

'96 춘계 학술발표회 논문집

한국원자력학회

## 자기적 성질 변화를 이용한 원자로 압력용기강의 조사효과 평가

박 덕 근, 강 영 환, 홍 준 화

한국원자력연구소

김 인 섭

한국과학기술원

### 요 약

원자로 압력용기 재료인 SA508-3 강의 중성자 조사량에 따른 Hysteresis Loop 의 변화와 Barkhausen Noise 의 변화를 조사하였다. 조사량에 따른 최대자기유도, 보자력, 잔류자화 및 Barkhausen Amplitude 의 변화를 측정하였으며, 이를 격자변형에 의한 자구벽의 pinning 과 중성자 조사에 의한 자기에너지의 변화로 설명하였다. 중성자 조사에 의한 자기적 성질은 기계적 성질의 변화보다 훨씬 민감하게 변화하였으며, 보자력과 잔류자화는 중성자 조사량에 따라 선형으로 증가하였다. 이를 이용하면 조사손상 평가와 함께 조사량을 측정하는 dosimetry 에도 적용될 수 있는 가능성이 있다.

### 서 론

강자성체(ferromagnetic material) 가 변화하는 자장속에 놓이면 불연속적인 자화(magnetization) 가 발생하며 이에 따라 자구벽은 갑작스런 점프(jump) 를 한다. 이에 의하여 Barkhausen Noise 가 발생하며, Barkhausen Noise 는 결정립의 크기나 조직과 같은 재료의 미세조직(microstructure) 및 조성(composition), 그리고 응력등에 따라 변한다. 실제로 모든 격자간 불순물은 자구 운동의 방해물로 작용하여, 불규칙적(uneven) 이고 불연속적(discontinuous)인 자벽운동을 초래한다.[1]

재료의 자기적 성질은 미세구조 조직 등에 의하여 변화하기 때문에 이를 이용하여 재료의 성질을 비파괴적으로 평가하려는 시도는 많이 있어왔다. 그중에서도 특히 재료의 중성자 조사에 따른 자기적 특성과 자구의 불연속적인 운동에 의하여 일어나는

Barkhausen Noise 를 이용하여 원자로 압력용기의 조사효과를 평가하는 방법은 최근에 활발히 연구되고 있다[2,3,4].

중성자를 조사한 원자로 압력용기 재료에 있어서 자기적 성질변화에 대한 최근의 연구에서는 기계적 성질이 크게 변하지 않는 정도의 조사량에서도 자기적 성질은 큰 변화를 보여주고 있다. 조사손상에 대한 자기적 성질의 이러한 민감성은 중성자 dosimetry 에 적용 가능성을 제시하여 주고 있다. Wi-Ja Shong 등은 중성자를 조사한 철과 니켈을 사용한 연구에서 자기적 성질을 이용한 Dosimeter 의 가능성을 제시 하였다[5].

본 연구에서는 중성자 조사량의 변화에 따른 자기적 성질변화를 측정하여 압력용기의 조사취화를 평가 하고자 하였으며, 또한 중성자 조사에 의한 자기적 성질변화의 원인을 격자변형에 의한 잔류응력의 변화와 자기에너지의 변화로서 논의하였다.

## 실험[6]

### 가) 중성자 조사

SA508-3 강으로 제작한 18 x 23 mm, 두께 75  $\mu\text{m}$  의 시편을 한국원자력연구소 서울분소의 TRIGA MARK III 원자로를 사용하여 중성자 조사하였다. 중성자 조사는 1 MeV 이상의 중성자를  $10^{12}$  n/cm<sup>2</sup> 에서  $10^{16}$  n/cm<sup>2</sup> 까지 조사시간을 변화시키며 동일한 flux 에서 조사하였다. 시편의 조사온도는 저융점 공정합금으로 조사한 결과 약 70 °C 이하인 것으로 추정되었다.

