

# LNG 저장탱크용 구조재료의 극저온 파괴인성

이해무, 신주영\*, 신형섭\*

한국표준과학연구원 방재기술연구센터

\*안동대학교 기계공학과

## Fracture Toughness of Structural Materials for LNG Storage Tank at Cryogenic Temperatures

H. M. Lee\*, J. Y. Shin\* and H. S. Shin\*\*

Failure Prevention Research Center, KRISS

\*Andong National University

### 1. 서론

1800년대 말 산소(1877년, 90 K), 질소(1883, 77K), 수소(1891년, 20 K)가 차례로 액화된데 이어 1908년에는 마침내 헬륨 (4K)의 액화까지 가능해져 극저온에서의 기초 연구가 수행될 수 있는 기틀이 마련되었다. 그 후 극저온에서의 기초 및 응용 연구를 통하여 많은 결과가 도출되어 오늘날에는 극저온 기술[1]이 저온공학이라는 이름으로 공학의 한 분야를 차지하게 되었고 최근에는 첨단 기술의 한 분야로 크게 각광을 받고 있다.

그러나 극저온 기술을 공업적으로 이용하려면 극저온에서 사용할 수 있는 재료의 개발이 선행되거나 병행되어야 하지만 극저온용 재료의 경우 사용 조건이 극저온이라는 극한 조건 때문에 이들 재료의 개발에는 많은 제약이 뒤따르며 그 대표적인 예로 LNG 저장 설비 관련 재료를 들 수 있다. 일반적으로 극저온용 구조재료가 갖추어야 할 요건으로서는, 외부로부터의 열의 침입을 가능한 한 방지하여야 하므로 비열과 열전도도가 낮아야 하며 열용량을 줄이기 위해서는 재료의 무게가 작으면서도, 사용수명 동안 걸리는 하중을 견디기 위하여 강도와 인성이 높아야 한다. 또한 반복적으로 걸리는 응력이 매우 높고, 경우에 따라서는 강력한 전자기의 영향도 받게 되므로 극저온 재료는 일반 구조용 재료보다 강도, 인성, 내피로성 등의 역학적 성질이 우수하여야 하며 전자기에 의한 물성의 변화도 작아야 한다. 그 밖에도 용접성, 가공성, 내부식성이 좋아야 하며 경제성 또한 무시할 수 없다.

이와 같은 극저온 재료 관련 연구개발을 수행하기 위해서는 극저온에서 재료의 역학적 특성을 시험, 평가할 수 있는 극저온 시험 장치 및 시험 기술이 확보되어 있어야 된다. 그러나 국내에서는 극저온에서의 파괴인성시험과 관련된 역학적 특성 평가 관련 연구가 거의 전무하며 그 기반이 매우 취약하다.

Table 1. Chemical composition of the alloys(wt. %)

Material	C	Si	Mn	P	S	Cu	Ni	Cr	Mg
<i>Austenitic stainless steel</i>									
SUS 304L	0.014	0.42	1.19	0.031	0.002	-	9.15	18.22	-
<i>Aluminum alloy</i>									
A5083	-	0.16	0.68	-	-	0.04	-	0.12	4.5
<i>Nickel steel</i>									
9% Ni steel	0.06	0.23	0.59	0.004	0.001	-	9.04	-	-

## 2. 실험방법

시험 재료로는 오스테나이트계 스테인리스강(SUS 304L), Al 합금(A5083) 및 9% Ni강 등 3 종류를 사용하였는데 이들의 화학적 조성을 Table 1에 나타내었다. 이들 재료에 대한 극저온 충격 특성 및 파면 해석에 대한 연구 결과는 이미 보고[2]된 바 있다.

시험편 제작 및 시험은, 인장시험의 경우에는 ASTM E 1450-92를, 파괴인성시험의 경우에는 ASTM E 813-89를 준용하였다. 인장시험편은 L 방향 즉 시험편의 하중 축이 압연방향과 일치하는, 직경 6.35 mm의 봉상 시편으로 가공하였으며, J<sub>IC</sub> 시험편은 두께를 25.4 mm로 하여 LT 방향 즉 하중은 압연방향으로 가하여지면서 균열진전 방향은 압연방향 및 두께방향에 수직하도록 가공하였다. J<sub>IC</sub> 시험편의 피로균열을 생성시키는 온도는 J<sub>IC</sub> 시험 결과에 영향을 미치지 않는 것으로 가정하여 상온에서 피로균열을 삽입하였다. 균열진전의 만곡화를 방지하기 위하여 피로에 비균열을 삽입한 후 두께의 20%에 해당되는 측면홈(side groove)을 시험편 양표면에 가공한 후 시험하였다. 시험온도는 298 K, 77 K, 4 K이었으며 극저온에서의 시험 절차 및 주의점에 대해서는 이미 자세히 보고[3]된 바 있다.

