

중성자에 조사된 원자로 압력용기 재료(SA508)의 Magneto-acoustic emission 효과

Effect of Magneto-acoustic Emission of Reactor Pressure Vessel Materials Irradiated by Neutrons

옥치일*, 이종규*, 박덕근**, 홍준화**, 김장환***

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

초 록 원자로 압력용기 재료인 SA508 steel을 온도 70℃와 대기압하에서 최고 10^{18}n/cm^2 까지 중성자를 조사시켜 조사량에 따른 미세경도 변화와 magneto-acoustic emission(MAE) 에너지를 측정하였다. 중성자 조사에 따른 경도의 변화는 조사량이 10^{16}n/cm^2 까지는 거의 일정하였으나, 조사량이 10^{17}n/cm^2 이상에서 급격히 증가하였다. MAE 에너지의 변화는 중성자 조사량에 따라 경도의 변화와 같은 형태로 변화했으나 그 변화량은 감소하여 그 변화의 추이는 경도의 변화와는 역의 형태였고, 또한 MAE 에너지의 상대적 변화와 경도 변화사이에는 아주 좋은 선형성을 보였다. 이러한 결과에서 SA508 강재는 10^{17}n/cm^2 이상의 중성자에 조사될 경우에 재료에 중성자 조사에 의한 미세 결함이 급격히 증가하여 전위(dislocation)이동에 대한 저항성을 나타내는 마찰경화의 증가가 경도의 증가를 유발하고, 또한 이러한 미세 결함은 자기장과의 반응에서는 90° 자벽의 운동중에 자기탄성 변화를 유도하여 MAE 에너지의 감소를 유발함을 알 수 있었다. 그리고 경도의 변화량보다 MAE 에너지의 변화량이 더 크게 나타나, 중성자 조사에 의한 미세결함은 기계적 성질보다 자기적 성질에 더 민감하게 반응한다는 것을 알 수 있었다. 따라서 MAE가 중성자 조사에 의한 재료의 미세 구조 결함을 비파괴적인 방법으로 평가하는 강력한 도구의 가능성이 있음을 알 수 있었다.

Abstract Magneto-acoustic emission (MAE) energy and hardness were measured in the reactor pressure vessel steel (SA508 Steel) for the various neutron fluence, irradiated dose up to 10^{18}n/cm^2 . The hardness was nearly a constant up to 10^{16}n/cm^2 , but it was rapidly increased with an increase of the neutron irradiation above 10^{17}n/cm^2 . It may be considered that the increase of hardness is due to the hindrance of dislocation motion induced defect clusters by irradiation. On the other hand, the MAE energy was slowly decreased as the neutron irradiation increased up to 10^{16}n/cm^2 and it was rapidly decreased with an increase of the neutron irradiation above 10^{17}n/cm^2 . The decrease of the MAE energy may be considered as an increase of the defect clusters which is very sensitive to the 90° domain wall motion. Furthermore, the change of MAE energy and hardness had nearly a linear relationship, but the change of MAE energy was more significant than the change of the hardness. Therefore, MAE may be considered as a very useful technique for the nondestructive evaluation of irradiation damage.

1. 서 론

원자로 압력용기는 원자로발전소의 운전중 그 안전성 확보 뿐 아니라 수명연장시에도 결정적인 영향을 미치

는 설비이다. 이러한 원자로 압력용기는 원자로 발전소 가동중 고에너지의 중성자에 의해 계속 조사된다. 재료가 고에너지의 방사선에 조사되면 다수의 격자원자가 격자위치에서 뺏기므로 많은 양의 원자공공(vacancy)

이나 격자간 원자가 생성되고, 이러한 점결합들이 다시 모여 집합체를 형성하여 원자공공 과밀영역, 루프(loop) 또는 전위(dislocation) 등을 형성한다[1]. 이러한 결함들이 재료의 연성이 저하되고 강도가 증가하여 파괴저항성이 약화되는 조사취화(irradiation embrittlement)현상의 원인이 된다. 이 조사취화는 조사시의 온도, 증성자 fluence 등에 의해서도 결정적인 영향을 받는다.

