논 문

비 파 괴 검 사 학 회 지
Journal of the Korean Society for Nondestructive Testing
Vol. 18, No. 6 (1998)

중성자에 조사된 원자로 압력용기 재료의 Barkhausen 노이즈에 관한 연구

옥치일*, 김장환*, 박덕근**, 홍준화**, 이종규***
*부산대학교 자연대학 물리학과
**한국원자력연구소
***부경대학교 물리학과

초 록 원자로 압력용기 재료인 SA508 steel을 온도 70℃와 대기압하에서 최고 10^{18} n/cm^{2}까지 중성자를 조사시켜 조사량에 따른 자기이력곡선과 Barkhausen noise amplitude(BNA), Barkhausen noise energy(BNE) 및 미세경도 변화를 측정하여 이들 사이의 상관관계를 구하였다. 중성자 조사에 의하여 자기이력곡선은 변화가 없었으며, BNA, BNE 및 경도는 중성자 조사량에 따라 세 단계의 변화를 보였으며, 중성자 조사량이 10^{17} n/cm^{2}에서는 급격히 변하여 이들 사이의 상관관계가 있음을 알 수 있었다. 따라서 BNA와 BNE가 중성자 조사에 의한 재료의 미세 구조 결함을 조사하는데 비파괴적인 방법으로 가능성이 있음을 알 수 있었다.

1. 서 론

원자로 압력용기는 원자력발전소 수명과 직결되는 설비이며, 발전소 가동중 연쇄핵분열이 일어나는 장소로서, 고에너지(E>1 MeV)의 중성자에 의해 계속 조사되고 있다. 중성자에 조사된 재료는 각종 물리적 성질 및 기계적 성질이 변하는데 그 중에서도 가장 문제가 되는 것이 연성이 저하되고, 강도가 증가하여 파괴 저항성이 약화되는 조사취화(irradiation embrittlement)이다[1]. 그러므로 원자로 압력용기의 안전성 확보를 위하여, 주기적인 비파괴검사 뿐 아니라, 가동전 원자로 압력용기와 같은 재료의 조사시편을 넣은 캡슐을 이용한 파괴시험으로, 그 건전성을 평가하고 있다[2].

그러나 이러한 방법은 많은 비용과 시간이 소요되고, 높은 방사선으로 인한 방사선 피폭이 수반될 뿐 아니라, 한번 사용된 시편은 다시 사용할 수 없게 되므로 운전이력이 많은 발전소나 발전소 수명연장시에는 건전성 평가에 많은 문제가 된다. 또한 중성자조사에 의한 결함은 그 크기가 1~2nm 정도의 극히 미세한 결함이므로[3] 기존의 비파괴평가로는 이러한 미세한 결함의 탐지가 불가능하다. 이에 따라 신뢰성있는 비파괴평가방법의 개발이 절실히 요구되고 있으며, 그중에서도 강자성 물질이 자기화할 때 불연속적인 자기화에 의해 발생되는 Barkhausen noise (BN)의 변화에 의한 조사손상의 기술정립을 위해 많은 연구가 진행되고 있다[6, 7].

BN은 강자성물질에 변화하는 자기장을 가하면, 자구벽의 이동에 의해 자기장방향의 자구가 커지고 다른 방향의 자구는 작아지면서 자기화되는데, 이때

(접수 : 1998. 8. 10)

BN이 발생한다. 이 BN은 자기이력곡선에서의 보자력 부근의 dB/dH가 가장 큰 곳에서 가장 강하게 일어난다. 1949년 Williams와 Shockley가 3% Si-Fe 단결정으로 자구벽의 불연속적인 이동에 의해 BN이 발생한다고 보고한 이후[4], 자구동역학에 대한 많은 연구가 이루어져, BN이 결정립(grain)의 크기나, 조직과 같은 재료의 미세조성 그리고 응력 등에 의해서도 변화한다는 것이 밝혀졌다[5]. 이 미세조직의 변화에 따라 자기적 성질이 바뀌므로 BN을 재료의 비파괴평가에 이용하려는 연구가 계속되고 있다[6, 7].

자기이력곡선에서의 잔류자기, 보자력, 포화자기유도, 자기이력곡선 등의 변화와, BN에서는 Barkhausen noise count(BNC), Barkhausen noise amplitude(BNA), Barkhausen noise energy(BNE) 등이 비파괴에 이용될 수 있다. 그 중에서도 재료의 기계적성질과 BN 변화의 상관성에 관한 연구가 계속되고 있다.

