

이상영역 열처리에 따른 SA508 Gr.3 압력용기강의 양성자 조사 및
회복 특성

Proton Irradiation and Thermal Recovery Characteristics of SA508
Gr.3 Pressure Vessel Steels after Intercritical Heat Treatment

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

요 약

2상영역 열처리 공정을 통하여 기계적 특성이 개선된 압력용기강의 조사특성을 고찰하였다. 3.2MeV의 양성자를 80°C 이하에서 8×10^{-3} dpa까지 조사한 후에 회복 열처리에 따른 미세경도 및 양전자 수명의 변화를 측정하였다. 2상영역 열처리를 통한 석출물 및 결정립의 미세화는 조사 및 회복 특성에 큰 영향을 미치지 못하였다. 200~300°C에서 회복 열처리를 통하여 과포화된 탄소원자와 공공 등의 조사결함과의 상호작용에 의한 radiation anneal hardening이 관찰되었다. 550°C에서 회복이 완료되었으며 조사결함과의 상호작용에 의한 전위의 감소로 인하여 양전자 수명이 비조사재에 비하여 감소하는 것을 확인할 수 있었다.

Abstract

In this study, the irradiation characteristics of the reactor pressure vessel steel after IHT(intercritical heat treatment) were examined. After 3.2MeV proton irradiation to 8×10^{-3} dpa below 80°C and step-annealing heat treatment, microhardness and positron lifetime were measured. It was observed that the irradiation and thermal recovery behaviors were not changed after the application of intercritical heat treatment. The radiation anneal hardening due to the interaction of supersaturated carbon atoms and radiation-induced vacancies after annealing from 200

to 300°C. After annealing at 550°C, the positron lifetimes became shorter than those of the non-irradiated samples due to some partial annealing of initial dislocations during irradiation.

1. 서론

원자로 압력용기는 중성자 조사에 의하여 가동조건과 수명이 결정되며 가동중 교체가 어렵고 보수시에도 고비용이 소요되기 때문에 수명연장과 운전여유도를 확보하기 위하여 초기에 고 파괴인성의 압력용기강 제조가 바람직하다 [1, 2]. 경화능 향상을 위하여 합금 원소 첨가나 열처리 공정을 변화시키는 방법 등을 고려할 수 있으나 합금원소 규제 조건과 원자로 압력용기와 같은 거대 구조물에서 충분한 과냉각도를 얻는데 한계가 있었다 [3-7]. 최근 압력용기강에 적용한 일련의 연구[8-10]에서 2상 영역인 710~740°C에서 4~8시간 동안 2상영역 열처리를 추가함으로써 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 천이온도도 약 30°C 정도 개선되는 효과를 얻을 수 있었다. 이러한 충격성질의 향상은 2상영역 열처리를 통한 석출물의 미세화(CHT: 0.15 μ m, IHT: 0.13 μ m)와 구상화 그리고 결정립의 미세화(CHT: 11.9 μ m, IHT: 11.1 μ m)에 기인하는 것으로 보고되고 있다.

본 연구에서는 파괴인성 개선에 우수한 효과를 보였던 2상영역 열처리를 실제 적용하여 두산 중공업에서 생산된 시제품에 대하여 3.2MeV의 양성자 조사와 동시 회복열처리 시험을 통하여 조사특성을 비교 평가하고자 하였다. 조사 및 회복 특성은 미세경도를 이용하여 조사경화를 측정하고 조사결합의 생성과 소멸 거동은 양전자 수명법을 이용하여 측정 평가하였다.

2. 실험방법

본 연구에 사용된 재료는 Mn-Ni-Mo 계열의 저합금강인 SA508 Gr.3 강으로 두산중공업에서 제조하였으며 표 1에 그 화학조성을 나타내었다. 표 2에 나타낸 바와 같이 제강 및 단조 후 2상 영역 열처리(IHT: Intercritical Heat Treatment)를 적용한 소재와 적용하

지 않고 기존 열처리(HT: Conventional Heat Treatment) 공정만을 적용한 두 가지 소재로 나누어 열처리가 진행되었다. 각 소재에 대한 인장 및 충격시험 결과를 표 3에 정리하였다.

