

이종금속 피복용접부의 후열처리에 따른 탄소이동 해석

김병철* · 안희성** · 김선진* · 송진태***

*한국원자력연구소, **한국원자력안전기술원, ***한양대학교

Analysis of Carbon Migration with Post Weld Heat Treatment in Dissimilar Metal Weld.

B. C. Kim*, H. S. Ann**, S. J. Kim*, J. T. Song***

*Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon 305-353

**Korea Institute of Nuclear Safety, Daejeon 305-353

***Dept. of Materials Engineering, Hanyang University, Seoul 133-791

Abstract Pressurized Water Reactor (PWR) pressure vessels are made of forged low alloy steel plates internally clad with an austenitic stainless steel by welding to improve anti-corrosion properties. They display a characteristic behavior of dissimilar metal weld interface during post weld heat treatment (PWHT) and service at high temperature and pressure. In this Study, Metallurgical structure of weld interface of SA 508 Class 3 forged steel clad with 309L, Austenitic stainless steel after PWHT was investigated. To estimate the width of the carburized/decarburized bands quantitatively, a model for carbon diffusion was proposed and a theoretical equation was derived.

1. 서 론

고온, 고압 등의 가혹한 조건속에 사용하는 압력용기는 최근 들어 새로운 재료의 개발과 용접 기술의 발달로 압력용기의 건전성과 경제성을 동시에 만족 시킬 수 있도록 사용 환경에 적합한 이종재료를 이용[1]하여 고온강도를 갖는 저합금 탄소강의 용기 내부에 Austenitic 계 Stainless 강을 피복용접하여 내식성을 증대시키고 있다. 이러한 이종금속을 피복 용접시킨 압력용기의 경우 저합금 탄소강 용기의 용접이음부에 대한 잔류응력 제거와 균질화를 위하여 용접후 후열처리(PWHT)를 실시하고 있다. 이종금속 용접부는 고합금층과 저합금층의 접합으로 용접 계면을 중심으로 C, Fe, Cr 및 Ni 등 합금원소들의 농도구배가 형성되어 후열처리 및 고온에서 장시간 사용시 물질이동이 발생되고 이로 인한 용접계면에 매우 경한 탄화물층을 형성 [2-5]하며 두 접합금속의 열팽창 계수의 차에 기인한 잔류응력의 존재 [6-8] 등 용접금속의 성능변화를 초래하게 된다. 본 연구에서는 국내 원전의 원자로 압력용기용 단조강재인 SA 508, Class 3 강에 ER 309L, Austenitic Stainless강을 피복 용접한 재료

의 후열처리에 따른 용접 계면 부위의 금속 조직 특성 및 탄소의 이동현상에 대한 실험적 분석을 수행하였고 탄소의 확산모델[4-5]을 설정하여 탄소 이동의 이론적 해석으로 본 압력용기의 장시간 사용시 탄소의 이동현상을 분석하였다.

2. 실험 방법

본 실험에 사용한 재료는 원자력 압력용기용 재료인 SA 508 Class 3 단조강재를 모재로 사용하였으며 용가재는 0.5x60mm 크기의 ER309L Austenitic Stainless Steel Strip으로 실제 압력용기의 피복용접 방법과 동일 조건으로 잠호아크스 트립 피복용접을 수행하였다. 사용한 재료의 화학 조성은 표1과 같다. 또한 피복용접을 수행한 후 열처리는 실제 압력용기의 후열처리 온도인 620 ± 5°C 에서 20hr, 40hr, 60hr, 100hr, 200hr까지 salt bath하에서 각각 등은 열처리를 수행한 후 공냉하였다. 시험편의 조직실험은 광학현미경 및 EPMA를 이용하여 모재에서부터 용접부에 걸쳐 C, Cr 원소의 농도분포를 측정하였으며 아울러 Micro Vickers 경도계를 사용하여 200g의 하중으로 용접계면을 중심으로 각각 100, 200, 500, 1000μm 간격으로 경도를 측정하였다.

Table 1. Chemical Composition of Materials Used
Unit : wt %

Material	C	Si	Mn	Ni	Cr	Mo	V	P
SA 508	0.18	0.3	1.41	0.95	0.22	0.56	0.003	0.005
309 L	0.019	0.53	1.73	13.01	24.69	0.10	0.021	0.021

3. 실험결과 및 고찰

용접 계면부위 조직특성

본 압력용기 재료에 대한 후열처리 결과 사진 1과 2에 나타난바와 같이 탄소의 이동이 발생되어 모재와 용접부의 계면부위에서 탄화물층이 형성됨을 알 수 있었으며 후열처리 시간의 증가에 따라 탄화물층 크기가 증가하는 양상을 나타내고 있다. 또한 사진 3의 EPMA선 분석을 통한 후열처리 시간에 따른 탄소의 농도분포를 살펴보면 as-welded 상태에서는 모재와 용접부에 걸쳐 탄소 이동이 거의 없으나 후열처리 시간의 증가에 따라 모재와 피복용접 계면에서 다량의 탄소가 축적되어 탄화물층을 형성하고 있다. 후열처리 시간에 따라 석출된 탄화물층의 크기 측정값은 그림 1과 같다.

