2001 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

감마선 조사된 원자로 냉각펌프 축 밀봉 재료의 기계적 특성

Mechanical Properties of Material for Reactor Coolant Pump Seal Irradiated with Gamma Ray

이호진, 김기백, 조해동, 박지연

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

원자로 냉각펌프 (Reactor Coolant Pump) 의 축 밀봉(seal) 재료로 사용되고 있는 알루미나에 대하여 운전 중 10 년 동안 받을 수 있는 전체 조사선량 10 Mrad 의 감마선을 조사한 후 굽힘 강도 및 인성 그리고 밀도 변화를 확인하였다. 99.7 wt% 알루미나의 경우 10 Mrad 감마선 조사 후 재료의 인성과 밀도 변화는 거의 확인 할 수 없었으며, 감마선 조사 후 100 °C 의 물에서 48 시간 유지시킨 시편의 경우 굽힘 강도가 약간 감소하는 것을 확인할 수 있었다. 굽힘 강도의 감소는 감마선 조사의 영향보다는 100 °C 물에 의해 알루미나 입자를 결합시키고 있는 실리케이트 (silicate) 의 부식 손실에 의한 것으로 예상되었다.

Abstract

The variations of flexural strength, toughness and density of alumina used as reactor coolant pump mechanical seal were measured after gamma ray irradiation of 10 Mrad which was the equivalent of 10 year irradiation of reactor coolant pump in operation. After irradiation of gamma ray the changes of toughness, and density were negligible in case of 99.7 wt% alumina. After irradiation and stay in 100 °C water for 48 hour, the flexural strength of the alumina reduced a little. This change of flexural strength was expected to be resulted from the dissolution of silicate located between alumina granules by 100 °C water.

1. 서 론

경수로의 원자로 냉각펌프는 발전소의 운전 신뢰성에 영향을 주는 중요한 장치이다. 지금까지의 보고에 의하면, 펌프의 여러 부분 중에서 축을 밀봉하는 씰 (seal) 의 기능이 펌프의 운전에 큰 영향을 주고 있는 것으로 알려져 있다[1]. 원자로 냉각펌프의 미케니칼 씰 (mechanical seal) 재료로 세라믹 재료인 알루미나 (Alumina : Al_2O_3)가 사용되고 있으며, 운전 수명 시간을 설정하여 주기적으로 씰을 교체하고 있다. 최근 원자력 발전의 효율을 높이기 위해 장 주기 운전에 대한 연

구가 진행됨에 따라, 씰의 수명 연장을 위해 정확한 물성 연구와 새로운 씰 재료의 개발이 수행되고 있다.

일반적으로 세라믹 재료는 고온에서 안정하며 좋은 내마모성을 가지고 있으므로 경수로의 경우 펌프의 씰 (seal), 밸브, 단열재 등의 주로 기능성 재료로 많이 사용되고 있다. 세라믹 재료의 경우 금속 재료보다 내마모성, 내 부식성 그리고 내 방사성 특성이 뛰어나므로 경수로 조건과 같이 가혹한 조건에 사용하는 경우 좋은 효과를 나타낼 수 있을 것으로 기대하고 있으나, 기계적으로 취약하므로 현재까지는 신뢰성을 요구하는 일차계통의 경우 원자로 냉각펌프의 씰 재료 이외에는 많이 사용되지 않고 있다. 최근에는 재료의 인성이 비교적 좋은 실리콘 카바이드 (SiC), 실리콘 나이트라이드 (Si_3N_4) 와 같은 재료들이 개발되거나, 혹은 그 특성을 점차 향상시킴으로써 사용영역을 넓히고 있다. 또한 세라믹 섬유를 이용한 복합재료를 가공함으로써 원자로와 같이 보수적인 설계를 요구하는 분야에서도 사용 가능성은 높게 예상되고 있다.