### 나) 자기적 성질 측정

자기적 성질을 측정하기 위한 장비는 실험실에서 제작하였다. 함수발생기로 5 Hz 의 정현파를 발생시킨후  $\pm 20$  A 의 전류를 발생할 수 있는 Techron 560 전력증폭기로 증폭하였다. 시편의 자화는 헬름홀츠 코일을 사용하였으며 시편주위에 탐지코일을 감아 유도된 신호를 측정하였다.

Barkhausen Noise 는 탐지 코일에 유도된 신호를 Low Noise Pre Amplifier 와 Band Pass Filter 를 통과하여 처리하였다. Barkhausen Noise 의 파형은 digital storage oscilloscope(DSO, Lecroy 9310) 를 통하여 받았으며, DSO 에 표시된 자료는 GPIB 보드를 통하여 PC 에 연결하였다.

## 결과 및 고찰

그림 1 은 비조사재와 중성자 조사량에 따른 조사재의 Hysteresis Loop 의 모양을 비교한 것이다. 중성자 조사에 의해 최대 자기유도가 증가하는 쪽으로 Hysteresis Loop 의 모양이 변화하는 것을 알 수 있다. 그림 2 는 중성자 조사량에 따른 보자력의 변화

를 측정하는 것인데, 보자력은  $10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>까지는 거의 일정하다가 그후로 증가하는 것을 볼 수 있다. 그림 3의 최대 자기유도의 변화도 보자력과 비슷한 경향을 보이고 있다. 중성자 조사에 의한 유도전압의 변화는 조사량에 따라 거의 일정하나 약간 감소하는 경향을 보이고 있다. 최대유도전압의 크기는 투자율의 변화와 상관관계가 있으므로 이는 더욱더 연구가 필요한 부분이다.

중성자 조사에 의한 Hysteresis Loop의 변화는 여러사람들의 연구에 의하여 보고되었으나 그들은 모두 같은 경향을 보이지는 않는다. Stubbins 등은 A533 압력용기 재료에서 중성자 조사에 의하여 최대 자기유도는 증가하였으며, 보자력과 잔류자화는 크게 변하지 않았다고 보고 하였다[3]. Wi-Ja Shong 등은 중성자를 조사한 A533 강의 자기적 성질변화에서, 보자력과 잔류자화는 중성자 조사에 의해 감소하였고 보자력의 변화는 잔류자화의 변화보다 작았다고 보고 하였다[7]. 중성자 조사에 의한 보자력과 잔류자화의 변화가 연구자에 따라 동일한 경향을 보이지 않는 이유는 알려지지 않았으나 시편의 모양과 관련된 자기이방성 계수 및 자기적 성질변화 기구와 관련된 것으로 생각된다.

그림 4는 중성자 조사량에 따른 Barkhausen Noise Amplitude의 변화를 보인 것이다. BNA는  $10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>까지는 거의 일정하다가 그후 조사량의 증가에 따라 감소하는 것을 알 수 있다. 이상의 실험결과로 볼 때 조사량이  $10^{14}$  n/cm<sup>2</sup> 정도까지는 중성자 조사에 의하여 자기적 성질이 변하지 않다가 그후 부터 조사량에 따라 선형적으로 자기적 성질이 변화하는 것을 알 수 있다. 이는 중성자 조사에 의한 기계적 성질변화가 약  $10^{16}$  n/cm<sup>2</sup> 이후부터 서서히 나타나는 것을 고려할 때 자기적 성질은 기계적 성질보다 훨씬 조사손상에 민감하다는 것을 알 수 있다. 또한 이와같이 조사량에 따라 자기적 성질이 민감하게 변화하는 것을 이용하면 역으로 자기적 성질로부터 조사량을 측정할 수 있다. 이는 자기적 성질변화를 이용한 중성자 Dosimetry의 가능성을 말하며 앞으로 더욱더 연구를 요한다.