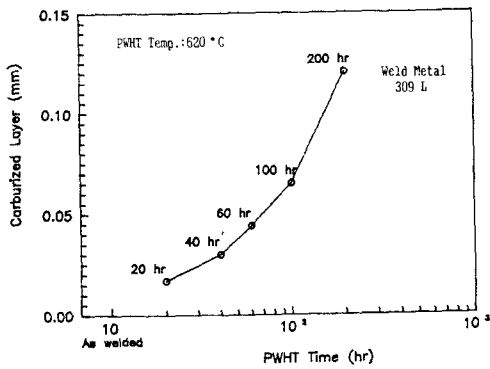


Fig. 1. Experimental values of carburized layer with PWHT time

이러한 탄소 이동으로 인한 후열처리에 따른 모재와 용접부에서의 경도값의 변화는 사진 4와 그림 2에서 나타난바와 같이 후열처리에 의해 탄소가 용접부측으로 이동함으로써 용접 경계부에 인접한 모재측의 경도값이 점점 감소 하였으며 용접계면부위에서는 탄소의 축적 및 탄화물의 석출로 경도가 급격하게 상승하고 있음을 알 수 있다. 이와같이 이종금속의 피복용접부에 대한 후열처리시 ferritic계 모재측에는 탄소의 이동으로 탈탄

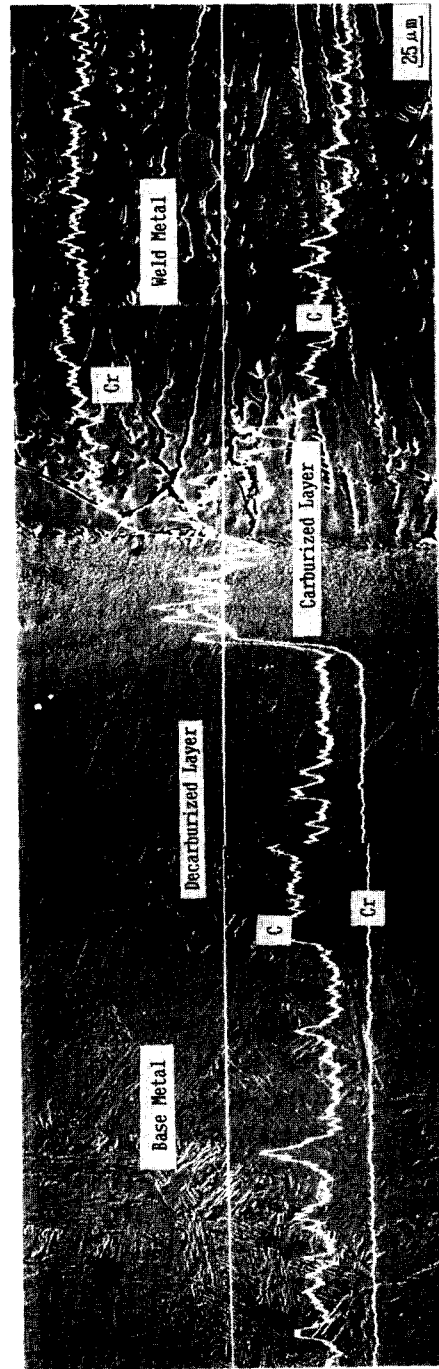


Photo. 1. Micrograph of weld interface showing the formation of carburized/decarburized band with PWHT due to carbon migration in dissimilar metal weld