원자로 냉각펌프의 축 밀봉 재료로 사용되는 알루미나는 원자로 압력 용기 외부에 위치하므로 중성자 조사에 대한 영향은 적으나 계속적으로 감마선 조사 (gamma ray irradiation) 를 받고 있으며, 또한 고온의 물에 항상 접촉하고 있으므로 상온 또는 조사 받지 않은 재료에 비해 운전 중 그 특성이 변화할 수 있다. 본 연구에서는 원자로 냉각펌프가 10 년 동안 받을 수 있는 감마선을 알루미나에 조사하고 기계적 강도를 측정하였으며, 이와 함께 100 ℃ 의 물 속에 재료를 유지시킨 후 기계적 강도의 변화를 측정함으로써 축 밀봉 재료의 안정성을 확인하고자 하였다.

2. 원자로 냉각펌프의 축 밀봉 계통

경수로의 원자로 냉각펌프 축 밀봉 계통은 표 1 과 같은 사양을 만족하도록 제작 운전되어야 한다. 오염된 일차계통의 냉각수 누출을 최소화하기 위해, 씰을 여러 단계로 설치하여 원자로 계통 냉각수의 압력을 점차적으로 감소시키고, 씰의 온도를 낮추기 위한 냉각계통을 설치하여 축을 통한 누출을 방지하고 있다.

표 1. 축 밀봉 계통의 운전 사양[1]

Parameter	Operating condition
Start-up pressure	> 20 bar
Differential pressure	155 bar (max)
Speed up	2000 rpm (max)
Operating temperature	100°C (max)
Temperature gradient	35°C (max)
Water pH	4 - 11

ANERI (Advanced Nuclear Equipment Research Institute) 프로그램에서 수행된 원자로 냉각펌프의 축 밀봉 재료인 알루미나의 감마선 조사에 대한 연구 결과에 의하면 가압 소결된 알루미나의 경우 감마선 조사 후 미세한 중량 변화가 발생하였으며, 강도에 대해서는 거의 영향이 없는 것으

로 알려져 있다[3]. 그러나 이에 대한 정확한 자료 및 실험조건에 대해서는 알 수 없으며, 세라믹 재료의 인성 변화에 대한 결과를 얻지 못하였으므로 본 실험에서는 펌프의 밀봉 계통이 10 년간 받을 수 있는 감마선을 알루미나에 조사시킨 후 강도 및 인성에 대한 결과를 측정하였다. 또한 감마선 조사를 받으면서 고온의 물과 접촉하고 있으므로 이에 대한 영향을 확인하기 위해 감마선 조사 후 100°C 물 속에 유지시킨 후 강도 변화를 확인하였다.

3. 시편 제조 및 실험

실험에 사용된 알루미나는 상압 소결로 제조되었다. 알루미나 분말과 PVA, PGE 결합재와 분산재를 넣은 후 볼 밀링 (ball milling) 한 후 스프레이 드라이어 (spray dryer) 로 분말을 회수하여 가압 성형한 후 1650 °C에서 2 시간 유지시켜 제조하였다. 제조 후 제작 회사에서 측정한 성분 분석은 표 2 와 같다.

표 2. 시편의 성분 분석

성 분	중량비 (wt%)
Al2O3	99.7
SiO2	0.05
MgO	0.05
CaO	0.01
remainder	0.19

제조된 시편의 표면 상태는 그림 1과 같으며, 비교적 표면의 연마 정도가 낮은 것을 알 수 있다.