본 연구에서는 원자력발전소에서 원자로 압력용기 재료로 사용되고 있는 SA-508 steel을 한국원자력연구소 TRIGAR MARK Ⅲ 연구용 원자로에서 중성자 조사량이 10^{12} n/cm^{2}에서 최고 10^{18} n/cm^{2}까지 조사량을 달리한 7종류의 시편 및 비조사재 시편으로 중성자 조사량에 따른 기계적 성질 변화와 자기적 성질 변화와의 관계를 조사하여, 원자로 압력용기 재료의 중성자 조사에 의한 재료의 미세결함을 비파괴적으로 평가하는데 이용 가능성이 있는지를 조사하였다.

2. 실 험

2.1. 시편 조성

본 연구에서 사용한 재료는 원자로 압력용기 재료인 SA 508 class 3 steel 로서, 한국중공업에서 제작되었고, 그 화학적 조성은 Table 1과 같으며, 자기적 성질 변화측정에 적합하고 방사선 피폭을 최소화하기 위해 23mm×18mm×1mm크기로 가공된 시편을 사용하였다.

Table 1 Chemical composition of as-received SA508-3 steel

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

2.2. 중성자 조사

중성자 조사는 한국원자력연구소 서울분소의 TRIGAR MARK Ⅲ 연구용 원자로의 노심 중심부근의 동위원소를 생산하는 구멍에 넣어 조사하였고, 같은 온도, 위치, 중성자속의 조건하에 조사되도록 하기 위하여 시편을 알루미늄 캡슐에 넣었다. Fe dosimeter를 이용하여 구한 조사량은 10^{12} n/cm^{2}에서 최고 10^{18} n/cm^{2}까지 7종류였다. 여러 온도에서 녹는 저융점 공정합금을 이용하여 구한 조사시의 시편의 온도는 70℃였다. 그리고 연구용 원자로는 대기압하에 운전되므로 실제 원자력 발전소에서의 운전중의 압력과는 차이가 나지만 온도와 압력의 영향에 대한 고려는 제외할 수 있어 중성자 조사에 의한 물성변화 영향만 고려하였다.

2.3. 자기적 성질 및 기계적 성질 측정

중성자 조사에 의한 기계적 성질 변화를 알아보기 위하여 경도를 측정하였다. 경도측정은 Vickers micro hardness 방법으로 하였으며, 측정에 사용된 기기는 Shimadzu사 제품의 HMV-2000 모델이었다. 시편에 가한 load는 150gf로 누른 시간은 15초였다.

자기적 성질의 측정은 함수발생기로 2Hz의 정현파를 발생시킨 후 Techron 560 전력증폭기로 증폭하여 U 모양의 ferrite core에 직경 1mm coil을 400번 감아 250 Oe의 자기장을 발생시켰다. 자기장의 세기는 gauss meter를 사용하여 측정하였으며, 유도된 자속밀도는 시편주위에 550번 감은 직경 0.2mm의 탐지코일에 유도된 전압을 자속계로 적분하여 구하였다. 자속계에서 나온 신호는 digital storage oscilloscope(Lecroy 9310)을 통하여 측정하였으며, oscilloscope는 GPIB 보드를 통하여 PC에 연결하였다. BN은 탐지코일에 유도된 전압신호를 pre-amplifier로 46dB로 증폭하였으며, 16~18kHz의 band pass filter를 거쳐 oscilloscope를 이용하여 신호형태를 관찰하였다. BN envelope은 BN을 정류한 후 콘덴서를 부착하여 관찰하였다. 자화의 방향은 긴 방향, 짧은 방향의 두방향으로 하였고, 데이터 처리는

자기이력곡선에서와 같은 방법으로 하였다.

3. 결과 및 논의

중성자 조사량에 따른 자기이력곡선의 변화와 BN 신호의 변화를 Fig. 1에 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 조사량이 10^{16} n/cm^{2}까지는 자기이력곡선 및 자기이력곡선에서 나타나는 보자력, 잔류자기, 포화자기유도가 거의 변하지 않았고, 조사량이 10^{17} n/cm^{2}에서 약간 감소하여 조사량이 10^{18} n/cm^{2}에서 최대로 감소하였는데, 보자력과 잔류자기는 최대 3%, 포화자기유도는 최대 5% 감소하였다. 또한, Fig. 1은 조사량이 10^{18} n/cm^{2}에서의 BN 신호의 크기가 비조사재에 비해 감소하고, 보자력 부근에서 BN 신호가 나타난다는 것을 보여준다.

