

## 원자로 압력용기용 저합금강의 미세구조와 경도에 따른 Barkhausen Noise의 변화

### Changes in the Barkhausen Noise with Microstructure and Hardness of Reactor Pressure Vessel Steels

송숙향 · 지세환 · 박덕근 · 홍준화 · 국일현

한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

#### 요 약

원자로 압력용기강을 650℃, 690℃에서 13-120시간 동안 등온 열처리하여 미세조직과 경도에 따른 Barkhausen Noise의 변화를 조사하였다. 열처리 후 광학·전자현미경(SEM, TEM)을 이용하여 미세조직을 관찰하였고, 경도와 BNA를 측정하였다. 650℃ 열처리 결과 열처리 시간 증가에 따라 BNA는 증가하고, 경도는 감소하는 경향을 보인 반면 690℃ 열처리의 경우 BNA는 감소하고, 경도는 증가하는 결과를 나타내었다. 690℃ 열처리 강의 이러한 결과는 열처리 후 형성된 제 2상(martensite)의 석출에 기인한 것으로 판단된다.

#### Abstract

The changes in the Barkhausen noise amplitude (BNA) with microstructure and hardness of reactor pressure vessel steels were investigated for specimens isothermally heat treated for 13-120 hrs at 650℃ and 690℃. Optical, scanning electron, and transmission electron microscopy were conducted for microstructural investigation, and Vickers microhardness and BNA were measured to trace the respective changes after heat treatment. Results show that the BNA increased inversely to the Vickers microhardness for 650℃ heat treatment, and BNA decreased inversely to the Vickers microhardness for 690℃ heat treatment. The magnetic second phases formed in the 690℃ heat treated specimen were attributed to the observed reverse change in the BNA.

#### 1. 서 론

원자력 발전소 안전 가동 수명을 결정하는 중요한 설비인 원자로 압력용기는 고온 (약 300℃), 고압 (155 kgf/cm<sup>2</sup>) 및 고 에너지의 중성자 조사 환경에서 40년 이상 장기간 가동시 미세한 조사 결함 생성 (<10nm)에 의해 인성이 저하하고 강도가 증가하는 조사취화 (radiation embrittlement)현상을 보인다<sup>[1,2]</sup>. 조사취화는 파괴 저항성을 약화시켜 압력용기의 건전성을 위협하는 원인이 될 뿐

아니라, 원자력 발전소 수명에 결정적인 영향을 미친다. 지금까지 조사취화 평가는 압력용기 감시 시험편을 이용하여 왔으나, 최근 발전소 수명 연장에 따른 감시시험편 수량의 부족, 조사취화 현상의 on-line monitoring 및 보다 경제적이고 간편한 취화 평가 요구에 따라 비파괴적 재료 취화 평가 방법에 대한 관심이 증가하게 되었다<sup>6,4)</sup>.

여러 종류의 비파괴 평가 방법 가운데 특히, Barkhausen Noise (BN) 측정 방법은 강자성체가 외부의 자장에 의해 자화되는 과정에서 자력이 운동할 때 재료의 미세조직, 즉 결정립계 및 래스경계<sup>5)</sup>, 탄소함량<sup>6)</sup>, 상정형 (phase morphology)<sup>7)</sup>, 석출물 크기와 분포<sup>8)</sup>, 전위밀도와 응력상태<sup>9,10)</sup> 등에 따라 BN이 매우 민감하게 변화하는 성질을 이용하기 때문에 자성 측정을 통하여 역으로 재료의 미세조직 상태를 탐지하고자 하는 연구가 많이 수행되어 왔다<sup>11~14)</sup>.

이 경우 재료의 미세조직 상태에 따른 BN 변화에 관한 데이터 베이스 확보가 본 방법의 산업적 응용을 가능케 하는 관건이 된다. 따라서 SA 508 C13와 같은 저합금강으로 제작된 압력용기의 중성자 조사취화 평가에 본 방법을 적용하기 위해서는 조사전 압력용기 재료의 미세조직 변화에 따른 BN 측정 자료가 많이 확보·분석되어야 할 것이다. 즉, 조사전 압력용기 재료의 미세조직에 따른 자성 측정 결과는 조사재에 대한 측정 결과와 비교되어 조사재 미세조직 변화를 예측할 수 있는 기본 자료를 제공하게 된다.

이러한 관점에서 본 연구에서는 향후 조사재에 대한 자성 측정 결과와 비교할 수 있는 기본 자료를 확보하기 위하여 SA 508 C13 저합금강을 650°C 및 690°C에서 등온 열처리 (isothermal heat treatment)하여 미세조직 변화 및 기계적 성질 변화가 자기적 성질에 미치는 영향을 조사하였고, 이와 함께 측정 결과를 통하여 향후 자성 측정 방법의 조사취화 평가 적용 가능성을 고찰하여 보았다.

