

'99 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

월성1호기 M11 압력관의 부식 및 수소흡수 특성

Corrosion and Hydrogen Uptake of M11 Pressure Tube Operated in Wolsong Unit 1

주기남*, 안상복, 김성수, 김영석
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

한봉섭
한국전력주식회사, 월성제1발전소, 경상북도 양남면 나아리 260

요 약

월성1호기 원자력발전소에서 9,2EFPY 동안 운전된 M11 (Zr-2.5wt%Nb) 압력관의 산화막 두께 및 수소흡수 거동을 한국원자력연구소의 조사재시험시설에서 측정하였으며, 그 결과를 캐나다 원자력발전소들의 결과와 비교하였다. M11 압력관 표면에는 0.90~5.84 μm 범위의 비교적 얇은 두께의 산화층이 형성되었다. 압력관의 산화층 두께는 longitudinal 및 transverse 방향간에는 별다른 차이가 없었으나, 방향에 따라서는 영향을 받아 전반적으로 바닥 위치에서 최대값을 보였다. 압력관내의 수소흡수 농도는 5.0~37.7ppm으로 측정되어 산화층 두께에 비해 비교적 큰 폭의 변화를 보였다. 압력관의 산화층 두께 및 수소흡수량은 longitudinal/transverse 방향간이나 측정 위치 (0/90/180/270°)에 따라 별다른 경향을 보이지 않았다.

Abstract

The oxide thickness and hydrogen uptake of M11 (Zr-2.5wt%Nb) pressure tube operated for 9,2EFPY in Wolsong Unit 1 nuclear reactor were analyzed in IMEF (Irradiated Material Examination Facility) of KAERI. These results were compared with those obtained from Canadian CANDU reactors. The surface oxide thickness of M11 pressure tube used was measured in the range of 0.90~5.84 μm . The oxide thickness was not affected by the longitudinal/transverse direction, but showed higher thickness at the bottom location. The amount of hydrogen content was measured in the range 5~37.7ppm and showed a relatively large scattering. The oxide thickness and hydrogen content were not affected by the longitudinal/transverse direction or by the measuring location (0/90/180/270°).

1. 서론

현재 가동 16년째인 월성1호기의 (CANDU 형 원자로) 압력관 재질인 Zr-2.5wt%Nb 합금은 (이후 Zr-2.5Nb) 원자로내의 고온냉각수 분위기에서 장기간 사용되는 중 여러 이유들에 의해 수소 및 중수소의 흡수가 발생하게 되고 [1], 이들 함량이 matrix 내의 고용한도를 넘게되면 Delayed Hydride Cracking (DHC)을 유발하게 되어 압력관 파손사고를 일으키는 것으로 보고되고 있다 [2]. 따라서 국내의 월성 1,2,3,4호기를 포함한 모든 CANDU 형 원자로의 경우 정기적으로 압력관내 수소흡수량 측정 및 균열발생 여부를 점검하도록 규정하고 있으며 [3], 압력관과 Calandria tube가 접촉될 가능성이 있는 경우 다음 평가시까지의 DHC 균열이 발생하지 않는다는 점을 증명한 후 원자로를 가동하도록 하고 있다.

월성 1호기에서는 수소 및 중수소 분석과 관련하여 1990년 수행된 압력관 Off-cut의 수소분석이후 1992년 11개 압력관에 대한 scrap sampling 작업을 통한 수소(Hydrogen) 및 중수소(Deuterium) 분석 및 접촉 압력관에 대한 안전성 해석, 1994년 2개 인출 압력관의 수소 및 중수소 분석, 1998년 4개 압력관에 대한 scrap sampling을 통한 수소 및 중수소 분석작업이 수행되어왔다 [4,5].

현재까지의 이러한 압력관에 대한 분석 작업은 전적으로 Canadian들에 의해 수행되어 왔다. 그러나 캐나다에서의 CANDU형 초기 원자로들의 설계수명 이전의 잇다른 shut-down과 연구개발의 축소, 그리고 이에 따른 월성 1호기의 최고령화 및 국내 CANDU형 발전소인 월성 2,3,4호기의 상업운전 등을 감안할 때 우리 자체적인 압력관 건전성 분석능력 확보는 매우 시급하게 되었다.

