

## 초음파특성 분석에 의한 원자로 재료의 중성자 조사량 예측

### The Estimation of Neutron Fluence in Nuclear Reactor Vessel Materials by the Analysis of Ultrasonic Characteristics

이삼래\*, 장기옥\*, 김병철\*

Sam-Lai Lee\*, Kee-Ok Chang\* and Byoung-Chul Kim\*

**초 록** 운전중인 원자로 재료의 건전성 평가를 위한 기계적 시험의 하나인 샤르피 충격 시험편에 대하여 초음파 신호 분석이 이루어졌다. 시험편으로는 모재와 용접재를 사용하였는데 이들 재료는 고온, 고압의 냉각수 및 지속적인 고속 중성자가 방출되고 있는 가동중인 발전소에서 감시시험을 통한 원자로재료의 건전성평가를 목적으로 정지기간동안 인출된 것이다. 분석결과 속도 및 감쇠와 같은 초음파 특성들이 재질이 비교적 균일한 모재에 있어서는 중성자 조사량과 밀접한 관련이 있는 것으로 보였으며 이를 활용하여 비파괴적인 방법으로 재료에 대한 중성자 조사량이 어느 정도 인지를 예측할 수 있는 가능성을 보여주었다.

**주요용어** : 초음파 특성변수, 감시시험, 비파괴평가

**Abstract** Ultrasonic signals from Charpy impact test specimen have been analyzed in order to evaluate the integrity of reactor pressure vessel. Base and weld metal that were extracted from reactor vessel during plant outages according to the schedule of the surveillance test required by the related regulations have been used and the ultrasonic test parameters including velocity, attenuation, etc. showed a close correlations with the amount of neutron irradiation for base metal, relatively homogeneous materials. This result showed certain possibility where a nondestructive method could be used to predict the fluence of the irradiation due to neutron in nuclear reactor vessel materials.

**Keywords** : ultrasonic parameters, surveillance test, non-destructive evaluation

#### 1. 서 론

원자력발전소의 원자로 압력용기 노심대부위(core beltline region)는 원자로가 가동에 들어감에 따라 고온과 고압에서 높은 에너지준위를 갖는 중성자가 원자로 벽에 조사(irradiation)되어 압력용기 재료의 결정격자와 충돌함으로써 강도와 경도의 증가와 같은 재료의 기계적 성질이 변하고 연성과 인성으로 대표되는 파괴 저항성이 감소하는 조사취화 현상을 겪게 되는데 원자로 내에 장입되어 있는 감시시험편의 기계적 시험과 고속중성자의 조사량을 측정하여 이들을 관련시킴으로써 원자력발전소의

가동에 따른 원자로 압력용기 재료의 취화 경향과 정도를 평가하고 수명말기까지를 예측할 수 있다. 따라서 원자로 압력용기 재료에 대하여 중성자에 의한 조사취화는 원자로의 안전운전 및 수명에 직접적인 영향을 미치기 때문에 취화 현상 규명과 더불어 취화 회복에 대한 연구도 활발히 진행되어 오고 있다[1-3].

원자력발전소의 가동조건에 따른 조사효과를 분석 및 평가하기 위해서는 동일한 조사조건을 만족하는 조사시험편을 사용하여 충분한 시험을 실시하는 것이 바람직하나 원자로 내에 장입된 극히 제한된 수의 시험편으로 기계적 시험을 실시하고 있기 때문에 발전소 수명 말기까지

의 건전성 유지와 수명 연장 등을 결정하기 위한 충분한 정보를 얻기에는 부족한 면이 있다. 이와 같은 문제점을 극복하기 위하여 기존의 기계적 시험에 의한 평가 방법을 보완할 수 있는 다양한 비파괴 평가 기술의 개발이 권고되고 있다[4]. 비파괴 평가 범에 의한 재료 물성 평가는 일반적으로 중성자와 같은 방사선에 조사되지 않은 재료에 대해서는 많은 연구가 진행되어 오고 있으나 원자로 압력용기와 같이 중성자에 의한 조사가 이루어진 경우는 극히 드물며 그 이유는 실제 원자력발전소에서 조사된 시험편의 양이 그렇게 많지 않을 뿐 아니라 고준위의 방사선에 오염된 시험편의 취급상의 어려움 때문인 것으로 생각된다.

