

## 압력용기 클래딩재의 미세조직 및 인장 특성

### The Microstructure and Tensile Properties of RPV Cladding Material

이주석, 김인섭

한국과학기술원  
대전광역시 유성구 구성동 373-1

지세환, 강영환, 주용선, 유병옥, 정양홍

한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

#### 요 약

광학 및 투과전자현미경을 사용하여 압력용기강 클래딩재의 (type 309L) 미세조직학적 특성을 관찰하였고 인장실험을 수행하였다. 후열처리의 영향으로 초기의 오스테나이트/ $\delta$  페라이트 입계면을 따라서 Cr 함량이 높은 탄화물 ( $M_{23}C_6$  type) 이 다량 석출되었으며 입계면은  $\delta$  페라이트 기지내로 이동하였다. 또한 취성상인 시그마 ( $\sigma$ ) 상을 관찰 할 수 있었으며, 인장시험결과 균열의 성장 및 최종파단은 입계면을 따라서 미세하게 분포한 Cr-rich 탄화물에 의한 것으로 판단되었다. 클래딩과 압력용기강 모재와의 회석으로 용접 용융선에서는 오스테나이트/마르텐사이트 상이 생성되었다.

#### Abstract

The microstructural characteristics and transformation behavior of RPV clad material (type 309L) was characterized by optical and transmission electron microscopy. Small tensile test was also performed. As a result of postweld heat treatment Cr-rich carbides ( $M_{23}C_6$  type) were uniformly distributed along the initial  $\delta$  ferrite/austenite grain boundaries and that resulted in the grain boundary migration into the  $\delta$  ferrite phase. The brittle sigma phase was also introduced. Fine chromium rich carbide particles along the grain boundary provided microvoid nucleation site and that led to final fracture in the tensile specimens at room temperature. At the weld fusion line there existed austenite plus martensite phase that were resulted from excessive dilution effects between RPV steel and clad materials.

#### 1. 서 론

발전소 일차계통의 부식현상과 방사성 오염을 줄이기 위해 원자로압력용기 내벽에는 300 계열의 오스테나이트 스테인레스 용접자재를 사용하여 수 밀리미터의 두께로 클래딩을 수행한다. 그러나 300 계열 용접자재를 사용하여 압력용기 클래딩 수행할 경우 일정량의  $\delta$  페라이트상이 생성되며 이는 열화현상 (thermal aging) 과 더불어 중성자 조사에 취약한 것으로 알려져 있다[1]. 중성자조사 영향에 의한 오스테나이트 스테인레스 및 페리틱 강재의 기계적 물성 변화로는 항복강도 및 연성-취성 천이온도의 증가, 상부흡수에너지 및 파괴인성의 저하로 알려져 있고 이는 발전소 수명기간동안 건전성 유지에 심각한 영향을 줄 수 있다.

일반적으로 소량의  $\delta$  페라이트는 오스테나이트 스테인레스 강의 용접시에 고온 찢김 및 고온균열 현상을 방지하는 장점이 있으나[2], 600~900℃ 구간에서 장시간 노출될 경우, 오스테나이트 및 Cr-rich 탄화물과 취성상인 시그마 상으로 분해되는 것으로 알려져 있다[3]. 따라서, 클래딩의 미세조직학적인 특징과 기계적 물성치의 변화를 중성자 조사전후에 관찰하는 것은 압력용기 건전성 평가 및 발전소 수명연장과 관련하여 매우 중요하다. 본 연구에서는 SAW (submerged arc welding) 방법으로 최대 입열량을 조절하여 두 종류의 클래딩을 수행하였으며 조사 전 시험재료의 미세조직 관찰 및 인장시험을 수행하였다.

## 2. 실험방법

시험에 사용된 재료는 실제 상업용 발전소에 사용되는 type 309L 용접자재로 100' x300"x500' mm 의 판상 SA508 Cl.3 압력용기강에 SAW 방법으로 클래딩 하였다. 시험재료의 제공 및 클래딩은 (주)두산중공업에서 수행되었다. 309L 의 화학성분은 표 1 과 같으며, 전압, 전류 및 용접 속도 등의 용접 변수를 조절하여 2 개의 최대 입열량을 변화시켰다 (표 2). 클래딩의 두께는 6mm 정도 였다. 클래딩은 121℃의 최소예열온도, 176℃의 최대층간온도로 SAW 방법으로 수행하였으며 후열은 210~310℃ 에서 2시간 수행되었다. 클래딩 후 압력용기의 후열처리는 620~628℃ 에서 41시간 동안 하였다.