## 2. 실험방법

본 연구에 사용한 재료는 한국중공업(주)과 일본제강소(JSW)에서 각각 제조한 정련과정이 서로 다른 두 종류의 소입/소려 (quenching and tempering)된 원자로 압력용기용 저합금강 (low alloy steel)으로서 화학조성은 표 1과 같다. 열처리 전·후 조직검사, 경도 및 BN 측정 시험에 사용된 시험편은 압력용기 감시시험편 제작 목적으로 제조된 단조강 (두께 250mm)의 1/4T (Thickness)위치에서 채취하였다. BN 측정에 사용된 시험편 크기는 보유하고 있는 power supply amplifier와 마그네트의 용량을 고려하여 표준 샤피 충격시험편의 1/3 크기 (Third size charpy specimen: 3.3×3.3×18.3mm) 로 제작하였다. 시험편은 석영관에 장입하여 진공처리한 후 박스로 (Box furnace)에서 열처리 하였으며, 시험편 등온 열처리 온도는 본 재료 제작시의 열처리 온도와 A<sub>c1</sub> 변태온도를 고려하여 650°C, 690°C로 결정하였다.

미세조직은 광학현미경 (OM)과 주사전자현미경 (SEM ; JEOL, JSM-5200) 및 투과전자현미경 (TEM ; JEOL, 2000FX)을 사용하여 결정립 크기, 탄화물 크기, 열처리에 따라 형성된 제 2상의 크기와 분포등을 관찰하였다. OM과 SEM 관찰용 시험편은 마운팅하여 미세연마 (0.3 $\mu$ m diamond paste) 후 1% nital과 5% picral 1:1 혼합용액으로 부식하였으며, TEM 박막시험편 (thin film)은 80 $\mu$ m까지 연마 (0.3 $\mu$ m diamond paste)하여 디스크 커터로 지름 3mm의 원판으로 잘라낸 후, 10% 과염소산 (HClO<sub>4</sub>)과 90% 메탄올 (CH<sub>3</sub>OH) 혼합용액을 -50°C 정도로 유지하여 전류 0.15A, 15~20V의 전압으로 40~60초 동안 twin jet polishing하여 제작하였다.

열처리에 따른 경도 변화는 시험편의 표면을 미세연마 (emery paper #2400)한 후 미소경도시험기

(Wickers microhardness tester)를 이용하여 하중 200g으로 각각 5회 측정하여 그 평균값을 취하였다. 열처리로 인해 생성된 제 2상의 경도는  $\times 400$  배율의 계측 현미경을 이용하여 미세조직을 관찰하면서 5g의 미소 하중으로 측정하였다.

본 실험에서 사용한 BN 측정 장치는 그림 1과 같다. 함수 발생기 (function generator)로 2Hz의 정현파를 발생시킨 후 전력증폭기 (power supply amplifier)로 신호를 증폭하여 U자 페라이트 코어에 자장을 가해 시편의 길이방향으로 자화시켰으며, 이때 시편에서 발생한 자기유도는 시편의 gauge section 주위에 감은 탐지 코일로 측정, Filter/Amplifier System을 이용하여 9~34 $\mu$ m의 신호를 필터링하고, 68dB 증폭한 후 디지털 오실로스코프 (Lecroy 9310)를 사용하여 측정하였다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1. 열처리전 미세조직 에 따른 BN 변화

표 2 에 A, B 두 시험재료의 열처리전 경도와 결정립크기 및 BN 과 같은 자기적성질에 비교 적 큰 영향을 주는 석출물과 탄화물<sup>[5]</sup>, 그리고 특징적인 Bainite 조직에서의 커다란 차이를 요약정리하였다. 표에서 보듯이 B 재료가 전반적으로 A에 비하여 탄화물의 크기와 분포, bainite 미세구조 특성 (lath 경계의 발달 및 interlath carbide 유무)에서 우수한 미세조직을 보이고 있다. 항복강도에 큰 영향을 주는 결정립의 경우 A는 B의 거의 2배 (약 83 %) 정도로 컸으며, 탄화물의 경우 그림 2에 보듯이 B와 비교하여 A에서 분산되지 않고 뭉쳐져 있는 조대한 탄화물들이 많이 발견되었다. 한편, A에서는 B와 비교하여 조대한 interlath carbide와 lath 조직, 덜 발달된 bainite lath 경계가 특징적으로 발견되었는데 이로부터 bainite 조직 형성에 가장 큰 영향을 주는 소입 열처리시의 냉각속도에서 B가 A보다 더욱 빨랐을것으로 예측된다. 경도에 비하여 커다란 미세조직의 차이를 보이는 두 재료의 BN 측정결과를 그림 3(a), (b)에 정리하였다. A는 B보다 약 60% 정도 더 큰 BNA 값을 보이고 있다. 이는 BNA가 자벽 (domain wall)의 이동거리와 이동하는 자벽의 수에 비례하여 증가한다는 관점<sup>[6]</sup>에서 본다면 자벽이동의 장애물이 상대적으로 적은 A가 B보다 더 큰 BNA를 나타내는 것으로 판단된다.

#### 3.2. 등온열처리에 따른 미세조직 및 경도와 BN 변화

미세조직변화에 따른 BN변화를 보다 정량화하여 규명하기 위하여 A에 비하여 미세조직상태가 우수한 B 재료를 선정, 본 저합금강의  $A_{c1}$  온도 전후로 예측되는 650 $^{\circ}$ C와 690 $^{\circ}$ C에서 등온열처리를 수행하여 열처리에 따른 미세조직 변화와 이에따른 경도 및 BN변화를 조사하였다.

