중성자 영상 분석을 활용한 고대 제철법 재현 사철강괴의 금속학적 특성 연구

A Study on the Metallurgical Characteristics for Sand Iron Ingot Reproduced by the Traditional Iron-making Method on Ancient Period under the Neutron Imaging Analysis

조성모¹, 김종열², Hirotaka Sato³, 김태주², 조남철^{1,*}

¹국립공주대학교 문화재보존과학과, ²한국원자력연구원 중성자과학연구부

³Faculty of Engineering, Hokkaido University

Sung Mo Cho¹, Jong Yul Kim², Hirotaka Sato³, TaeJoo Kim², Nam Chul Cho^{1,*}

¹Department of Cultural Heritage Conservation Science, Kongju National University, Gongju 32588, Korea

²Neutron Science Center, Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon 34057, Korea

³Faculty of Engineering, Hokkaido University, Sapporo 060-8628, Japan

Received October 20, 2019
Revised December 07, 2019
Accepted December 10, 2019

*Corresponding author
E-mail: nam1611@kongju.ac.kr
Phone: +82-41-850-8570

Journal of Conservation Science
2019;35(6):631-640

<https://doi.org/10.12654/JCS.2019.35.6.06>

pISSN: 1225-5459, eISSN: 2287-9781

© The Korean Society of
Conservation Science for Cultural
Heritage

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

초 록 본 연구는 전통제철법인 정련 및 단접을 적용한 사철강괴(SI)의 미세조직을 파괴분석법인 현미경분석과 비파괴분석법인 중성자 영상 분석을 통해 분석결과를 비교하였다. 시료는 전통제철법으로 생산한 사철강괴이며, 파괴분석용의 SI-A와 비파괴분석용의 9 cm²의 SI-B를 제작하였다. 파괴분석으로 금속현미경과 주사전자현미경이 이용되었으며, 비파괴분석으로 일본 홋카이도 대학의 소형 중성자원 이용시설을 통한 중성자 영상 분석을 이용하였다. 파괴분석결과 미세한 ferrite 및 pearlite가, 시료의 가장자리에서 Widmanstätten ferrite와 조대한 ferrite가 관찰되었다. 또한 비파괴분석법인 중성자 영상 분석 결과 체심입방격자 구조의 grain size가 3 μm 정도의 α-Fe 인 ferrite와 층상의 pearlite가 관찰되었다. 이렇듯 중성자 영상 분석을 이용하면 비파괴로 연구대상의 재료과학적 특성을 확인할 수 있고 문화재에 적용 시 최적의 연구결과를 얻을 수 있음을 확인하였다.

중심어 전통제철, 사철강괴, 중성자 영상 분석, 중성자, 펄스 중성자

ABSTRACT The purpose of this study was to compare analytical results of sand iron bars reproduced by the traditional iron-making method through a destructive analysis and a non-destructive analysis. For these studies, we produced two types of samples. One was sample(SI-A), a part of the sand iron bar for destructive analysis. The other was SI-B(9 cm²) for non-destructive analysis. A metallurgical microscope and scanning electron microscope were used for the destructive analysis, and neutron imaging analysis with the Hokkaido University Neutron Source (HUNS) at Hokkaido University, Japan, was used for the non-destructive analysis. The results obtained by destructive analysis showed that there was ferrite and pearlite of fine crystallite size, and some of these showed Widmanstätten ferrite microstructure grown within the pearlite and coarse ferrite at the edge of the specimen. The results from the neutron imaging analysis showed that there was also ferrite and pearlite with 3 μm α-Fe of BCC structure. Based on these results, neutron imaging analysis is capable of identifying material characteristics without destroying the object and obtaining optimal research results when applying it to objects of cultural heritage.

Key Words Traditional iron-making, Sand iron bar, Pulsed neutron imaging, Neutron, Pulsed neutron

1. 서론

고대 한반도 국가인 신라(新羅), 가야(伽耶), 백제(百濟)의 주요한 제철법은 직접제련법(直接製鍊法)으로 이를 통해 다양한 철물을 제작하였다. 직접제련법은 철광석 혹은 사철을 제련로에서 제련하여 괴련철을 생산하는 방식으로, 직접제련법으로 생산된 괴련철은 다량의 불순물이 존재하기 때문에 강도가 떨어져 철물로 사용이 불가능하다. 그러므로 괴련철 내부의 불순물을 제거하고 강도를 향상시키기 위해 정련과 단조 공정은 필수적이다. 이러한 공정을 거쳐 내부의 불순물이 제거되고, 공극이 줄어드는 강괴가 생산된다. 이처럼 직접제련법은 제련을 통해 괴련철을 생산하고, 다시 정련 및 단조공정을 통해 최종적인 강괴를 생산하는 고대 제련법의 한 종류이다.

