

국내 원전 감시시험결과를 이용한 원자로압력용기재료의 중성자 조사취화 평가 방법 비교

Comparison of Methods for the Prediction of Neutron Irradiation Embrittlement of RPV Steels Through the Domestic Surveillance Test Results

김석훈, 박운원, 이진호

한국원자력안전기술원
대전광역시 유성구 구성동 19번지

요 약

원자로압력용기는 가동중 고속중성자에 의해 재료의 파괴저항성이 감소하게 된다. 가동중 원자로의 건전성을 평가하고 설계수명동안 원자로의 안전성을 확보하기 위해서는 중성자 조사에 의한 원자로 압력용기재료의 취화정도를 정확히 평가 예측할 수 있어야 한다. 최근 미국에서는 광범위한 감시시험데이터를 기초로 하여, 중성자 조사에 따른 기존무연성천이온도의 변화를 예측할 수 있는 방안을 제시한 ASTM E900-98(Draft)이 개발되었다. 본 논문에서는 기존의 조사취화 예측방법인 USNRC RG 1.99 Rev. 2와 ASTM E900-98(Draft)를 비교 분석하였으며, 국내 원자로 압력용기재료의 감시시험결과를 두 방법에 적용하여 분석하였다.

Abstract

As a nuclear power plant operates, the fracture resistance of reactor pressure vessel is reduced due to fast-neutron irradiation. In order to evaluate and ensure the structural integrity of RPV during its design life, the extent of embrittlement due to neutron irradiation must be evaluated and predicted exactly. Recently, in U.S.A, the new ASTM E900-98(Draft) was developed, based on the accumulated database of irradiated RPV material during last two decades. In this study, the two methods for the prediction of neutron radiation damage to RPV - the new ASTM E900-98(Draft) and the currently used USNRC RG 1.99 Rev. 2 - are compared using domestic surveillance data.

1. 서 론

원자로압력용기는 발전소 가동중 고속중성자($E > 1\text{MeV}$)에 조사되어 열화된다. 중성자 조사에 의한 열화정도는 재료의 화학조성, 제품형태(판재, 단조재, 용접재) 및 제조과정에 영향을 받을 뿐만 아니라, 중성자 조사량(fluence)과 조사온도에도 영향을 받게 된다. 원자로압력용기재료로 사용되는 페라이트강은 중성자 조사로 인해 강도와 경도가 증가하게 되고, 샤프충격시험에서 최대흡수에너지(upper shelf energy)가 감소하게 되며, 연성-취성천이온도(DBTT)가 증가하는 취화현상을 나타낸다. 이중 연성-취성천이온도의 증가는 PTS(pressurized thermal shock)와 같은 과냉각사고시 원

자로의 급격한 취성파괴를 유발할 가능성을 증가시키며, 원자로의 가열 및 냉각시 압력-온도범위를 제한하게 되어 발전소의 운영에도 영향을 미친다.

