

초단 펄스레이저 어블레이션에 의한 스테인리스강 표면의 오염산화막 제거 특성

김근우^{*,**}, 윤성식^{*}, 김기철^{*}, 이명원^{**}, 강명창^{**,#}

^{*}(주)한전KPS, ^{**}부산대학교 융합학부

A Study on the Removal Characteristics of a Radioactively Contaminated Oxide Film from the irradiated Stainless Steel Surface using Short Pulsed Laser Ablation

Geun-Woo Kim^{*,**}, Sung-Sik Yoon^{*}, Ki-Chul Kim^{*},

Myung-Won Lee^{**}, Myungchang Kang^{**,#}

^{*}Nuclear Power Maintenance Engineering Center, KEPCO KPS, KEPCO Plant Service & Engineering Co. LTD, 211, Munhwa-ro, Naju-si, Jeollanam-do, 58326, Republic of Korea

^{**}Graduate school of convergence science, Pusan National University, Busan 46241, Republic of Korea

(Received 08 September 2020; received in revised form 12 September 2020; accepted 15 September 2020)

ABSTRACT

Radioactive Oxides are formed on the surface of the primary equipment in a nuclear power plant. In order to remove the oxide film that is formed on the surfaces of the equipment, chemical and physical decontamination technologies are used. The disadvantage of traditional technologies is that they produce secondary radioactive wastes. Therefore, in this study, the short-pulsed laser eco-friendly technology was used in order to reduce production of the secondary radioactive wastes. They were also used to minimize the damages that were caused on the base material and to remove the contaminated oxide film. The study was carried out using a Stainless steel 304 specimen that was coated with nickel-ferrite particles. Further, the laser source was selected with two different wavelengths. Furthermore, the depth of the coating layer was analyzed using a 3D laser microscope by changing the laser ablation conditions. Based on the analysis, the optimal conditions of ablation were determined using a 1064nm short-pulsed laser ablation technique in order to remove the radioactively contaminated oxide film from the irradiated stainless steel surface.

Key Words : Primary System(1차계통), Decontamination Technology(제염기술), Radioactive Secondary Waste(2차 방사성폐기물), Oxide Film(산화막), Laser Ablation(레이저 어블레이션)

1. 서 론

원자력 발전소 1차 계통의 기기 및 설비들(원자

로, 원자로 냉각재 펌프, 증기발생기, 원자로 냉각재 배관 등)은 고온, 고압의 환경에서 산화물이 계통 표면에 집적되거나 모재 표면이 부식되어 산화막이 방사성 핵종과 함께 누적되어 있다. 이러한 방사성 오염 물질들은 가동중 원자력 발전소에서 작업 중

Corresponding Author : kangmc@pusan.ac.kr

Tel: +82-51-510-2361, Fax: +82-51-510-7396

Copyright © The Korean Society of Manufacturing Process Engineers. This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution-Noncommercial 3.0 License (CC BY-NC 3.0 <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

사자들에게 방사선 쏘임을 유발하게 되며, 원자력 발전소 해체시 발생하는 방사성 폐기물의 주요 요소로 알려져 있다 [1-3].

기존 방사성 오염산화막을 제거하는 방법에는 화학적 제염, 물리적 제염 등의 다양한 기술이 주를 이루었다. 하지만, 이러한 기술들의 단점은 2차 폐기물 발생과 모재의 손상이다[1]. 이에, 친환경 기술인 초단 펄스레이저 어블레이션[4-7]을 도입할 필요가 있다. 또한, 방사성 오염산화막[8] 제거 특성을 연구하기 위해서는 실제 방사성 오염 시편을 사용해야 하지만 현실적으로 어려움이 많다.

따라서, 본 연구에서는 스테인레스 304 모재에 니켈-페라이트의 입자를 물리적으로 코팅층(Crud)을 생성[2,9]한 모사시편을 활용하였다. 이 시편으로 고효율의 어블레이션이 구현되도록 최적의 레이저 소스를 선정하였다. 또한, 레이저 조건별로 스캔 속도, 레이저 세기, 중첩율, 초점거리 조절을 통하여 코팅층의 제거 어블레이션 깊이를 3D 형상측정 장치(model VK-X260K, KEYENCE, Japan)를 이용하여 비교 및 평가하였다.

