

## 지르칼로이-4 피복관을 이용한 레이저용접성 연구

박진석\*\* · 김동균\* · 김상태\*\* · 양명승\*\*\* · 김수성\*\*\* · 이정원\*\*\*

\*영남대학교 대학원 기계공학과

\*\*영남대학교 공과대학 기계공학부

\*\*\*한국원자력연구소

### A Study on the Laser Beam Weldability Using Zircaloy-4 Cladding Tube

Jin-suk Park\*, Dong-gyun Kim\*, Sang-Tae Kim\*\*, Myung-Seung Yang\*\*\*, Soo-Sung Kim\*\*\*  
and Jung-Won Lee\*\*\*

\*Graduate School of Mechanical Engineering, Yeungnam University, Kyongsan Kyongbuk 712-749, Korea

\*\*School of Mechanical Engineering, Yeungnam University, Kyongsan Kyongbuk 712-749, Korea

\*\*\*Korea Atomic Energy Research Institute, Daejon 305-353, Korea

#### Abstract

Corrosion and tensile properties of zircaloy-4 cladding tube having a laser welding part in elevated temperature are studied to present the criterion of quality evaluation in nuclear reactor and find the scientific basis of SCC, with laser welding method using by coupling up cladding tube to end cap. In the result of tensile test(400°C), the fracture is not happened in the welding part but base metal and the result of corrosion test(400°C 1500psi steam), corrosion rate of the molten zone and PMZ is a little higher than the other zone.

(Received November 7, 2001)

Key Words : Zircaloy-4, Laser Welding, PMZ(Partial Melting Zone), F.Z(Fusion Zone), B.M(Base Metal), Weight Gain, Oxide Film, Cladding Tube

#### 1. 서 론

지르칼로이-4은 1960년대 개발된 이후 낮은 열중성자 흡수 단면적, 고온의 물에서 높은 부식저항성, 및 상대적으로 높은 파괴인성 등의 특성으로 현재까지도 가압경수로(PWR) 및 중수로형(CANDU형) 핵연료의 피복관으로 사용되고 있다. 핵연료의 피복관과 봉단마개의 기밀유지를 위한 결합에 있어서는 주로 용접에 의한 방법이 사용되는데, 전기저항 용접법으로 결합된 기존의 중수로나 경수로의 핵연료봉 봉단용접에서는 전기저항용접이 이용된 것과는 달리 최근에 사용 후 핵연료를 이용한 봉단용접은 차폐시설 내에서 원격제어 방법으로 수행되어야 하므로, 복잡한 장치를 요구하는 전기저항 용접이 사용될 수 없고 비교적 간단하게 설치 가

능한 Nd-YAG 레이저 용접법이 사용된다. 현재 선진국에서는 1950년대 초 지르칼로이-4이 발전용 원자로의 핵연료 피복관 재료로 선택된 이래 내식성을 향상시키고자 하는 많은 연구가 이루어져 왔다<sup>1,2)</sup>. 또한 다양하게 설계된 지르코늄 합금의 부식특성에 관한 연구결과<sup>3-5)</sup>들이 국내에서도 다수 발표되어 있으나, 레이저 용접부의 부식시험은 수행되지 않은 상태이다. 따라서, 먼저 레이저 용접부의 기계적, 환경적 사용 요건들에 대한 특성의 검증이 필요하다. 본 연구에서는 지르칼로이-4 핵연료봉 레이저 용접부의 기본적인 기계적 특성 시험 및 부식시험을 수행하여 실제 원자로에서 사용 시 견전성을 확보하는데 일조 하고자 한다. 이를 위해 지르칼로이-4 피복관에 여러 조건의 레이저변수에 따라 원주방향의 용접비드를 형성시켜 400°C 전기로에서 인장시험을 수행하였고, 각 20mm길이로 절단한 후 400°C

1500psi steam 분위기의 autoclave 내에서 최대 70 일까지 부식시켜 weight gain 측정, 산화막 관찰등의 방법으로 부식특성 변화를 살펴보았다.

