2000 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

중성자 조사 취화 재료의 자기적 특성 변화

Magnetic Property Change of the Material Embrittled by Neutron Irradiation

장기상, 김형남, 홍승열

한국전력공사 전력연구원
대전광역시 유성구 문지동 103-16

정명모

한국원자력안전기술원
대전광역시 유성구 구성동 19번지

요 약

고속중성자가 조사된 재료내에 생성된 결함이 자기적 특성에 미치는 영향을 평가하기 위하여, 대기압, 70℃에서 고속 중성자(조사량 : 10^0 - 10^{18} n/cm^2, E>1 MeV)가 조사된 원자로 용기강재의 자기적 성질(최대 자기유도, 보자력, 잔류자기, Barkhausen noise amplitude (BNA), Barkhausen noise energy(BNE)) 및 경도를 측정하였다. 10^{17} n/cm^2 이하의 고속 중성자 조사에서 자기적 특성 및 경도의 변화는 없는 것으로 나타났으나, 10^{17} n/cm^2 이상 조사에서는 최대 자기유도, 보자력, 잔류자기, BNA, BNE는 감소하고, 경도는 증가하는 것으로 나타났다. 따라서 경도 증가에 따라 자기적 특성은 감소하는 것을 알 수 있었다. 측정된 요소들이 전부 10^{17} n/cm^2 이상에서 일관성 있게 변화를 보이고 있어 이 방법을 이용하여 중성자 조사취화를 비파괴적으로 평가할 수 있음을 알 수 있었다.

Abstract

In order to assess the effects on the magnetic properties due to the defect in the material irradiated by fast neutron ranging 10^0-10^{18} n/cm^2, the magnetic properties such as maximum magnetic induction, coercivity, remanence, Barkhausen Noise Amplitude(BNA), Barkhausen Noise Energy(BNE) and hardness were measured. It is shown that the magnetic properties and hardness do not change by the fast neutron irradiation under 10^{17} n/cm^2, but the magnetic properties decrease and the hardness increases by the irradiation over 10^{17} n/cm^2. Therefore, in this experiment, it is understood that the magnetic properties decrease by the increase of hardness. This measurement method can be used to evaluate the neutron irradiation embrittlement nondestructively since the magnetic properties and hardness do change by the neutron irradiation over 10^{17} n/cm^2 consistently.

1. 서론

원자로 가동중 고속 중성자 (E>1 MeV)가 원자로 용기 강재에 조사(irradiation)되면 강재내에 결함이 생성되어 [1] 연성이 감소하고, 경도가 증가하는 중성자 조사취화 현상 [2]이 일어나 원자로 용기강재의 건전성이 저하된다. 따라서 원자력발전소에서는 원자로 용기 감시시편(surveillance specimen)을 이용하여, 원자로의 연성을 확보할 수 있는 최저 운전온도를 결정하고 있다. 그러나 감시시편의 수는 설계 수명(40년) 동안에 사용할 수 있는 정도이며, 이 시편들은 파손되어 더 이상 활용할 수 없으므로 수명연장 시 중성자 조사 취화평가용 시편부족이 문제가 되고 있다.

이와 같은 문제점은, 비파괴적으로 중성자 조사취화 정도를 평가할 수 있다면, 시편을 반복적으로 활용될 수 있으므로 해결될 수 있다. 그러나 중성자 조사에 의해 생기는 결함의 크기는 2 4 nm 정도의 극히 미세한 결함 [3]이므로, 기존의 비파괴적 검사방법으로는 탐지가 불가능하다. 이에 따라 최근에 소형 시편으로, 간편하게, 정확하게 미세변화를 평가할 수 있는 자기적 특성실험 및 경도측정 방법이 연구되고 있다 [4-8]. 경도측정으로는 재료내에 결함의 증가여부를 알 수 있고, 결함은 자기적 특성에 영향을 미치는 것으로 보고되고 있으므로, 결함증가와 자기적 특성변화의 상관성을 평가하여, 이를 이용하는 경우 쉽게 중성자 조사취화를 평가할 수 있다. 최근에 M. K. Devine [7], W. J. Shong [8] 등은 중성자 조사량증가에 따라 최대 자기유도 및 잔류자기가 감소함을 측정하였고, Govindaraju [6]는 경도는 증가하는 것으로 보고하였다. 따라서 본 연구에서는 고속 중성자(E>1 MeV)가 조사된 원자로 용기강재의 자기적 특성과 경도 변화의 상관성을 분석하고, 동 방법을 중성자 조사영향 평가방법으로 사용할 수 있는지를 알아보았다. 이를 위하여 원자로용기 강재에 고속 중성자를 조사하여 시편을 만들고, 경도 및 자기적 특성(최대자기유도, 보자력, 잔류자기, Barkhausen noise amplitude (BNA), Barkhaus noise energy(BNE))를 측정하였다.

