

'97 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

2상영역열처리를 이용한 원자로 압력용기강의 인성 향상

김홍덕, 홍준화, 국일현
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

안연상, 김길무
충남대학교
대전광역시 유성구 궁동 220

요 약

원자로 압력용기강의 제조열처리인 퀴칭과 템퍼링 중간에 페라이트와 오스테나이트가 공존하는 영역에서 2상영역열처리를 추가한 후 템퍼링조건을 조정함으로써 파괴인성을 향상시키는 열처리 공정을 개발하였다. 새 열처리공정을 적용하면 기존공정에 비하여 강도는 크게 감소하지 않으면서 충격인성과 연성이 크게 증가하고, 천이온도가 약 20°C 감소하였다. 2상영역열처리를 하면 연한 템퍼드 베이나이트 기지에 비교적 강한 템퍼드 마르텐사이트가 균일하게 분산된 복합조직을 얻을 수 있고, 유효 결정립의 크기가 감소하여 균열진전이 억제되었다. 또한 기존공정의 판상 탄화물 대신 구형 탄화물이 형성되기 때문에 응력집중이 완화되어 파괴저항성이 향상되었다. 그리고 2상영역열처리후 템퍼링 정도를 낮추면 탄화물 크기가 작아지기 때문에 균열발생이 억제되어 저온 충격인성이 향상되었다.

1. 서 론

원자로 압력용기는 고온·고압 및 중성자 조사 환경에서 40년 이상 장시간 사용되므로 중성자 조사 취화에 대한 높은 저항성, 높은 파괴인성과 피로강도, 높은 재료균질성, 내부식성, 낮은 유도 방사성, 양호한 용접성 등의 특성이 요구된다. 특히 압력용기의 노심대는 가동중 고속중성자가 조사되어 최대흡수에너지(upper shelf energy)가 감소하고, 연성-취성 천이온도가 상승하는 중성자 조사 취화가 발생하여 가동조건과 수명을 제한하게 된다. 따라서 가동조건을 완화하고, 장수명을 위해서는 파괴인성이 높은 원자로 압력용기를 제조하는 것이 바람직하다.

원자로 압력용기강의 제조열처리는 퀴칭처리와 템퍼링처리, 용접후 열처리로 이루어진다[1]. 퀴칭처리는 완전히 오스테나이트 구조를 가질 수 있는 온도로 가열한 후에 물에 담가 급랭을 하는 것이다. 이때 냉각속도가 빠를수록 조직이 작아져 파괴인성은 증가한다. 그러나 무게가 약 100톤에 이르며 두께가 10인치 이상인 압력용기를 생산할 때에 내부의 냉각속도를 분당 30°C 이상으로 빠르게 하는 것은 현실적으로 불가능하다. 퀴칭한 강에 인성을 부여하기 위하여 템퍼링처리를 650°C 이상에서 최대두께에 대하여 1인치당 30분이상 유지하여야 한다. 이러한 열처리 조건은 오랫동안 연구와 경험을 바탕으로 확립된 것으로 퀴칭과 템퍼링 처리조건 변화에 의한 획기적인 인성개선은 매우 어려운 실정이다.

한편, 2상영역열처리(intercritical heat treatment, IHT)를 9Ni 강[2], 로터용 강[3], 압력용기용 강[4-6] 등에 응용하여 구조용 철강재료의 파괴인성을 향상하려는 노력이 있어 왔다. 2상영역열처리는 열간 또는 냉간 압연된 박판을 2상(페라이트+오스테나이트)이 공존하는 온도영역에서 유지한 후 냉각하여 페라이트 기지에 5~40%의 마르텐사이트 상을 분산시키는 열처리로서, 고강도와 고연성의 2상 복합조직 강(dual-phase steel)의 제조에 이용되어 왔다.

본 연구에서는 SA508-C1.3 원자로 압력용기강의 퀴칭처리와 템퍼링처리 중간에 페라이트와 오스테나이트가 공존하는 영역에서 2상영역열처리를 추가한 후 템퍼링조건을 조정함으로써 원자로 압력용기강의 파괴인성을 향상시키는 제조공정을 개발하였고, 미세조직을 관찰함으로써 2상영역열처리에 의한 파괴인성 향상의 원인을 규명하고자 하였다.