조사취화현상은 수 nm정도의 미세한 결함에 의한 것이므로[2] 기존의 비파괴 평가 방법으로는 이러한 미세 결함의 평가가 곤란할 뿐 아니라, 현재 사용하고 있는 평가방법인 파괴시험으로는 시편의 제약 및 많은 시간과 비용, 그리고 높은 방사선으로 인한 피폭이 수반되어 보다 안전하고 정확한 평가방법이 절실히 요구되고 있다. 또한 원자력 발전소 수명 연장시에는 기존의 평가방법을 수행하기가 곤란한 점이 있고, 이에 따라 원자로 압력용기의 안전성을 평가하는데 새로운 방법에 대한 연구가 진행되고 있는데 특히 자기적성질과 기계적성질의 상관관계에 착안하여 이에 대한 기술정립에 많은 연구가 진행되고 있다[3,4].

증성자 조사에 의한 원자로 압력용기 결함의 비파괴 평가 방법의 개발에 대한 많은 연구중에서, 최근에는 재료에 자기장을 가하였을 때 나타나는 여러 자기적 parameter를 이용한 연구가 많이 진행되고 있다. 이들 중에서도 Barkhausen Noise(BN)와 magneto-acoustic emission(MAE)가 대표적이다. BN과 MAE는 강자성체가 자기화할 때 가해진 자기장과 자구벽이 반응하여 자구벽이 한 위치에서 다른 위치로 연속적으로 이동하지 않고 갑작스런 점프를 하기 때문에 발생한다. 또한 자구벽의 운동이 개재물들에 의해 방해를 받을 때 BN과 MAE는 감소한다고 알려져 있다 [5]. 일반적으로 BN은 180° 자구벽이 이동할 때 불순물들에 의해 자구벽이 연속적으로 이동하지 않고 불연속적인 이동에 의한 것이고, 따라서 BN은 보자력(coercivity) 부근에서 가장 강하게 나타난다. 증성자 조사에 의한 BN의 변화량은 옥치일 등의 논문[6]에 나타나 있다.

특히 MAE는 1974년 Lord가 처음으로 관측한 이후 [7] BN과 함께 그 연구가 활발하게 진행되고 있으나, MAE의 source는 연구자에 따라 다르다. Shibata 등은[8] 90° 자구의 회전 및 spike 자구의 소멸등을 그 source mechanism으로 보았고, Guyot 등은[9] 자구벽의 생성과 소멸을, Buttle등은[10] 90° 자구의 생

성과 소멸을 그 source mechanism으로 보았다. 이는 MAE가 자기변형과 관계가 있다는 것을 보여주는 데 자기변형은 물질이 자기장속에 놓여있을 때 그 물체의 크기가 변하는 것으로 이 자기 변형은 180° 자구벽의 이동과는 관계가 없고 90° 자구벽의 이동과 관계가 있다. 따라서 Kameda 등은[11] 빠른 자구벽 운동이 결정결함부근에서 국소화된 자기탄성변화를 유도하여 MAE의 크기가 pinning점으로부터 자구벽의 가속에 비례하는 양이라고 가정하였다. 또한 이는 다른 연구자들에 의해서도 MAE가 자기변형이 최대로 나타나는 자기장에서 그 peak가 나타나는 것이 확인되었다[12].

본 연구에서는 원자력발전소에서 원자로 압력용기 재료로 사용되고 있는 SA-508 steel을 한국원자력연구소 TRIGAR MARK III 연구용 원자로에서 증성자 조사량이 10^{12} n/cm²에서 최고 10^{18} n/cm² 까지 조사량을 달리한 7종류의 시편 및 비조사재 시편으로 증성자 조사량에 따른 기계적 성질 변화를 측정하고, 또한 재료에 자기장을 가했을 때 재료가 자기화되면서 나타나는 자구벽의 불연속적인 이동에 의해 재료에서 발생하는 음향신호인 MAE 에너지의 변화량을 측정함으로써, MAE 에너지 변화와 경도변화의 관계를 조사하여, 원자로 압력용기 재료의 증성자 조사에 의한 재료의 미세결함을 비파괴적으로 평가하는데 자기적 방법이 이용 가능성이 있는지를 조사하였다.