650 $^{\circ}$ C 열처리에 따른 가장 큰 미세조직 변화는 그림 4에 보듯이 탄화물 크기 증가와 탄화물 수 감소로 나타났다. 120 시간까지 등온 열처리에 따른 탄화물의 크기 변화는 그림 5에서 보듯이 탄화물의 장축과 단축이 각각 약 38% 및 60% 증가한 것으로 나타났다. 이와같은 열처리에 따른 임계 크기 이하 탄화물의 소멸과 탄화물 수 감소 및 잔여 탄화물의 조대화는 본 재료의 as-received 상태 (660 $^{\circ}$ C에서 10 시간 tempering)로부터 650 $^{\circ}$ C 에서의 장시간 재열처리에 따른 over-tempering 결과로 판단된다. 열처리에 따른 경도와 BN 변화를 그림 6에 정리하였다. 열처리 시간 증가에 따라 경도변화는 크게 나타나지 않았으나 (약 5 % 감소) BNA는 약 10 % 증가하는 것으로 나타났다. 경도의 경우 전체적으로 열처리 시간에 따라 저하하는 경향을 보이고 있으나 특히 50 시간 이후에는 경도의 변화가 거의 나타나지 않았다. 이는 그림 5에서 보듯이 탄화물을 포함하여 650 $^{\circ}$ C 50시간 열처리에 따라 경도변화에 영향을 주는 미세조직들의 안정화가 이루어졌기

때문인 것으로 판단된다. 한편 자구벽 이동에 따른 장애물로서 탄화물 (특히 자구벽 두께 크기의 탄화물<sup>1)</sup>)의 역할을 고려할 때 열처리 시간 증가에 따른 BNA의 증가는 열처리 시간 증가에 따른 탄화물 수의 감소 및 그에 따른 잔여 탄화물의 조대화에 기인하는 것으로 판단된다. 이러한 Tempering에 의한 BNA 증가는 재료가 연화하는 열처리 과정에서 나타나는 일반적인 자기 특성 변화로서 열처리에 따른 내부응력 이완 및 탄화물 조대화가 주요 원인으로 보고되고 있다<sup>1,17,18)</sup>.

한편, 690°C 등온 열처리시에는 그림 7 및 8에서 보듯이 주로 결정립계와 lath 경계를 따라 새로운 제 2상 (길이 약 4.1  $\mu\text{m}$ , 너비 약 2.4 $\mu\text{m}$ )형성과 함께 650°C 에서와 같은 정도의 탄화물 수 감소 및 크기 증가가 관찰되었다. 형성된 제 2상은 그림 9에서 보듯이 회절분석결과 기지조직과 같은 BCC 구조를 가지는 것으로 나타났다. 이 상은 열처리에 따라 C, Mn, Ni 과 같은 합금원소들이 결정입계나 lath경계 주위로 확산되어 국부적으로 높은 농도를 유지하는 한편 Mo 원소는 이들로 부터 빠져나와  $\text{Ac}_1$  변태온도를 저하시킴으로서 열처리시 국부적으로 형성된 오스테나이트 (austenite)의 냉각에 의해 형성된 마르텐사이트 (martensite)로 판단된다<sup>19,20)</sup>. 한편, 본 시편과 같이 탄소함량이 0.3 wt % 이하인 경우의 martensite는 bct가 아닌 bcc 구조를 가지게 되는데<sup>21)</sup> 열처리에 따라 생성된 제 2상이 martensite라는 분석결과는 미소하중 (5g)을 이용한 제 2상 주위의 미세 경도시험 결과 (기지: 174  $\text{kg/mm}^2$ , 제 2상: 280  $\text{kg/mm}^2$ )와도 잘 일치하고 있다.

그림 10은 690°C 등온 열처리 시간에 따른 경도 및 BNA의 변화를 정리한 것으로서 650°C 결과와 상반된 결과를 보여주고 있다. 즉, 열처리 시간 증가에 따른 martensite 제 2상 출현으로 BNA는 약 37% 정도 감소하였고 경도는 약 19% 증가하였다. 열처리에 따른 650°C의 경우와 비교하여 볼 때 martensite 상에 의한 자벽 이동 방해가 매우 큰 것을 알 수 있다. 이러한 martensite의 강한 자기적 특성은 martensite 형성에 따른 내부응력 증가에 기인하는 것으로 알려져 있다<sup>22)</sup>.

#### 4. 결 론

- (1) 650°C 등온 열처리의 경우 탄화물 조대화 및 이에따른 경도저하와 BNA증가가 관찰되었다. 이러한 BNA 증가는 열처리에 따른 탄화물 수 감소에 기인한 것으로 생각된다.
- (2) 690°C 등온 열처리의 경우 탄화물 조대화 및 경도 증가와 함께 BNA의 감소가 관찰되었다. 650°C 열처리재와 상이한 이러한 측정결과는 자기적 성질이 다른 제 2상의 석출에 기인한 것으로 판단된다.
- (3) 자성측정법을 이용한 신뢰성있는 재료평가가 가능하기 위해서는 향후 보다 체계적이고 지속적인 연구를 통하여 magnetic parameter 변화에 미치는 미세조직 parameter의 영향을 정량화할 수 있는 많은 자료가 확보되어야 할 것이다.

