

이상영역 열처리에 따른 SA508 Gr.3 압력용기강의 미세조직 및  
기계적 성질의 변화

Changes of Microstructure and Mechanical Properties in SA508  
Gr.3 Pressure Vessel Steels after Intercritical Heat Treatment

김민철, 김종식, 이봉상, 홍준화  
한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

2상영역 열처리 공정의 적용에 따른 압력용기강의 물성과 미세조직의 변화를 체계적으로 고찰하였다. 2상영역 열처리를 적용한 소재(IHT)의 경우, 전 온도 영역에서 기존 공정으로 제작된 소재에 비해 우수한 충격인성을 나타내었다. 2상영역 열처리를 통하여 석출물의 평균 크기가 감소하였으며 그 형태도 IHT 소재 내에 분포한 탄화물이 더 구형에 가까운 것을 알 수 있었다. 또한 EBSD분석법을 이용한 결정립 측정결과에서도, 전체적으로 IHT 소재가 작은 결정립을 갖는 것을 확인할 수 있었다. 따라서 IHT 소재의 충격인성 향상은 이러한 결정립의 미세화와 석출물의 분포와 형태, 그리고 크기의 차이에 기인하는 것으로 판단된다.

Abstract

In this study, the changes of mechanical properties and microstructure in reactor pressure vessel steel after IHT(intercritical heat treatment) were systematically examined. The application of IHT to RPV steel resulted in the increase of the upper shelf energy and the decrease of transition temperature. It seemed that the improvement of fracture toughness was caused by the decrease in size of grain and precipitate as well as change of precipitate shape.

## 1. 서론

원자로 압력용기(SA508 Gr.3)는 중성자 조사라는 사용환경의 특수성으로 인하여 가동 조건과 수명에 제한을 받게 된다[1,2]. 또한 원자로 압력용기는 가동중에 교체가 어렵고 보수시에도 고비용이 소요되므로, 발전소의 수명연장 뿐 아니라 충분한 운전여유를 얻기 위해서는 초기에 파괴인성이 높은 원자로 압력용기강을 제조하는 것이 바람직하다. 따라서 경화능 향상을 위하여 합금원소를 첨가하거나 열처리 공정을 변화시키는 방법 등이 다양하게 고려되어 왔다. 그러나 합금원소의 첨가는 원자로 압력용기의 다른 기계적 성질에 미치는 영향을 고려하여 규제되고 있으며[3-6], 또한 원자로 압력용기가 10 inch 정도의 큰 두께임을 고려해 볼 때 빠른 냉각속도를 얻는데도 한계가 있었다[7]. 반면, 2상영역 열처리(intercritical heat treatment, IHT)와 같은 열처리 공정의 변화는 재료의 미세조직을 변화시켜 파괴인성을 충분히 향상시킬 수 있는 것으로 최근의 연구[8-10]에서 보고되었다.

2상영역 열처리는 그림 1에서와 같이,  $A_{C1}$ 과  $A_{C3}$  사이 2상(페라이트+오스테나이트)이 공존하는 온도영역에서 유지한후 냉각하여 페라이트 기지에 5~10%의 마르텐사이트 상을 분산시키는 열처리로써, 강도가 높은 반면 연성이 낮은 HSLA강(high strength low alloy steel)의 성형성을 향상시키기 위해 사용되기 시작하였다[11-16]. 이를 압력용기강에 적용한 일련의 연구[8-10]에서 2상 영역인 710~740°C에서 4~8시간 동안의 2상영역 열처리를 추가하므로써 상온 충격에너지가 크게 증가하는 것을 확인하였다. 이 결과와 원자로 압력용기의 두께를 고려하여 결정한 725°C/6시간의 최적 2상영역 열처리를 통하여 기존의 열처리공정을 적용한 소재와 비교하여 상온 충격에너지는 30% 증가하고 연성-취성 전이온도도 약 30°C 정도 개선되는 효과를 얻을 수 있었다.

