

비정질 Zr-Be 용가재를 사용한 지르코늄합금의 브레이징에 관한 연구

*고 진 현, 박 춘 호

*한국기술교육대, 산업기계공학과
한국원자력연구소, 중수로핵연료사업부

A Study of Brazing of Zirconium Alloys with Amorphous Zr-Be Filler Metals

J. H. Koh, C. H. Park

1. 서 론

지르코늄합금은 열중성자 흡수단면적이 작고, 원자로 가동조건에서 강도 및 연성이 양호하고, 내식성이 우수하기 때문에 핵연료 피복재 및 노심 구조재로 사용되고 있다. 핵연료는 UO_2 소결체가 장전된 인료봉들을 다발로 묶어 집합체로 조립된 구조를 하고 있으며, 특히 조립과정에서 는 용접과 브레이징 기술로 수행된다고 해도 과언이 아니다. 브레이징 기술은 경수로형 핵연료에서는 그리드(grid)제작과 중수로형 핵연료에서는 간격체(spacer)와 지지체(pad)를 피복관에 부착하는데 이용되고 있다.

중수로형 핵연료에서 브레이징 용가재(filler metal)로 사용되고 있는 베릴륨(Be)은 그 화학적 독성(toxic)에도 불구하고 사용되는 이유는 다음과 같다.

- Be은 Zr과 965°C에서 공정조성(95% Zr-5% Be)을 갖는다.
- Be는 젖음성이 우수하다.
- 고 기계적 강도
- 열중성자 흡수(thermal neutron absorption) 단면적이 작다.

현재 중수로형 핵연료에서 spacer와 pad는 모재 지르칼로이 표면에 Be를 물리적증착(physical vapor deposition, PVD) 방법으로 층을 만들어 모재와 브레이징하고 있다. 그러나 순수 Be를 증착할때는 베릴륨 증기기에 화학적 유독성이 있어 증착공정이 복잡하고 대면적 또는 복잡한 형상은 베릴륨증착이 불가능하다. 또한 이는 확산 브레이징이므로 모재가 침식(erosion)되어 두께가 얇아지는 단점이 있다. 따라서 이러한 단점을 보완하기 위하여 지르코늄합금 접합시 비정질 브레이징 용가재로 Zr-Be 합금을 개발을 시도하였다.

본 연구에서는 기존의 물리적 증착법에 의한 브레이징 접합부와 본 연구에서 개발된 비정질 Zr-Be 용가재를 사용 브레이징된 접합부를 일차적으로 미세조직 관점에서 비교하고자 한다.

2. 실험 방법

2.1 합금제조 및 용가재 준비

Melt-spinning 방법으로 두께 20-30 μm , 폭 2mm 크기의 $\text{Zr}_{50}\text{Be}_{50}$ 과 $\text{Zr}_{65}\text{Be}_{35}$ 의 두가지 비정질 합금제조하고 X-ray diffractometer로 결정구조를 확인하였다. 아울러 물리적 증착법(PVD)으로 베릴륨을 지르칼로이 표면에 증착하였다. 여기서 사용한 모재는 현재 핵연료 피복재로 널리

사용되고 있는 지르칼로이-4였다.

2.2 브레이징

브레이징은 두 비정질 용가재의 경우에는 모재사이에 삽입 또는 접용접한 후 진공 고주파유도로에서 다음의 조건으로 수행되었다.

- 진공도: 2×10^{-5} torr
- 온도: 1050°C
- 시간: 20 sec

2.3 브레이징 접합부의 미세조직

광학현미경과 주사전자현미경으로 접합부의 미세조직을 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

X-선 회절시험결과 본 연구에서 개발된 두 용가재 Zr₅₀Be₅₀, Zr₆₅Be₃₅ 합금은 모두 뚜렷한 피크(peak) 발생없이 broad pattern을 나타냄으로써 완전히 비정질 구조를 하고 있음이 확인 되었다. 비정질 용가재를 사용한 경우 브레이징 접합부에서 모재와 용가재 사이에 반응이 거의 일어나지 않았으므로 모재 침식(erosion)이 거의 없었다. 이는 PVD에 의한 배릴륨 충을 용가재로 사용한 경우에는 용가재가 모재로 확산침투한 결과 모재가 침식된 것과는 달랐다.

