000 년추계학술발표회논문집
한국원자력학회

월성 1 호기 압력관에서 중성자 조사에 따른 전위 및 b-Zr 의 상분해 거동

Evolution of dislocations and decomposition of b-Zr with neutron irradiation in the Zr-2.5Nb pressure tube irradiated in Wolsong Unit 1

김영석, 임경수, 김성수, 안상복, 주기남
한국원자력연구소, 대전시 유성구 덕진동 150 번지

요약

월성 1 호기 원자력발전소에서 10 년 동안 가동되어 264-305.6 °C 온도에서 최대 $8.9\times10^{25} nm^{-2}$ 중성자 조사선량을 받은 M-11 압력관에 대한 미세조직 분석이 투과전자현미경을 사용하여 수행되었다. 중성자 조사는 압력관의 a 형 전위의 농도를 4×10^{14} m^{-2} 에서 최대 7.5×10^{14} m^{-2} 까지 증가시켰으며, 그 증가 정도는 압력관의 온도가 낮은 지점인 Inlet 부위에서 가장 컸다. 또한 5-10 nm 크기의 아주 미세한 a 형 전위의 loop 도 관찰되었다. 그러나 c 형 전위의 농도는 조사 전. 후에 별로 변하지 않은 것으로 나타났으며, 0.8×10^{14} m^{-2} 로 적게 나타났다. 조사재 압력관에서는 비조사재 압력관과는 달리 α-Zr 입자 내에 균질하게 석출된 4-4.7 µm 크기의 미세한 β-Nb 입자들이 관측되었다. 중성자 조사는 Outlet 지점에서의 β-Zr 내의 Nb 농도를 최대 55 wt.%까지 증대시켰으나 중성자 선량이 가장 큰 Middle 지점에서는 오히려 Nb 농도의 증가가 억제되었다.

ABSTRACT

TEM examination was successfully conducted for the first time in KAERI on thin foils taken from the inlet, the middle and the outlet of the M-11 tube irradiated with the fluence of up to 8.9×10^{25} nm^{-2} and temperatures of 264-305.6 °C in the Wolsong Unit-1 for 10 years. Irradiation yielded an increase in a-component dislocation density to $7.5\times10^{14} m^{-2}$, which was the highest at the inlet of the tube exposed to 275 °C. Besides, small dislocation loops with the maximum diameter of 5 to 10 nm were observed in the α-Zr grains. In contrast, the c-component dislocation density did not change with irradiation as opposed to that of the as-fabricated tube, keeping an initial dislocation density of 0.7-0.8×10^{14} m^{-2}. Irradiation facilitated the decomposition of β-Zr phase, leading to the enrichment of Nb concentration in the β-Zr phase, which was the highest at the outlet but was suppressed at the middle of the tube with the highest neutron fluence.

2000 년추계학술발표회논문집
한국원자력학회

월성 1 호기 압력관에서 중성자 조사에 따른 전위 및 b-Zr 의 상분해 거동

Evolution of dislocations and decomposition of b-Zr with neutron irradiation in the Zr-2.5Nb pressure tube irradiated in Wolsong Unit 1

김영석, 임경수, 김성수, 안상복, 주기남
한국원자력연구소, 대전시 유성구 덕진동 150 번지

요약

월성 1 호기 원자력발전소에서 10 년 동안 가동되어 264-305.6 °C 온도에서 최대 8.9x10^{25}nm^{-2} 중성자 조사선량을 받은 M-11 압력관에 대한 미세조직 분석이 투과전자현미경을 사용하여 수행되었다. 중성자 조사는 압력관의 a 형 전위의 농도를 4x10^{14} m^{-2} 에서 최대 7.5x10^{14} m^{-2} 까지 증가시켰으며, 그 증가 정도는 압력관의 온도가 낮은 지점인 Inlet 부위에서 가장 컸다. 또한 5-10 nm 크기의 아주 미세한 a 형 전위의 loop 도 관찰되었다. 그러나 c 형 전위의 농도는 조사 전. 후에 별로 변하지 않은 것으로 나타났으며, 0.8x10^{14} m^{-2} 로 적게 나타났다. 조사재 압력관에서는 비조사재 압력관과는 달리 α-Zr 입자 내에 균질하게 석출된 4-4.7 μm 크기의 미세한 β-Nb 입자들이 관측되었다. 중성자 조사는 Outlet 지점에서의 β-Zr 내의 Nb 농도를 최대 55 wt.%까지 증대시켰으나 중성자 선량이 가장 큰 Middle 지점에서는 오히려 Nb 농도의 증가가 억제되었다.