2. 실험방법

실험에 사용한 재료는 한국중공업(주)에서 원자로 압력용기강으로 제조된 SA508-C1.3 강으로, 표 1에 나타낸 것과 같이 Mn-Mo-Ni 계열의 저합금강이다. 현재 생산현장에서 행하는 열처리조건과 같은 퀴칭처리(880℃/6h)와 템퍼링처리(660℃/10h), 용접후열처리(610℃/30h)를 한 시편을 '기존공정'으로, 기존공정의 퀴칭과 템퍼링 중간에 페라이트와 오스테나이트가 공존하는 영역에서 2상영역열처리(725℃/6h)를 추가한 시편을 '신공정1'로, 2상영역열처리 추가후 템퍼링조건을 640℃/6h로 조정하여 열처리한 것을 '신공정2'로 구별하였다. 열처리후 충격시험과 인장시험을 수행하여 기계적성질의 변화를 살펴보았다.

광학현미경과 투과전자현미경을 이용하여 열처리에 따른 조직변화를 관찰하였다. 광학현미경용 시편은 3% nital 용액 또는 Lepera 용액(1% sodium metabisulfite 수용액 + 4% picral 용액)으로 에칭하였다. 기지의 미세조직을 관찰하기 위한 투과전자현미경용 thin foil은 시편두께를 60~70μm까지 연마한 후에 과염소산(perchloric acid) 10%와 에탄올 90% 용액, 온도 -50~-55℃, 직류 20V에서 twin-jet 전해연마방법으로 얻었다. 그리고 탄화물을 관찰하기 위한 carbon extraction replica 시편은 기계적으로 연마하여 4% nital + 4% picral 용액으로 부식시킨 후에 탄소를 증착시키고, 과염소산 10% + 에탄올 90% 용액으로 0℃, 직류 4V에서 탄소막을 분리하였다.

3. 결과 및 고찰

3-1. 2상영역열처리와 템퍼링조건 조정의 효과

그림 1은 열처리에 따른 충격에너지와 연성-취성 전이거동을 비교하기 위하여 -80~290℃에서 충격시험을 한 결과이다. 퀴칭처리와 템퍼링처리 중간에 2상영역열처리를 추가한 '신공정1(New HT1)'의 충격에너지가 2상영역열처리를 하지 않은 '기존공정(Conv. HT)'보다 전 시험온도에서 높다. 표 2와 같이 2상영역열처리를 추가함으로써 상온충격에너지(room temperature energy, RTE)와 최대흡수에너지(upper shelf energy, USE)가 각각 76J (37%), 47J (15%) 증가하고, 충격에너지가 41J과 68J에 해당하는 온도 T_{41J} 과 T_{68J} 이 각각 7℃, 8℃ 감소하였다.

2상영역열처리 추가에 따른 강도와 연성 변화를 살펴보기 위하여 상온에서 인장시험을 수행한 결과를 표 3에 나타내었다. '기존 공정'에 2상영역열처리를 추가한 '신공정1'의 연신율과 단면수축율은 4% (15%), 3% (4%)씩 증가하고, 항복강도와 인장강도는 43MPa (9%), 31MPa (5%)씩 감소하였다. 이때 강도는 ASME 규격[1]에 비하여 여유가 있다.

2상영역열처리를 추가하면 충격인성과 연성이 크게 향상된 반면에 강도가 약간 감소하였으므로 템퍼링조건을 조정하여 강도감소를 줄이고자 하였다. 템퍼링처리는 퀴칭한 강에 인성을 부여하는 열처리로, 템퍼링 온도가 높을수록, 그리고 유지시간이 길수록 강도는 낮아진다. 따라서 템퍼링 온도와 시간을 줄임으로써 강도를 높일 수 있다. ASME 규격에서 템퍼링처리는 650℃ 이상에서

최대두께에 대하여 1인치당 30분이상 유지하도록 규정되어 있으나, 보완조건에서 용접후열처리를 하는 경우에 템퍼링온도를 635℃까지 허용하고 있으므로 2상영역열처리후 템퍼링처리조건을 640℃/6h으로 조정된 '신공정2'에 대하여 인장시험과 충격시험을 다시 수행하였다.