양전자 수명과 미세경도 측정을 위하여 각각 $\phi 9.4\text{mm} \times 0.3\text{mm}$, $10 \times 10 \times 0.5\text{mm}^3$ 크기의 시편을 이용하였다. 시편 가공에 따른 표면의 변형을 제거하기 위하여 조사할 면을 $0.25\mu\text{m}$ 까지 기계적으로 연마 한 후에 전해연마 하였다. 조사 시험은 한국지질자원연구원의 Tandem 가속기를 이용하였으며 3.2MeV 의 양성자를 80°C 이하에서 조사선량 $2.87 \times 10^{16}\text{protons/cm}^2$ 까지 조사하였다. 조사 후에 약 10^{-6} torr 이하의 진공 분위기에서 200부터 600°C 까지 50°C 간격으로 30분 동안 등시 회복열처리를 수행하였다.

양전자 수명은 그림 1에 나타낸 시간분해능 230ps (FWHM)의 lifetime-spectrometer와 약 $7\mu\text{Ci}$ 의 ^{22}Na 양전자원을 이용하여 상온에서 측정하였다. 각 시료에 대하여 2×10^6 counts를 획득하였으며 수명 스펙트럼은 PATFIT-88 프로그램을 이용하여 분석하였다. Vicker 미세경도 측정을 위해 500g 하중을 15초 동안 인가하였으며, 각 조건에 대하여 20회씩 측정한 후 평균값을 결정하였다.

3. 실험결과 및 고찰

시편 깊이에 따른 조사손상 분포

조사면의 깊이에 따른 조사손상량(displacement per atom)과 수소의 분포를 Fe의 displacement energy 40eV 를 기준으로 SRIM 2000 code [12]를 이용하여 계산하였으며 그 결과를 그림 2(a)에 나타내었다. 깊이 $30\mu\text{m}$ 까지의 평균 조사손상량은 $8 \times 10^{-4}\text{ dpa}$ 였으며 $40\mu\text{m}$ 에서 $8 \times 10^{-3}\text{ dpa}$ 로 최대치를 나타내었다. 침투된 수소는 깊이 $40\mu\text{m}$ 를 중심으로 좌우 $5\mu\text{m}$ 범위에서 국부적으로 존재하였으며 수소 농도는 다음과 같은 관계식을 이용하여 계산하였다 [13].

$$N_p = \frac{D}{\sqrt{2\pi} \cdot \Delta R_p}$$

여기서, N_p 는 단위부피 당 수소 원자수, D 는 조사선량($2.87 \times 10^{16}\text{protons/cm}^3$), ΔR_p 는 SRIM 2000 code에서 계산된 수소분포의 half-width at half-height($1.25\mu\text{m}$)이다. 위 식의 계산 결과 최대 수소 농도는 약 1080 appm 였으나 F.A. Garner [14]등이 보고한 바와 같이 양성자를 100°C 이하의 온도에서 조사할 경우 수소의 확산에 의한 손실에 의하여

약 150 appm/dpa 정도만이 재료내에 존재하기 때문에 최대 조사량 8×10^{-4} dpa를 고려하더라도 미세경도 및 양전자 수명에 미치는 영향은 미비할 것으로 사료된다.

^{22}Na 에서 방출된 양전자는 0.54MeV까지 연속적인 에너지 분포를 나타낸다. 재료에서의 양전자의 침투 깊이는 다음과 같은 관계식[15]에 의해 결정된다.

$$P(z) = \exp(-az), \quad a = 17 \frac{\rho}{E_{\max}^{1.43}}$$

여기서, a 는 감쇠길이, ρ 는 밀도 그리고 z 는 침투 깊이이다. 따라서, 방출된 양전자 중에 약 75%는 양성자 조사 영역에서 나머지는 비조사 영역에서 소멸된다.