중성자 조사취화로 인한 원자로의 파손을 방지하기 위해 현재 각 국에서는 주기적인 감시시험을 통하여 RPV재료의 취화정도를 평가 및 예측토록 하고, 이를 기초로 원자로의 가동중 압력-온도 제한곡선을 설정하여 발전소 운영에 반영토록 하고 있으며, 수명기간동안 원자로의 건전성을 판단하도록 규정하고 있다. 일반적으로 중성자 조사취화로 인한 건전성 유지 여부 판단기준으로 파괴충격시험을 통하여 측정되는 기준무연성천이온도(RT_{NDT})의 변화와 최대흡수에너지의 변화량을 제한하고 있다. RT_{NDT} 는 ASME Boiler and Pressure Vessel Code(이하 ASME Code) Sec. III, App. G의 기준파괴인성곡선(reference fracture toughness curve)과 함께 압력용기재료의 파괴인성을 대표하는 인자로 사용된다. 즉 원자로의 운전온도 T 와 RT_{NDT} 의 함수로 표현되는 기준파괴인성곡선(K_{Ic} , K_{Ic}/K_{IR} 곡선)을 활용하여 원자로의 건전성평가를 수행하도록 하고 있다. 비조사재의 RT_{NDT} 는 ASME Code Section III, NB-2300에 따라 파괴충격시험 및 낙중시험으로부터 구해진다. 기준무연성천이온도는 T_{NDT} (낙중시험에서 구한 무연성 천이온도)와 $T_{CV}-60^{\circ}F$ (T_{CV} : 파괴충격시험에서 50ft-lb이상의 흡수에너지와 35mil이상의 횡팽창량을 주는 온도)중 큰 값으로 결정된다. 조사재의 경우에는 비조사재의 기준무연성천이온도와 조사에 따른 천이온도의 상승치(ΔRT_{NDT} : 30ft-lb의 흡수에너지에서 구해지는 조사재와 비조사재의 천이온도차)를 더한 값을 기준무연성천이온도로 결정하게 된다. 미국의 연방규제법 10 CFR 50 부록 G[1]에서는 정상상태 운전 에 필요한 최소한의 기준무연성천이온도와 최대흡수에너지를 제시하고 있다. 또한 가압열충격과 관련하여서는, 10 CFR 50.61[2]에 중성자 조사를 가장 심하게 받는 노심대지역의 재료에 대해서 수명말기 기준무연성천이온도를 제한하고 있다. 즉 수명말기에서 규정되는 기준무연성천이온도, RT_{PTS} 가 판재, 단조재 및 축방향용접에 대해서는 $270^{\circ}F$, 원주방향용접에 대해서는 $300^{\circ}F$ 를 초과해서는 안 된다고 규정하고 있다.

발전소 수명기간동안 RPV의 건전성을 평가하기 위해서는, 중성자 조사에 따른 RPV재료의 파괴인성 변화, 즉 기준무연성천이온도 변화를 정확히 평가하고 예측할 수 있어야 한다. 현재 주요 원자력 발전국에서는, RPV재료의 중성자 조사취화 평가를 미국의 NRC에서 발간한 Regulatory Guide 1.99 Revision 2(RG1.99/2)[3]에 기초하여 수행하고 있으며, 국내의 경우에도 동일한 모델을 적용하고 있다. RG1.99/2는 1988년에 발간되었으며, 그 당시에 이용 가능했던 미국내 감시시험결과 데이터를 이용하여 만들어진, 중성자 조사에 따른 기준무연성천이온도의 변화와 최대흡수에너지의 변화에 대한 예측모델을 제시하고 있다. 최근 미국에서는 천이온도영역에서 온도에 따른 파괴인성천이곡선을, 직접적이고 통계적으로 구할 수 있는 Master Curve 방법에 대한 연구를 활발히 수행하고 있으며, Master Curve방법에서 구해지는 기준천이온도 T_0 를 기초로 한 새로운 기준무연성 천이온도 개념에 대한 논의가 이루어지고 있다. 또한, RG1.99/2 발간 이후 축적된 수많은 감시시험데이터를 활용하여, 중성자 조사취화에 대한 새로운 예측모델을 정립하고자 하는 노력이 이루어지고 있으며[4], 그 결과 ASTM E10.02.02 Task Group에서는 새로운 조사취화 예측평가방법인 ASTM E900-98(Draft)를 제시하였다[5, 6].

본 논문에서는 기준무연성천이온도의 평가 및 예측과 관련하여, 최근 제시된 ASTM E900-98(Draft)를 RG1.99/2와 비교 분석하였다. 또한, 국내 원전의 감시시험데이터를 두 방법에 적용하여 각각의 방법에서 제시된 조사취화 예측모델을 비교 평가하였다.

I. 중성자 조사취화 예측식의 비교

RG1.99/2와 ASTM E900-98(Draft)에서 조사재의 RT_{NDT} 는 다음 식으로 주어진다.

$$RT_{NDT} = RT_{NDT(U)} + \Delta RT_{NDT} + M \quad (1)$$

$RT_{NDT(i)}$ 는 초기 비조사재에 대한 기준무연성천이온도로 ASME Code Sec. III, NB-2300의 절차에 의해 결정된다. ΔRT_{NDT} 는 중성자조사에 따른 천이온도의 상승치를 의미하며, 조사전과 조사 후의 충격시험곡선에서 흡수에너지가 30ft-lb(41J)인 위치에서의 온도천이량에 대한 예측값이다. M값은 불확실성을 고려하기 위한 안전여유(margin)이다.