중성자 조사에 의한 자기이력곡선의 변화는 여러 연구자들에 의해 보고되었으나 모두 같은 경향을 보이지는 않는다. Stubbins 등은[8] A533 압력용기 재료를 사용한 연구에서 포화자기유도와 보자력은 거의 변하지 않았으나, 잔류자기는 중성자 조사량이 10^{18} n/cm^{2}에서 15% 증가하였다고 보고하였다. Wi-Ja Song 등은[9] 중성자를 조사한 A533 재료에서의 자기적 성질 변화 연구에서 포화자기유도와 보자력은 조사량에 따라 거의 변하지 않았으나, 잔류자기는 조사량이 10^{18} n/cm^{2}에서 약 5%, 3×10^{18} n/cm^{2}에서 25%가 감소하였다고 보고하였다. 결과적으로 Sablik 등은[6] 여러 연구를 종합하여 원자로 압력용기재료에서의 중성자 조사량과 자기이력곡선에 나타나는 잔류자기, 자기이력손실, 보자력, 포화자기유도 등의 상관관계는 잘 맞지 않는다는 결론을 내렸다. 중성자 조사량에 따른 자기이력곡선의 변화가 연구자에 따라 동일한 경향을 보이지 않는 이유는 시편의 모양과 관련된 형상 자기 이방성 및 자기적 성질 변화 기구에 관련된 것으로 보인다.

중성자를 조사한 원자로 재료의 미세조직에 대한 연구결과에 의하면, 2~3mm 정도의 크기를 가진 defect clusters외에 특별한 미세조직의 변화는 발견되지 않았다[10]. 또한 자기이력곡선에 나타나는 parameter 들은 미세구조에 민감하지 않고, 주로 grain size, 응력, 변형력(strain)에 아주 민감한 반응을 보이고 있으므로[5], 중성자 조사로 인한 재료의 미세결함에 의해서는 자기이력곡선이 거의 변하지 않는다는 것을 알 수 있다. 중성자 조사에 의한 재료의 기계적 성질 변화는 일반적으로 점결함들의 모임(defect clusters 또는 defect zone)에 관련이 있다. 즉 점결함들의 모임이 전위(dislocation)의 운동을 방해하여 일어난다고 알려져 있다[1]. 그러므로 중성자 조사에 의한 미세구조의 변화를 자기이력곡선의 parameter로는 조사가 거의 불가능하다는 것을 알 수 있다.

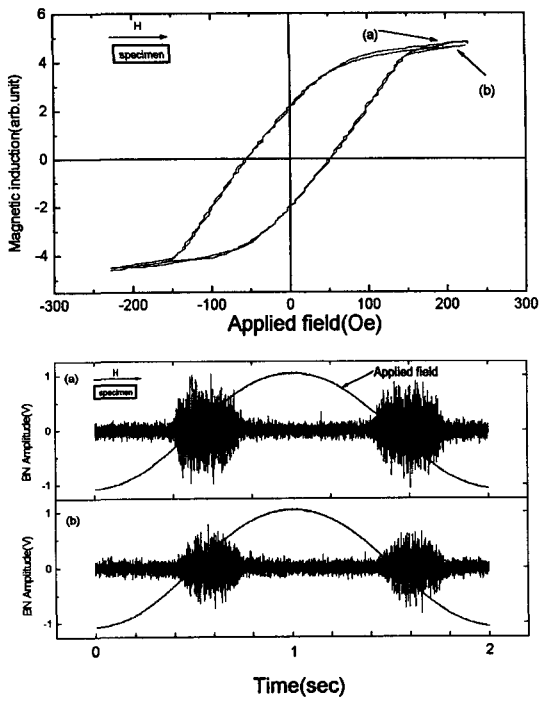

Fig. 1 Typical hysteresis loops(above) and BN signals(below) for (a) unirradiated and (b) neutron irradiated samples with dose of 10^{18} n/cm^2