표 3에서 '신공정2(New HT2)'에 대한 인장시험결과를 살펴보면 '신공정1'에 비하여 연성의 큰 변화 없이 항복강도와 인장강도가 각각 13MPa 향상되었다. 그리고 그림 1과 표 2에서 상온충격에너지와 최대흡수에너지는 거의 그대로 유지하면서 천이온도 T_{41J} 과 T_{68J} 이 15℃, 12℃씩 추가로 감소하였다. 따라서 2상영역열처리 추가후 템퍼링조건을 조정하면 2상영역열처리로 인한 강도감소를 최소화하고, 2상영역열처리로 인한 충격인성 향상을 극대화할 수 있다.

위 결과로부터 원자로 압력용기강의 파괴인성을 향상하기 위한 최적열처리공정은 다음과 같이 결정하였다.

퀵칭 ⇒ 2상영역열처리, 725℃/6h ⇒ 템퍼링, 640℃/6h ⇒ 용접후열처리

이렇게 열처리를 하면 '기존공정'에 비하여 항복강도와 인장강도는 30MPa (6%), 18MPa (3%) 감소하지만, 연신율과 단면수축율은 3% (11%), 2% (3%) 증가하고, 상온충격에너지와 최대흡수에너지는 60J (30%), 53J (17%) 증가하며, 천이온도 T_{41J} 과 T_{68J} 은 20℃, 22℃ 감소하였다.

3-2. 충격인성 향상의 원인규명

2상영역열처리에 의하여 충격인성이 향상되는 원인을 조사하기 위하여 광학 및 투과전자 현미경으로 조직을 관찰하였다. 그림 2(a)는 퀵칭처리후 광학현미경 사진으로 베이나이트 조직이다. 퀵칭 후 2상영역열처리한 (b)에서 흰 마르텐사이트 영역과 검은 템퍼드 베이나이트 영역이 골고루 섞여 있는 복합조직을 보이고 있는 것으로 보아 2상영역에서 생성된 오스테나이트가 냉각중에 마르텐사이트로 변태하였음을 알 수 있다. 투과전자현미경으로 관찰하면 그림 3(a)와 같이 결정립계는 잘 발달된 전위망으로 이루어지고, 내부의 전위밀도가 매우 낮은 아결정립 구조의 템퍼드 베이나이트 기지에 전위밀도가 매우 높고 폭이 1 μ m 이하인 미세한 마르텐사이트가 골고루 분포되어 있었다.

템퍼링후 광학 조직은 그림 2(c), (d)와 같이 2상영역열처리를 한 경우가 하지 않은 경우에 비하여 훨씬 미세하고 균일하였다. 투과전자현미경으로 관찰하면 그림 3(b)와 같이 조대하고 전위밀도가 매우 낮은 아결정립 구조의 템퍼드 베이나이트 사이에 작고 전위밀도가 비교적 높은 아결정립이 형성되어 있었다. 이 영역은 2상영역열처리에 의하여 형성된 고전위밀도의 미세한 마르텐사이트가 템퍼링과정에서 아결정립구조의 템퍼드 마르텐사이트로 변화한 것이다. 탄화물 분포를 비교하면 2상영역열처리를 하지 않은 경우에 래스경계를 따라 형성된 판상 탄화물과 래스내부에 석출한 침상 탄화물을 관찰할 수 있고, 판상탄화물 군 사이의 간격이 비교적 넓다. 반면에 2상영역열처리를 한 경우에 탄화물은 크고 주로 구형이며, 탄화물 밀도가 높은 영역과 낮은 영역간의 간격이 비교적 좁다.

페라이트 상과 오스테나이트 상이 공존하는 2상영역에서 유지하면 가열중에 생성 및 성장한 탄화물이 녹으면서 오스테나이트가 결정립계나 래스경계에서 생성되어 침상으로 성장하고, 나머지 베이나이트는 템퍼링되어 템퍼드 베이나이트가 된다. 이때 탄소는 오스테나이트에 우선적으로 위치하기 때문에 오스테나이트의 탄소농도와 경화능이 높아진다. 오스테나이트(냉각 후 마르텐사이트) 영역과 템퍼드 베이나이트 영역의 상분율을 측정된 결과 각각 27%, 73%이므로 지렛대법칙을 이용하여 계산한 오스테나이트의 탄소농도는 약 0.72%로 전체평균탄소농도 0.21%에 비하여 크게 증가하였다. 미세경도시험결과 템퍼드 베이나이트 영역의 경도는 233Hv인데 비하여 마르텐사이트 영역은 454Hv로 약 2배가 높음을 확인할 수 있었다. 이와 같이 적절한 2상영역열처리를 하면 경화능이 향상되어 전위밀도가 높고, 미세한 마르텐사이트를 포함하는 복합조직을 얻을 수 있으므로

