J. Stewart, et al., CORROSION/88, Paper No.285, Houston, TX: NACE, (1988)

Table1 Summary of SCC test conditions and results

No. of test	Test conditions		Elongation (%)	Max. force (kN)	1) S_{IGSCC}	% of IGSCC	No. of AE Events	No. of Cracks
	Extension rate (mm/s)	Heat treatment (°C : hrs)						
1	1.25×10^{-4}	600 : 30	28.8	2.10	0.0	0	3010	Failure
2	2.5×10^{-5}	650 : 6	1.71	0.76	0.94	100	307	Failure
3	2.5×10^{-5}	700 : 1	13.4	1.54	0.53	70	1301	Failure
4	1.25×10^{-4}	600 : 30	9.21	1.07	0.68	80	604	Failure
5	2.5×10^{-5}	600 : 30	0.34	-	-	-	2	5

1) The susceptibility of IGSCC (SIGSCC) is based on the maximum elongation of the test 6

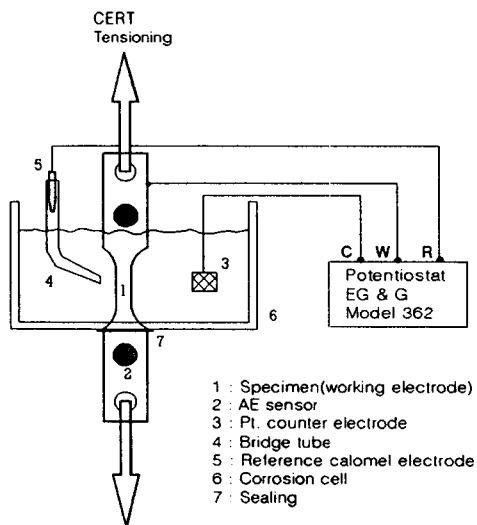


Fig.1 Schematic diagram of the corrosion cell arrangement showing specimen, electrodes and AE sensor

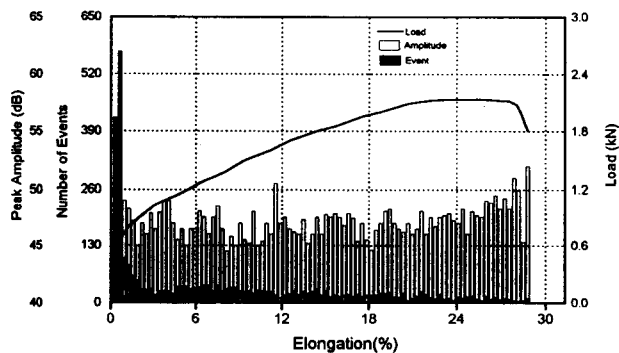
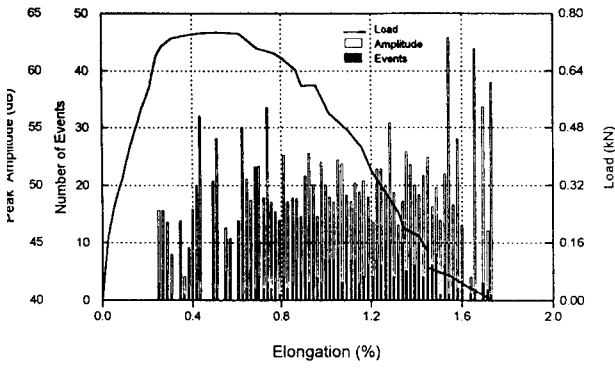
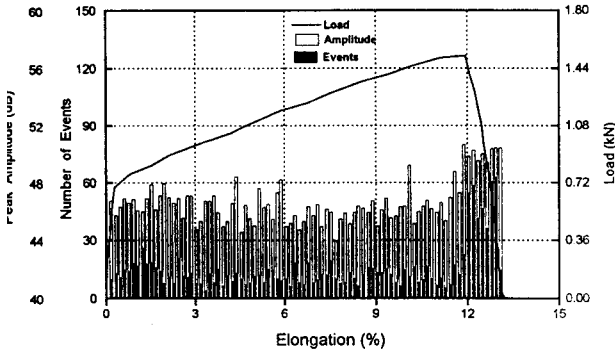


