

## 중성자 조사 및 열처리에 따른 SA508 Cl.3강의 자기특성 변화

장기욱<sup>1,2</sup> · 김택수<sup>1</sup> · 심철무<sup>1</sup> · 지세환<sup>1</sup> · 김종오<sup>2</sup>

<sup>1</sup>한국원자력연구소, 대전 305-600

<sup>2</sup>충남대학교 재료공학부, 대전 305-764

(1998년 7월 23일 받음, 1998년 9월 22일 최종수정본 받음)

자기측정법에 의한 조사손상 평가 가능성을 조사하기 위하여 SA508 Cl.3강 모재금속의 중성자 조사 및 열처리 온도에 따른 자기특성(자기이력곡선, Barkhausen Noise(BN) 진폭, BN 에너지)과 경도 변화를 측정 비교하였다. 중성자 조사에 따라 자화율, BN 진폭, BN 에너지는 감소하였고 보자력과 경도는 증가하였으며, 포화자화 값은 변화하지 않았다. 열처리된 조사시편의 경우, 열처리 온도 증가에 따라 BN 에너지는 증가하였으며, 경도는 감소하였다. 결합과 전위 혹은 자벽 이동과의 상호작용에 의한 경도 및 자기특성의 일관성 있는 변화는 원자로 압력용기 재료의 조사손상 평가와 관련 자기적 측정법 응용 가능성을 보여주었다.

### 1. 서 론

원자로 압력용기강과 같은 페라이트계 합금이 중성자에 조사되면 연성-취성전이온도(DBTT)와 항복응력이 증가하게 되고, 최대흡수에너지가 감소하는 취화현상이 나타난다. 이러한 원자로 압력용기강의 조사취화 기구에 관한 지금까지의 연구결과를 정리하면[1, 2], 조사에 따른 미세 석출물 및 결합(vacancy, interstitial)의 생성 그리고 이들 결합과 잔류 불순물(Cu, P) 혹은 합금원소(Ni)와의 상호작용에 의하여 생성된 결합(vacancy-impurity clusters)등이 주요 원인으로 밝혀져 있다. 중성자 조사에 따른 압력용기 재료의 조사취화 평가결과는 발전소 안전 운전조건 결정 및 수명평가에 중요한 자료로 사용되고 있다. 정확한 취화평가 방법과 관련하여 지금까지 많은 방법들이 적용·연구되어 왔으며[3, 4, 5], 최근에는 충격, 인장, 파괴인성등의 파괴적인 평가방법과 함께 비파괴적 평가방법(자기측정법, 전자기시험법, 초음파시험법등)을 조사손상 평가에 적용하고자 하는 연구가 많이 수행되고 있다[6-9]. 특히 강자성 재료가 중성자에 조사되면 중성자 조사에 의해 생성된 결합들이 자벽의 이동을 방해함으로써 자기적 성질에 영향을 미치게 된다[10]. 자기측정법에서는 자기이력곡선에 나타나는 자기적 변수들과 강자성 물질이 자화될 때 불연속적인 자화에 의해 발생하는 Barkhausen Noise(BN)의 변화를 측정하여 조사에 따른 미세조직 변화를 평가하게 된다[11-13].

본 연구에서는 조사취화 비파괴적 평가법 개발에 관

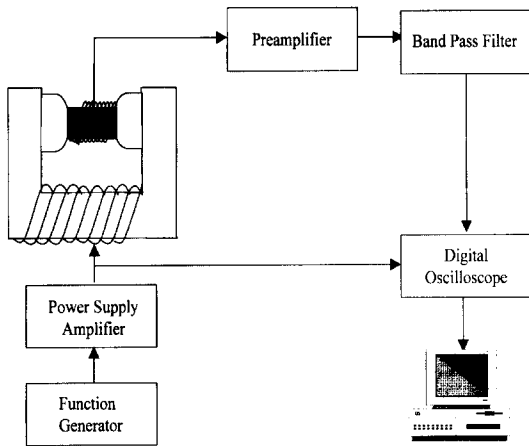
한 이전의 연구[14]와 관련하여 원자로 압력용기 재료인 SA508 Cl.3강 모재금속의 중성자 조사 및 진공 열처리에 따른 자기적 성질 변화와 경도 변화를 측정 비교하여 자기측정법에 의한 원자로 압력용기 재료 중성자 조사취화 평가 가능성을 고찰하였다.