광학현미경 관찰을 위한 시편 예칭은 30 ml HCl +30 ml HNO<sub>3</sub>+ 45 ml glycerol + 1 ml HF 용액을 사용하였다. 투과전자현미경 관찰용 박판과 인장시험편은 용접용용선에서 2mm 떨어진 부위에서 채취하였다 (그림 1). 박판은 19% ethanol +27% buthyl cellosolve + 17% percholic acid + 37% distilled water 용액을 사용하여 -25℃, 10V 에서 트윈제트 전해 연마기를 사용하여 천공되었다. 석출물과 기지의 결정학적 분석은 제한시야회절 (SADP) 을, 화학성분 분석은 에너지분산 X-선분광 분석 (EDS) 을 사용하였다. 소형 인장시험편은 폭 2 mm, 두께 0.5mm, 게이지 길이 9 mm 인 소형 판상 시험편이다 (그림 2). 시험온도는 상온, 150℃, 289℃ 이며 변형률 속도는  $6.3 \times 10^{-4}$  /s 였다.

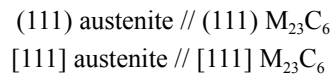
## 3. 결과 및 토의

### 3.1 미세조직 관찰

최대 입열량 변화에 따른  $\delta$  페라이트의 변화는 크지 않았다 (표 2). 후열처리 전, 최대 입열량이 큰 경우 (Kss1) 10.2의 페라이트 수(F.N; ferric number)를 입열량이 낮을 경우에는 (Kss2) 9.1의 F.N 을 나타내었으며, 후열처리 후에는 각각 6.0과 6.6으로 거의 유사하였다. 이처럼 열처리후 F.N 이 낮아진 현상은  $\delta$  페라이트상의 오스테나이트 및 Cr-rich 탄화물로의 변태 그리고 시그마상의 생성으로 설명되며 본 실험 결과와도 일치한다[3, 4].

그림 3 은 클래딩의 광학현미경 사진으로 오스테나이트 입계면을 따라서  $\delta$  페라이트가 분포되어 있음을 보여준다. 용접용융선 부근에서는 압력용기강 모재와 클래딩재의 회석현상이 관찰되었다. (일반적으로 single wire SAW 용접에 의해서 30~60%의 회석현상이 일어난다.) 이 결과로 그림 4 의 Schaffler 도표에서 클래드부의 오스테나이트/ $\delta$  페라이트 영역이 오스테나이트/마르텐사이트 영역으로 이동함에 따라 용융선 부근에서 마르텐사이트 상이 생성됨을 알 수 있다. 이는 micro Vicker's 경도 시험값이 용융선 부근에서 매우 높은 것으로도 확인된다 (그림 5).

투과전자현미경으로 미세조직 관찰결과 오스테나이트,  $\delta$  페라이트,  $M_{23}C_6$  탄화물 및 시그마 상이 전반적으로 많이 관찰 되었다. 그림 6a 및 6c 에서는  $M_{23}C_6$  탄화물이  $\delta$  페라이트/오스테나이트 혹은 오스테나이트/오스테나이트 경계면을 따라서 분포하고 있음을 보여준다. 그림 6b 는 그림 6a 의 오스테나이트와  $M_{23}C_6$  탄화물의 제한시야회절상이다. 그림에서 강한 회절빔은 오스테나이트 기지에서, 약한 회절빔은 탄화물에서 나오는 것이다. 이를 통하여 탄화물은 면심입방구조 (fcc) 이고 오스테나이트 기지와 다음과 같은 cube//cube 관계이며 기지보다 3배 큰 격자상수를 가짐을 알 수 있었다.