냉각속도를 증가시키는 것과 같은 유리한 효과를 얻을 수 있다. 한편, 기존열처리공정에서 템퍼링 하면 상부베이나이트의 래스경계에 존재하는 판상 탄화물이 성장하고, 기지는 템퍼드 베이나이트가 된다. 그러나 2상영역열처리후 템퍼링처리를 하면 기지는 2상영역열처리중에 템퍼링되었기 때문에 큰 변화가 없고, 마르텐사이트 영역은 전위밀도가 비교적 높은 아결정립 구조의 템퍼드 마르텐사이트로 변화한다. 이때 탄화물은 합금원소의 농도가 높은 마르텐사이트와 템퍼드 베이나이트의 경계, 또는 마르텐사이트 내부에서 주로 구형으로 형성된다.

충격인성은 유효결정립 크기와 탄화물의 형상, 크기에 크게 의존한다[8,9]. 2상영역열처리를 하면 연한 템퍼드 베이나이트 기지에 비교적 강한 템퍼드 마르텐사이트가 균일하게 분산된 복합조직을 얻기 때문에 유효 결정립의 크기가 크게 감소하여 충격인성이 증가하였다. 그리고 기존공정의 판상 탄화물 대신에 구형 탄화물이 형성되므로 응력집중이 완화되어 파괴저항성이 향상된다. 한편 저온에서 균열은 임계크기 이상의 탄화물에서 생성된다. 따라서 2상영역열처리후 템퍼링정도를 낮추면 탄화물의 크기를 줄일 수 있으므로 균열발생이 억제되어 저온 파괴인성이 향상된다.

4. 결 론

- (1) 원자로 압력용기강의 제조열처리인 퀸칭과 템퍼링 중간에 페라이트와 오스테나이트가 공존하는 영역에서 2상영역열처리를 추가한 후 템퍼링조건을 조정함으로써 파괴인성을 향상시키는 열처리공정을 개발하였다. 새 열처리공정을 적용하면 기존공정에 비하여 강도는 크게 감소하지 않으면서 충격인성과 연성이 크게 증가하고, 천이온도가 약 20℃ 감소하였다.
- (2) 2상영역열처리를 하면 비교적 강한 템퍼드 마르텐사이트가 연한 템퍼드 베이나이트 기지에 균일하게 분포된 복합조직을 형성하여 유효 결정립의 크기가 감소하므로 충격인성이 향상되었다. 또한 기존공정의 판상 탄화물 대신에 구형 탄화물이 형성되어 응력집중이 완화되므로 파괴저항성이 향상되었다. 그리고 2상영역열처리후 템퍼링 정도를 낮추면 탄화물 크기가 작아지기 때문에 균열발생이 억제되어 저온 충격인성이 향상되었다.

본 연구는 과학기술처에서 시행한 원자력연구개발사업의 일환으로 원자력신소재개발-구조용강(원자로재료)분야과제에서 수행한 것임.

참고문헌

- [1] ASME SA508/SA508M-95, "Specification for Quenched and Tempered Vacuum-Treated Carbon and Alloy Steel Forgings for Pressure Vessels"
- [2] C.K. Syn, S. Jin, and J.W. Morris ; Metall. Trans. A, 7A (1976) 1827-1832
- [3] T. Wada and W.C. Hagel ; Metall. Trans. A, 7A (1976) 1419-1426
- [4] E.G. Nisbett ; J. Eng. Mater. & Technol. (Trans ASME), 100 (1978) 338-347
- [5] K.D. Haverkamp, K. Forch, K.-H. Piehl and W. Witte ; Nucl. Eng. & Design, 81 (1984) 207-217
- [6] T.A. Skamletz, W.W. Grimm ; "Advanced Technology of Heavy-Section Tube Sheets for Nuclear Power Generation", *Steel Forgings, ASTM STP 903*, E.G. Nisbett and A.S. Melilli, Eds., ASTM, Philadelphia, (1986) 410-424
- [7] K. Miyano et al ; Japan Steel Works Technical News, 2 (1971) 10-19
- [8] R.H. Van Stone, T.B. Cox, J.R. Low, Jr, and J.A. Psioda ; Inter. Met. Review, 30 (1985) 157-179
- [9] J.P. Naylor and M. Guttman ; Met. Sci., 15 (1981) 433

