

원전 1차 계통수 모사환경에서 Type 304 스테인리스강의 응력부식균열개시 민감도

조성환[†] · 김성우* · 이종연*

Susceptibility of Stress Corrosion Crack Initiation of Type 304 SS in Simulated Primary Water Environment of PWR

Sung-Hwan Cho[†], Sung-Woo Kim*, and Jong-Yeon Lee*

(Received 21 May 2024, Revised 14 June 2024, Accepted 18 June 2024)

ABSTRACT

The core shroud of reactor vessel internals (RVI) of OPR1000 and ARP1400 is made of Type 304 stainless steel (SS) by bending and welding process that may induce high deformation and residual stress in manufacturing. This work aims to evaluate the susceptibility of stress corrosion crack (SCC) initiation of bent parts of RVI in high temperature primary water environment. For SCC initiation test, tensile specimens were fabricated from the 90 degree bent plate of Type 304 SS (DT specimen), that is an archived part of a Korean APR1400. After the SCC initiation test, the specimen surface was thoroughly examined by optical and scanning electron microscopy, and compared to the specimen fabricated from the as-received plate of Type 304 SS (AR specimen). The surface observation revealed that SCC initiated on the AR specimen surface in typical intergranular (IG) mode, while SCC on the DT specimen occurred in transgranular mode as well as IG mode. It was also found that the size and number of SCC on the DT specimen were larger than that on the AR specimen. This was attributable to a strain-hardening during the bending process. To compare the susceptibility of SCC initiation, total crack density (TCD) was calculated from the total crack length divided by the measured area of AR and DT specimens. TCD of DT specimen was 4.6 times higher than AR specimen in average, indicating that higher possibility of degradation of bent parts of RVI for a long-term operation.

Key Words : SCC(응력부식균열), IGSCC(입계부식균열), TGSCC(입내부식균열), Type 304 SS(304형 스테인리스강), TCD(총 균열 밀도)

1. 서 론

가압형경수로(Pressurized Water Reactor, PWR)에서는 장기간 중성자에 노출된 원자로 내부구조물 중, 특히 높은 인장응력이 걸리는 스테인리스강 재료의 배플포머볼트(Baffle Former Bolt, BFB)에서 조사유기 응력부식균열(Irradiation Assisted Stress Corrosion Cracking, IASCC) 사례가 보고되고 있으며, 계속운전

및 수명연장 시 고려하여야 할 주요 열화기구로 주목되고 있다⁽¹⁾.

IASCC는 일반적으로 응력부식균열(Stress Corrosion Cracking, SCC)이 일어나는 재료, 환경, 응력의 3대 인자에 추가하여 높은 에너지의 중성자 조사에 의해서 SCC가 조장되는 현상이다⁽²⁾. 최근 국내 원전에서도 가동 연수 증가에 따라 중성자 조사에 의한 IASCC 사례가 보고된 바 있는데, 고리 1호기 원자로 내부구조물 BFB의 균열 발생이 대표적인 예이며, 이에 대해 규제기관은 결함 원인 규명을 요구한 바 있다.

Westinghouse(WH)형 원자로 내부구조물은

[†] 책임저자, 회원, 한국원자력연구원 재료안전기술연구부

E-mail : shcho@kaeri.re.kr

TEL : (042)868-8706, FAX : (042)868-8549

* 한국원자력연구원 재료안전기술연구부

핵연료 냉각재 유로를 형성하고 핵연료 집합체를 지지하는 배플, 포머, 배럴(Barrel) 등 스테인리스강 재질의 구조물들로 구성되며, 고장력 스테인리스강 볼트로 체결하는 방식으로 제작된다. Combustion Engineering(CE)형은 원자로 내부구조물 중, 핵연료 냉각재 유로를 형성하는 노심 슈라우드(core shroud)의 경우 스테인리스강 재질의 판재를 절곡하고 용접하는 방식으로 제작된다. 핵연료 집합체를 지지하는 하부지지판과 노심 지지 동체 또한 스테인리스강을 용접하여 제작하고 있다.