2. 실험장치 및 방법

2.1 레이저 어블레이션 장치 및 방법

레이저 어블레이션 전용 실험장치와 분석을 위한 3D 형상측정 장비(model VK-X260K, KEYENCE, Japan)는 Fig. 1에 각각 나타내었다. 레이저 어블레이션 실험장치의 구성은 레이저 소스(200 W급 초단 펄스레이저 1064 nm 파장, 532 nm 파장), 스캐너 시스템, 흡 흡입 시스템, 니켈-페라이트 모사시편 고정 장치로 이루어져 있다. PC에서 각 실험조건 값으로서 스캔속도, 스캔범위, 레이저 세기, 조사조건, 중첩율의 변화를 주었다. 레이저 조사는 스캔범위 25 × 25 mm² 이내에서 실험조건 별로 니켈-페라이트 모사시편 코팅층의 어블레이션 깊이를 Fig. 1(b)와 같이 시편을 렌즈 하부 고정대에 고정시켜 3D 스캐너로 측정 및 비교 분석하였다.

2.2 어블레이션 실험 조건

Table 1은 200 W급 초단 펄스레이저 1064 nm 파

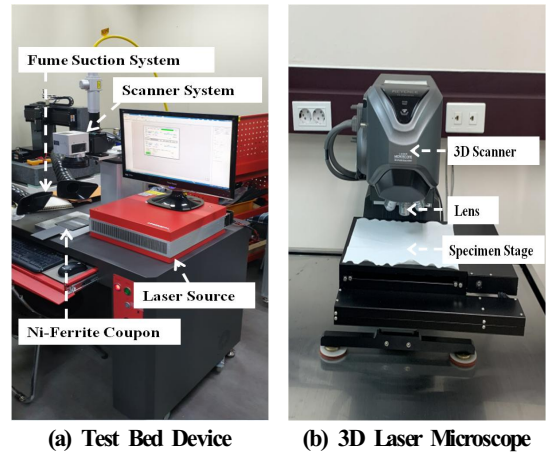


Fig. 1 Test bed set-up for short pulsed laser ablation and 3D measuring system

Table 1 Specification of experiment set-up using with wavelength 1064 nm and 532 nm short pulsed laser

Laser parameter	description	
Wavelength	1064 nm	532 nm
Average power	200 Watt	200 Watt
Mode of operation	Pulsed	Pulsed
Energy density	0.57 J/cm ²	5711.53 J/cm ²

장파 532 nm 파장을 가지는 레이저 세부 사양을 보여준다. 두 레이저는 중첩율, 에너지 밀도 및 스폿 크기 등의 차이로 동일한 어블레이션 실험 조건값으로 진행할 수 없지만, 니켈-페라이트 모사시편의 코팅층을 제거 효율과 모재의 손상을 최소화하는 관점에서 비교하였다. 그래서, 본 실험에서는 니켈-페라이트의 모사시편 코팅층의 어블레이션 제거 깊이를 비교 분석하는 것에 집중하였다.

이때, 실험변수를 최대한 줄이고자 Table 2와 3에서와 같이 실험 조건을 스캔속도, 중첩율, 레이저 세기를 변화시켜 코팅층의 어블레이션 깊이를 비교하였다. 또한, 레이저는 초점거리에 따라 어블레이션 깊이와 제거 면적이 달라지므로, 레이저 조건별 비교 분석을 통하여 최적 레이저를 선정하였다. 그리고, 동일한 스캔속도, 레이저 세기, 횡수의

조건으로 초점거리를 조정하여 니켈-페라이트의 코팅층의 미세한 어블레이션 깊이를 확인하였다. 이를 통해서, 스캐너와 모사시편과의 최적 초점거리를 알아보았다.

