

## Fe 및 Fe-1.0%Cu 합금에서 HVEM조사에 의한 조사손상 실시간 관찰 In situ observation of radiation damage in iron and Fe-1.0%Cu under HVEM irradiation

권상철, 조해동, 김홍희

한국원자력연구소 원자력재료기술개발부

### 1. 서론

2004년부터 3회에 걸쳐 기초과학연구원의 HVEM을 이용하여 Fe 및 Fe-1.0%Cu합금에서의 조사결함 생성 거동을 관찰하였다. 조사결함은 에너지가 큰 입자를 재료에 조사시킬 때 생성되어 재료의 기계적 특성을 변화시킨다. 원자력 재료의 경우 재료의 취화의 원인이 되는 것으로 조사결함의 거동에 관한 연구는 매우 중요하다.

원자료를 이용한 조사실험은 중성자 조사시간이 길어야 합과 조사 전후의 준비과정에 많은 시간이 소요되며, 많은 경비를 필요로 하는 단점이 있다. 또한 1회 실험에서 한 가지 조사조건의 실험결과를 얻을 수밖에 없는 것이 가장 큰 단점이다. 따라서 조사량, 조사율 및 다양한 재료 변수에 대한 체계적인 조사손상 연구가 어렵다. 그러나 HVEM을 사용하는 경우에는 이러한 문제를 극복할 수 있으며, 조사결함의 생성 거동을 실시간 관찰이 가능하다.

본 발표내용에는 3가지 실험 결과를 제시하고자 한다. 첫째, Fe와 Fe-1.0%Cu합금에서 전자 조사량에 따른 결함 클러스터의 생성량 비교 결과, 둘째, 조사결함의 직선운동에 대한 비교와 dislocation channeling 현상에 대한 해석 가능성 제시, 셋째 Fe에서 black dot의 unfauling 현상으로부터 적층결함 에너지의 계산 가능성에 대한 제시이다.

### 2. 실험 방법

Fe 시료는 Goodfellow사로부터 구입한 순도 99.98%의 단결정을 사용하였으며, Fe-1.0%Cu 시료는 Cu 0.99%, O 370 ppm, 기타 불순물은 100 ppm 이하임을 확인하였다. 미세조직을 관찰하여 수냉시킨 시료에서는 Cu 석출물이 없는 것을 확인하였다. 두 종류의 시료를 연마 및 polishing 하여 두께를 50-70  $\mu\text{m}$ 로 하였다. TEM 시편을 제작한 후, 5% perchloric acid + 95% methanol을 사용하여 -45°C에서 thinning하였다. HVEM 분석은 1.25 MeV에서  $4.7 \times 10^{23} \text{ e}^- / \text{s} \cdot \text{m}^2$ 로 조사시키면서 실시간으로 전위 loop의 거동을 관찰하였다. 결함 클러스터의 전자조사량에 따른 결함 클러스터의 생성

은 매 분당 image를 확보하여 분석하였다. 결함 클러스터의 밀도는 EELS 분석으로 시료의 두께를 측정하여 구하였다. 또한 클러스터의 직선운동을 관찰하기 위하여 video recording 장치를 사용하였으며, image acquisition 속도는 30매/초이었다.

### 3. 결과 및 고찰

Fe-1.0%Cu합금과 Fe의 조사량에 따른 결함 cluster의 생성량을 비교한 결과 Fig. 1과 같다. 조사량이 증가할수록 결함 cluster의 수는 직선적으로 증가하다가 Fe-1.0%Cu에서는 약  $10^{23}$ 개/m<sup>2</sup> 정도로 포화되고, Fe에서는 약  $10^{22}$ 개/m<sup>2</sup> 정도에서 포화됨을 알 수 있다. Cu가 Fe에 고용되어 있음으로 인하여 cluster의 생성을 증가시킴을 알 수 있다. Cluster의 종류에 대한 분석이 완료되지 않았지만, 실온에서는 SIA(self interstitial atom)가 vacancy 보다 활동이 활발하기 때문에 거의가 interstitial type이라고 생각된다. 특히 Cu는 vacancy를 trap하기 때문에 그만큼 interstitial loop가 생성될 확률이 높다[1]. Cluster의 밀도가 증가하면서 크기가 증가하며 일정 크기 이상이 되면 unfauling이 생겨 dislocation loop로 변하는 것이 관찰된다. 따라서 cluster의 density가 포화되는 것은 cluster의 증가가 unfauling 현상으로 균형을 이루는 것으로 파악된다. Fe에 Cu가 존재함으로써 cluster의 density가 증가하는 현상으로부터 원자로 압력 용기 재료에서 Cu가 포함되어 있을 때 조사취화 현상이 심화되는 원인을 설명할 수 있다. 결함 cluster는 전위의 이동을 억제함으로써 항복강도를 증가시키며 조사경화현상을 유발하기 때문이다[2].