## 3. 실험결과 및 고찰

### 3.1 인장시험결과

Fig. 1은 304L, A5083, 9% Ni강의 온도에 따른 변위제어인장시험 결과를 나타내고 있다.

A5083의 경우 온도 감소에 따른 인장강도의 증가가 뚜렷이 나타난 반면에 항복강도의 증가는 미미하게 나타났다. 9% Ni강의 경우에는 온도에 따라 인장강도와 항복강도 모두 뚜렷이 증가하는 경향을 나타내었다.

반면에 304L의 경우 77 K에서의 항복강도는 상온의 경우보다 오히려 약간 감소하였으나 4 K에서는 다시 증가하는 경향을 보였다. 304L의 경우 온도가 감소함에 따라 항복강도(0.2% 유동응력)가 증가하다가 200 K부터 역으로 감소하여 100 K에서 극소가 되었다가 이후 다시 증가하는, 이른바 'anomalous flow strength behavior'를 나타내며 이러한 거동은 변형율이 적을 경우에만 나타난다고 보고[4]되었다. 이에 따르면 1% 유동응력은 200 K까지는 0.2% 유동응력과 동일한 거동을 나타내다가 200 ~ 100 K의 영역에서는 0.2% 유동응력과는 달리 일정한 값을 유지

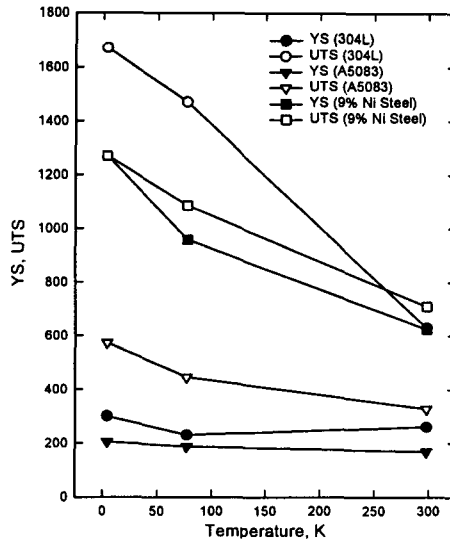


Fig. 1. Temperature dependence of yield and ultimate tensile strengths

(plateau)한 뒤, 온도가 더 감소하면 다시 유동응력이 증가하였다. 또한 1%보다 더 큰 변형량에서 구한 유동응력은 200 ~ 100 K의 영역에서 나타나던 plateau 조차 거의 관찰되지 않았다. 본 실험 결과 소성변형율이 0.2%인 부분에서의 하중-변위 곡선이 상온과 4 K에서는 서로 유사하지만 77 K 경우에는 이들과 판이함을 확인할 수 있었으며, 이로부터 77 K에서의 항복응력의 감소가 anomalous flow strength behavior와 연관이 있을 것으로 예측된다.

304L의 경우 77 K 이하로 온도가 내려감에 따라 인장강도가 항복강도보다 훨씬 크게 증가하였으며 하중-변위 곡선도 상온과는 달리 소성변형시 가공경화에 의해 하중이 급격히 증가하였다. 그렇지만 310S에서는 이러한 경향이 나타나지 않는 것으로 알려져 있다.[3] 이러한 현상은 304L에서는 변형유기마르텐사이트변태에 의하여 가공경화가 일어나지만 310S의 경우에는 오스테나이트 상이 안정하여 변태가 일어나지 않기 때문이다. 결국 오스테나이트 스테인리스강에 있어서 오스테나이트 상의 안정도가 낮으면 저온에서 변형을 가할 때 변형유기마르텐사이트변태가 일어나며 이로 인하여 저온에서의 인장 특성이 크게 변화됨을 알 수 있다. 상온에서의 인장강도에 대한, 77 K 및 4 K에서의 인장강도의 비는 각각 2.34와 2.66으로서 304에 대한 보고치[3]인 2.32 및 2.68과 잘 일치하고 있다.

