

핵연료 피복재 Zr합금에 적용되는 용접기술

김수성 · 고진현 · 이정원 · 박근일

Application of Welding Technology for a Zirconium Alloy of Nuclear Fuel Cladding

Soo-Sung Kim, Jin-Hyun Koh, Jung-Won Lee and Geun-Il Park

1. 서 론

원자력 분야에서의 핵연료 피복재를 이용한 Zr(지르코늄)합금 용접은 핵연료 연료봉에 UO_2 소결체를 장전하고 He 가스를 충전한 다음 핵연료 피복재와 봉단마개를 맞게 하고 원주방향으로 밀봉하는 공정이다. 이렇게 용접된 연료봉들을 조립한 것이 핵연료 집합체이며 이것은 원자로 내에서 연소하게 된다¹⁾. 이러한 핵연료 집합체가 원자로에서 연소되는 동안 핵분열 물질(fission product)의 누출 가능성이 가장 높은 부위가 연료봉 용접부이기 때문에 용접부의 건전성은 원자력 발전소의 안전성과 직결된다고 할 수 있다.

이러한 연료봉 용접부의 중요성 때문에 핵연료 Zr합금 용접 시 여러 용접시공들의 적용 가능성에 대한 연구가 많이 수행되고 있다. 여기에는 크게 용융용접, 고상용접 또는 저항용접으로 분류되며, 용융용접으로는 GTAW, PAW, EBW 및 LBW 등이고, 고상용접으로는 저항업셋버트 용접(Resistance Upset Butt Welding), 퍼커션 용접(Percussion Welding)과 플래시 용접(Flash Welding) 등이 있다. 이 중에서 저항 업셋버트 용접은 국내 경수로형(Pressurized Water Reactor Type) 및 중수로형(Pressurized Heavy Water Reactor Type) 원전시설의 핵연료 제조에 이미 상용화 되고 있는 실정이다²⁾.

이상의 용접을 재료, 용접성, 이음설계 및 경제적 관점에서 고려할 때 GTAW는 용접부에 기공 및 언더컷 등의 결함 발생이 단점이고, EBW는 Zr합금의 산화 때문에 고진공이 필요한 고가의 장비와 함께 경제적인 문제가 대두되며, 플래시 및 퍼커션 용접은 날림(ex+pulsion) 발생으로 핵연료 제조에는 적합지 못하다. 핵연료 밀봉 관련 연구개발은 용융용접에서 시작되었지만 핵연료 특성상 무결함(zero-defect) 용접부가 요구되므로 고상용접법이 더 적합하다고 인식하게 되었음은 이미 언급된 바 있으며, 국내뿐만 아니라 선진국에서도

고상용접법이 상용화되고 있다.

본 기술 강좌에서는 핵연료 피복재로 사용되고 있는 Zr합금의 기본 특성과 주요 인자들이 용접부에 미치는 영향과 실제 현장에서의 용접 사례들을 소개하고자 한다.

2. Zr합금 특성 및 주요 인자

2.1 Zr합금의 물리적 특성

초기의 원자로 핵연료 피복재로 미국에서는 오스테나이트계 스테인리스강이 사용되었으나 염화물(chloride)에 의한 응력부식균열 발생과 중성자 흡수 단면적이 크기 때문에 Zr-2(지르칼로이-2)가 개발되었다. 이것은 Zr에 Sn, Fe, Cr과 Ni 등의 원소가 첨가된 것으로 핵연료 피복재의 표준이 되었으나 Ni은 수소를 흡수하여 수소화합물(hydride)을 생성하고 피복재를 취화하기 때문에 Ni 대신에 Fe를 첨가하여 수소 흡수율을 감소하면서 내식성을 유지하는 Zr-4(지르칼로이-4)가 개발되어 현재 가장 많이 사용되고 있다³⁾. 이들 외에 Zr합금으로는 러시아에서는 Zr-1wt%Nb 합금이 상용 원자로의 핵연료 피복재로, 캐나다에서는 Zr-2.5wt%Nb 합금이 중수로형 원자로 1차 냉각계통의 압력관으로 사용되고 있다. 이들 Zr 합금은 발전시 수냉 원자로내의 고온 수증기 및 방사선 조사 분위기에서 내식성이 우수하고, Table 1 및 Table 2와 같이 열중성자 흡수단면적이 작고, 가공성, 고온강도 및 연성이 양호할 뿐만 아니라 탄성계수와 열팽창계수가 작아 열변형 저항이 커서 용접변형이 작기 때문이다.