또한 에너지분산 X-선 분광분석결과 다른 미량의 원소들을 무시 하면 Cr 및 Fe 함량이 72.3 과 27.7 wt.% 로 각각 측정되었다. 그림 6c 에서 관찰되듯이 후열처리로 인해  $\delta$  페라이트의 분해가 시작되면  $\delta$  페라이트/오스테나이트 경계면에서 탄화물이 성장하게 되고, 탄화물 성장에 필요한 다량의 Cr 원소는  $\delta$  페라이트 내에서 공급 받게 된다. 이로 인하여 Cr 이 고갈된  $\delta$  페라이트는 새로운 오스테나이트로 성장하게 되어 결과적으로 입계면이  $\delta$  페라이트 내부로 이동하게 된다[5].

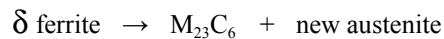
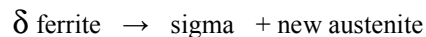


그림 7 은 시그마 상이  $\delta$  페라이트 내에 생성된 것을 보여준다. 시그마상은 유니트 셀 안에 30개의 원자를 가지는 매우 단단한 정방정 (tetragonal) 구조를 가지는 금속간 상 (intermetallic phase)이다. 따라서 시그마상의 출현은 기계적 물성치의 저하와 깊이 연관되어 있다. 시그마상의 생성은 다음의 공석반응에 의해 생성되기도 하며[6],



짧은 거리의 Cr 확산에 의한 직접변태로도 생성되는 것으로 알려져 있다[7].

에너지분산 X-선 분광분석결과 시그마 상은 Cr 이 36.2, Fe 는 63.8 wt.% 의 조성을 가지고 있었다.

종합해보면, 클래딩 내부의  $\delta$  페라이트는 오스테나이트 입계면을 따라서 분포하고 있으며, 후열처리의 영향으로 초기의  $\delta$  페라이트/오스테나이트 입계면에 다량의 탄화물을 생성 시켰다. 또한  $\delta$  페라이트의 시그마 및 오스테나이트 상으로의 변태를 유도하여 결과적으로 후열처리 후의  $\delta$  페라이트의 감소를 가져왔다.

### 3.2 인장 시험

인장시험편은 클래딩과 압력용기의 희석 효과를 배제하기 위하여 용접 용융선으로부터 2 mm 떨어진 부위에서 채취하였다. 최대 입열량 변화에 따라서 약간의 강도와 연성 차이가 관찰되었다. 모든 시험조건에서 Kss1 시험편이 Kss2 보다 항복강도 및 인장강도는 다소 높게, 균일 및 총 연신률은 낮게 측정되었으나 온도가 증가할수록 두 시험재료 모두 강도와 연신률은 낮아졌다 (그림 8). 용접조건변화에 따른 강도 및 연신률의 차이는 오스테나이트보다 강도가 높은  $\delta$  페라이트 상의 함량차이에 기인한 것으로 판단된다.

그림 9 는 상온인장시험 후 시험편의 단면을 절단하여 광학현미경으로 관찰한 사진이다. 상온인장 시험 결과 입계에 위치한  $M_{23}C_6$  탄화물들에서 microvoid 가 발생하고  $\delta$  페라이트 입계를 따라서 균열이 성장하여 최종 파단에 이른 것으로 사료되며, 주사전자현미경 (SEM) 을 통한 파단면 관찰 결과와도 일치한다(그림 10a). 이는 입계에 존재하는  $M_{23}C_6$  탄화물이 응력집중현상을 유도하여 microvoid 의 발생 역할을 하였기 때문이다[6, 8]. 고온에서 파단된 인장시험편은 상온과 비교할 때 파면이 상대적으로 평활 하였으며, 섬유상파면 (fibrous fracture) 등이 부분적으로 관찰되었다(그림 10b).

#### 4. 결론

1. 클래딩의 미세조직관찰 결과 후열처리의 영향으로 초기의 오스테나이트/ $\delta$  페라이트 입계면을 따라서  $M_{23}C_6$  탄화물이 다량 석출되었으며 입계면은  $\delta$  페라이트 내로 이동하였다. 또한 취성상인 시그마 ( $\sigma$ ) 상을 관찰 할 수 있었다. 이 결과  $\delta$  페라이트 분율은 열처리 후 줄어들었다.
2. 용접용융선 부근에서는 압력용기 모재와의 희석현상으로 오스테나이트/마르텐사이트 상이 생성되었다.
3. 상온 인장시험 결과 입계에 위치한 미세한 탄화물이 microvoid 생성 장소로 작용하여 균열이 입계면을 따라서 성장 및 최종 파단에 이른 것으로 판단된다.