ABSTRACT

TEM examination was successfully conducted for the first time in KAERI on thin foils taken from the inlet, the middle and the outlet of the M-11 tube irradiated with the fluence of up to 8.9x10^{25} nm^{-2} and temperatures of 264-305.6 °C in the Wolsong Unit-1 for 10 years. Irradiation yielded an increase in a-component dislocation density to 7.5x10^{14}m^{-2}, which was the highest at the inlet of the tube exposed to 275 °C. Besides, small dislocation loops with the maximum diameter of 5 to 10 nm were observed in the α-Zr grains. In contrast, the c-component dislocation density did not change with irradiation as opposed to that of the as-fabricated tube, keeping an initial dislocation density of 0.7-0.8x10^{14} m^{-2}. Irradiation facilitated the decomposition of β-Zr phase, leading to the enrichment of Nb concentration in the β-Zr phase, which was the highest at the outlet but was suppressed at the middle of the tube with the highest neutron fluence.

1. 서론

가압중수로 Zr-2.5Nb 압력관은 중성자 조사를 받으면 파괴인성이 감소하고 delayed hydride cracking (DHC) 전파속도가 증대되고, 아울러 길이성장이 일어난다. 그러나 이러한 중성자 조사취

화 현상을 제어하는 주 인자가 무엇인지는 규명되지 않은 상태이며, 아울러 중성자 조사취화 현상을 제어하는 것도 명확히 알려져 있지 않은 상태이다. 중성자 조사취화 현상은 Zr-2.5Nb 재료의 미세조직 변화로 인하여 일어날 것이므로, 중성자 조사에 따른 미세조직의 변화를 규명하는 것이 필요하다. 예를 들어, Zr-2.5Nb 압력관의 길이성장의 가속화 현상은 c-형 전위 농도의 증가와 유관하다고 제시하고 있으며 [1-3], 조사선량에 따른 강도의 증대는, 1x10^{25} nm^{-2} 이상의 조사선량에서 포화되는 a-형 전위농도의 변화 때문에, 선형적으로 증대되는 것이 아니라 포화상태를 보인다고 제시하고있다 [4].

본 연구의 목적은 캔두 Zr-2.5Nb 압력관에서 중성자 조사에 따른 미세조직의 변화를 규명하고, 미세특성과 거시 특성의 상호관계를 파악하여 궁극적으로는 설계수명 동안 압력관의 건전성을 확보하는 것이다. 이를 위하여 국내에서는 월성 1 호기 원자력발전소에서 8.9x10^{25} nm^{-2} 의 중성자 조사를 받은 M-11 압력관을 대상으로 처음으로 TEM 분석을 수행하였으며 그 결과를 제시하였다.

2. 실험방법

월성 1 호기 원자력발전소에서 10 년 동안 가동 된 후 인출된 Zr-2.5Nb 압력관 (W1M11)의 전위밀도, 석출물 생성 및 상변화 등을 국내에서는 처음으로 투과전자현미경으로 조사하였다. 온도 및 중성자 조사에 따른 영향을 보다 명확히 관찰하고자 압력관의 Inlet, Middle 및 oultlet 에서 170 mm 크기로 절단된 원형 링에서 TEM 시편을 채취하였다. 이들 압력관 ring 의 온도 및 중성자 조사선량은 Table 1 에 나타낸 바와 같이 각각 275.4 – 302.1 °C 및 6.84x10^{25} – 8.91x10^{25} nm^{-2} 의 범위로 변화되었다. 비 조사재 시편으로는 W1M11 과 동일 lot (200817Q)의 압력관 off-cut (1970 년대에 제작된 압력관) 에서 채취된 시편이 사용되었으며, 이들의 미세조직 또한 TEM 으로 분석하였다.

