

멀티스케일 모델링을 이용한 압력용기강의 조사손상 정량예측

이경근[†] · 권준현^{*}

Quantitative Estimation of Radiation Damage in Reactor Pressure Vessel Steels by Using Multiscale Modeling

Gyeong-Geun Lee[†] and Junhyun Kwon^{*}

(Received 11 June 2014, Revised 26 June 2014, Accepted 26 June 2014,)

ABSTRACT

In this work, an integrated model including molecular dynamics and chemical rate theory was implemented to calculate the growth of point defect clusters(PDC) and copper-rich precipitates(CRP) which could change the mechanical properties of reactor pressure vessel(RPV) steels in a nuclear power plant. A number of time-dependent differential equations were established and numerically integrated to estimate the evolution of irradiation defects. The calculation showed that the concentration of the vacancies was higher than that of the self-interstitial atoms. The higher concentration of vacancies induced a formation of the CRPs in the later stage. The size of the CRPs was used to estimate the mechanical property changes in RPV steels, as is the same case with the PDCs. The calculation results were compared with the measured values of yield strength change and Charpy V-notch transition temperature shift, which were obtained from the surveillance test data of Korean light water reactors(LWRs). The estimated values were in fair agreement with the experimental results in spite of the uncertainty of the modeling parameters.

Key Words : Multiscale modeling(다중스케일 모델링), Rate theory(반응속도론), low alloy steel(저합금강), irradiation defects(조사결함), irradiation hardening(조사경화), irradiation embrittlement(조사취화), reactor pressure vessel(압력용기), molecular dynamics(분자동역학)

1. 서 론

원자력발전소의 압력용기(reactor pressure vessel, RPV) 재료로는 저합금강(low alloy steel)이 널리 사용되고 있다. 발전소 운용 중에 저합금강은 중성자 조사로 인하여 파괴인성의 저하와 항복강도의 증가가 발생하게 된다¹⁾. 이러한 기계적 성질의 변화는 원자로 압력용기의 건전성을 저하시켜, 가동 출력의 감소 및 장기가동을 어렵게 한다.

중성자가 저합금강에 조사되었을 때 발생하는 충돌

로, 격자 내에 공공(vacancy), 격자간원자(self-interstitial atom) 및 각 조사결함의 클러스터가 발생하게 된다. 이중 열적 여기에 의하여 이동 가능한 공공 및 격자간원자들은 조사 중에 확산 및 상호 반응하여 nano-size point defect cluster(PDC)를 형성하거나, 저합금강 내의 Cu를 빠르게 확산시켜 Copper-rich precipitate(CRP)를 형성하게 된다. 조사 중에 발생하는 PDC와 CRP의 성장은 압력용기강의 조사경화 및 조사취화의 주된 원인으로 알려져 있다^{1,2)}.

조사취화를 평가하기 위해서 매우 다양한 실험이 수행되었으며, 아울러 수학적 모델링 기반의 전산모사를 실험의 대안으로 적용한 연구가 많이 있었다³⁻⁵⁾. 고에너지 중성자와 격자원자 간의 충돌반응으로부터 재료의 물성변화를 예측하는데 단일 모델 또는

[†] 책임저자, 회원, 한국원자력연구원

E-mail: gglee@kaeri.re.kr

TEL: (042)868-4688 FAX: (042)868-8549

^{*} 한국원자력연구원, 원자력재료안전연구부

이론으로 표현하기는 불가능하며, 시간 및 공간적 한계를 고려하여 단계별로 적합한 모델을 수립하고 이를 연결함으로써 재료의 물성을 정량적으로 예측하는 다중스케일(multiscale) 전산모사 방법이 널리 이용되고 있다. 원자의 충돌 반응에 의한 점결합 생성을 모사하는데, 분자동역학(molecular dynamics, MD) 기술이 널리 이용되고 있다. 기본적으로 충돌 반응 후 격자원자에 전달된 에너지에 의하여 원자들이 운동을 하게 되는데 이를 수치해석법으로 계산하는 것이 MD의 주요 내용이다. 그 계산결과로 시간의 변화에 따른 격자 원자들의 위치를 파악하여 점결합의 분포를 알 수 있다⁶⁾. MD에서 획득한 점결합 특성은 다음 단계인 반응속도이론 모델링에서 조사결합의 생성속도라는 주요한 입력자료로 사용된다.

다양한 전산모사 기법 중에서 화학분야에서 많이 사용되었던 반응속도론은 장시간에 걸친 PDC와 CRP의 성장 거동을 확인하는데 주로 사용된다. 반응속도론은 조사결합의 농도를 미분방정식을 이용하여 수학적으로 표현하여 수치해석을 이용하여 그 해를 구하는 것이다^{7,8)}. Radiguet 등은 이 모델을 이용하여 Fe-Cu 모델합금의 전자 및 이온 조사에 따른 CRP 성장을 예측하였으며⁹⁾, Gokhman 등은 중성자 조사 시편의 SANS(small angle neutron scattering) 자료를 설명하기 위하여 이 모델링을 적용하였다¹⁰⁾. Stoller 등은 kinetic Monte Carlo 방법과 반응속도론을 정량적으로 비교하여 그 차이와 특징을 확인하였다⁵⁾. 단순화된 모델링과 불완전한 반응속도 파라미터라는 단점에도 불구하고, 반응속도론은 장시간에 걸친 조사결합의 거동을 모사할 수 있기에 다양한 실험적 현상을 설명하기 위하여 널리 사용되고 있다.

