

## Alloy 600 재료의 열가공처리에 의한 결정입계특성 변화 영향 해석

### Analysis on the influence of changes in grain boundary character distribution for Alloy 600 by thermomechanical treatment

한정호, 이덕현, 김정수  
한국원자력 연구소  
김진, 김영식  
안동대학교  
이승호  
한양대학교  
노희숙, 김근홍  
국방과학연구소

#### 요 약

Alloy 600 재료의 열가공처리에 따른 결정입계특성 변화 영향을 평가하기 위하여, 가공 및 열처리를 반복 수행한 시편을 제작하고 OIM에 의한 결정입계특성 분석, IGA특성평가, PWSCC시험을 수행하였다. 입계탄화물 생성을 배제한 고온에서의 열가공 처리로부터 CSL boundary 분율 변화의 두드러진 변화는 없었으나 열처리 조건의 변화에 따라 CSL boundary분율의 증가가 예측되었다. CSL 분율이 높아질 경우 입계부식정도가 현저히 줄어들음을 알 수 있었다.

#### Abstract

To investigate the influence of changes in grain boundary character distribution for Alloy600 by thermomechanical treatment, analysis of grain boundary character by OIM, evaluation of the resistance of IGA and PWSCC were carried out using thermomechanically treated specimens. The variation of CSL boundary frequency for the specimens which were solution annealed at high temperature to exculde the formation of carbides at grain boundary was not considerable. However, it was shown that CSL boundary frequency would be increased when the condition of cyclic heat treatment was optimized. The degree of intergranular attack was significantly decreased for the specimen having a high frequency of CSL.

#### 1. 서 론

재료의 제조공정 중에 특수한 가공·열처리 조건을 부여하여 결정입계특성을 조절할 경우 재료 고유의 전기적, 자기적 특성과 같은 물리적 성질의 변화는 물론 크립, 피로 등의 기계적 성질, 응력부식균열 저항성 등을 크게 향상시킬 수 있다.[1-2] 이러한 효과는 일반재료의 결정입계가 갖는 낮은 분율의 CSLB(coincidence site lattice boundary)를 열가공 처리(thermomechanical treatment : TMT)로 높여 주어 얻어질 수 있다.[3-4] 본 연구는 원전 가동조건 중 증기발생기 전열관 재료에서 발생하는 응력부식균열 저항성을 향상시키기 위한 방법으로서, Alloy 600재료에 TMT공정을 도입하고 이에 따른 결정입계특성 변화조사와 입계부식 및 응력부식균열 특성 변화에 대한 기초적인 거동평가를 목적으로 한다.

## 2. 실험방법

### 가공·열처리

열가공처리에 사용된 Alloy 600 후판의 주요성분은 C:0.032%, Ni:75.3%, Cr:15.5%, Fe:7.9%이다. 이를 두께 10mm의 일정한 길이로 절단 가공한 다음, 가공 및 열처리 단계를 거쳐 표 1의 조건과 같은 시편을 준비하였다. 각 시편의 입내, 입계 탄화물의 존재 여부는 인산용액 (H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 80ml + 증류수 10ml) 중에서 전해에칭을 통하여 확인하였다.

Table 1. Thermomechanical treatment conditions for each specimen.

Specimen designation	Process
S A	70 % CR → 1050°C, 20min.
C 1	SA + 30% CR → 1030°C, 20min.
C 2	C1 + 30% CR → 1030°C, 20min.
C 3	C2 + 30% CR → 1030°C, 20min.

### 결정입계 특성분석

위의 열가공처리 시편 각각을 5×5×1(t)mm 규격으로 가공하여 0.05 $\mu$ m 알루미늄으로 연마한 다음, 인산 80ml + 증류수 10ml 용액에서 3V, 30초동안 전해연마하고 최종적으로 ion thinning으로 표면거칠기를 최소화시킨 시편으로 결정입계특성을 분석하였다. 결정방향과 결정입계 특성분석은 FEG-SEM과 OIM(orientation imaging microscopy)으로 수행되었다. 각 시편의 EBSP(electron backscattered diffraction pattern)는 step width 5~10 $\mu$ m 조건에서 얻어졌으며, 분석조건은 EBSP acc. voltage 30V, 배율 80~130배, working distance 25mm이다.