### 3.2 파괴인성시험결과

Fig. 2 ~ Fig. 8에 304L, A5083 및 9% Ni강에 대한 298 K, 77 K, 4 K의 시험온도에서 얻은  $J-\Delta a_p$  곡선을 나타내었다. 그림에서 “+”는  $J_Q$  계산에 있어서 유효 데이터가 아님을 표시하고 있으며 “◇”만이 유효 데이터이다. “■”는 0.2 mm 읍셋선과 회귀곡선이 만나는 점 즉 이 때의  $J$  값과  $\Delta a_p$  값이 각각  $J_Q$  및  $\Delta a_Q$ 가 되며,  $J_Q$  값이 유효성에 대한 조건을 모두 만족시키면  $J_{IC}$ 가 된다. 시험 결과를 정리하면 Table 2와 같다. 304L과 9% Ni강을 상온에서 시험한 경우에는 균열진전이 거의 없는 상태에서 이미 COD gage의 용량이 초과됨으로써 상온에서의  $J_Q$  값을 측정할 수 없었다. 또한 304L을 77 K에서 시험한 경우에는 1.0 mm 읍셋선과 1.5 mm 배제직선 사이에 최

소한 하나의  $J-\Delta a_p$  데이터가 존재하여야 됴에도 불구하고 이 데이터를 얻기 이전에 COD gage의 용량이 초과됨으로써, 얻은  $J_Q$ 값이 유효조건을 만족시키지 못하였으며, 따라서 이 값을  $J_{IC}$ 로 볼 수는 없었다.

한편 9% Ni강을 77 K에서 시험한 경우 국소적인 파괴가 일어나는, 소위 "pop-in"이 발생됨으로써  $J_{IC}$ 를 구할 수 없었다. 이러한 경우들을 제외한 다른 경우에는 유효한  $J_{IC}$ 를 구할 수 있었다. Table 2에는 시험으로부터 얻은  $J_{IC}$ 값을 식 (1)에 따라  $K_{IC}(J)$ 로 환산하여 나타내었다. 또한 유효조건을 만족시키지 못하는  $J_Q$ 값도 마찬가지로 방법으로 환산하여 참고용으로 함께 나타내었다.

$$K_{IC}(J) = \left[ \frac{J_{IC} \cdot E}{1 - \nu^2} \right]^{1/2} \quad (1)$$

한편 9% Ni강을 77 K에서 시험한 경우 pop-in이 발생되어  $J_{IC}$ 를 구할 수 없었으므로 별도로  $K_{IC}$  시험을 실시하였으나 이 경우에도  $K_{IC}$ 에 대한 유효조건을 만족시키지 못하여  $K_{IC}$ 를 구할 수는 없었다. 구한  $K_Q$ 값은 Table 2에 함께 나타내었다.

Table 2. Results of fracture toughness testing

Mat'l	Temp. (K)	$J_Q$ (kJ/m <sup>2</sup> )	$\Delta a_Q$ (mm)	$K_Q$ or $K_{IC}(J)$ (MPa · m <sup>1/2</sup> )	Remark
SUS 304L	298	No valid data			COD saturated
	77	496	0.484	330	COD saturated Invalid
	4	205	0.304	212	Valid
A5083	298	27.8	0.256	46	Valid
	77	41.7	0.269	57	Valid
	4	55.8	0.272	66	Valid
9% Ni steel	298	No valid data			COD saturated
	77	401	0.396	296	Invalid due to the occurrence of pop-in
		-	-	145	$K_{IC}$ Test, Invalid
	4	30.4	0.212	82	Valid

304L을 77 K에서 시험한 결과(Fig. 2)를 보면 역균열진전(negative crack growth)이 뚜렷이 관찰됨을 알 수 있다. 이와 같은 현상은  $J_{IC}$  시험에서 많이 관찰되는 현상으로서, 그 원인으로는 마찰[5], 하중전달치구의 정렬 불량[6], 전자장치의 balancing 및 영점화(zeroing) 관련[7], 균열선단에서의 둔화거동 효과[8] 등이 거론되고 있으나 아직도 확실히 밝혀지지는 않았으며, 역균열진전이 많이 발생함에도 불구하고 ASTM E 813에서는 이의 처리 방법에 대한 언급이 없다.