지역이 형성되고 Austenitic계 용접부측에는 침탄 지역이 형성되며 용접계면부위의 경도값의 급격

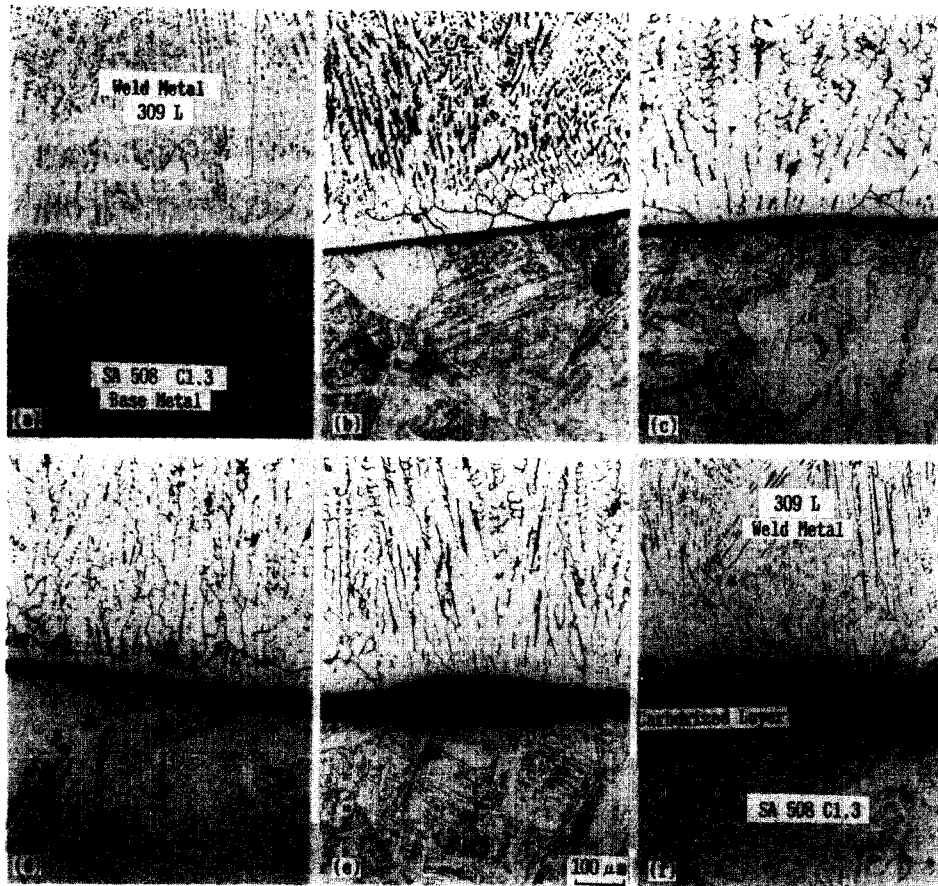


Photo. 2. Growth of carburized band in ferritic-austenitic weldment with PWHT time : (a) as-welded (b) 20hr (c) 40hr (d) 60hr (e) 100hr (f) 200hr

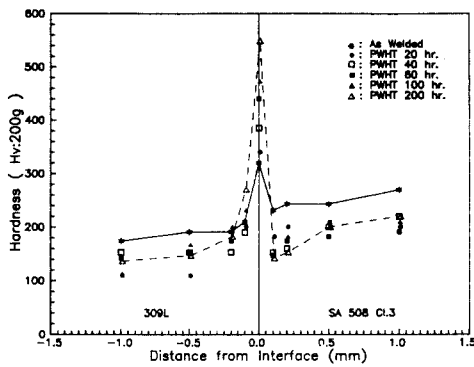


Fig. 2. Micro-hardness profile across Ferritic-Austenitic interface with PWHT time

한 증가는 탄화물의 석출에 기인한다. 이는 Eckel [5, 9, 10] 등이 지적한 바와 같이 620°C 정도의

고온에서 후열처리를 수행 할 경우 Ferrite강 내의 탄소 확산 속도가 Austenite강 내의 탄소 확산 속도보다 약 100배 이상 빠르기 때문에 모재에서 이동해온 탄소가 모재와 용접부의 계면부위에 집적하게 되며 후열처리와 같은 고온에서는 축적된 탄소가 용접부측에 다량으로 존재하는 탄화물 형성원소인 Cr, Mo, V 등과 결합하여 탄화물의 석출이 충분히 가능한 조건을 마련해 주고 있기 때문이다.

탄소의 농도분포 해석

Lee[11] 등은 ferrite와 Austenite의 두 상이 공존하는 피복용접부위의 후열처리에 따른 각 상의 경계부위에서 탄소농도 분포에 대한 일차원 해석을 수행하였다. 먼저 초기 조건으로 해석을 용이하게 하기 위해 두 금속의 용접전 탄소의 활동도에 영향을 주는 모든 합금원소의 확산은 발생되