본 실험에 사용한 레이저의 초점거리는 약 280 mm로 1064 nm 파장 레이저의 특성상 초점거리가 긴 편인데, 초점거리에 따라 어블레이션 깊이와 제거 면적이 달라지므로 초점거리별 높이 변화 1.0~1.5 mm를 주어 실험을 진행하였다.

Table 2 Experimental condition for wavelength 1064 nm laser ablation

Parameter	Value (unit)
Repetition rate	100 (kHz)
Scan speed	5, 7.5, 10 (m/s)
Overlap Rate	0, 25, 50 (%)
Focal Length	278.5, 279, 280 (mm)
Laser Power	60 ~ 200 (W)

Table 3 Experimental condition for wavelength 532 nm laser ablation

Parameter	Value (unit)
Repetition rate	18 (kHz)
Scan speed	100, 300, 500, 1000, 2000, 3000, 4000 (m/s)
Laser Power	90, 100 (W)
Number of pulses	1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10

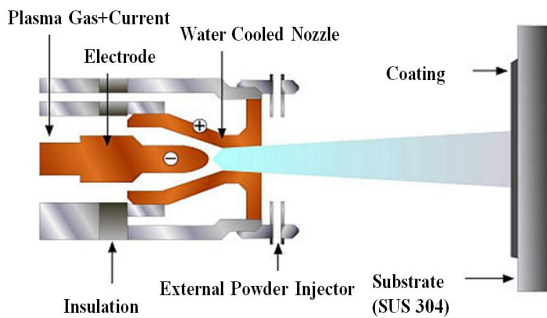


Fig. 2 Schematic of low vacuum plasma spray^[2]

2.3 니켈-페라이트 모사시편

니켈-페라이트 코팅층은 모재 표면에 진공 플라즈마 용사방식을 적용하여 생성한다. 코팅에 사용된 니켈-페라이트의 경우 1~2 μm 입자를 20~100μm 크기로 소결하여 구형의 집합체를 용사하여 모재에 충돌시 입자가 파괴되면서 1~2 μm 입자 상태로 모재에 코팅이 이루어진다. 소결 처리된 니켈-페라이트는 ICP 분석 측정방법으로 Fe(51~68%), Cr(0.01~0.2%), Ni(5.3~21.7%), Mn(0.16~0.2%)의 성분비를 가지며, Ni_xFe_{3-x}O₄(0.8<x<1.0)의 분자구조식 형태를 이루고 있다.

Fig. 2는 SUS 304 모재에 소결된 니켈-페라이트를 코팅을 입히는 플라즈마 용사장비에서의 개략도이다. 이 방식으로 약 5~10 μm 두께를 가지고, 기공(Porosity)이 낮은 크러드 산화막을 모사하는 코팅층 생성이 가능하다.

3. 실험결과 및 고찰

3.1 최적 레이저 소스 선정

Fig. 3은 532 nm 파장의 레이저 파워를 100~90 % 세기로 나누어 스캔속도에 따른 어블레이션 깊이를 평가한 결과로서 100~4000 mm/s로 속도를 상승시키자 스캔 간격이 넓어져 어블레이션 깊이가 3.85 μm에서 1.80 μm로 더 얕아지는 것을 확인하였다. 또한 1 mm/s와 100 mm/s의 스캔 속도에서는 코팅면과 어블레이션의 경계면에서 탄화 흔적을 확인할 수 있었다.

Fig. 4에서는 단위면적당 누적된 에너지인 플루언스의 변화에 따른 코팅층의 제거량을 관찰하였다. 레이저를 1~10회 반복적으로 중첩해줌으로써 코팅층이 약 4~9 μm 깊이로 제거되었다. 이는 어블레이션 중첩율이 증가함에 따라 니켈-페라이트 코팅층의 제거량도 증가함을 알 수 있다.

또한, Fig. 5에서 레이저 세기를 50~90 % 증가함에 따라 어블레이션 깊이가 깊어지는 것을 알 수 있으며, 100 mm/s의 스캔속도로 조사한 것은 약 3~7 μm로 단계적으로 확인한 어블레이션 깊이를 보이나 500 mm/s의 속도로 조사한 것은 비교적 적은 차이를 보였다.