이를 위해 당 연구분야에서는 먼저 1994년 인출되어 1차적으로 분석되고 월성 site에 보관되어 있는 M11 압력관을 일부 절단하여 당 연구소 조사재시험시설(IMEF, Irradiated Material Examination Facility)로 운반하여 일련의 평가시험을 수행하고 있다. 본 연구에서는 압력관 재료의 가장 큰 손상원인의 하나인 DHC(Delayed Hydride Cracking) 파괴의 기초적인 원인이 되는 압력관으로의 수소흡수 관련 자료를 분석하는 기술을 확보하고자 하였다. 이를 위해 압력관의 표면에 형성된 산화층 표면 및 두께를 관찰하며, 압력관내의 수소흡수량을 분석하고자 하였다. 본 연구에서 얻어진 여러 자료들은 그동안의 외부분석을 통해 얻어진 결과와 문헌상 알려진 캐나다 발전소들의 결과와도 [5,6] 비교·분석하였다. 이들 자료는 향후 월성 1호기를 포함한 현재 가동중인 국내 CANDU 형 원자력발전소들의 Zr-2.5Nb 압력관 건전성 평가 및 재질 개선 등의 분야에 활용하고자 한다.

2. 분석 및 시험방법

1994년 월성 1호기로부터 인출된 압력관인 M11(Zr-2.5Nb) 압력관은 일부 절단되어 캐나다로 보내져 분석되었으며 나머지 부분은 월성 1호기 저장조에 보관되어 있다. 본 연구를 위하여 M11 압력관의 Inlet 부 (S1: Inlet에서 173-190cm), 중심부 (S2: Inlet에서 266-288cm), Outlet 부 (S3: Inlet에서 456-483cm) 3부분을 수중절단기로 절단하여 당연구소 조사재시험시설로 운반하였다. 본 연구에서는 중심부위인 S2 시편에 대한

분석결과만을 포함하고 있다.

압력관 내부표면에 형성된 산화층 관찰 및 수소량 분석을 위한 시편은 S2 시편에서 EDM(Electron Discharging Machine) 기기로 기계적 특성 측정용 시편들을 제작하고 남은 부위를 저속 diamond cutter를 사용하여 필요한 크기로 공기중에서 절단하여 준비하였다. 산화층 관찰용 시편은 마운팅하여 광학현미경으로 최대 x750 배율까지 관찰하였다. 한편 산화층 두께는 longitudinal 및 transverse 방향에 대해 관찰하였으며, 또한 압력관 원주방향에 따른 산화층 차이를 분석하기 위하여 바닥점을 0°로 하여 90/180/270° 부위에 대하여 수행하였다. 산화층 두께 측정은 광학현미경 사진을 Highscope사 Image Pro-2000 모델의 image analyzer로 분석하여 측정하였는데, 각 시편에 대하여 30회 이상 측정하여 분석하였다. 압력관 내에 존재하는 수소량 측정은 당소 화학특성시험시설에서 수소분석장치로 수행되었는데, 시편은 5x5mm 이내로 공기중에서 절단된 후 24 시간의 방사능시료 전처리 과정을 거쳐 수행되었다. 수소분석은 2회에 걸쳐 수행되었으며, 측정된 13개 시편의 총 방사능은 960mR/hr로 측정되었다. 수소함량 측정은 현재 중수소 분석시설이 없는 수소측정장치로 측정하였으므로 측정치는 압력관에 존재하는 중수소 및 수소가 모두 수소로 간주되어 측정되는 값이다.

본 연구를 통하여 얻어진 값은 그동안 M11을 포함하여 월성 압력관에 대하여 1990년 이후 수행된 압력관 Off-cut의 수소분석, 가동 압력관에 대한 scrap sampling, 그리고 인출 압력관에 대한 pellet analysis 등을 통해 얻어진 수소 및 중수소 분석결과들과 비교하여 분석하였다. 또한 이들 결과를 캐나다 CANDU 발전소들의 수소흡수 특성 결과와도 비교·분석하였다.