## 2. 실험방법

### 2.1 시험편 준비

본 실험에 사용된 재료는 바깥지름 13mm, 두께 0.4mm의 지르칼로이-4 피복관으로 그 화학적 조성과 기계적 물성치는 Table 1, Table 2 과 같다<sup>6)</sup>.

용접부 크기에 따른 산화특성의 관찰을 용이하게 하기 위해, 실제 사용되는 7ms laser pulse를 포함하여 지르칼로이-4 핵연료 피복관의 바깥표면에 원주방향으로 Table 3과 같이 5단계의 레이저 용접부를 형성시켰고, 또한 피복관 모재와도 비교 하였다.

### 2.2 경도 시험 및 미세조직 관찰

용접부의 세부적 경도 분포를 알아보기 위해 시험편의 원주방향에 수직인 단면에 대해 0.1mm의 간격으로

**Table 1** Chemical composition of Zicaloy-4(wt%)

Sn	Fe	Cr	O	Zr
1.5	0.21	0.1	0.1	bal

**Table 2** Physical properties of Zirconium

Atomic number		40
Atomic weight		91.22
Density(g/cm <sup>3</sup> )		6.50
Lattice structure	$\alpha$ Phase(862 °C Above)	HCP
	$\beta$ Phase(862 °C Below)	BCC
Melting point(°C)		1,852
Boiling point(°C)		3,580
Thermal conductivity 20°C(cal/cm-sec-°C)		0.040

**Table 3** Variation of laser welding

Pulse width (ms)	Voltage (V)	Frequency (Hz)	Calory (J)	Power (W)
Virgin	-	-	-	-
5	290	7	24	168
7	280	7	28	196
10	280	7	33	231
15	290	7	36	252
19	286	7	38	266

Micro-vickers경도(하중 100g)를 측정하였다.

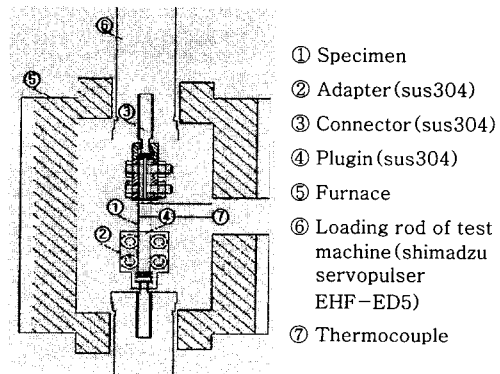
그리고 광학현미경을 이용하여 용접부의 원주방향에 수직인 단면에 대해 레이저 용접가공에 의한 미세구조의 변화를 관찰하였다.

### 2.3 고온인장 시험

ASTM E 21-92에 따라, 용접선과 수직인 방향으로 인장하였다. 시험편은 중앙에 위치하도록 각각 25mm길이의 절단한 후 표면을 세척하였다. 시험편의 열평형을 위해서 400°C에서 40분간 유지시킨 후 1[mm/min]의 속도로 인장 하였고 각 조건마다 3개씩 시험하여 평균값을 취하였다. 사용된 시험장치는 Fig. 1에 나타내었다.

### 2.4 부식시험

ASTM G2-88에 따라, 부식시험을 위하여, 용접부가 시험편의 중앙에 위치하게 diamond cutter를 이용하여 길이 20mm로 절단한 후 acetone으로 세척하였다. 이렇게 준비된 시험편을 autoclave 내에 증류수 220ml와 함께 넣고 온도와 압력을 증가시켜, steam(400°C, 1500psi)분위기를 만들어 주었다. 실험과정을 거친 3, 14, 30, 50, 70일경과 후의 시험편에 대해 용접조건 별로 micro-balance를 이용한 Weight gain의 측정 및 SEM을 이용하여 산화막 형태를 관찰하였다. Table 4와 Fig. 2에서 각각 부식 시험편과 시험 장치를 나타내었다.