본 연구에서는 파괴인성 개선에 우수한 효과를 보였던 2상영역 열처리를 실제 적용하여 두산 중공업에서 생산된 시제품의 특성을 체계적으로 평가하고자 하였다. 먼저, 같은 조성을 갖으며 기존공정으로 열처리된 소재와 2상영역 열처리를 적용한 소재의 기계적 특성을 평가하여 비교하였다. 또한 두 소재의 미세조직의 차이를 평가하기 위해 image analyser를 이용한 석출물의 형태와 분포를 고찰하고, EBSD 분석법을 이용하여 유효결정립의 크기를 측정하였다. 이를 바탕으로 두 소재의 기계적 특성의 차이를 미세조직적인 관점에서 고찰해 보았다.

## 2. 실험방법

본 연구에 사용된 재료는 두산중공업에서 제조한 Mn-Ni-Mo 계열의 저합금강인 SA508 Gr.3 강으로, 그 화학조성을 ASME/ASTM 규정[5,6]에서 요구되는 조성표 1에 나타냈다. 제강 및 단조후 품질열처리시에는 그림 2와 같이 2상영역 열처리를 적용한 소재와 적용하지 않고 기존 열처리공정만을 적용한 두가지 소재로 나누어 열처리를 진행하였다. 템퍼링 공정의 조건은 모두 기존 공정의 조건(655°C/5hr)을 이용하였으며 한 소재에만 730°C/5hr의 2상영역 열처리 공정을 추가하여 열처리하였다. 각 소재의 구분을 위하여 2상영역 열처리를 적용한 소재는 IHT (intercritical heat treatment), 기존 열처리 공정으로 제조된 소재를 CHT(conventional heat treatment)로 명명하였다.

두 소재의 기계적 특성의 차이를 확인하기 위해 충격시험과 인장시험을 수행하였다. 시험재료는 표준 Charpy V-notch 충격시험편과 2.5 mm 직경을 갖는 봉상의 소형인장시험편으로 가공하였다. 충격시험은 SATEC사의 SI-ID3를 이용하여 초당 5.18 m의 충격속도로 ASTM E23의 절차에 따라 -80~100°C의 온도범위에서 수행하였다. 온도에 따른 충격에너지값들의 변화를 curve fitting 하기 위해 hyperbolic tangent function을 이용하였다 [17]. 인장시험은 상온에서 초당  $5.2 \times 10^{-4}$ 의 변형속도로 시험하였다.

광학현미경과 주사전자현미경 관찰을 위한 시편들은 0.25  $\mu\text{m}$ 까지 연마한후 1 % nital과 4 % picral의 혼합 부식액, 또는 1 % sodium metabisulfate 수용액과 4% picral이 혼합된 LePera 부식액으로 부식시켜 준비하였다. 주사전자현미경 관찰 결과를 이용하여 2상영역 열처리 적용 여부에 따른 석출물의 형태 및 분포를 정량하였다. 또한 EBSD 분석을 위해 시료의 표면을 0.05 $\mu\text{m}$  알루미나 파우더를 이용하여 연마한 후 약한 전해연마를 하였다. 최종적으로 2% nital 용액에서 에칭을 하여 기본적인 조직을 노출하였다. 분석은 JEOL JSM 6300 SEM내에서 15KeV로 시료를 70°기울여서 수행하였다. EBSD 분석에 의한 각 결정들의 결정방위 결정은 Oxford사의 Link OPAL system을 이용하여 수행하였다.

## 3. 실험결과 및 고찰

### 충격 및 인장특성 비교

그림 3은 -80~100°C에서 충격시험을 수행한 결과이다. 그림에서 나타나듯이 전체적으로

로 2상영역 열처리를 적용한 소재(IHT)가 기존 열처리 공정으로 생산된 소재(CHAT)에 비해 전 온도 영역에서 높은 충격흡수에너지를 나타내는 것을 확인할 수 있다. 따라서 충격 시험에서 결정되어지는 T41J이나 T68J 값도 IHT소재는 각각  $-45^{\circ}\text{C}$ ,  $-33^{\circ}\text{C}$ 를 나타낸 반면 CHAT 소재의 경우에는 각각  $-28^{\circ}\text{C}$ ,  $-13^{\circ}\text{C}$ 의 값을 갖는 것으로 나타났다. 또한 최대흡수에너지(upper shelf energy, USE)도 CHAT 소재의 경우에는 255J을 나타낸 반면 IHT 소재는 이보다 27%증가한 324J의 높은 값을 기록하였다. 이러한 결과는 실험실 규모에서 진행되었던 안연상 등의 연구결과[8-10]와도 잘 일치하는 결과이며 실제 시제품 규모의 소재에 대해서도 2상영역 열처리를 통한 파괴인성의 개선 효과를 확인할 수 있는 결과이다.

