2003 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

양전자 수명법을 이용한 압력용기강의 미세조직 평가

김응선, 김민철, 권상철, 홍준화
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요약

압력용기강의 미세조직학적 인자들을 양전자 수명법을 이용하여 비파괴적으로 평가하였다. 열처리를 통하여 결정립 크기를 변화시키고 탄화물의 크기와 분포는 비슷하게 유지하였다. 결정립의 크기와 관계없이 trap된 양전자의 수명은 약 140ps였으며 상대밀도는 결정립의 크기가 증가함에 따라 감소하였다. 측정된 스펙트럼을 분석한 결과와 trapping model을 적용한 계산 결과가 잘 일치하였으며 결정립계의 나사전위가 양전자의 주요한 trap 위치임을 확인할 수 있었다.

Abstract

The microstrutural parameters of a reactor pressure vessel steel have been nondestructively investigated by positron lifetime technique. The grain sizes were controlled and, the size and distribution of carbides was maintained nearly the same by the heat treatments. Regardless of the grain size, the lifetimes of trapped positrons, τ_2 were about 140ps and the relative intensities, I_2 decreased with increasing the grain size. The self-consistency of measured positron lifetime spectra was confirmed in the frame of trapping model and it was found that positrons were trapped mainly at the screw dislocations at grain boundaries.

1. 서론

원자로 압력용기강의 운전중 안전성과 수명을 제한하는 고속 중성자에 의한 조사취화는 과거 수십년간 연구가 진행되고 있지만 아직까지 명확하게 밝혀지지 않고 있다 [1, 2]. 중성자 조사에 의해 생성된 vacancy와 interstitial의 이동과 상호작용 그리고 이러한 조사결함과 비조사재에 이미 존재하는 석출물 및 전위와의 상호작용 등의

매우 복잡한 과정이 미세구조 변화에 영향을 미치기 때문이다. C. Lopes [3]은 비조사재의 초기 결함 조직은 중성자 조사에 의해 생성된 결함량에 비교할만큼 상당하다고 보고한바 있다 [3]. 따라서, 중성자 조사취화 기구를 이해하기 위해서 조사속, 조사량, 조사온도 등의 조사환경뿐만 아니라 압력용기강의 제조이력에 따른 조사전 미세구조에 대한 정확한 이해가 요구된다.

미세조직 및 결함을 관찰하기 위하여 TEM (Transmission Electron Microscopy), FIM(Field Ion Microscopy), SANS (Small Angle Neutron Scattering) 등의 기법을 이용해왔지만 5nm 이하의 결함은 측정하기에 분해능에 한계가 있고 특히 vacancy와 같은 open-volume 결함을 관찰하기 힘들기 때문에 지난 20년전부터 압력용기의 조사취화 연구에 양전자 수명법을 자주 이용하고 있다 [4]. 원자로 압력용기강으로 사용되는 저합금강은 전형적인 템퍼드 베이나이트(Tempered-bainite) 조직으로 오스테나이트 결정립, 패킷(packet), 래스(lath), 석출물 등 다양한 미세조직학적 영향인자들로 구성되어 있다. 압력용기강에 대한 양전자 수명 분석 결과는 조금씩 다르더라도 평균 양전자 수명이 α-Fe의 bulk 수명(106ps) 보다 크게 나타나고 있으며 조사전에 상당한 량의 결함이 존재하는 것으로 알려져 있으며 전위, 탄화물, 탄화물/기지의 misfit 그리고 입계가 결함으로 작용할 것으로 추측하고 있다 [5-7].

본 연구에서는 압력용기강의 열처리를 통하여 석출물의 크기 및 분포는 비슷하게 유지하면서 결정립의 크기만을 변화시켜 결정립계의 결함조직을 양전자 수명법을 이용하여 비파괴적으로 평가하고 tapping model을 적용하여 self-consistency를 고찰하였다.

2. 실험방법 및 절차

2.1 재료준비 및 미세조직 관찰

본 연구에 사용된 재료는 원자로 압력용기강으로 사용되고 있는 SA 508 Gr.3 단조재이며 화학성분은 표 1과 같다. 열처리는 그림 1에 나타낸 바와 같이, 결정립 크기를 결정하는 오스테나이징(austenitizing) 온도를 조절하여 결정립 크기를 변화시키고 템퍼링(tempering) 조건은 동일하게 적용하여 비슷한 크기와 분포의 탄화물이 형성되도록 하였다. 열처리 조건에 따른 미세조직은 3% natal 용액과 LePera 용액(1% Sodium Metabisulfate + 4% Picral)을 사용하여 광학현미경(Optical Microscope) 및 주사전자현미경(Scanning Electron Micrpscope)을 이용하여 관찰하였다. 오스테나이트 결정립의 크기는 ASTM 규정에 따라 결정하였으며, 또한 EBSD(Electron Back Scattered Diffractometer)를 이용하여 결정방위차 관점에서 유효 결정립의 크기를 측정하였다. 탄화물의 크기와 분포는 SEM과 상분석기(Image Analyzer)를 이용하여 정량화하였다.