2.2 Zr합금의 주요 인자

2.2.1 합금원소의 첨가 효과

Zr합금은 기본적으로 내식성 및 기계적 성질 등을 향상시키기 위하여 합금원소가 첨가된다. Zr-2 및 Zr-4에 첨가하는 Sn은 고온 크리프(creep) 성질을 향상시

Table 1 원소 및 합금들의 중성자 흡수단면적

THERMAL NEUTRON CROSS SECTIONS	
	Barns
Beryllium	0.009
Magnesium	0.059
Lead	0.17
Zirconium	0.18
Zircaloy-4	0.22
Aluminum	0.23
Tin	0.63
Niobium	1.1
Nitrogen	1.9
Iron	2.56
Molybdenum	2.55
Austenitic stainless steel	3.1
Nickel	4.5
Titanium	6.1
Hafnium	104
Boron	750
Cadmium	2,520
Gadolinium	48,890

Table 2 Zr, Ti 및 스테인리스강의 물리적 특성 비교

	Zr	Ti	Stainless steel
밀도(g/cm ³)	6.5	4.5	7.9
비열(cal/gx°C)	0.07	0.13	0.12
열전도도, 20°C (cal/cm ² ox°C)	0.05	0.045	0.035
용점(°C)	1,845	1,670	1,450
열팽창계수, 20-100°C (x10 ⁻⁶ /°C)	6.4	8.5	17.3

키고 질소의 유해한 효과를 감소한다. Fe, Ni 및 Cr이 첨가되면 이들은 각각 조합되어 내식성을 크게 향상시키고 질소허용량을 증가시킨다. Cr의 경우 경도를 증가하나 0.15% 이하로 첨가되어야 한다. Ni은 고온에서 Zr-2의 수명을 연장하지만 Zr-4에는 니켈이 첨가되지 않아 수소흡수량을 감소시킨다. Zr-4에 첨가된 Fe가 Ni 없음을 보상에 준다.

또한 Zr합금에 아주 소량의 불순물이 첨가되어도 기계적 성질 및 내식성에 역효과를 미친다. 질소는 내식성에 큰 영향을 미친다고 보고되고 있으며, 0.004%만 첨가되어도 360°C에서 아주 짧은 시간에 부식율이 아주 크다. Sn은 이 질소의 나쁜 영향을 억제시킨다. 아울러 수소는 Zr과 반응하여 작은 판상형태의 석출물인 수화물(hydride)을 형성하고 Zr합금을 취약하게 한다.

2.2.2 가스 오염

Zr합금은 반응성이 강한 비철금속으로 대기와 반응하여 오염될 뿐만 아니라 수소, 질소, 산소 등에 의하여 취화된다. 또한 대기 중에서 가열 시 온도에 따라 색깔이 변한다. 즉 400°C에서 색깔이 변화되며, 500°C 정

도에서는 밝은 황색, 600°C에서는 황색에서 청색의 범위로 변화하고, 700°C에서는 황색에서 회색으로 색깔을 갖게 된다. 특히 용융상태의 Zr합금은 유기물 및 무기 화합물 등에 의해 기공이 발생된다. 고온에서 질소, 산소 및 수소 등은 Zr합금에 용해도가 높아 이들을 아주 소량만 고용하여도 경도는 증가하지만 연성은 감소한다. 따라서 용접 시 고순도의 불활성 기체나 고진공 분위기가 요구된다.

2.2.3 잔류응력과 변형

Zr합금은 Table 2와 같이 스테인리스강 및 티타늄과 비교하여 탄성계수와 열팽창계수가 작아 용접에 따른 용접부의 잔류응력과 변형이 작다. 그러나 용접 중에는 견고한 치구를 사용하여야 한다. 그리고 후판인 경우에는 치구에서 용접된 상태 그대로 용접부의 두께 25mm 당 594°C에서 1시간씩 증가시키면서 응력제거 열처리를 하는 것이 바람직하다.