2. 실험

가. 시편의 성분 및 가공

본 연구에 사용한 재료는 원자로 압력용기 강재인 SA 508 Class 3 강재이며, 화학적 성분은 Table 1과 같다. 자기적 특성변화 및 경도측정시에는 시편이 두꺼우면 두꺼울수록 좋으나 자화시킬 때 시편이 두꺼우면 외부자장이 커져야 하는 문제가 있으므로 20 mm×15 mm×1 mm 크기로 가공하였다.

나. 중성자조사

제작된 시편은 원자력연구소 서울분소의 TRIGA MARK III 원자로에 70 ℃에서 중성자 조사하였다. 본 실험에서는 10^{0}, 10^{12}, 10^{13}, 10^{14}, 10^{15}, 10^{16}, 10^{17}, 10^{18} n/cm^{2} 의 중성자가 조사된 8 종류의 시편을 만들었다. 중성자 조사량은 ^{54}Fe (n,p) ^{54}Mn 시 방출되는 835 KeV 의 γ 선의 양을 Ge(Li) 검출기로로 측정하여, 계산하였다.

Table 1. Chemical composition of SA 508 CL. 3

원소	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr
wt%	0.17	0.004	1.42	0.004	0.003	0.98	0.22
원소	Mo	Al	Cu	V	Co	Fe	
wt%	0.58	0.003	0.045	0.003	0.006	Bal	

다. 경도실험

중성자 조사결함의 증가를 알아 보기 위하여 경도를 측정하였다. 사용된 기기는 Shimadzu Corp. 사 제품으로 모델은 HMV-2000 이다. 실험은 시편을 100 g_f 로 15 초간 누른후 다음의 공식을 이용하여 경도를 계산하였다 [9].

$$HV = 1.854\ F/d^2 \tag{1}$$

여기서 HV 는 Vickers hardness, F 는 test load, d 는 움푹파인 지역의 직경이며 HV 는 무차원이다.

라. 자기적 특성변화 측정실험

자기적특성 측정 장치는 Fig. 1에 나타나 있다. 함수발생기로 0.9 Hz 의 정현파를 발생 시킨후 Techron 560 전력증폭기로 증폭하여 U 모양의 ferrite core 에 220 번 감은 coil 에 연결하여 120 Oe 의 자기장을 발생 하였다. 유도된 자속밀도 B 는 시편 주위에 2200 번 감은 탐지 coil 에 유도된 전압을 자속계(flux meter)로 적분하여 구하였다. Barkhausen noise 는 자화 방법에는 헬름홀쯔 코일, 요크 등을 사용하여 교류 전류로 시편을 자화시킨후 시편에 적합한 encircling 형의 탐촉자를 사용하였다. 또한, 탐지 coil에 유도된 신호는 low noise pre-amplifier를 이용하여 46 dB로 증폭하였으며, 16 18 kHz 의 band pass filter 를 거쳐 digital 오실로스코프를 이용하여 신호를 관찰하였다. 자화는 시편의 가로, 세로 두 방향으로 하였다.

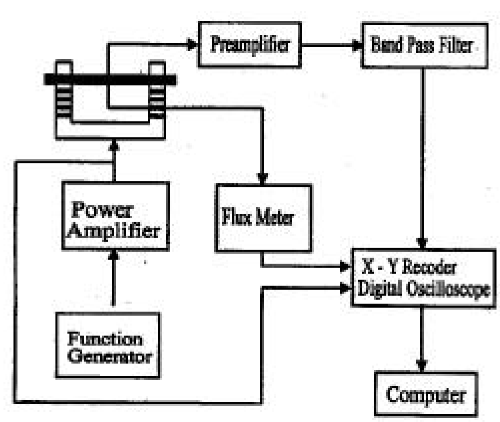


Fig. 1. Block diagram of magnetic property measurement system.