2.2 양전자 수명 측정

양전자 수명 측정은 크기 0.25×10×10mm^{2}의 시편을 이용하였으며 가공에 따른 표면 변형층을 제거하기 위해 0.5μm까지 연마한 후에 최종적으로 전해연마하였다. 양전자 수명 측정은 그림 2에 나타낸 시간분해능 230ps의 Fast Coincidence System과 20μCi의 ^{22}Na 양전자원을 이용하여 상온에서 수행하였다. 양전자 수명은 양전자원에서 양전자와 동시에 방출되는 1.28MeV의 즉발 감마선을 시작신호로 양전자가 시료에서 전자와 결합할 때 방출되는 0.511MeV의 소멸 감마선을 종료신호로 지정하여 둘 사이의 시간 지연으로 정의된다. 각 시료에 대하여 8×10^{6}개의 counts 이상을 획득하여 피팅 프로그램 PATFIT - 88을 이용하여 분석하였다. 양전자원 자체와 덥개 호일에서 소멸되는 성분들을 보정하여 두개의 양전자 수명 성분으로 분석하였다.

3. 실험결과 및 고찰

3.1 미세조직 특성

광학현미경과 주사전자현미경으로 관찰된 대표적인 미세조직을 그림 3에 나타내었다. 미세조직은 압력용기강에서 관찰되는 전형적인 템퍼드 베이나이트 조직이며, 오스테나이징 열처리 온도의 증가에 따라 오스테나이트 결정립 크기가 각각 25μm, 60μm 및 110μm로 증가하였다. 그림 4에 광학현미경을 통하여 측정된 오스테나이트 결정립의 크기와 EBSD 분석법(결정방위차 허용도: 15^o)을 이용하여 측정된 유효결정립의 크기와의 관계를 나타내었다. 오스테나이트 결정립의 크기가 클수록 고경각의 유효 결정립 크기 또한 증가하였으며 하나의 오스테나이트 결정립 내에 2~3개 정도의 유효 결정립이 존재하는 것으로 나타났다.

그림 5는 상분석기를 이용하여 탄화물의 크기 및 형태를 정량화한 결과이다. 석출물의 크기는 0.207~0.227μm, 형태비(aspect ratio)는 1.80~1.82 정도로 결정립 크기와 관계없이 비슷한 크기와 형상의 석출물이 분포하는 것을 확인할 수 있었다. 그림 6에 항복강도와 오스테나이트 결정립 크기와의 관계를 나타내었다. 결정립의 크기가 작아질수록 항복강도가 증가하였으며, 결정립크기와 항복강도의 관계를 모사한 기존의 Hall - Petch 관계식을 잘 만족함을 알 수 있었다.

$$\sigma_o = \sigma_i + kd^{-1/2} \tag{1}$$

여기서, σ_o는 항복강도, d는 결정립 크기(μm)이며 σ_i와 k는 상수이다.
따라서, 석출물의 형태와 크기의 차이에서 기인한 물성의 변화량은 상당히 작을 것이며, 주로 결정립 크기의 변화가 특성 변화를 결정하는 주요한 인자로 작용할 것으로 판단된다.