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업중 원자로압력경계재료과제의 일환으로 수행되었습니다.

#### 참고문헌

1. M. L. Hamilton, ASTM STP 956 (1987) 194
2. V. K. Silikka and J. Moteff, J. Nucl. Mat., 54 (1974) 325
3. Madhav Rao Gobindaraju, Levent B. Sipahi, David C. Jiles, Peter Liaw and David Drinon,

- Non-Destructive Evaluation and Material Properties II (1994) 131
4. M. Blaszkiwicz, *Mat. Sci. Forum*, Vols. 210~213 (1996) 9~16
  5. R. Ranjan, D. C. Jiles, O. Buck, and R. B. Thompson, *J. Appl. Phys.*, 61(8) (1987) 3199~3201
  6. A. H. Wafik and N. A. Razik, *Phys. Stat. Sol. (a)*, 126 (1991) 451
  7. C. C. H. Lo and J. P. Jakrbovics, C. B. Scruby, *IEEE Trans. Magn.*, Vol. 33, No. 5 (1997) 4037
  8. J. Kameda, *Scripta Metallurgica* Vol. 22 (1988) 1491
  9. R. Rautioaho, P. Karjalainen, *J. Magn. Magn. Mat.*, 68 (1987) 314~320
  10. Dr. K. Titto, *Non-Destructive Testing-Australia* Vol. 26, No. 2 (1989) 36
  11. S. Titto, M. Ojala, S. Saynajakangas, *NDT* (1974) 117
  12. K. Herz, D. Kuppler and P. Deimel, *J. Magn. Magn. Mat.*, 24 (1981) 206~214
  13. P. Deimel, D. Kuppler, K. Herz, *J. Magn. Magn. Mat.*, 36 (1983) 277~289
  14. Baldev Raj, V. Moorthy and S. Vaidyanathan, *Mat. Eval.* (1997) 81~84
  15. Helga Hilderand, *ISIJ Int'l.*, Vol. 37, No. 1 (1997) 65
  16. W. A. Theiner, B. Reimringer and P. Deimel, D. Kuppler, D. Schroeder-obst, *Nucl. Eng. Design*, 76 (1983) 251~260
  17. J. Kameda and R. Ranjan, *Acta metall.*, Vol. 35, No. 7, 1515~1526
  18. Seppo Titto, *Acta Ploytechnica Scandinavica*, "On the influence of microstructure on Magnetization transitions in steel." (1977) 44
  19. H. J. de Klerk, W. M. de Villiers, *36TH MWSP CONF PROC., ISS-AIME*, Vol. XXXII (1995) 453
  20. W. M. de Villiers, H. J. de Klerk & G. Pienaar, *Int'l. J. Pres. Ves. & Piping*, 50 (1992) 222
  21. 양훈영, "신금속재료학", 문운당, 219 (1994)
  22. Soshin Chikazumi, Stanley H. Charap, "Physics of Magnetism", John wiley & Sons (1964) 503~504

Table 1. Chemical composition of the SA 508 C1. 3 reactor pressure vessel A and B steels which are differ in the steel refining process. ( wt % )

element process	C	Mn	Si	P	Ni	Cr	Mo	Cu	Al	Fe
A (VCD)	0.18	1.4	0.08	0.005	0.7	0.15	0.53	0.06	<20ppm	Bal.
B (SA)	0.19	1.44	0.20	0.006	0.82	0.15	0.55	0.003	0.020	Bal.

VCD : Vacuum Carbon Deoxidation.

SA (JSW) : Silicon deoxidation plus Aluminum treatment.

Table 2. Grain size, carbide, precipitates morphology and bainite lath structure obtained by optical microscope and TEM on thin films and carbon replicas for A and B steels.

Material	Grain Size		Precipitates, Carbide, Bainite morphology and lath width	Hardness (Hv)
	ASTM	SIZE ( $\mu\text{m}$ )		
A	7.6	22	<ul style="list-style-type: none"> <li>•Round(dia. : <math>\sim 0.5 \mu\text{m}</math>), Fine Needle(50~100nm)</li> <li>•Agglomerated, large and localized coarse carbides</li> <li>•Undeveloped lath boundary</li> <li>•lath width : <math>5 \mu\text{m}</math></li> <li>•Coarse interlath carbides</li> <li>•PPTs No. : <math>6 \times 10^7/\text{mm}^2</math></li> </ul>	$203 \pm 2$
B	9.5	12	<ul style="list-style-type: none"> <li>•Round(<math>&lt; 0.05 \mu\text{m}</math>), Needle(50~100nm)</li> <li>•Fine round carbide</li> <li>•Well developed lath boundary</li> <li>•lath width : <math>2 \mu\text{m}</math></li> <li>•No interlath carbides</li> <li>•PPTs No. : <math>6.7 \times 10^7/\text{mm}^2</math></li> </ul>	$207 \pm 1.2$