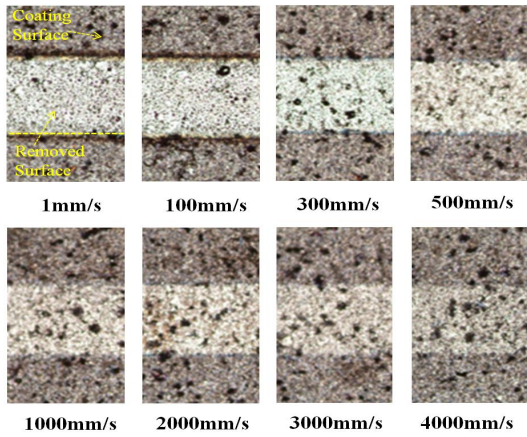


Fig. 3 Surface shape according to scan speed ablation of specimen

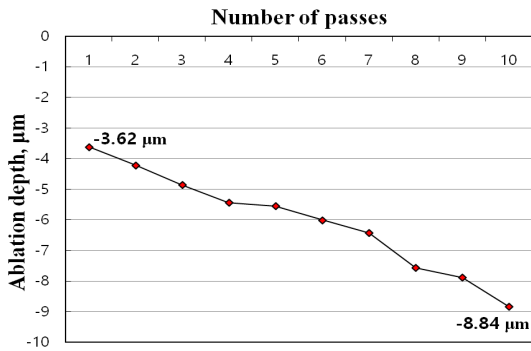


Fig. 4 Characteristics of ablation depth according to number of passes

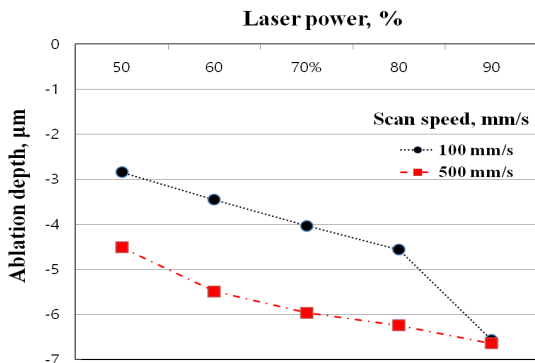


Fig. 5 Results of ablation depth with scan speed and

laser power

1064 nm 파장의 초단 펄스레이저인 경우에 레이저 파워, 중첩율(스캔속도)을 변화시켜 어블레이션 깊이를 비교한 결과는 Fig. 6에 나타내었다. 중첩율이 증가함에 따라 어블레이션 깊이도 약 11 μm, 12 μm와 13 μm으로 증가함을 확인하였다. 또한, 레이저 세기를 200 W에서 60 W까지 20 W단위로 단계적으로 조사함에 따라 어블레이션 깊이는 알아지는 경향을 보였다. 위 실험을 통해 1064 nm 파장의 레이저 소스로 최대 출력 200 W에서 1회 레이저 조사만으로 최대 약 20 μm 어블레이션이 가능함을 확인하였다. 이는 532 nm 파장의 레이저보다 니켈-페라이트의 코팅층을 제거하는 능력과 효율성이 높다는 것을 확인하였다. 또한, 레이저 어블레이션에 의한 모재에 전달되는 열적 손상이 532 nm 파장의 레이저 보다 적은 것으로 판단되었다. 따라서, 1064 nm 파장을 가지는 초단 펄스레이저 소스가 모재의 손상을 최소화 하며, 니켈-페라이트 코팅층을 제거하기에 적합한 레이저 소스로 선정하였다.