3.2 양전자 수명

측정된 양전자 수명 스펙트럼은 양전자원 자체와 덮개 호일에서 소멸되는 성분을 추출한 후에 두개의 성분으로 가정하여 피팅하였으며 통계학적 관계를 잘 만족하였다. 표 2에 측정된 양전자 수명 성분(τ_1 , τ_2)과 상대밀도(I_1 , I_2) 그리고 평균 수명($\bar{\tau} = \tau_1 I_1 + \tau_2 I_2$)을 함께 나타내었다. 일반적으로, τ_1 은 감속(thermalization) 후 결함이 존재하지 않는 bulk에 국부화된 양전자의 소멸에 기인하며 τ_2 는 감속 후 확산에 의하여 결함에 trap된 양전자의 소멸에 의한 성분으로 설명하고 있다. $\bar{\tau}$ 은 H1과 H2가 거의 비슷하였으나 H3는 현저히 감소하여 전반적으로 결정립의 크기가 증가할수록 평균수명(결함의 양)은 감소하는 경향을 나타내었다. $\tau_2 \approx 140$ps는 α-Fe의 나사전위(screw dislocation)에 trap되어 소멸되는 양전자의 수명과 비교적 잘 일치하며 결정립의 크기와 관계없이 비슷하였다. I_2 값은 결정립의 크기가 증가할수록 감소하는 상관관계를 나타내었다. 결정립계 외에 trap 위치로 탄화물과 탄화물/기지 misfit을 고려할 수 있으나 Fe_3C cementite에서의 양전자 수명이 91ps로 낮고 탄소 함량이 적은 저합금강에서는 misfit의 영향이 미비한 것으로 알려져 있기 때문에 결정립계가 양전자의 주요한 trap 위치로 작용했을 것으로 판단된다 [5, 9]. 결정립계가 소각경계(low-angle boundary)일 경우, 칼날전위(edge dislocation)로 정렬된 경각경계(tilt boundary)와 나사전위로 정렬된 뒤틀림경계(twist boundary)로 구성되는데 결정방위차가 커질수록 뒤틀림경계가 지배적이라는 기존 보고를 고려할 경우, 유효 결정립계의 나사전위가 주로 정렬된 뒤틀림경계가 지배적일 것으로 추측된다.

양전자 수명 스펙트럼을 두개의 성분으로 분석한 결과를 하나의 결함만을 고려 trapping model과의 비교를 통하여 self-consistency를 검토하였다. 감속된 양전자의 rate equation은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\frac{dn_b(t)}{dt} = -(\lambda_b + k_d)n_b(t) \tag{2}$$

$$\frac{dn_d(t)}{dt} = -\lambda_d n_d(t) + k_d n_b(t) \tag{3}$$

여기서, n_b , n_d 는 각각 시각 t에서의 bulk와 결함에서의 양전자 수, λ_b , λ_d 는 bulk와 결함에서의 소멸율 그리고 κ_d 는 결함의 양전자 trapping rate이다. 초기조건, $n_b(0) = N_0$, $n_d(0) = 0$ 을 고려하면 다음과 같은 관계식이 성립한다.

$$\tau_1^{TM} = \frac{1}{\lambda_b + k_d}, \qquad \tau_2 = \frac{1}{\lambda_d} \tag{4}$$

$$k_d = I_2\left(\frac{1}{\tau_1} - \frac{1}{\tau_2}\right) = \frac{I_2}{I_1}\left(\frac{1}{\tau_b} - \frac{1}{\tau_d}\right) \qquad (5)$$

그림 표 2에 나타낸 바와 같이, 측정 결과 τ_1과 하나의 trap 위치만을 가정한 trapping model 결과 τ_1^{TM}이 비교적 잘 맞는 것을 알 수 있다. 따라서, 탄화물의 크기와 형태를 고정시킨 본 연구 재료의 경우, 결정립계의 나사전위가 주요한 trap 위치임을 확인할 수 있다.

4. 결론

압력용기강의 초기 결함에 미치는 결정립의 영향을 양전자 수명법을 이용하여 평가하였으며 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) 오스테나이트 결정립의 크기가 클수록 결정방위차를 고려한 결정립의 크기 또한 증가하였으며 결정립 크기가 클수록 재료강도는 낮게 나타났으며 Hall-Petch 관계를 잘 만족하였다.

(2) 결함에서의 양전자 수명은 모든 재료에서 나사전위에 trap된 양전자의 수명 140ps와 유사하고 결정립의 크기가 증가함에 따라 상대밀도는 감소하는 경향을 나타내었다. 탄화물의 크기와 형상이 모든 재료에서 동일한 것을 고려할 때, 결정립계가 양전자의 주요한 trap 위치로 작용했을 것으로 판단된다.

(3) 측정된 스펙트럼을 하나의 결함이 존재한다는 가정하에 분석한 실험결과와 tapping model을 적용하여 계산된 결과가 거의 일치하였으며 주로 결정립계의 나사전위에서 양전자가 trap되어 소멸되는 것을 확인할 수 있었다.