2.2.4 이음설계

Zr합금은 약 316°C 정도에서 강도가 급격히 강해지고 모서리 용접이음 경우 용착금속이 연화되기 때문에 강재보다 더 많이 이동할 수 있다. 그러므로 블록 가접(tack weld)이나 역방향 용접할 때는 외부적 구속에 의해 변형되지 않도록 배열 유지되어야 한다. 따라서 용접이음 설계는 가능하면 용접을 수용하고 기하학적 균형을 유지할 수 있어야 하기 때문에 완전 용입을 얻기 위한 홈의 T형상 이음과 동일면에서 여러 개의 필릿(fillet) 이음을 피하는 게 바람직하다.

2.2.5 용접시공

Zr합금의 용접시공은 크게 용융용접, 브레이징, 고상 및 확산 접합법으로 나눌 수 있다. 용융법으로는 GTAW, GMAW, PAW, EBW 및 LBW 등이 있으나 이중 GTAW가 가장 널리 사용되고 있으며, 기타 용접법은 특정 목적에 국한되어 사용되고 있다. 그러나 SMAW에 의한 Zr합금 용접은 플럭스(flux)에 의한 오염으로 용접부가 취화되기 때문에 사용될 수 없다. 고상 접합법으로는 저항 업셋버트 용접, 자력저항 업셋버트용접, 마찰압접, 폭발압접 등이 포함되며, 최근에 들어 각광을 받고 있는 새로운 접합 방법인 액상 확산접합법도 활용이 가능하다.

3. 시공 별 Zr합금의 용접 사례

3.1 GTAW 성능 실증

Zr합금 판재 및 관류의 GTAW 시공은 불활성 가스

분위기 또는 진공 챔버 내에서 수행된다. 핵연료 피복재의 경우 내부에 장전된 UO₂ 펠렛(pellet)이 용접열에 의한 빠르고 높은 온도의 가열에 때문에 열충격으로 파손될 위험이 있어 기타 용접법의 연구가 많이 수행되고 있다⁴⁾. Zr합금 용접부의 건전성은 용접부 외관의 변색정도에 따라 판단되며 가장 이상적인 불활성 가스 실드(shield) 효과는 물론 고진공 중에서 용접하는 것으로 Zr합금의 용접금속의 색깔은 금속광택이 있는 은백색을 띄는 것이다. 실제적으로는 붉은 청색이나 청색 까지도 양호한 용접으로 간주된다. Fig. 1은 He 충전식 진공챔버와 GTA 전원장치의 직류 정극성(DCSP)인 고주파 펄스 형태를 사용하였을 때 핵연료 조사시험용 Zr-4 피복재와 봉단마개, 그리고 핀홀(pin-hole) 용접단면을 보여주고 있다. 이때 아크 전류와 용접시간을 프로그램하여 출력제어가 가능한 업슬로프, 용접 및 다운스로프 기능으로 아크 발생부터 아크 정지까지 각 단계에서 자동으로 조절한다. 용접작업은 시간 별 절차도(sequence timing chart)에 의해 각 용접단계별로 전류와 시간을 변화시키면서 수행한다. Zr-4 용접부의 미세조직은 가열과 용접사이클에 의해 결정되는 냉각속도와 관계되며, LBW와 RW에 비하여 가열 및 냉각속도가 느린 대략 10-10²°C/sec이기 때문에 조대한 입자의 Widmanstätten *a* 조직으로 나타난다⁵⁾. 이 조직은 주상정 β -입자(columnar β grain)와 아시쿨러 α -판상(acicular α -plate)으로 구성된다.

3.2 LBW/EBW 성능 실증

최근에 고출력 Nd:YAG 레이저, Fiber 레이저 등 급속한 개발로 그 활용에 관한 연구가 많이 진행 중에 있으나, 핵연료 봉단마개 용접에 상용화되고 있는 레이저는 아직 없지만 그 활용 가능성은 매우 높다^{6,7)}. 또한 핵연료 피복재 Zr-4를 레이저로 표면개질(laser surface modification)하여 내식성을 향상시키기 위한 연구가 활발히 진행 중에 있다. Fig. 2는 연구용 핵연료 건식공정 처리를 위한 핫셀(hot-cell) 내에서 원격