본 연구는 현재까지 국내외를 막론하고 기초적인 실험을 제외하고는 본격적으로 시도된 바가 없는 것으로 가동중인 원자력발전소에서 직접 중성자에 조사된 후 규정된 시험을 위하여 인출된 시험편에 대하여 초음파평가 기술을 활용한 원자로 압력용기 재료인 Mn-Mo-Ni계 저합금강의 모재 및 용접금속에 대해 조사 전후의 물리적 성질과 초음파 특성을 관찰하였으며 이들 간의 상관관계를 도출하고자 하였다.

## 2. 이론적 배경

### 2.1. 중성자 조사경화와 취화

경수로(light water reactor)원전에서 원자로압력용기는 수명말기까지 고온 및 고압의 냉각수와 고속중성자( $E \geq 1.0\text{MeV}$ )에 피폭되므로 조사손상이 심하게 일어나 항복강도와 인장강도가 증가하는 조사경화(irradiation hardening)와 연성이 약화되는 조사취화(irradiation embrittlement) 현상이 동시에 일어난다. 조사경화는 그 자체만을 고려하면 원자로 압력용기의 재료로서 유리한 면도 있으나 연성의 저하를 동반하므로 원자로압력용기의 사용 수명을 크게 단축시킬 수 있다. 압력용기 재료인 페라이트계 저 합금강은 저온에서는 취성을 그리고 고온에서는 연성을 나타내는 bcc금속 특유의 연성-취성 천이온도(DBTT: ductile-brittle transition temperature)를 갖고 있는데 DBTT는 샤르피 충격 시험에서 명료하게 나타난다. 이러한 현상은 재료에 생기는 여러 가지 결함으로 인하여 발생하며 특히 조사경화는 점 결함이나 불순물 원자가 단독으로 일으키는 것보다는 이들의 집합체에 의해 발생한다.

중성자 조사에 의한 조사취화는 합금의 화학성분, 금속 조직, 중성자조사량 및 조사온도 등에 영향을 받는다. 화학성분은 재료의 강도와 인성을 향상시키기 위해 첨가하는 합금 원소와 제조 과정에서 제거되지 않고 남아있는 Cu, P, S 등의 불순물 원소로 구분된다. 이들 불순물 원소 중 Cu가 조사취화에 미치는 영향은 절대적이며 모재인 판재 및 단조품보다는 용접 금속에서 조사취화 현상을 심하게 나타낸다[5]. 이러한 이유로 많은 연구자들이 다양한 방법을 활용하여 Cu의 조사취화 영향을 측정하려는 시도가 있어왔다.

### 2.2. 초음파에 의한 재료 물성 분석

초음파(ultrasonic) 측정 기술은 구조물, 배관재 및 압력용기에 존재하는 미세한 결함을 탐지하거나 구조물의 경년 열화 평가 그리고 탄성계수와 같은 재료의 기계적 성질을 측정하는데 널리 사용되는 비파괴시험법 중 하나이다. 초음파 빔(beam)은 탄성파(stress wave)이므로 매질을 통과할 때 재료의 물성 및 조직의 특성에 따라 전파 속도와 에너지의 감쇠(attenuation)를 가져온다는 성질을 이용하여 재료의 물성을 평가하고 있다. 그러나 이로부터 직접적으로 조사취화 경향을 평가할 수는 없고 기계적 성질 시험 결과와 상관 관계를 이용하여 평가가 가능하게 된다.