HVEM에 의한 전자빔조사에서 전위 loop의 이동을 관찰한 결과를 제한적이지만 다수 발표된 바가 있다[3-6]. 직경 2 nm이상의 cluster가 직선 이동하는 것을 동영상을 통하여 확인이 가능하였다[7]. Fe-1/0%Cu 및 Fe에서 모두 cluster의 직선운동을 관찰할 수 있었다. 빔의 방향과 DP분석결과에 의하면 {110}면에서 <111>방향으로 전위가 이동하였음을 보여준다. 일반적으로 전위동력학에 의하면 Frank loop는 sessile이며 고온에서 climb이나 다른 전위와의 상호작용에 의하여 prismatic으로 변하는 경우 이동이 가능한 것으로 알려져 있다. 즉, Burgers vector방향으로 전위가 이동함으로써 소성변형을 전제로 하기 때문이다. 그러나 black dot 즉 fault 상태에서 loop로 변하기 전에 직선 운동에 의한 cluster의 이동과 함께 cluster 끼리 합쳐져 크기가 성장하고 일정한 크기에서 unfauling으로 loop가 되는 현상으로부터 cluster의 직선 운동은 일반적인 전위의 이동현상이 아니라고 보여진다. 실온에서의 이동 현상이기 때문에 확산으로 보기도 어렵다. 현재로서는 이에 대한 이론적 설명이 어렵지만, cluster의 밀도가 증가할수록 직선운동이 활발한 것으로부터 Arakawa등[6]이 설명하는 바와 같이 밀도가 증가할수록 각 cluster에 미치는 힘이 크게 되어 응력구배를 따라 이동하는 것으로 설명할 수 있다. Fe에서 Fe-1.0%Cu보다 직선운동의 횟수가 적은 것도 그만큼 cluster의 생성량이

적은 것으로부터 설명할 수 있게 된다.

일반 조사재 시료에 변형을 주게 되면 국부적으로 조사결합이 사라지는 dislocation channeling 현상을 관찰할 수 있다. 결함 cluster가 전위의 이동시에 Cottrell 분위기를 형성하여 [111]방향으로의 이동에서만 전위와 함께 이동하여 항복강도가 증가하게 되고, 항복점을 지나서는 약간의 연화 현상을 보여주는 CISH(Cascade Induced Source Hardening) 기구가 조사취화 현상을 설명하는 최근의 가장 유력한 모델이다[8]. 그러나 아직 dislocation channeling 현상의 근거 즉, 결함 cluster가 Cottrell 분위기를 형성하는 기구가 명확히 밝혀져 있지 않다. 조사재를 변형시킨 후, 전위조직을 관찰할 때 전위주변에 결함 cluster가 모여 있는 rafting현상으로부터 설명하고 있을 뿐이다. Cluster의 직선운동은 dislocation channeling 현상의 설명을 가능하게 한다. Cluster는 특정방향 즉, <111>방향으로만 이동이 용이하므로 전위의 이동이 cluster의 이동 방향과 일치하는 경우에만 cluster가 이동할 것이다. 또한 외부의 응력 없이 내부의 응력구배만으로도 이동하므로 전위와의 상호 작용으로 충분히 Cottrell 분위기를 형성할 수 있을 것이다.