### 2. 실험방법

본 연구에 사용한 시편은 국내 상용발전소의 원자로 압력용기 재료의 감시시험 계획에 따라 제공된 SA508 Cl.3 저합금강 모재금속(base metal)으로서 화학조성은 Table I과 같다. 시편의 총 조사량은  $2.3 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup>(E ≥ 1.0 MeV)이며, 조사 온도는 약 288 °C이다. 조사 및 열처리에 따른 경도와 자기특성 변화를 측정하기 위하여 진공열처리를 행하였다. 미세경도측정은 고온미세경도시험기(Model Nikon QM-2)를 사용하였으며, 측정시 현미경 배율을 400배로 초점을 맞추고 1 kg의 하중을 15초 동안 가한 후, 10회 이상 측정하여 평균값을 사용하였다. 자기이력곡선은 진동시료형자력계(Vibrating Sample Magnetometer)로 측정하였으며 시료는 지름 3 mm, 두께 100 μm의 디스크 형태로 제작하여 반자장에 의한 영향을 최소화하였다. Barkhausen noise(BN)는 요크를 사용하여 교류전류로서 시편을 자화 시킨 후, 시편에 적합한 encircle형 탐촉자를 사용, 시편의 긴방향으로 자화시켜 측정하였다. 탐지코일에 유도된 신호는 low pre-amplifier로 46 dB로 증폭한 후, 16~18 kHz의 band pass filter를 거쳐 digital

**Table I.** Chemical composition (wt%) of SA508 C1.3 Steel

Element	C	Mn	P	S	Si	Ni
Base	0.155	1.28	0.006	0.005	0.168	0.712
Element	Mo	Cr	Cu	Al	Co	Fe
Base	0.484	0.171	0.063	0.011	0.012	bal.



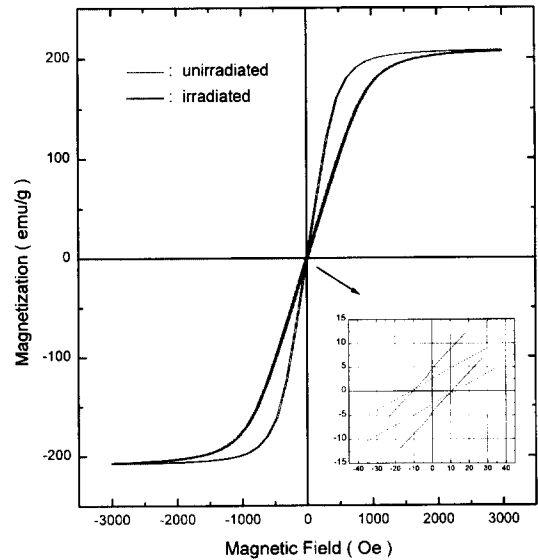
**Fig. 1.** Block diagram of Barkhausen noise measurement equipment.

oscilloscope(Lecroy 9310)를 사용하여 신호 형태로 측정하였다. BN envelope의 측정은 증폭된 BN 신호를 처리하기 위하여 정류기와 콘덴서를 사용하였다. BN 신호는 digital storage oscilloscope를 통한 후 GPIB보드로 연결된 컴퓨터로 수집하여 처리하였다. 이때 BN 측정의 최적조건을 구하기 위하여 교류자기장의 주파수와 자장의 세기를 각각 0.5~10 Hz, 15~90 Oe까지 변화시켰다. BN 측정장치의 개략도는 Fig. 1과 같다. 또한 조사된 시료의 회복거동을 알아보기 위하여 진공열처리를 행하였으며, 이때 진공도는  $1 \times 10^{-5}$  Torr 이하에서 각각 470, 540 °C로 4시간 동안 유지한 후 냉각하여 각각 경도변화와 BN 에너지를 측정하였다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 중성자 조사 및 열처리에 따른 자기특성 변화