Fig. 2는 중성자 조사량과 자화의 방향에 따른 Barkhausen 신호의 pulse 크기인 BNA와 Barkhausen 신호의 envelope의 제곱을 시간 적분인 BNE의 관계를 보인 것이다. 자기장과 시편의 상대적인 방향에 따라 그리고 BNA와 BNE의 감소의 정도는 다소의 차이는 있으나, 일반적인 경향은 중성자 조사량이 증가할수록 BNA와 BNE가 감소한다는 것을 보여준다. 시편이 자화의 방향에 따른 감소하는 양은 짧은 방향으로 놓였을 때 더 크게 감소하고, BNA 보다 BNE의 감소가 더 크게 나타났다. 그러나 그 감소경향은 시편의 방향에 관계없이 BNA,

BNE 모두 비조사재료에 비해 조사량이 10^{12} n/cm^{2}에서 급격히 감소한 후 10^{16} n/cm^{2}까지 거의 일정한 감소를 보이다가, 10^{17} n/cm^{2}에서 다시 급격히 감소하여 10^{18} n/cm^{2}에서 최대의 감소를 보이고, 짧은 방향으로 자화시켰을 때의 BNE의 감소가 가장 크게 나타났고 그 값은 약 45%이다. Sapahi 등은[11] 감시캡슐의 Charphy 충격시편을 사용한 연구에서 조사시편의 Barkhausen voltage 는 감소하였고, 열처리에 의하여 증가하였다고 보고하였다.

BN은 180° 자벽과 90° 자벽이 한 위치에서 다른 위치로 갑작스런 jump를 하기 때문이라고 알려져 있다[5]. 일반적으로 자벽의 운동이 개재물에 의하여 방해를 받을 때 BN은 감소한다고 알려져 있다. 따라서 본 연구에서 중성자 조사량이 증가할수록 BN이 감소하는 것은 중성자 조사에 의해 생긴 결함이 자벽의 운동을 방해하였기 때문인 것으로 보인다.

Fig. 3은 BNA와 BNE의 상관관계를 보인 것으로 상관계수가 0.993과 0.976으로 좋은 선형성을 보여주고 있으며, BNE의 변화율이 BNA의 변화율보다

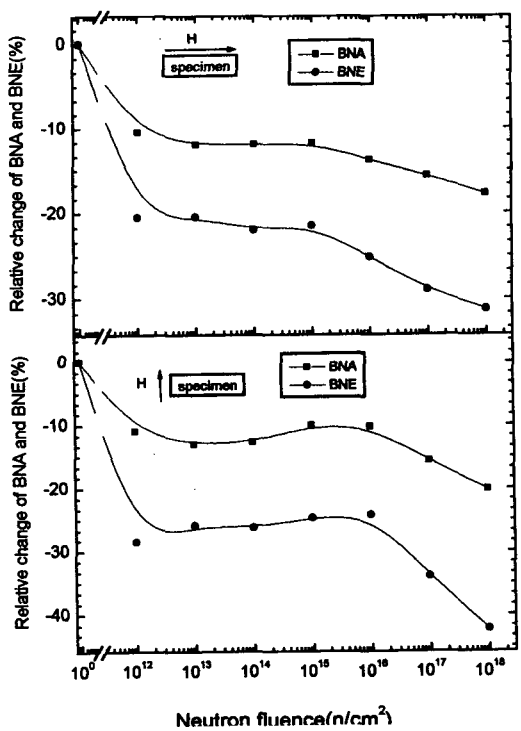

Fig. 2 Relative changes of Barkhausen noise amplitude and energy as a function of neutron fluence

1.68배와 2.77배로 다소 크게 나타났다. BNA와 BNE의 선형성은 여러 사람들에 의해 보고된 바 있다[12].