c-형 전위를 보다 잘 관찰하기 위해서 압력관의 반경-원주 평면 (길이방향의 수직한 단면)에서 시편을 채취한 후, 직경 3 mm, 두께 0.1 mm 의 TEM 용 박판 시편을 제작하였다. Zr-2.5Nb 시편이 높은 방사능을 보이기에, 박판 시편제작을 반드시 핫셀에서 해야만 하였다. Tenupol-3 twin jet polisher 를 사용하여 10% perchorolic acid + 90% ethanol 용액 및 20 V 의 전압을 가한 상태에서 박판 시편을 jet polishing 하였다. TEM 분석은 Jeol-2000FX (200KeV) 장비를 사용하여 수행하였으며, 명시야, 암시야 및 SADF (Selected Area Diffraction Pattern) 기법을 사용하여, 전위농도, 석출물의 크기 및 Nb 농도를 결정하였다 [5].

3. 결과 및 토의

3.1. 비조사재 압력관의 미세조직

중성자 조사에 따른 Zr-2.5Nb 압력관의 미세조직을 변화를 평가하기 위하여는 조사 전 후의 미세조직을 조사해야 한다. 본 연구에 사용된 조사 전 시편은 W1M11 과 동일 lot 로 제작된 압력관의 off-cut 을 사용하였다. 그림 1 은 조사 전의 Zr-2.5Nb 압력관의 미세조직을 보여준다. 대부분의 α-Zr 결정입자는 원주방향과 반경방향으로 10:1 정도로 원주방향으로 길게 늘어진 모습을 보인다. α-Zr 결정입자 내의 a-형 및 c-형 전위밀도는 각각 4.0x10^{14}, 0.97x10^{14} m^{-2} 이었으며, 이것은 X-ray

로 분석된 결과와 잘 일치한다 [6]. β-Zr 내의 Nb 량은, SADF 로 결정된 d(110)의 격자상수 및 [7]에 제시된 Nb 농도와 격자상수 관계식을 이용하여 구하였으며, 38 at.% Nb 로 나타났다.

3.2. 조사재 W1M11 압력관의 미세조직

압력관의 하부는 핵연료집합체와 접촉하고 있기에 상부보다는 보다 높은 온도을 유지할 것으로 보이며, 실제 측정된 산화막의 두께 결과에 따르면, 하부에 형성된 산화막이 다른 부위보다는 두꺼운 것으로 나타났다 [8]. 마찬가지로 Middle Ring 에서 TEM 시편을 0, 3 시, 6 시, 9 시 방향에서 각각 채취하여 미세조직을 조사하였으나, 위치에 따라 눈에 띌만한 미세조직의 차이는 거의 없었다. 따라서, 모든 TEM 시편은 Inlet, Middle 및 Outlet Ring 의 0 시 지점에서 채취하여 그 결과를 비교하였다. 그림 2 는 조사전의 미세조직과 함께 압력관의 Inlet, Middle 및 Outlet 각 지점에서의 미세조직을 보여준다. 조사 전의 미세조직에 비하여 조사 후의 미세조직은 a-형 전위가 서로 엉켜 있을 정도로 그 농도가 증대되었다는 것을 보여준다. 전위농도는 line intercept method 로 측정하였으며 (그림 3), 온도가 낮은 Inlet 지점이 가장 높은 전위농도 ($7.5x10^{14}$ m^{-2}) 를 갖지만, 온도가 높은 Outlet 지점이 상대적으로 낮은 전위농도 ($5.2x1014m^{-2}$)를 보였다. 특히, a-형 전위 loop 는 그림 3 에 나타난 바와 같이 Inlet 지점에서는 최대 10 nm, Outlet 지점에서는 최대 15 nm 정도로 매우 작게 형성되었으며, 이렇게 작은 a-형 전위 loop 형성은 효율적인 강도증대 효과를 야기시킬 것이다. 따라서 중성자 조사로 인한 강도의 증대 및 파괴인성 감소는 Inlet 부위에서 가장 클 것으로 예상된다. 한편 Griffiths 등은 TEM 이 아닌 X-ray 의 line broadening 방법으로 $1.6x10^{25}$ nm^{-2} 의 중성자 조사 후 Zr-2.5Nb 압력관에서 전위농도를 측정한 결과, Inlet 부위에서 (250 °C) $8x10^{14}$ m^{-2}, 300 °C 의 Outlet 지점에서는 $6x10^{14}m^{-2}$ 로 보고한 바 있다. 따라서 TEM 으로 측정된 $8.9x10^{25}$ nm^{-2} 조사선량을 받은 압력관의 전위농도는 Griffiths [6, 9] 결과와 잘 일치한다. 이러한 결과로 볼 때, Zr-2.5Nb 압력관의 a-형 전위농도는 $1\text{-}2x10^{25}$ nm^{-2} 조사선량 후에는 조사선량에 비례하여 증가하는 것이 아니라, 포화되는 것으로 보인다.