3. 결과 및 분석

3.1. M11 압력관 표면검사 및 산화층 두께 측정

일반적으로 압력관 건전성의 가장 큰 취약 요인인 DHC 파괴의 원인이 되는 압력관 내의 수소는 압력관과 고온 냉각수의 부식 과정을 통해 침투된다고 알려져 있으므로 [6], 산화층 두께는 압력관 내로의 수소흡수와 밀접히 연관되어 있다. 이러한 관점에서 M11 압력관의 Inlet 부로부터 266-288cm 지점인 S2 시편에서 바닥 위치(0°) 및 90°, 180°(최상부), 그리고 270° 부위에서 얻어진 시편들에 대한 longitudinal 및 transverse 방향의 면에서 산화층/금속면간의 경계 부위를 광학현미경으로 관찰하였다. 그림 1은 압력관 바닥 위치(0°)에서 얻어진 시편들에 대한 longitudinal 및 transverse 방향에서의 산화층/금속면간의 경계 부위를 관찰한 광학현미경으로 사진으로 비교적 균일한 두께를 가지며, 시편의 준비과정에서 기인된 것으로 보이는 산화층 파괴부위도 관찰되었다.

압력관 표면의 산화층 두께는 광학현미경으로 얻은 사진을 image analyzer를 이용하여 분석하였으며, 그림 2는 그림 1의 두 사진을 분석한 것이다. 분석은 약 500배의 배율로 확대한 사진을 기준으로 하여 각 시편당 30회 이상 산화층 두께를 측정하여 최대 및 최소값, 그리고 표준편차값 등을 구하였다. 그림 1의 0° 시편은 그림 2에서 알 수 있듯이 longitudinal 및 transverse 시편 모두에서 4.5 μm 두께를 중심으로 0.45/0.53 μm의 일정한 편차를 보이고 있음을 알 수 있다.

이와 같은 방법으로 측정된 M11 압력관의 (S2시편) 바닥 위치(0°) 및 90°, 180°(최상부), 그리고 270° 부위에서 longitudinal 및 transverse 방향의 면에서 측정된 산화층 두께에 대한 image analyzer 분석결과를 표 1에 나타내었다. 측정된 산화층의 두께는 0.9~5.84 μm 범위를 보이고 있으며, 앞에서 설명한 바와 같이 모든 시편에서 산화층은 대표적인 두께를 중심으로 0.30~0.54 μm 정도의 작은 편차를 보이는 균일한 두께로 형성되어 있다. 한편 전반적으로 longitudinal 및 transverse 두 방향에 따른 산화층 두께 차이는 관찰할 수 없었으나, 각도에 대해서는 영향을 받아 최하단 부위인 0° 위치의 시편들이 일반적으로 가장 큰 산화층 두께를 보였다. 이 위치는 압력관이 원자로에서 사용되는 동안 핵연료를 장·탈착하는 과정에서 핵연료와 직접 마찰이 생기는 곳으로 이 과정에서 기계적인 결함이 형성되는 등 일반적으로 가장 취약한 부분으로 간주되는 곳이다.

그림 3은 표 1의 최대 산화층 두께를 캐나다 발전소들의 결과와 비교하여 나타낸 그림이다. 가동시간에 따라 급격한 산화층 증가를 보이는 Zircaloy-2 압력관과는 달리 Zr-2.5Nb 압력관 표면의 산화층 두께는 가동시간이 증가할수록 점진적으로 증가하는 것으로 알려져 있다 [6], 월성 1호기 M11에서 얻어진 산화층 두께는 문헌치에 비해 상대적으로 낮은 값을 보이고 있다. 이 값은 M11 압력관의 대표적인 성능을 보인다고 보다는 측정 위치가 비교적 온도가 낮은 압력관 중간부위라는 점에 보다 기인한 것으로 추정된다. 일반적으로 압력관의 가동온도는 Outlet 쪽으로 갈수록 증가하는 것으로 알려져 있고 [6], 이에 따라 부식량도 많아 두꺼운 산화층이 존재하기 때문이다, 따라서 보다 정확한 특성 비교를 위해서는 M11 압력관의 Outlet 부위의 산화층을 분석하여야 할 것이다.