2. 실험

본 연구에서 사용한 재료는 원자로 압력용기 재료인 SA508 class 3 steel로서, 한국중공업에서 제작되었고, 그 화학적 조성은 Table 1과 같으며, 자기적 성질 변화측정에 적합하고 방사선 피폭을 최소화하기 위해 23mm×18mm×1mm 크기로 가공된 시편을 사용하였다. 증성자 조사는 한국원자력연구소 서울본소의 TRIGAR MARK III 연구용 원자로의 노심 중심부근의 동위원소를 생산하는 구멍에 넣어 조사하였고, 같은 온도, 위치, 증성자속의 조건하에 조사되도록 하기 위하여 시편을 알루미늄 캡슐에 넣었다. Fe dosimeter를 이용하여 구한 조사량은 10^{12} n/cm²에서 최고 10^{18} n/cm² 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

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	

있어 중성자 조사에 의한 물성변화 영향만 고려하였다.

MAE 에너지 측정은 Physical Acoustic사의 acoustic 측정 시스템인 8900 LOCAN AT 모델을 사용하였다. 자화는 4인치 core의 전자석에 전력증폭기를 이용하여 시편의 방향에 따라 각각 0.5Hz, 1Hz의 주파수의 교류전류로 시편을 자화시켰다. 시편의 자화 방향은 직사각형 모양의 시편의 짧은 방향이었다. 시편이 자화할 때 발생하는 초음파의 측정은 Model PAC 15 (Physical Acoustic사)인 AE 센서를 사용하였다. 초음파 신호는 Pre-Amplifier에서 60dB로 증폭하였고 band pass filter는 100~300kHz로 하였다. MAE 에너지는 신호의 크기를 측정기기에 내장된 소프트웨어로 처리된 전압값을 프린터로 출력하여 구하였다. 실험 장치의 구성은 Fig. 1에 나타나 있다.

MAE는 강자성체가 자기화할 때 발생하는 음향신호로서, 시간 t에서 1개의 음향 source가 V_p 의 신호를 주고, 그 source의 단위 시간당 개수가 N일 때, 그들에 대한 envelope는 다음 식으로 주어진다(7).

$$V_{env} = H(N, V_p) \dots\dots\dots (1)$$

여기서, H 는 시편의 여러 곳에서 발생하는 각 신호의 overlapping 특성을 나타내는 함수이다. 방출되는 음향에너지는 신호의 envelope제곱의 시간 적분에 비례하는 양으로 다음 식으로 주어진다.

$$E = E_0 \int V_{env}^2 dt \dots\dots\dots (2)$$

여기서 E_0 는 상수이다.

3. 결과 및 논의

Fig. 2는 중성자 조사량에 따른 MAE 에너지의 변화를 나타낸 것이다. 그림에서 보는 바와 같이 중성자의 조사량이 $10^{16}n/cm^2$ 까지는 MAE에너지는 주파수가 0.5Hz에서는 4.4%에서 11%, 주파수가 1Hz에서는 5.2%에서 15%까지 서서히 감소하였으나, 조사량이 $10^{17}n/cm^2$ 이상일 때 급격히 감소하였다. 그러나 그 감소의 크기는 본 실험에서 가한 외부 자기장의 주파수 범위에서는 거의 변화가 없는 것으로 나타났다.

본 논문에서 사용한 시료의 중성자조사량에 따른 BN의 변화량은 중성자 조사량이 $10^{16}n/cm^2$ 까지는 약간 감소하고, 조사량이 $10^{17}n/cm^2$ 부터 급격히 감소한다는 것이 이미 발표되었다(7). 따라서 180° 자구벽의 이동을 방해하는 재료의 미세 결함은 조사량이 $10^{17}n/cm^2$ 에서 급격히 증가한다는 것을 알 수 있다. 그러나 그림에서 보는 바와 같이 MAE 에너지는 중성자 조사량이 $10^{16}n/cm^2$ 까지는 서서히 감소하였으나, $10^{17}n/cm^2$ 에서 급격히 감소하여 조사량이 $10^{18}n/cm^2$ 에서는 0.5Hz의 주파수에서 최대 약 61%, 1Hz의 주파수에서 최대 약 54%로 급격히 감소하였다. 따라서 BN과 MAE의 source는 다르다는 것을 보여준다. 이것은 다른 연구결과와도 일치한다(6, 8, 9).