그림 4 는 조사 전 후에 W1M11 압력관의 c-형 전위를 보여준다. 이들 c-형 전위는 prism 박판에서 0002 회절 방향으로 관찰할 때, 직선으로 나타났다. 이들 c-형 전위의 농도는 측정한 결과, 조사 전에는 $0.97x10^{14}$ m^{-2} 이었으며 조사 후에는 위치에 관계없이 $0.8x10^{14}$ m^{-2} 로 중성자 조사에 따른 c-형 전위 농도의 변화는 거의 없었다. 결론적으로 c-형 전위의 농도는 $8.9x10^{25}$ nm^{-2} 조사선량까지는 변화되지 않으며, 이들이 강도 증대에 미치는 영향은 거의 없다고 말할 수 있다. 한가지 주목할 것은 압력관 길이성장의 가속화를 일으키는 c-형 전위의 loop 는 $8.9x10^{25}$ nm^{-2} 조사선량까지는 형성되지 않았다.

중성자 조사에 따른 β-Zr 의 상분해 정도를 평가하고자, W1M11 압력관의 Inlet, Middle 및 Outlet 지점에서 그리고 조사 전 시편에서 β-Zr 내의 Nb 량을 측정하였다. 조사 전 시편에서의 β-Zr 내의 Nb 량은 평형상태인 20% Nb 보다 많은 38 %Nb 을 함유하였다. 중성자 조사는 β-Zr 의 상분해를 촉진시켰으며, 온도가 높은 Outlet 지점에서 가장 빠르게 진행되어 55 at. %Nb 가 β-Zr 내에 농축되었으며, inlet 지점에서 β-Zr 내의 Nb 농도도 48 at.% 이었다. 그러나 중성자 조사선량이 가장 컸던 Middle 지점에서는 β-Zr 내의 Nb 농도는 41at. %로 오히려 Inlet 또는 Outlet 지점에 비하여는 감소하

였다. 이것은 중성자 조사선량이 높으면 오히려 β-Zr 상의 상분해가 오히려 억제될 수 있다는 것을 시사하는 것이며, 이 결과는 Griffiths 가 보고한 결과와 잘 일치한다 [9].