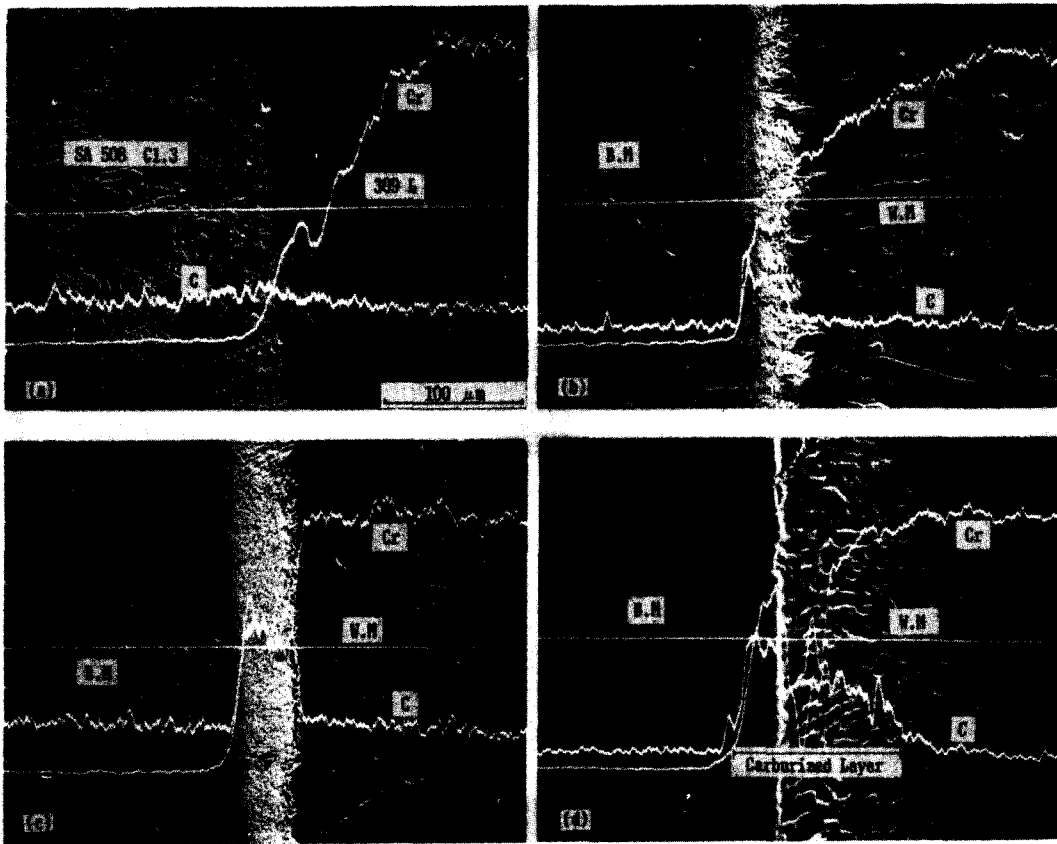


Photo. 3. Analysis of C and Cr concentration distribution across ferritic-austenitic interface by EPMA : (a) as-welded (b) PWHT 40hr (c) PWHT 100hr (d) PWHT 200hr

지 않았다고 가정하고 두 상의 경계에서 화학 포텐셜이 연속하도록 경계조건을 설정하여 각 상에서의 후열처리에 따른 탄소농도 분포식(1), (2)를 도출 하였다.

$$C_c^{\alpha} = C_{\alpha 0} + \frac{(f_c^{\alpha}/f_c^{\gamma}) C_{\gamma 0} - C_{\alpha 0}}{(f_c^{\alpha}/f_c^{\gamma}) \sqrt{(D_c^{\alpha}/D_c^{\gamma})} + 1} \cdot \operatorname{erfc} \left| \frac{X1}{2\sqrt{(D_c^{\alpha} \cdot t)}} \right| \dots\dots\dots (1)$$

$$C_c^{\gamma} = C_{\gamma 0} + \frac{(f_c^{\gamma}/f_c^{\alpha}) C_{\alpha 0} - C_{\gamma 0}}{(f_c^{\gamma}/f_c^{\alpha}) \sqrt{(D_c^{\gamma}/D_c^{\alpha})} + 1} \cdot \operatorname{erfc} \left| \frac{X2}{2\sqrt{(D_c^{\gamma} \cdot t)}} \right| \dots\dots\dots (2)$$

단, C_c^{α} : α 상에서 t 시간 경과후 $X1$ 거리에서의 탄소농도

C_c^{γ} : γ 상에서 t 시간 경과후 $X2$ 거리에서의 탄

소농도

$C_{\alpha 0}$: α 상에서 용접전의 탄소농도

$C_{\gamma 0}$: γ 상에서 용접전의 탄소농도

f_c^{α} : α 상에서 탄소의 활동도 계수

f_c^{γ} : γ 상에서 탄소의 활동도 계수

D_c^{α} : α 상의 탄소 확산계수

D_c^{γ} : γ 상의 탄소 확산계수

erfc : 補誤差 函數

식 (1), (2)에서 나타난바와 같이 탄소의 활동도계수의 비는 탄소의 확산이동에 영향을 미치는 중요한 인자로 작용한다. 즉, 탄소의 활동도는 각 상에서의 탄소의 농도 및 다른 고용원소의 농도에 의존[12] 하며, Wagner[13]는 다성분계에서 상호확산계수들이 다른 용질원소의 존재에 무관하다는 가정하에 한 용질원소의 활동도계수에 대한 관계식 (3)을 유도하였다.