#### 5. 향후 계획

소형인장 및 소형편치 시험편이 HANARO 에서 10.133 일 동안 중성자 조사되었다. 소형인장 및 소형편치 시험편의 조사량은 각각  $5.45 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$  와  $5.98 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2 (>1\text{Mev})$  이고 조사온도는  $296 \pm 10^\circ\text{C}$  였다. 향후 이들 시험편을 시험 관찰하여 중성자 조사에 의한 미세조직 및 기계적 물성변화를 측정할 계획에 있다.

#### 감사의 글

시험재료의 제공과 제작에 협조해주신 (주) 두산중공업 관계자 여러분께 감사 드립니다. 본 연구는 하나로 공동이용활성화사업과 두뇌한국 21 사업의 부분지원으로 수행되었습니다.

#### 참고문헌

- 1) F.M. Haggag, E.R. Corwin and R.K. Nanstad, *Nuclear Engineering and Design*, Vol. 124, 1990, pp. 129-141.
- 2) J.A. Brooks and A.W. Thompson, *Int. Mater. Rev.*, Vol 36, 1991, pp. 16~44.
- 3) K.W. Lee, H.S. Cho, D.C Choi, *Journal of alloys and Compounds*, Vol. 285, 1999, pp. 156~161.
- 4) G.F. Slattery, S.R. Keown, M.E. Lambert, *Metals Technology*, Vol. 10, 1983, pp. 373~385.
- 5) K. Kuo, *J. Iron Steel Inst.*, Vol. 46, 1955, pp. 213~217.
- 6) C.C. Tseng, Y. Shen, S.W. Thomson, M.C. Mataya, G. Krauss, *Metal. and Mater. Trans. A*, Vol. 25A, 1994, pp. 1147~1158.
- 7) A.V Kington, F.W. Noble, *Mater. Sci. Eng.*, Vol. A138, 1991, pp.259~266.
- 8) I.J. O'Donnell, H. Huthmann, A.A. Trvassoli, *Int. J. Pres. Ves. & Piping*, Vol. 65, 1996, pp. 209~220

표 1 Strip ER309L 용접재 및 클래딩 후의 화학조성

	C	Si	Mn	P	S	Cr	Ni	Mo	Co	V	Ti	Cu	N	Fe
1	0.011	0.36	1.60	0.013	0.001	23.77	13.19	0.06	0.026	0.052	0.09	0.039	0.045	bal.
2	0.06	0.75	1.25	0.014	0.008	21.0	10.2	0.12	0.021	0.036	0.012	0.044	0.041	bal

1. SANDVIK ER 309L 화학조성
2. 용접후의 클래딩 화학조성

표 2. 용접변수에 의한 최대입력량 및 페라이트 수 (F.N; ferrite number) 변화

Index	Filler metal	Speed (Cm/min)	Ampere (A)	Voltage (V)	Max. heat input (kJ/cm)	Ferrite number (FN)	FN (after PWHT)
Kss1	ER309L	13	1200~1250	27.5~28.5	164.4	9.1	6.6
Kss2	ER309L	12	1250~1300	28.9~29.0	188.5	10.2	6.0