본 연구 과정을 통하여 측정된 산화층 관찰 절차 및 기술은 비교적 만족할만한 수준에 이르렀다고 판단된다.

3.2 M11 압력관 수소함량 측정 및 분석

M11 압력관의 중심부위인 S2 시편에서 2회에 걸쳐 수행된 수소분석 결과를 표 2에 정리하였다. 압력관내의 수소흡수 농도는 1차 측정시에는 5~16ppm으로, 2차 측정시에는 12.4~37.7ppm으로 크게 차이를 보였는데, 이에 대한 확인을 위해 현재 3차 분석을 수행중이다. 압력관 내의 수소흡수량은 산화층 두께와는 달리 longitudinal/transverse 방향간이나 측정 위치 (0/90/180/270°)에 따라서 별다른 경향을 보이지 않았다.

그림 4는 지금까지의 월성 1호기 압력관들에 대하여 분석된 모든 수소흡수 속도에 대한 결과를 본 연구 결과와 비교하여 나타낸 그림이다. 각 압력관 측정위치에서의 수소 흡수속도는 가동온도 함수로 나타내었는데, 지금까지 보고된 결과들은 온도증가에 따라 점진적인 가속화 증가 현상을 보이는 일정한 함수를 형성하고 있다. 일반적으로 압력관의 온도는 Inlet 측에서 Outlet 측으로 갈수록 증가하게 되고 이러한 온도증가는 부식량 증가를 유발하게 된다. 이러한 부식량 증가는 이에 수반되는 수소흡수량의 증가를 유발하여 결과적으로 수소흡수속도가 증가하는 결과를 가져온 것으로 추정된다.

본 연구에서 측정된 M11 S2 시편의 가동온도는 285.5°C로 알려져 있으며, M11 압력관의 초기 수소농도는 10ppm으로 알려져 있으므로 [4], 표 2에서 측정된 수소함량에서 10ppm을 뺀 값이 실제 압력관 가동기간동안 흡수된 수소 및 중수소 함량이다. 한편 원자로

가동중에 압력관내로의 수소흡수는 없다는 보고에 의거하여 [7], 증가된 양이 모두 중수소(D)라고 볼 때 실제 H에 상당하는 H_{eq} 량은 1/2로 줄어들게 된다. 이렇게 계산된 H_{eq} 량을 실제 가동기간(EFPY)로 나눈 값이 압력관내로의 수소흡수속도로서 일반적으로 1.0 H_{eq} /EFPY가 표준 model 값으로 보고되어 있으며 [8], 캐나다 AECL 측에 의해 S2 시편과 비교적 근사 지점에서 측정된 값은 0.32 H_{eq} /EFPY로 보고되었다.

본 연구에서의 1차 분석결과는 0.0~0.38 H_{eq} /EFPY로 기준값에 비해 비교적 낮은 경향을 보이고 있으며, 2차 분석결과는 0.13~1.50 H_{eq} /EFPY의 비교적 큰 폭의 scattering과 함께 기준값보다도 높은 수소흡수 속도를 보이고 있음으로써 수소 분석 방법상의 상당한 문제점을 제기하고 있다. 따라서, 향후 기존의 수소분석 방법에 대한 개선의 필요가 있어 보이며, 보다 근본적으로는 위한 수소와 중수소를 분리하여 측정할 수 있는 분석시설을 확보하는 것이 매우 시급한 실정이다.

전반적으로 월성 1호기의 경우 현재까지는 비교적 안정된 수소흡수 거동을 보이고 있으나 설계수명 30년을 고려하고, 현재 캐나다에서 초기에 건설된 상당수의 CANDU 원자로가 가동정지되는 상황을 감안할 때, 월성 1호기 압력관의 수소흡수 거동은 철저히 추적되어야 할 것이다.