재료에서의 초음파 진행속도와 감쇠는 재료의 밀도, 결정입도, 전위(dislocation) 및 석출물 등에 의해 좌우되므로 원자로 압력용기 재료의 중성자 조사에 따른 재료의 조직학적 변화는 초음파 시험을 통해 측정 및 평가가 가능하다. 초음파를 이용할 경우에는 표면 근처의 상태에 특히 민감한 Rayleigh파의 발생 임계각이 재료의 물성에 의존한다는 점을 이용하여 감쇠 및 속도와 중성자 조사량을 연관시켜 물성을 평가한다든지 재료의 연성-취성 천이점에서 초음파 속도의 온도 의존 상수가 불연속하다는 점을 고려하여 비조사재와 조사재를 대상으로 취화의 정도를 측정하기도 한다. 이와 아울러 전자음향탐촉자(electromagnetic acoustic transducer)와 같이 시험편과의 접촉매질이 불필요한 측정 장치를 이용하여 재료의 열화, 피로에 따른 재질 손상을 평가하기 위해 초음파 속도 및 감쇠상수를 측정하는 기존의 방법 이외에 자기변형효과(magnetostrictive effect)를 이용하거나 초음파의 비선형 현상을 이용하기도 한다[6-9].

### 3. 실 험

#### 3.1. 재료 및 시험편 제작

본 실험에서 사용한 시험편 재료는 Mn-Mo-Ni계의 저합금강 단조재이며 이는 SA508 Class3강과 동등한 재료이다. 본 재료는 국내 가동중인 특정 원자력발전소의 원자로 압력용기 제작 시 노심대부위(beltline region)에서 채취한 모재와 용접금속이며 재료의 조성성분과 열처리 조건은 Table 1 및 2와 같으며 금속조직 현미경사진은 Fig. 1과 같다. 조사 전후의 재료의 물성을 비교하기 위하여 동일한 조성과 열처리 이력을 갖는 시험편을 사용

하였다.

비조사시험편은 원자로 가동 전부터 보관중인 시험편이고 조사시험편은 원자로 가동과 더불어 원자로 감시시험(surveillance testing) 계획에 의거 발전소 정기 보수 기간 중 인출된 것이다. 시험에 사용중인 시험편은 Fig. 2에서 보여주는 바와 같이 감시시험 계획상의 기계적 성질을 측정기 위한 ASTM E-23에 따른 10mm x 10mm x 55mm의 표준 샤르피(Charpy) 충격 시험편이며 이들

Table 1 Chemical composition(wt%) of specimens

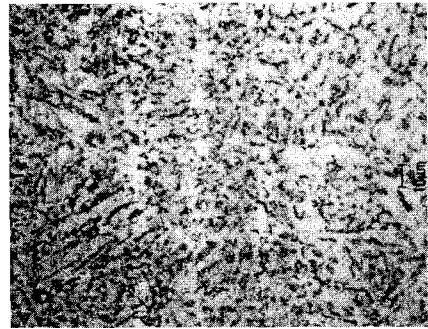
Element	C	Si	Mn	P	S	Mo
Base	0.16	0.17	1.28	0.006	0.005	0.48
Weld	0.06	0.37	1.68	0.007	0.008	0.55
Element	Ni	Cr	Cu	Al	Co	Fe
Base	0.71	0.17	0.06	0.011	0.012	Bal.
Weld	0.58	0.03	0.04	0.004	0.011	Bal.

Table 2 Heat treatment of specimens

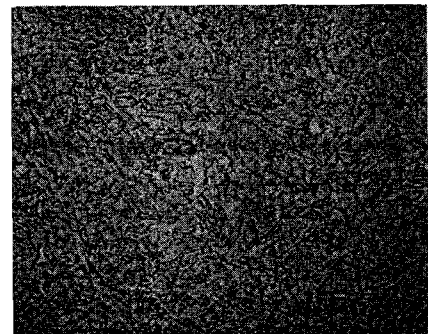
Material	Temperature	Time	Cooling method
Base metal	Austenizing (871 °C)	4 hr	Water-quenched
	Tempered (663 °C)	4 hr	Air-cooled
	Stress relief Heating : 595 °C Holding : 595 °C Cooling : 310 °C	15 °C/hr 6 hr 10 °C	Air-cooled
Weld metal	Post weld, Stress relief Heating : 595 °C Holding : 595 °C Cooling : 310 °C	15 °C/hr 6 hr 10 °C	Air-cooled