본 연구에서는 한국에서 사용중인 가압경수로(light water reactor, LWR)에서 PDC와 CRP의 성장 거동을 반응속도론을 이용하여 계산하였다. 계산된 결합 농도로부터 항복응력의 변화량을 계산하고, 연성-취성 전이온도변화(transition temperature shift, TTS)를 경험식을 통하여 추정하였다. 계산된 값들은 실제 LWR의 감시시험 결과와 비교하여 보았으며, 이를 통계적으로 분석하여 그 관계를 확인하였다.

2. 모델링 방법

2.1 분자동역학(Molecular Dynamics, MD)

고에너지 중성자와 첫 번째로 충돌하여 생성된 격

자원자를 PKA라 칭하는데, 이 PKA는 보통 연속적인 충돌반응을 야기할 수 있는 충분한 운동 에너지를 지니고 있다. SPECTER 코드는 중성자에 의한 기초 손상량을 계산하는 코드로서 원자 변위반응(displacement) 및 가스 생성 단면적, 그리고 PKA 스펙트럼이 데이터 파일로 저장되어 있다¹¹⁾. 따라서 사용자는 입력자료로 중성자 스펙트럼만 지정해 주면 다양한 기초 손상정보를 손쉽게 계산할 수 있다. SPECTER 코드를 통하여 계산된 PKA 에너지는 MD 계산의 주요한 입력자료로 사용된다.

본 연구에서는 MD 전산모사를 위하여 MOLDY 코드를 사용하였다⁶⁾. MOLDY 코드는 Finnis와 Sinclair가 개발한 empirical 포텐셜을 사용하는데 이는 BCC 구조의 금속에 적합하다¹²⁾. 이 포텐셜은 원자간 거리에 의해서 결정되는 에너지 함수로 인력(cohesive)과 척력(repulsive)의 합으로 구성되어 있다. Finnis 포텐셜로 표현된 원자 에너지는 다음 식과 같다.

$$E = \frac{1}{2} \sum_{i \neq 0} V(R_i) - A\rho^{1/2} \quad (1)$$

$$\rho = \sum_{i \neq 0} \phi(R_i) \quad (2)$$

여기서 A 는 경험적 상수, R_i 는 두 원자간의 거리, 함수 V 는 repulsive 포텐셜, ϕ 는 cohesive 포텐셜 함수를 의미하고, ρ 함수는 주변 원자에 의한 cohesive 에너지를 나타낸다. Finnis 포텐셜은 기본적으로 두 원자간 거리의 함수로서 R_i 값이 $0.866a_0$ (a_0 : 격자상수) 이상인 경우 유효하고, 그 이하의 거리에서는 Coulomb 포텐셜과 Born-Mayer 포텐셜을 이용한다.

MOLDY 계산에서는 PKA 에너지 값에 따른 제한된 수의 격자원자를 사용해야 하기에 다른 MD 코드와 같이 주기 경계조건(periodic BC)을 이용한다. 즉, 계산 도중 한 원자가 경계면을 벗어난 경우 맞은편의 경계면으로 다시 입사되도록 한다. 모든 원자의 운동을 미분방정식으로 표현하는데 4th order predictor-corrector 알고리즘의 부프로그램으로 수치해를 구한다. MOLDY 코드에는 각 원자의 위치를 초기 격자 원자 위치와 비교하여 점결합의 형태(공공 또는 격자간 원자) 및 그 개수를 결정하는 부프로그램이 내재되어 있어, 이를 이용하여 시간에 따른 점결합 분포를 계산한다.

2.2 반응속도론

반응속도론을 이용한 PDC 결합의 성장 거동에 대한 수학적 모델링은 다른 문헌에 자세히 기술되어 있다^{7,13,14}. 본 연구에서는 기본이 되는 미분방정식에 대하여 설명하였다.

재료내의 공공 v 와 격자간원자 i 의 시간에 따른 평균 농도의 변화는 아래의 식과 같이 간단하게 표현될 수 있다.

$$\frac{dC_v}{dt} = P_v - R_{vi}C_vC_i - D_v \sum_j S_{jv}C_v \quad (3)$$

$$\frac{dC_i}{dt} = P_i - R_{vi}C_vC_i - D_i \sum_j S_{ji}C_i \quad (4)$$

여기서 P_v 는 중성자 충돌에 의한 공공의 생성속도, R_{vi} 는 공공과 격자간원자간의 상호 반응에 의하여 제거되는 속도, D_v 는 공공의 확산속도, S_{jv} 는 전위 등에 의하여 공공이 제거되는 속도를 의미한다. 공공이 제거되는 sink는 전위, 결정립계, 또한 다른 점결함 클러스터 등이다. 모델링의 단순화를 위해서, 단일 공공과 단일 격자간원자만이 확산에 의하여 이동이 가능하다고 가정하였다. 실제 재료에서는 2개 이상의 공공과 격자간원자도 이동이 가능한 것으로 알려져 있다. 이동 가능한 조사결함을 추가로 고려할수록, 조사결함의 농도는 더욱 정밀하게 계산될 수 있다. 하지만, 철강재료와 같이 조성과 미세구조가 복잡한 상용재료에서 2 이상의 크기를 가지는 조사결함의 정확한 이동도와 이동거동을 알기는 매우 어렵기 때문에, 이동가능한 단일 조사결함을 가정하여 계산을 하는 것이 근사적인 방법이라 할 수 있다. Void 및 전위루프는 이동하지 않으며, 구형의 형태를 가진 것으로 가정하였다. 이 때, n 개의 공공 또는 격자간원자를 포함하는 클러스터의 농도, C_{vn} 과 C_{in} 의 크기는 아래 식과 같이 표현될 수 있다.