WH형 원자로 내부구조물의 경우, 핵연료에 인접하여 중성자 조사량이 높고 구조물 체결로 인한 응력이 집중되는 볼트, 특히 배플포머볼트에서 손상 사례가 해외에서 많이 보고되었으며, 손상기구 중 IASCC로 인한 구조 건전성 저하가 가장 대표적이다. 재료열화에 의해 볼트 손상이 발생할 경우, 이탈된 볼트 헤드가 핵연료를 손상시키거나, 볼트가 균집하여 손상될 경우 배플의 구조 건전성이 저하되어 노심 손상을 야기할 수 있다. 볼트 체결식 노심구조 부품의 경우, 주요 볼트를 정기적으로 비파괴검사하고 손상이 발견될 경우, 이를 교체하여 노심구조 부품을 보수할 수 있다. 국내에서는 2015년 고리 1호기 예방정비기간 중 비파괴검사서 최초 손상 사례가 보고되기 시작했고, 국가 R&D 과제를 통해 볼트 손상 원인 분석, 검사/보수, 장비/기술 개발하여 현장 적용을 추진 중에 있다.

CE형 원자로 내부구조물의 경우, 제작 과정 중 재료의 변형과 응력이 수반되는 절곡부와 용접부에서 손상이 발생할 가능성이 있다. 특히 90도 절곡부의 경우 냉간가공에 의해 30% 이상의 변형율을 가지므로, 높은 잔류응력이 존재하며 중성자 조사에 의해 손상 발생 가능성이 높을 것이다. 따라서, 본 연구에서는 CE형 원자로 내부구조물 제작 당시 높은 변형율과 잔류응력이 수반되는 절곡부에 대해 중성자 조사 이전 응력부식균열 개시 민감도를 우선 평가하고자 하였다. 국내 APR 1400에 사용된 Type 304 SS 판재 절곡부에서 부식시험을 위한 시편을 제작한 후, 고온 고압 1차 계통수 모사 환경에서 응력부식균열 개시 시험을 수행하였고, 부식 시험 이후 시편의 표면을 관찰하여 총 균열 길이를 면적으로 나눈 균열 밀도로부터 개시 민감도를 비교 분석하였다⁽³⁻⁶⁾.

2. 시험 방법

2.1 시편 제작 방법

본 연구에서는 Fig. 1에 도시한 국내 APR 1400 원전에 사용된 Type 304 SS 보관재로 절곡부에서 절취하여 부식 시험용 인장시편을 제작하였다. 절곡부 제작에 사용된 Type 304 SS 판재의 Heat No.는 841927 이고, 1038 °C에서 열처리한 후 수냉하였으며, 화학적 조성은 Table 1과 같다.

Fig. 2는 부식 시험에 사용된 판상형 인장시편의 도식으로, 인장시편의 축방향은 원자로 내부구조물의 절곡부 축방향과 일치하고, 절곡부의 외호에 가까운 위치에서 제작하였다⁽³⁾. 인장시편의 사양은 총길이 26 mm, 폭 5 mm, 두께 1 mm, 게이지(gauge) 길이 9 mm이고, 게이지 영역 폭 2 mm의 어깨길이 타입이며, 어깨부 반지름 R값은 1.5 mm 이다. Type 304 SS 판재로 제작한 인장시편은 AR로 명명하였고 DT 시편 비교용으로 사용될 시편이며, 절곡부로 제작한 인장시편은 DT로 명명하였다.

부식실험을 위하여 인장 시편의 한쪽 표면은 #800, #1200, #2000 연마지 순으로 연마하였고, 1 μm 알루미늄 현탁액으로 최종 경면 연마하였다. 표면 연마

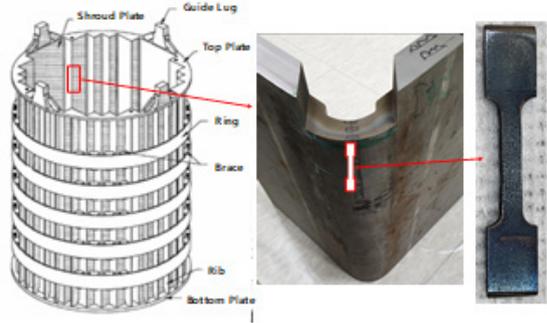


Fig. 1 Drawing of reactor vessel internal(CE Type), photograph of bending part and tensile specimen for SCC initiation test