### 입계부식시험

가공 열처리 시편의 결정입계특성에 따른 입계부식 정도의 차이를 조사하기 위하여, ASTM A262 practice B의 ferric sulfate + H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 용액 중에서 입계부식시험을 수행하였다. 본 시험에 사용된 재료들은 입계탄화물 생성 영향을 배제하기 위하여 고온에서 용체화처리된 것들이기 때문에 위의 입계부식시험법을 직접 적용하는 것이 적절치 못하나, 결정입계특성 변화의 영향을 간접적으로 평가하기 위하여 이 시험법을 적용하였다.

### 1차측 응력부식균열(PWSCC)시험

가공 열처리 시편의 결정입계특성 변화에 따른 SCC 특성을 평가하기 위하여, 짧은 기간내에 SCC 평가가 가능한 Hump시편을 이용한 PWSCC 시험[5]을 수행하였다. 1차측 분위기를 모사하는 조건에서 strain rate 2.63×10<sup>-7</sup>/sec으로 정속인장시험(CERT)을 실시하여 각 시편의 파단시간 변화를 조사하였으며 파단면의 파괴특성을 SEM으로 분석하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 미세조직

각 시편의 입계, 입내에 탄화물이 존재하지 않는 상태에서 결정 입계 특성 변화 영향만을 고려하기 위하여 모든 시편을 용체화처리 온도 이상에서 열처리 하였다. 인산 용액 전해 에칭으로부터 탄화물 존재 여부를 조사한 결과, 모든 시편에서 탄화물이 거의 존재하지 않음을 확인하였다. 그리고 각 단계에서 가공→열처리에 의해 재결정과 결정립 성장이 진행된 equi-axial 형태의 미세

조직이 발달되었음을 확인하였으나, 가공에 의해 시편 표면과 내부의 결정립 크기에 차이가 존재함을 알 수 있었다. 그림 1은 각 단계에서 얻어진 시편 표면과 내부의 평균 결정립 크기 변화를 나타낸 결과로, 초기 SA조건으로부터 열가공처리를 반복하므로써 결정립 크기가 감소하는 것을 알 수 있으나, 열가공처리 각 단계에서의 결정립 크기가 두드러지게 변화되지 않음을 볼 수 있다.

### 결정입계 특성

OIM에 의해 얻어진 EBSP map의 한 예를 그림 2에 나타내었다. 이것은 결정립들 간의 misorientation 축과 한 방향간의 관계로부터, 격자점이 일치하는 특정한 조건을 결정하여 결정입계의 특성을 설명하는 coincidence-site-lattice(CSL)개념을 이용한 것으로서, 본 연구에서는  $\Sigma 1 \sim \Sigma 29$  까지만을 coincidence boundary로 정의하였으며,  $\Sigma 29$ 이상의 경우는 random boundary로 간주하였다. 여기서  $\Sigma$ 값은 결정입계간의 coincidence정도를 나타내는 값으로서 공통 격자점의 역밀도로 주어진다.

그림에서  $\Sigma$ 값에 따라 서로 다른 색으로써 결정입계를 분류하였으며, 굵은 선으로 나타나는  $\Sigma=3$ 의 twin boundary가 많이 발달한 것을 볼 수 있다. 각 조건에서 얻어진 결정입계특성의 분포를 정리하면 표 2와 같다.