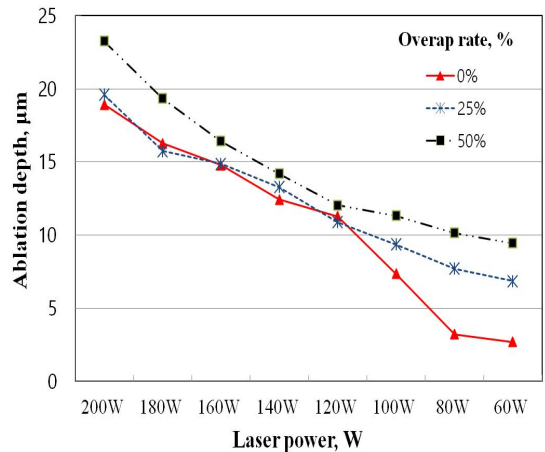


Fig. 6 Results of ablation depth with overlap rate and laser power

3.2 코팅층 제거에 따른 어블레이션 깊이 결과

레이저 어블레이션 에너지는 레이저 플루언스(Fluence)외에 레이저 인텐시티(Intensity)가 중요하다

다^[10]. 본 실험에서는 레이저 어블레이션 장치 설계를 위한 광학 파라미터를 구하기 위한 초점거리와 인텐시티에 의한 니켈-페라이트 코팅층의 어블레이션 상태를 관찰하였다.

Fig. 7은 어블레이션을 진행한 시편의 모습이다. 200 W, 5 m/s과 200 W, 10 m/s 조건으로 조사하고, 3D 형상측정 장치로 분석한 결과 약 20 μm 의 코팅층을 제거하였다.

그리고, 미세한 어블레이션 깊이 차이를 확인하기 위하여 시편의 3D이미지 및 어블레이션 깊이를 측정하였다. 그 결과, Fig. 8에 보이는 바와 같이, 모사시편의 코팅층 두께는 약 23 μm 정도로 나타났다. 200 W 1064 nm 파장 레이저를 사용하여 $25 \times 25 \text{ mm}^2$ 의 면적을 조사하였다. 또한, 레이저 어블레이션 조건은 스캔 속도 5 m/s, 중첩 횟수 12회 및 초점거리를 280 mm, 278.5 mm, 279 mm 높이로 조사하였다. 초점거리별 결과는 각 약 30 μm , 34 μm 와 41 μm 어블레이션이 되는 것을 확인하였다. 이는, 280 mm보다 1.0 mm 낮게 조사하였을 때가 니켈-페라이트 코팅층을 제거하기에 효율적인 초점거리임을 판단할 수 있다. 초점거리의 변화로 최대 약 18 μm 더 깊이 어블레이션 됨을 알 수 있었다.

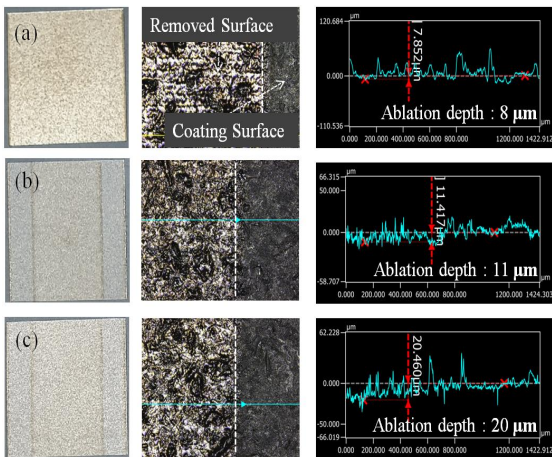


Fig. 7 Measuring results of ablation depth in using 3D Laser Microscope (a) 200W, 5m/s, (b) 200W, 10m/s, and (c) 200W, 5m/s and 10 m/s

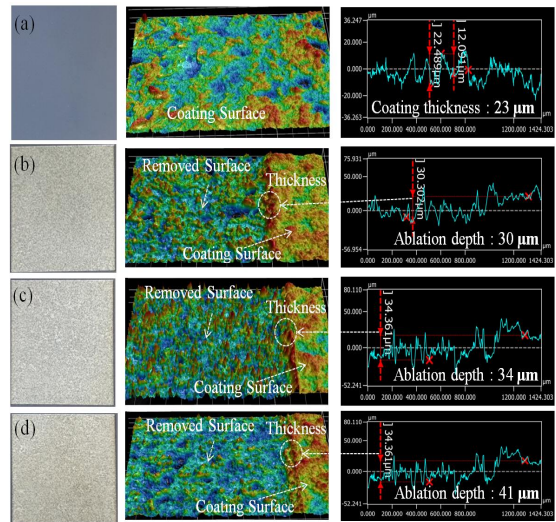


Fig. 8 Measuring results of ablation depth in using 3D Laser Microscope (a) standard, (b) 280 mm, (c) 279.5 mm, and (d) 279 mm