직접제련법의 고대 제철법으로 생산된 강괴는 단조 공정으로 인해 다른 제련법에 비해 상당히 미세한 금속조직을 보인다. 또한 공정 과정에서 가공의 편리성과 접합의 용이성을 향상시키기 위해 강괴를 가열하게 되고, 단조공정에서 침탄이 진행된다. 이후 가열된 강괴는 공기 중에서 서서히 냉각되면서 금속조직은 일반적으로 페라이트(ferrite)와 시멘타이트(cementite)가 층상을 이루는 펄라이트(pearlite)를 형성하게 된다.

이러한 금속조직은 일반적으로 금속현미경과 주사전자현미경(Scanning electron microscope, SEM) 분석을 통해 확인이 가능하며, 직접제련법으로 제작된 강괴는 상당히 미세한 펄라이트(pearlite) 조직을 가지고 있는 것을 확인할 수 있다. 하지만 금속현미경과 SEM을 이용한 분석 방법은 2가지의 단점을 가지고 있다. 첫 번째 단점은 분석을 위해 시료의 절단, 연마와 같은 전처리가 필수적이다. 일반적으로 작은 시료와 매끄러운 유리면만 분석이 가능하기 때문에 시료의 원형보존이 힘들다. 그러므로 이러한 방식은 문화재에 적용하기 위해서는 고려해볼 것이 많다. 두 번째 단점은 시료 모든 영역의 분석이 쉽지 않다. 금속현미경과 SEM 분석법은 시료를 1,000배(금속현미경) 혹은 수십만 배(SEM)까지 확대해서 관찰하기 때문에 한 번에 관찰 가능한 영역은 1 mm가 되지 않는다. 그러므로 금속현미경과 SEM으로 관찰한 일부분으로 시료의 모든 영역을 유추해야 한다. 이럴 경우, 모든 영역의 특성이 왜곡되는 현상이 발생할 수도 있다.

그러므로 본 연구에서는 비파괴적으로 시료의 모든 영역에 대한 분석이 가능한 중성자 영상 분석을 활용하였다. 직접제련법으로 사철강괴를 제작하고, 제작된 사철강괴 일부 특성이 아닌 모든 영역에 대한 금속학적 특성을 중성자 영상 분석으로 도출하고자 하였다. 그리고 일반적

인 금속특성 분석에 활용하는 금속현미경 혹은 SEM 기법으로 분석한 결과와 중성자 영상 분석 결과를 비교하여 중성자 영상 분석의 유효성을 검증하고, 최종적으로 비파괴 중성자 영상 분석을 문화재 적용 가능성을 확인하였다.

2. 중성자 영상 분석 기법 활용 사례

중성자를 활용한 대표적인 국내 연구 사례는 2003년에 과학기술부(現 과학기술정보통신부)의 원자력연구개발 사업으로 수행한 ‘중성자 레디오그래피를 이용한 유물 분석기술 개발’을 통해 국내에서 문화재에 적용한 연구가 시작되었다. 당시 연구는 매장 금속문화재의 성분 분석 및 내부구조 영상화를 위한 비파괴 조사방법에 관한 연구로써, 중성자 방사화 분석과 중성자 영상 분석을 활용하였다. 연구에 사용된 시료는 충남 천안시의 용원리 고분군의 석곽묘 및 토광묘에서 출토된 철제 환두대도, 창 및 철모 및 철부 등을 대상으로 하였다(Ministry of Science and Technology, 2004). 해당 연구에서는 중성자 방사화 분석으로 매장 금속문화재의 성분 분석을 수행하였지만, 당시 국내 기술의 미비로 인하여 중성자 영상 분석으로는 단순히 유물 내부만 관찰하였다.