3. 실험결과 및 논의

경도는 10^{16} n/cm^2 의 중성자 조사까지는 조사량 증가에 따라 265(무차원) 에서 280 까지 서서히 증가하였으며, 10^{17}, 10^{18} n/cm^{2}에서는 각각 290, 332로 큰 폭으로 증가하였다. 10^{18} n/cm^2 이 조사된 시편의 경도는 조사전 시편에 비해 약 25 % 증가하였다. 이를 Table 2 및 Fig. 2 에 나타내었다. 이 실험결과는 M. R. Govindaraju [6]등의 실험결과와도 잘 일치한다.

Table 2. Relative change of hardness as a function of neutron fluence.

중성자 조사량 (n/cm^2)	10^0	10^{12}	10^{13}	10^{14}	10^{15}	10^{16}	10^{17}	10^{18}
측정 경도 (arb.unit)	265	273	271	275	275	280	290	332
변화량(%)	0	3.0	2.3	3.8	3.8	5.7	9.4	25.3

(주) 변화량 산출방법 : (조사시편 측정치 - 비조사시편 측정치)/비조사시편 측정치

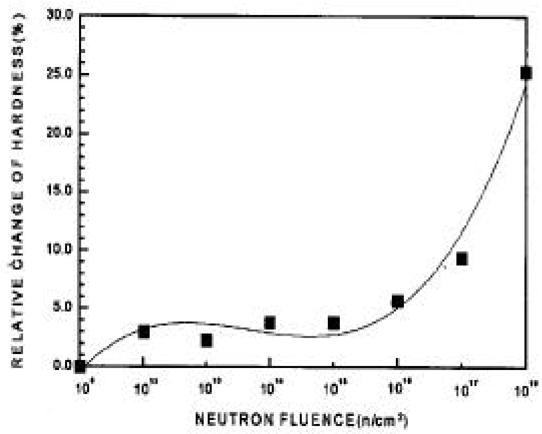


Fig. 2. Relative change of hardness as a function of neutron fluence.

일반적으로 경도의 증가(경화)는 주로 조사에 의해 생성되는 블랙 스포트, 결함이 모여 만든 전위, 전위가 모여 만든 전위루프 및 보이드 등과 같은 결함 집합체의 증가에 의해 일어난다. 이 조사결함들은 전위 이동에 대한 장애물 역할을 하고 대부분 전위이동에 대한 저항성을 나타내는 마찰경화(Friction hardening)를 증가시켜 항복강도를 증가시키는 것으로 알려져 있다[10]. 즉 조사결함의 증가로 전위 이동이 방해를 받아 마찰경화가 증가되기 때문에 경도가 증가하였음을 알 수 있으며, 이는 중성자 조사에 의해 dangling bond 가 증가되고 있음을 의미한다. 따라서 경도의 증가로 부터 중성자 조사에 의해 조사결함이 증가하고, 기계적 성질이 변화되고 있음을 알 수 있다.

중성자의 조사량 증가에 따른 자기적 특성은 10^{16} n/cm^2 까지는 변화가 없으나 10^{17} n/cm^2 부터 변화를 보이고 있다. Fig. 3은 시편의 가로방향으로 자장을 가하였을 때의 자기이력곡선이다.

여기서 점선은 비조사 시편의, 실선은 10^{18} n/cm^2 의 중성자가 조사된 시편의 자기이력곡선이다. 중성자 조사에 의하여 자화곡선은 10^{18} n/cm^2 의 시편이 비조사 시편보다 위축(면적이 감소)되는 모습을 보이며, Table 3에서 보는 바와 같이 조사량이 증가 할수록 최대 자기유도값이 감소하는 것을 알 수 있었다. 또한 자장을 시편의 세로방향에 가하였을 때도 동일한 양상의 결과를 측정하였다.