참고문헌

[1] B.L. Eyre and J.R. Matthews, J. Nucl. Mater. 205 (1993) 1
[2] W.J. Phythian and C.A. English, J. Nucl. Mater. 205 (1993) 162
[3] C. Lopes Gil, A. P. De Lima, N. Ayres De Campos, J. V. Fernandez, G. Kogel, P. Sperr, W. Triftshauser, D. Pachur, J. Nucl. Mater. 161 (1989) 1
[4] P. Hautojavi, A. Pollanen, A. Vehanen and J. Yli-Kauppila, J. Nucl. Mater. 114 (1983) 20

[5] G. Brauer, L. Liszkay, B. Molnar, R. Krause, Nucl. Eng. Des. 127 (1991) 47
[6] F. Becvar, Y. Jiraskova, E. Keilova, J. Kocik, L. Lestak, I. Prochazka, and M. Sob, Mater. Sci. Forum 105/110 (1992) 905
[7] V. Slugen and V. Magula, Nucl. Eng. Des. 186 (1998) 323
[8] G.W. Read, Jr., “Dislocation in Crystals”, McGraw - Hill Book Co. Inc., New York (1953)
[9] M.J. Puska, M. Sob, G. Brauer and T. Korhonen, Phys. Rev. B 49 (1994) 10947

후기

본 연구는 과학기술부의 원자력 중장기 연구개발사업중 조사손상평가 기반기술 개발 과제의 일환으로 수행되었습니다.

Table 1. Chemical composition of the SA 508 Gr.3 steel

Element	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	Al	Cu
Content(wt. %)	0.21	0.24	1.36	0.007	0.003	0.93	0.21	0.49	0.022	0.03

Table 2. Two - component decomposition of positron lifetime spectra

Material	τ_1 [ps]	τ_2 [ps]	I_2 [%]	$\bar{\tau}$ [ps]	τ_1^{TM} [ps]
H1	91	138	71	124	83
H2	89	141	68	124	82
H3	91	133	62	117	86