중성자 영상 분석은 국내보다는 해외에서 활발하게 활용되고 있으며, 많은 사례를 확인할 수 있다. 특히 최근 지역에 따른 일본도의 제작 기법 분석을 위해 중성자 영상 분석을 사용되었다. 그 중에서도 일본 홋카이도(Hokkaido) 대학의 Nagashima 교수는 홋카이도 대학의 소형 중성자원 이용시설인 HUNS (Hokkaido University Neutron Source)와 중성자 영상 분석법을 이용하여 2점의 일본도를 분석하였다(Nagashima et al., 2014). 해당 논문에서는 중성자 영상, 특히 같은 물질이라도 파장에 따라 다른 중성자 투과 특성(Bragg-edge)을 활용하여 시료별, 시료의 위치에 따른 결정성 이방성(crystallographic anisotropy)과 결정의 크기(crystallite size)를 관찰하였다. 중성자 영상 분석결과, 각 분석된 시료마다 결정의 크기가 다르며, 비록 같은 시료라도 위치에 따라(칼의 칼날부분과 칼등부분) 결정크기도 다르다는 것을 역시 확인하였다. 또한 이 결과를 토대로 제작 기법이 다른 2점의 일본도에 대한 결정학적 특성을 확인하고, 제작 기법에 따라 그 특성이 서로 다르다는 것을 도출하였다. 더불어 원자로에 비해 중성자 속도가 낮은 가속기 기반 소형 중성자 이용 시설도 문화재 분석에 활용 가능하다는 것을 확인하였다(Nagashima et al., 2014).

이외에도 중성자를 이용한 다양한 연구논문이 존재하며, 특히 문화재에 적용한 사례가 많다. 이처럼 해외에서

는 중성자를 이용해 문화재 분석을 활발히 실시하고 있으며, 또한 비파괴적으로 연구자가 원하는 결과를 얻을 수 있다는 것을 확인하였다.

3. 전통제철법(직접제련법) 재현실험

중성자 영상 분석에 사용된 사철강괴는 2018년에 진행된 고대 전통제철법의 재현실험을 통해 생산되었으며, 사철강괴의 제작 방법은 다음과 같다(Cho, 2015; Cho *et al.*, 2018b; Oh *et al.*, 2018).

제련로를 제작하여 괴련철을 생산하였다. 제련로는 고대 제철유적 및 고문헌을 기반으로 설계하였다. 한반도에서 발견된 제련로의 대부분은 원형으로 이루어져 있고, 일부 제련로에서 장방형이나 세장방형이 확인되었다. 특히 원형로의 경우 직경 115 cm에서 150 cm 정도의 크기이며 일부는 배재구가 공반된 구조였다. 이를 토대로 3단의 원형 제련로를 설계하였으며, 사용된 재료는 황토(黃土), 백토(白土), 석회석(石灰石)을 사용하였다. 또한 제련로의 하단에는 슬래그를 배출하기 위한 직경 7 cm의 구멍을 만들었다(Cho *et al.*, 2018a).

제련을 위해 소나무 목탄과 경주 사철을 이용하였다. 목탄 20 kg를 제련로에 넣고 연소시켜 제련로를 완전 건조시켰다. 사철 1 kg와 목탄 2.5 kg를 제련로에 투입하고, 하단의 배출구를 통해 슬래그를 주기적으로 배출하였다. 이 때 사철과 목탄은 10분 간격으로 반복하여 총 170 kg의 사철을 장입하였다. 제련을 위한 조제제는 첨가하지 않았고, 하단의 송풍구를 통해 기계송풍을 실시하였다. 제련작업이 완료된 후 최종적으로 Figure 1a처럼 22 kg의 괴련철을 생산하였다. 제련공정은 총 17시간 동안 진행되

었으며, 제련을 위한 노의 작업온도는 1,200℃로 확인되었다(Cho *et al.*, 2018b).

생산된 괴련철에 정련공정 및 단접공정을 진행하였다. 단야로에 소나무 목탄을 투입하고, 1,200℃로 상승시켰다. 이 후 Figure 1b처럼 괴련철을 단야로에 넣고 가열시켜 정련공정 및 단접공정을 실시하였다. 가열된 괴련철 내부에서 불순물이 석출되면 모루 위에서 단조를 하여 직사각형 강괴로 만들었다. 이때 사철강괴를 쉽게 접기 위해 Figure 1c와 같이 중앙을 도끼로 먼저 접기 용이하도록 홈을 낸 후 Figure 1d와 같이 강괴를 접어 단조를 하였다. 단조된 사철강괴는 침탄을 위해 숯가루와 벚짚을 1:1의 비율로 혼합하여 Figure 1e와 같이 표면에 고루 묻혀주었다. 또한 재가열시 탈탄을 방지하기 위해 숯가루를 묻힌 사철강괴에 황토물(황토 1.6 kg와 물 10.52 kg)을 Figure 1f와 같이 표면에 도포하였다. 숯가루와 황토물을 바른 강괴는 Figure 1g와 같이 다시 단야로에 넣어 가열하고, 3분에서 10분 간격으로 사철강괴를 꺼내어 단접을 시행하였다. 숯가루와 황토물을 바르는 과정 및 재가열, 단접공정은 10회 이상 반복하여 정련공정 및 단접공정을 진행하였다. 정련공정 및 단접공정이 마무리되면 최종적으로 Figure 1h에 보이는 사철강괴가 생산된다(Cho, 2015; Oh *et al.*, 2018)(Figure 1).