$$\begin{aligned} \frac{dC_{vn}}{dt} = & P_{vn} + K_{v/vn-1}^f C_v C_{vn} - K_{vn}^b C_{vn} - K_{v/vn}^f C_v C_{vn} + K_{vn+1}^b C_{vn+1} \\ & - K_{i/vn}^f C_i C_{vn} + K_{i/vn+1}^f C_i C_{vn+1} \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} \frac{dC_{in}}{dt} = & P_{in} + K_{i/in-1}^f C_i C_{in} - K_{in}^b C_{in} - K_{i/in}^f C_i C_{in} + K_{in+1}^b C_{in+1} \\ & - K_{v/in}^f C_v C_{in} + K_{v/in+1}^f C_v C_{in+1} \end{aligned} \quad (6)$$

여기서 K^f 는 두 결함종 간의 정방향 반응계수이고, K^b 는 역방향 반응계수이다. 이와 같은 시간에 따른 공공 및 격자간원자 클러스터의 농도변화식은 고려할 결함의 최대 크기에 따라서 최소 500개 정도가 필요하게 되며, 이 농도변화식의 개수가 계산속도에 큰 영향을 미치게 된다.

CRP의 핵생성 장소의 농도는 계산 초기에 결정되어 계속 유지되었으며, CRP의 크기, 즉 반지름의 변화는 공공의 확산에 기인한다고 가정하였다. 이와 같은 CRP 농도 및 크기 변화에 대한 자세한 설명은 다른 문헌에서 확인할 수 있다^{15,16}. PDC와 CRP에 대한 모든 미분방정식은 Fortran으로 작성된 dlsode 패키지를 이용하여 수치적으로 계산하였다.

조사 중에 성장한 PDC와 CRP에 의한 조사경화의 정도는 Orowan의 모델을 이용하여 계산되었다. 이 때, 각 조사결함에 의한 전단응력 변화 $\Delta\tau$ 는 아래와 같이 표현될 수 있다.

$$\Delta\tau^{defect} = \frac{Gb}{\beta l}, (defect = V^{cluster}, I^{cluster}, CRP) \quad (7)$$

여기서 G 는 전단응력계수, b 는 버거스 벡터, β 는 barrier strength, 그리고 l 은 barrier의 평균 거리이다. 조사결함간의 평균 거리는 각 조사결함의 농도와 반지름으로부터 따로 계산하였다. Barrier strength는 크기에 따라서 최종 응력의 변화가 매우 달라지게 된다. 본 연구에서는 PDC의 경우, weak barrier로 계산하여 β 를 5로 대입하였고, CRP는 $\beta=1$ 인 strong barrier로 계산하였다. 항복응력의 변화는 $\Delta YS \approx 3\Delta\tau$ 으로 계산하였으며, PDC와 CRP에 의한 조사경화의 총합은 아래와 같이 계산하였다¹⁷

$$\Delta YS^{total} = \sqrt{(\Delta YS^{vel})^2 + (\Delta YS^{icl})^2 + (\Delta YS^{crp})^2} \quad (8)$$

계산된 항복응력을 한국 LWR의 ΔYS 와 TTS간의 경험식에 대입하여 TTS의 변화를 계산하였다¹⁸.

본 반응속도론 계산에서 가장 중요한 것은 파라미터이며, 본 계산에서 사용된 파라미터를 Table 1에 정리하였다. 이 값들은 Stoller가 제시한 ferritic steel의 파라미터로, 철강재료의 반응속도론 계산에 널리 사용되는 값이다⁷. 각 파라미터 중에 조사결함의 이동속도, 생성속도, 소멸속도에 관련된 파라미터는 장시간에 걸친 조사결함의 농도 계산에서 반복적으로