충격인성의 경우에는 앞서와 같이 2상영역 열처리를 적용함으로써 뚜렷한 개선효과가 나타나는 것을 확인할 수 있었다. 그러나 그림 4에서와 같이, 상온에서의 인장시험 결과를 보면 항복강도나 인장강도는 오히려 IHT 소재가 약간 낮게 나오는 것을 알 수 있다. 이러한 결과는 실험실 규모로 진행되었던 안연상 등의 결과[8-10]에서도 유사하게 나타났으며, 템퍼링 온도의 조절로서 충분히 개선될 수 있음이 확인되었다. 일반적으로 템퍼링시에는 온도가 높을수록, 그리고 유지시간이 길수록 재료의 강도는 감소하는 것으로 알려져 있다. 하지만 본 연구에서 사용된 IHT 소재의 경우에는 기존 열처리 공정에서 템퍼링 조건은 변경하지 않고 2상영역 열처리 공정만을 추가하였기 때문에 이와 같은 현상이 나타난 것으로 판단된다.

### 석출물의 분포와 형태

2상영역 열처리를 통한 파괴인성의 개선효과는 결정립 크기의 미세화와 재료내에 분포하는 석출물의 구형화와 크기의 감소에 기인한다. 오스테나이트 영역에서 퀴칭에 의해 생성되었던 가늘고 긴 탄화물 균집체들이 2상영역 가열중 부분적으로 용해되고 이러한 탄화물 주위에서 우선적으로 오스테나이트 핵생성과 성장이 이루어진다. 따라서 2상영역 열처리시에 형성되는 오스테나이트 결정립은 비교적 많은 양의 탄소를 함유하여 경화능이 향상되게 된다. 이어지는 퀴칭에 의해서 2상영역 열처리에 의해 형성되었던 오스테나이트 결정립들은 마르텐사이트 조직으로 변화하게 된다. 따라서 기존의 열처리 공정에 비해 2상영역 열처리 후의 조직은 새로운 오스테나이트의 형성 및 이의 마르텐사이트 변태 그리고 이어지는 템퍼링에 의해 템퍼드 마르텐사이트(tempered martensite) 조직으로 변화하여 전체적으로 결정립의 미세화를 유발시킨다. 또한 2상영역 열처리로 인해 생성되었던 마르텐사이트 내부에 과포화되어 있던 탄소가 이어지는 템퍼링 과정에서 탄화물로 석출

되는데, 마르텐사이트내의 많은 핵생성 위치에서 동시에 형성됨으로서 미세한 구형의 탄화물로 재료내에 균일하게 분포하게 된다.

2상영역 열처리의 적용으로 인한 미세조직의 변화는 그림 5의 IHT 소재와 CHT 소재의 SEM 사진에서도 잘 나타나고 있다. 전체적으로 IHT 소재가 CHT 소재에 비해 작은 패킷(packet) 크기를 갖으며 석출물 또한 미세하게 분포하는 것을 알 수 있다. 두 소재내의 석출물의 분포와 형태의 정량적인 비교를 위해 그림 5(b),(d)와 같이 고배율의 SEM 사진을 이용하여 석출물 정량화를 시도하였다. 그림 6은 IHT, CHT 소재에 대한 석출물 정량화 결과를 그래프로 나타낸 것이다. 그래프에서 볼수 있듯이 미세한 석출물들의 분포는 CHT에 비해 IHT 소재가 높은 것으로 나타나나, 실제 재료의 파괴인성에 영향을 줄 수 있는 조대한 석출물들은 CHT 소재에 더 많이 분포하는 것으로 나타났다. 석출의 평균 크기를 측정해 본 결과, IHT 소재는  $0.13\mu\text{m}$ 이고 CHT 소재는  $0.15\mu\text{m}$ 로 높게 나타났다. 또한 석출물의 형태를 의미한 aspect ratio도 각각 1.66과 1.87로 IHT 소재 내에 분포한 탄화물이 더 구형에 가까운 것을 알 수 있다. 따라서 앞서 충격시험에서 나타난 IHT 소재의 충격인성의 향상은 이러한 결정립의 미세화와 석출물의 분포와 형태, 그리고 크기의 차이에 기인하는 것임을 알 수 있다.