따라서 Rosenthal 등[7]은 역균열진전 발생시의 데이터 처리법을 제안하였다. 그들에 따르면 먼저 음의 값을 갖는 데이터를 포함한 모든  $\Delta a_p$ 에 대한 회귀곡선을 식 (2)에 따라 구한다.

$$\Delta a_p = K_1 \cdot J^{K_2} + K_3 \quad (2)$$

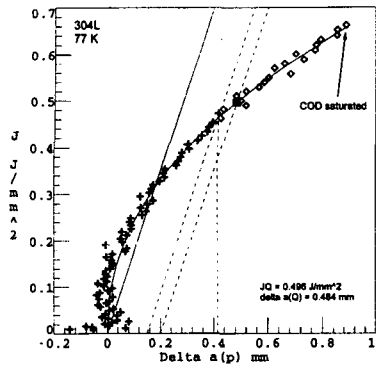


Fig. 2.  $J-\Delta a_p$  curve for 304L at 77 K

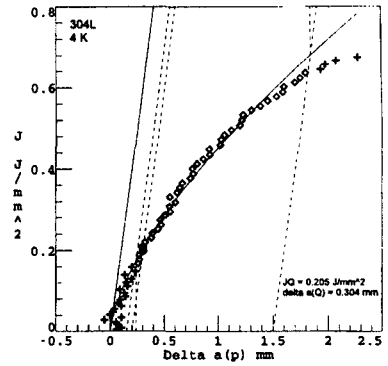


Fig. 3.  $J-\Delta a_p$  curve for 304L at 4 K

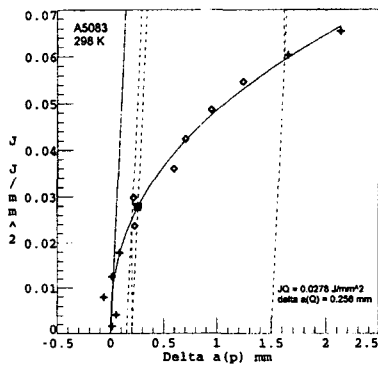


Fig. 4.  $J-\Delta a_p$  curve for A5083 at 298 K

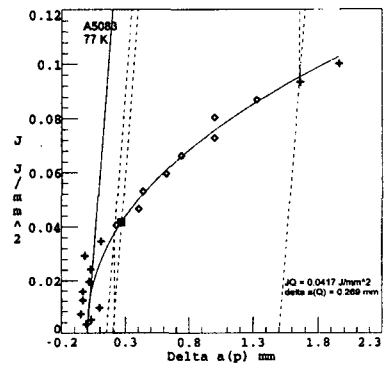


Fig. 5.  $J-\Delta a_p$  curve for A5083 at 77 K

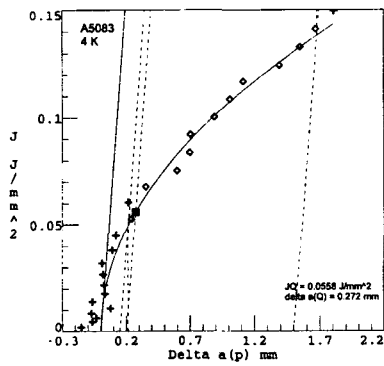


Fig. 6.  $J-\Delta a_p$  curve for A5083 at 4 K

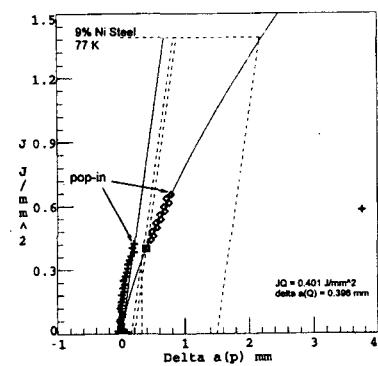


Fig. 7.  $J-\Delta a_p$  curve for 9% Ni steel at 77 K

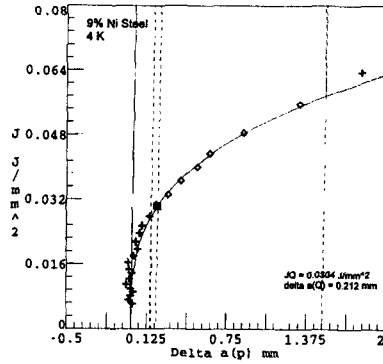


Fig. 8.  $J-\Delta a_p$  curve for 9% Ni steel at 4 K

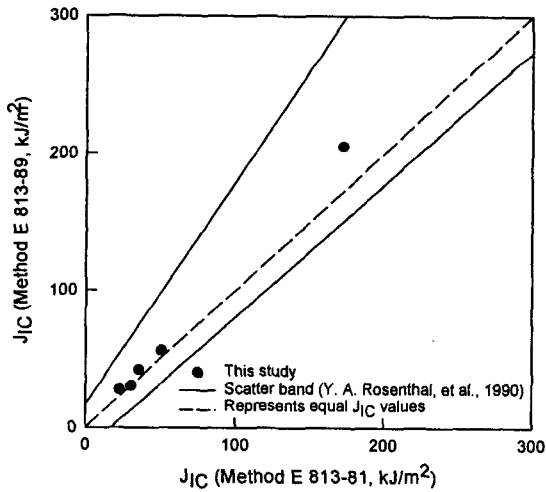


Fig. 9. Comparison of  $J_{IC}$  obtained using ASTM E 813-87 and its predecessor E 813-81

여기에서  $K_1$ ,  $K_2$ ,  $K_3$ 는 상수이다. 다음으로  $K_3$  만큼 모든 데이터를 이동( $\Delta a_p' = \Delta a_p - K_3$ ) 시켜 새로운 영점에 대한  $J-\Delta a_p'$  곡선을 그린 후, 새로이 유효 데이터로 결정된 데이터만을 갖고 통상적인  $J_Q$  결정 방법에 따라 새로운  $J_Q$ 를 결정한다.