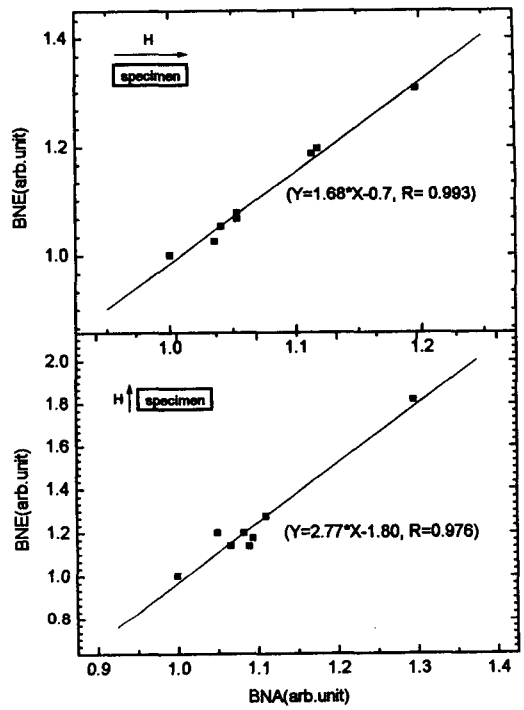

Fig. 3 BNA vs BNE

Fig. 4는 중성자 조사량에 따른 경도변화를 보인 것이다. 경도는 중성자 조사량이 10^{16} n/cm^{2}까지는 조사량의 증가에 따라, 260에서 280까지 서서히 증가하다가, 조사량이 10^{17} n/cm^{2}과 10^{18} n/cm^{2}에서 각각 297과 337로 크게 증가하였다. 특히, 10^{18} n/cm^{2}의 중성자가 조사된 시편의 경도변화율은 비조사재에 비해 29.4%가 증가하였다. 이는 조사량에 비해 큰 양으로 본 연구에서의 조사온도가 약 70℃로 비교적 저온이기 때문이다. 조사시의 경도는 온도가 낮을수록 증가한다는 것이 보고된 바 있다[13]. 중성자 조사에 의한 경도의 증가는 Govindaraju 등의[14] 실험결과와도 잘 일치한다. 본 연구의 실험 결과는 조사시에 생긴 결함들이 전위 이동에 대한 장애물 역할을 하므로서 전위 이동에 대한 저항성을 나타내는 마찰경화를 증가시키기 때문인 것으로 보이며, 경도의 증가로부터 결함의 생성 및 증가를 확인할 수 있으며, 이로 인하여 재료의 기계적 성질이 변해감을 알 수 있다.

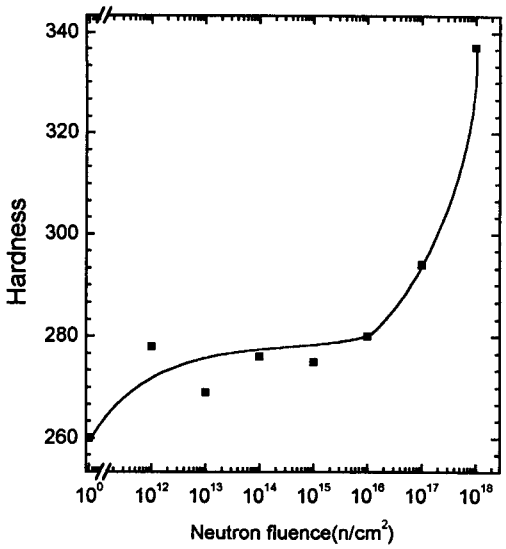

Fig. 4 The changes of hardness as a function of neutron fluence

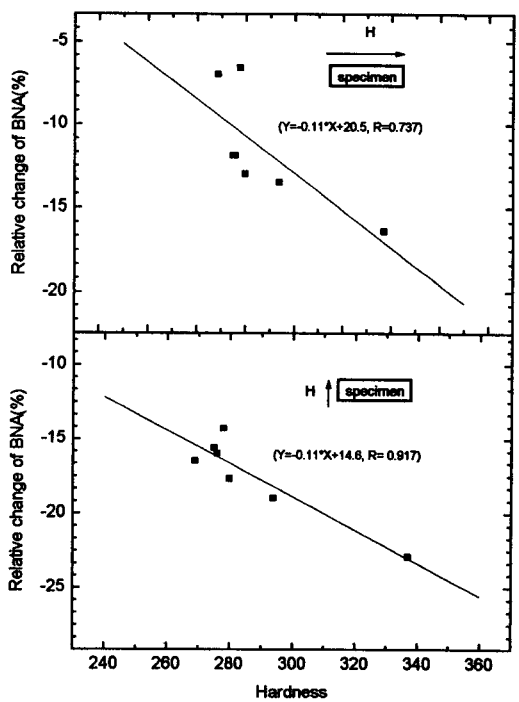

Fig. 5 The relative change of BNA vs hardness

Fig. 5와 6은 경도와 BNA 및 BNE의 선형성을 보여주는 것으로, 짧은 방향에서는 상관계수가 0.917과 0.937로 비교적 좋은 선형성을 보여주고 있다. 그