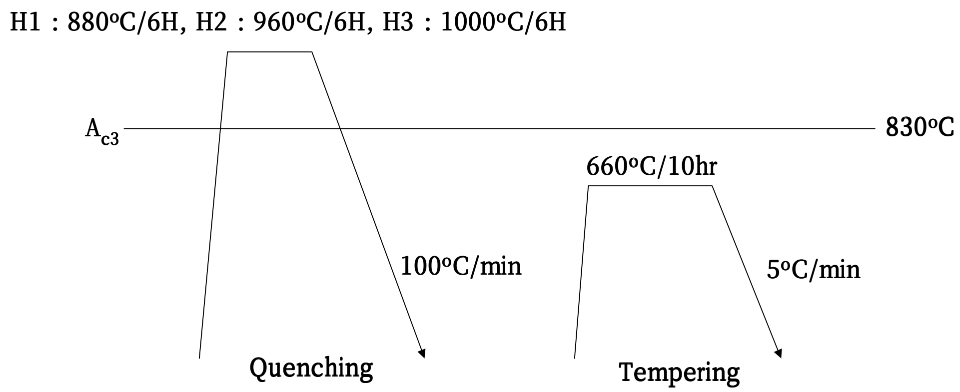


Fig. 1. Schematic sketch of three heat treatment conditions

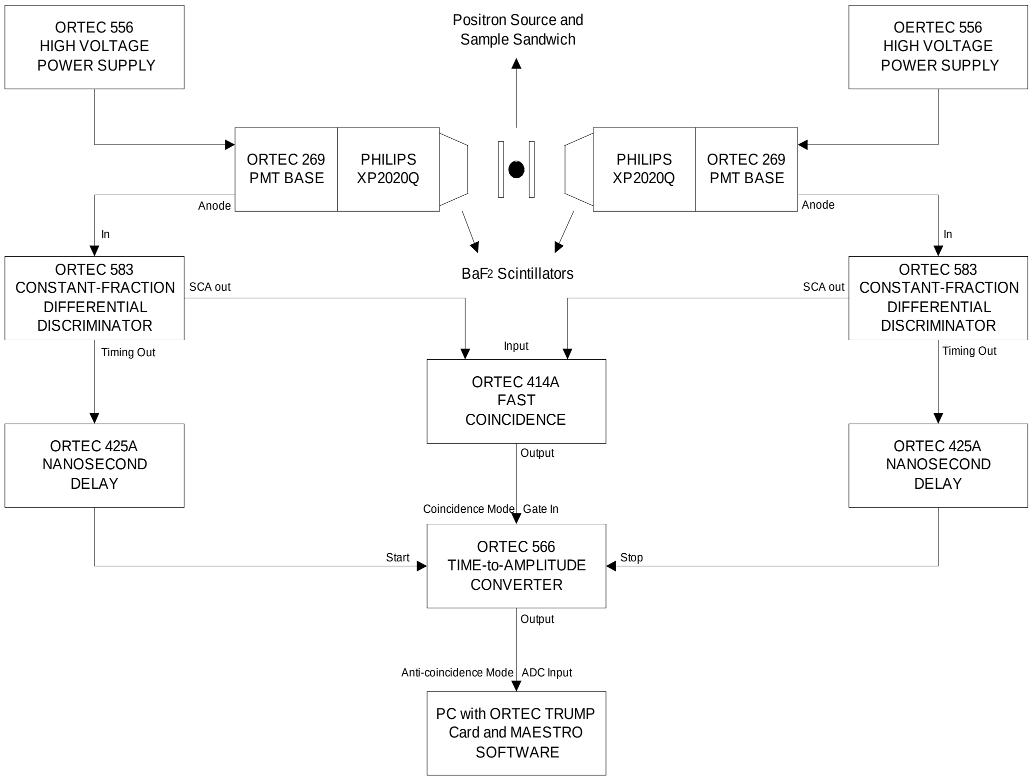
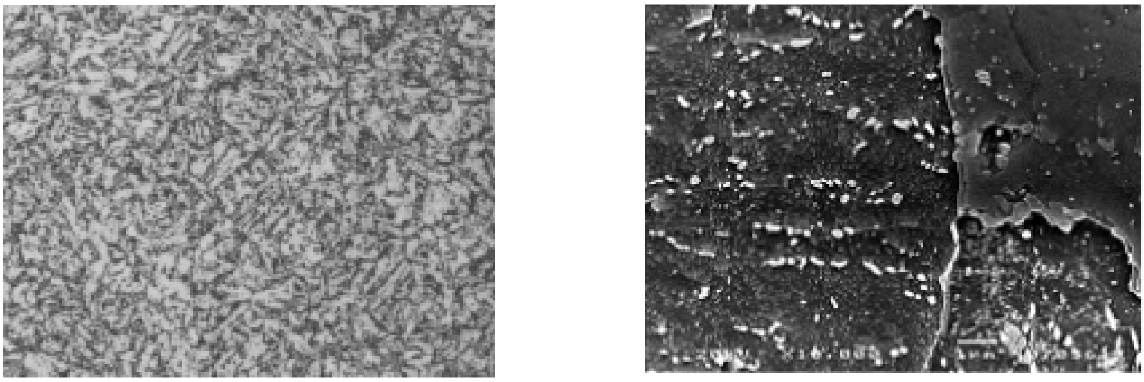
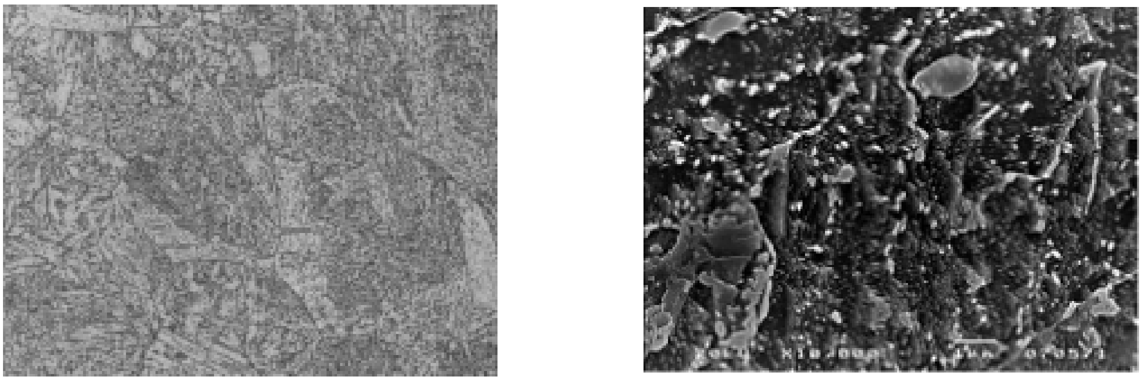