Table 3 History of neutron irradiation for specimens

Withdrawal schedule of specimens	Fuel cycle	Neutron fluence (10 <sup>19</sup> n/cm <sup>2</sup> )
0 <sup>th</sup>	0 <sup>th</sup>	0
2 <sup>nd</sup> (5.28EFPY)	6 <sup>th</sup>	2.2
3 <sup>rd</sup> (7.68EFPY)	8 <sup>th</sup>	3.8



(a) Base metal



(b) Weld metal

Fig. 1 Optical micrographs of specimens

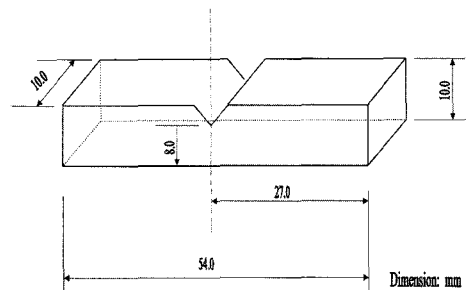


Fig. 2 Charpy V-notch impact specimen

시험편은 고온 및 고압의 원자로 내에서 인출되기 전까지 지속적으로 증성자에 조사되었다. 아래 Table 3에는 감시시험 계획상 2번째 차수에 인출된 시험편과 3번째 차수에 인출된 시험편의 증성자 조사시간 및 조사량에 대하여 기술하고 있다.

### 3.2. 초음파에 의한 물성 측정

증성자 조사에 의한 초음파 특성의 변화를 규명하기 위하여 Fig. 3과 같이 신호 수집을 위한 시스템을 구성하였다. 우선 초음파 송 수신자로는 JSR Ultrasonics사 제품을 이용하였고 A/D board로는 Gage Applied Science사의 Compuscope265 board를 사용하였다. 사용된 초음파 센서는 Aerotech transducer로 직경은 6.25mm, 중심 주파수가 5.0MHz였으며 시험편의 폭과 두께가 각각 10mm로 대단히 작기 때문에 근거리 음장(near zone)의 영향을 피하기 위하여 지연재(delay material)를 활용하였다. 직접 접촉법에 의한 초음파 신호 수집이 목적이었기 때문에 되도록 동일한 조건에서 신호 수집이 이루어지도록 Fig. 3과 같이 일정한 무게의 추를 사용하여 센서와 시험편 사이의 접촉압력을 일정하게 유지하였다.

증성자 조사시험편에 대한 시험 실시 전에 본 실험의 기본이 되는 비조사시험편에 대한 측정이 우선 이루어졌다. 비조사시험편으로는 모재 및 용접금속 시험편에 대하여 신호 수집이 이루어졌으며 조사재에 대한 시험에서는 시험편 자체가 대단히 높은 방사선 준위를 갖고 있어서 직접 접촉이 곤란한 관계로 센서와 시험편의 원활한 접촉을 위하여 납으로 된 차폐시설을 이용하였다.