4. 연구용 원자로(HANARO) 및 가속기 기반 소형 중성자 이용시설(HUNS)

연구용 원자로 하나로는 국내에서 중성자 영상 분석이 가능한 유일한 중성자 이용시설이다. 연구용 원자로로는 핵분열시 발생하는 높은 에너지의 고속중성자를 열중성자

Figure 1. Refining and forge welding process. (a) The bloom after smelting, (b) Heating smithery hearth till 1,200℃, (c) Folding the bar in half, (d) Forge welding the bar, (e) Applying charcoal powder over the bar, (f) Coating the bar with loess, (g) Reheating forge welded bar, (h) Finished bar at every stage of the refining and forge welding(Oh *et al.*, 2018).

또는 냉중성자로 감속시켜 사용하는 중성자 이용시설로서 $10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 의 높은 중성자속을 이용할 수 있다는 장점이 있다. 하나로의 중성자 투과비파괴검사장치(Neutron radiography facility, NRF)를 이용하여 제작된 사철강괴의 미세조직을 분석하려고 하였으나 장기간 계획 정지로 인해 HUNS에서 중성자 영상 분석을 수행하였다. HUNS의 중성자 영상 장치 세부명칭은 Figure 2a와 같으며 전자가속기를 이용하여 펄스 중성자를 발생시키는 원리는 Figure 2b와 같다(Figure 2). HUNS는 1.5 kW 전자가속기에 의해 29.7 MeV로 가속된 전자가 Pb target에 부딪히면서 초당 2×10^{12} 개의 중성자가 생성된다. 중성자 영상 분석용 열중성자는 Pb target에서 발생된 고 에너지의 고속중성자를 폴리에틸렌(polyethylene)으로 감속시켜 사용한다(Figure 2).

HUNS에서는 발생된 펄스 중성자를 중성자 영상 분석을 위해 Gas electron multiplier (GEM) 중성자 영상 검출기를 사용하였다. GEM 중성자 영상 검출기는 128(가로) $\times$ 128(세로)개의 픽셀들로 이루어져 있으며 한 픽셀의 크기는 800 μm 이다. 검출 가능한 영역은 10.24 cm $\times$ 10.24 cm 이다. GEM 중성자 영상 검출기는 각 픽셀별로 중성자가 들어오는 개수와 도착 시간을 측정할 수 있다. 각 픽셀별

로 중성자가 검출기에 들어오는 도착 시간을 측정하여 중성자의 속도 또는 파장별로 중성자 투과 스펙트럼을 측정할 수 있다.

5. 연구대상 및 방법

5.1. 연구대상

연구 대상은 Figure 1의 전통 제철법으로 생산된 사철강괴이며, 3절에서 설명한 방법으로 생산된 사철강괴의 길이는 Figure 3a에서 볼 수 있듯이 약 10 cm이다(Figure 3). 중성자 영상 분석을 위해 Water-jet을 이용하여 사철강괴를 Figure 3b처럼 9 cm²의 정사각형 모양(3 cm $\times$ 3 cm)으로 절단하여 1개의 시료(SI-B)를 제작하였다. 정사각형 모양으로 절단한 이유는 중성자 영상 분석에 사용된 원자료가 가속기 기반 소형 중성자 이용시설이기 때문이다(Table 1, Figures 1 and 3).

마지막으로 중성자 영상 분석 결과와 비교하기 위해 동일 사철강괴에서 금속현미경과 SEM 분석용 시료 1개(SI-A)를 제작하였다(Table 1).

Figure 2. Images of Hokkaido University Neutron Source (HUNS). (a) The photo of the HUNS, (b) The principal of generating pulse neutrons(Sato *et al*, 2018).

Figure 3. Images of Sand iron. (a) Sand iron bar reproduced by traditional-making method, (b) Sand iron cut by water-jet for neutron imaging analysis.