Fig. 2 ~ Fig. 8은 필요한 경우 이 방법을 사용하여 역균열진전을 보정하여 재도시 한 것이다.

한편 ASTM E 813은 1981년도에 제정되어 1987년에 완전 개정되었는데 ASTM E 813-87에서는  $J-\Delta a_p$  데이터를 회귀곡선의 형태로 구하도록 규정하였지만, 개정 전 규격인 ASTM E

813-81에서는 회귀직선의 형태로 구하도록 규정되어 있어  $J_{IC}$  값이 서로 다르게 평가될 수 있다. 결국 회귀선 결정 방법에 따라 예전에 보고된 결과가 최근 결과와 다를 수도 있으므로 두 규격에 따른  $J_{IC}$  값의 차이를 살펴 보았는데, 그 결과는 Fig. 9와 같으며 Rosenthal 등[7]의 결과도 그림에 함께 도시하였다. ASTM E 813-87에 따라 구한 값이 ASTM E 813-81에 따라 구한 값보다 큰 경향을 나타내고 있으며 파괴인성치가 커짐에 따라 그 차이가 현저하게 나타남을 알 수 있다.

A5083의 경우에는 모든 온도에서 유효한  $J_{IC}$ 를 얻을 수 있었다. Fig. 10에서와 같이, 본 연구에서 얻은  $K_{IC}$  값은 Tobler와 Reed의 결과[9]나 Kaufman과 Kelsey의 결과[10]보다 낮게 나타났으나 온도가 저하함에 따라 파괴인성이 오히려 증가하는 경향은 모두 일치하고 있다.

9% Ni강의 경우 77 K에서는 pop-in이 발생되어  $J_{IC}$ 를 구할 수 없었으나 4 K에서는 pop-in의

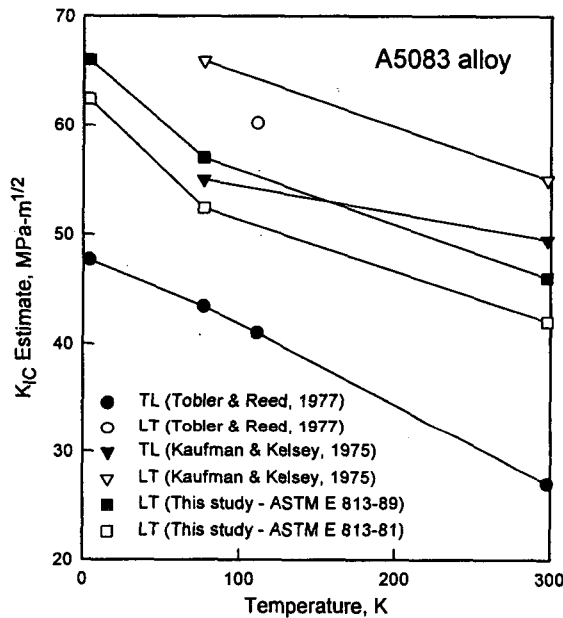


Fig. 10. Temperature dependence of  $K_{IC}$  estimates for A5083 alloy

발생 없이 유효한  $J_{IC}$ 를 구할 수 있었다. 즉 77 K에서 불안정성(instability)인 pop-in이 발생하였다고 하면, 더욱 낮은 온도인 4 K에서도 당연히 pop-in이 나타날 것으로 예상되지만 실험에서는 상반된 결과를 얻었다.