미세경도

조사후 등시열처리 온도에 따른 Vicker 미세경도의 변화를 그림 3에 나타내었다. 조사 전후 그리고 열처리에 따른 회복거동은 2상 영역 열처리에 따른 미세조직 변화에 큰 영향을 받지 않는 것으로 나타났다. 200°C에서 등시 소둔열처리 후에 미세경도는 조사 후보다 각각 13%, 8% 증가하여 300°C까지 일정한 수준을 유지하였다. 이러한 현상은 탄소가 함유된 Fe에서 확인된 radiation anneal hardening(RAH) [16-19]으로 조사 전에 과포화되어 있던 탄소 등의 불순물이 170~230°C 영역에서 열처리시 공공 형태의 조사결함으로 확산하여 기공형성을 억제하고 공공-불순물 복합체를 형성하여 경화를 일으키는 것으로 알려져 있다. 300°C 이상의 열처리에 의하여 미세경도는 연속적으로 감소하였는데 이것은 공공-불순물 복합체의 해체에 따른 Fe_3C 탄화물(230~330°C)의 형성과 공공 형태 조사결함의 소멸에 의한 것으로 알려져 있다. 최종적으로 550°C에서 조사 전의 미세경도 값으로 회복되었다.

양전자 수명

수명 스펙트럼은 양전자가 양전자원에서 소멸되는 신호를 추출한 후에, 3개의 수명 성분, τ_i ($i=1, 2, 3$)와 이들의 상대밀도 I_i 로 분리하였다. 1.2ns 정도의 수명을 나타내는 τ_3 는 시편 표면의 얇은 산화막에 기인한 것으로 분석에서는 제외하였다 [20]. τ_1 은 양전자가 결함에 포획되지 않고 완전 격자에 국부화되어 소멸될 때의 수명이며 τ_2 는 양전자가 결함에 포획되어 소멸될 때의 수명이다. 본 실험에 사용된 재료는 구 오스테나이트 결정립계, 패킷, 래스, 아결정립, 전위 그리고 탄화물 등의 초기 결함이 혼재한 복잡한 재료로서 양전자 수명을 특정 종류의 결함과 연결하여 설명하기는 매우 어렵다. 그러나, 표 4에 나타낸 바와 같이 실험과 이론적 결과들과 비교하여 주요한 결함의 형성과 소멸을 설명

할 수 있다. 그림 4에 등시 열처리에 따른 평균 양전자 수명, $\tau_m = \sum(\tau_i \cdot I_i) / \sum I_i$ 의 변화를 나타내었다. 미세경도 결과와 마찬가지로 양전자 수명도 2상영역 열처리에 따른 미세조직 변화에 큰 영향을 받지 않는 것으로 확인되었다. 비조사재의 수명은 소둔된 Fe의 평균 수명 110ps보다 크게 나타났는데 이것은 가공열처리에 의하여 형성된 전위와 Fe₃C, Mo₂C 등의 탄화물과 기지 사이의 부적합 결합에 의한 것으로 알려져 있다 [21, 22]. 조사 후에는 두 재료 모두 약 150ps로 수명이 증가하여 조사결합이 형성되었음을 알 수 있다. 조사결합과 초기결합에 의한 영향이 혼합되어 있어서 명확히 결합의 종류를 구분하는 것은 어려우나 150ps의 수명은 표 4를 통하여 알 수 있듯이 대체로 기공보다 작은 침입형 원자, 전위, 탄화물 그리고 공공 등의 결합에 의한 것으로 판단된다. 200°C에서 열처리 후, 조사재에 비하여 수명이 약간 감소하고 250°C 열처리 후 조사재와 비슷한 수준의 수명을 나타내는 것은 radiation anneal hardening으로 설명될 수 있다. 200°C 열처리에 의해 탄소 등의 불순물이 조사에 의하여 형성된 공공 형태의 결합과 결합하기 때문에 조사재에 비하여 상대적으로 빈 공간(open volume)이 감소하여 양전자 수명이 다소 감소하며 250°C 열처리에 의해 공공-불순물 복합체는 나노크기의 탄화물 형성에 의해 분리되어 조사재의 수명과 유사한 것으로 생각되며 문헌의 결과와 일치하고 있다. 300°C 이후 평균 수명은 연속적으로 감소하여 550°C 이후에 일정한 수준을 유지하였으나 비조사재보다도 짧은 수명을 나타내었다. 일반적으로 압력용기강은 610°C 이상에서 31시간 이상 템퍼링 및 후열처리를 통하여 매우 안정적인 미세조직을 유지하며 비조사재의 열처리 결과 양전자 수명의 변화가 없다는 것이 보고된 바 있다. 따라서, 이러한 현상은 조사 전에 존재하는 전위가 조사 결합과의 반응에 의한 부분적 소멸에 기인하는 것으로 알려져 있다.