보자력은 자구벽을 움직이는데 필요한 자기장의 세기이다. 따라서 자구벽이 결함 또는 개재물(inclusion) 등에 의하여 pinning 될 때 보자력은 증가한다. 그러나 중성자 조사에 의하여 생긴 점결합들은 자구의 크기에 비하여 무시할 수 있으므로 자구의 운동을 방해하기 힘들다. 중성자에 조사된 재료의 기계적 성질변화는 점결합이 뭉친 공공등이 전위의 운동을 방해 함으로서 일어난다고 설명되고 있다. 또한 자기적 성질의 변화는 자구벽의 운동이 방해 받음으로 일어난다고 한다. 자구의 운동을 방해하기 위하여는 자구의 크기와 비슷한 개재물이 가장 효과적이다. 따라서 점결합이 자구의 운동을 방해하기 위하여는 점결합은 자구벽과 비슷한 크기로 뭉쳐야 한다. 철의 경우 자구벽의 두께는 40-100 nm 정도이며, 일반적으로 5-200 nm로 알려져 있다.

초기에 Frenkel 쌍으로 형성된 점결합들은 자기적 성질을 변화시킬 수 없으나 그들에 의하여 생긴 전위망이나 불순원자와 점결합의 결합들은 자기적 성질을 변화시킬 수 있다[8].

실험에 사용한 낮은 구리함량 (0.05%) 을 갖는 SA508-3 강의 경우 대부분의 조사손상은 matrix damage 에 의한 것으로 생각된다. 이는 SA508-3 강의 경우 precipitate 와 공공의 복합체를 형성 시키는 불순원자는 대부분 제거 되었으며, 또한 본 연구에서의 조사온도는 70°C 이하로서 석출물(precipitate) 과 공공의 복합체를 형성 시키기에는 너무 낮은 온도이기 때문이다.

290 °C 에서 중성자 조사된 SA508-3 재료의 Small Angle Neutron Scattering (SANS) 연구결과에 의하면, 2-4 nm 정도의 공공이 발생 한다고 알려져 있다[9]. 일반적으로 공공의 크기는 조사온도가 증가 할수록 커진다고 알려져 있다. 본 연구에서의 조사온도는 70°C 이므로 본실험의 시편에서 생성되는 공공의 크기는 이보다 작다고 할 수 있다. 따라서 본연구에서 점결함에 의한 자구벽의 pinning 은 불가능 하다고 생각된다.

Buswell 등에 의한 SA508-3 강의 투과전자현미경 (TEM) 연구에서, precipitate 밀도나 전위밀도의 변화를 발견하지 못하였으며 자구벽을 pinning 시킬정도의 불순물도 발견하지 못하였다[10]. 따라서 개재물 (inclusion) 에 의한 자구벽의 pinning 기구로는 중성자 조사에의한 자기적 성질변화를 설명하기 힘들다고 할 수 있다.

개재물에 의한 자구벽의 pinning 외에 응력에 의하여서도 자구벽의 움직임은 방해받을 수 있다. 응력하에서의 Hysteresis Loop 의 변화는 매우복잡하며 자기변형 (magnetostriction) 과 관계가 있다. 만일 중성자 조사에 의하여 격자가 변형되면 이에따라 내부응력이 발생하며 이는 자구벽을 pinning 시킬 수 있다. 그러나 중성자 조사에 의한 격자 변형은 내부응력 뿐만 아니라 결정에 관계된 자기 에너지도 변화 시킬수 있을 것이다.