Table 1 Kinetic and material parameters for calculation

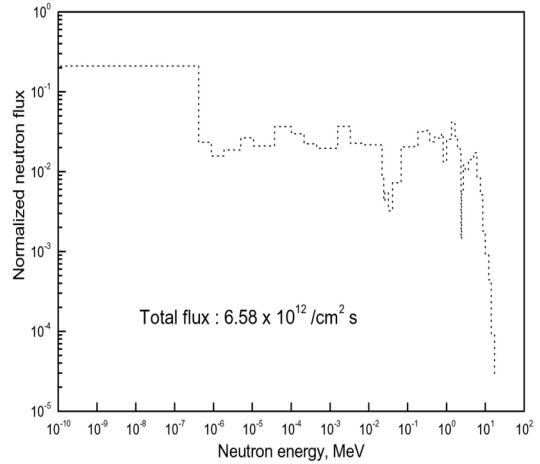
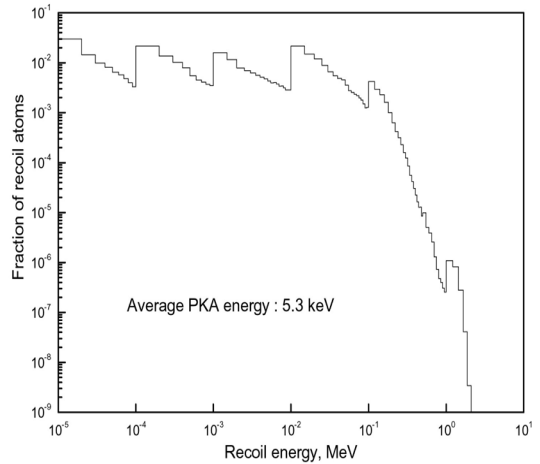
Parameter	Value
Interstitial formation energy(E_f^i)	3.77eV
Interstitial migration energy(E_m^i)	0.25eV
Interstitial pre-exponential factor(D_o^i)	0.05cm ² /s
Vacancy formation energy(E_f^v)	1.55eV
Vacancy migration energy(E_m^v)	1.25eV
Vacancy pre-exponential factor(D_o^v)	0.5cm ² /s
Effective grain diameter(d_g)	0.001cm
Dislocation density(ρ_{dis})	1×10 ¹¹ /cm ²
Dislocation interstitial bias(z_{dis}^i)	1.25
Dislocation vacancy bias(z_{dis}^v)	1
Lattice constant of Fe(a_L)	2.87×10 ⁻⁸ cm
Cascade efficiency(η)	0.1
I clustering fraction($f^1 : f^{i2} : f^{i3} : f^{i3}$)	0.7:0.15:0.10:0.05
V clustering fraction($f^v : f^{v7} : f^{v8}$)	0.7:0.10:0.07
I cluster binding energy($E_b^{i2} : E_b^{i3} : E_b^{i4}$)	0.5:0.75:1.25eV
V cluster binding energy(E_b^{v2})	0.8eV
Copper migration energy(E_m^{Cu})	2.8eV
Copper pre-exponential factor(D_o^{Cu})	300cm ² /s

사용되기 때문에 약간의 변화로도 최종 결과값에 큰 변화를 초래할 수 있다. 본 연구에서는 대부분 파라미터는 Stoller의 것을 이용하였으나, 조사결합의 cluster fraction은 본 연구에서 수행한 MD결과를 고려하여 적용하였다. 비록 이 값들이 이상적인 것은 아닐지라도, 조사결합의 성장거동을 예측하는 데에는 유용하게 쓰일 수 있다.

3. 결과 및 고찰

3.1 초기결합 생성 - MD 계산

초기 점결합의 생성은 중성자 에너지 분포에 의해서 결정된다. 압력용기강의 조사손상을 평가하기 위하여 한빛2호기 압력용기 내면에서의 중성자 스펙트럼을 SPECTER 코드에 입력하였다. Fig. 1은 한빛 원전 압력용기 부근의 정규화(normalized) 중성자 스펙트럼을 보여준다. 에너지 분포를 보면 압력용기 부근에는 열중성자가 고속 중성자보다 상대적으로 많이 분포하고 있다. 그리고 연속 displacement 반응을 야기할 수 있는 1 MeV 이상의 고속 중성자는 총 중성자 가운데 22%를 차지한다. Fig. 1의 중성자 스펙트럼을 SPECTER코드에 입력하여 계산된 PKA 에너지

**Fig. 1** Normalized neutron spectra on the inner surface of a reactor pressure vessel at YG 2**Fig. 2** Energy spectra of primary knock-on atoms of iron. The spectral-averaged PKA energy is 5.3 keV

스펙트럼을 Fig. 2에 나타내었다. 압력용기강은 97% 이상 철 원소로 구성되어 있기에 Fe 원자를 PKA으로 간주할 수 있다.

Fig. 3에 5.3keV PKA에 의한 연속 충돌현상을 시간의 흐름에 따라 나타내었다. 충돌 직후 점결합의 개수가 급격히 증가하여 0.3ps에서 최고점에 이르고 12ps 경과후 평형 상태를 유지하는 것을 확인할 수 있다. 급격히 증가된 점결합은 주변의 반대 형태 점결합과 결합하여 대부분 소멸하고 일부만 남게 된다. 0.3ps에서 1200개 정도 존재한 격자간원자가 12ps 경과후 약 40개 정도 잔존하는 것을 확인할 수 있었다.

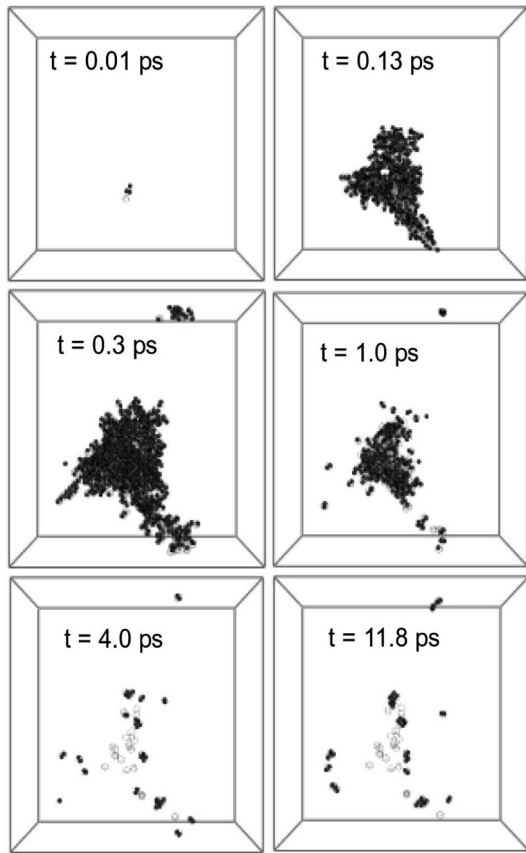


Fig. 3 Evolution of displacement cascade reactions from 5.3keV PKA in iron at 290°C. The calculation block size is $40a_0 \times 40a_0 \times 40a_0$ and the initial PKA direction is [135]. The filled dots are interstitials and the empty dots represent vacancies