4. 결론

2상영역 열처리 공정을 적용에 따른 압력용기강 시제품의 3.2MeV 양성자 조사 및 회복 특성을 미세경도 및 양전자 수명을 이용하여 고찰한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 2상영역 열처리 적용에 따른 석출물의 미세화(CHT: 0.15 μ m, IHT: 0.13 μ m) 및 결정립의 미세화(CHT: 11.9 μ m, IHT: 11.1 μ m) 등의 미세조직 변화는 조사 및 회복 특성에 큰 영향을 미치지 않는 것으로 확인되었다.
2. 200~300°C의 회복 열처리에서 radiation anneal hardening이 미세경도와 양전자 수명

측정을 통하여 관찰되었다. 이것은 조사전 재료 내에 과포화되어 있던 탄소 원자가 확산에 의하여 조사에 의하여 형성된 공공과 복합체를 형성하여 전위의 이동을 방해함으로써 발생하는 것으로 판단된다.

3. 550°C 회복 열처리 후 양전자 수명은 조사 전보다 감소하였는데 이러한 현상은 조사전에 존재하는 전위가 조사 결함과의 반응에 의한 부분적 소멸에 기인하는 판단된다.

후기

본 연구는 과학기술부의 원자력 중장기 연구개발사업중 조사손상평가 기반기술개발과제의 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. Nesbitt 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. C. Lopes Gil, A.P. De Lima, N. Ayres De Campos, J.V. Fernandes, G. Kogel, P. Speer, W. Triftshauer, and D. Pauchur, *J. Nucl. Mater.* 161, 1989, pp. 1
12. J.F. Ziegler and J.P. Biersack, SRIM 2000 Program, IBM Corp., Yorktown, NY
13. Komarov, F. F, "Ion beam modification of metals" , Gordon and Breach Science Publishers, Philadelphia, USA, 1992, pp. 22
14. F.A. Gardner, B.M. Oliver, L.R. Greenwood, M.R. James, P.D. Ferguson, S.A. Maloy, W.F. Sommer, *J. Nucl. Mater.* 296, 2001, pp. 66
15. W. Brandt and R. Paulin, *Phys. Rev. B* 15, 1977, pp. 2511
16. F. Abe, T. Noda, H. Araki, M. Narui and H. Kayano, *J. Nucl. Mater.* 191-194, 1992, pp. 845
17. M.S. Wechsler and K.L. Murty, *Metall. Trans.* 20A, 1989, pp. 2637
18. S. Takaki, J. Fuss, H. Kugler, U. Dedering, and H. Schultz, *Radiation Effects*, 79, 1983, pp.87
19. F.E. Fujita and A.C. Damask, *Acta Metall*, 12, 1964, pp. 331
20. F. Becvar, Y. Jiraskova, E. Keilova, J. Kocik, L. Lestak, I. Prochazka, B. Sedlak, M. Sob, *Mater. Sci. Forum* 105-110, 1992, pp. 901
- 21 J. Cizek, I. Prochazka, J. Kocik, and E. Keilova, *Phys. Stat. Sol. (a)*, 178, 2000, pp. 651
22. Ramiro Pareja, Nieves De Diego, Rosa Maria De La Cruz, and Javier Del Rio, *Nucl. Tech.* 14, 1993, pp. 52

Table 0. 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.