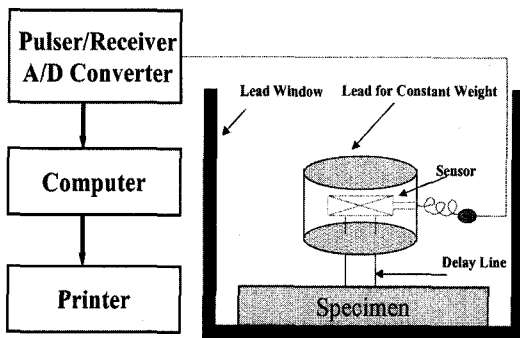


Fig. 3 Schematic diagram of ultrasonic experimental setup

### 4. 결과 및 고찰

샤르피 충격시험편에 대한 초음파 신호 수집 및 평가가 이루어졌다. Fig. 4는 지연재(delay line)를 부착한 초음파 센서에 의해 시험편에서 수집된 대표적인 신호를 보여주고 있다. Fig. 4에서는 지연재(두께 12.7mm)와 시험편(두께 10mm)에서 반사된 신호가 동시에 나타나 있는 것을 볼 수 있는데 시간차를 정확히 분석하면 시험편과 지연재 각각으로부터의 반사신호를 적절히 구별해 낼 수 있다. 시험편의 후방에서 반사된 각각의 신호에 대해 고속 푸리에 변환에 의해 주파수에 따른 위상을 계산함으로써 각 주파수별 위상 속도를 구하여 시험편 종류별 및 증성자 조사취화에 따른 위상 속도의 변화를 관찰하였으며 또한 감쇠와 주파수간의 관계도 계산하였다[10].

원자로의 모재 및 용접부와 동일한 재질로 제작된 샤르피 충격 시험편에서 신호 수집이 이루어졌다. 비조사시험편과 더불어 가동 원자로에서 증성자에 조사된 시험편을 인출하여 시험이 실시되었으며 위상 속도와 주파수와의 관계는 Fig. 5와 같고 감쇠와 주파수와의 관계는 Fig. 6에 나타나 있다. Fig. 5(a)에서와 같이 모재의 경우에는 비조사 시험편에서 속도가 가장 빠르고 증성자 조사량이 증가함에 따라 속도가 감소하는 것을 볼 수 있다. 이러한 결과는 시험 재료가 증성자에 조사된 양이 증가할수록 재료 내부에 공공이나 점 결함 등이 다량 발생하였다고 볼 수 있어 재료 내부에 미세한 결함들이 발생하면 이들이 초음파의 진행을 저지하기 때문에 속도가 늦어진다는 일반적인 이론과 일치한다고 생각할 수 있다[11]. 또한 2차와 3차 감시시험 계획에 따라 인출된 시험편에서도 볼 수 있듯이 증성자 조사량이 원자로 가동과 더불어 증가

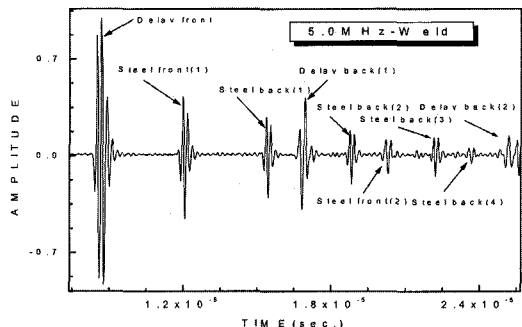
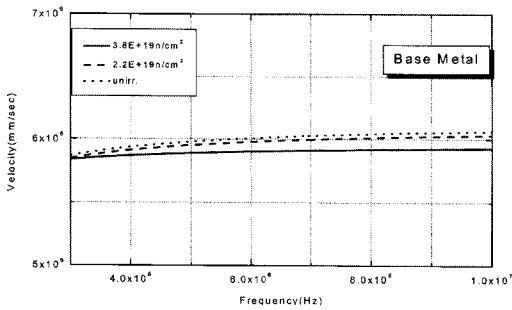


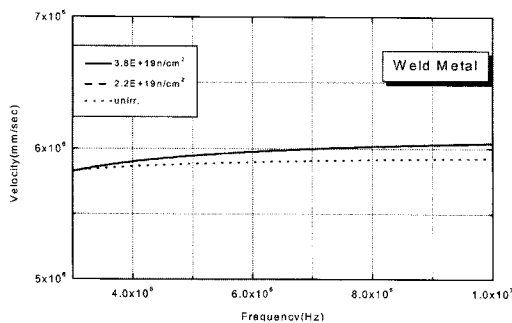
Fig. 4 A typical ultrasonic signal obtained from weld specimen