주어진 PKA 에너지에 대하여 PKA의 위치 및 초기 운동 방향을 변화시키며 총 여섯 번의 MD 계산을 수행하고, 평형상태에서 잔존하는 점결함 분포를 통계 처리하였다. PKA 위치 및 운동방향에 따른 변화는 크지 않았다. Fig. 4는 초기결함의 개수 분포를 나타내는데 결함 종류에 따라 다른 경향을 보여준다. Fig. 4 (a)는 공공 결함의 개수 분포를 보여주는데 생성된 결함의 70% 정도는 단일 공공(single vacancy) 형태로 존재한다. 반면에 격자간원자는 단일 형태의 결함이 약 30%를 차지한다(Fig. 4(b)). MD 계산에서 생산된 자료는 식 (3), (4)에서 중성자 충돌에 의한 조사결함의 생성속도 P 를 계산하는데 사용되었다. 특히 반응속도론 전산모사에서 V cluster fraction의 값을 정하는데 응용되었다.

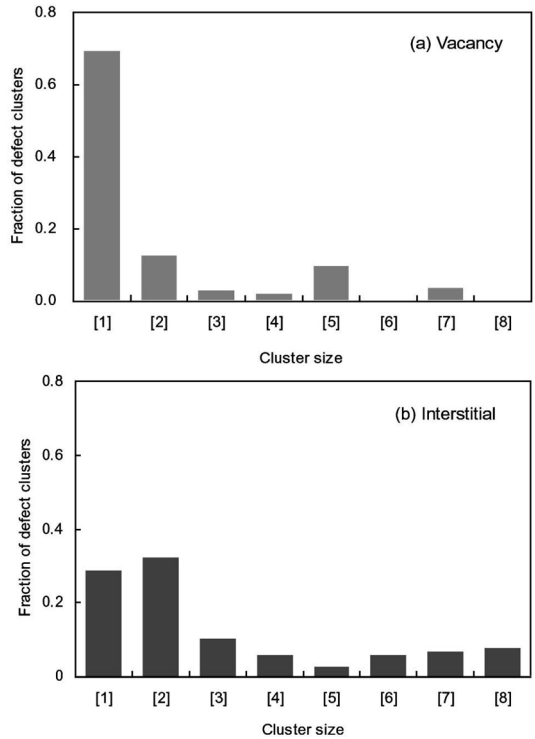


Fig. 4 Distribution of residual point defects after displacement cascade reactions: (a) Vacancy and (b) Interstitial. The data displayed above is averaged over six MD simulations at a PKA energy of 5.3 keV.

3.2 조사결함의 성장 거동

Fig. 5은 시간에 따른 미세구조 내의 조사결함의 성장 거동을 나타낸 그림이다. 본 결과를 얻기 위한 전산모사 구동 조건은 한빛2호기의 운전조건을 이용하였다. 이때, Cu 조성은 0.047wt%, 조사온도는 291°C, 중성자속은 1.761×10^{10} dpa/s로 고정하였고, 계산시간은 4.145×10^8 s까지 진행하였다. 먼저, 단일 공공과 단일 격자간원자 그리고 10, 50, 450개의 격자간원자를 포함하는 클러스터의 시간에 따른 농도변화를 분석해 본 결과, 단일 공공 및 단일 격자간원자의 농도는 1×10^{-7} s까지 축적이 일어났다. 이는 점결함의 농도가 매우 낮아서, sink에서 제거되거나 점결함끼리 상호 결합하여 제거되는 경우가 매우 드물기 때문이다. 이 구간을 지난 후에는, 단일 격자간원자의 농도 C_i 의 농도가 일정하게 유지되는데, 이는 단일 격자간원자의 높은 이동도로 인하여 전위 등의 sink에 빠르게 흡수되어 사라지기 때문이다. 그 동안 c_v 는 계속 증가하여 약 4×10^{12} n/cm³까지 도달하였다. 최종적으로

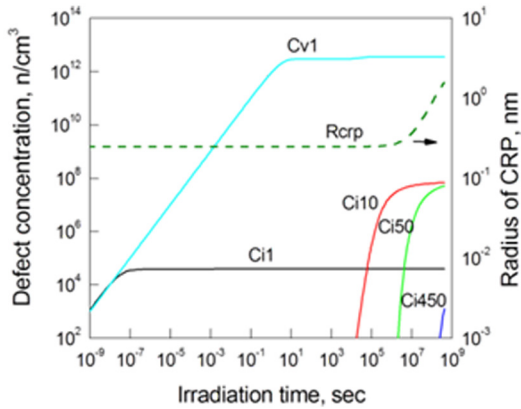


Fig. 5 Concentration evolution of defects and the radius of CRP with irradiation time. The subscript number in the defect cluster concentration represents the number of defects in the cluster.