Table 2. Grain boundary character distribution of various specimens

Specimen	$\Sigma 1$	$\Sigma 3$	$\Sigma 1 \sim \Sigma 29$	Random
SA	3.7	39.5	49.8	50.2
C1	2.6	37.5	48.8	51.2
C2	3.8	35.4	48.6	51.6
C3	3.0	38.5	49.7	50.3
C1-SP(*)	2.7	25.0	42.2	57.8
C4-SP(*)	2.8	44.0	56.4	43.6

(\*)supplementary test - different TMT process from the above four specimen.

표 2의 결과들은 각 시편의 내부조직에 대한 OIM분석결과로서, 위의 SA~C3 4개 시편의 경우 결정입계 특성 값에 있어서 큰 변화를 나타내지 않고 있다. 이와 같은 이유는 각 단계에서의 가공 후, 재결정온도보다 훨씬 높은 온도에서 비교적 긴 시간동안 열처리 했기 때문에 결정립 성장 영향이 크게 작용한 데에 기인하는 것으로 해석된다. 그러나 본 실험결과에서 얻어지는 약 50%에 해당하는 CSL boundary의 분포는 100~200 $\mu\text{m}$ 정도의 결정립 크기를 갖는 일반 다결정 재료에서 얻어지는 상한치에 해당하는 것으로서[6] 본 실험의 TMT에 의한 CSL boundary향상효과가 어느 정도 있었음을 알 수 있다. 특히, 이들 4개 시편의 TMT조건을 약간 변화시킨 C1-SP, C4-SP (grain size 60~70 $\mu\text{m}$ )의 경우, random boundary분율이 약 43%까지 줄어들어 CSL boundary분율이 상대적으로 크게 증가하는 결과를 보이고 있다.

### 입계부식 특성

앞서 결정입계 특성분석에서 CSL boundary분율 변화가 두드러지지 않았던 점으로부터 예상할 수 있었던 점과 같이, 각 시편의 입계부식에 의한 무게 감량이 거의 비슷하게 일어났다. 그러나 입계부식 표면 상태를 관찰한 결과, SA의 경우 모든 결정입계에 대한 입계공격 흔적이 깊고 뚜렷하게 나타나는 반면 TMT가 반복된 C3시편으로 갈수록 결정입계간의 연결이 이루어지지 않을 정

도로 입계공격이 현저하게 줄어들음을 확인할 수 있었다. 특히, 그림 3에 나타난 바와 같이 CSL boundary분율의 차이가 10% 이상으로 예상되는 두 부식시편의 단면 관찰 결과 시편 내부로의 입계부식 정도가 분명하게 차이남을 볼 수 있다.

#### PWSCC 특성평가

1차측 분위기에서 hump시편을 이용한 정속인장시험으로부터 얻어진 SA~C3 4개 시편의 파단시간 변화를 그림 4에 나타내었다. CSL분율의 향상효과가 가장 컸을 것으로 추정되는 C3시편의 파단시간이 가장 길게 나타날 것으로 예상하였으나 실제에 있어서는 TMT처리가 반복될수록 파단이 빨리 일어나는 예측과 상반되는 결과를 보이고 있다. 이에 대한 정확한 해석은 앞으로의 시험을 통해 밝혀져야 하겠으나, 결정입계특성의 변화와 균열성장 특성간에 특수한 관계에 기인하는 현상으로 추정할 수 있다. 파단면 관찰결과(그림 5) 모든 시편의 경우, 입계균열에 의한 파괴특성을 보였다.

#### 4. 결 론

Alloy 600재료의 TMT처리에 따른 결정입계특성 변화, 입계부식 정도, 응력부식균열 특성을 조사하여 다음과 같은 기본적인 결과를 얻었다.

- 입계 탄화물 생성을 배제한 고온에서의 TMT처리로부터, CSL boundary분율 변화가 두드러지지 않는 것은 결정립 성장 영향이 크게 작용하기 때문으로 해석된다.
- CSL boundary분율 차이에 따른 입계부식정도의 차이를 알 수 있었으며 CSL분율이 높아질 경우 입계부식이 현저히 줄어들음을 알 수 있다.