따라서 중성자 조사에 의해 생성된 결함들이 자구벽의 이동으로 자기변형(magnetostriction)을 유발하

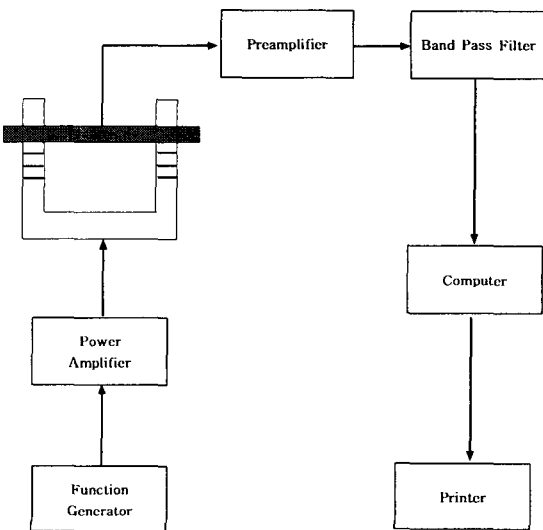


Fig. 1 Block diagram of MAE measurement equipment

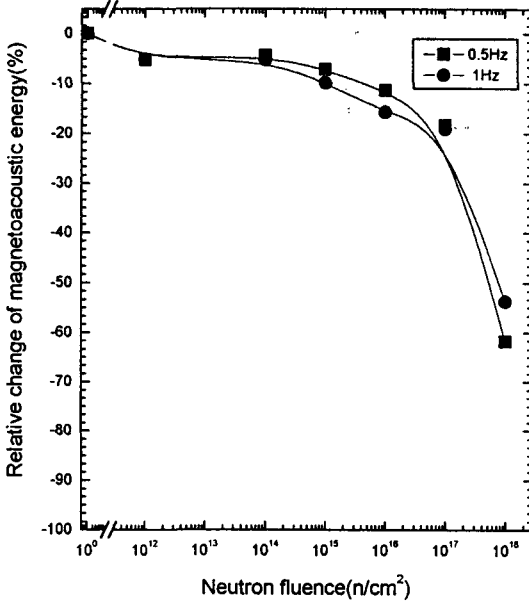


Fig. 2 The relative change of magneto-acoustic energy as a function of neutron fluence

여 MAE 에너지가 감소한다는 것을 알 수 있고 또한 그 결합의 밀도는 중성자 조사량이 10^{16} n/cm²까지는 거의 변화가 없고, 중성자 조사량이 10^{17} n/cm²부터 급격히 증가한다는 것을 알 수 있다.

이 결과는 또한 앞선 연구에서 발표된 중성자 조사량 증가에 따른 BN의 감소와 일치하였고, 중성자 조사량이 10^{17} n/cm² 이상에서는 BN보다 그 감소량이 더 크게 나타났다. 따라서 BN과 MAE 모두 자구벽의 이동에 의한 것이므로 중성자 조사량이 증가함에 따라 자구벽의 이동을 방해하는 결합들이 생성되었다는 것을 뜻한다.

원자로 압력용기 재료의 중성자 조사량에 따른 기계적 성질변화를 나타내는 중성자 조사량에 따른 경도 변화는 이미 발표되었는데 [6] 그 변화는 Fig. 3에 나타나 있다. 그림에서 보는 바와 같이 경도는 중성자 조사량이 10^{16} n/cm²까지는 3.4%에서 7.6%까지 서서히 증가하였고, 10^{17} n/cm²에서 급격히 증가하여, 조사량이 10^{18} n/cm²에서 최대 29.4%까지 증가하였다. 경도는 조사온도에 영향을 많이 받는데 조사시의 온도가 높을수록 경도의 증가량은 작아진다. 본 연구에서의 조사시 온도는 약 70℃로 비교적 저온이므로, 경도의 증가량이 상당히 크게 나타났다. 이것은 다른 연구자들의