4. 결 론

압력관 건전성 평가기술 확보의 일환으로 월성1호기 원자력발전소에서 9.2EFPY 동안 운전된 M11 (Zr-2.5wt%Nb) 압력관의 산화막 두께 및 수소흡수 거동을 한국원자력연구소의 조사재시험시설에서, 캐나다측의 연구 결과와 비교하였다. 약 9.2EFPY 동안 가동된 M11 압력관 표면에는 0.90~5.84 μm 범위의 비교적 얇은 두께의 산화층이 0.38~0.54 μm 의 편차를 가지며 비교적 균일한 두께로 형성되었다. 압력관의 산화층 두께는 longitudinal 및 transverse 방향간에는 별다른 차이가 없었으나, 위치에 따라서는 영향을 받아 0, 90, 180, 270° 시편중 전반적으로 압력관 바닥 위치인 0° 시편에서 최대값을 보였다. 압력관내의 수소흡수 농도는 5.0~37.7ppm으로 측정되어 0.0~1.50 H_{eq} /EFPY의 수소흡수속도를 보임으로써, 산화층 두께에 비해 비교적 큰 폭의 변화를 보였다. 압력관의 산화층 두께 및 수소흡수량은 longitudinal/transverse 방향간이나 측정 위치(0/90/180/270°)에 따라서는 별다른 경향을 보이지 않았다.

감사의 글

본 연구는 과기부에서 시행한 원자력중장기사업중 중수로압력관재료 연구과제의 일환으로 수행된 연구결과의 일부입니다.

참고문헌

1. IAEA, IAEA-TECDOC-684, IAEA, Vienna, 1993, pp.7-56.
2. B.A. Cheadle et als, ASTM STP 939, ASTM, Philadelphia, 1987, pp.224-240.
3. A National Standard of Canada, CAN/CSA-N285.4-M94 (1994).
4. 한국원자력안전기술원, "월성원자력 1호기 정기 검사보고서 (1994년도)", 1994

5. Unpublished data of Wolsong-1 Nuclear Power Plant (1998).
6. V.F. Urbanic et als, ASTM STP 1023, ASTM, Philadelphia, 1989, pp.20-34.
7. K.N. Choo et als, Transactions of the 15th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology (SMiRT-15) Seoul, Korea, 1999, pp.X87-X94.
8. P. Janzen et als, "Monitoring Pressure Tube Health by Micro-sampling," COG/IAEA 4th PHWR Conference, Kyong-Ju, Korea, 1996.

Table 1. Oxide thickness of M11 pressure tube retubed in Wolsong Unit 1.

Location (°)	Oxide Thickness (μm)	0	90	180	270
Longitudinal	Minimum	3.60	2.25	1.80	1.80
	Maximum	5.39	3.82	3.82	3.60
	Mean	4.27	2.92	3.09	2.83
	Std. Dev.	0.45	0.37	0.43	0.54
Transverse	Minimum	3.37	3.60	2.02	0.90
	Maximum	5.39	5.84	3.82	2.02
	Mean	4.40	3.95	2.82	1.36
	Std. Dev.	0.53	0.43	0.45	0.30

Top of PT = 0° (clockwise direction)

Table 2. Hydrogen analysis of M11 pressure tube retubed in Wolsong Unit 1.

Location (°)	0	90	180	270
Analysis 1	9	7	9	8
	13	10	5	10
	16	11	9	8
	12	10	17	7
	9			
평균치	11.8	11.7	10.0	8.3
Analysis 2	23.0	20.2	20.8	16.8
	25.0	18.9	13.4	37.7
	12.4	22.7		18.4
	16.2	27.4		
평균치	19.1	22.3	17.1	24.3

Top of PT = 0° (clockwise direction)