4. 결 론

초단 펄스레이저를 이용하여 스테인리스강 모재에 니켈-페라이트 모사된 시편의 코팅층을 제거하며, 모재의 손상을 최소화 하는 레이저 소스 선정과 레이저의 최적 어블레이션 조건 및 제거 두께를 비교하여 다음과 같은 주요 결과를 얻었다.

1. 1064nm 파장의 레이저를 이용하는 것이 약 23 μm 두께의 니켈-페라이트 코팅층을 제거하기에 유용함을 확인하였다.
2. 레이저 중첩도를 0%~50%로 변화를 주었을 때와 레이저 세기를 60W에서 200W까지 증가시켰을때 어블레이션 깊이가 증가하는 것을 확인하였다.
3. 초점거리 280mm에서 스테인레스 모재의 손상이 최소화되고, 니켈-페라이트 코팅층이 제거되는 것을 확인하였다. 이는 플루언스의 인텐시티의 변화가 니켈-페라이트 코팅층을 제거하는데 중요한 파라미터라는 것을 알 수 있었다.

향후, 초단 펄스레이저 어블레이션에 의한 스테

인리스 모사시편의 열영향 및 식각 정도를 분석하여, 에폭시, 페인트와 산화물 등 다양한 오염물질이 제거되는 최적 어블레이션 조건을 도출하는 연구를 진행할 것이다.

후 기

본 연구는 2019년도 (주)한전KPS에서 수행한 연구 과제(R192012) 연구비 지원에 의한 연구임.

REFERENCES

1. Anton, L., "Laser Decontamination and Cleaning of Metal surfaces: modelling and experimental studies," Universite Paris Sud - Paris XI, 2011.
2. Kim, K. C., "Surface Decontamination Study on Simulated Oxide Scale by Physical Coating," A Thesis for a Master, Pusan National University, Republic of Korea, 2016.
3. Luisa, C., Wilfried, P., Michel, T., Hicham, M., Alexandre, S., "Growth of micrometric oxide layers to explore laser decontamination of metallic surfaces," EPJ Nuclear Sciences & Technologies, Vol. 3, No. 30, 2017.
4. Juergen, R., "Basic Physics of Femtosecond laser Ablation," Springer, laser-surface interactions for new materials production, pp. 19-41, 2010.
5. Michal, Š., Martin, K., Šrka, H., Jan, Ř., "Influence of laser ablation on stainless steel corrosion behaviour," Proceedings of 20th international conference on metallurgy and materials, METAL, pp. 18-20, 2011.
6. Georg, G., Torsten, K., Marion, H., Wolfgang, L., Antonio, H., "laser-based decontamination of metal surfaces," Optics and Laser Technology 117, pp. 293-298, 2019.
7. Hwang, K. H., Wu, H. F., Choi, W. S., Cho, S. H., Kang, M. C., "Comparative Study on Ablation Characteristics of Ti-6Al-4V Alloy and Ti₂AlN Bulks Irradiated by Femto-second laser," Journal of the Korean Society of Manufacturing Process Engineers, Vol. 18, No. 7, pp. 97-103, 2019.
8. Chopra, O. K., "Mechanism and Estimation of Fatigue Crack Initiation in Austenitic Stainless Steels in LWR Environments," Argonne National Laboratory 9700 South Cass Avenue Argonne, IL 60439, 2002.
9. Azizurrahman, A., Vishal, K. C., Akhtar, M. J., "Synthesis of nickel ferrite nanoparticles via chemical co-precipitation method," Advanced Materials proceedings, pp. 32-34, 2017.
10. Kang, S. G., Shin, J. H., "CO₂ laser Scribing Process of Soda Lime Glass," Journal of the Korean Society of Manufacturing Process Engineers, Vol. 18, No. 5, pp. 74-81, 2019.