물체의 자기적 성질은 주로 전자의 스핀과 궤도와와의 상호작용에 의하여 결정된다. 이는 스핀과 궤도사이의 결합은 상대적으로 약하기 때문에 외부의 힘에 의하여 쉽게 방향을 바꿀 수 있기 때문이다. 외부 자기장이 전자의 스핀을 재배향시키면 그 전자의 궤도도 재배향 된다. 그러나 궤도는 격자에 강하게 결합되어 있으므로 스핀축의 회전을 저지하게 된다. 자기 이방성 에너지는 자화 용이축 으로부터 스핀축을 회전 시키는데 필요한 에너지이며, 이는 스핀-궤도의 결합 에너지를 극복하는데 필요한 에너지이다. 격자는 수많은 원자핵이 공간중에 배열되어 있는 상태로 이들 사이에는 궤도 전자구름에 덮혀 있으므로 스핀-격자 결합도 존재하며 이 결합이 자기탄성 결합을 야기시킨다. 따라서 결정에서의 자기변형은 이를 바탕으로 하고 있다[11].

고에너지의 중성자 조사는 격자를 무질서하게 이동시키며 이에따라 궤도도 무질서하게 배향 될 수 있다. 따라서 중성자 조사에 의하여 스핀과 궤도사이의 상호작용이 영향을 받을 수 있다. 이는 자기 이방성 에너지와 자기탄성 에너지를 변화시킬 수 있다.

중성자를 조사한 원자로 압력용기 강에서 시편에 따라 보자력이 증가 되기도하고 감소 되기도 하는 것은 자기이방성 에너지와 관련 있는 것 같다. 연구에 사용된 재료는 단조재로서 결정이 방향성을 가질 수 있다. 따라서 자기장과 결정축의 배향에 따라서 자기

이방성 에너지가 달라질 수 있으며 이에따라 보자력이 변화할 수 있다.

중성자 조사에 의한 격자변형과 이에따른 자기적 성질의 변화는 Mossbauer 분광학을 사용하면 보다 자세한 설명이 가능할 것이며, 이는 앞으로의 연구과제로 둔다.

## 결 론

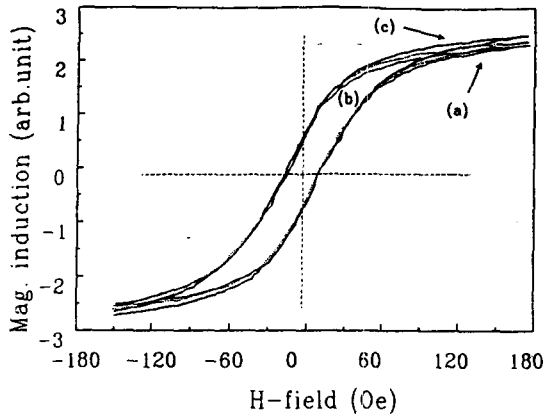
고속 중성자 조사에 의한 원자로 압력용기강의 조사효과는 조사량에 따른 Hysteresis Loop 와 Barkhausen Noise 의 변화를 이용 연구하였다.

중성자 조사량이  $10^{14}$  n/cm<sup>2</sup> 이후부터 자기적성질은 조사량에 따라 선형으로 변화였다. 이는 자기적 성질이 기계적 성질 변화보다 조사손상에 훨씬 민감하다는 것을 뜻한다. 이를 이용하면 조사손상 평가는 물론 Dosimetry 에도 적용될 수 있을 것이다.

중성자 조사에 의한 자기적 성질변화는 개재물에 의한 자구벽의 방해로 설명될 수 없으며, 중성자 조사에 의한 내부응력의 변화와 함께 자기에너지의 변화도 고려하여야만 한다. 이는 더욱더 연구가 필요한 부분이다.