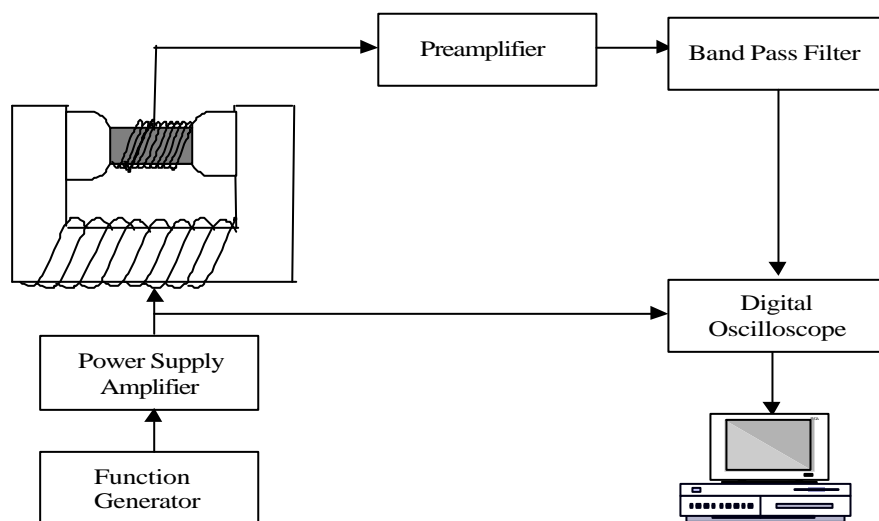


Fig. 1 Block diagram of the Barkhausen noise measurement equipment.

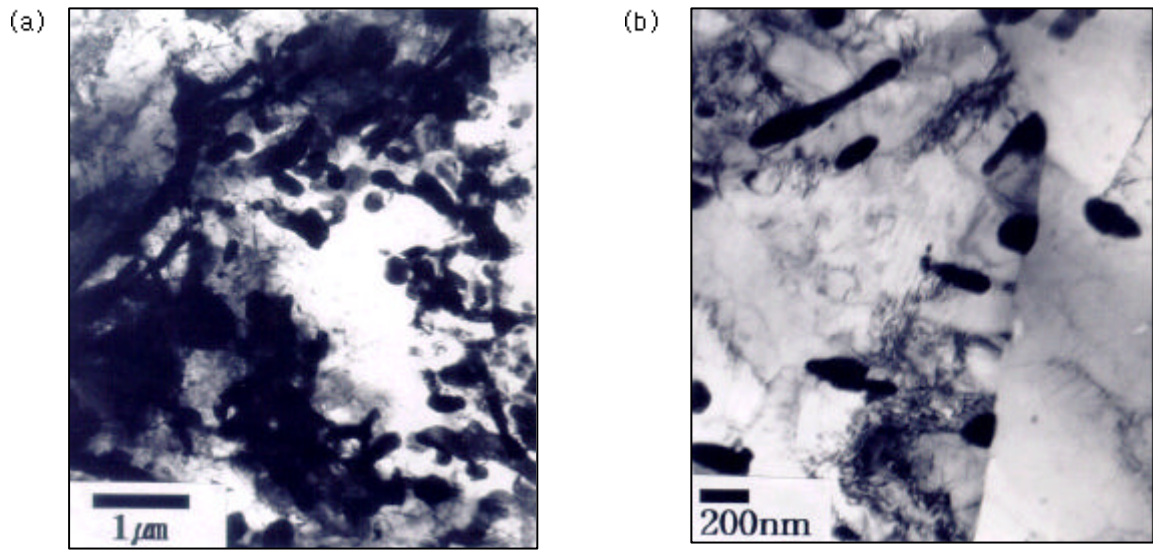


Fig. 2. TEM(thin film) micrographs of steel A(a) and B(b).