**Fig. 1** Schematic of furnace inside

**Table 4** Corrosion specimens

Pulse width	Voltage (V)	Laser power(W)	Quantity
virgin	0	0	10(No.001~010)
5ms	290	24J×7Hz=168	10(No.101~110)
10ms	280	30J×7Hz=210	10(No.201~210)
19ms	286	38J×7Hz=266	10(No.301~310)

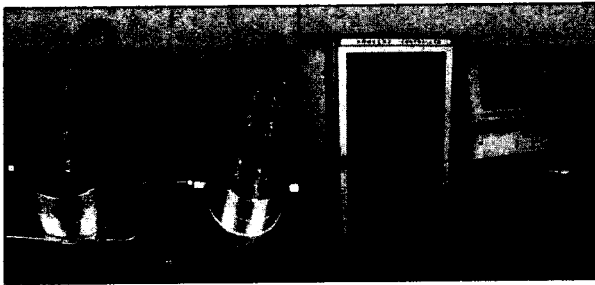


Fig. 2 Autoclave & control panel

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 미세경도 및 미세조직

경도값의 분포에 따라 용접부를 용융부, HAZ, PMZ 로 구분하였고, 용접부에서 용융부를 기준으로 한 대칭 되는 좌우측의 경도값은 비슷하게 나타났다. 미세경도 분포를 측정한 결과 모재에 비해 용융부는 약 32% 높고, HAZ부는 약 13% 낮게, 그리고 PMZ부는 비슷한 경도를 보였다(Fig. 3, Table 5). 용접부의 미세조직의 변화를 관찰해 본 결과 HAZ부에서는 결정립 성장이 보였고, 부분용융부를 거쳐 용융부 쪽으로 갈수록 침상조직이 많이 나타났다(Fig. 4).

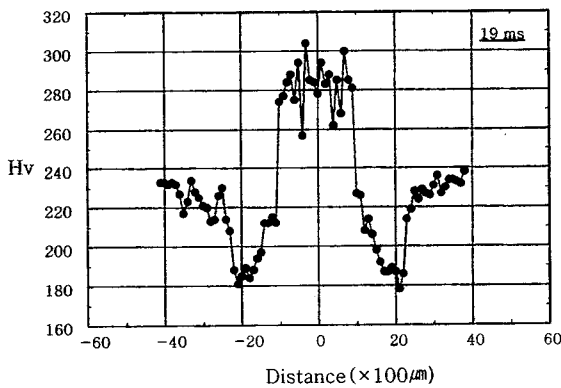


Fig. 3 Micro-vickers hardness values

Table 5 Distribution of welding part(mm)

Pulse width	Welding zone	Fusion zone	PMZ (L/R)	HAZ (L/R)
5ms	3.8	1.65	0.3/0.5	7.05/0.6
7ms	4.0	1.75	0.4/0.4	0.9/1.2
10ms	4.5	1.60	0.3/0.4	0.85/0.7
15ms	4.5	1.85	0.4/0.5	0.9/0.85
19ms	4.5	2.00	0.4/0.5	0.8/0.8

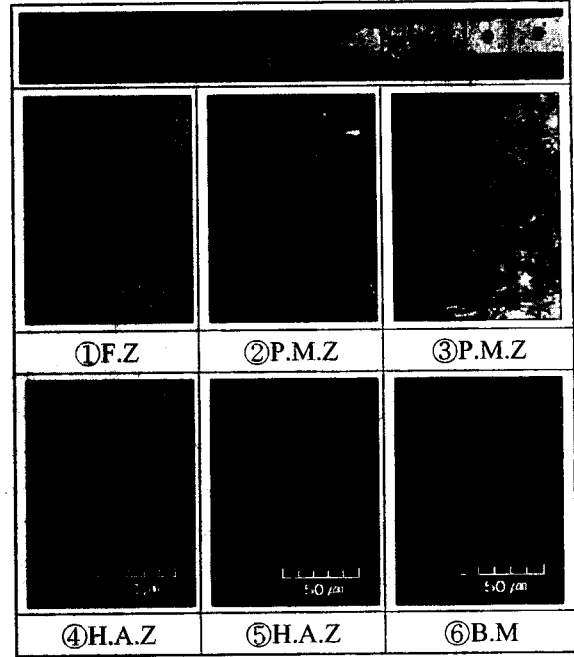


Fig. 4 Microstructure of laser welding part(19ms)

#### 3.2 고온인장

중심부에 레이저 용접부를 형성시킨 Zr-4 핵연료 피복관의 400℃고온인장 시험결과 virgin tube보다 인장강도는 약 10~25% 높고, 연신율은 약 28~32%정도 낮은 것으로 나타났으며, 펄스폭의 변화에 따른 stress, strain 값의 특성은 발견하지 못하였다.(Fig. 5, Table 6) 용접부가 아닌 모재에서 파단이 일어났으며 파단면은 dimple이 형성되는 연성파괴의 양상을 나타냈다. 이를 각각 Fig. 6과 Fig. 7에 나타내었다.