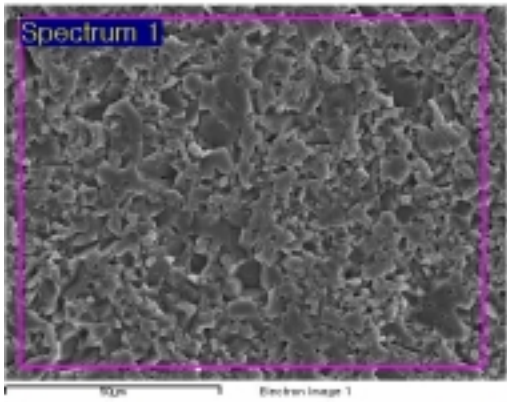

그림 1 99.7 wt% 알루미나 굽힘강도 시편의 표면 현미경 사진 및
EDX를 이용한 성분 측정 범위

굽힘 강도 (Flexural strength) 측정을 위해 폭 5.5 mm, 두께 1.6 mm. 스팬 (span) 길이 30 mm, 총 길이 46 mm 인 3 점 굽힘 시편을 제작했으며, 인성 측정을 위해 폭 4.1 mm, 두께 5.1 mm, 총 길이 30 mm, 그리고 0.38 mm 이하의 틈이 있는 셰브론 노치 (Chevron notch) 시편을 제작하였다. 인성 시편은 4 점 굽힘 방법으로 인성을 측정하였으며, 내부 스팬은 11.25 mm, 외부 스팬은 21.50 mm 였다[4]. 재료 측정장치 Instron 의 램 (ram) 속도는 0.1 mm/min 으로 하였으며, 시편 표면은 400번까지 연마하였다.

감마선 영향을 확인하기 위해 Co 선원을 이용하여 상온에서 선량 율 6.26 x 10^5 rad/hr 의 속도로 시편에 총 10 Mrad 를 조사시킨 후 시편의 밀도, 굽힘강도, 그리고 인성을 측정하였으며, 고온 물 속에서의 시편 물성 변화를 확인하기 위해 100 °C 물에 시편을 48 시간 유지시킨 후 굽힘 강도를 측정하였다.

4. 결과 및 토의

10 MRad 의 감마선 조사를 받은 시편은 색이 갈색으로 변화하였으며, 시편의 방사선량을 측정했으나 측정되지 않았다. 시편에 10 MRad 의 감마선을 조사시킨 후, 재료에 공극 (pore) 생성이나 혹은 손상 정도를 확인하기 위해 밀도의 변화를 측정하였다. 감마선 조사 전 시편의 밀도는 3.824 g/cm^3 정도였으며, 조사 후 시편의 밀도는 3.837 g/cm^3 정도로 약간 증가된 것으로 측정되었다. 일본 ANERI 프로그램의 경우 감마선 조사 후 알루미나의 경우 미소 중량, 즉 0.002-0.008 g_f/cm^3 의 무게 감소가 있다고 보고되고 있으나, 실험 결과는 오히려 중량이 증가하였다. 부력 방법을 이용한 밀도 측정의 경우 소수점 2 자리에서 값이 변하고 있었으며, 따라서 값의 차이는 측정오차에 의한 것으로 보여진다. 측정된 중량 변화 혹은 보고된 중량 변화를 고려하는 경우 그 값은 매우 미소하며, 이 정도의 값으로는 펌프의 씰 형상에 변형을 일으키지 않을 것으로 예상할 수 있었다.

셰브론 노치 시편으로 감마선 조사 전 재료의 인성을 측정한 결과 14.46 $kg_f \cdot mm^{3/2}$ 의 값을 얻었으며, 조사 후 측정한 결과 14.14 $kg_f \cdot mm^{3/2}$ 값을 얻었다. 측정오차를 고려하는 경우 인성의 변화는 거의 없는 것으로 생각되었다.

알루미나와 같은 세라믹재료의 경우 제조 중에 불순물이 침투할 가능성이 많으며, 이러한 불순물에 의해 재료의 부식성이 영향을 받는 것으로 알려져 있다. 이러한 불순물 중에서 특히 실리케이트 (silicate) 는 알루미나 입자사이에 존재하여 알루미나의 강도 및 부식 특성에 영향을 준다. 여러 가지 부식조건에서 저 순도 알루미나의 경우 입자 사이에 있는 많은 량의 실리케이트들이 부식되어 강도에 큰 영향을 주게된다. 고 순도 알루미나의 경우도 역시 소량이기는 하나 입자사이에 존재하는 불순물 특히 실리케이트에 의해 부식 특성에 영향을 받는 것으로 알려져 있다[5][6].