4. 결론

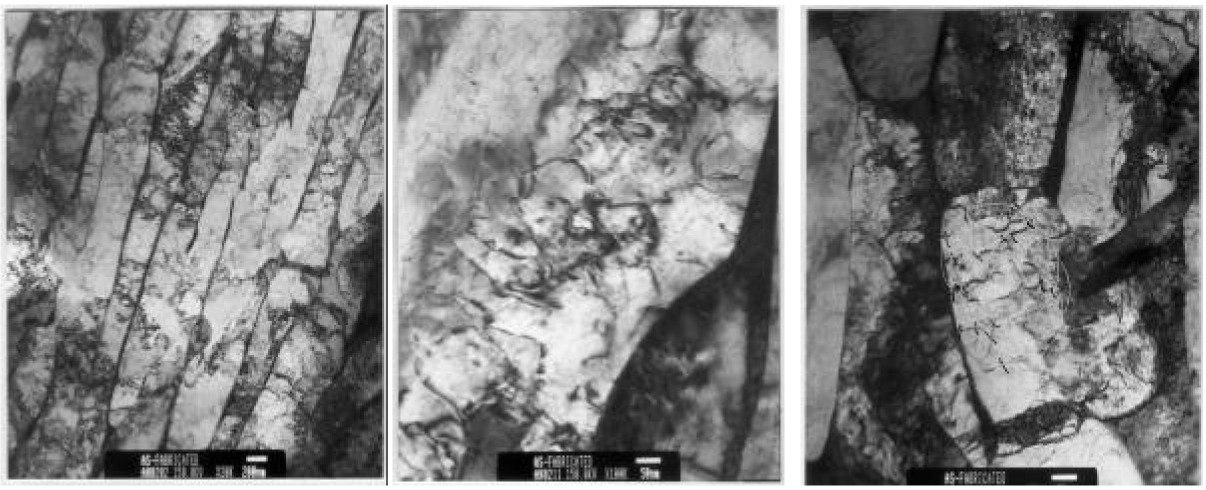
264 – 305.6 ℃ 의 냉각재 온도에서 최대 중성자 조사선량 8.9×10^{25} nm^{-2} 을 받은 월성 1 호기 압력관 W1M11 을 대상으로 중성자 조사 전. 후에 미세조직을 TEM 으로 평가하였다. 중성자 조사는 α-Zr 내에 a-형 전위농도를 최대 2 배 정도 증가시켰으며, 아울러 직경 5-10 nm 크기의 아주 작은 a-형 전위의 loop 도 형성시켰다. 특히, a-형 전위농도는 온도가 낮은 Inlet 지점에서 $7.5 \times 10^{14} m^{-2}$ 로 가장 높고 온도가 높은 Outlet 지점에서 $5.2 \times 10^{14} m^{-2}$ 로 가장 낮았다. 따라서 a-형 전위농도의 증가 경향을 볼 때, 중성자 조사에 따른 압력관의 중성자 조사취화는 Inlet 지점에서 가장 현저하게 나타날 것으로 기대된다. 그러나 c-형 전위 농도는 중성자 조사 전. 후에 거의 차이가 없었으며, $4 \times 10^{14} m^{-2}$ 로 일정하였다. 중성자 조사는 β-Zr 의 상분해를 촉진시켜 β-Zr 내의 Nb 농도가 증가하였으며, 온도가 높은 Outlet 지점에서 Nb 농도는 55 at. %Nb 까지 농축되었다. 그러나 이러한 조사에 따른 β-Zr 내의 Nb 농도 증가는 조사선량이 가장 큰 압력관 Middle 지점에서는 오히려 억제되었다.

감사의 글

본 연구를 위하여 압력관을 현장에서 절단하여 제공해주신 한국전력공사 월성제 1 원자력발전소 기계부의 한봉섭 부장과 반성환 과장 등 여러분에게 감사의 말씀을 드립니다. 본 연구는 과학기술부 원자력 중장기 사업의 중수로 압력관 기술개발 과제의 일환으로 수행된 것으로 연구비 지원에 감사드립니다.