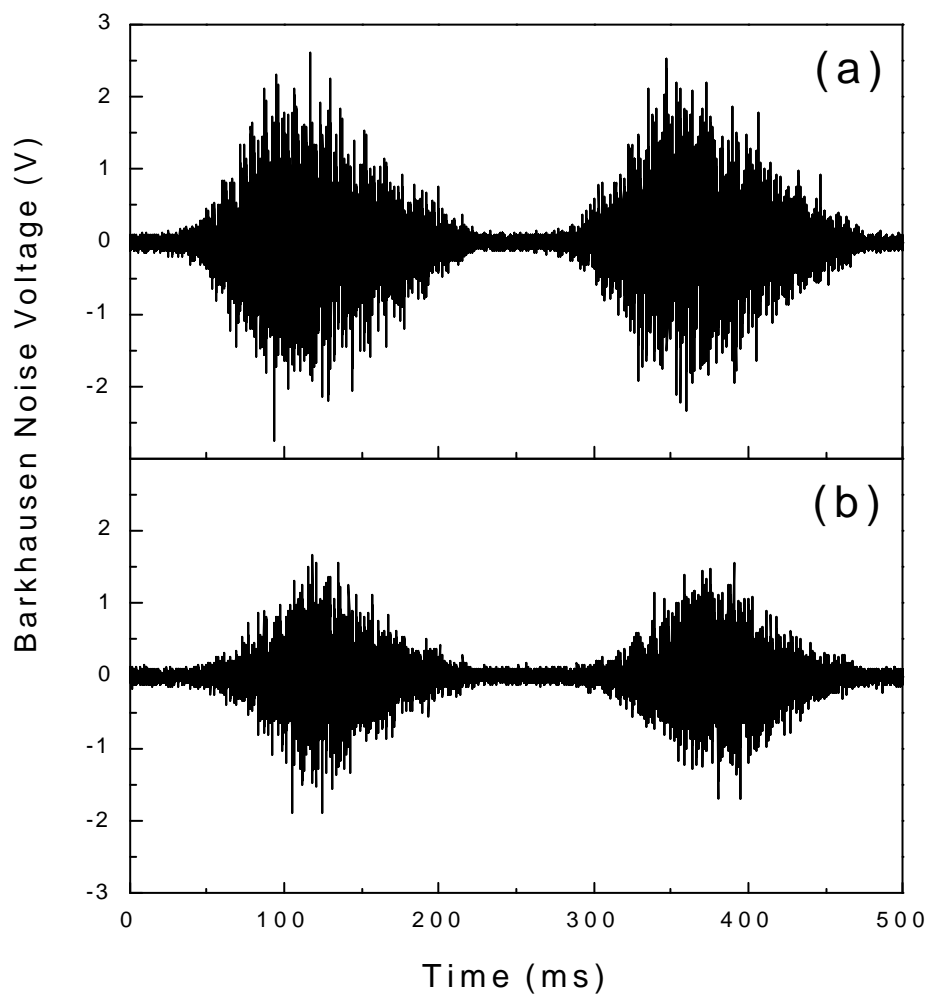


Fig. 3. Barkhausen noise signals of steel A(a) and B(b).

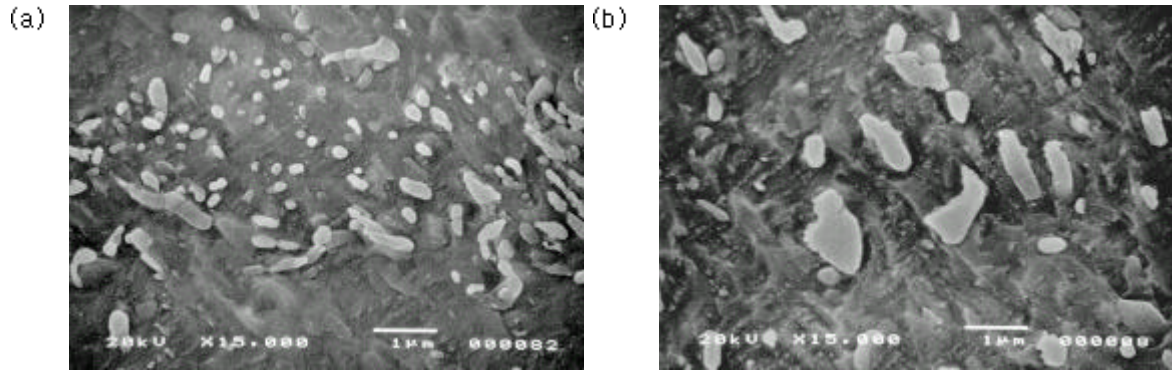


Fig 4. SEM micrographs of steel B. Carbide coarsening has occurred after the prolonged heat treatment at 650°C. (a) As-received (b) Heat treated at 650°C for 120hr.