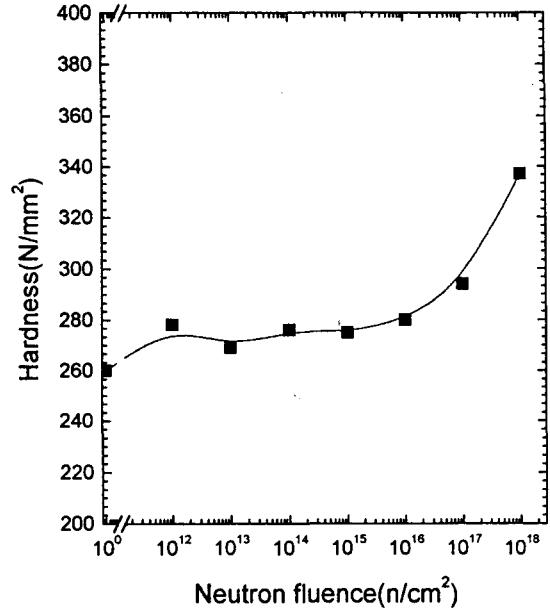


Fig. 3 The change of hardness as a function of neutron fluence

결과와도 일치한다 [13, 14]. 또한 경도의 변화는 재료의 기계적 성질의 변화를 반영하는데, 경도의 크기는 재료의 파괴저항성이 악화되는 조사취화현상의 정도를 나타내는 것이다. 따라서 본 연구의 결과로 중성자 조사에 의해 재료의 조사취화 정도가 증가했다는 것을 알 수 있다. 이 결과는 조사시에 생긴 결합들이 전위 이동에 대한 장애물 역할을 하여 전위 이동에 대한 저항성을 나타내는 마찰경화를 증가시키고, 또한 경도의 증가로부터 중성자 조사량에 따라 결합의 생성 및 증가가 재료의 기계적 성질의 변화를 유발시킨다는 것을 확인할 수 있다.

Fig. 4는 MAE 에너지의 상대적 변화를 경도의 함수로 나타내었고, 이들 사이에는 선형성이 있음을 보여주고 있다. 그림에서 보는 바와 같이 상관계수가 0.994와 0.982로 아주 좋은 상관관계를 보여주고 있다. 이는 MAE 에너지의 변화가 기계적 성질 변화와 깊은 관계가 있으며, 따라서 MAE 에너지의 변화 측정이 조사취화 정도를 확인할 수 있다는 것을 보여준다. 또한 Fig. 2와 Fig. 3에서 보는 바와 같이 10^{17} n/cm² 이상의 조사량에서는 MAE 에너지의 변화가 경도의 변화량보다 약 2배 정도 크게 나타나 중성자 조사량에 따른 MAE 에너지의 변화가 기계적 성질인 경도변화

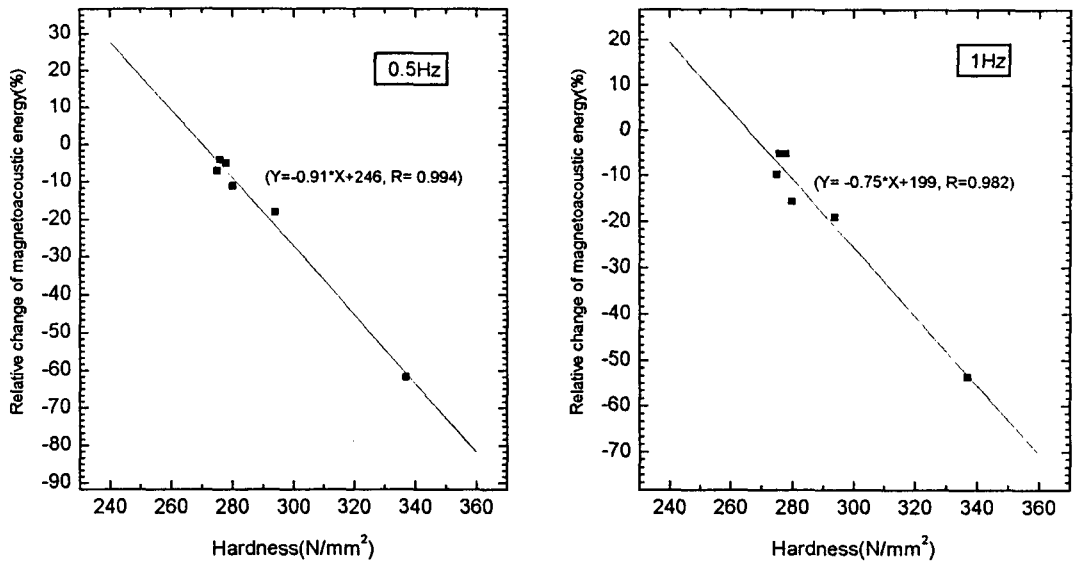


Fig. 4 The relative change of MAE as a function of hardness

보다 더 민감하게 반응한다는 것을 알 수 있다. 따라서 중성자 조사량에 따른 기계적 성질 변화를 자기적 방법인 MAE로 평가 가능하다는 것을 알 수 있고, MAE가 중성자 조사에 의한 조사취화 정도를 비파괴적으로 평가하는데 강력한 도구로 사용될 수 있다는 것을 확인할 수 있었다.