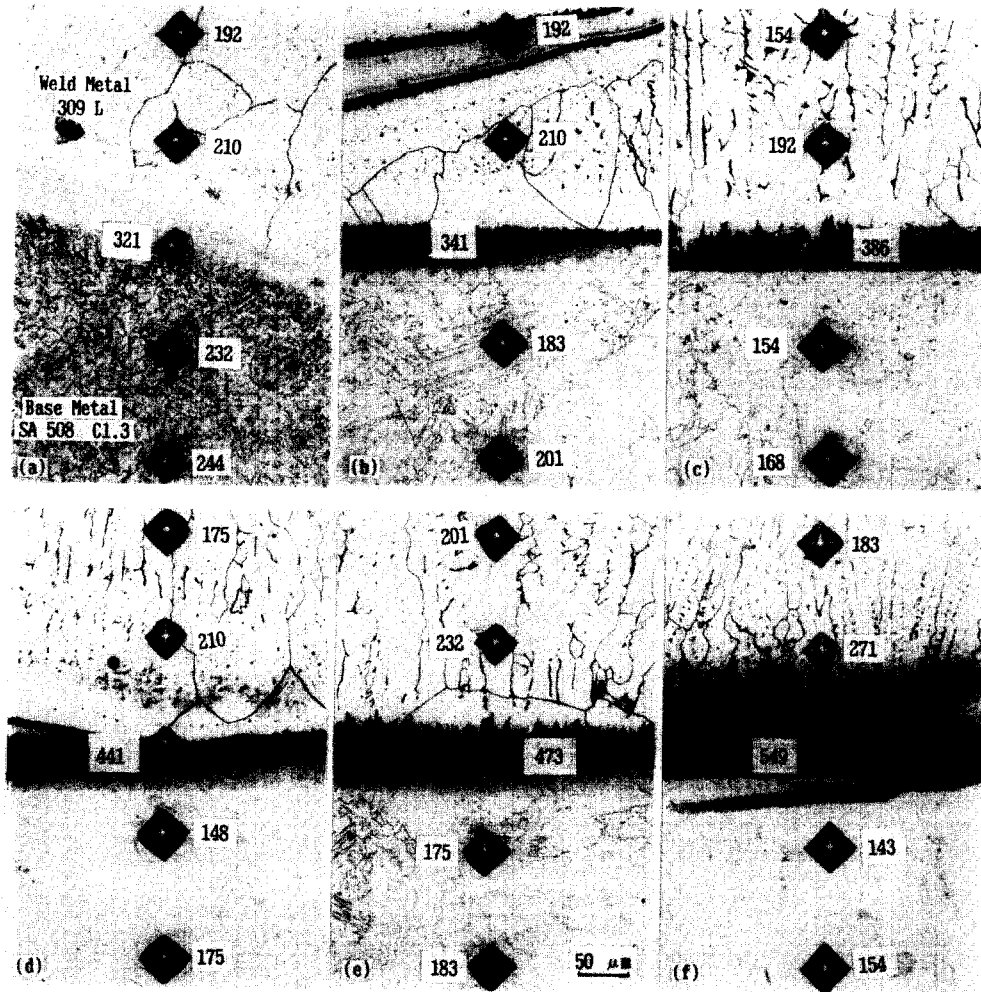


Photo. 4. Variation of micro-hardness values across ferritic-austenitic weld interface with PWHT time : (a) as-welded (b) 20hr (c) 40hr (d) 60hr (e) 100hr (f) 200hr

$$e_i = \log f_i / C_j \dots\dots\dots (3)$$

단, $C_j : X_{j\text{wt}\%}$

e_i : 물질 i에 대한 공존원소 j의 상호작용 매개변수

f_i : i원소의 활동도계수

또한 다성분계의 경우 확산하는 물질 i의 활동도계수 f_i 는 공존하는 다른 원소들의 영향을 나타내는 인수의 곱으로 표시하면

$$f_i : f_i \cdot f_1 \cdot f_2 \dots\dots\dots (4)$$

가 된다.