RG1.99/2에서 ΔRT_{NDT} 는 다음과 같이 계산된다.

$$\begin{aligned}\Delta RT_{NDT} &= CF \times FF \\ &= CF \times \left(\frac{\phi t}{10^{19}} \right)^{0.28-0.10 \log \left(\frac{\phi t}{10^{19}} \right)}\end{aligned}\quad (2)$$

여기서 RT_{NDT} 는 °F 단위이며, CF는 조사취화에 미치는 구리와 니켈의 영향을 나타내는 화학인자(chemistry factor)이며, FF는 fluence 인자이다. Fluence(ϕt)는 에너지가 1MeV이상인 중성자 fluence를 나타낸다. 식(2)는 G. R. Odette과 G. L. Guthrie의 모델을 절충하여 만들어진 것으로, 상용 발전로의 감시시험데이터(약 200여개의 데이터, 모재 : 151, 용접재 : 51)를 기초로 하여 만들어 졌으며, 이들 데이터에 대해 식 (2)가 갖는 표준편차는 모재의 경우, 17°F, 용접재의 경우 28°F이다[7]. RG1.99/2에서는 감시시험의 신뢰성여부에 따라 CF값의 적용 및 margin의 적용이 달라진다. 다음의 식(3)에서 구한 CF값을 식 (2)에 대입하여 구한 최적선으로부터 충격시험자료에서 얻은 ΔRT_{NDT} 의 측정값(ΔRT_{NDTm})이 모재의 경우 17°F, 용접재의 경우 28°F이상의 편차를 나타낼 경우, 감시시험결과는 신뢰성이 없는 것으로 평가된다.

$$CF = \frac{\sum_i \left[\Delta RT_{NDTm,i} \times \left(\frac{\phi t}{10^{19}} \right)_i^{0.28-0.10 \log \left(\frac{\phi t}{10^{19}} \right)_i} \right]}{\sum_i \left(\frac{\phi t}{10^{19}} \right)_i^{0.56-0.20 \log \left(\frac{\phi t}{10^{19}} \right)_i}}\quad (3)$$

감시시험결과가 신뢰성이 없다고 판단될 경우에는 RG1.99/2의 Position 1.1에 따라 RT_{NDT} 를 결정하게 되며, 이때 CF는 구리와 니켈함량의 함수로 제시된 표로부터 구할 수 있다. 감시시험결과가 신뢰성이 있다고 판단될 경우에는 Position 2.1에 따라 RT_{NDT} 를 결정하게 되며, 이 때 CF는 식(3)으로부터 구한 값을 적용하게 된다.

ASTM E900-98(Draft)는 98년 1월 30일 발간된 것과 4월 27일에 발간된 것이 있는데, 각각의 경우, ΔRT_{NDT} 는 다음의 식(4)와 (5)로 계산된다.

$$\begin{aligned}\Delta RT_{NDT} &= FF_1 + CF \times FF_2 \\ &= A \exp \left(\frac{2.004 \times 10^4}{T_c + 460} \right) \left(\frac{\phi t}{10^{19}} \right)^{\left[0.4441 + 0.0754 \log \left(\frac{\phi t}{10^{19}} \right) \right]} \\ &\quad + B(Cu - 0.072)^{0.635} (1 + 2.33Ni^{1.380}) \left\{ \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \tanh \left[\frac{\log(\phi t) - 18.266}{0.562} \right] \right\}\end{aligned}\quad (4)$$

$$\Delta RT_{NDT_D} = C \exp\left(\frac{1.906 \times 10^4}{T_c + 460}\right) (1 + 57.7P) \left(\frac{\phi t}{10^{19}}\right)^{\left[0.4443 + 0.0837 \log\left(\frac{\phi t}{10^{19}}\right)\right]} \quad (5)$$

$$+ D(Cu - 0.072)^{0.678} (1 + 2.56Ni^{1.358}) \left\{ \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \tanh\left[\frac{\log(\phi t + 5.48 \times 10^{14} t_i) - 18.290}{0.600}\right] \right\}$$