Fe의 동영상 관찰 결과 cluster의 크기가 약 10 nm 정도에서 순식간에 unfaulting 현상이 발생함이 관찰되었다. 보통 동영상에서는 시간이 지남에 따라 image의 해상도가 낮아지게 되어 unfaulting에 의하여 발생하는 전위 loop의 관찰이 어렵고 loop의 수가 많아짐에 따라 전체상이 밝아지는 정도였으나 Fe의 관찰에서 우연히 발견되었다. Loop 주변에는 아직 fault 영역이 약간 남아 있음을 Fig. 2로부터 알 수 있다. Fe에서 조사결합으로 생성되는 black dot의 stacking fault가 규명되어 있지 않아 적층구조가 분명하지 않다. FCC에서는 명확하나 BCC에서 특히 extrinsic stacking fault에서는 그러하다. 초기 cluster가 생성될 때는 habit plane은 {110}이며 Burgers vector는 <111>로서 Frank loop로 내부의 전단응력에 의하여 Burgers vector가 <111> 또는 <100>으로 변하며 <100>이 많이 관찰된다[9]. 이에 대한 stacking fault energy의 실험 결과는 아직 제시되지 못하고 tungsten의 vacancy loop로부터 구한 값으로부터 약 1.0 J/m<sup>2</sup>로 유추하고 있다[10]. 본 실험 결과로부터 구한 값은 약 0.2 J/m<sup>2</sup>이다.

### 3. 결론

Fe 및 Fe-1.0%Cu의 HVEM에 의한 조사결합 성장 거동을 분석한 결과 Fe-1.0%Cu가 Fe보다 조사결합의 생성이 많으며, 결함 cluster의 직선운동이 활발하며 이는 CISH 모델에 의한 조사취화 현상 설명을 용이하게 한다. Fe의 interstitial loop에서의 stacking fault energy를 구한 결과 약 0.2 J/m<sup>2</sup>로 측정되었다.

이러한 연구결과는 기초과학지원연구원의 HVEM을 이용할 수 있게 되어 가능하였음에 관계자 여러분에게 지면을 통하여 감사드립니다.

## References

- [1] C. S. Becquart, C. Domain, J. C. van Duysen, J. M. Raulot, J. Nucl. Mat. 294 (2001) 274.
- [2] 권상철, 권준현, 김주학, 이소연, 김홍희, 2005 춘계금속재료학회, 대구, 2005.
- [3] K. H. Westmacott, A. C. Roberts, R. S. Barnes, Philos. Mag. 7 (1962) 2035.
- [4] M. Kiritani, Proc. Int. Conf. High Voltage Electron Microscopy, Antwerp, 1980, p.196
- [5] M. Kiritani, J. Nucl. Mater. 206 (1993) 156.
- [6] K. Arakawa, M. Hatanaka, H. Mori, K. Ono, J. Nucl. Mat. 329-333 (2004) 1194.
- [7] 권상철, 조해동, 이소연, 김주학, 김홍희, 2005 춘계 전자현미경학회 및 HVEM 이용자 워크샵, 강릉대학교, 2005.
- [8] H. Trinkaus, B. N. Singh, A.J.E. Foreman, J. Nucl. Mat. 251 (1997) 172.
- [9] B. L. Eyre and R. Bullough, Phil. Mag. 12 (1965) 31.
- [10] E. A. Little, R. Bullough and M. H. Wood, Proc. R. Soc. Lond., A, 372 (1980) 565.

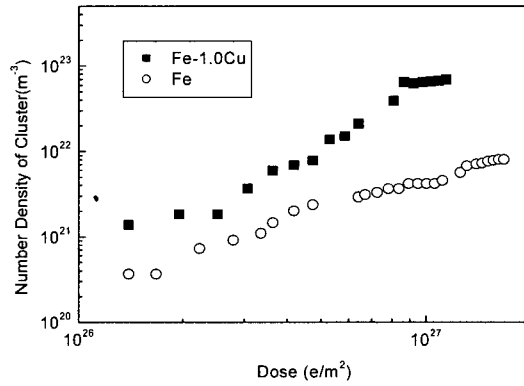


Fig. 1. Defect cluster density increase of Fe and Fe-1.0%Cu irradiated with electrons.

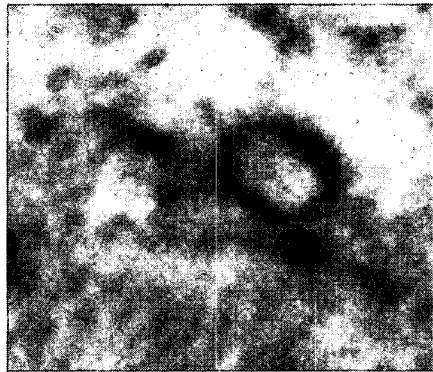


Fig. 2. Unfaulting dislocation loop.