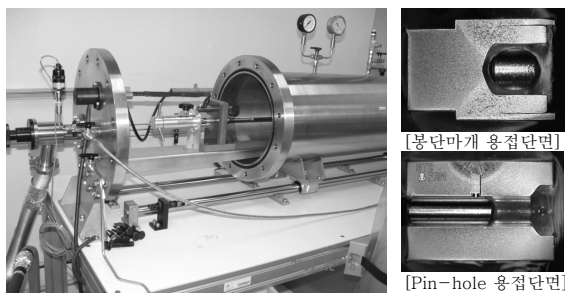


Fig. 1 조사시험용 진공챔버 및 Zr-4 봉단마개 용접단면



Fig. 2 핫셀용 LBW 원격챔버 및 Zr-4 봉단마개 용접단면

이 가능한 광섬유 전송의 진공 챔버 및 Zr-4 더미(dummy) 연료봉의 용접단면을 보여주고 있다. 이때 용접부의 미세조직은 GTAW와 유사한 martensitic *a* 와 Widmanstätten 형태의 혼합조직으로 나타났다. 그리고 LBW를 GTAW와 비교해 보면 대체로 어스펙트 비(aspect ratio)가 크며, 작고 미세한 결정립을 이루고 있어서 좋은 용접특성을 나타내고 있다.

그 외 EBW 시공은 고진공 챔버 내에서 용접할 수 있기 때문에 Zr합금 용접 시 불순 가스 흡수방지의 관점에서는 최적이라 판단되나 피용접물의 형상크기가 제한되는 것이 단점이다. Zr합금의 EBW의 한 예가 Zr-4의 원자로 연료채널이다. 이때 Zr-4의 용접조직은 GTAW와 같이 침상 *a* 조직이지만 냉각효과에 의해 *a* 입자의 미세한 조직이 형성된다. 이 경우 Zr-4에 첨가된 합금원소가 진공 중에서 증발되는 효과를 고려하여 용접재료를 사용할 필요가 있겠다.

3.3 RW 성능 실증

현재 국내 원전의 경수로형 및 중수로형 핵연료 제조에서 활발하게 적용되고 있는 용접시공은 RW이며, 이 방법은 용접할 재료의 비저항과 용접 시 접촉면에서 전기저항에 의해 발생된 열에 의해 용접부가 가열되고 이어 가압력에 의해 수행된다. Fig. 3은 핵연료 제조 시 전용 챔버와 저항 업셋버트 용접을 이용하여 업셋된 용접단면을 보여주고 있다. Zr합금의 핵연료 피복재를 이용하는 봉단마개 용접방법은 저항 업셋버트 용접⁸⁾과 자력저항 용접(Magnetic Force Resistance Welding)^{9,10)}으로 들 수 있다. 저항 업셋버트 용접은 공압 또는 유압으로 가압력을 적용하나 자력저항용접은 용접부의 형성을 위해 정밀하게 제어된 힘을 전자석을 이용하는 방법으로 종래의 저항 업셋버트 용접과는 다르다. 용접전류와 시간이 정밀하게 제어됨과 동시에 가압력 제어도 우수하기 때문에 1/20 - 1/60초의 범위로 아주 짧은 시간에 용접된다. 이 RW 시공은 모재가 용융되지 않기 때문에 결정립 성장이 최소화되고 또한 용접부에 고용

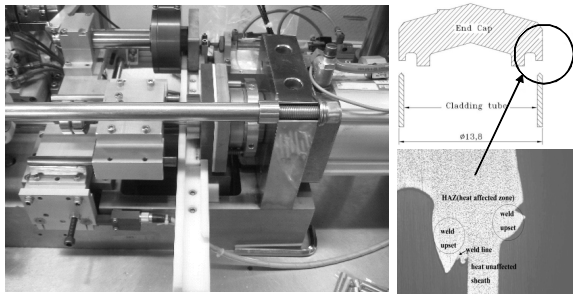


Fig. 3 He가스 챔버 및 Zr-4 봉단마개 용접단면

점 또는 산화반응이 강한 금속들에 의한 오염이 최소화되기 때문에 용접부의 내식성 또는 내균열성이 향상되는 것이 장점이다. 이상과 같이 Zr합금 피복재를 저항업셋버트 용접할 때 1초이내의 아주 짧은 시간에 완료되기 때문에 가열 및 냉각속도가 대략 $10^3\text{C}/\text{sec}$ 로 빠르다. 여기서 Zr합금 용접부의 미세조직은 martensitic α 조직이나 아주 미세한 Widmanstätten α 조직으로 관찰된다.