#### 3.3 부식시험

##### 3.3.1 Weight Gain

용접을 하지 않은 virgin tube에 비해 용접부를 형성시킨 시편들의 무게증가량이 많았으며 증가율은 처음

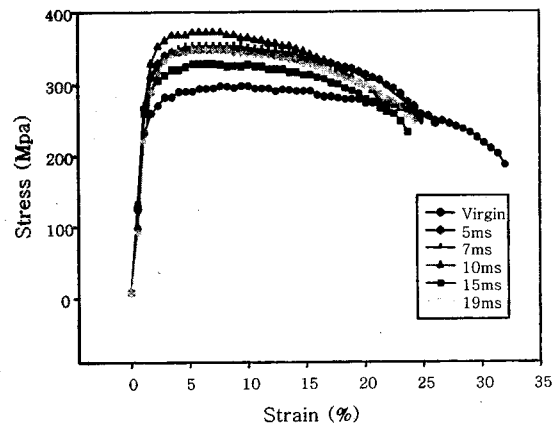
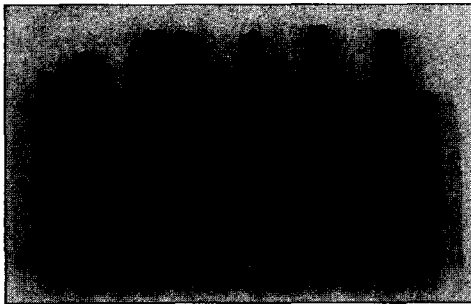


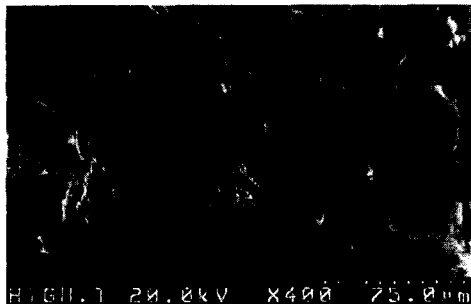
Fig. 5 Stress-strain curves

**Table 6** Tensile properties of Zr-4 welded tube

Welding variation	Tensile stress (MPa)	Elongation (%)
virgin	304	32
5ms	359	26.2
7ms	363	25
10ms	383	22
15ms	336	23.7
19ms	355	24

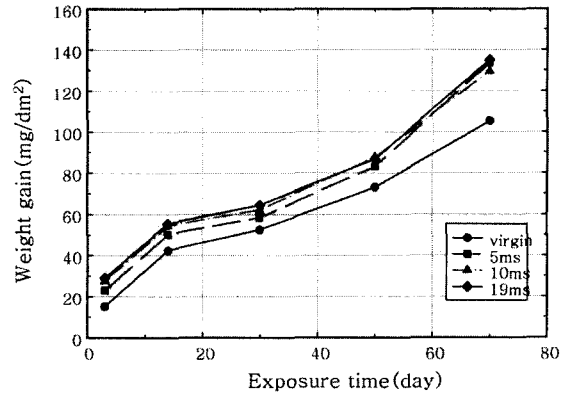


**Fig. 6** Fracture type after tensile test



**Fig. 7** Fracture surface after tensile test

3일 이후에는 비슷한 양상을 보이다가 70일에서는 용접부가 있는 시편들의 부식속도가 조금 증가하였다. 또한 용접부의 크기의 차이가 있는 5ms와 10ms 용접시편의 무게증가량은 용접부의 크기가 큰 10ms 용접시편의 경우가 크게 나타남을 알수 있었다. 이는 모재부 보다는 용접부가 부식 환경에 더 민감함을 보여준다. 용접부의 크기가 비슷한 10ms와 19ms의 경우에는 큰 차이가 없었다. 또한 전체적인 경향은 산화반응이 산화막을 통한 산소이온의 확산에 의해 지배되는 대부분의 지르칼로이-4의 산화실험을 수행한 결과<sup>7)</sup>와 마찬가지로 초기에는 식(1)에서 n값이 2와 3인, 2,3차 법칙을 따르다가, 40일을 전후한 천이점을 경계로 천이 후에는 산화가 가속되는 1차 법칙(식(2))에 따라 산화되었다 (Fig. 8).