비정질 용가재를 사용 브레이징된 접합부의 미세조직은 겹개 보이는 공정기지(eutectic matrix)에 희게 보이는 island 입자들고 구성되어 있다(Fig. 1). PVD에 의해 제조된 용가재의 경우에는 primary α -Zr, Zr₆₅Be₃₅에서는 excess α -Zr, Zr₅₀Be₅₀에서는 primary ZrBe₂이다. 주사전자현미경으로 이들 island 입자들을 관찰해 보면 PVD의 용가재 경우 nonfacted dendrite이고, 비정질 경우에는 거의 구형으로, Zr₆₅Be₃₅ 경우가 Zr₅₀Be₅₀ 경우 보다 더 많은 양의 island가 생성되었다(Fig. 2). 원자로내에서 브레이징 접합부의 부식성을 조사한 결과에 의하면 eutectic matrix 보다 island로 구성된 α -Zr이 내식성이 더 우수하였다는 보고가 있다. 이러한 관점에서 동일 가열시간과 가열온도에서 비정질의 조성을 달리하면 브레이징 접합부의 공정상 입자들의 morphology를 조절할 수 있겠다.

비정질 Zr-Be 합금은 제조 특성상 Be 증기의 화학적 유독성의 문제가 없고, 화학적으로 균질하고 연성이 양호하여, 피접합물의 모양이 복잡하거나 대면적의 경우에도 접합이 용이하고, interlayer로 삽입하여 접합되므로 모재가 침식되지 않아 두께가 얇은 피접합물의 접합시 브레이징이 용이한 장점이 있겠다.

마지막으로 이 비정질 Zr-Be 합금을 원자력분야에서 브레이징 filler metal로 사용하기 위해서는 원자로 분위기에서 장기간 노출되었을 때 부식성과 그리고 고압과 진동이 있는 사용조건하에서 강도를 유지할 수 있는가이다. 앞으로 이에 대한 연구가 후속으로 따라야 할 것으로 사료된다.

4. 결론

본 실험에서는 두가지 비정질 Be-Zr 합금인 Zr₆₅Be₃₅, Zr₅₀Be₅₀과 PVD 증착된 배릴륨을 용가재로 사용하여 지르칼로이-4를 브레이징 접합한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 비정질 Zr-Be 합금은 배릴륨 증기 발생에 따른 유독성의 문제가 없고 연성이 있어 다양한 형태의 피접합물에 이용가능하다.
2. 비정질 용가재를 삽입금속으로 사용한 브레이징 접합부에서는 모재의 침식이 거의 없었다.
3. 미세조직관찰에서 PVD에 의한 배릴륨 증착의 접합부는 primary α -Zr, Zr₆₅Be₃₅에서는 excess α -Zr, Zr₅₀Be₅₀에서는 primary ZrBe₂가 브레이징 접합부를 이루고 있었다. 비정질 용가재의 경우 PVD보다 더 많은 양의 구형의 지르코늄 화합물 상들이 생성되었다.

5. 참고문헌

1. K.T.Bates: Brazing of Zircaloy in Nuclear Fuel, AECL-2813, Sept. 1966
2. J.H.Koh, H.S.Kim: A Study on the Zircaloy-4 Brazing with Beryllium Filler Metal for the Nuclear Fuel, Journal of KWS, Vol.11, No.4, Dec.(1993)