5. 참고문헌

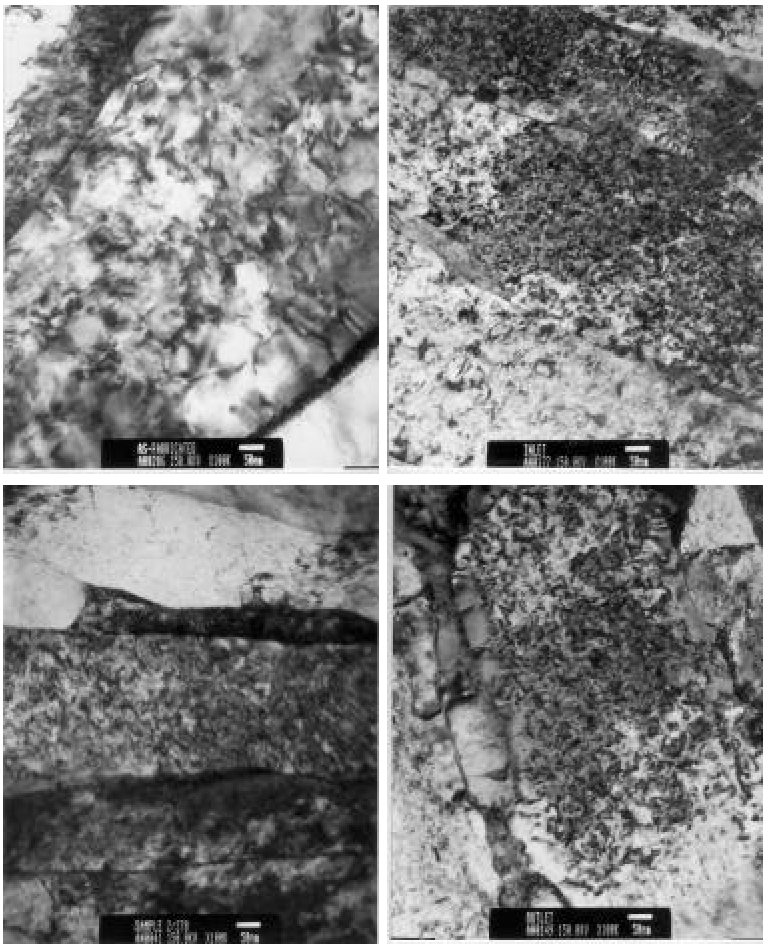
[1] M. Griffiths, R. A. Holt, A. Rogerson, J. Nucl. Mater. 225 (1995)245.
[2] R.A. Holt, A.R. Causey, M. Griffiths, E.T.C. Ho and C.H. Woo, Proceedings of the Eleventh International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1295 (1996) p. 623.
[3] R.A. Holt, A.R. Causey, and C.H. Woo, J. Nucl. Mater. 159 (1988) p.225.
[4] P.H.Davies, R.R.Hobbons, M.Griffiths and C.K.Chow, Proceedings of the Tenth International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1245 (1994) p.135.
[5] Y. S. Kim et al, Analysis of the Microstructure of the Zr-2.5%Nb Pressure Tube Irradiaated in Wolsong Unit 1 using TEM Method, KAERI Report, KAERI/TR-1490/2000, 2000.
[6] V.F.Urbanic and Griffiths, Proceedings of the Twelfth International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1354 (2000) p. 641.
[7] G.B.Grad, J.J.Pieres, A. F. Guillermet, G.J.Cuello, R.E.Mayer and J.R.Granada, Zeitschrift fur Metallkunde, 86 (1995) p.395.
[8] Y. S. Kim et al., Korea Institute of Nuclear Safety, KINS Report, KINS/AR-560, 2 (1999) p. 113.
[9] M. Griffiths, J.F. Mecke, and J.E.Winegar, Proceedings of the Eleventh International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1295 (1996) p.580.



(a) (b) (c)

Fig. 1. Microstructures of the unirradiated Zr-2.5Nb tube made of the same lot as that of W1M11 tube: (a) grain structures, (b) <a> component dislocations and (c) <c> component dislocations.

(a) (b)



(c) (d)

Fig. 2. Evolution of <a> type dislocations with irradiation in the W1M11 pressure tube: (a) before irradiation and (b-d) after irradiation – (b) the inlet, (c) the middle and (d) the outlet.

(a) (b)