비조사재와 중성자로 조사된 모재금속의 자기이력 곡선 변화는 Fig. 2와 같다. 중성자 조사에 의하여 자기이력곡선이 시계방향으로 회전하는 것으로 보아 비조사재에 비하여 상대적으로 자화율이 50% 감소되는 것



**Fig. 2.** comparison of hysteresis loops for unirradiated and neutron irradiated base metal with does of  $2.3 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup>.

으로 나타났다. 이는 중성자 조사로 인하여 재료내부에 결함(개재물, 석출물, void, 전위, 격자간원자등) 또는 비자성 영역의 증가에 의하여 자벽의 이동을 방해함으로써 자화율이 감소되는 것으로 사료된다. 포화자화 값은 재료의 고유상수이고, 재료의 미세구조에는 변화하지 않는다고 알려져 있다. 따라서 포화자화 값은 중성자 조사에 의해서 변화하지 않고 약 207 emu/g으로 일정하였다. 또한 모재금속의 보자력은 중성자의 조사에 의하여 10 Oe에서 12 Oe로 증가하였다. 이는 Gyorgy[15] 등이 도출한 보자력에 관한 식으로 설명되어 있는데 그 관계식은 다음과 같이 표시되어 진다.

$$H_c = \frac{4S(AK)^{1/2}}{(M_s t)} \quad (1)$$

여기서 S: 개재물의 크기 및 밀도, A: 교환상수, K: 이방성 상수, M<sub>s</sub>: 포화자화, t: 시료두께이다. 이식에서 A, M<sub>s</sub>, t가 일정하다고 본다면 보자력은 개재물의 크기 및 밀도에 의해 결정되어 진다. 따라서 중성자 조사에 의한 재료 내부의 결함 또는 제2상 입자의 증가에 의해서 보자력이 증가하는 것으로 사료된다. 또한 이와같은 연구의 예는 Narayan[16]이 고강도 저합금강의 미세구조와 기계적·자기적성질 연구에서 제2상의 입자들의 크기와 형태가 자기적 성질 특히 보자력에 큰 영