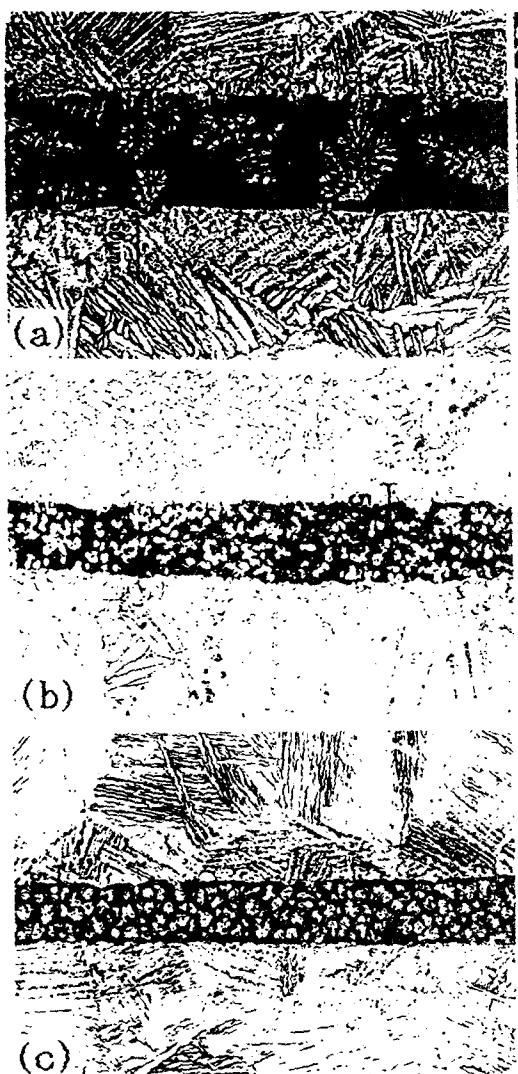


Fig. 1 Microstructures of Zr-Be Braze Joints.
(a) PVD, (b) Zr₅₀Be₅₀, (c) Zr₆₅Be₃₅

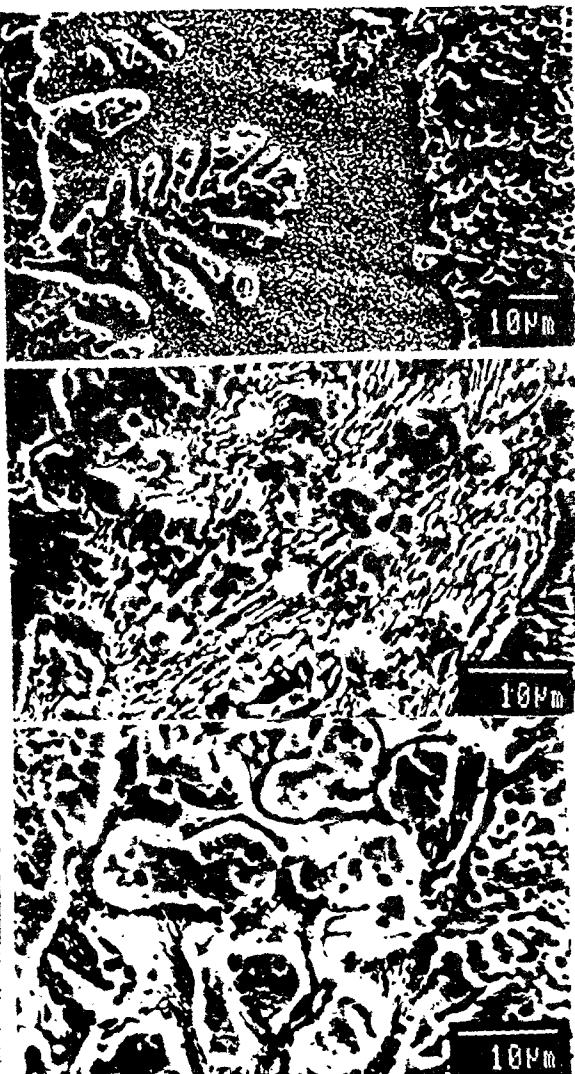


Fig. 2 SEM Microstructures of Zr-Be Braze Joints.
(a) PVD, (b) Zr₅₀Be₅₀, (c) Zr₆₅Be₃₅