따라서 본 연구에서는 식 (1), (2)로부터 본 압력용기 재료인 SA 508 CL3강과 309L강에서의 탄소농도 분포식을 유도하기 위하여 편의상 Eckel[5]의 문헌에 의거 본 압력용기 재료와 화

학조성이 비슷한 재료의 700°C에서의 탄소 확산계수를 이용하고 또한 탄소의 활동도계수를 구하

$$D_c^0 = 6.9 \times 10^{-7} \text{cm}^2/\text{sec}(700^\circ\text{C})$$

$$D_c^1 = 5.9 \times 10^{-9} \text{cm}^2/\text{sec}(700^\circ\text{C})$$

Table2. Effect of Co-existent Elements on Activity Coefficient of Carbon

Co-existent Elements(j)	Auxiliary Coefficient e^j
C	1.79
Ni	0.012
W	-0.003
Mo	-0.09
Cr	-0.024
Nb	-0.060

고자 표 2의 문헌[14-16]에 의한 실험치로부터 식 (3), (4)를 이용하여 각각 구하면

$$\text{SA 508 CI 3강} : f_c^\alpha = f_c^\alpha \cdot f_c^{\text{Ni}(0.95\%)} \cdot f_c^{\text{Mo}(0.56\%)}$$

$$f_c^\alpha \times 1.026 \times 0.99 = 1.015 f_c^\alpha$$

$$\text{309L강} : f_c^\alpha = f_c^\alpha \cdot f_c^{\text{Ni}(13.01\%)} \cdot f_c^{\text{Cr}(24.69\%)}$$

$$= f_c^\alpha \times 1.43 \times 0.255 = 0.365 f_c^\alpha$$

여기서 $f_c^\alpha / f_c^\alpha = 118.2$, $f_c^\alpha / f_c^\alpha = 8.46 \times 10^{-3}$

$$D_c^\alpha / D_c^\alpha = 116.95, D_c^\alpha / D_c^\alpha = 8.55 \times 10^{-3}$$

가 된다.

이를 식 (1), (2)에 각각 대입하여 정리하면

$$C_c^\alpha = 0.18 - 0.165 \operatorname{erf} C \left| \frac{X1}{2\sqrt{(D_c^\alpha \cdot t)}} \right| \dots (5)$$

$$C_c^\alpha = 0.019 - 1.77 \operatorname{erf} C \left| \frac{X2}{2\sqrt{(D_c^\alpha \cdot t)}} \right| \dots (6)$$

이 된다. 상기 식 (5), (6)은 본 재료에서의 후열처리에 따른 탄소농도 분포식이 된다. 상기 탄소농도 분포식을 이용하여 620°C에서 20hr, 40hr, 60hr, 100hr 및 200hr동안 후열처리를 실시한 경우 탄소 농도분포를 plotting하면 그림 3과 같다.

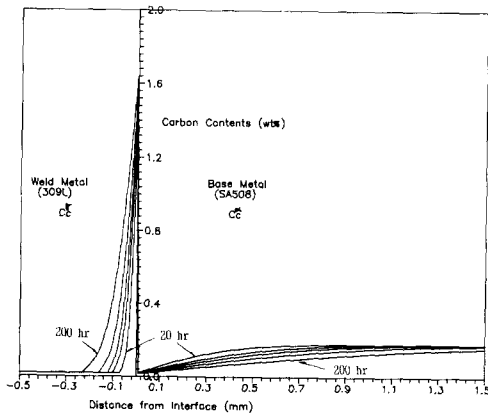


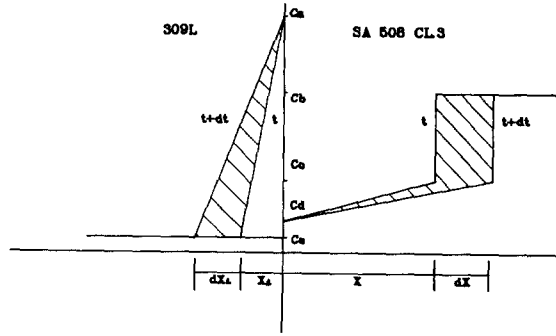
Fig. 3. Theoretical distribution of carbon concentration with PWHT time

침탄층 및 탈탄층 크기의 이론적 해석

압력용기의 사용시간에 따른 탄소이동으로 형성되는 탈탄 및 침탄층 크기를 예측하고자 도출한 탄소농도 분포식에 의거 그림 4와 같이 탄소 확산 모델을 설정[4-5]하여 침탄 및 탈탄층의 크기를 정량화 할 수 있도록 이론식을 도출하였다.

가) 탈탄층의 크기

후열처리 시간 t가 경과한 후 모재부분의 탄소가 이동된 폭을 X로 표시하고, t+dt시간 경과후 탄소의 이동거리를 X+dx라 하자. 먼저 Fick's 1st



Ca : Carbon Content in 309L at Fusion Line
 Cb : Original Total Carbon Content in SA 508 Steel
 Cc : Carbon Solubility Concentration in SA 508 Steel
 Cd : Carbon Content in SA 508 Steel at Fusion Line
 Ce : Original Total Carbon Content in 309L