그러나 저항 업셋버트 용접의 단점으로는 용접부에 발생하는 덧살(reinforcement)이 용접 후 용도에 따라 제거되어야 하는 것이다. 그리고 용접 후 연료봉 내부에 잔류하고 있는 덧살은 모재와 어떤 각도를 형성하기 때문에 핵분열시 발생하는 요오드(iodine)에 의해 응력부식균열을 발생시키는 장소가 될 수 있다.

3. 결 론

Zr합금은 열중성자 흡수단면적이 작고, 고온에서 내식성, 내크리프성, 고강도가 유지되는 우수한 재료이기 때문에 핵연료 피복재 및 원자로 구조재로 널리 사용되고 있다. 원전의 안전성은 1차적으로 핵연료에서 핵물질을 싸고 있는 피복재뿐만 아니라 이들을 밀봉하는 봉단마개 등 용접부의 건전성에 달려 있다. Zr합금 용접에 적용되고 있는 다양한 용접방법들을 살펴보았지만

특히 핵연료 조립 시 사용되고 있는 용접 중 기술적, 안전성, 경제적 관점에서 가장 확실하게 비교우위를 차지하는 용접방법이 개발되고 있지 않다. 따라서 핵연료 피복재 Zr합금의 용접성능과 무결합의 건전한 용접부를 얻기 위한 효과적인 시공 개발을 위해서는 기존의 용접장치 개량, 용접이음설계와 용접법의 개선, 새로운 개념의 금속학적 접근법 및 새로운 용접방법 개발 등 조직적이고, 지속적인 연구가 수행되어야 할 것이다.

참 고 문 헌

1. P. S. Han : Nuclear Fuel Engineering Technology, KAERI, 1986, 247-273 (in Korean)
2. J. W. Lee, C. H. Park, J. H. Koh and S. H. Jung : An Investigation of Welding Variables on Resistance Upset Welding for End Capping of HWR Fuel Elements, J. of the Korean Welding Soc., **7(2)** (1989), 60-69 (in Korean)
3. B. Lustman : Zirconium Technology - Twenty Years of Evolution, ASTM STP **681** (1979), 5-18
4. B. K. HenonJ : GTA Welding Replaces Nickel Convection Tubes, Welding Journal, (1991), 59-62
5. J. A. Greenwood : British Welding Journal, **Vol 8** (1961), 316-319
6. V. Ram, G. Kohn and A. Stern : CO2 Laser Beam Weldability of Zircaloy-2, Welding Journal, July, (1986), 33-37
7. S. G. McDonald and G. P. Sabol : Mechanism of Accelerated Corrosion in Zircaloy-4 Laser and Electron Beam Welds, ASTM STP **754** (1982), 412-429
8. W. R. Kanne, Jr. : Solid State Resistance Welding of Cylinders and Spheres, Welding Journal, May, (1986), 33-36
9. W. F. Brown, J. Bandas and N. T. Olson : Pulsed Magnetic Welding of Breeder Reactor Fuel Pin End Closures, Welding Journal, June, (1978), 23-26
10. G. B. Grant, W. M. Featherston, R. E. Keith, W. F. Weldon, H. G. Rylander and H. H. Woodson : Homo-polar Pulsed Resistance Welding - A New Welding Process, Welding Journal, May, (1979), 24-36



- 김수성
- 1954년생
- 한국원자력연구원 재순환공정실증연구부
- 용접시공 및 공정 최적화
- e-mail : sskim7@kaeri.re.kr



- 이정원
- 1956년생
- 한국원자력연구원 재순환공정실증연구부
- 핵연료 설계 및 용접야금
- e-mail : jwlee3@kaeri.re.kr



- 고진현
- 1952년생
- 한국기술교육대학교 신소재공학과
- 원자력 재료 및 용접야금
- e-mail : jhkoh@kut.ac.kr



- 박근일
- 1959년생
- 한국원자력연구원 재순환공정실증연구부
- 핵연료 재료 및 물성 분석
- e-mail : ngipark@kaeri.re.kr