C_i 은 C_v 에 비하여 매우 낮았는데, 이는 격자간원자의 sink strength bias($z_{dis}^i=1.25$)가 공공에 대한 sink strength bias($z_{dis}^v=1$)에 비하여 크기 때문에, sink에서 더 많이 제거되기 때문이다. 격자간원자를 10, 50, 450개 포함하는 격자간원자 클러스터는 약 1×10^4 sec 이후에 점차 농도가 증가하였다. 이와 같이 조사에 따라 증가하는 결함의 농도 증가는 전위의 이동을 억제하여 조사경화 및 취화의 원인으로 작용하게 된다.

CRP의 경우, 그 크기가 성장하기 위해서는 단일 공공의 확산에 의한 Cu 원자의 이동이 필수적이다. 본 전산모사에서 Cv의 최종값, $4 \times 10^{12}n/cm^3$ 은 저합금강의 평형공공농도에 비하여 매우 높으며, 과포화된 Cu의 빠른 확산을 초래하여 CRP의 성장을 유발하게 된다. Fig. 5에서 확인할 수 있듯이, CRP의 반지름은 1×10^7 s 이후에 빠르게 증가하기 시작하여, 수 나노미터에 도달하게 된다. 이와 같은 CRP의 크기 증가는 조사경화 및 조사취화에 심각한 영향을 미치게 된다. 따라서 저합금강 재료는 base 및 weld 모두 Cu의 농도를 낮추는 것이 매우 중요하다.

3.3 항복응력변화 계산

조사에 따라 성장한 PDC와 CRP는 저합금강의 기계적 특성의 저하를 유발한다. 앞선 결과에서 계산된 PDC의 농도와 CRP의 크기는 Orowan식에 따라 조사에 따른 항복응력변화(ΔYS)를 계산하는데 사용되었다. Fig. 6은 한빛2호기의 조건에서 계산된 ΔYS 와 실제 감시시험을 통하여 측정된 ΔYS 를 나타낸

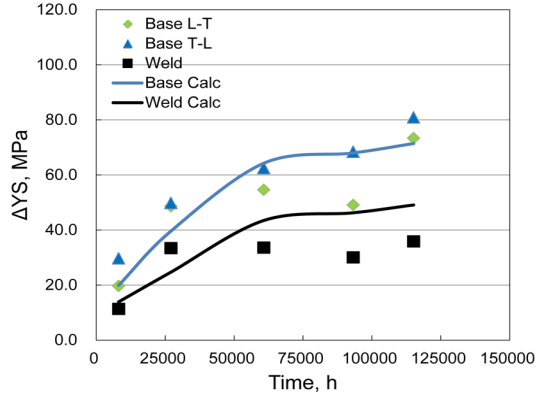


Fig. 6 The yield strength change with increasing irradiation time in YG 2. The copper content was 0.047 wt% in the base steel, and 0.028 wt% in the weld, respectively

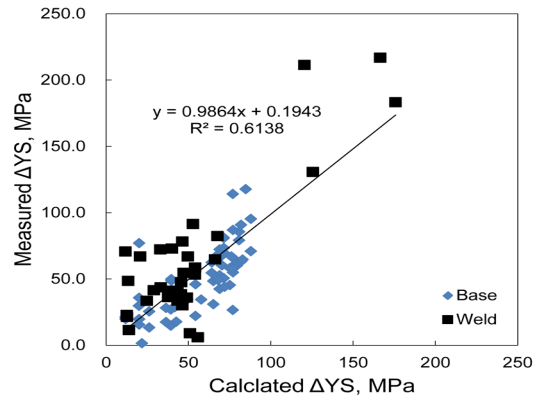


Fig. 7 Scatter plot of calculated ΔYS and measured ΔYS in Korean LWRs

Table 2 Linear Fitting Result between the Calculated and Measured ΔYS

Parameter	Value	Error
A	0.20	5.08
B	0.99	0.08
R ²	0.61	

* Model equation: Measured $\Delta YS=A+B \times$ (Calculated ΔYS)

그림이다. 감시시험 결과는 base재료에서 L-T 방향 및 T-L 방향에 따른 인장 및 충격 특성과 weld 재료의 T-L 방향에 대한 인장 및 충격 특성에 대한 자료를 포함한다. 여기서 주의하여 고려할 점은 base 재료와 weld 재료는 조성 및 미세구조, 공정 조건이 매우 다르다는 것이다. 하지만, 본 전산모사에서는

base와 weld의 차이를 단지 Cu 농도의 변화와 전위 밀도의 변화만을 고려하여 나타내었다. 즉 weld에서는 전위밀도가 1/10로 감소하는 것으로 계산하였다. 이것은 미세구조나 제조공정 등의 변수는 현재 모델링에서 암시적으로(implicitly) 구현되어 명백한 파라미터로 나타나지는 않기 때문이다. Fig. 6에서 볼 수 있듯이, 계산된 결과는 조사재의 특성상 큰 편차에도 불구하고 상당히 유사하게 측정 결과를 재현하고 있다. Weld 재료의 경우, base 재료에 비하여 오히려 ΔYS이 낮았는데, 이는 한빛2호기 weld의 경우, base 보다 낮은 Cu 조성을 가지기 때문이다 (0.028 wt%).