원자로 냉각펌프의 밀봉 재료는 감마선 조사뿐만 아니라 최고 100°C 물과 접하고 있으므로, 물에 의해 불순물이 부식 용출될 수 있다. 그림 2 는 고압용기 (autoclave) 에 증류수와 시편을 넣은 후 100 °C 로 가열한 후 각각의 유지 시간에 따라 시편에 남아 있는 Si 성분 량을 나타내고 있다. Si 량은 그림 1 과 같이 알루미나 표면의 약 100 μm x 100 μm 영역에서 EDX (Energy Dispersive X-ray Spectrometer) 를 사용하여 측정하였다. EDX를 사용하여 표면의 Si 성분을 측정한 이유는 시편 표면에서의 부식 정도가 시편의 굽힘 강도에 큰 영향을 줄 것으로 예상했기 때문이다. 99.7 wt% 알루미나의 경우 미량의 Si 불순물을 가지고 있으므로 그림 2 에서 보듯이 유지 시간에 따른 Si 의 변화량을 정확하게 측정하기 어려웠다. Si 의 부식 용출 량을 예상하기 위해 96 wt% 알루미나를 이용하여 Si 의 유출 량을 측정한 결과, 그림 2 에서 보듯이 100 °C 의 물

에서 48 시간 유지 후 약 80 % 정도의 Si 가 부식 용출되는 것을 확인할 수 있었다.

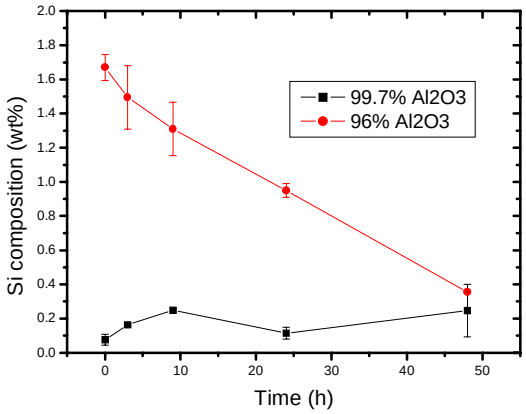

그림 2 알루미나 시편을 100℃ 물 속에 유지시키는 경우
유지 시간에 따른 시편 표면에서의 Si 변화 곡선

그림 3 은 99.7 wt% 알루미나의 감마선 조사 전 시편, 감마선 조사 후 시편, 감마선 조사 없이 100 ℃에서 48 시간 유지시킨 시편, 감마선 조사 후 100 ℃ 에서 48 시간 유지시킨 시편들의 굽힘 강도의 변화를 나타내고 있다. 96 wt% 시편의 경우 48 시간 유지 후 초기 값의 약 80 % 정도의 Si 의 손실이 측정되었으므로, 이 정도의 시간이면 99.7 wt% 시편의 강도에도 영향을 줄 수 있을 것으로 예상하였다. 각각의 경우에 대하여 5 개씩의 시편을 사용하였으며, 측정 결과 측정치의 분산 정도가 커 표준 오차 바(standard error bar) 를 함께 구하여 비교하였다.