### 유효결정립 측정

2상영역 열처리에 의한 결정립 미세화 효과를 정량적으로 비교하기 위해서 두 소재의 결정립 크기를 EBSD분석법을 이용하여 측정해 보았다. SA508 Gr. 3 압력용기강은 대표적인 베이나이트 조직을 나타낸다. 이러한 베이나이트 조직은 구 오스테나이트 결정립계, 패킷, 래스, 아결정립 등 매우 복잡한 미세조직을 나타내어 일반적인 광학현미경이나 SEM관찰을 이용하여서는 결정립계의 구분이 매우 어렵다. 따라서 EBSD분석법을 이용하여 결정방위차 관점에서 결정립을 측정하고 이를 통해 정의되는 결정립을 유효결정립이라 정의하였다. 실제로 이러한 결정립계의 구분 및 결정립 크기의 결정에 있어서 실제 재료의 파괴나 변형에 있어서 영향을 줄 수 있는 기준인 결정방위차를 이용하여 정의하는 것은 하다고 생각된다.[18]

그림 7은 EBSD에 의해 분석된 결정방위차에 의한 mapping 결과를 보여주고 있다. 그림 7(a)는 EBSD 분석이 수행된 위치에서의 SEM 사진을 보여주고 있으며, (b)는 사진 (a)와 동일한 위치에서 얻어진 결정방위 mapping을 보여준다. 각 색깔이 의미하는 방향은 그림 7(b) 위의 color key에 나타내었다. 이러한 mapping들을 종합하여 특정 방위허용각 (misorientation tolerance angle)에 대해 구한 결정립 모양은 그림 7(c)와 같다. 그림

7(c)는 10°의 방위허용각을 적용한 결과인데, 즉 이것은 10° 미만의 결정방위차를 갖는 영역은 동일한 결정립으로 간주한 결과이다. 이때 각 색깔은 결정방위를 의미하는 것이 아니라 결정립의 구분을 위한 것이다. 위와 같은 방법으로 IHT 소재와 CHT 소재에 대해 EBSD 분석을 수행하고 특정 방위허용각에서 각각 결정립크기를 구한 결과를 그림 8에 나타내었다. 결정립의 크기 측정시에는 보다 평균적인 값을 구하기 위해 그림 7의 분석영역보다 낮은 배율을 이용하여 보다 많은 결정립이 분석에 포함되도록 하였으며, 또한 여러 영역을 분석하여 그 평균값을 이용하였다. 그림 8에서와 같이 IHT 소재가 CHT 소재에 비해 조금 작은 결정립 크기를 나타내는 것을 확인하였다. 방위허용각을 15도로 하였을때의 유효결정립의 크기는 IHT 소재의 경우는 11.1 $\mu\text{m}$ , CHT 소재는 11.9 $\mu\text{m}$ 로 IHT 소재가 약 0.9 $\mu\text{m}$  작은 것으로 나타났다. 이러한 결과는 앞서 설명한 2상영역 열처리에 의한 결정립 미세화 효과와도 잘 일치하는 결과이다.

#### 4. 결론

2상영역 열처리 공정을 적용에 따른 압력용기강 시제품의 물성과 미세조직의 변화를 고찰한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 2상영역 열처리를 적용한 소재(IHT)의 경우, 전 온도 영역에서 기존 공정으로 제작된 소재(CHT)에 비해 우수한 충격인성을 나타내었다. 충격시험으로 결정되어진 T<sub>41J</sub>이나 T<sub>68J</sub> 값도 각각 -45°C, -33°C를 나타내어 CHT 소재의 경우의 -28°C, -13°C보다 낮게 나타났다으며 최대흡수에너지(upper shelf energy, USE)도 CHT 소재(255J)보다 높은 324J을 나타내었다.
2. 2상영역 열처리를 통하여 석출의 평균 크기가 0.15 $\mu\text{m}$ (CHT)에서 0.13 $\mu\text{m}$ (IHT)로 감소하였으며 석출물의 형태도 IHT 소재 내에 분포한 탄화물이 더 구형에 가까운 것을 알 수 있었다. 또한 EBSD분석법을 이용한 결정립 측정결과에서도, 전체적으로 IHT 소재가 작은 결정립을 갖는 것을 확인할 수 있었다. 따라서 IHT 소재의 충격인성 향상은 이러한 결정립의 미세화와 석출물의 분포와 형태, 그리고 크기의 차이에 기인하는 것으로 생각된다.