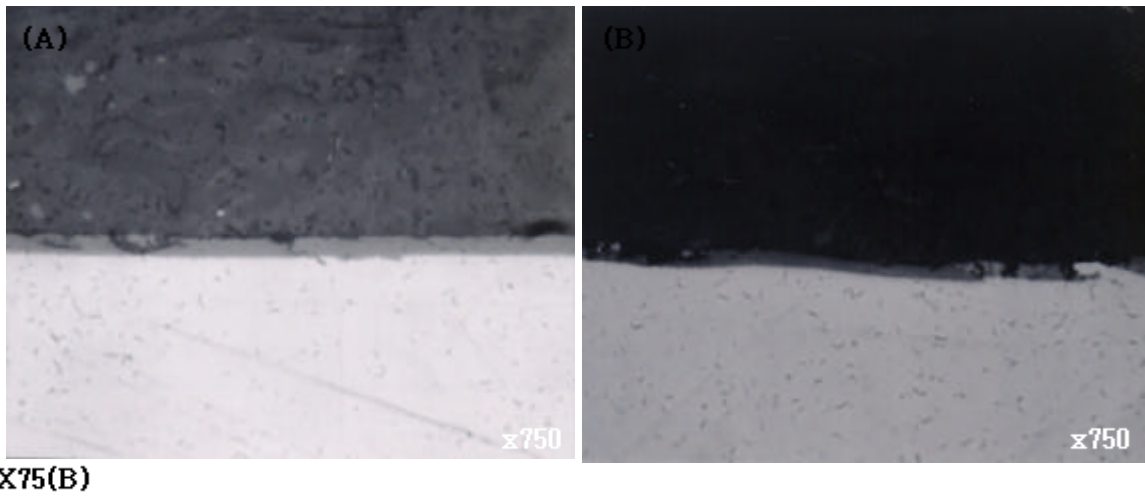


Fig. 1. Optical micrographs of the oxide/metal interface of M11 pressure tube retubed from Wolsong Unit 1: (a) Middle-longitudinal (0°); (b) Middle-transverse (0°).

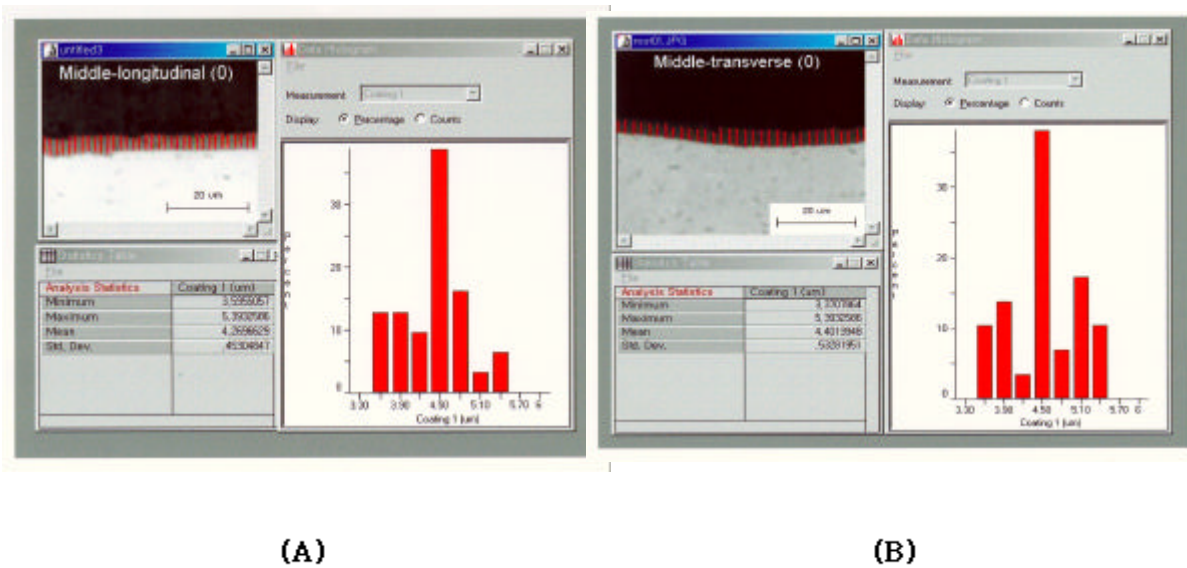


Fig. 2. Image analyzing of the oxide thickness of M11 pressure tube retubed from Wolsong Unit 1: (a) Middle-longitudinal (0°); (b) Middle-transverse (0°).