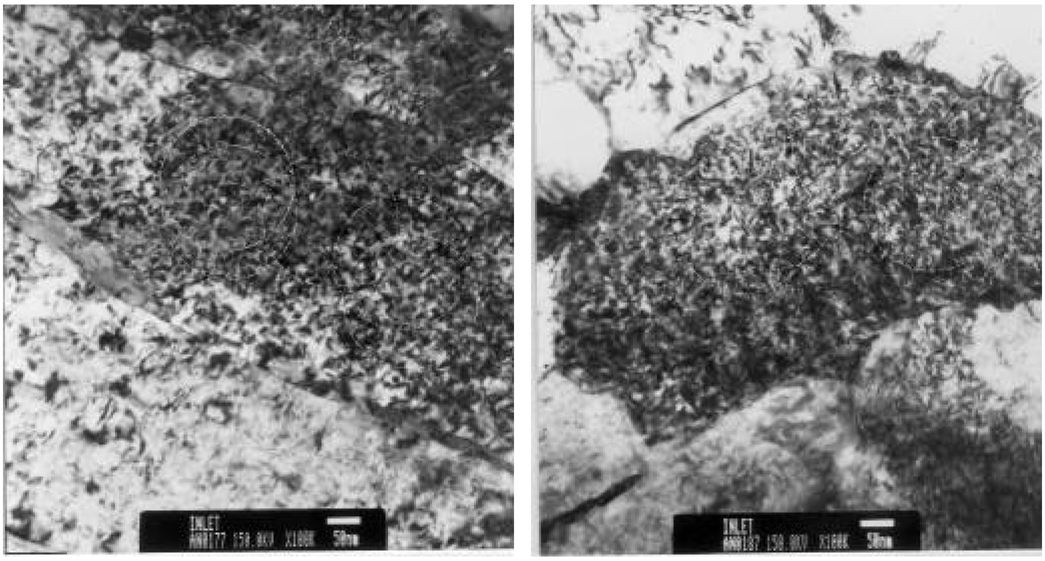


Fig. 3. <a> type dislocation loops on the inlet ring of the W1M11 tube irradiated to 8.9×10^{25} nm^{-2}.

(a) (b) (c) (d)

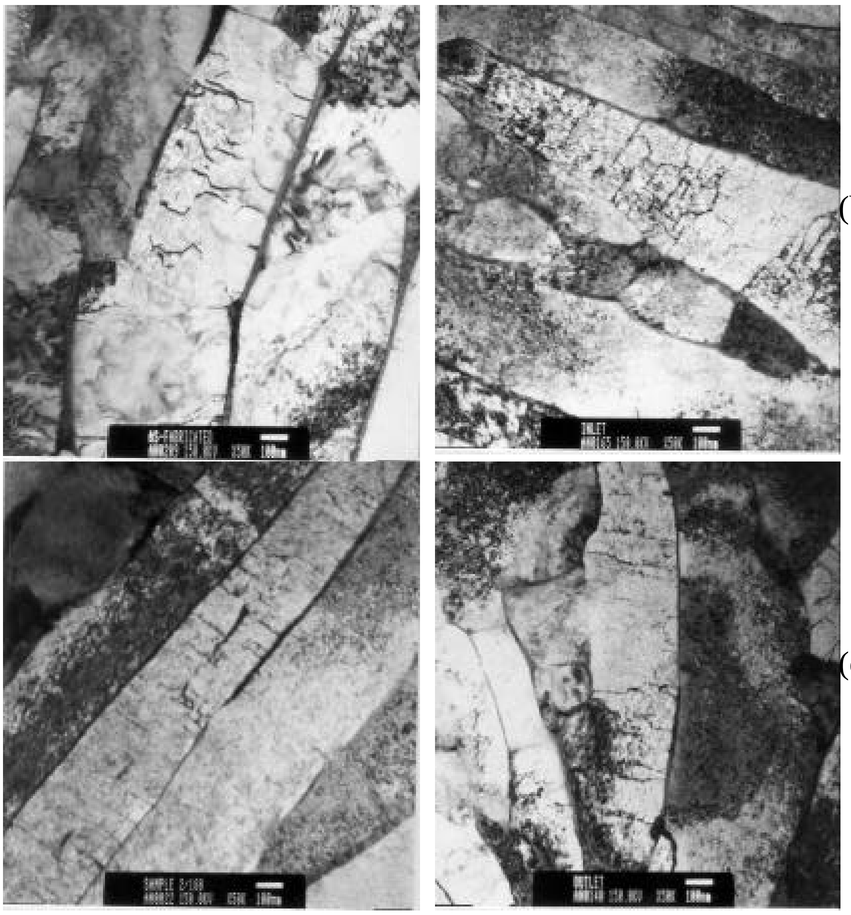


Fig. 4. Typical <c> component dislocations in the W1M11 tube irradiated to 8.9×10^{25} nm^{-2} along with those of the preirradiated tube: (a) preirradiated tube, (b) the inlet, (c) the middle and (d) the outlet of the W1M11 tube.