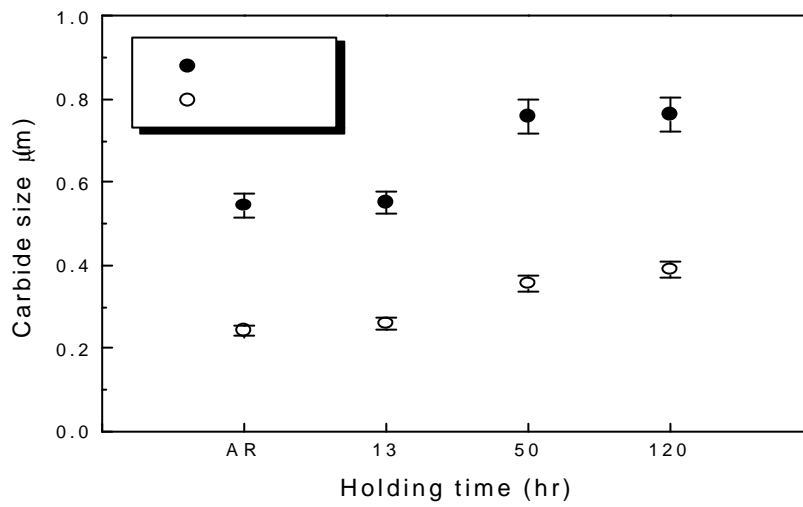


Fig 5. Variation in the carbide size of steel B with the holding time at 650°C

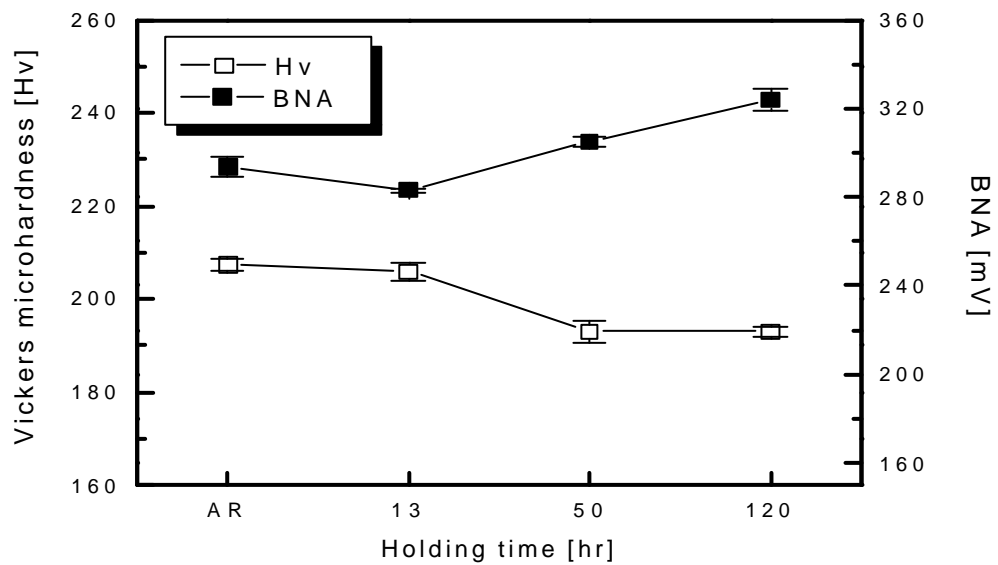


Fig 6. Variation in the BNA and Vickers microhardness with the holding time at 650°C heat treatment.



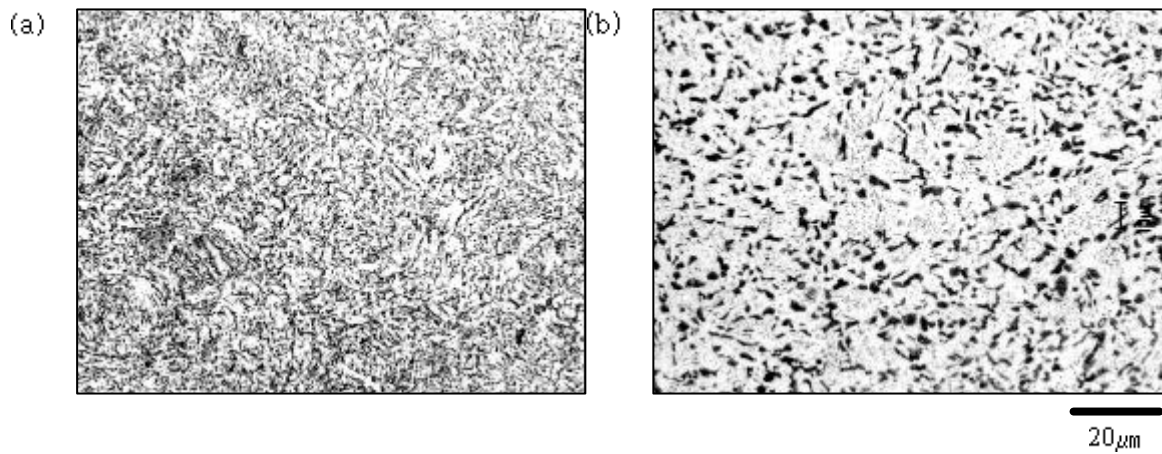


Fig. 7. Optical micrographs of steel B after the heat treatment at 690°C for 120hr.

It is seen that secondary phases(black) were evolved during the heat treatment along the primary austenite grain and lath boundaries. :

(a) As-received (b) Heat treated at 690°C for 120hr.

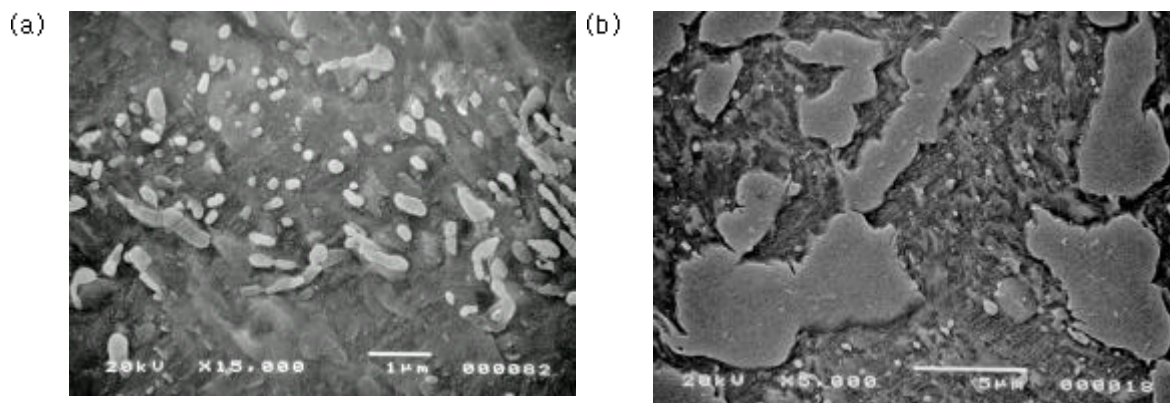


Fig. 8. SEM micrographs of steel B. Secondary phase has formed after the heat treatment at 690°C.

(a) As-received. (b) Heat treated at 690°C for 120hr.