식(4)와 (5)에서 T_c 는 조사온도로, PWR의 경우 냉각재 저온관 평균온도를 사용하게 되어 있으며, RT_{NDT_D} 와 T_c 의 단위는 °F이다. Cu, Ni, P의 단위는 wt%이며, t_i 는 조사시간으로 유효전출력시간 (effective full power hour)이다. 상수 A, B, C, D는 표 1에 제시된 바와 같다. 식(4)와 (5)는 RG1.99/2이후 추가된 미국내 감시시험데이터(609개 데이터)를 기초로 하여 만들어진 식으로 두 식에 대한 표준편차는 24°F이다. 식(4)와 (5)에서 FF_1 으로 표현되는 첫 번째 항은 안정기지결함 (stable matrix defect : 중성자 조사에 의해 생성되는 dislocation loop, 미세공공)에 의한 조사취화를 나타내고, $CF \times FF_2$ 로 표현되는 두 번째 항은 조사유기석출물에 의한 조사취화를 나타낸다. 식(4)와 (5)에서 Cu 함량이 0.072 wt%이하일 경우에는 Cu는 0.072wt%를 적용한다. 또 Cu 함량이 특정값 이상일 경우에는, 즉 식(4)의 경우 0.3wt%, 식(5)의 경우 0.301 wt%이상일 경우, Cu는 각각 0.3 wt%, 0.301wt%를 적용한다. 이것은 고용도(solubility)이상의 Cu가 함유되어 있을 경우, 단지 고용체(solid solution)형태로 있는 Cu만이, 석출물 형성에 기여한다는 사실에 근거하고 있다 [4]. 식(4)와 (5)에서 FF_1 으로 표현되는 첫 번째 항은 중성자 fluence가 증가함에 따라 계속 증가하게 되지만, FF_2 로 표현되는 두 번째 항은 중성자 fluence가 증가하게 되면 포화(saturation)된다.

불확실성에 대한 안전여유 M값은 RG1.99/2에서는 다음 식으로부터 계산된다.

$$M = 2\sqrt{\sigma_U^2 + \sigma_A^2} \quad (6)$$

여기서 σ_U 는 초기 기준무연성천이온도, $RT_{NDT(U)}$ 에 대한 불확실성을 나타내며, 측정값이 있을 경우 0°F를 적용하며, 측정값이 없을 경우, 재료가 속한 동급재료들의 일반적인 평균값(generic mean value)을 사용하도록 되어 있다. σ_A 는 ΔRT_{NDT} 에 대한 불확실성을 나타내며, 감시시험결과가 신뢰성이 없다고 판단될 경우, 즉 Position 1.1에 따라 평가될 경우, 모재의 경우, 17°F, 용접재의 경우, 28°F를 사용하며, 감시시험결과가 신뢰성이 있다고 판단될 경우, 즉 Position 2.1에 따라 평가될 경우, 모재의 경우, 8.5°F, 용접재의 경우, 14°F를 사용한다. 그리고 σ_A 는 ΔRT_{NDT} 값의 1/2이상이 되어서는 안 된다. 한편, ASTM E900-98(Draft)에서는 모재, 용접재 모두에 대해 margin값으로 48°F를 적용한다.

이상의 내용에서 RG1.99/2방법과 ASTM E-900(Draft)방법을 비교 요약하면 아래와 같다. 첫 번째는 각각의 방법에서 제시하고 있는 천이온도 상승에 대한 예측모델의 정확성과 관련된 것이다. 즉, 새로이 제시된 ASTM E-900방법은 기존의 방법에 비해 훨씬 더 많은 감시시험데이터를 기초로 하여 만들어진 것으로, 예측식과 측정치사이의 표준편차가 기존의 방법에 비해 작음을 알 수 있다. 표 2에는 미국에서 평가한 감시시험데이터에 대한 각각의 예측식이 갖는 표준편차를 나타내었다. 새로이 제시된 방법이 RG1.99/2 방법보다 좀 더 정확하게 조사취화를 예측함을 알 수 있다. 두 번째는 새로이 제시된 방법이 기존의 방법보다 조사취화에 대한 이론적인 사실을 좀더 염두에 두고 있다는 것이다. 새로이 제시된 모델은 조사취화를 안정기지결함과 조사유기석출물에 의한 취화기구별로 세분하고 있다. 또한 조사온도의 영향을 고려하고 있다. 실제 원자로 가동온도인 550°F 부근에서는 조사온도가 1°F증가함에 따라 천이온도는 0.5 ~ 1°F감소하는 것으로 알려지고 있다[4]. 또한 구리함량이 고용도 이상일 경우, 더 이상 Cu 함량에 대한 영향이 없다는 사실을 잘 반영하고 있다. 세 번째의 차이는 제품형태가 조사취화에 미치는 영향에 대한 고려 차이이다. RG1.99/2에서는 제품형태를 크게 모재와 용접재로 구분하고 있지만, 새로이 제시된 모델은 판재,

단조재 및 용접재로 세분하고 있다.