이 실험결과는 M. K. Devine [7], W.J.Shong [8]등의 실험 결과와 잘 일치한다. 한편 Table 3과 Fig. 4에 나타낸 바와 같이 최대 자기유도, 보자력, 잔류자기는 10^{16} n/cm^2 까지는 거의 일정하다가, 10^{17} n/cm^2 이상에서는 중성자 조사량이 증가할수록 감소하며, 10^{18} n/cm^2 의 중성자가 조사된 시편의 최대 자기유도, 보자력, 잔류자기는 비조사 시편에 비해 각각 5.42 %, 4.89 %, 3.54 % 감소하였다.

일반적으로 BN은 자벽이 다른 위치로 갑작스런 jump를 하기 때문에 발생하며, BN은 자벽운동에 영향을 미치는 게재물(결함 등)에 의해 변화하는 것으로 알려져 있다 [11]. 따라서 금번 실험에서는 조사결함의 증가에 의해 자기적 특성변화를 알아 보기 위해 BN이 측정되었다. Table 4와 Fig. 5는 중성자 조사량과 자화의 방향에 따른 Barkhausen 신호의 pulse 크기인 BNA와 Barkhausen 신호의 envelop의 제곱의 시간적분인 Barkhausen Noise Energy (BNE)의 변화를 보인 것이다.

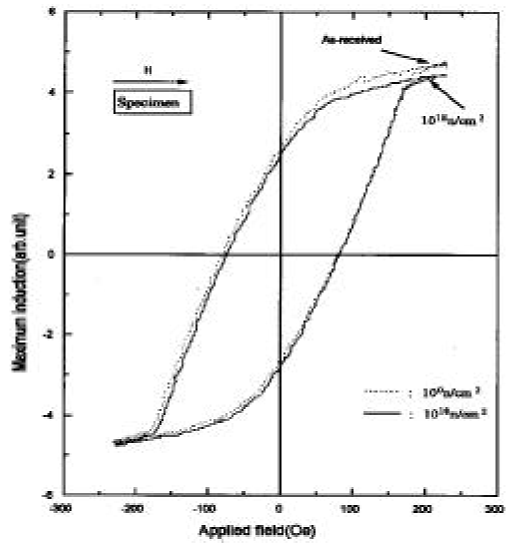
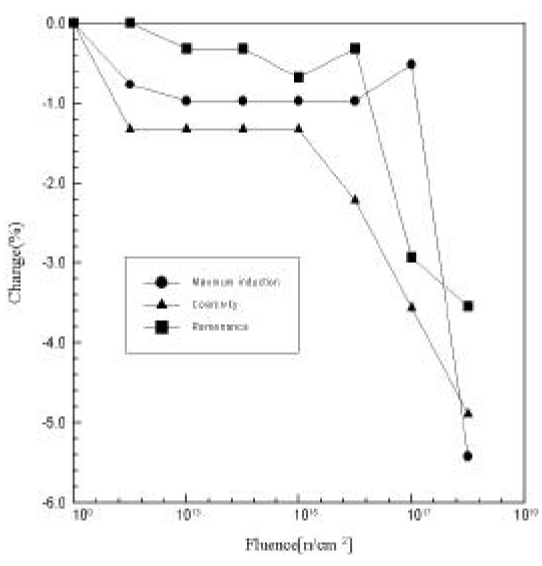


Fig. 3. Change of hysteresis loop of as-received specimen and 10^{18} n/cm^2 neutron irradiated specimen



(주) 변화량 산출방법 : (조사시편 측정치 - 비조사시편 측정치)/비조사시편 측정치

Fig. 4. Change of magnetic properties as a function of neutron fluence

Table 3. Change of maximum induction, coercivity and remanence

조사량 (n/cm^2)		최대자기유도 (arb.unit)	보자력 (arb.unit)	잔류자기 (arb.unit)
10^0	측정	5.14	2.25	3.11
	변화(%)	0	0	0
10^{12}	측정	5.10	2.22	3.11
	변화(%)	- 0.77	- 1.33	0
10^{13}	측정	5.09	2.22	3.10
	변화(%)	- 0.97	- 1.33	- 0.32
10^{14}	측정	5.09	2.22	3.10
	변화(%)	- 0.97	- 1.33	- 0.32
10^{15}	측정	5.09	2.22	3.09
	변화(%)	- 0.97	- 1.33	- 0.68
10^{16}	측정	5.09	2.20	3.10
	변화(%)	- 0.97	- 2.22	- 0.32
10^{17}	측정	4.96	2.17	3.02
	변화(%)	- 3.52	- 3.56	- 2.93
10^{18}	측정	4.86	2.14	3.00
	변화(%)	- 5.42	- 4.89	- 3.54