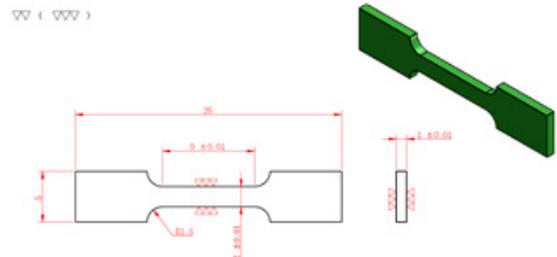


Fig. 2 Drawing of tensile specimen for SCC initiation test

Table 1 Chemical composition of Type 304 SS(wt. %)

	C	Cr	Ni	Mn	Si	P	S	N	Co
304 SS	0.018	18.34	10.50	1.73	0.33	0.028	0.001	0.06	0.04

후, 에탄올로 30분, 순수물로 약 1시간 초음파 세정을 실시하였다⁽⁷⁾. 경면 연마 후 Electron Backscatter Diffraction (EBSD, Oxford symmetry detector) 방법으로 AR 및 DT 시편의 미세조직을 관찰하였다.

2.2 시험 루프 및 SCC 개시 민감도 실험 방법

한국원자력연구원에 구축된 IASCC Test Loop(ITL) 시설은 PWR 1차 계통수를 모사한 환경에서 니켈합금 및 스테인리스강의 응력부식균열 특성을 평가하기 위한 실증 시험장비로서, 1차계통 냉각수를 모사하고 수질 제어 및 계측하기 위한 1차 계통수 순환장치(Primary Water Circulation System), 고온 고압 반응기인 오토클레이브, 시편에 응력을 인가하고 제어하는 저속인장응력시험기(Slow Strain Rate Tester, SSRT)로 구성된다. 1차 계통수 순환장치는 1차 계통수 저장 탱크에서 준비된 화학 용액을 고압 펌프를 이용하여 열교환기와 오토클레이브 내부로 주입하기 위하여 사용된다. 주입된 1차 계통수는 Back Pressure Regulator(BPR)로 압력을 유지한 상태에서 유량계를 거쳐서 저장 탱크로 재 순환되는 폐루프 구조이다. 저속인장응력시험기는 서보모터(Servo-motor)로 오토클레이브 내부에 장착된 시편에 일정하중 조건, 정속인장율 조건 및 다양한 파형 조건의 하중을 인가할 수 있다. Fig. 3은 본 연구에서 사용한 ITL 장비 사진이다.

원전 1차계통의 수질을 모사하기 위해서 B 1200 ppm, Li 2.2 ppm 농도의 혼합 용액을 사용하였고, 용존산소 5 ppb 이하, 용존수소 10 ~ 30 cc/kg 범위, 전기전도도 40 μ S/cm 이하, pH 6 ~ 7 범위로 수화학 조건을 제어하였다. 오토클레이브 내부로 순환되는 유량은 약 10 L/h 이었다.

SCC 개시 시험에서 SSRT의 strain rate는 1.85×10^{-7} /s 이었고, 목표 인장 거리는 게이지 길이의 10 %인 0.9 mm로 설정하였다. 부식 시험 종료 후, 시편 표면의 미세조직과 SCC 개시 여부를 관찰하기 위해 광학 및 Scanning Electron Microscope(SEM, JEOL IT100)을 사용하였다. 본 연구에서 SCC 개시 민감도는 SEM 이미지에서 SemAfore 프로그램(JEOL, v.5.21)을 이용하여