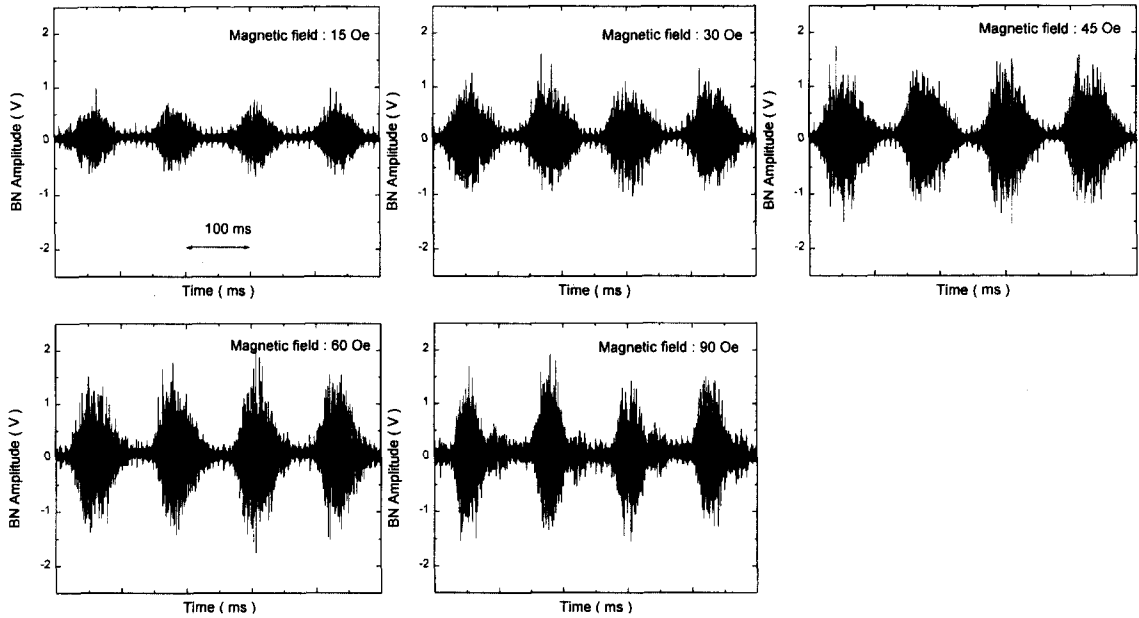


Fig. 3. Dependence of magnetic Barkhausen waveforms on the magnetic field of irradiated base metal.

향을 미친다고 보고하였다.

Fig. 3은 조사된 모재금속의 외부자장에 따른 BN 신호의 변화를 나타낸 것이다. 측정시 주파수는 4 Hz로

고정하였다. 그림에서 60 Oe까지는 외부자장이 증가함에 따라 BN 진폭은 급격히 증가하다가 그이상의 자장에서는 거의 일정하였다. 이와같은 BN 진폭의 자장

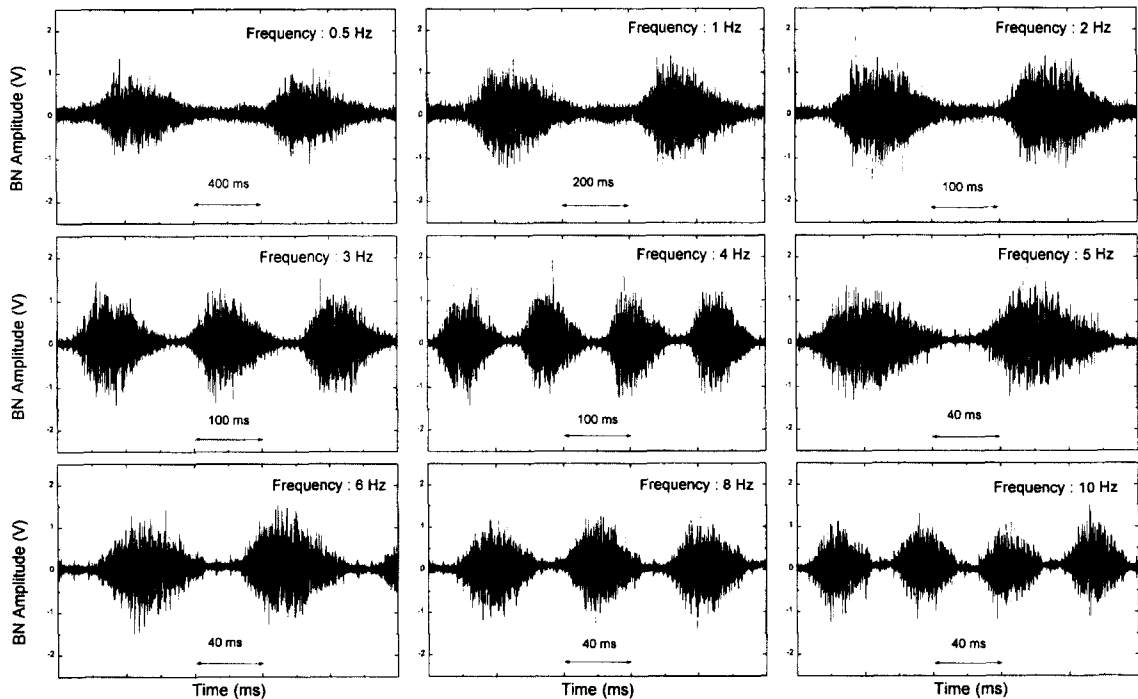


Fig. 4. The changes of magnetic Barkhausen waveforms as a function of applied frequency.