하면 속도 차이가 눈에 띄게 차이가 남을 볼 수 있으나 증성자에 의한 조사량이 지속적으로 이루어진 2차와 3차에 인출된 시험편 사이에서는 속도 차이가 눈에 띄게 크게 보이지는 않는다. 그 이유는 조사 초기에는 전파 속도를 늦추게 할만큼 다량의 결함 발생이 이루어지지 못한 것을 의미하며 조사량이 많아지는 2차 이후부터는 결함 발생이 상대적으로 많아졌음을 의미한다. 이와 같은 현상은 초음파의 감쇠와 주파수간의 관계인 Fig. 6(a)에서도 잘 나타나있는 바와 같이 증성자 조사량이 증가할수록 감쇠도 증가하는 것을 볼 수 있는데 이는 증성자 조사량의 증가와 더불어 앞서 언급한 다양한 결함의 발생에 의한 산란과 같은 현상으로 감쇠가 커지기 때문으로 추측된다.

용접재의 경우를 보여주는 Fig. 5(b)의 경우는 모재의 시험 결과인 Fig. 5(a)와는 일치하지 않은 것을 볼 수 있으며 2차와 3차 시험 결과도 거의 차이가 나지 않아 그림상에서는 하나의 결과로 표시된 것을 볼 수 있다. 또한



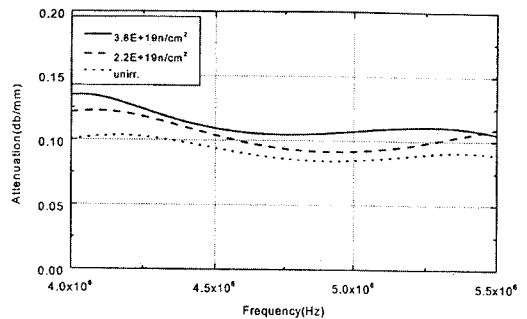
(a)



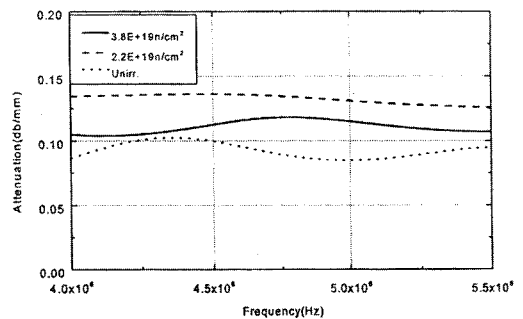
(b)

Fig. 5 Relationship between ultrasonic velocity and frequencies for base and weld metal

초음파 감쇠와 주파수의 관계를 보여주는 Fig. 6(b)에서도 증성자 조사량이 많으면 감쇠가 증가하는 것처럼 보이고 있으나 모재의 경우처럼 일관성을 보여주지 못한 것을 볼 수 있다. 이와 같은 결과는 지금까지 보고되어 있지 않은 현상으로 생각되며 그 원인에 대해서는 재질이 비교적 비 균일한 용접부의 특수성을 포함하여 여러 가지로 유추해 볼 수 있을 것이다. 지금까지 조사취화에 대한 연구 결과를 종합해 보면 증성자 조사에 따른 점 결함의 생성 및 이들 점 결함과 잔류 불순물(Cu, P) 혹은 합금원소(Ni)와의 상호 작용에 의해 안정화된 결함(defect clusters) 등이 조사취화의 주요 원인으로 알려져 있다. 본 재료와 같이 Cu함량이 적은 재료는 안정화된 결함 혹은 interstitial, vacancy loop형성이 조사취화를 유발하는 주요 결함들로 거론되고는 있으나 명확하게 규명되어 있지 않으며 또한 본 재료와 같이 높은 가동온도(288 oC)에서 오랜 가동기간동안(7.68 effective full power years) 증성자에 조사된 재료의 경우 증성자 조사에 의해 생성



(a)



(b)

Fig. 6 Relationship between ultrasonic attenuation and frequencies for base and weld metal

된 결함이 온도가 높으면 소둔 효과를 받게 되어 조사 손상으로부터 회복이 일어난 것으로 추정할 수 있을 뿐으로 결함 생성과 소둔 효과에 대한 미세 구조적인 연구를 체계적으로 수행하여 이러한 현상에 대한 원인이 좀 더 명확히 규명되어야 할 것이다.