통상 4 K에서 인장시험이나 파괴인성시험을 하면 77 K에서는 나타나지 않던 불연속변형이 발생되는데, 이는 단열변형(adiabatic deformation)에 의한 것으로 널리 알려져 있다. 액체헬륨 온도의 극저온에서는 금속 재료의 비열 및 열전도도가 매우 작아 스테인리스강의 경우 각각 상온의 1/200과 1/20 정도밖에 되지 않기 때문에 약간의 소성변형에 의해 발생하는 열에 의해서도 시험편의 온도가 국부적으로 크게 상승된다. 인장시험의 경우 고망간강을 하중제어로 시험하면서 시험편의 온도를 직접 측정된 결과[11]에 따르면 항복강도 부근에서의 온도 상승은 거의 없었으

나 인장강도 부근에서는 약 120 K의 온도 상승이 관찰되었다. 또한 오스테나이트계 스테인리스강의  $J_{IC}$  시험 경우에는 최고 53 K의 온도 상승이 관찰[12]되었다. 그런데 53 K의 온도 상승은 소성변형이 집중되는 균열선단에서의 온도 상승을 대표한다고는 볼 수 없으며, 균열선단에서는 이보다 훨씬 높은 온도 상승이 예상되고 이로 인하여 77 K에서 발생된 pop-in이 4 K에서는 나타나지 않는 것으로 생각된다.

Fig. 11에는  $J_{IC}$  및  $K_{IC}$  시험으로부터 얻은 결과를 Tobler 등[13]의 결과와 함께 도시하였는데, 두 결과가 서로 잘 일치하며 bcc 금속에서 관찰되는 연성-취성 천이(ductile-brittle transition)는 77 K 이하의 온도에서 나타난다는 것을 예측할 수 있다.

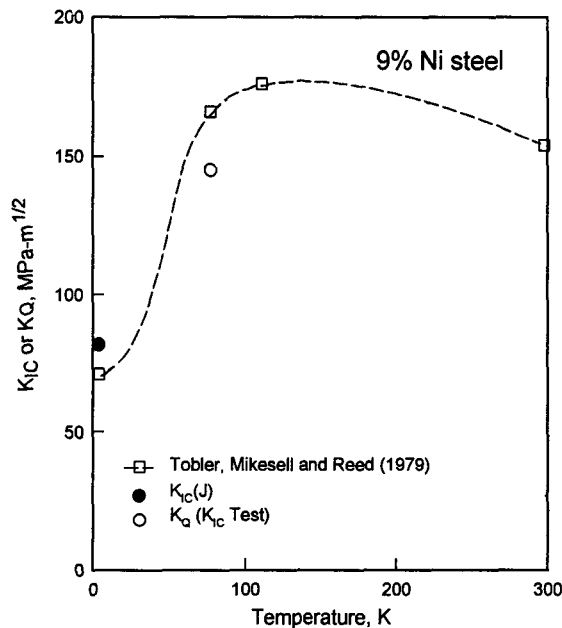


Fig. 11. Fracture toughness of 9% Ni steel

#### 4. 결론

4 K까지 인장 및 파괴인성시험이 가능한 극저온시험장치를 완성하고, 이를 이용하여 LNG 저장 탱크용 구조재료로 많이 사용되는 304L, A5083 및 9% Ni강에 대하여 온도에 따른 인장 특성 및 파괴인성의 변화를 조사하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

- (1) SUS 304L의 경우 77 K에서의 항복강도는 상온의 경우보다 오히려 약간 감소하였으나 4 K에서는 다시 증가하는 경향을 보였는데, 77 K에서 항복강도가 감소하는 것은 'anomalous flow strength behavior'와 관련이 있는 것으로 판단된다. 또한 극저온으로 온도가 감소하면 인장강도가 항복강도보다 훨씬 크게 증가하는데 이는 변형유기마르텐사이트변태에 의한 가



공경화 때문이다.