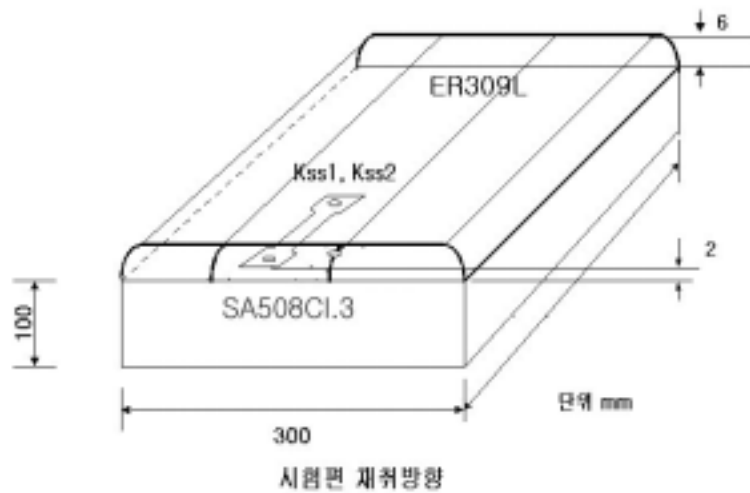


그림 1. 소형인장 시험편 채취부위 및 방향

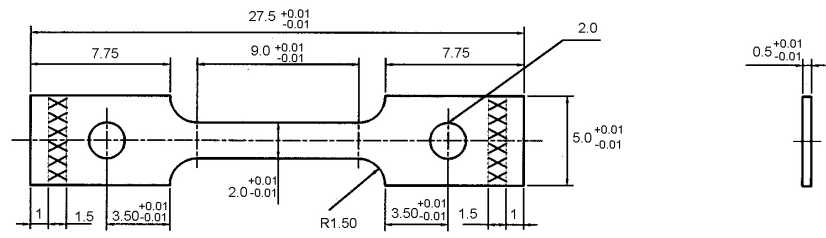


그림 2. 판상 소형인장 시험편 형상

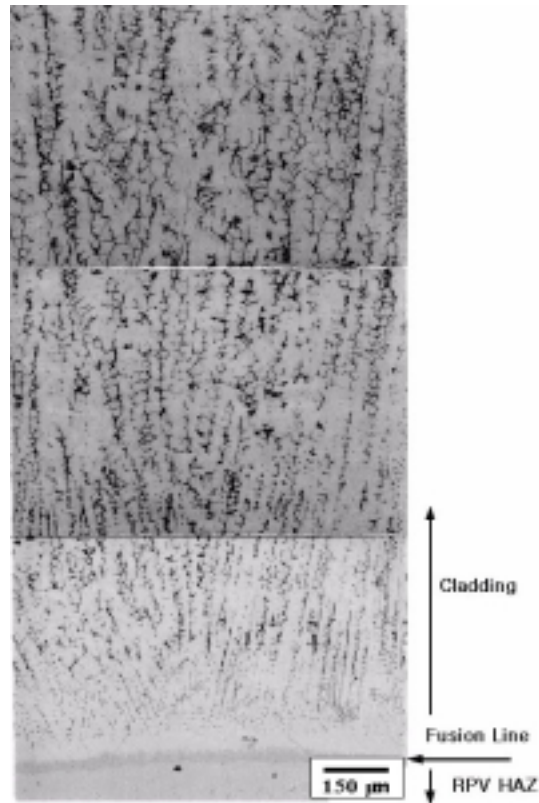


그림 3. 309L 클래딩 미세조직 사진 (광학). 검은색=페라이트, 흰색=오스테나이트

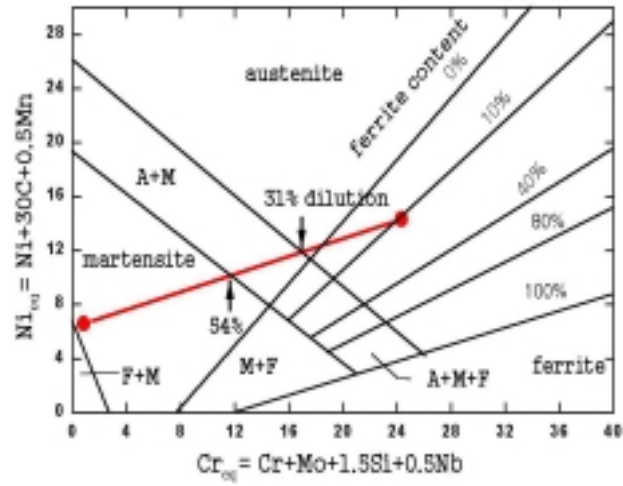


그림 4. SA508 Cl3 압력용기강과 309L 클래딩 재의 희석효과를 보여주는 Schaffler 도표

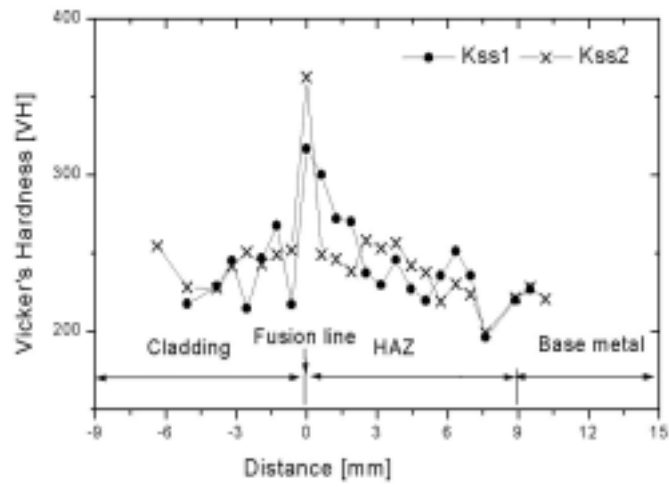


그림 5. Kss1 및 Kss2 시험편의 Vicker's 미세경도 값, (load=200g)