#### 후기

본 연구는 과학기술부의 원자력 중장기 연구개발사업중 파괴특성평가 및 향상기술개발  
과제의 일환으로 수행되었습니다.

## 5. 참고문헌

1. J.H. Hong, Bulletin of the Korean Institute of Metals and Materials, 3 (1990) 159-168.
2. G.R. Odette, Scripta Metallurgica, 17 (1983) 1183-1188.
3. J.R. Hawthorne, Nuclear Engineering and Design, 89 (1985) 223-232
4. S. Ishino, T. Kawakami, T. Hidaka and M. Satoh, Nuclear Engineering and Design, 119 (1990) 139-148
5. ASME, Specification for quenched and tempered vacuum-treated carbon and alloy steel forgings for pressure vessels, ASME SA-508/SA-508M, (1995) 785-792.
6. ASTM, Standard specification for quenched and tempered vacuum-treated carbon and alloy steel forgings for pressure vessels, ASTM A508/A508M, (1995) 1-6.
7. J.T. Kim, H.K. Kwon, K.C. Kim and T.M. Kim, ASTM STP 1259, E.G. Nisbett and A.S. Melilli, Eds., ASTM, 1997
8. Y.S. Ahn, Y.J. Oh, H.D. Kim, G.M. Kim and J.H. Hong, J. Kor. Inst. Met. & Mater., 38 (2000) 466-473
9. Y.S. Ahn, Y.J. Oh, G.M. Kim and J.H. Hong, J. Kor. Inst. Met. & Mater., 38 (2000) 1309-1316
10. Y.S. Ahn, H.D. Kim, T.S. Byun, Y.J. Oh, G.M. Kim and J.H. Hong, Nuclear Engineering and Design, 194 (1999) 161-177
11. K.D. Haverkamp, K. Forch, K.-H. Piehl and W.Witte, Nuclear Engineering and Design, 81 (1984) 207-217.
12. E.G. Nisbett, Journal of Engineering Materials and Technology, Transactions of ASME, 100 (1978) 338-347.
13. E.G. Nisbett, R.D. Asp and D.E. Morgan, 8th International Forgemasters Meeting, 30, 1977, 23-28.
14. T.A. Skamletz and W.W. Grimm, ASTM STP 903, E.G. Nisbett and A.S. Melilli,

Eds., ASTM, Philadelphia, 1986, pp 410–424

15. C.H. Syn, S.H. Jin and J.W. Morris, Jr, Metallurgical Transactions A, 7A (1976) 1827–1832.
16. T. Wada and W.C. Hagel, Metallurgical Transactions A, 7A (1976) 1419–1426.
17. W. Oldfield, Curve fitting impact test data: A statical procedure, ASTM Standardization News, (1975) 24–29
18. M. C. Kim, Y. J. Oh and J. H. Hong, Scripta Mater, 43 (2000) 205

Table 1. The chemical composition of a test material. (wt.%)

Element	C	Mn	Si	P	S	Ni	Cr	Mo	Al	Cu	V	Fe
Test material	0.21	1.40	0.25	0.005	0.002	0.82	0.18	0.48	0.029	0.04	0.003	Bal.
ASME/ASTM specification	max. 0.25	1.2-1.5	0.15-0.40	max. 0.025	max. 0.025	0.4-1.0	max. 0.25	0.45-0.6	-	-	max. 0.05	Bal.