의존성은 Jiles의 모델[17]에 의하여 설명되어진다. 이 모델에서 Barkhausen 이동도( $M_{js}$ )는 다음과 같이 표시되어진다.

$$M_{js} = \gamma \chi_{irr} H \quad (2)$$

여기서  $\gamma$ : 크기와 관련없는 비례상수,  $\chi_{irr}$ : 자화율, H: 외부자장

이 식에 의하면 이동도와 외부자장은 비례관계에 있는데, 60 Oe 이하의 낮은 자장에서는 외부자장이 증가함에 따라 Barkhausen 이동도가 증가하여 BN 진폭이 증가하는 것으로 사료된다. 또한 60 Oe 이상에서는 외부자장을 증가하여도 자벽이동이 더 이상 증가되지 않아 BN 진폭이 증가하지 않는 것으로 생각된다.

Fig. 4는 조사된 모재금속의 교류주파수에 따른 BN 신호의 변화를 나타낸 것이다. 측정시 외부자장은 45 Oe로 고정하였다. 그림에서 인가자장의 주파수 4~5 Hz 이하에서는 주파수가 증가할수록 BN 진폭이 증가하는데, 주파수가 증가함에 따라 자구의 비가역적인 운동이 증가하여, 조사에 의해서 생긴 defect cluster와 상호작용을 증가시켜 BN 진폭이 증가하였다. 그리고 인가자장의 주파수 4~5 Hz 이상에서는 주파수가 증가할수록 BN 진폭이 감소하는데, 이는 와전류에 의해서 시료 표면에 나타난 자기장이 자화의 반전을 방해하여 시료 내부에서의 자화를 방해하기 때문에 BN 진폭이

감소되는 것으로 사료된다. Fig. 3과 4의 결과로 BN 신호를 측정하기 위한 최적 조건이 주파수 4~5 Hz, 외부자장 45~60 Oe 범위에 있어 실험 조건을 주파수 4 Hz, 외부자장 45 Oe로 정하였다.

Fig. 5는 모재금속에서 비조사재, 조사재에 대해 교류주파수 4 Hz, 45 Oe의 자장의 세기에서 측정된 BN 신호를 나타내었다. 그림에서 비조사재에 비해 중성자에 조사된 재료는 BN 진폭이 감소하였다. BN 신호는 강자성체에 자기유도된 신호로서 자구의 비가역적인 운동을 반영하며, 유도코일의 회전수 및 재료의 미세 조직이나 상태 등 여러요인이 결합되어 일어나는 통계적인 과정이다. 따라서 자구운동이 방해받을 때 BN이 감소한다고 알려져 있다. 따라서 BN 진폭은 중성자 조사에 의하여 생성된 결함들이 자벽의 운동을 방해하여 감소된 것으로 사료된다.

Fig. 6은 모재금속에서 비조사재, 조사재 및 열처리한 조사재에 대해 교류주파수 4 Hz에서 측정된 외부자장에 따른 BN 에너지의 변화를 나타낸 것이다. 전체 시편에서 BN 에너지는 낮은자장에서는 급격히 증가하다가 60 Oe 이상에서는 거의 일정 하였다. 비조사재에 비해 중성자에 조사된 재료에서 BN 에너지가 감소하였으며, 이는 BN이 중성자 조사에 의하여 생성된 defect cluster 등이 자벽의 운동을 방해하여 BN 진폭이 감소되어 BN 에너지가 감소되는 것으로 생각된다. 또한 조사된 재료를 470, 540 °C에서 각각 4시간 열처리