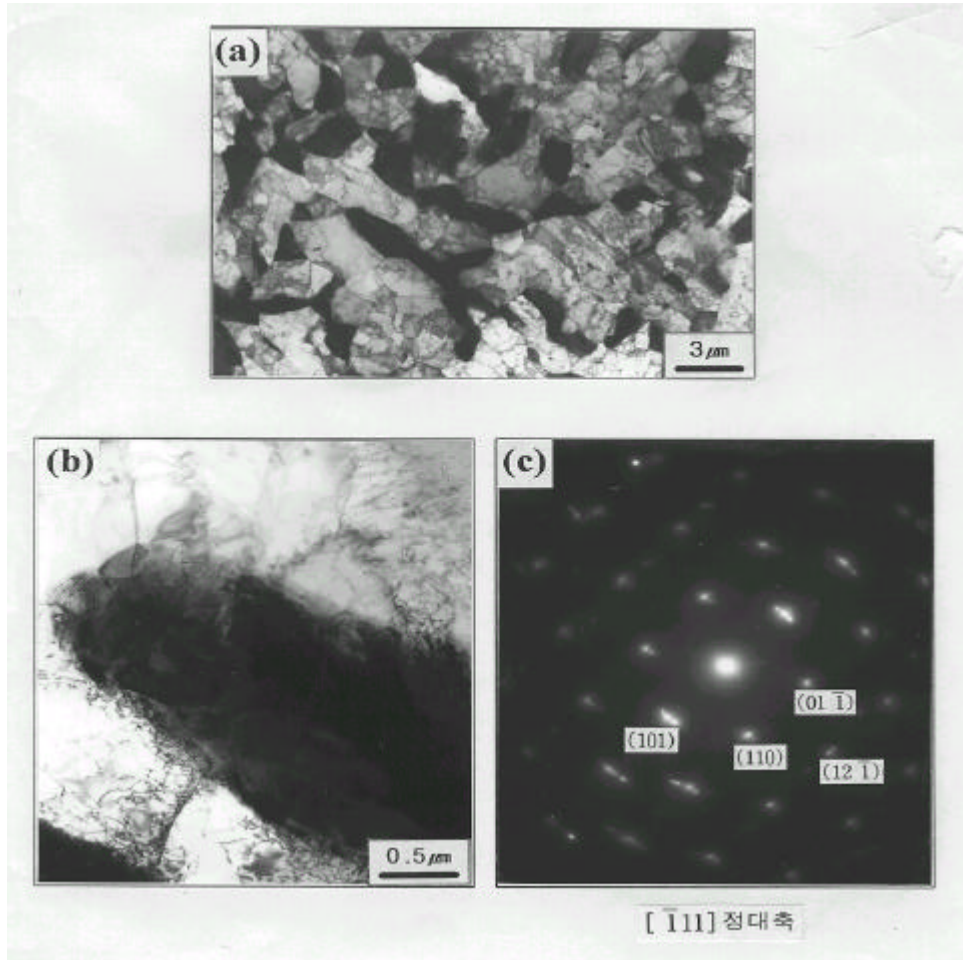


Fig. 9. TEM micrographs of secondary phase in grain boundaries.

(a),(b) Bright field image.

(c) Selected area diffraction pattern of (b).

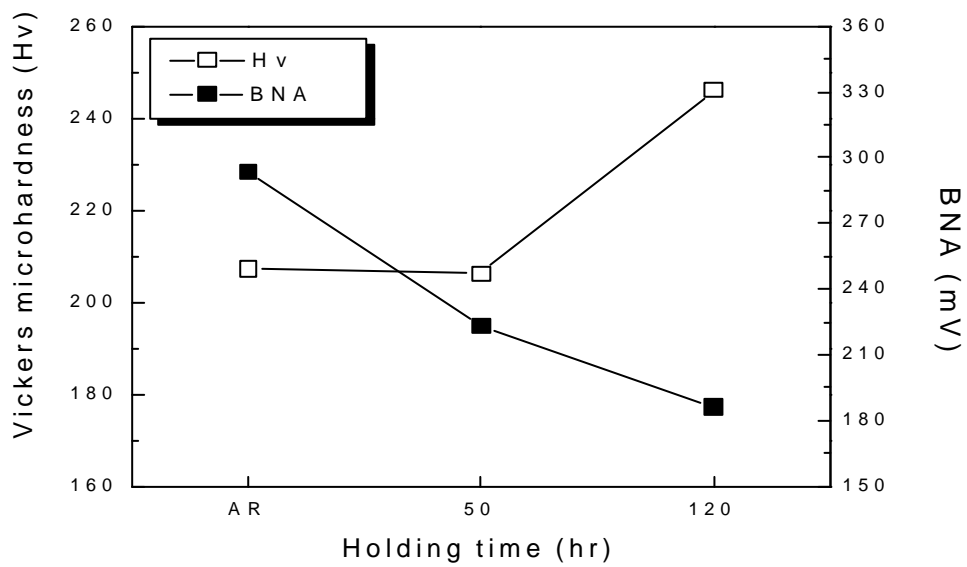


Fig. 10. Variation in the BNA and Vickers microhardness with holding time at 690°C heat treatment.