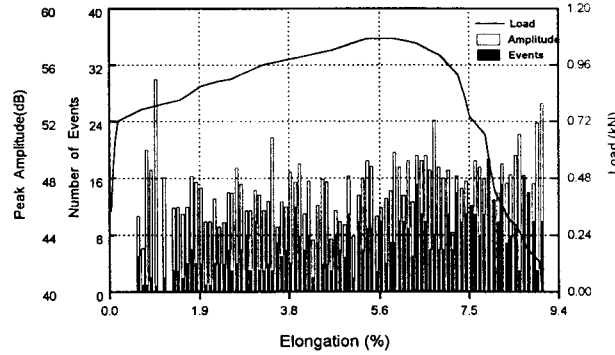
Fig.2 Number of AE event, amplitude, and load vs. elongation for the test 1.



(a)

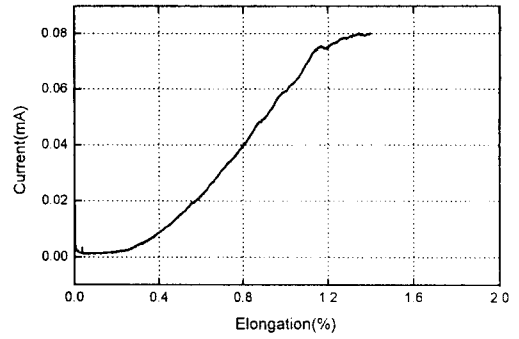


(b)

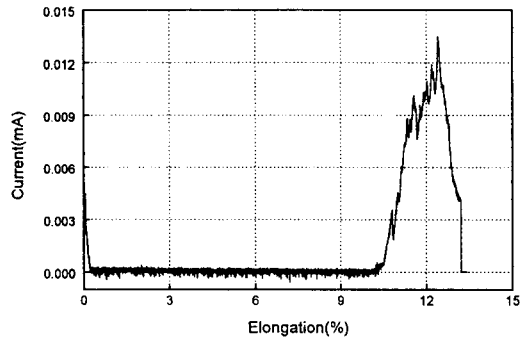


(c)

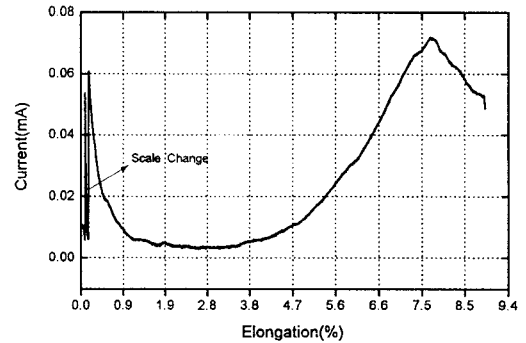
Fig.3 Number of event, amplitude, and load vs. elongation for the test 2, 3 and 4



(a)



(b)



(c)

Fig.4 Electrochemical current behavior during the test 2, 3 and 4

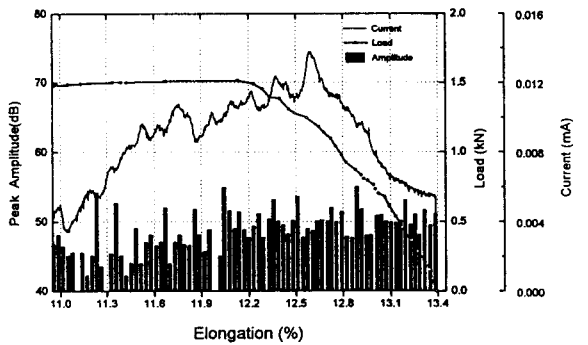


Fig.5 Comparison of electrochemical current with AE amplitude at the latter part of the test 3

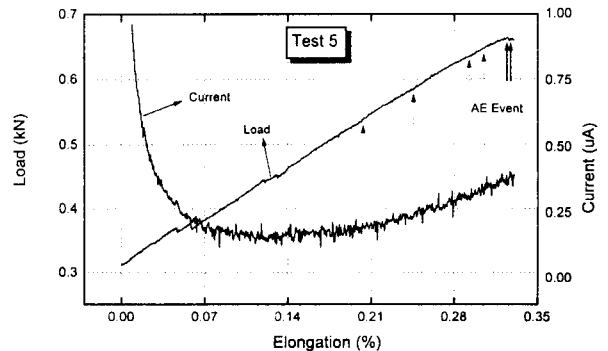


Fig.6 Initial AE events and electrochemical current for the test 5