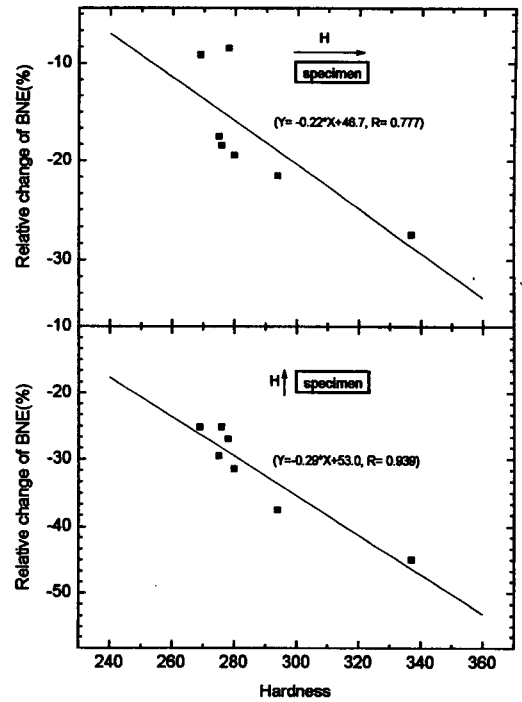

Fig. 6 The relative change of BNE vs hardness

러나 긴 방향에서는 0.737과 0.777로 짧은 방향에 비해서 선형성이 약간 떨어진다. 또한 경도값의 변화는 BNA의 변화율에 비하여 두 방향 모두에서 0.11배로 나타났으며, BNE의 변화율은 긴방향에서는 0.22, 짧은 방향에서는 0.29배로 나타나, BNE가 BNA에 비해 더 크게 변한다는 것을 알 수 있다. 이상의 결과를 종합하면 중성자 조사에 의한 BN의 효과는 10^{17} n/cm^{2}에서 현저하게 나타났으며, 이는 이 구간내에서의 경도의 급격한 증가와 일치한다. BN의 감소는 자구의 pinning에 기인하며, 경도의 증가는 중성자 조사에 의해 생성된 결함의 모임인 defect clusters가 전위의 운동을 방해하였기 때문이다.

조사손상기구는 조사환경에 따라 결정된다. 그러나 위와 같은 특징적인 세 단계는 SA508-3 steel이 본 실험에서와 같이 저온에서 조사되었을 경우 다음과 같이 설명될 수 있다. Beeler에 의한 α-철의 computer simulation 결과에 의하면[15], 중성자 조사가 시작되자 처음에 손상된 주위로 점결함이 모이기 시작하여 점결함의 생성과 소멸이 평형에 이르게 되면 점결함의 모임은 평형한 영역에 도달하게 된다. 조사가 더욱 진행되면 전위망(dislocation network)이 점결함의 모임(defect cluster)으로 부터 생성되어

세 번째 단계의 경도의 급격한 증가를 초래한다. 전위와 자벽의 실질적인 크기의 차이에도 불구하고 조사량에 따른 defect cluster의 증가는 경도를 증가시키고 BNA 및 BNE의 감소를 초래한다. 이는 결함의 증가가 자벽과 전위의 운동을 모두 방해하였기 때문인 것으로 생각된다.