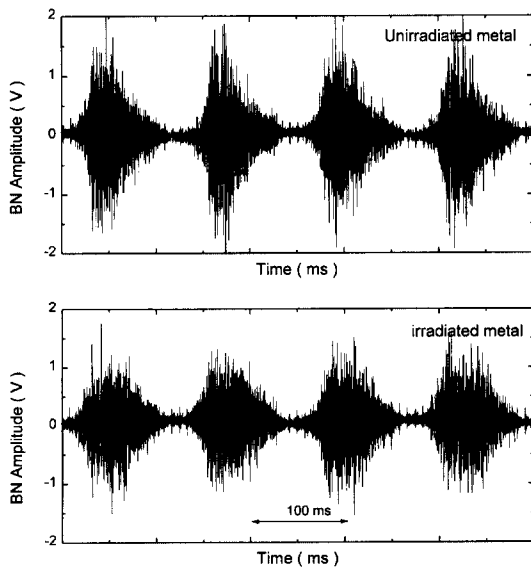


Fig. 5. Magnetic Barkhausen waveforms of base metals at a magnetizing field of amplitude of 45 Oe.

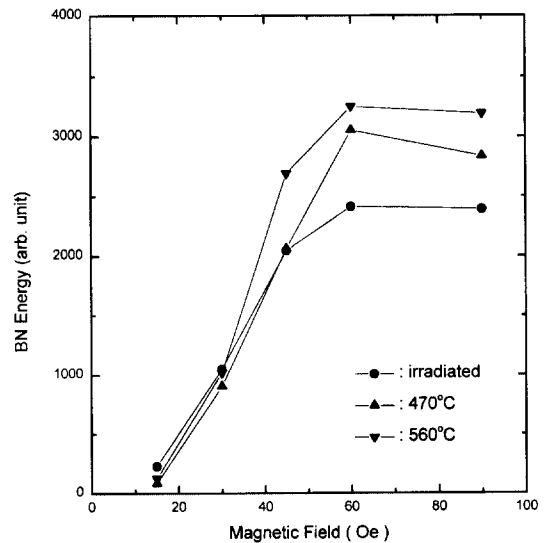


Fig. 6. The changes of Barkhausen noise energy as a function of magnetic field in base metal.

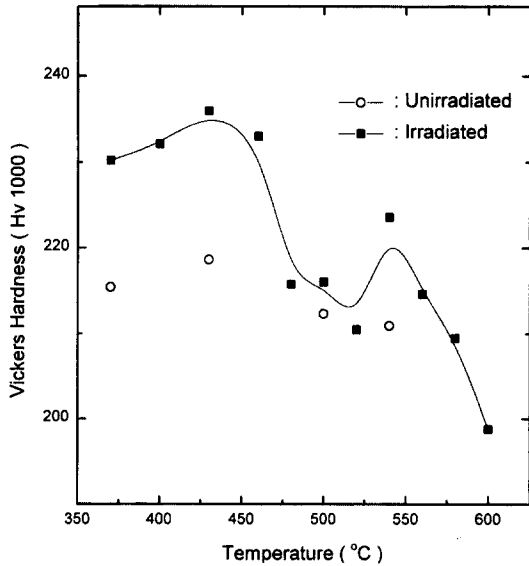


Fig. 7. Isochronal recovery curve of base metal specimen (fluence:  $2.3 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup>, irr. temp.: 288 °C).

함에 따라 BN 에너지가 증가하였는데, 이는 열처리에 의하여 자벽의 이동을 방해하는 탄화물이나 제 2상과 같은 자기적으로 이질성을 가진 상이 조대화되어 체적 밀도가 감소하여 자벽의 고착점의 수가 줄어들게 되어 BN 에너지가 증가되는 것으로 사료된다.