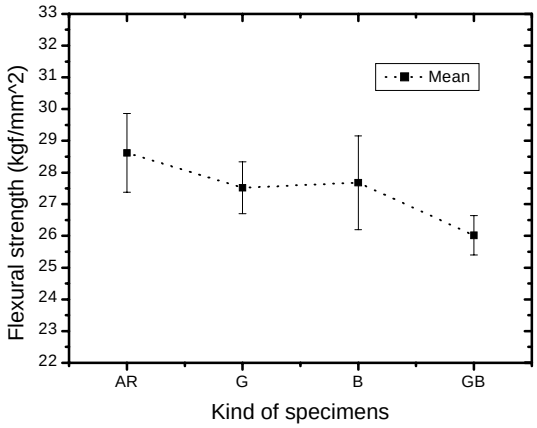

그림 3 감마선 조사 전, 감마선 조사 후, 100 ℃ 의 물속에 유지시킨 후,
그리고 감마선 조사 후 100 ℃ 의 물속에 유지시킨 후의 알루미나
시편의 굽힘강도 비교

그림 3 의 결과에 의하면 초기 시편에 비해 감마선 조사 후 , 그리고 고온의 물 속에 유지시킨 후 미소한 강도 감소가 측정되었으나, 오차의 범위를 고려하는 경우 확실하게 감소되었다고 정의하기는 어렵다. 조사 후 고온의 물 속에 유지시킨 시편의 경우 굽힘 강도 값이 감소하는 것으로 측정되었다. 평균값이 28.6 kg_f/mm^2 에서 26.02 kg_f/mm^2 으로 감소하였으나, 감소율은 약 9 % 정도로 큰 변화를 보이지는 않았다. 이와 같은 강도의 감소는 지금까지의 연구 발표에 의하면 감마선의 영향보다는 고온 물 속에서의 불순물 부식에 의한 영향으로 예상된다[6].

그림 3 의 결과로부터 세라믹 재료의 불 균질성을 고려하는 경우, 각각의 경우에 대하여 강도의 커다란 변화를 나타내고 있다고 보기 어려우며, 따라서 원자로 냉각 펌프의 실 재료로 사용하고 있는 고 순도 알루미나의 경우 10 Mrad 의 감마선, 그리고 100 ^{o}C 정도의 물 속에서 안정한 재료로 평가 될 수 있다.

5. 결 론

원자로 냉각펌프의 축 밀봉 재료로 쓰이고 있는 알루미나에 대하여 운전 중 10 년 동안 받을 수 있는 전체 조사선량 10 Mrad 의 감마선을 조사한 후 굽힘 강도 및 인성 그리고 부피 변화를 확인하였다. 99.7% 알루미나의 경우 10 Mrad 감마선 조사 후 재료의 인성 및 밀도 변화는 거의 확인 할 수 가 없었다. 감마선 조사 후 100 ^{o}C 에 48 시간 유지시킨 재료의 경우 약간의 강도 감소가 측정되었으나, 재료의 불 균질성을 고려하는 경우 강도의 커다란 변화를 나타내고 있다고 보기 어려우므로 원자로 냉각 펌프의 축 밀봉 재료로 사용하고 있는 고 순도 알루미나의 경우 안정한 재료로 평가 될 수 있다.

감사의 글

본 연구는 “ 원자력 연구개발 중장기 사업과제 ” 의 지원으로 수행되었습니다.

참고 문헌

1. H. Gottschalk-Gaudig, et al., "Developing reliable coolant pump seals for light water reactors", Kerntechnik 51, pp237-240, 1987
2. V. N. Shah, et al., Aging and life extension of major light water reactor component, Elsevier, pp343-370, 1993
3. Shigeo NAKAHIGASHI, "경수로 기기 부품으로의 세라믹스계 신소재 적용“, 원자력공업, 제 37 권, 제 1호, pp36-48, 1991
4. R. T. Bubsey, et al. "Development of plane strain fracture toughness test for ceramic using Chevron notched specimens", Ceramics for high-performance application, Army Material Technology Conference, Plenum, pp753-771, 1983
5. E. Dorre, et al., Alumina : processing, properties, and applications, Material Research and Engineering (MRE), Springer-Verlag, pp216-220, 1984
6. Satoshi Kitaoka, et al. "Tribological Charateristics of α-Alumina in High-Temperature Water", J. of the American Ceramic Society, Vol. 75, pp3075-3080, 1992