Table 1. Samples conditions according to analysis method

	Sample	Method of analysis
Destructive analysis	SI-A	Metallurgical microscope, SEM
Non-destructive analysis	SI-B	Neutron imaging analysis

5.2. 연구방법

5.2.1. 미세조직 관찰

전통 제철법으로 생산된 사철강괴의 미세조직을 금속현미경(DM-2500M, Leica, DEU)과 주사전자현미경(MIRA3, TESCAN, CZE) 분석법으로 관찰하였다. 이를 위해 사철강괴에서 시료(SI-A)를 준비하고, Epoxy resin과 Epoxy hardener (25 g : 3 g)을 이용하여 전처리를 하였다. 시료 위치별로 경향성을 확인하기 위해 Figure 4a와 5a와 같이 대표지점을 선택하고 미세조직을 관찰하였다. 미세조직 관찰에 사용된 분석기기는 금속현미경, 주사전자현미경을 이용하였다. 마운팅이 된 시료를 먼저 에칭하여 부식시킨 다음 금속현미경을 이용하여 미세조직을 관찰하였다. 이 후 시료의 전도도를 높이기 위해 백금(Pt)으로 코팅을 한 후 금속현미경보다 높은 배율의 주사전자현미경을 이용하여 세부적인 미세조직을 관찰하였다.

5.2.2. 중성자 영상 분석

중성자 영상은 비파괴검사에 일반적으로 활용되는 X-선 영상과 비슷한 원리로, 물질마다 서로 다른 중성자 투과율을 이용하는 것이다. 그 중에서도 같은 물질이라도 중성자 투과율은 중성자의 파장별로 다르며, 사철강괴의 경우 Bragg 산란에 의해 특정 파장에서 중성자 투과계수가 급격히 변하는 Bragg edge 현상을 관찰할 수 있다. 사철강괴의 중성자 투과 스펙트럼 분석을 통해 시료 내부의 상 분포와 결정 크기 등의 영상화 및 정량화가 가능하다. 사철강괴의 상분포는 Single Bragg edge profile 분석을 통해 측정하였으며 결정 크기는 Full pattern rietveld fitting 분석을 통해 측정하였다(Sato *et al.*, 2011; 2015). 모든 분석은 SI-B의 전체적인 부분에서 중성자 영상 분석이 이루어졌다.

Figure 4. Metallurgical microscope photos of SI-A. (a) A metallurgical microscope scale($\times 5$), (b, c) A metallurgical microscope scale($\times 20$).

6. 연구결과

6.1. 미세조직 관찰

6.1.1. SI-A

SI-A의 미세조직은 금속현미경과 주사전자현미경 결과에서 확인할 수 있다(Figure 4, 5). SI-A는 탄소함량의 차이로 인하여 다수의 층이 관찰되었다. Figure 4를 통해 가열된 사철강괴가 서서히 냉각되면서 체심입방격자(body-centered cubic, BCC) 구조인 페라이트(ferrite)와 층상구조(lamella structure)의 펄라이트(pearlite)가 관찰되었다. 또한 Figure 4b를 통해 일부 SI-A의 가장자리에서 펄라이트(pearlite) 내부로 성장한 비드만스테텐 페라이트(Widmanstätten ferrite) 조직이 관찰되었다. 또한 가장자리가 탈탄이 이루어져 내부의 미세조직보다 밝은 조직이 있다는 것을 관찰하였다. 마지막으로 SI-A의 grain size가 단조로 인하여 미세하다는 것을 확인하였으나, 정확한 수치로 계산하여 객관화를 할 수는 없었다(Figure 4).

금속현미경을 통해 관찰한 SI-A를 다시 SEM을 통하여 고배율로 세부적인 미세조직을 관찰하였다. 주사전자현미경(SEM)을 통해 관찰한 결과 전체적으로 페라이트(ferrite)와 층상의 펄라이트(pearlite)의 형태로 관찰되었다. 일부 Figure 5b와 같은 가장자리 부분에서는 조대한 페라이트(ferrite)가 관찰되었다(Figure 5).

6.2. 중성자 영상 분석(Pulsed Neutron Imaging)

6.2.1. 파장별 중성자 영상 및 스펙트럼

SI-B의 중성자 파장별($\lambda = 1 \sim 8 \text{ \AA}$) 영상을 획득하였으며 모든 중성자 파장별 영상이 합쳐진 일반적인 중성자 투과 영상을 확인한 결과 같은 물질에 같은 두께이기 때문에 그림 Figure 6과 같이 동일한 중성자 투과도가 나오고 있다(Figure 6).