Fig. 4. Schematic diagram showing the carbon concentration distribution and carburized (X1)/decarburized (X) band for mathematical description in Ferritic-Austenitic interface after PWHT⁽⁴⁾

law에서 단위시간당 단위면적을 통과하는 탄소량 (F)는 탄소의 농도구배 (dc/dx)와 확산 계수(D)의 곱으로 정의되므로 그림 4에서 다음과 같이 표시할 수 있다.

$$F = D_c^\alpha \frac{C_c - C_d}{X} dt \dots (7)$$

또한 시간간격 dt동안 fusion line을 통과한 탄소량 Fdt는

$$Fdt = D_c^\alpha \frac{C_c - C_d}{X} dt \dots (8)$$

이므로 그림 4에서 모재부위의 두 곡선 사이의 면적은 dt시간 동안 이동해간 탄소의 양으로 생각할 수 있으며 이 면적은 $(C_b - C_c/2 - C_d/2)dx$ 이다.

$$Fdt = D_c^\alpha \frac{C_c - C_d}{X} dt = (C_b - C_c/2 - C_d/2)dx \dots (9)$$

적분하여 정리하면

$$X^2 = \frac{C_c - C_d}{C_b - 1/2(C_c + C_d)} \cdot 2D_c^\alpha \cdot t + C1 \dots (10)$$

여기서 C1은 적분상수로서 식(10)의 경계조건에 하나이며 dt가 0이면 확산거리도 0이 되므로 제거 가능하다. 또한 Cc값은 α철의 탄소의 고용한도 값을 초과할 수 없으므로 최대 0.025wt%

미만이 된다. 또한 탈탄밴드의 폭은 Cc와 Cd의 차가 클수록 증가하므로 본 이론식에서는 탄소의 확산 이동이 가장 잘 일어날 수 있는 조건으로 설정 하고자 Cc값은 탄소의 최대 고용 한도 값인 0.025wt%로 한다[17]. 그림 4에서와 같이 거리 X에 대한 탄소농도 curve의 기울기가 증가 할수록 탄소이동의 driving force도 증가하므로 Cd값은 언제나 Cc값보다 작아야 한다. 여기서 Cd값은 fusion line에서 모재의 탄소농도이므로 식 (5)에서 0.02wt%가 된다. 따라서 식 (10)을 다시 정리하면

$$X = 0.25 \sqrt{(D_c \cdot t)} \dots\dots\dots (11)$$

로 나타낼 수 있다.

상기 식 (11)을 이용하면 본 압력용기 재료에서의 탈탄층의 폭을 구할 수 있다.

나) 침탄층의 크기

모재로부터 용접부측으로 시간 간격 dt동안 확산해온 탄소의 양 Fdt가 그림 4에서 용접부 측의 빗금친 두 곡선의 면적 (Aldx1)만큼 침탄되었다고 하면 Fdt=Aldx1이 된다.

즉,

$$D_c \int \frac{C_c - C_d}{X} dt = \frac{C_a - C_e}{2} dx1 \dots\dots (12)$$

$$X dx1 = D_c \int \frac{2(C_c - C_d)}{(C_a - C_e)} dt \dots\dots\dots (13)$$

적분하여 정리하면

$$X_1^2 = \frac{2D_c^2 t(C_c - C_d)}{X(C_a - C_e)} + C2 \dots\dots\dots (14)$$

적분상수 C2는 탈탄층의 식에서와 마찬가지로 역시 제거 가능하다.

또한 용접부에서 탄소의 확산계수 $D_c = 8.55 \times 10^{-3} D_c^*$ 이며 Ca는 fusion line에서 용접부의 탄소농도가 되므로 식 (6)에서 구하면 약 1.79wt% (X1=0에서)가 된다. Ce는 309L 강의 원래 탄소농도 0.019wt%이므로 각각 대입하여 정리하면

$$X1 = 0.21 \sqrt{(D_c^* \cdot t)} \dots\dots\dots (15)$$

로 표시된다.

식 (15)를 이용하면 압력용기의 가동시간에 따라 형성되는 침탄층의 크기를 정량화할 수 있다.

이상과 같이 이론적 해석에서 도출한 탈탄 및 침탄층 크기의 이론식 (11), (15)를 이용하여 후열처리 시간에 따라 형성되는 이론적 크기를 plotting하면 그림 5와 같다. 또한 후열처리에 따