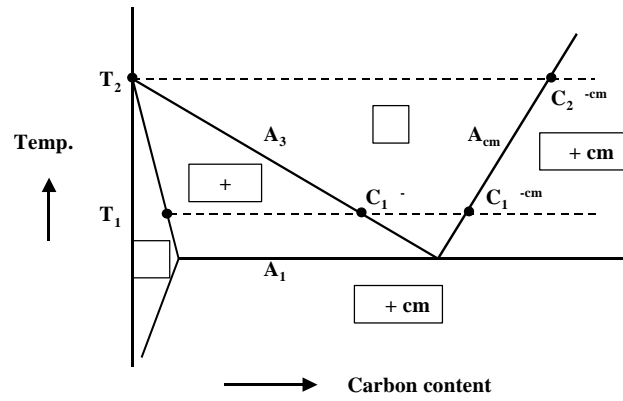


Fig. 1. Schematic phase diagram of Fe-C binary system.

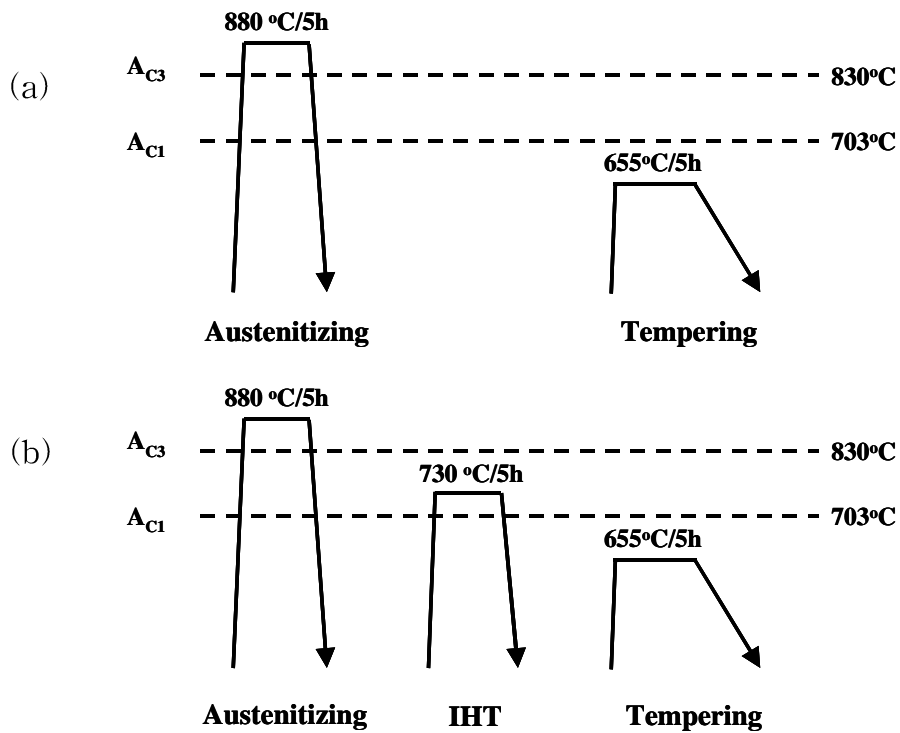


Fig. 2. Schematic sketch of two different heat treatment cycles. (a) CHT  
(b) IHT.