Fig. 7은 고리1-4호기, 한빛1-2호기, 영광 1-2호기 등 총 12기의 경수로 base 재료 및 weld 재료에서 측정된 감시시험 시편의 ΔYS을 전산모사에 의한 계산값과 비교한 그림이다. 각각의 발전소는 운전온도, 조사조건, 재료의 Cu 조성이 각각 다르기 때문에 전산모사 계산값을 위한 입력자료도 변화시키며 계산하였다. Weld 자료 중에 매우 큰 ΔYS를 보이는 포인트를 관찰할 수 있는데, 이는 고리1호기 weld에서 측정된 자료로 다른 시편과 달리 매우 높은 Cu량, 0.22 wt%를 함유하고 있어서, CRP에 의한 심각한 조사경화가 발생했기 때문이다.

Table 2는 계산된 ΔYS와 측정된 ΔYS간의 회귀분석을 한 결과를 나타낸 것으로, 비례상수 B는 0.99이고 결정계수는 0.61이었다. 결정계수 R²가 1에 근접할 수록 모델은 높은 예측력을 가지게 된다. 결정계수가 상대적으로 낮게 나온 데에는 감시시험 결과의 특성상 시편 별로 높은 편차를 지니기 때문이다. 대조적으로 비례상수는 거의 1에 근접하였으며, 이는 계산을 통한 예측이 실험값에 비하여 특별히 과도하거나 과소하게 나타나지 않았음을 의미한다. 그림에서, base 재료의 ΔYS 계산값은 ΔYS 측정값에 비하여 약간 크게 비하여, weld 재료의 경우 ΔYS 계산값이 ΔYS 측정값보다 약간 작았다. 이러한 경향은 경향은 본 연구에서 사용된 모델링이 base와 weld간의 차이를 Cu 조성만의 차이로 단순화한 것에 기인한 것이며, 이를 개선하기 위해서는 미세구조의 영향을 고려한 모델링이 필요하다.

3.4 TTS 변화량 예측

압력용기강에서 조사경화와 조사취화는 서로 상관관계가 관계가 있으며, 한국 경수로에서는 ΔYS와

TTS간에 아래의 관계식이 존재하는 것으로 분석되었다¹⁸⁾.

$$TTS \approx (0.49^{\circ}\text{C}/\text{MPa}) \cdot \Delta\text{YS} \quad (\text{in base metal}) \quad (8)$$

$$TTS \approx (0.58^{\circ}\text{C}/\text{MPa}) \cdot \Delta\text{YS} \quad (\text{in weld metal}) \quad (9)$$

위의 관계식을 이용하여 전산모사로 계산된 ΔYS를 TTS를 변화하여 조사에 따른 영향을 평가하였다.

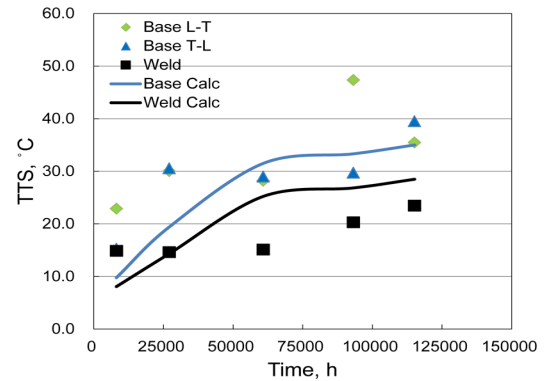


Fig. 8 TTS change with increasing irradiation time in YG 2. The copper content was 0.047wt% in the base steel, and 0.028wt% in the weld, respectively

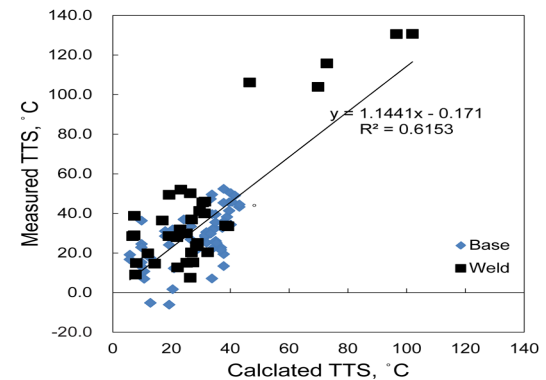


Fig. 9 Scatter plot of calculated TTS and measured TTS in Korean LWRs

Table 3 Linear Fitting Result between the Calculated and Measured TTS

Parameter	Value	Error
A	-0.17	3.09
B	1.14	0.09
R ²	0.62	

Model equation: Measured TTS=A+B(Calculated TTS)

Fig. 8은 한빛2호기에서 추정된 TTS와 측정된 TTS 간의 비교를 나타낸 그림이다. 추정된 TTS와 측정된 TTS 간의 차이는 ΔYS 결과에 비하여 더욱 편차가 큰 것으로 보인다. 하지만, 조사량에 따른 전체적인 증가 양상은 어느 정도 일치하는 것으로 보인다. Fig. 9에 12기의 한국 경수로에서 측정한 TTS 결과와 TTS 추정값과의 상관관계를 나타내었다. Base 재료의 경우, 추정된 TTS가 측정된 TTS에 비하여 하단에 존재하였으며, weld 재료의 경우, 반대의 거동을 보였다. 측정값과 추정값 간의 상관관계는 표 3에 요약하였다. 비례계수는 1.14까지 올라갔는데, 이는 같은 조건에서 추정값 보다 측정값이 더 높게 나오는 것으로, 추정치가 TTS를 과소평가한다는 것을 의미한다. 이와 같은 경향은 매우 높은 TTS를 보이는 고리1호기 weld의 결과가 전체 통계값에 상당한 영향을 미쳤기 때문으로 보인다. 결정계수는 ΔYS 결과와 유사하였다.