## 5. 결 론

원자로재료의 중성자 조사에 의한 건전성을 평가하기 위하여 원자로 가동과 더불어 원자로 내에 삽입된 기계적 시험편의 하나인 샤프피 충격 시험편에 대하여 중성자 조사량에 따른 초음파 시험이 실시되었으며 그 결과는 다음과 같다.

위상속도의 변화에 있어서 모재의 경우 조사량이 증가하면 속도가 일정하게 감소하였으며 감쇠의 경우에도 조사량이 증가하면 감쇠가 증가하는 것을 볼 수 있었다. 그러나 용접부의 경우에는 모재의 경우와 달리 속도와 감쇠가 조사량 증가에 따라 일정하게 변화하지 않음을 보여 주었다. 이와 같은 시험결과는 지금까지 보고되어 있지 않은 현상으로 장기간 높은 온도에서 중성자에 조사된 재료의 경우 손상으로부터 회복이 일어나는 등 결함 생성과 소둔 효과와 같은 복잡한 현상들이 원인이 된 것으로 유추할 수 있을 뿐으로 이러한 현상에 대한 미세 구조적인 연구가 체계적으로 수행되어야 할 것이다. 아울러 위상속도, 감쇠와 같은 초음파 파라메터가 중성자 조사량 증가에 따른 재료의 상태를 적절히 설명하고 있음을 이용하여 신호분석에 의하여 이들을 측정함으로써 원자로 재료에 어느 정도 조사가 이루어졌는지를 예측하는데 활용이 가능할 수 있을 것이다.

## 참고문헌

- [1] Griesbach, T. J., and Server, W. L., "Management of Neutron Radiation Embrittlement : A View from the United States," in Radiation Embrittlement of Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels: An International Review(Fourth Volume)-1990, edited by L.E. Steele, ASTM STP 1170, Philadelphia, pp. 30-39, (1993)
- [2] de Villier, W. M., and de Klerk, H. J., *Int. J. Pressure Vessel & Piping* 50, pp. 215-230, (1992)
- [3] Popp, K., Bergmann, U., et. al., "Irradiation and Annealing Behavior of 15Kh2MFA Reactor Pressure Vessel Steel," in Radiation Embrittlement of Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels: An International Review(Fourth Volume)-1990, edited by L.E. Steele, ASTM STP 1170, Philadelphia, pp. 344-368, (1993)
- [4] Jackson, S. "The Direction and Trend in US Nuclear Regulatory Policy," in The First Annual KAIF/KNS Meeting, Seoul, (1996)
- [5] Astafev, A. A., et. al., *Atomnaya Energiya* 42, pp. 187-193, (1977)
- [6] Alers, G. A., and Ray Santoyo, "Shear Wave Velocity Response to Copper Precipitate and Neutron Irradiation," in Workshop on Nondestructive Characterization of Embrittlement in Reactor Pressure Vessel Steels, National Institute of Standards and Technology, United States Department of Commerce, Chapter 19, (1999)
- [7] Igarashi, B., and Alers, G. A., "Ultrasonic Measurement of Dynamic Magnetostriction," in *ibid*, Chapter 23.
- [8] Hurley, D. C., Balzar, D., and Purtscher, P. T., "Ultrasonic Nonlinearity Parameter in Precipitate-hardened Steels," in *ibid*, Chapter 16.
- [9] Hiser Jr, A. L., and Green Jr, R. E., "Evaluation of Ultrasonic Attenuation Measurements for Estimating Irradiation Embrittlement of RPV Steels," in *ibid*, Chapter 18.
- [10] Jeong, H., and Hsu, D. K., Experimental Analysis of Porosity-induced Ultrasonic Attenuation and Velocity Change in Carbon Composites, *Ultrasonics* 33, pp. 195-203, (1995)
- [11] Cohen, Y. B., and Mal, A. K., "Ultrasonic Inspection," in Metals Handbook 17, Nondestructive Evaluation and Quality Control, ASM International, Metals Park, pp. 231-277, (1989)