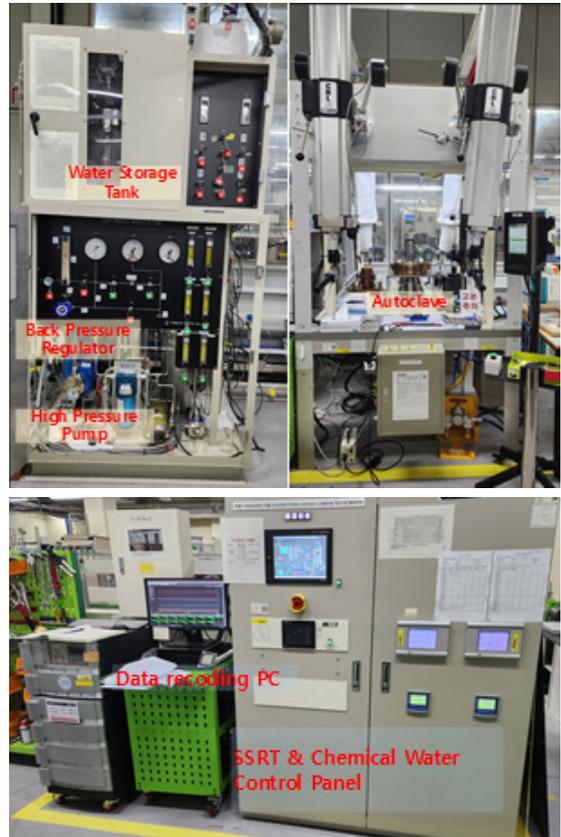


Fig. 3 Primary water loop system, SSRT and controllers with data acquisition system in ITL

측정한 균열의 총길이(인장 축에 수직 방향, Total Crack Length, TCL)를 측정하고, 이를 관찰 표면적(Measured Area, MA)으로 나누어서 총 균열 밀도(Total Crack Density, TCD)로 정량화하였다⁽³⁻⁶⁾.

3. 결과 및 토의

Fig. 4는 AR 및 DT 시편에 대한 EBSD 분석을 통해 얻은 Band Contrast(BC), Inverse Pole Figure(IPF) 및 Grain Boundary(GB) map을 도시한 것이다. AR 시편의 경우 균일한 입도 분포를 보이는 반면에, DT 시편의 경우 절곡 공정 중 냉간 가공으로 결정립이 연신되고 결정립 내부에서 BC 및 IPF의 농도가 변하는 소성 변형된 집합조직의 전형적인 특성을 보였다.

Fig. 5는 AR 및 DT 시편의 상온 공기 중 인장곡선을 도시한 것이다. AR 시편의 항복강도, 최대인장강도 및 총

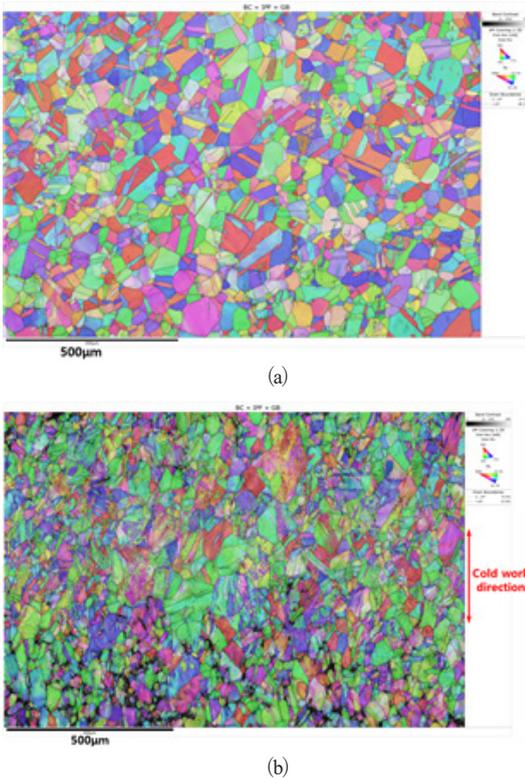


Fig. 4 EBSD (band contrast, inverse pole figure and GB character) maps of (a) AR and (b) DT specimen

연신율은 각각 257 MPa, 852 MPa 및 0.81인 반면에, DT 시편의 경우 항복강도, 최대인장강도 및 총 연신율은 각각 769 MPa, 990 MPa 및 0.32로 나타났고, 이는 절곡 공정의 냉간 가공에 의한 것이다.

Fig. 6은 325 °C, 15 MPa의 1차 계통 모사 환경에서 SCC 개시 시험 후 광학현미경으로 관찰한 AR 및 DT 시편의 표면 사진이다. 인장 시편의 게이지 영역에서 균열의 총길이(TCL)과 이로부터 총 균열 밀도(TCD)를 측정하기 위해서 AR 시편의 A와 B 영역과 DT 시편의 C와 D 영역에서 SEM을 이용하여 정밀 표면 관찰을 수행하였다.