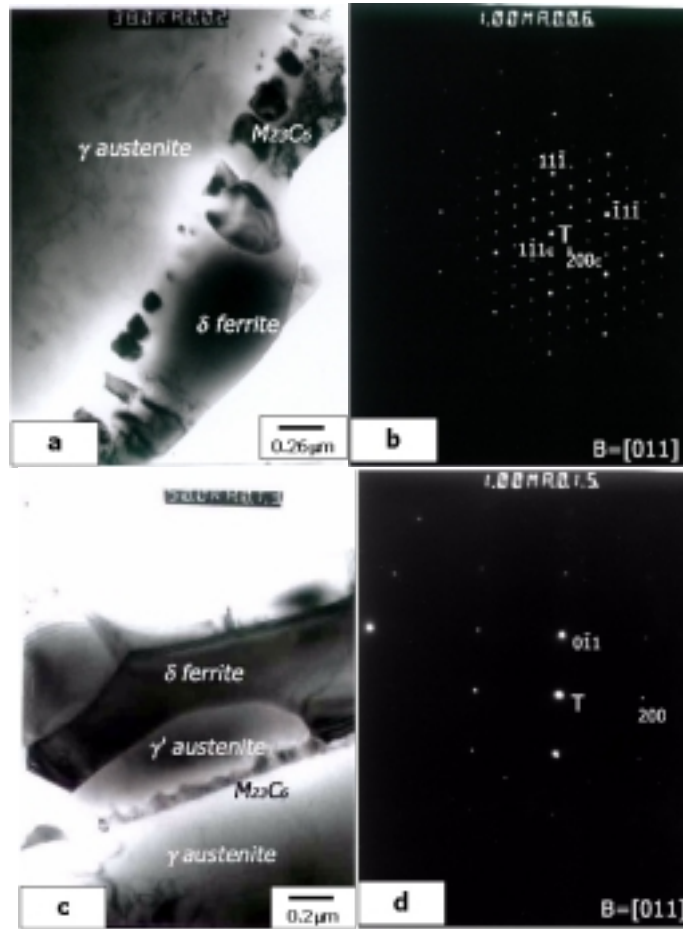


그림 6. 클래딩재의 투과전자현미경 관찰. (a) 후열처리후의 페라이트/오스테나이트 입계면에 위치한  $M_{23}C_6$  탄화물 사진, (b)  $M_{23}C_6$  탄화물과 오스테나이트 기지 사이의 결정학적 방위를 보여주는 제한시야회절 사진, 정대축= $[011]$ , (c) 페라이트, 새로 생성된 오스테나이트 ( $\gamma$ ) 및  $M_{23}C_6$  탄화물 사진, (d) 페라이트상의 제한시야회절 사진, 정대축= $[011]$ .

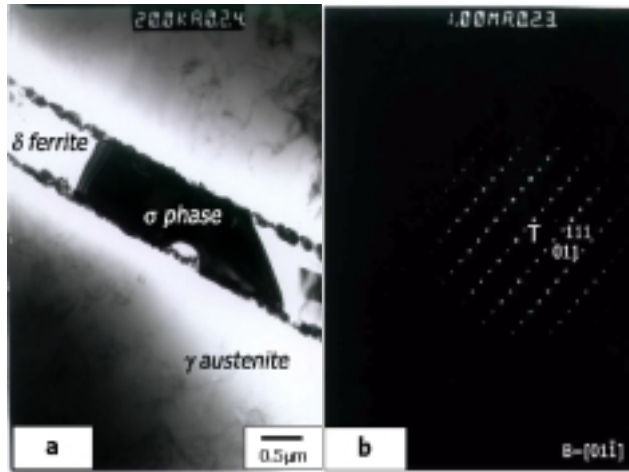


그림 7. 클래딩재의 투과전자현미경 관찰. (a) 페라이트 상의 시그마상으로 변태된 사진, (b) 시그마상의 제한시야 회절상, 정대축=[011].