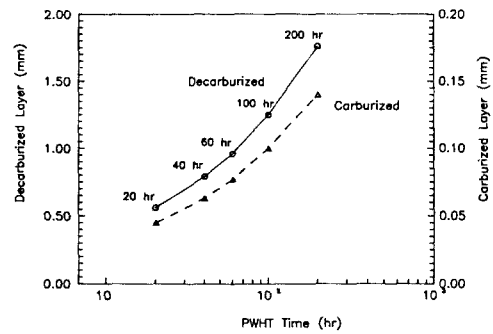


Fig. 5. Theoretical widths of carburized and decarburized layer with PWHT time

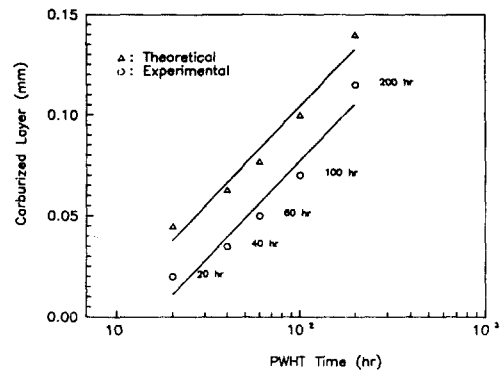


Fig. 6. Comparison of carburized band width between experimental and theoretical value.

른 침탄층의 크기를 식 (15)의 이론치와 그림 1의 실험치를 비교하면 그림 6과 같다. 여기에서 이론치와 측정치의 차이는 이론식 도출시 확산계수를 편의상 700°C의 경우를 도입하였으나 실험온도는 620°C이며 이론식은 열처리 시간에 따라 탄소의 농도구배가 변하지 않는다는 가정하에서 도출하였기 때문이다. 또한 용접부측에서는 탄화물의 석출이 각 상에서 탄소고용도의 변화를 유발시켜 확산속도는 점점 감소하게 된다. Richardson[18]은 Cr, Mo, V등의 탄화물 형성원소가 탄소의 활동도를 감소 시키며 모재 측으로부터 이동해온 탄소와 결합하여 탄화물을 형성함으로써 이들 탄화물이 탄소의 이동을 방해한다고 보고하고 있다.

따라서 앞에서 도출한 침탄크기의 이론식 (X1)은 탄소의 확산이동이 가장 용이한 조건 하에서 유도하였고 실제 원자로 압력 용기의 경우 사용온도가 350°C 정도임을 감안할 때 본 이론식

에 의한 침탄크기의 예측은 매우 보수적이라 할 수 있다.

이상과 같이 도출한 이론식을 이용하여 실제 원자로 압력용기의 가동시간에 따른 침탄층의 크기를 분석해 보면 원자로의 가동수명을 40년으로 볼 때 침탄층의 형성 크기는 약 5.6mm 정도가 되어 원자로 압력용기 내부의 평균 피복 두께인 7mm에는 미치지 못할 것이다. 그러므로 원자로 압력용기의 피복재 부위에 탄화물층의 형성으로 야기될 수 있는 내식성 감소에는 별다른 영향이 없을 것으로 사료된다.

4. 결 론

이종금속 피복용접부의 후열처리에 따른 탄소 이동에 대한 실험적 고찰과 이론적 해석에 관한 연구 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 후열처리에 따른 탄소의 이동으로 모재측에는 탈탄층이 형성되고 용접부측에는 침탄층이 형성되며 침탄지역에서 경도값의 급격한 증가는 탄화물의 석출에 기인한다.
- 2) 본 압력용기 재료의 후열처리에 따라 생성되는 탈탄층의 크기 $X=0.25\sqrt{(D_c^2 \cdot t)}$ 로, 침탄층의 크기 $X_1=0.21\sqrt{(D_c^2 \cdot t)}$ 로 예측 가능하다.
- 3) 원자로 압력용기의 경우 가동 수명동안 탄화

물층이 용기내부의 피복재 표면까지는 도달되지는 못 할 것이다.

참 고 문 헌

1. C. D. Lundin : J. Welding., 58 (1982)
2. H. I. Kawa, etal : IIW Doc. x-785-72., (1972)
3. M. Wafnable, etal : IIW Doc. x-511-69., (1969)
4. J. R. Christoffel, etal : J. Welding., 457 (1956)
5. J. F. Eckel : J. Welding., 170 (1964)
6. P. Blaskovic, etal : J. Surfacing. Int., 1(2), 75 (1986)
7. J. F. King, etal : J. Welding, 354 (1977)
8. H. Thielsch : J. Welding., 37 (1952)
9. F. Ornath, etal : J. Welding., 227 (1981)
10. H. Thielsch : J. Welding., 142 (1952)
11. Y. H. Lee : Ph. D Thesis, Han Yang Univ., (1985)
12. 이 영호, 윤 의박 : 대한용접학회지., 1(2), 46 (1983)
13. Wagner : "Thermodynamics of alloys" Addison-wedey Publishing CD. (1952)
14. R. P. Smith : AcTA Metallurgica., 1, (1953)
15. C. A. Wert : physical review, 79(4), (1950)
16. K. E. Thelning : "Steel and its heat treatment" Butter worths publishing. 2nd Ed. , (1984)
17. F. D. Richardson : J. Iron Steel Inst., 175, 33 (1953)