Fig. 7은 AR 시편의 A와 B 영역에서 200배 배율로 게이지 폭 전체에 대해 촬영한 총 10장의 SEM 사진을 종합하여 도시한 것이며, Fig. 8은 DT 시편의 C와 D 영역에서 200배 배율로 게이지 폭 전체에 대해 촬영한 총 10장의 SEM 사진을 종합하여 도시한 것이다. Fig. 7과 8에서 SCC 개시 시험에서 두 시편 모두 동일하게 연신율

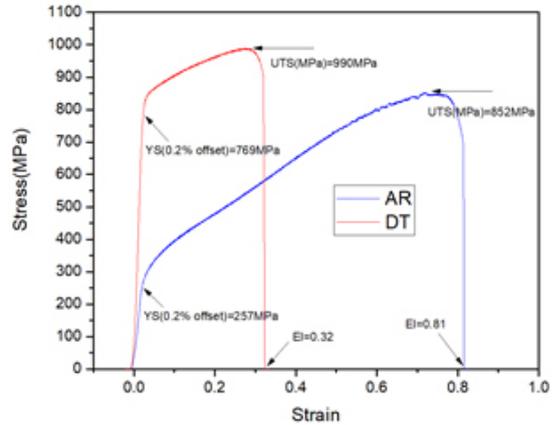


Fig. 5 Stress-strain curve of AR and DT specimen

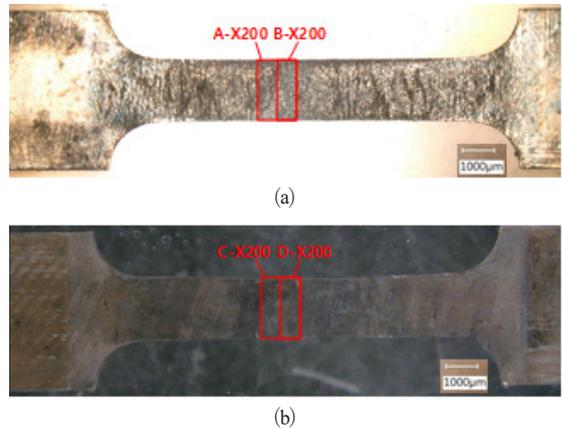


Fig. 6 Optical micrographs of gauge section of (a) AR and (b) DT tensile specimen after SCC initiation tests. Red box indicates locations of detailed surface observation using SEM

10 % 조건에서 인장이 종료되었으나, AR 시편에 비해 DT 시편의 네킹(necking) 현상이 다소 두드러지게 나타났다. 또한 AR 시편에 비해 DT 시편의 균열은 개수와 크기가 큰 것으로 나타났다.

SCC 개시 시험 중 얻은 인가 응력과 변형율을 분석한 결과, Type 304 SS 모재의 AR 시편에서 SCC 개시 시험 종료 조건인 연신율 10 % 일 때, 인가 응력은 약 390 MPa 정도로 측정되었고, 절곡부의 DT 시편에서 인가 응력은 약 900 MPa 정도로 측정되었다. 동일한 연신율 조건에서 인가 응력의 증가는 Fig. 4와 5에서 제시한 바와 같이 DT 시편의 가공경화에 의한 것으로서, DT 시편에서 국부적인 네킹 현상과 균열 발생이 상대적으로 두드러진 원인으로 판단되었다⁽⁸⁾.