본 예측 결과는 실제 결과를 완전하게 재현하지는 못하였지만, 멀티스케일 모델링을 이용하여 압력용기 재료의 조사손상을 정량으로 예측하는데 유용하게 사용될 수 있음을 알 수 있다. 장기 예측력과 정밀도를 높이기 위해서는 미세구조를 고려한 진보된 모델과 파라미터가 필요할 것으로 사료된다.

4. 결론

멀티스케일 모델링 중 분자동력학과 반응속도론을 이용하여 압력용기강의 조사경화와 조사취화에 대하여 모델링을 구현하였다. 모델을 통하여 계산된 결과를 한국 경수로의 감시시험 결과와 상호 비교하여 그 상관관계를 분석하였다. 항복응력 변화량의 경우, 모델을 통한 계산값이 측정값을 상당히 유사하게 재현하였다. TTS의 경우, 추정된 값이 실험값보다 과소하게 나타났다. 정량분석의 정밀도를 높이기 위해서는 미세구조를 고려한 추가적인 모델링이 필요하다

후 기

This work was supported by the National Research Foundation of Korea (NRF) grant funded by the Korea government (MSIP). [2012M2A8A4025886]

참고문헌

1. Odette G. R. and Lucas G. E., 2001, "Embrittlement of nuclear reactor pressure vessels," *JOM - J. Min. Met. Mat. S.*, Vol. 53, pp. 18-22.
2. Fisher S. B. and Buswell J. T., 1987, "A model for PWR pressure vessel embrittlement," *Int. J. Pres. Ves. & Piping*, Vol. 27, pp. 91-135.
3. Fu C.-C., Torre J. D., Willaime F., Bocquet J.-L., and Barbu A., 2005, "Multiscale modeling of defect kinetics in irradiated iron," *Nat. Mater.*, Vol. 4, pp. 68-74.
4. Lee K.-R., Lee S.-C., Lee S.-H., Kim S.-P., Seo Y., and Lee K.-H., 2003, "Nanotechnology and computational materials simulation," *J. Kor. Powder. Metall. Inst.*, Vol. 10, pp. 71-82.
5. Stoller R. E., Golubov S. I., Domain C., and Becquart C. S., 2008, "Mean field rate theory and object kinetic Monte Carlo: A comparison of kinetic models," *J. Nucl. Mater.*, Vol. 382, pp. 77-90.
6. Finnis M. W., 1988, "MOLDY6-A molecular dynamics program for simulation of pure metal," *Harwell Report AERE R-13182*.
7. Stoller R. E., 1992, "Modeling the influence of irradiation temperature and displacement rate on radiation-induced hardening in ferritic steels," *USNRC Report NUREG/CR-5859*, Oak Ridge National Lab.
8. Mansur L. K., 1994, "Theory and experimental background on dimensional changes in irradiated alloys," *J. Nucl. Mater.*, Vol. 216, pp.97-123.
9. Radiguet B., Barbu A., and Pareige P., 2007, "Understanding of copper precipitation under electron or ion irradiations in FeCu0.1 wt% ferritic alloy by combination of experiments and modelling," *J. Nucl. Mater.*, Vol. 360, pp. 104-117.
10. Gokhman A., Bergner F., Ulbricht A., and Birkenheuer U., 2008, "Cluster dynamics simulation of reactor pressure vessel steels under irradiation," *Defect Diffus. Forum*, Vol. 277, pp. 75-80.
11. Greenwood L. R. and Smith R. K., 1985, "SPECTER: Neutron Damage Calculations for Materials Irradiations," *ANL/FPP/TM-197*, Argonne National Laboratory.
12. Finnis M. W. and Sinclair, J. E., 1984, "A simple empirical N-body potential for transition metals," *Phil. Mag. A*, Vol. 50, pp. 45-55.
13. Kwon J., 1999, "The Effect of Irradiation on BWR Core Shroud Cracking," *PhD Thesis*, The Pennsylvania State University.

14. Christien F. and Barbu A., 2004, "Modelling of copper precipitation in iron during thermal aging and irradiation," *J. Nucl. Mater.*, Vol. 324, pp. 90-96.
15. Lucas G. E., Odette G. R., Lombrozo P. M., and Sheckherd J. W., 1985, "Effects of composition, microstructure, and temperature on irradiation hardening of pressure vessel steels," *Effects of Radiation on Materials ASTM STP 870*, pp. 900-930.
16. Kwon J., Kwon S. C., and Hong J.-H., 2003, "Prediction of radiation hardening in reactor pressure vessel steel based on a theoretical model," *Ann. Nucl. Energy*, Vol. 30, pp. 1549-1559.
17. Lucas G. E., 1993, "The evolution of mechanical property change in irradiated austenitic stainless steels," *J. Nucl. Mater.*, Vol. 206, pp.287-305.
18. Lee G.-G., Lee Y. B., and Kwon J., 2012, "Relationship between radiation induced yield strength increment and Charpy transition temperature shift in reactor pressure vessel steels of Korean nuclear power plants," *Nucl. Eng. Technol.*, Vol. 44, pp. 543-550.