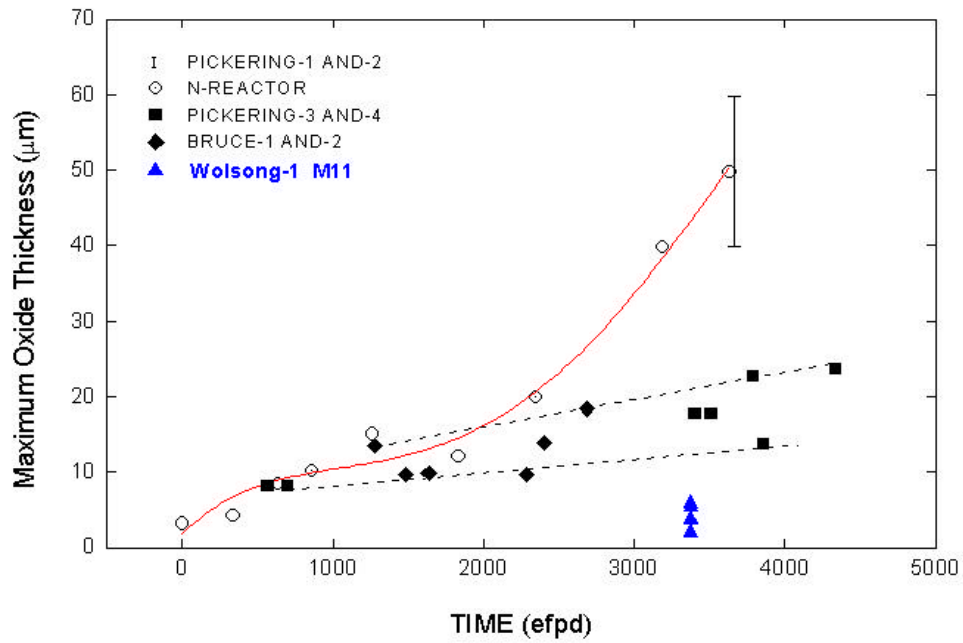


Fig. 3. Long-term oxidation of cold-worked Zr-2.5Nb and Zircaloy-2 pressure tubes including M11 PT of Wolsong Unit 1.

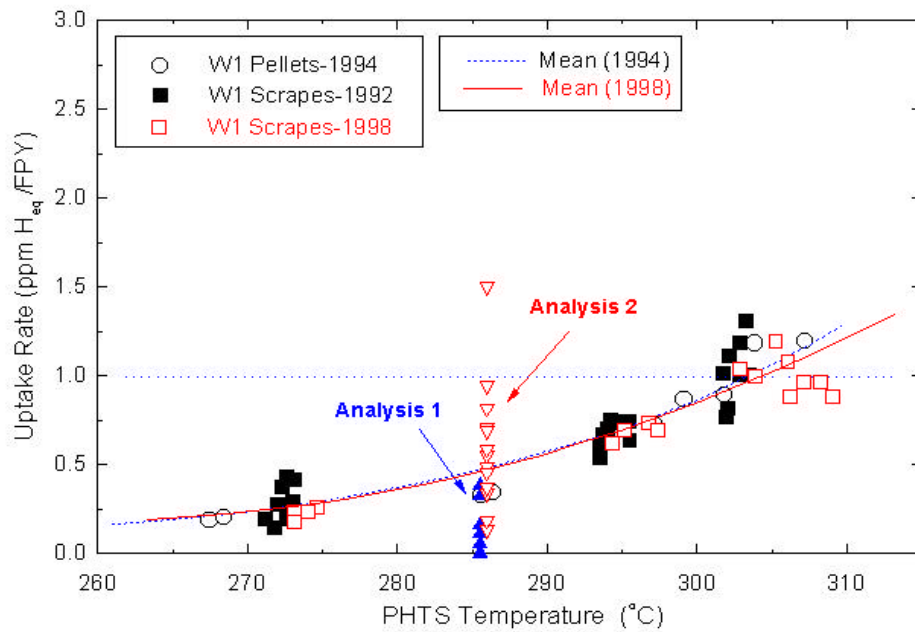


Fig. 4. Equivalent hydrogen uptake rate related to temperature of Zr-2.5Nb pressure tubes from Wolsong-1 including M11 PT.