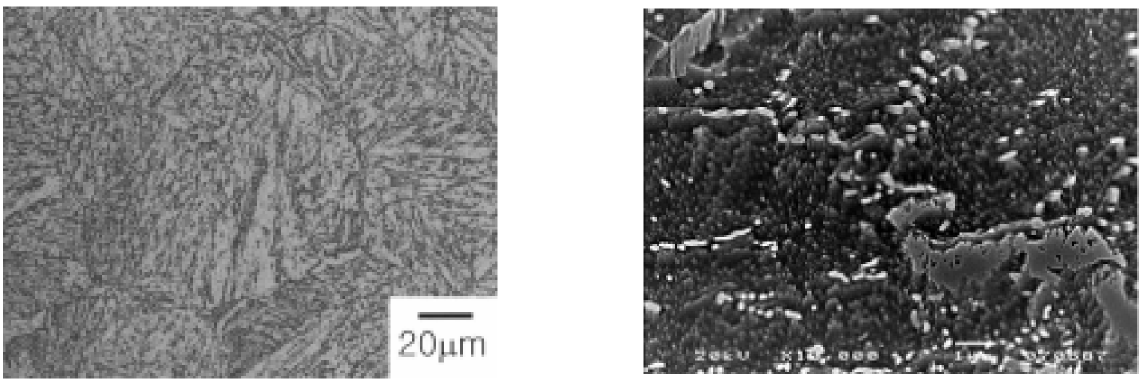
Fig. 2. Schematic illustration of positron lifetime measurement system



(a)



(b)



(c)

Fig. 3. Microstructures of the tested materials, (a) H1, (b) H2 and (c) H3.

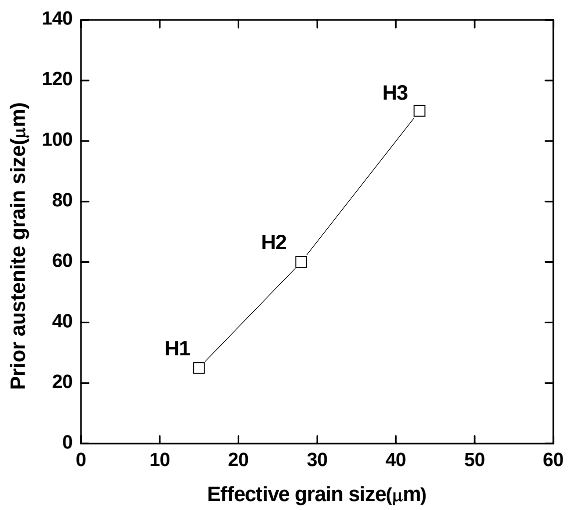


Fig. 4. Variation of grain size with the effective grain size

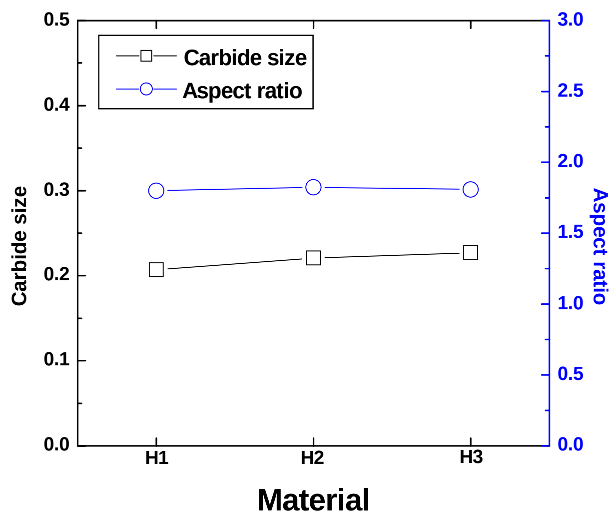


Fig. 5. Carbide size and aspect ratio of the tested materials.

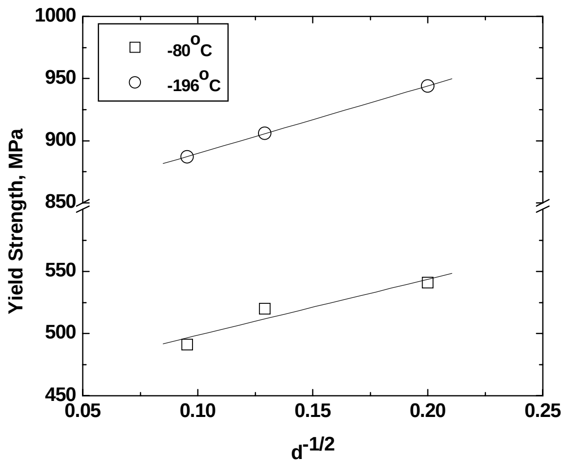


Fig. 6. Relationship between austenite grain size and yield strength.