4. 결 론

- 원자로 압력용기 재료(SA508강재)의 MAE 에너지는 중성자 조사량이 $10^{16}n/cm^2$ 까지는 서서히 감소하다가 조사량이 $10^{17}n/cm^2$ 이상에서 급격히 감소하였다. 중성자 조사량이 $10^{17}n/cm^2$ 이상에서 MAE 에너지가 급격히 감소한 것은 재료에 중성자 조사에 의한 미세결합이 $10^{17}n/cm^2$ 이상에서 급격히 증가하고, 이 미세결합의 증가가 90° 자벽의 운동을 방해하여 MAE 에너지의 감소를 유발하였다고 생각된다.
- 재료의 기계적 성질의 변화를 나타내는 경도의 변화는 중성자 조사량이 $10^{16}n/cm^2$ 까지는 서서히 증가하다가 조사량이 $10^{17}n/cm^2$ 이상에서 급격히 증가하여, 경도 변화와 MAE 에너지 변화는 선형적인 관계를 보이고 있고, 또한 MAE 에너지변화는 경도변화보다 더 민감하게 반응하였다. 그리고 경도

의 증가는 중성자 조사에 의한 재료의 미세 결함이 전위의 이동을 방해하였기 때문이고, MAE 에너지의 감소는 중성자 조사에 의해 생성된 재료의 미세 결합이 자벽 운동을 방해하였기 때문이라 생각된다. 따라서 MAE가 중성자 조사에 의한 재료의 미세 결합에 의한 기계적 성질의 변화를 비파괴적으로 평가하는데 아주 좋은 도구가 될 수 있음을 알 수 있었다.

참고문헌

- [1] Shiori Ishion, "照射損傷", 東京大學出版社, pp. 120-127, (1979)
- [2] J. T. Bussel, W. J. Phythian, R. J. McErloy, S. Dumbill and P. H. N. Roy, J. Nucl. Mat. 225, pp. 196, (1995)
- [3] M. Blaszkiwicz, Materials Science Forum Vols. 212-213, pp. 9-16, (1996)
- [4] D. G. Park, C. G. Kim, H. C. Kim, J. H. Hong and I. S. Kim, J. Appl. Phys. 81(8) pp.15, (1997)
- [5] B. D. Cullity, "Introduction to magnetic material", pp. 313-315, Addison-Wesley, (1972)
- [6] 옥치일, 김장환, 박덕근, 홍준화, 이종규, "중성자

- 에 조사된 원자로 압력용기 재료의 Barkhausen 노이즈에 관한 연구”, 비파괴검사학회지, 제 18권 제 6호, pp. 477-482, (1998)
- [7] Choel Gi Kim, "Magneto-acoustic emission and barkhausen noise by magnetic domain dynamics in 3% SiFe", Ph. D. Thesis, KAIST, (1988)
- [8] M. Shibata, K. Ono, NDT INT. 227. (1981)
- [9] D. J. Buttle, C. B. Scruby, J. P. Jakubovics and G. A. D. Briggs, Phil. Mag. A, 55, pp. 717-734, (1987)
- [10] M. Guyot, T. Merceron and V. cagan, Phys. Lett. A, 120, pp. 64, (1987)
- [11] J. Kameda, R. Ranjan, Acta. Metall. 35(7), pp.1515, (1987)
- [12] B. Augustyniak, "Correlation between acoustic emission and magnetic and mechanical barkhausen effects", J. Magn. Magn. Mater. 196-197, pp. 799-801. (1999)
- [13] L. B. Siphai, M. R. Govindaraj, D. C. Jiles, P. K. Liaw, and D. S. Drinon, Rev. of Progress in Quantitative Non-destructive Eval. 13, pp. 1801-1808, (1994)
- [14] M. R. Govindaraj, L. B. Siphai, D. C. Jiles, P. K. Liaw, and K. Krion, Non-destructive Eval. and Material Properties II, 121, (1994)