그림 1에는 RG1.99/2방법과 ASTM E900-98(Draft)방법에서 제시된 천이온도상승 모델을 비교하였다. Cu, Ni 함량이 아주 작은 경우에는, RG1.99/2에서 제시된 모델이, Cu, Ni 함량이 커질수록 ASTM E-900(Draft)에서 제시된 모델이 ΔRT_{NDT} 를 더 낮게 예측함을 알 수 있다. 또한, 식 (4)와 (5)의 예측치가 거의 비슷함을 알 수 있다.

III. 국내 원전 감시시험데이터의 분석

현재 국내의 경우 총 11개의 PWR형의 상업용 원자로가 가동되고 있으며, 이중 8개의 발전소에 대해서는 적어도 2회 이상의 감시시험을 수행한 바 있다. 국내 원자로 압력용기 재료에 대해, 두 모델의 적합성을 알아보기 위해, 한국전력공사(주)에서 작성한 감시시험 결과보고서를 기초로 국내 원전 감시시험 데이터(총 70개)에 대한 분석을 수행하였다. 조사온도(T_c)는 550°F를 적용하였으며, 각각의 감시시험보고서에서 적용한 중성자 조사량의 평가방법은 차이가 있었다. 그림 2에는 조사취화에 의한 천이온도상승치의 측정값과 각각의 모델에 의한 예측치를 비교하였다. ASTM E900-98(Draft)의 경우 식 (5)의 모델을 적용하였다. 그림 2에서 실선은 일대일 관계를 나타내는 선이며, 점선은 ASTM E900-98(Draft)모델에 대한 표준편차범위($2\sigma=48^\circ\text{F}$)를 도식한 것이다. 모재와 용접재 모두 대부분의 데이터가 ASTM E900-98(Draft)에서 제시하고 있는 편차 범위내에 위치하고 있으며, 측정치의 예측치에 대한 편차는 모재에 비해 용접재의 경우가 더 크게 나타나고 있다. 미국의 데이터와 비교할 때, 국내 감시시험데이터의 경우, 비록 거의 모든 데이터들이 ASTM E900-98(Draft)방법에서 제시하는 편차범위내에는 위치하지만, RG1.99/2에서 제시한 예측식이 오히려 보다 작은 편차를 나타냄을 알 수 있다(표 1). 국내 원자로압력용기재료의 경우, 고리 1호기 용접재를 제외한 모든 재료가 매우 낮은 Cu(<0.072 wt%) 및 Ni(0.75 wt%)함량을 나타내기 때문에 두 예측방법의 예측치가 비슷하게 나타난다(Cu 및 Ni 함량이 비교적 클 경우, ASTM E900-98방법이 더 낮게 RT_{NDT} 를 예측하게 되지만, 이들의 함량이 작을 경우, ASTM E900-98방법의 예측치가 크거나 작을 수가 있다). Cu 및 Ni 함량이 큰 고리1호기 용접재의 경우 측정치에 비해 ASTM E900-98(Draft)로 계산한 예측치가 상당히 작게 나타난다. 그림 3에는 중성자조사량에 따른 $\Delta RT_{NDT,m}$ 값과 $\Delta RT_{NDT,p}$ 의 차이를 나타내었다. RG1.99/2의 경우 모든 용접재 데이터가 편차범위(용접재의 $\sigma = 28^\circ\text{F}$)내에 위치하지만, 모재의 경우($\sigma = 17^\circ\text{F}$) 일부 데이터가 편차범위를 벗어난다. ASTM E900-98(Draft)의 예측식을 적용할 경우, 거의 모든 데이터가 편차범위($\sigma = 24^\circ\text{F}$)내에 위치하지만, 데이터들이 $\Delta RT_{NDT,m}$ 값과 $\Delta RT_{NDT,p}$ 의 차이가 0이 되는 직선을 기준으로 약간 위쪽으로 치우친 경향이 있다. 이상의 결과를 정리하면, 국내 감시시험데이터의 경우 새로운 예측모델의 적용이, 기존의 방법보다 오히려 더 많은 편차를 주고 있음을 알 수 있다. 그러나 본 연구에서는 중성자조사량의 평가 및 재료의 화학 성분에 대한 충분한 검토를 수행하지 못하였기 때문에, 향후 새로운 중성자 예측모델의 규제적용 여부를 판단하기 위해서는 이에 대한 분석이 좀 더 체계적으로 이루어 질 필요가 있다고 생각된다.