#### 후 기

본 연구는 과학기술부가 주관하는 원자력연구개발 중장기계획 사업의 수행된 것입니다.

#### 참고문헌

1. W.E. Reitz : J. Met., 2, (1998) 39
2. T. Wanatabe : Res. Mech., 11(1984) 47
3. P. Lin et al. : Scripta Metall., 33, 9 (1995) 1387
4. G. Palumbo et al. : ibid, 25(1991) 1775
5. 이덕현 외 : 한국재료학회지, 8, 8, (1998), 726
6. T. Wanatabe : Textures and Microstructures, 20, (1993), 195

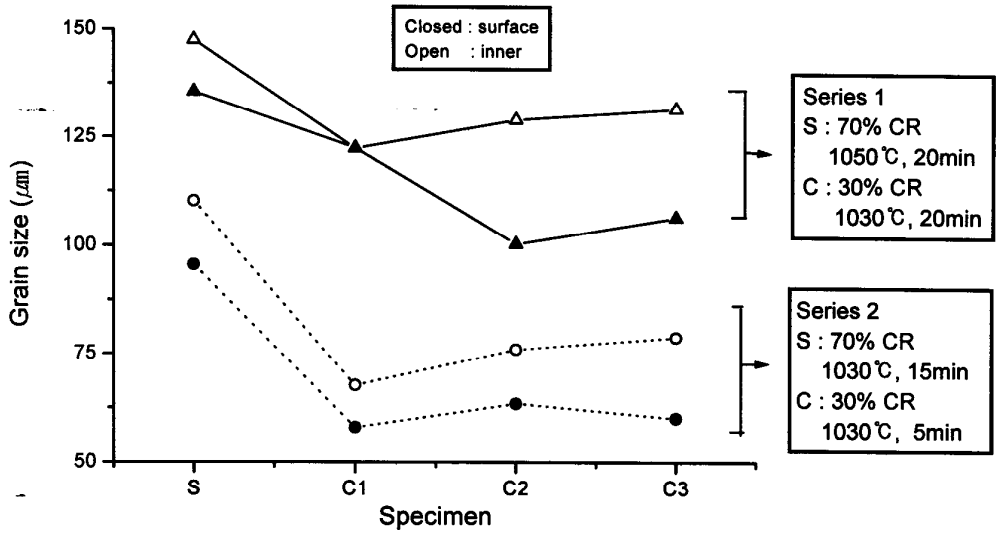


Fig. 1. Variation of average grain size with TMT process