중성자 투과 스펙트럼은 중성자 영상의 특정 픽셀 또는 영역의 값을 파장별로 나타내며 아래의 Figure 7과 같이 구할 수 있다. 제작된 사철강괴의 중성자 투과 스펙트럼을 BCC 구조를 가지는 Figure 7의 α -Fe의 스펙트럼과 비교했을 때 동일한 x축(neutron wavelength)에서 비슷한 경향성을 보이고 있는 것을 확인하였다(Figure 7). 다만 y축(neutron transmission)에서 높낮이 차이가 있는데 이는 표준시료의 두께가 SI-B보다 얇아 SI-B보다 중성자가 더 많이 투과되었기 때문이다. 종합하면 SI-B는 BCC 구조의 페라이트(ferrite)로 확인하였다.

SI-B는 동일한 두께의 순수한 철이기 때문에 중성자 파장별 영상을 통해 동일함을 확인하였으며, 동시에 내부의 공극이나 결함이 없음을 확인하였다. 또한 생산된 강괴에서 BCC 구조의 α -Fe인 페라이트(ferrite)와 펄라이트(pearlite)를 확인하였다.

Figure 5. SEM photos of SI-A. (a) Picture of metallurgical microscope, (b, c, d) SEM images for position of Figure 5a.

Figure 6. Neutron image of SI-B.

Figure 7. The neutron transmission with wavelength-specific spectrum of SI-B and α -Fe.

6.2.2. SI-B 상 분포 영상

중성자 투과 스펙트럼은 중성자 투과 영상의 모든 픽셀의 개별로 획득이 가능하다. 제작된 사철강괴의 결정학적 상(phase) 분석은 중성자 파장 4 Å 주위에서 발생하는 Single Bragg edge profile 분석을 통해 가능하다. BCC 구조에서 나타나는 Bragg edge의 위치는 Bragg 조건에 의해 $\lambda = 2d_{110}$ 에서 나타나며 체심정방격자(body-centered tetragonal, BCT) 구조 또는 면심입방격자(face-centered cubic, FCC) 구조로 변태가 일어나면 이동하게 된다. Bragg edge 위치 평균값(d_{110})을 각 픽셀별로 측정하여 아래 Figure 8a와 같이 영상화 하였다. BCC 구조의 Bragg edge 위치 평균값(d_{110})은 보통 2.02 Å에서 2.03 Å 사이로 관찰된다. 이를 토대로 제작된 사철강괴를 살펴본 결과, 전반적으로 2.02 Å에서 2.03 Å 사이로 관찰되며 SI-B의 가장자리 부분에서 일부 2.05 Å 혹은 2.00 Å 같이 확인되었다(Figure 8).

사철강괴에서 상 변태가 일어나면 중성자 투과 스펙트럼에서 Bragg edge의 위치 이동과 더불어 Bragg edge의 폭이 넓어지게 된다. Bragg edge 반가폭(Full width half maximum, FWHM)을 각 픽셀별로 측정하여 아래 Figure 8b와 같이 영상화 하였다. SI-B의 Bragg edge 반가폭은 0.00 Å~0.02 Å사이로 BCC 구조의 Bragg edge 반가폭과 일치하는 것을 확인하였다(Figure 8).

따라서 고대 전통제철법을 통해 생산된 SI-B는 일부 가장자리를 제외하고 전반적으로는 BCC 구조의 Bragg edge 위치 평균값(d_{110})과 유사하여 BCC 구조임을 확인하였다. 또한 Bragg edge 반가폭을 확인하여도 BCC 구조가 가지는 반가폭인 0.00 Å에서 0.02 Å사이로 동일하다는 것을 확인하였다.

Figure 8. This is the average of the measured values of each pixel at the Bragg edge of SI-B and the values measured for each pixel by FWHM. (a) This is the average of the measured values of each pixel at the Bragg edge of SI-B, (b) The values measured for each pixel by FWHM of SI-B.

6.2.3. SI-B의 grain size 관찰

SI-B의 중성자 투과 스펙트럼에서 모든 영역($\lambda = 1 \sim 8 \text{ \AA}$)을 이용하는 Full pattern rietveld fitting 분석을 통해 한 픽셀 크기인 $800 \mu\text{m}^2$ 영역에서 SI-B의 평균 grain size를 획득하였으며 128개의 픽셀들로 아래 Figure 9와 같이 영상화 하였다. 제작된 SI-B의 평균 grain size는 대략적으로 $3 \mu\text{m}$ 정도로 확인되었다. 또한 SI-B의 가장자리의 일부에서 평균 grain size보다 상대적으로 크거나 작은 것도 관찰되었으나, 해당 SI-B의 전반적인 grain size는 상당히 미세하다는 것을 확인하였다(Figure 9).