Table 2. The heat treatment conditions of the SA508 Gr.3 steel

Process	Normalizing		Tempering		Austenitizing		Intercritical Austenitizing		Tempering		PWHT	
	Temp. (°C)	Time (hr)	Temp. (°C)	Time (hr)	Temp. (°C)	Time (hr)	Temp. (°C)	Time (hr)	Temp. (°C)	Time (hr)	Temp. (°C)	Time (hr)
Conventional HT	950	5	650	5	880	5			655	5	610	31
Intercritical HT	950	5	650	5	880	5	730	5	655	5	610	31

Table 3. The tensile and impact properties of the steel with heat treatment conditions

Material	Y.S.(MPa)	U.T.S.(MPa)	T.E.(%)	R.A.(%)	T _{41J} (°C)	T _{41J} (°C)	U.S.E.(J)
CHT	462	610	29	74.8	-28	-13	255
IHT	430	586	32	73.5	-53	-39	324

Table 4. Positron lifetimes for defect configuration in α -Fe and carbides in steels

Material	Positron lifetime [ps]
Fe-bulk	110
Fe-edge dislocation	142
Fe-screw dislocation	165
Fe-monovacancy	175
Fe-6V microvoid	304
Fe ₃ C	101
Mo ₂ C	112

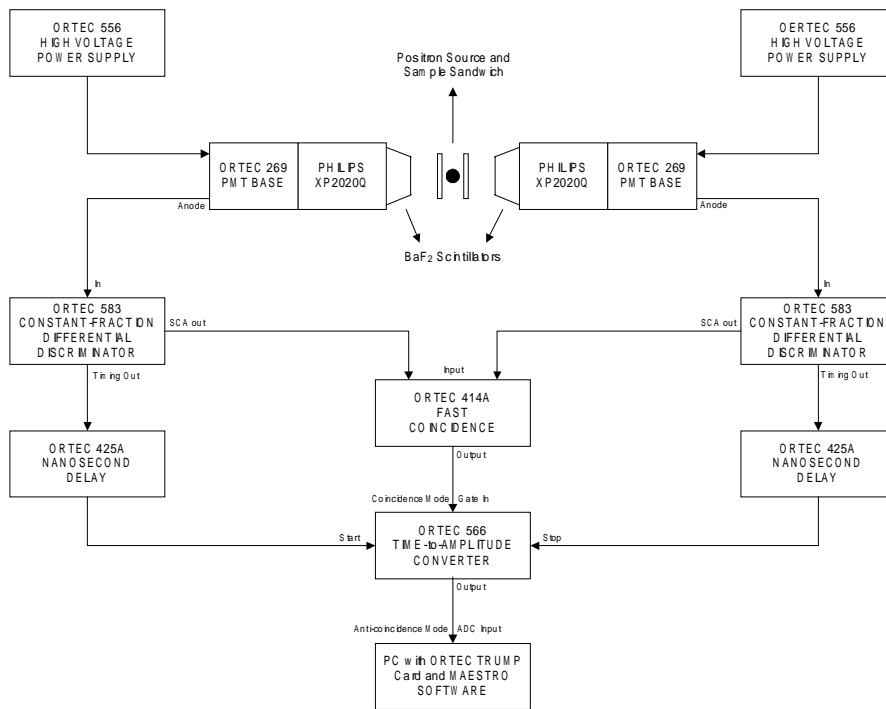


그림 1. A Block Diagram of Positron-Lifetime Spectrometer

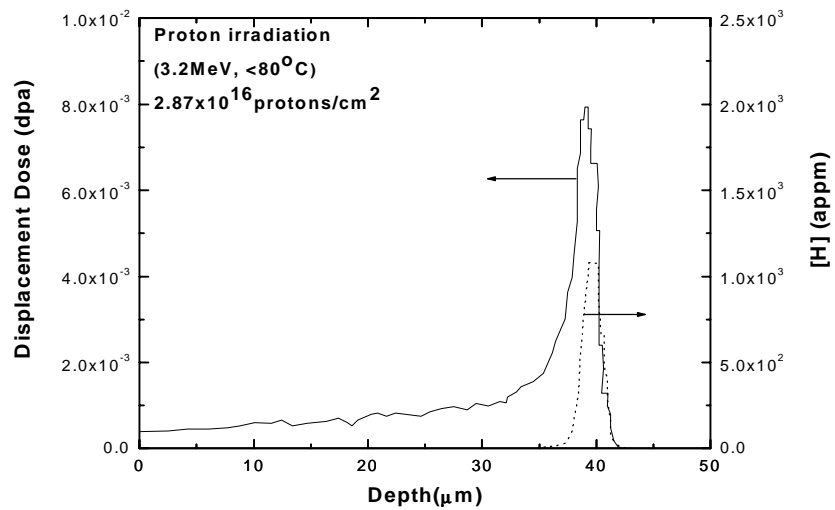


Fig. 2. Depth profiles of displacement of atoms and hydrogen

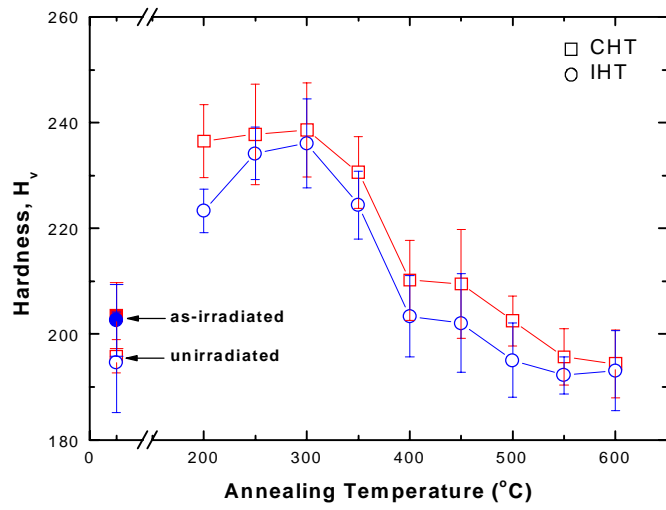


Fig. 3. Vicker microhardness as a function of isochronal annealing temperature

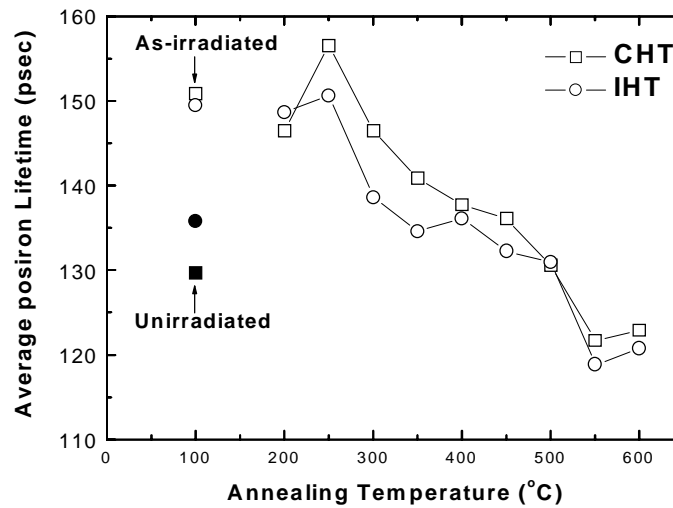


Fig. 4. Average positron lifetime as a function of isochronal annealing temperature