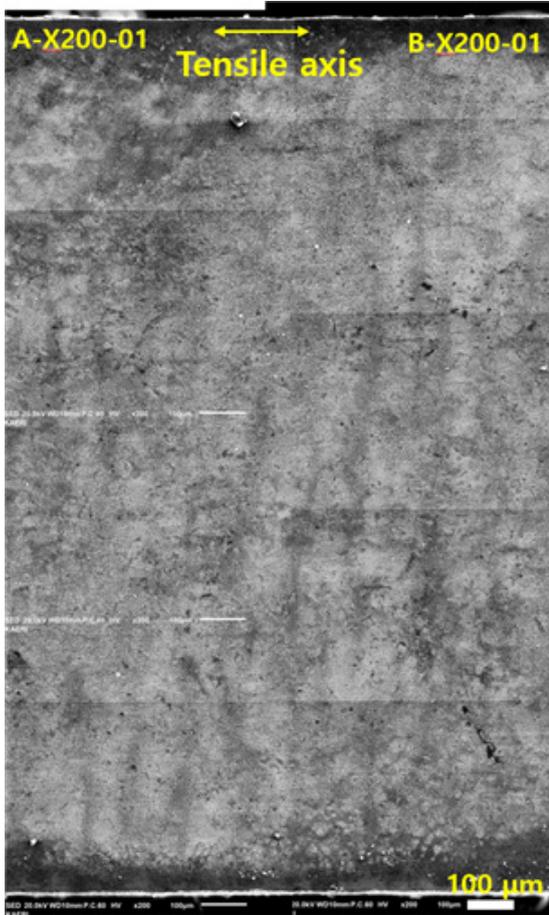


Fig. 7 SEM images obtained from A and B locations of AR specimen (Fig. 4(a)) after SCC initiation test at 325 °C and 15 MPa for 5.25 days

Fig. 9는 AR 시편과 DT 시편의 게이지 영역 표면에서 발생된 균열을 1000배의 고배율로 촬영한 SEM 사진들을 도시한 것이다. Fig. 9(a)에서 AR 시편의 균열은 입계를 따라 IG(intergranular) 형태로 발생하였다. 이에 비해 Fig. 9(b)에서 DT 시편의 균열은 IG 형태와 함께 결정립 내부로 전파하는 TG(transgranular) 형태도 같이 발생하였다. 균열 주변과 내부에서 표면 산화물들이 뚜렷하게 보이고 있으며, 모든 균열은 SCC로 판명되었다. 전체적으로 AR 시편에 비해 DT 시편의 표면에서 SCC 크기 및 개수가 많은 것을 확인하였다. Kim et al. 은 SCC 민감도에 따라 IGSCC mode로 전파하는 경우와 TGSCC mode로 전파하는 경우, SCC 민감도가 균열 크기에 미치는 영향을 보고한 바 있다⁹⁾.

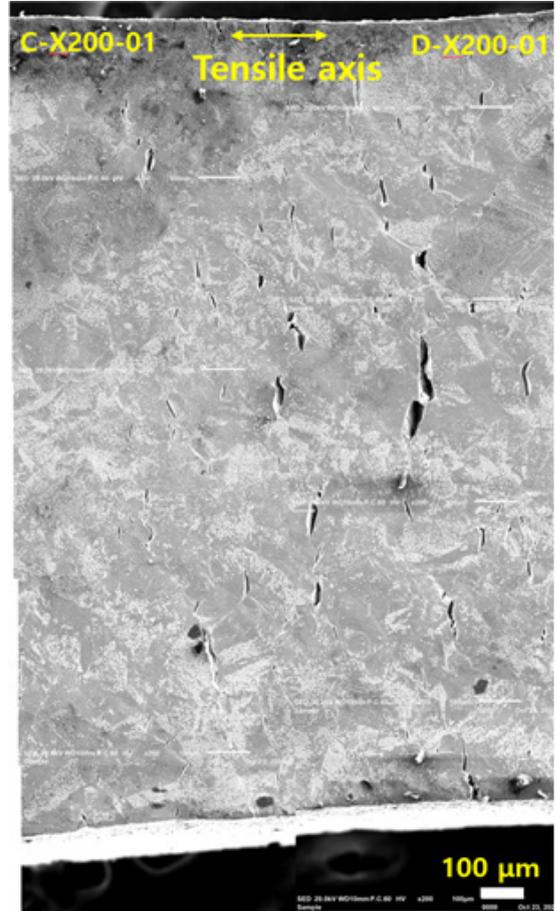
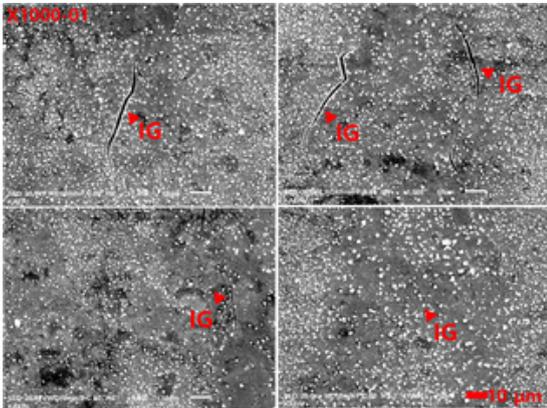