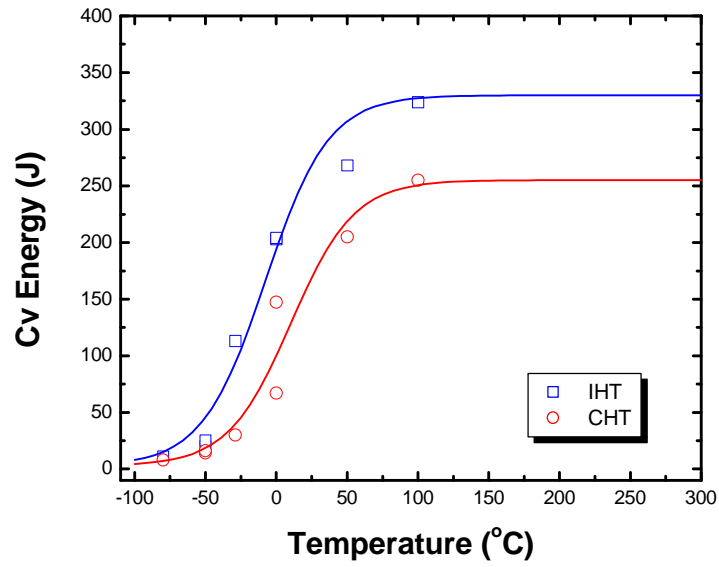


Fig. 3. Charpy impact energy vs. temperature curves for CHT and IHT

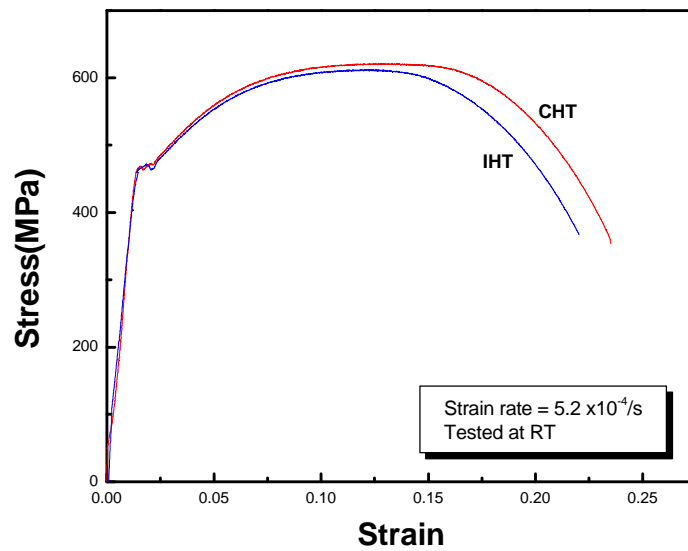


Fig. 4. Stress-strain curves for CHT and IHT at room temperature.

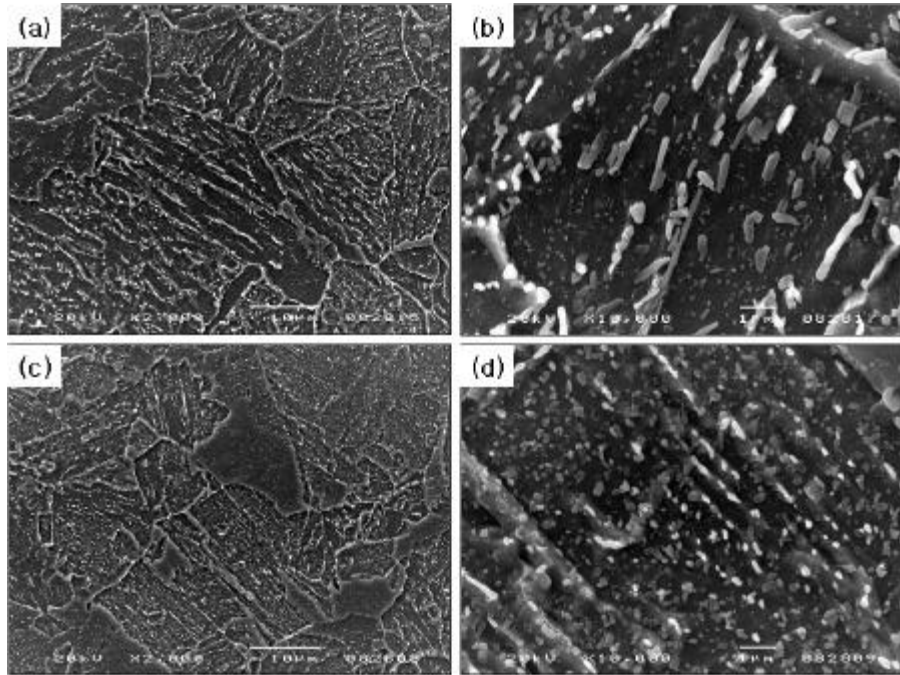


Fig. 5. SEM images of CHT(a, b) and IHT(c, d).