IV. 결론

본 연구에서는 원자로압력용기재료의 중성자 조사취화평가와 관련하여 기존의 방법인 RG1.99/2와 새로이 제시된 ASTM E900-98(Draft)방법을 비교 검토하였다. ASTM E900-98(Draft)방법은 보다 광범위한 감시시험 데이터를 기초로 하여 만들어졌으며, 중성자 조사취화 현상에 대한 이론적 사실을 보다 잘 반영하고 있다. 그러나 국내 감시시험데이터를 적용하였을 경우, 기존의 RG1.99/2방법이 보다 더 정확하게 조사취화에 의한 천이온도 상승치를 예측하고 있다. 향후 중성자 조사량 평가 및 화학조성에 대한 보다 체계적인 분석을 통하여, 새로이 제시된 ASTM

E900-98(Draft)방법의 규제 적용여부를 판단해야 할 것으로 생각된다.

참고문헌

- [1] 10 CFR 50 Appendix G, "Fracture Toughness Requirements."
- [2] 10 CFR 50.61, "Fracture toughness requirements for protection against pressurized thermal shock events."
- [3] U.S. NRC Regulatory Guide 1.99 Revision 2, "Radiation embrittlement of reactor vessel materials."
- [4] E. D. Eason et al., "Improved embrittlement correlations for reactor pressure vessel steels," NUREG/CR-6551, Draft Report, U.S. NRC, 1997
- [5] ASTM E900-98, "Standard guide for predicting neutron radiation damage to reactor vessel materials, E706(IIF)," Draft Jan. 30, 1998
- [6] ASTM E900-98, "Standard guide for predicting neutron radiation damage to reactor vessel materials, E706(IIF)," Draft April 27, 1998
- [7] P. N. Randall, "Basis for revision 2 of the U.S. Nuclear Regulatory Commission's Regulatory Guide 1.99," ASTM STP 909 pp. 149-162, American Society for Testing and Materials, 1986

표 1. 재료종류에 따른 열화상수

구 분	A	B	C	D
판재(Plates)	7.41×10^{-8}	184	1.23×10^{-7}	172
단조재(Forging)	5.54×10^{-8}	155	8.98×10^{-8}	135
용접재(Welds)	8.01×10^{-8}	218	1.10×10^{-7}	209

표 2. 천이온도예측모델에 대한 표준편차

	미국 감시시험데이터			국내 감시시험 데이터		
	데이터수	ASTM E900-98 식(5)	RG1.99/2	데이터수	ASTM E900-98 식(5)	RG1.99/2
모재	424	21.6 °F	25.5 °F	45	22.8 °F	20 °F
판재	323	22.1 °F	26.4 °F	32	20.8 °F	17.3 °F
단조재	101	19.9 °F	22.8 °F	13	27.9 °F	26.2 °F
용접재	185	25 °F	29.1 °F	25	32 °F	24.6 °F
전체	609	23 °F	26.6 °F	70	26.2 °F	21.6 °F