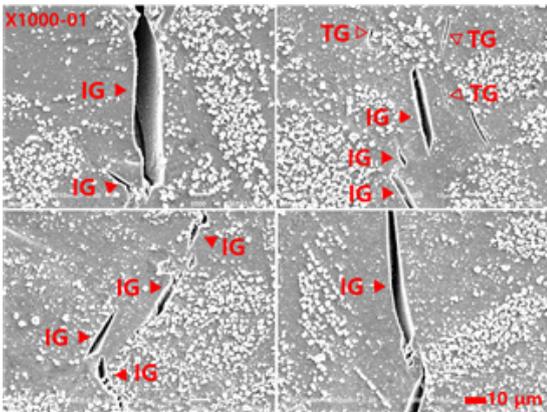
Fig. 8 SEM images obtained from C and D locations of DT specimen (Fig. 4(b)) after SCC initiation test at 325 °C and 15 MPa for 5.25 days

AR 시편과 DT 시편의 SCC 개시 민감도를 정량적으로 비교 분석하기 위하여, Fig. 7과 8의 200배 SEM 이미지로부터 균열의 총길이를 TCL을 측정하고, 이를 관찰 표면적 MA로 나누어준, 총 균열 밀도 TCD로 정량화하여 Table 2에 제시하였다.

Fig. 11은 AR 시편과 DT 시편의 A, B, C, D 위치에서 얻은 총 균열 밀도와 각 시편의 평균 균열 밀도를 같이 도시한 것이다. 평균값을 비교하면 AR 시편보다 DT 시편의 SCC 개시 민감도가 약 4.6배 증가하는 것으로 나타난다. 또한 게이지 영역에서 위치별 TCD 값의 편차는 AR 시편의 A와 B 경우, 0.06 mm⁻¹에 비해 DT 시편의 C와 D 경우, 0.61 mm⁻¹으로 증가하는 것으로 나타났는데, 이는 네킹 현상에 의해 국부적인 응력 및 변형률 차이에



(a)



(b)

Fig. 9 SEM images of SCC in (a) AR and (b) DT specimen with a magnification of 1,000X

기인하는 것으로 판단되었다.

이러한 SCC 개시 민감도 비교 분석 결과를 바탕으로 원자로 내부구조물에서 Type 304 SS 모재(AR 시편)에 비해 냉간 가공된 절곡부(DT 시편)의 중성자 조사에 의한 내환경 특성 저하 가능성이 높을 것으로 추정된다. 향후 AR 시편과 DT 시편에 대해 양성자 및 중성자 조사 후, IASCC 개시 시험을 수행하고 개시 민감도를 정량 분석할

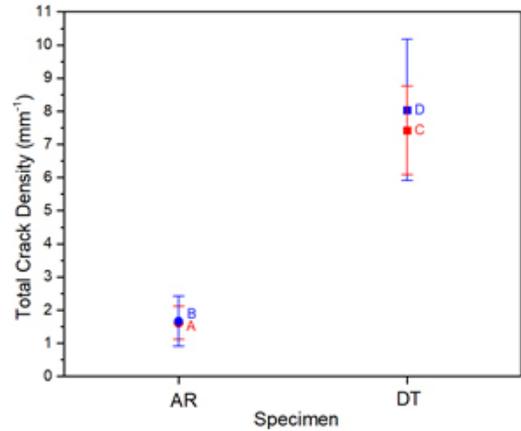


Fig. 11 Comparison of SCC initiation sensitivity based on TCD of AR and DT specimens after SCC initiation test at 325 °C and 15 MPa

예정이다. 이러한 연구를 통해 용접식 원자로 내부구조물의 IASCC에 의한 부품 손상 예측 및 사전 예방에 활용하고자 한다.