Table 1. Chemical composition of the SA508-C1.3 steel

element	C	Mn	Si	P	S	Ni	Cr	Mo	Al	Cu	V
wt. %	0.21	1.24	0.25	0.007	0.002	0.88	0.21	0.47	0.008	0.03	0.004

Table 2. Charpy V-notch impact properties

	T _{41J} [°C]	T _{68J} [°C]	RTE [J]	USE [J]
Conv. HT	-46	-33	204	305
New HT1	-53	-41	280	352
New HT2	-68	-53	264	358

Table 3. Room temperature tensile properties

	YS [MPa]	UTS [MPa]	El. [%]	RA [%]
Conv. HT	474	611	27	72
New HT1	431	580	31	75
New HT2	444	593	30	74
ASME Spec.	345 min	550~725	18 min	38 min

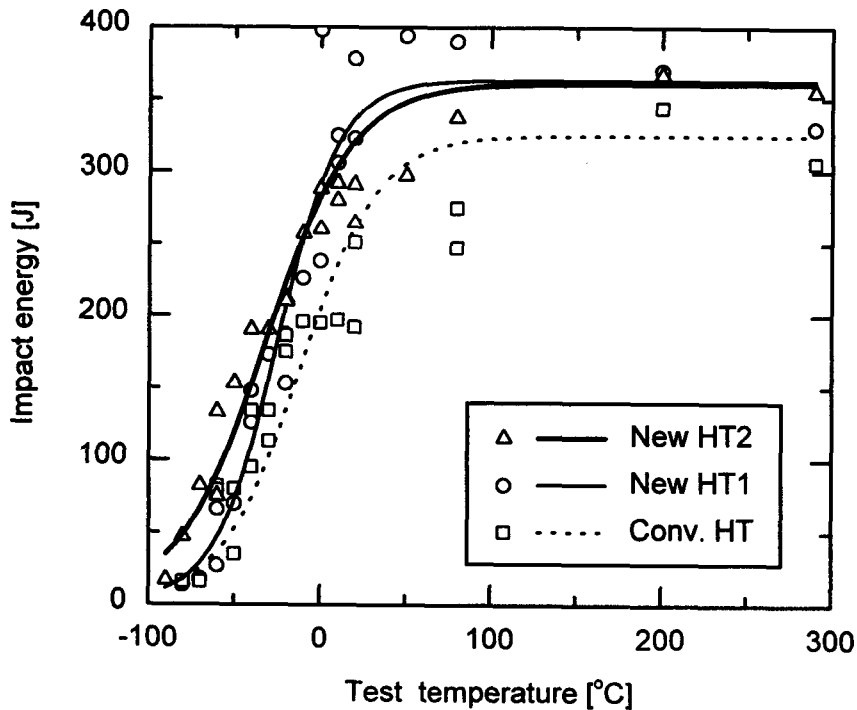


Fig. 1 Charpy impact energy curves

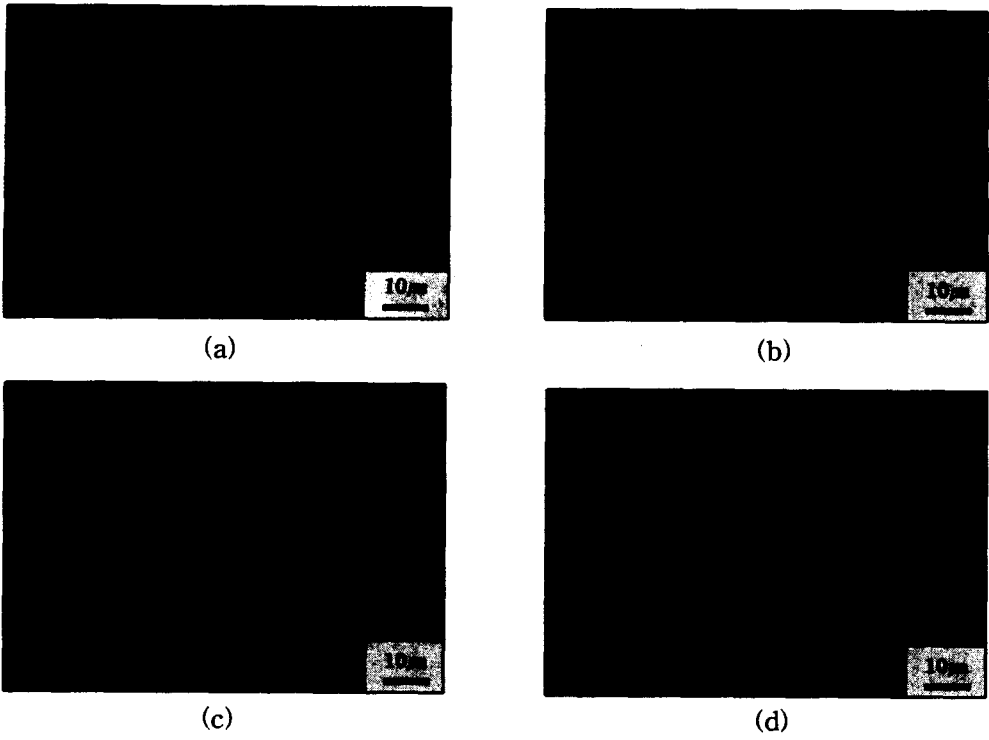


Fig. 2 OM micrographs after (a) Q, (b) Q+IHT, (c) Q+T, and (d) Q+IHT+T

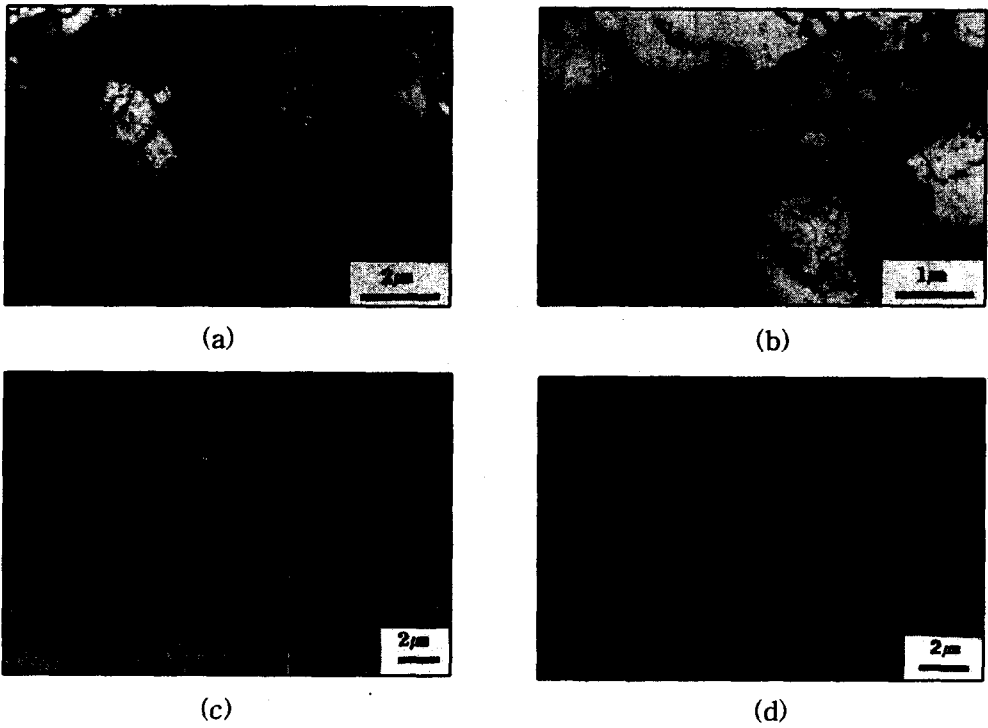


Fig. 3 TEM micrographs after (a) Q+IHT, (b) Q+IHT+T, (c) Q+T, and (d) Q+IHT+T