해당 SI-B의 grain size가 대략 $3 \mu\text{m}$ 정도의 미세한 크기라는 것을 Full pattern rietveld fitting 분석으로 확인하였으며, 이는 제작공정에서 시행되는 망치로 인한 단조작업 때문으로 판단하였다.

Figure 9. SI-B grain size per pixel by full pattern rietveld fitting analysis.

7. 고찰 및 결론

본 연구의 목적은 고대 전통제철법을 통해 생산된 사철강괴의 금속학적 특성을 알아보고자 파괴분석 방법과 비파괴분석 방법을 사용하여 분석하여 비교하였다. 이를 통해 중성자 영상 분석이 시료의 비파괴분석에 활용할 수 있음을 확인함과 동시에 문화재에도 적용 가능하다는 것을 확인하고자 하는 것이다.

파괴분석법으로는 현미경관찰을 이용하였고, 비파괴 분석법으로 중성자 영상 분석을 이용하였다. 먼저 파괴분석법인 금속현미경과 SEM을 이용해 관찰한 결과 SI-A에서 미세한 grain size의 페라이트(ferrite)와 층상구조(lamella structure)의 펄라이트(pearlite)가 전체적으로 확인되었다.

또한 시료의 가장자리에서 일부 펄라이트(pearlite) 내부로 성장한 과열냉각조직인 비드만스테텐 페라이트(Widmanstätten ferrite)가 관찰되었다. 그리고 일부 가장자리의 금속조직이 내부조직보다 밝게 관찰되었는데, 이는 밝은 부분에서 탈탄이 이루어졌기 때문으로 보인다. 미세한 금속조직이 관찰된 이유는 망치를 이용한 많은 단조가 이루어졌기 때문이었다. 하지만 육안조사를 통해 미세하다는 것을 확인하였을 뿐 이를 수치로 객관화할 수는 없었다.

파괴분석법인 금속현미경과 SEM 분석을 통해 확인된 결과를 비파괴분석 결과와 비교하기 위해 중성자 영상 분석을 일본 홋카이도 대학의 중성자 영상 분석 시설인 HUNS를 이용하여 분석하였다. 중성자 영상 분석 결과 SI-B의 중성자 투과 스펙트럼은 BCC 구조의 표준 α -Fe인 페라이트(ferrite)의 스펙트럼과 비슷한 양상을 보였다. 또한 SI-B의 결정학적 상(phase) 분석을 위해 중성자 파장 $4 \text{ \AA}$ 주위에서 발생하는 Single Bragg edge profile 분석을 이용하였다. 이를 통해 일부 가장자리를 제외하고 전반적으로는 BCC 구조의 Bragg edge 위치 평균값(d_{110})과 유사하여 BCC 구조임을 확인하였다. 또한 Bragg edge 반가폭 역시 BCC 구조가 가지는 반가폭인 $0.00 \text{ \AA}$ 에서 $0.02 \text{ \AA}$ 사이로 동일하다는 것을 확인하였다. 마지막으로 Full pattern rietveld fitting 분석으로 grain size를 확인한 결과 대략적으로 $3 \mu\text{m}$ 정도로 관찰되었다.

같은 시료에 대해 파괴분석법과 비파괴분석법을 비교한 결과 동일한 분석값을 확인하였다. 더 나아가 비파괴 분석 방법인 중성자 영상 분석을 이용한다면 금속조직과 결정구조 혹은 grain size에 대하여 수치화된 객관적인 지표 획득과 더불어 시각적으로 쉽게 식별이 가능한 분석결과를 얻을 수 있다는 것을 확인하였다.

이를 통해 완전한 비파괴 분석 방법인 중성자 영상 분석을 이용한다면 문화재에서 별도의 시료를 획득할 필요가 없어 원형의 훼손없이 분석결과를 도출할 수 있다는 것을 확인하였다. 이를 통해 분석하기 어려운 문화재에 대한 다양한 재료과학적 특성과 제작기법에 대한 해법을 제시할 수 있을 것으로 생각된다.