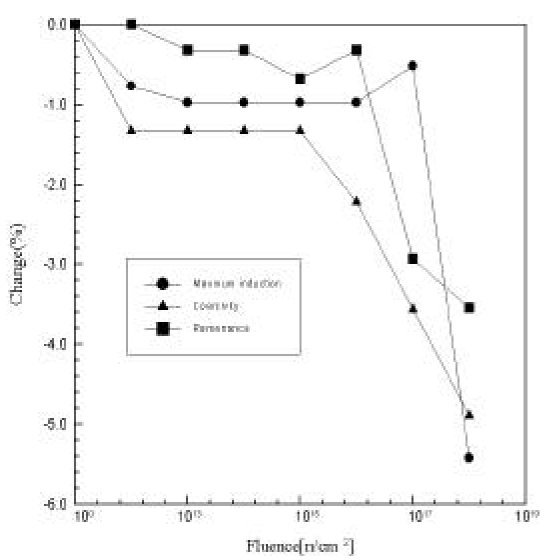


Fig. 5. Change of magnetic properties as a function of neutron fluence

BNA와 BNE는 중성자 조사량 증가에 따라 꾸준히 감소 하였다. 10^{18} n/cm^2 조사된 시편의 BNA 와 BNE는 비조사 시편에 비해 각각 19.2, 22.6 % 감소한 것으로 나타났다. Fig. 6(a)는 비조사 시편의 BN 신호이며, (b)는 10^{18} n/cm^2 조사된 시편의 BN신호이다. 이 Fig. 6으로부터 중성자 조사량 증가에 따라 BN 신호가 작아졌음을 알 수 있다. 여기서 점선은 외부자기장이 시간에 따라 cosine 함수로 변화함을 의미한다. 측정된 BNA/BNE의 변화는 Table 4에 나타내어 졌다. 이 실험 결과는 E. A. Little [12], L. B. Sipahi [13] 및 F. Gillemot [14]의 실험 결과와도 잘 일치하고 있다. 따라서 본 연구에서 중성자 조사량이 증가할수록 BN이 감소하는 것은 중성자 조사에 의해 생긴 결함이 자벽의 운동을 방해하였기 때문인 것으로 보인다.

Table 4. Change of BNA and BNE

조사량(n/cm^2)		BNA (arb.unit)	BNE (arb.unit)
10^0	측정	1.12	2.3
	변화(%)	0	0
10^{12}	측정	1.00	2.11
	변화(%)	-10.9	-8.2
10^{13}	측정	1.00	2.11
	변화(%)	-10.9	-8.2
10^{14}	측정	0.94	1.97
	변화(%)	-15.9	-14.5
10^{15}	측정	0.93	1.89
	변화(%)	-17.0	-17.6
10^{16}	측정	0.91	1.89
	변화(%)	-18.3	-17.6
10^{17}	측정	0.90	1.84
	변화(%)	-19.2	-20.0
10^{18}	측정	0.89	1.78
	변화(%)	-20.2	-22.6

(주) 변화량 산출방법 : (조사시편 측정치 - 비조사시편 측정치)/비조사시편 측정치

위의 결과들로부터 경도 즉, 결함이 증가하면 최대 자기유도, 보자력 및 잔류자기가 감소하는 것으로 나타났으므로 결함의 증가는 자기적 특성에 매우 민감한 영향을 미치는 것을 알 수 있다.

일반적으로 자기적 특성변화에 영향을 미치는 인자로는 자기이방성, 자벽에너지, 결함의 농도 등이 있으므로 이 인자들을 이용하여 본 연구의 자기적 특성변화 원인을 분석하였다.