4. 결 론

1) 중성자 조사량이 10^{16} n/cm^{2}까지는 최대자기유도, 보자력, 잔류자기는 거의 변화하지 않고, 조사량이 10^{17} n/cm^2 이상에서는 최대자기유도, 보자력, 잔류자기가 약간 감소한다. 이는 중성자 조사에 의해 핵에 전달된 에너지가 전자에 전달되어 전자의 에너지 상태를 변화시켰거나, 결정 이방성 상수의 감소에 의한 것으로 볼 수 있으나 앞으로 더 많은 연구가 필요하다. 그러나 이 결과로서 중성자 조사에 의한 원자로 압력용기 재료의 결함은 자기이력곡선에는 거의 영향을 주지 않고, 따라서 자기이력곡선으로서는 중성자조사에 의한 기계적 성질 변화를 알아낼 수 없는 것으로 추정된다.
2) BNA, BNE의 변화율은 중성자 조사량에 따라 감소한다. 이는 중성자 조사에 의한 재료의 미세결함이 자벽운동을 방해하였기 때문인 것으로 생각된다.
3) 경도측정에서 10^{16} n/cm^2 이하의 중성자가 조사된 시편의 경도는 비조사 시편에 비하여 약간 증가하였으나, 10^{17} n/cm^2 이상의 중성자가 조사된 시편의 경도는 급격히 증가하고 있다. 이는 중성자 조사에 의한 미세결함이 전위(dislocation)의 이동을 방해하였기 때문인 것으로 생각된다.
4) 70℃에서 중성자에 조사된 원자로 압력용기 재료는 조사량이 10^{17} n/cm^{2}에서 경도 측정, 자기적 성질의 측정 등의 결과가 모두 일관성을 가지고 변하므로 70℃, 대기압하에 중성자에 조사된 원자로 압력용기 재료의 물성변화는 조사량이 10^{17} n/cm^{2}에서 일어난다.
5) 중성자 조사에 의한 재료의 미세 결함은 자벽과 전위의 운동을 방해하여 자기적 성질과 기계적 성질을 변화시키고, 그 변화가 일관성을 가지므로, 중성자 조사에 의한 재료의 기계적 결함을 찾는데 자기적방법이 비파괴 평가 방법으로 이용 가능하다.

참고 문헌

1) Shiori Ishion, 照射損傷, 東京大學出版社, pp. 120-127, (1979)
2) Regulatory Guide 1.99, Rev. 2, Radiation Embrittlement of Reactor Vessel Materials, US-NRC (1988)
3) J. T. Bussel, W. J. Phythian, R. J. McErloy, S. Dumbill and P. H. N. Roy, J. Nucl, Mat. 225, pp. 196, (1995)
4) H. J. William, W. Sockey, Phy. Rev. 75, pp. 178, (1949)
5) B. D. Culity, Introduction to Magnetic Material, pp. 313-315, (Addison-wesley, 1972)
6) M. Blaszkiewicz, Materials Science Forum Vols. 212-213, pp. 9-16, (1996)
7) D. G. Park, C. G. Kim, H. C. Kim, J. H. Hong and I. S. Kim, J. Appl. Phys. 81(8), pp. 15, (1997)
8) J. F. Stubbins, J. G. Williams, J. U. Patel and W. J. Shong, Proceed. 5th EDM, pp. 719, (1992)
9) W. J. Song, M. Giacobbe, J. F. Stubbins and J. G. Williams, 6th Environ. Degrad. Mat, (1993)
10) G. R. Odette and G. E. Lucas, ASTM STP 909, pp. 206, (1986)
11) L. B. Siphai, M. R. Govindaraj, D. C. Jiles, P.K. Liaw and D. S. Drinon, Rev. of Progress in Quantitative Nondestructive Eval. 13, pp. 1801-1808, (1994)
12) Jae-Kyung Yi, Byong-Whi Lee and H. C. Kim, J. Mag. Mat. pp. 81, (1994)
13) L. E. Steele, Nucl. Eng. Des., 3, pp. 287, (1966)
14) M. R. Govindaraju, L. B. Sipahi, D. C. Jiles, P. Liaw and K. Krion, Nondestructive Eval and Material Properties, II121, (1994)
15) J. R. Beeler, ASTM STP 380, pp. 86, (1965)

A Study on Barkhausen Noise of Reactor Pressure Vessel Materials Irradiated by Neutrons

Chi-Il Ok*, Jang-Whan Kim*, Duck-Gun Park**, Jun-Hwa Hong** and Jong-Kyu Lee***

* Department of Physics, Pusan National University, Pusan 609-735

** Korea Atomic Energy Research Institute, Taejon 305-353

*** Department of Physics, Pukyong National University, Pusan 608-737

Abstract Hysteresis loop, Barkhausen noise(BN), and hardness were measured in the neutron irradiated RPV steel for various fluence, irradiated dose up to 10^{18} n/cm^2. The coercivity, remanence and maximum induction of neutron irradiated samples did not change significantly, but the BNA and BNE were decreased as the neutron irradiation increased. The changes of BNE and BNA were characterized by three stages with respect to neutron dose. The BNA and BNE were decreased with an increase of neutron dose to 10^{12} n/cm^2, and remained nearly constant up to 10^{16} n/cm^2, then were decreased rapidly with an increase of the neutron dose above 10^{16} n/cm^2. On the other hand, the hardness was observed revesely with the change of BNA and BNE.

(*Received: August 10, 1998*)