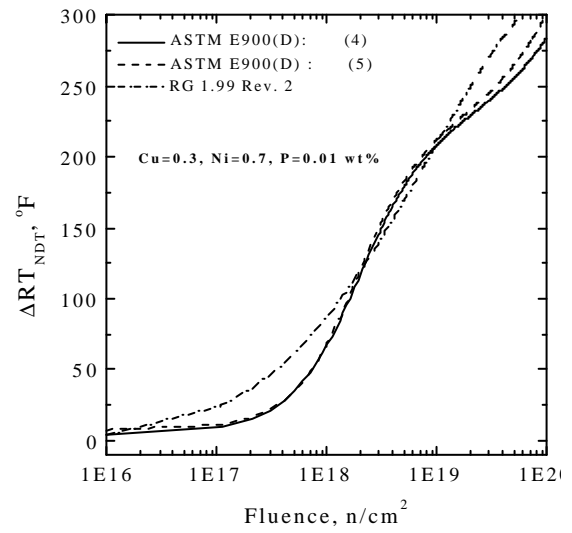
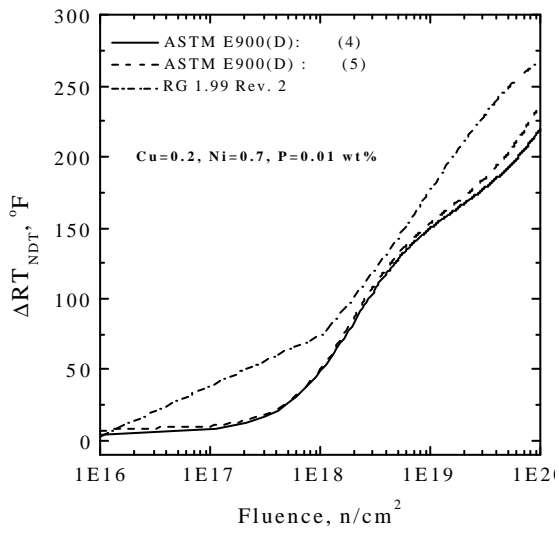
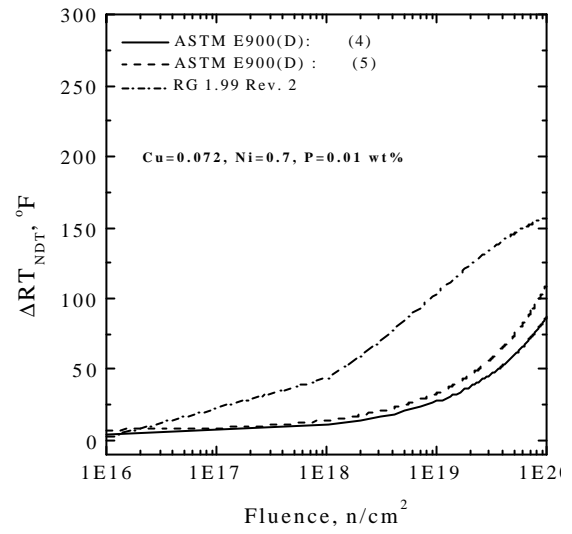
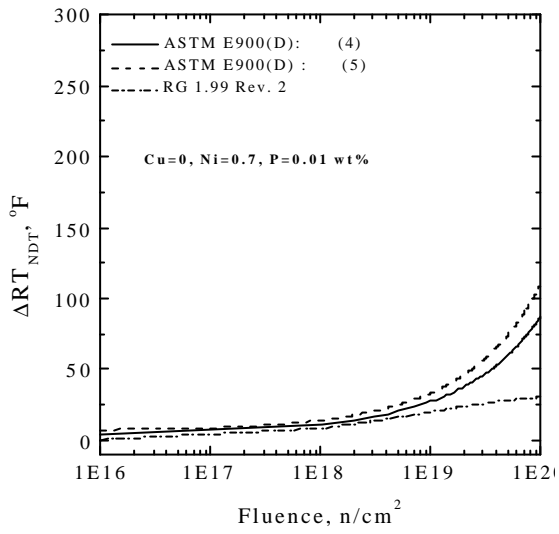