4. 결 론

본 연구에서는 국내 APR 1400에 사용된 Type 304 SS 판재와 절곡부에서 SCC 개시 시험을 위해 인장 시편 AR과 DT를 각각 제작한 후, 325 °C, 15 MPa의 1차 계통수 모사 환경에서 SCC 개시 시험을 수행하였다. SCC 개시 시험 이후에 인장 시편의 게이지 영역에서 표면을 OM과 SEM으로 관찰한 결과, AR 시편에 비해 DT 시편에서 SCC 균열의 개수와 크기가 증가하는 것으로 나타났다. AR 시편의 SCC는 대부분 IG 형태임에 비해 DT 시편의 SCC는 IG와 TG 형태가 골고루 혼재되어 있었다. 총 균열 밀도 TCD로 정량 분석한 결과, DT 시편의 SCC 개시 민감도는 AR 시편에 비해 약 4.6배로 증가하였고, 위치별 편차도 크게 나타났다. 이러한 결과는 절곡부의

Table 2 Total crack length(TCL), measured area (MA) and total crack density(TCD) obtained from various regions on AR and DT specimens after SCC initiation tests

Specimen	AR		DT	
	A	B	C	D
Measured region				
TCL(mm)	2.40	2.44	9.54	9.67
MA(mm ²)	1.48	1.46	1.28	1.20
TCD(mm ⁻¹)	1.62	1.67	7.43	8.04
Average TCD(mm ⁻¹)	1.64		7.60	

냉간 가공에 의한 경화로 판단되고, 향후 용접식 원자로 내부구조물의 절곡부에서 증성자 조사에 의한 내환경 특성 저하 가능성 검증이 필요하다.

후 기

본 연구는 한국연구재단을 통해 과기부 원자력연구 개발사업(2021M2E4A1037979, RS-2022-00143718)의 지원을 받아 수행되었다.

참고문헌

- (1) Kim, S. W., Kim, D. J., and Jin, Y. G., 2015, "Benchmarking of Recent Technology for IASCC Evaluation of Neutron-irradiated Materials," Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon, *KAERI/AR/1078*.
- (2) Hong, J. H., 2013, chapter 4.3 Structural Materials, *Nuclear Materials*, 2nd ed, Hans House, Seoul.
- (3) Kim, S. W., Kim, H. P., Choi, M. J., Cho, S. H., Lee, J. Y., Lim, Y. S., and Kim, D. J., 2023, "Technical Report on Corrosion Resistance of Stainless Steel for Welded Reactor Vessel Internals," Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon, *KAERI/TR-10038/2023*.
- (4) Kim, S. W., Hwang, S. S., Lim, Y. S., Kim, D. J., Choi, M. J., Kwon, J. H., Jin, H. H., and Lee, S. R., 2016, "Technical Report on IASCC models of PWR reactor internals," Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon, *KAERI/TR-6404/2016*.
- (5) Lim, Y. S., Kim, D. J., Kim, S. W., Jin, H. H., Kim, H. P., Choi, M. J., Cho, S. H., Lee, J. Y., and Lee, S. R., 2022, "Microstructural analyses of the core structural components and their welds in domestic nuclear power plants," Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon, *KAERI/TR-9552/2022*.
- (6) Fukuya, K., Fujii, K., and Kitsunai, Y., 2005, "DEFORMATION STRUCTURE IN 316 STAINLESS STEEL IRRADIATED IN A PWR," *Proc. of the 12th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power System-Water Reactors*, TMS, pp. 389-393.
- (7) Cho, S. H., Kim, S. W., and Hwang, S. S., "Study of Stainless Steel 304 using IASCC Test Facility(ITF) Mock-up," *The Korean Institute of Surface Engineering*, Jeju, 2023 May 17-19, pp. 170.
- (8) Kim, S. W., Hwang, S. S., and Lee, J. M., 2015, "Effect of Local Strain Distribution on Stress Corrosion Cracking of Cold-Rolled Alloy 690 With Inhomogeneous Microstructure," *Corrosion Science Section*, Vol. 71, No. 9, doi:http://dx.doi.org/10.5006/1652.
- (9) Kim, H. P., Lee, J. Y., Cho, S. H., Choi, M. J., Kim, S. W., Kim, D. J., Hwang, S. S., and Lim, Y. S., 2021, "Analysis on relationship between delta ferrite and cracking in austenitic stainless steels," Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon, *KAERI/AR-1336/2021*.