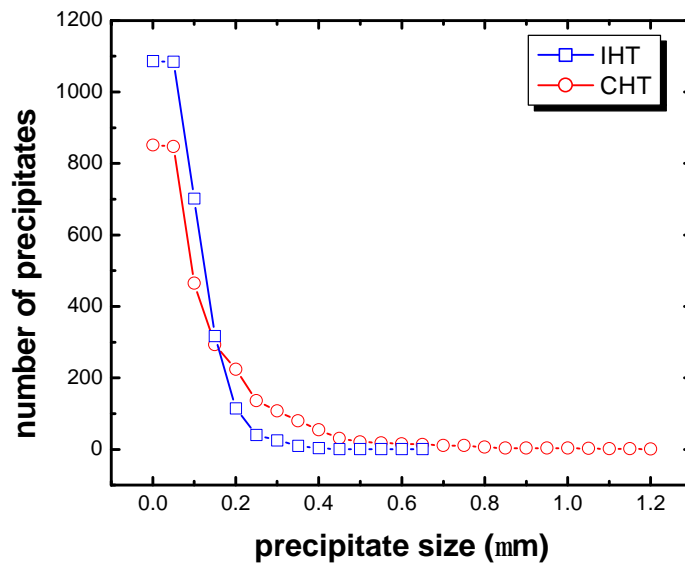


Fig. 6. Size distributions of precipitates in CHT and IHT.

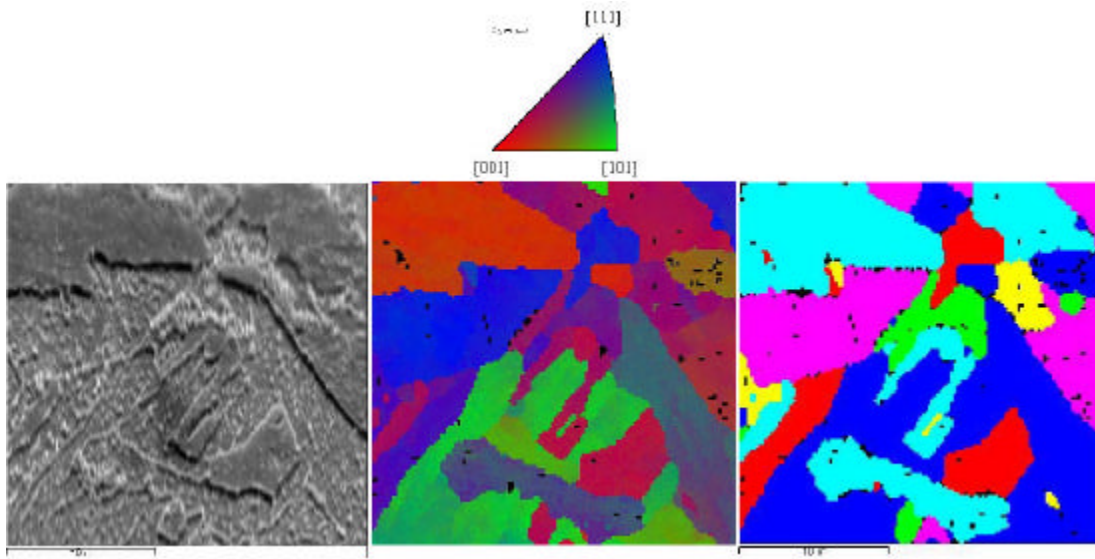


Fig. 7. (a) SEM image of analyzed area in IHT and EBSD mapping (b) for normal direction and (c) with tolerance angle  $10^\circ$ .

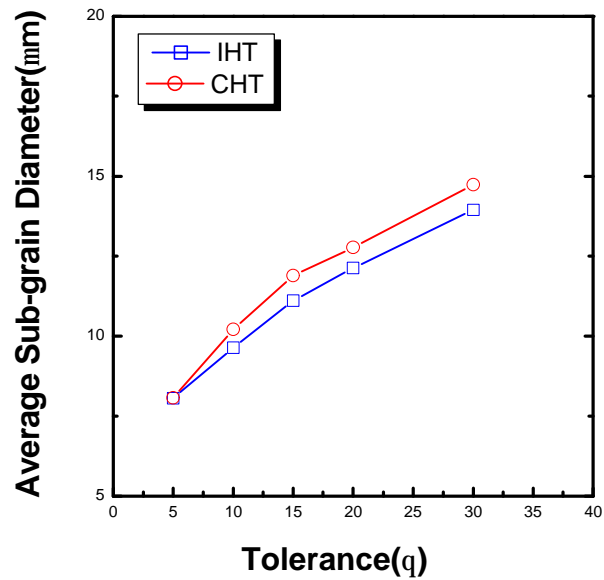


Fig. 8. Plot for the effective grain size with respect to the tolerance in misorientation angle