그림 1. 용접재에 대한 RG1.99/2와 ASTM E900-98(Draft)의 ΔRT_{NDT} 예측식의 비교

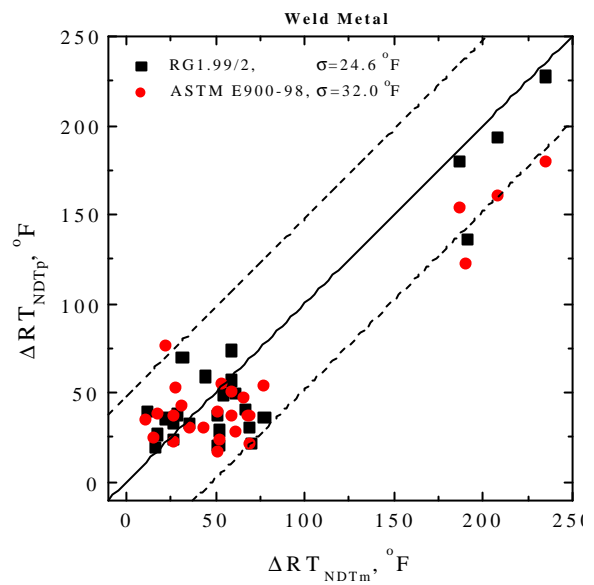
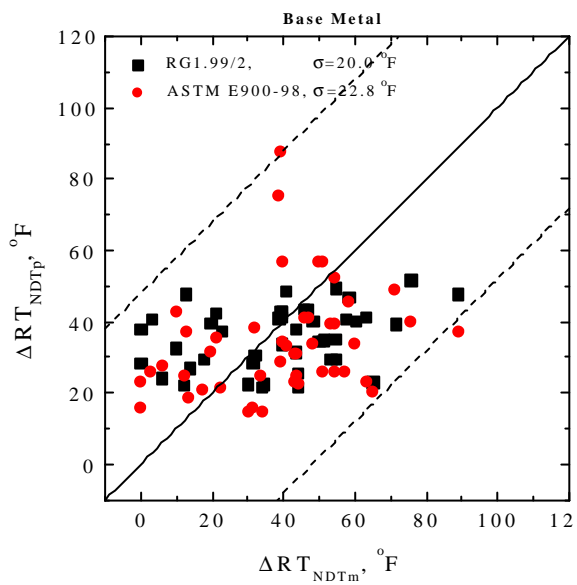


그림 2 국내 감시시험데이터의 ΔRT_{NDT_p} vs. ΔRT_{NDT_m}

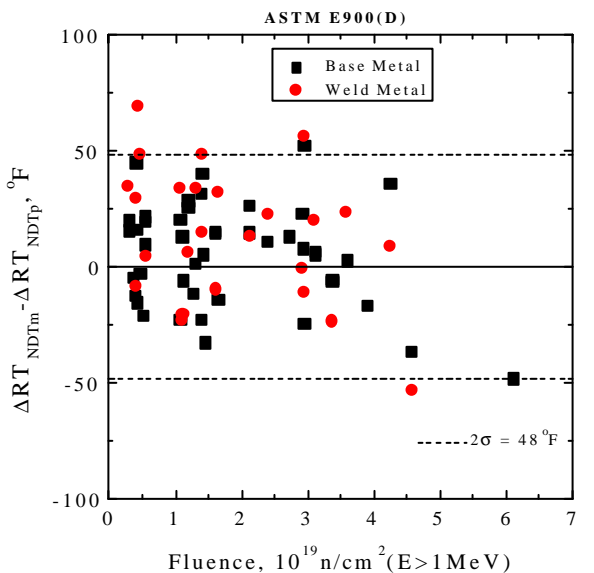
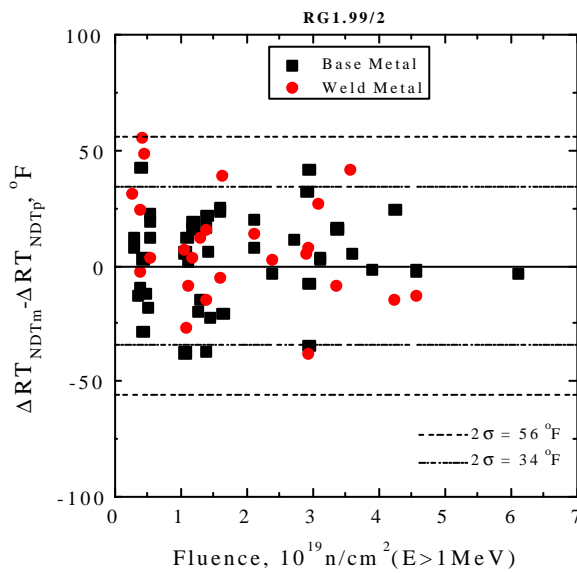


그림 3 국내 감시시험데이터의 중성자 조사량에 따른 ΔRT_{NDT_m} 값과 ΔRT_{NDT_p} 의 차이