## 참고문헌

1. Jile, D. C. (1989), Introduction to Magnetism and Magnetic Materials, Chapman & Hall
2. J.F. Stubbins, J.G. Williams, J.G. Williams J.U. Patel, W. -J. Shong, Proceed. 5'th EDM, (1992) 719
3. J.F. Stubbins, W. -J. Shong, M. Giacobbe, A.M. Ougouag, J.G. Williams, ASTM STP 1204 (1993) 5
4. L.B. Sipahi et al, "Review of Progress in Quantitative Nondestructive Evaluation, Vol. 13, (1994) 1801
5. W.-J. Shong, J.F. Stubbins, J.G. Williams, J.W. Rogers, M. Giacobbe, ASTM STP 1228 (1994) 215
6. KAERI/RR-1444/94 "Cyclotron 을 이용한 원자로 재료의 조사효과 연구" 홍 준화 외 한국원자력 연구소
7. W.-J. Shong, M. Giacobbe, J.F. Stubbins, J.G. Williams, "6th Int. Symp. on Envirom. Degr. Mat. in Nucl. Pow. Sys." (1993) 153
8. CHIN-WEN CHEN, (1977)"Magnetism and Metallurgy of Soft Magnetic Materials" North-Holland Publishing Co.
9. J.T. Buswell, W.J. Phythian, R.J. McErloy, S. Dumbill, P.H.N. Ray, J. Nucl. Mat. 225 (1995) 196
10. J.T. Buswell, IAEA Coordinate Research Program, UKAEA (1983) 281
11. Cuillity, B.D., (1972), Introduction to Magnetic Materials, Addison-Wesley Pub.



- (b) :  $10^{15}$  n/cm<sup>2</sup>
- (c) :  $10^{16}$  n/cm<sup>2</sup>
- (a) : As received

Fig. 1. The hysteresis loop for plate specimens irradiated at various fluence  
 a) as-received (unirradiated) condition  
 b) neutron fluence at  $10^{15}$  n/cm<sup>2</sup> ( $E > 1$  MeV)  
 c) neutron fluence at  $10^{16}$  n/cm<sup>2</sup> ( $E > 1$  MeV)

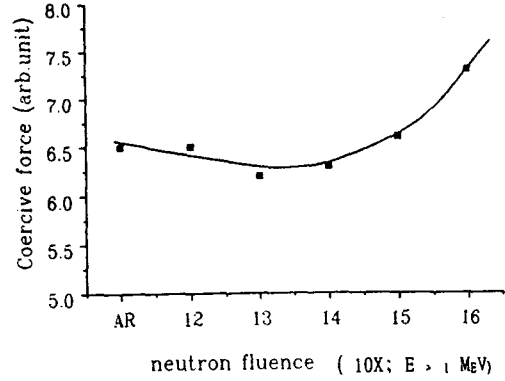


Fig. 2. Coercive force for a plate specimens as a function of neutron fluence

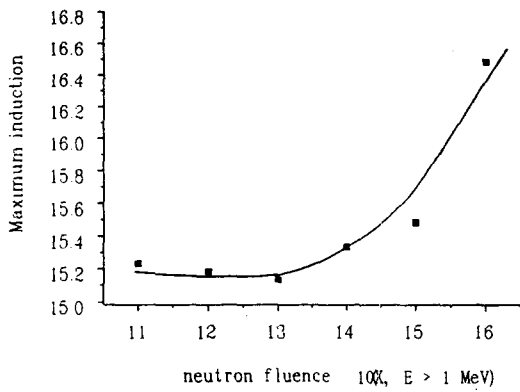


Fig. 3. Maximum magnetic induction for plate specimens as a function of neutron fluence

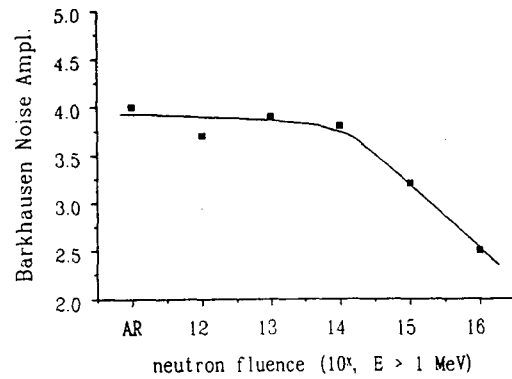


Fig. 4. Barkhausen Noise Amplitude for plate specimens as a function of neutron fluence