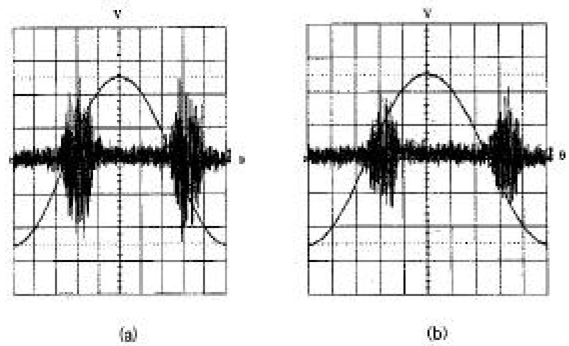


Fig. 6. Change of BNA (a) BNA at 10^0 n/cm^2 (b) BNA at 10^{18} n/cm^2

결정성을 갖는 물질에 고속 중성자를 조사하면, 격자와 중성자 충돌에 의해 격자의 위치가 변화되어 결정성이 변화하게 된다. 본 실험에 나타난 10^{17} n/cm^2, 10^{18} n/cm^2 에서 경도의 급격한 증가는 결정성이 깨어지는 dangling bond의 급격한 증가를 의미하고, 이는 결정이방성 상수의 변화를 의미한다. 금번 실험의 경우 시편을 가로, 세로 방향으로 자화하였을 때 모두 자기적 특성이 감소하는 것으로 나타나 결정 이방성상수는 가로, 세로 방향 모두 동일하게 변화된 것으로 추정된다. 따라서 결정이방성 상수(K_1)가 변화하면, 자기이방성 에너지(Ea)가 변화하여, 이 결과로 자구회전시 극복해야 할 에너지가 변화하므로 최대 자기유도가 변화한 것으로 해석할 수 있다 [11].

또한 중성자 조사에 의해 결함이 생성되면 자벽면적이 변화하고, 이에 의해 자벽에너지가 변화되어 자벽의 이동에 영향을 미치므로 보자력 및 잔류자기의 변화를 가져 온 것으로 해석할 수 있다 [11].

따라서 기존 이론에 따르면 다음과 같은 실험결과가 도출되어야 한다.

1) 결정성이 약해지면, 결정 이방성상수가 작아지므로 결정 이방성 에너지가 감소하여, 자구 회전시 적은 에너지가 소요되므로 최대 자기유도는 증가하여야 한다. 또한 잔류자기는 최대 자기유도량에 비례함으로 증가하여야 한다. 2) 중성자 조사에 의해 재료내 조사결함이 증가하면, 자벽에너지가 줄어듦에 따라, 자벽이동이 자유롭지 못해 보자력은 증가하여야 한다. 3) BN은 보자력이 감소하면 자벽이동이 자유로워 증가하여야 한다. 그러나 금번 실험의 경우 최대 자기유도, 보자력, 잔류자기 및 BN은 모두 감소한 것으로 나타났다. 따라서 앞의 중성자 조사에 의한 강재의 자기적 특성변화 원인은 기존 이론으로 해석할 수 없음을 알 수 있다.

한편 본 연구에서 모든 실험결과들은 10^{17} n/cm^2 이상의 중성자 조사에서 변화하고 있음을 알 수 있다. 이 결과는 10^{17} n/cm^2 이하의 중성자 조사에서 생성된 결함(원자공공 및 격자간 원자)들은 대부분 이동과정 중에 재결합하여 소멸되어 결함의 수는 미량으로 존재하여 시편의 물성변화에 영향을 미치지 못하다가[15] 10^{17} n/cm^2 이상에서는 시편내에 비자성 물질인 결함이 급격히 증가하여 결함(비자성 물질)들은 군(cluster) 또는 고리(netwok)(이하 군이라 한다) 를 형성함을 의미한다 [16].

따라서 10^{17} n/cm^2 이상의 중성자 조사에서 비자성 물질인 결함군이 증가하여 자성원소를 둘러싸게 되므로 [17, 18] 1) 시편은 쉽게 자화되기 어려워 최대 자기유도는 감소하였고, 2) 최대 자기유도가 감소함에 따라 잔류자기는 감소하였으며, 3) 보자력은 잔류자기를 0으로 만드는데 필요한 외부자기장이므로 잔류자기 감소에 따라 감소하였고, 4) 결함고리에 의해 자벽의 이동이 자유롭지 못하므로 BN이 감소한 것으로 추정되므로 자기적 특성 변화 원인은 비자성 물질의 증가에 의한 것으로 해석할 수 있다.