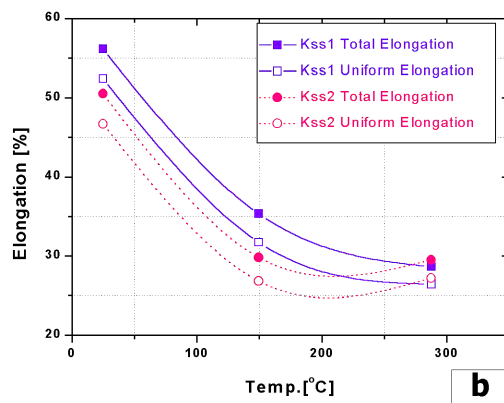
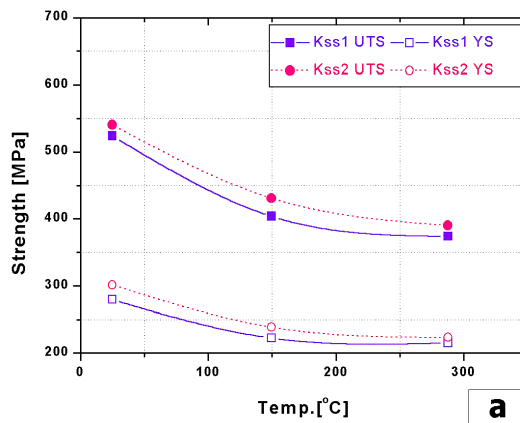


그림 8. 온도에 따른 클래딩재의 인장특성 변화. (a) 인장 및 항복강도, (b) 균일 및 총 연신률.

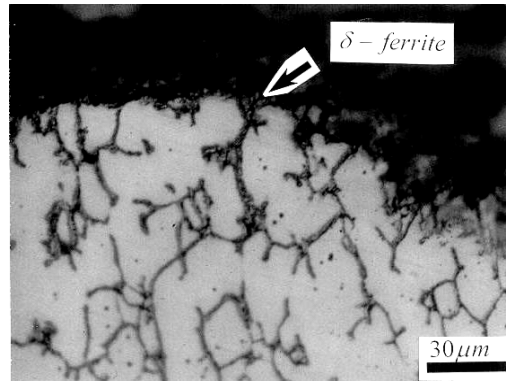


그림 9. 상온 인장 시험편의 파단면 단면 사진

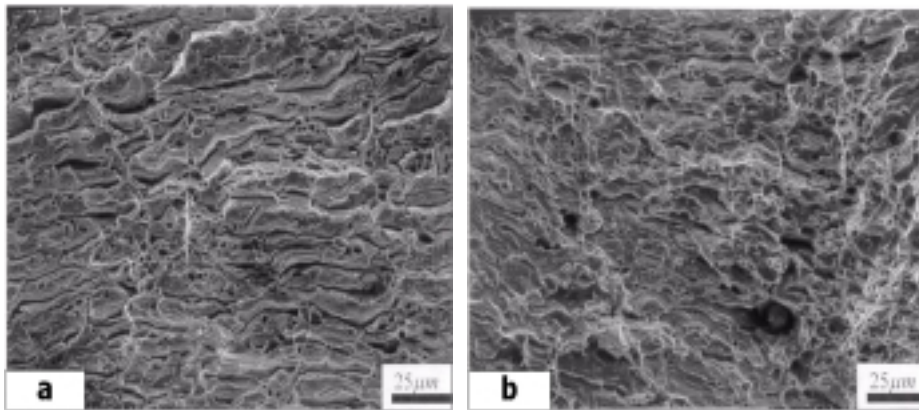


그림 10. 인장시험편 파단면 SEM 관찰 (a) 상온 인장 파단면 사진, (b) 288 °C 인장 파단면 사진