3.2 중성자 조사 및 열처리에 따른 경도 변화

Fig. 7은 375~600 °C 온도범위에서 실시한 조사재와 비조사재의 열처리 온도에 따른 경도변화를 나타낸 것이다. 그림에서 비조사재의 미세경도는 203.9이고 조사재는 231.7을 나타내었다. 이는 중성자 조사에 의해서 Cu 석출물과 점결합 집합체의 영향으로 경도가 증가된 것으로 사료된다. 또한 조사된 시편은 430~480 °C, 540~600 °C의 온도구간에서 2단계로 회복기능을 보였으며, 1단계 구간의 미세경도의 회복량은 57.5%이고, 2단계 구간에서는 거의 회복되었다. 비조사재에 대한 미세경도 해석을 통해 540 °C에서 RAH (Radiation Anneal Hardening) 피크를 확인 할 수 있었고, 430 °C에서는 Temper embrittlement와 관련이 있는 것으로 판단되는 피크가 관찰되었다. 이와같이 열처리에 의한 경도의 저하는 점결합의 집합체가 미세공공 (microvoid)을 형성하고 열처리로 공공방출이 일어나 점결합이 소멸되거나 전위와 결합하여 소멸한 것으로 보인다.

Table 2. Comparison of magnetic parameters and hardness of base metal

Materials	Hysteresis Loop			BN Energy (Hv 1000)	Hardness
	Ms (emu/g)	Susceptibility	Hc (Oe)		
Unitrad.	207	1	8.8	3913	204
Irrad.	207	0.50	11.9	2411	232
470°C	207.5	0.83	9.7	3052	224
560°C	207.8	0.89	8.9	3240	214

3.3 자기특성 변화와 경도 변화의 상호관계

중성자 조사 및 열처리 온도에 따른 자기적 특성과 경도 변화를 표 2에 정리하였다. 표에서 중성자 조사에 의해 자화율, BNE는 감소하고 보자력과 경도는 증가하였다. 여기서 자화율은 비조사재를 1로 기준으로 하여 측정 비교하였다. 또한 조사된 시편을 열처리 하였을 때 자화율, BNE는 증가하고 경도와 보자력은 감소하였다. 따라서 결함과 전위와의 상호작용으로 설명되는 경도 변화와 결함에 의해 자벽 이동의 고착화에 의존하는 자기특성 변화가 중성자 조사 및 열처리 온도에 따라 일관성 있게 변화하고 있음을 알 수 있었다.

대표적인 자기특성인 BN 에너지와 경도와의 상호관계를 Fig. 8에 나타냈다. 그림에서 BN 에너지와 경도는 지금까지 발표된 결과[16, 18]와 같이 서로 역비례 관계가 있음을 보여 주고 있다.

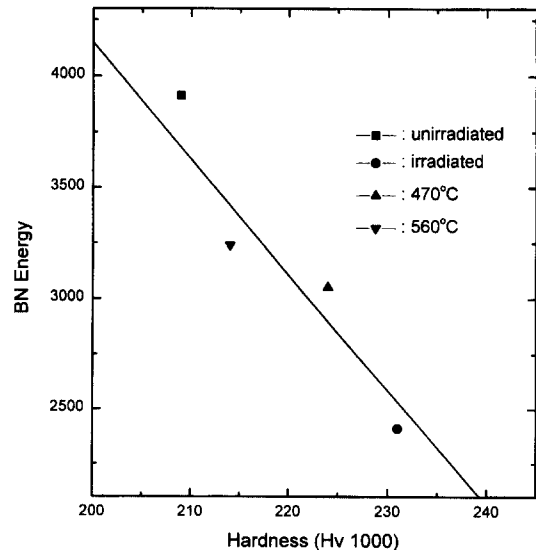


Fig. 8. Correlation between BNE and the vickers hardness.

### 4. 결 론

SA508 Cl.3강 모재금속에서 중성자 조사 및 열처리 온도에 따른 자기이력곡선, BN 진폭, BN 에너지 및 경도의 변화를 측정하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

자기이력곡선에서 중성자 조사에 의하여 자화율은 감소되고, 보자력은 증가하였으며 포화자화는 일정하였다. 또한 BN 진폭과 BN 에너지는 감소하였으며, 경도는 증가하였다. 조사된 시편을 열처리 시킴으로써 BN 에너지는 점차 증가하였고, 경도는 감소하였다. 경도변화와 BN 에너지 변화 사이에는 서로 역비례 관계가 있음을 보여주었다. 따라서 원자로 압력용기강의 중성자 조사취화는 기존의 평가방법인 충격시험, 인장시험 및 파괴인성 시험에 대해 비파괴적 방법인 자기 측정법으로 적용이 가능하다고 사료된다.