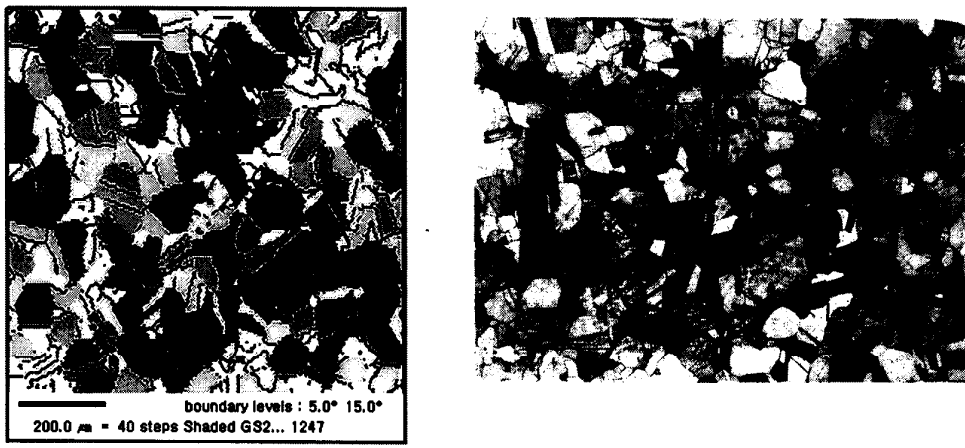


Fig. 2. An example of OIM micrograph with corresponding microstructure

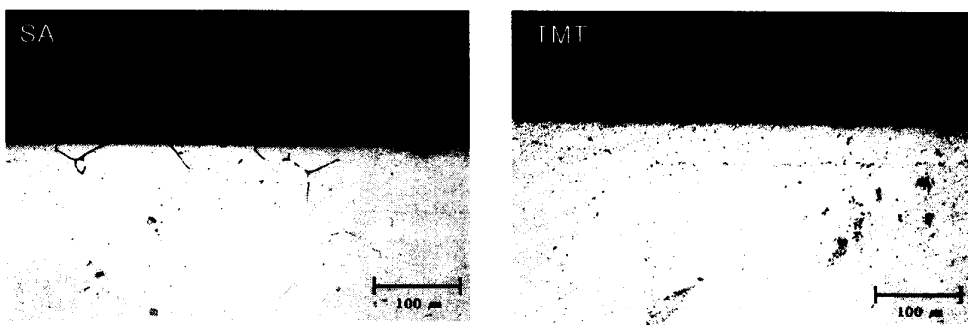


Fig. 3. Cross sectional view of IGA test specimen

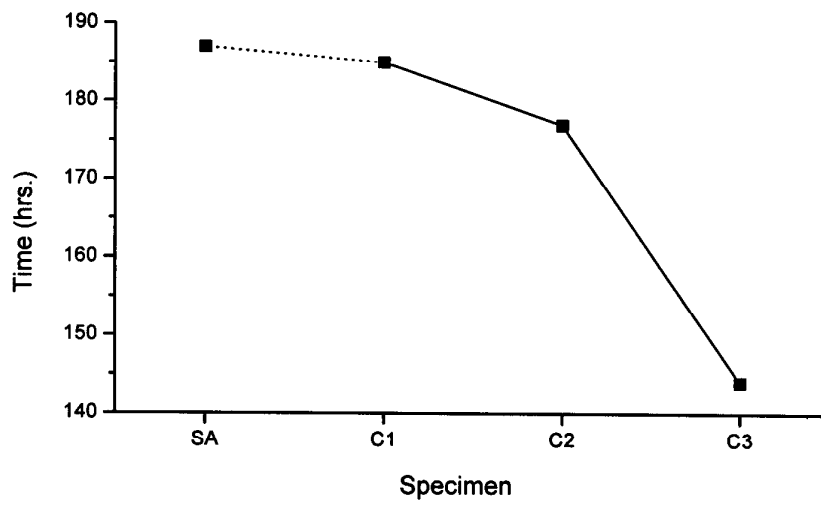


Fig. 4. Results of time-to-failure from CERT under the simulated primary coolant

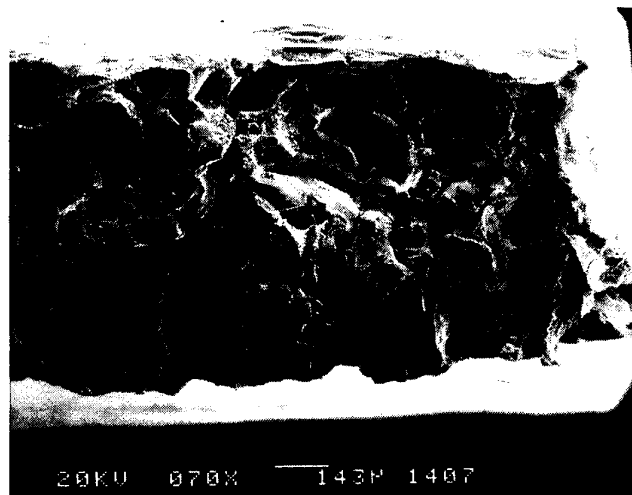


Fig. 5. SEM fractograph showing intergranular cracking