하지만 중성자 영상 분석은 문화재에 중성자를 조사하는 분석방법이므로 시료의 방사화가 될 수 있다는 의구심과 중성자 조사로 인한 재질의 열화 혹은 손상 등이 야기될 수 있다는 의구심이 존재하고 있다. 먼저 첫 번째 의구심인 시료 방사화의 경우 외국의 문화재 분석 사례에서 보면 시간이 지날수록 방사능이 점차 떨어져 인체에 유해할 만큼 잔존하지 않다는 것을 확인할 수 있다. 또한 두 번째 의구심 역시 해외 문화재 분석 사례를 통해 재질별 형상변화가 없다는 것을 확인하였다. 특히 중성자를 이용

Figure 10. destructive analysis method(metallurgical microscope and SEM analysis) and non-destructive analysis method(neutron imaging analysis) results of the SI. (a) Picture of metallurgical microscope, (b) Picture of neutron transmission, (c) Wavelength-specific spectrum of neutron transmission, (d) Picture of average value of d_{110} spacing distribution, (e) Picture of FWHM of d_{110} spacing distribution, (f) Picture of crystallite size.

한 혼증도 이루어진다는 것도 이를 증명할 수 있다. 그러나 중성자 조사로 인한 문화재의 재질별 형상변화 및 방사능 수치 변화에 대한 추가적인 연구를 통해 정량적인 데이터 획득 및 정리가 필요할 것으로 판단된다.

또한 일본 홋카이도 대학의 HUNS는 가속기 기반 소형 중성자 이용시설이기 때문에 해상도 면에서 분해능이 약간은 떨어진다는 것을 확인할 수 있다. 이로 인해 Mapping 해석에서 미세조직을 더 세분화하여 확인하는 것은 어려웠다. 이 부분은 검출기의 픽셀수 및 크기와 관련이 깊은데 이는 픽셀수를 지금보다 더욱 늘려 분석할 필요가 있다. 따라서 픽셀수를 개량하거나 픽셀의 크기를 지금보다 작게 만드는 방법을 추가적으로 연구해야 할 것으로 보인다. 하지만 HUNS의 경우 가속기 기반 소형 중성자 이용시설이기 때문에 보다 대형시설이며 연구용 원자로인 대한민국의 ‘하나로(HANARO)’를 통한 분석을 통해 더 좋은 분해능을 확인할 수 있을 것으로 보인다.

사 사

이 논문은 2019년도 정부(정보통신과학기술부)의 재원으로 한국연구재단 전통문화융합연구사업의 지원을 받아 수행된 연구임(No. NRF-2016M3C1B5906955).

REFERENCES

- Cho, H.K., 2015, Manufacturing technology of iron swords in the Midwestern Korea from 2nd to 6th century AD. Ph.D. dissertation, Kongju University, Gongju. (in Korean with English abstract)
- Cho, S.M., Cho, H.K., Gwon, I.C. and Cho, N.C., 2018a, Material characteristic of slags and iron bloom produced by smelting process using sand iron. Journal of Conservation Science, 34(1), 39-50. (in Korean with English abstract)
- Cho, S.M., Cho, N.C. and Han, J.U., 2018b, A comparative study on the metallurgical characteristics of the iron knife using traditional iron-making method. Journal of Conservation Science, 34(5), 433-441. (in Korean with English abstract)
- Ministry of Science and Technology, 2004, Research on archeologic relics using neutron radiography. (in Korean with English abstract).
- Nagashima, S., Shiota, Y., Sato, H., Kamiyama, T., Ohnuma, M. and Kiyanagi, Y., 2014, Imaging of crystalline structural information of Japanese swords by pulsed neutron transmission spectroscopy. Physics Procedia, 60, 327-331.
- Oh, M.J., Cho, H.K., Cho, N.C. and Han, K.U., 2018, Material characteristics of forge welded bar and by-product through reproduction experiment to the refining and forge welding process. Journal of Conservation

- Science, 34(2), 87-96. (in Korean with English abstract)
- Sato, H., Kamiyama, T. and Kiyanagi, Y., 2011, A rietveld-type analysis code for pulsed neutron Bragg-edge transmission imaging and quantitative evaluation of texture and microstructure of a welded α -iron plate. Materials Transactions, 52(6), 1294-1302.
- Sato, H., Sato, T., Shiota, Y., Kamiyama, T., Tremsin, A.S., Ohnuma, M. and Kiyanagi, Y., 2015, Relation between Vickers hardness and Bragg-edge broadening in quenched steel rods observed by pulsed neutron transmission imaging. Materials Transactions, 56(8), 1147-1152.
- Sato, H., Sasaki, T., Moriya, T., Ishikawa, H., Kamiyama, T. and Furusaka, M., 2018, High wavelength-resolution Bragg-edge/dip transmission imaging instrument with a supermirror guide-tube coupled to a decoupled thermal-neutron moderator at Hokkaido University Neutron Source. Physica B: Condensed Matter, 551(15), 452-459.