- (2) A5083의 경우 온도 감소에 따른 인장강도의 증가가 뚜렷이 나타난 반면에 항복강도의 증가는 미미하게 나타났다. 9% Ni강의 경우에는 온도에 따라 인장강도와 항복강도 모두 뚜렷이 증가하는 경향을 나타내었다.
- (3) SUS 304L을 77 K에서 시험한 경우 역균열진전(negative crack growth)이 뚜렷이 관찰되었다.
- (4) 9% Ni강을 77 K에서 시험한 경우 국소적인 파괴가 일어나는, 소위 “pop-in”이 발생됨으로써  $J_{IC}$ 를 구할 수 없었으며, 이 때문에 별도의  $K_{IC}$  시험을 실시하였으나 이 경우에도  $K_{IC}$ 를 얻기 위한 유효조건을 만족시키지 못하여  $K_{IC}$ 도 구할 수 없었다.  $K_{IC}$  시험으로부터 구한  $K_{Q}$ 값은  $145 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 이었다.
- (5) A5083의 경우 모든 온도에서 유효한  $J_{IC}$ 를 얻을 수 있었으며 파괴인성은 온도가 감소함에 따라 증가하는 경향을 나타내었다.
- (6) ASTM E 813-87에 따라 구한  $J_{IC}$ 값이 ASTM E 813-81에 따라 구한 값보다 전반적으로 큰 경향을 나타내었으며 파괴인성치가 커짐에 따라 그 차이가 현저하게 나타났다. 따라서  $J_{IC}$ 값을 서로 비교할 때는 규격 개정에 의한 차이를 고려하여야만 한다.

## 후기

본 연구는 과학기술처에서 시행한 기관고유사업인 ‘방재기술연구센터 사업’의 연구 결과 중 일부로서, 본 연구를 수행할 수 있도록 도와주신 관계자 여러분들께 감사드립니다.

## 참고문헌

1. 岡田東一, “VDI: Lehrgangshandbuch Kryotechnik-低温工学ハンドブック,” 社団法人 低温工学協会・関西支部 海外低温工学研究会 訳, 低温工学ハンドブック編集委員会 編, 内田老鶴圃新社, 東京 (1978).
2. 신형섭, 이해무, 신주영, 박종서, 한국가스학회지, 제2권, 제1호, pp.99-106 (1998).
3. 이해무, 남승훈, 허용학, 이주진, 방건웅, 대한금속학회지, 제28권, 제11호, pp.970-976 (1990).
4. D. T. Read, R. P. Reed, and R. E. Schramm, “Materials Studies for Magnetic Fusion Energy Applications at Low Temperature”, Vol. II, NBSIR 79-1609, National Institute of Standards and Technology(formerly National Bureau of Standards), pp.151 (1979).
5. B. Voss, “Ductile Fracture Test Methods” (Proceedings of a CSNI Workshop), Organization for Economic Cooperation and Development, Nuclear Energy Development, Paris, pp.210 (1983).
6. R. Bowman, S. D. Antolovich, and R. C. Brown, Engineering Fracture Mechanics, Vol. 31, No. 4, pp.703 (1988).
7. Y. A. Rosenthal, R. L. Tobler, and P. T. Purtscher, JTEVA, Vol. 18, No. 4, pp.301 (1990).
8. P. T. Purtscher, JTEVA, Vol. 15, No. 5, pp.296 (1987).
9. R. L. Tobler and R. P. Reed, Trans. ASME, Series H, J. of Eng. Mat. and Tech., Vol. 99, pp. 306 (1977).

10. J. G. Kaufman and R. A. Kelsey, "Properties of Materials for Liquefied Gas Tankage," ASTM STP 579, ASTM, Philadelphia, pp.138 (1975).
11. T. Ogata, K. Ishikawa, O. Umezawa, and T. Yuri, Cryogenics, Vol. 28, pp.511 (1988).
12. R. L. Tobler, Ph.D. Thesis, Tohoku Univ., Sendai, Japan, pp.53 (1992).
13. R. L. Tobler, R. P. Mikesell, and R. P. Reed, "Fracture Mechanics," ASTM STP 677, ASTM, Philadelphia, pp.85 (1979).