### 참 고 문 헌

[1] G. Gage and E. A. Little, Nuclear Energy 33(3), 153(1994).  
 [2] W. J. Phythian and C. A. English, J. Nucl. Mater. 205, 162(1993).  
 [3] C. A. English et al., Int. J. Pres.Ves. and Piping 54, 49(1993).

[4] J. T. Buswell et al., J. Nucl. Mater. 205, 198(1993).  
 [5] R. G. Faulkner et al., Mater. Characterisation 25, 192(1990).  
 [6] W. J. Shong, J. G. Williams and J. F. Stubbiks, ANS Transactions 192(1993).  
 [7] D. S. Drinon, R. D. Rishel and P. K. Liaw, 12th International conference on NDE in Nuclear Pressure Vessel Industries, ASM International 341(1994).  
 [8] D. O. Hunter, Battelle Northwest Labs. Report No. BNWL-SA-1467, CONF-671011-3, 24(1967).  
 [9] F. Hori, M. Takenaka, E. Kuramoto and U. Aono, Scripta Metallurgica 29(2), 243(1993).  
 [10] A. Mitra, Z. J. Chen and D. C. Jiles, NDT & E International 28(1), 29(1995).  
 [11] I. Altpeter, Journal of NDE 15(2), 45(1996).  
 [12] J. Kameda, Scripta Metallurgica 22, 1490(1988).  
 [13] ASTM A370-92, ASTM Standards, Section 3, Philadelphia, PA (1993).  
 [14] 김병철, 장기옥, 최순필, 이삼래, "중성자 조사에 따른 원자로 재료의 조사 손상 비파괴 평가 기술", 비파괴학회지 17(1), 33(1995).  
 [15] E. M. Gyorgy, "Metallic Glasses", edited by J. J. Gilman and H. J. Leamy, American Society for Metals 275(1978).  
 [16] S. P. Narayan, et al., J. of Magn. Magn. Mat. 96, 137(1991).  
 [17] Jiles, D. C., Siphai, L. B and Williams, G., J. Appl. Phys. 73, 5830(1993).  
 [18] D. K. Bhattacharya, et al., NDT & E International 26(3), 141(1993).

## Magnetic Property Changes in Neutron-Irradiated and Heat Treated SA508 Cl.3 Steel

K. O. Chang<sup>1,2</sup>, T. S. Kim<sup>1</sup>, C. M. Sim<sup>1</sup>, S. H. Chi<sup>1</sup> and C. O. Kim<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Korea Atomic Energy Research Institute, Taejon 305-600, Korea

<sup>2</sup>Department of Materials Engineering, Chungnam National University, Taejon 305-764, Korea

(Received 23 July 1998, in final form 22 September 1998)

In relation to the application of magnetic method to the evaluation of irradiation damage (embrittlement) changes in the magnetic parameters(hysteresis loop and Barkhausen noise) and Vickers microhardness due to neutron irradiation and heat treatment were measured and compared. In the case of irradiation ( $2.3 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup>,  $E \geq 1$  Mev, 288 °C) hysteresis loop measurements show that susceptibility decreases as coercivity increases. Saturation magnetization do not show any change. Barkhausen noise amplitude and Barkhausen noise energy have decreased while Vickers microhardness has increased. For isothermally heat treated condition of irradiated specimen at 470 °C and 540 °C, Barkhausen noise energy has increased while Vickers microhardness has decreased. Results of BNE and Vickers microhardness are reversed to the results on irradiated condition. All these consistent changes in magnetic parameter and Vickers microhardness measurement, which are thought to be resulted from the interaction between irradiation-induced defects and dislocation, and magnetic domain, respectively, show a possibility that magnetic measurement may be used to the evaluation of material degradation and recovery due to neutron irradiation and heat treatment, respectively, if a relevant large database in prepared.