4. 결론

가. 고속 중성자가 조사된 원자로 용기강재는 10^{17} n/cm^2 **이하의 중성자 조사에서는 경도 및 자기적 특성변화가 발견되지 못하였으나,** 10^{17} n/cm^2 **이상의 중성자 조사에서는** 1) **조사결함의 증가로 경도가 증가하였고,** 2) **최대 자기유도, 보자력, 잔류자기 및** BN **은 각각 감소하였다.**

나. 이들 변화의 원인은 자기이방성 에너지, 자벽 에너지 및 결함의 영향 등의 기존 이론과 해석방법으로는 설명되기 어렵다.

다. 고속 중성자가 조사된 재료의 경도 및 자기적 특성은 10^{17} n/cm^2 **이상에서 점차적으로 변화하므로** 70 ℃**에서** 1 MeV **이상의 고속 중성자가 조사되는 경우 물성 변화가 일어나는 임계 중성자 조사량은** 10^{18} n/cm^2 **이다.**

라. 또한 모든 측정 요소들은 정확히 10^{17} n/cm^2 **이상에서 변화를 보이고 있으므로 실험데이터의 신뢰성(변화의 객관성)을 확보 할 수 있으므로, 경도 측정 및 자기적 특성실험은 중성자 조사재료의 취화평가에 비파괴적으로 이용 가능하다. 그러나 이를 위하여는 상업용 원자로에서와 동일 온도 및 환경에서의 실험이 수행되어야 한다.**

마. 고속 중성자가 조사된 원자로 용기 강재의 자기적 특성변화는 재료내의 비자성 물질인 조사결함의 증가로 인한 것으로 추정된다.

5. 참고문헌

1. M. W. Thompson, Defects and radation damage in metals, Cambridge University Press (1969)
2. R. L. Fish, J. Nucl. Mater., 46, 113 (1973)
3. J. T. Buswell, W. J. Phythian, R. J. McErloy, S. Dumbill and P. H. Ray, *J. Nucl. Mat.*, 225, 196 (1995)
4. J. F. Stubbins, J. G. Williams, J. U. Patel and W. J. Shong, Proceed. 5th EDM, 719 (1992)
5. L. B. Sipahi, Review of Progress in Quantitative Nondestructive, Evaluation, 13, 1801 (1994)
6. M. R. Govindaraju, L. B. Sipahi, D. C. Jiles, P. Liaw and K. Krion, Non Destructive Evaluation and Material Properties, II 121 (1994)
7. M. K. Devine and K. C. Jiles, Rev. Prog. Quant. NDE, 12 1815 (1993)
8. W. J. Shong, M. Giacobbe, J. F. Stubbin, J. G. Willians, "6th Int. Symp. on Environ. Degr. Mat. in Nucl. Pow. Sys." 153 (1993)
9. Operation procedures of microhardness tester, Shimadzu corp.
10. Olander, D. R., US DOE/ERDA.TID-26711-PI, 418 (1976)
11. Cuillity, B. D., Introduction to Magnetic Materials, Addison-Wesley Pub. (1972)
12. E. A. Little, D. J. Buttle and C. B. Scruby, Phys. Stat Sol. (a), 112, 55 (1989)
13. L. B. Sipahi, M. R. Govindaraju and D. C. Jiles, J. Appl. Phys. 75, 6981 (1994)
14. F. Gillemot, F. Oszwald and G. Pozsgay, ASTM STP 1170,209 (1993)

15. **이기순**, **조사공학**, **문경출판사** (1997)
16. J. R. Beeler, ASTM STP, 380, 86 (1965)
17. Soo Yull Cho, Magnetic properties of the $Mg_{1-y}Zn_yFe_{2-x}Al_xO_4$ by Mössbauer spectroscopy, Dongguk Univ. (1993)
18. Chul Sei Lee, Magnetic properties of the Ni-Ferrite System with the Contents of Cations by Mössbauer spectroscopy, Dongguk Univ. (1994)