**Fig. 8** Corrosion behavior of Zr-4 having a laser welding part

$$\text{Pre-transition : } \Delta w^n = k_c \cdot t \tag{1}$$

$$\text{Post-transition : } \Delta w = k_L(t - t_i) + \Delta w_i \tag{2}$$

( $\Delta w$ =무게증가량,  $t$ =노출시간,  $n$ =반응지수,  $k_c \cdot t$   $k_L$ =비례상수,  $t_i$ =천이점)

### 3.3.2 산화막 형태 관찰

Autoclave내에서 각각 3, 14, 30, 50, 70일이 지난 시편의 접선방향에 수직한 단면을 SEM으로 관찰한 결과 열영향부의 부식층 형성에 있어서는 모재(base metal : B.M)와 다른 특이점을 발견할 수 없었으나 시간이 지남에 따라 용융부(fusion zone: F.Z)와 PMZ부의 바깥표면이 모재부에 비해 많이산화되는 것을 관찰할 수 있었다.(Fig. 9, Fig. 10, Fig.11) 이는 용접시 800℃이상의 온도가 가해 짐으로써  $\beta$ 상으로 상변태가 일어난 후 피복관의 두께가 얇아 빠른속도로 냉각된다. 이와 같은 퀘칭 효과에 의해 Zr의 내부식성을 증가시키는 합금원소인 Fe, Cr등이 충분히 고용되지 못하고 낮은 고용도를 보이며 석출상으로 존재한다.



**Fig. 9** Shape of oxide film (F.Z & PMZ)



Fig. 10 Shape of oxide film (HAZ & B.M)

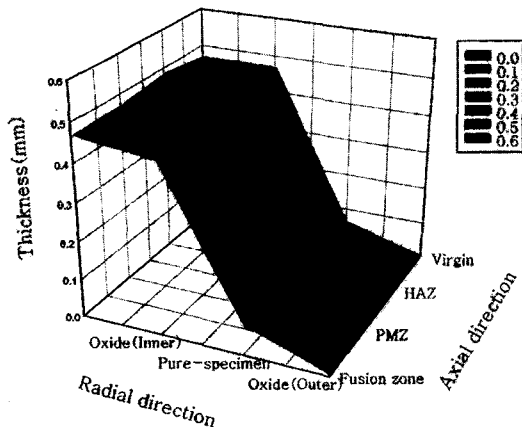


Fig. 11 Thickness and distribution of oxide film (19ms/70days after)

이러한 석출상의 크기 및 분포는 부식특성에 크게 영향을 미친다. 따라서 용융부에서는 부식이 촉진되는 양상을 보이고 각 조건마다 weight gain의 차이도 이로 인한 것이다. 또한 레이저용접방법에서는 지르칼로이의 산화방지용으로 불활성 보호가스(UPC:grade)를 사용하였다. 이때 용접노즐에서 흘러나오는 불활성가스는 바깥쪽 튜브표면에서 보호하게 된다. 이와 같은 용접공정을 볼 때 튜브 안쪽은 바깥쪽에 비해 내식성이 떨어짐을 유추 할 수 있었고, 본 실험에서도 튜브 안쪽이 바깥쪽 보다 부식층이 더 두껍게 나타났다. 부식 시간에 따른 시편들의 표면 색깔 변화는 처음 3일의 경우 짙은 회색으로 변한 후 시간이 지나면서 옅은 회색으로 바뀌어 갔다.

### 3.3.3 산화막내 성분함량

용융부와 부분 용융부의 안쪽표면과 모재의 바깥쪽 표면에 대해 모재부와 산화층의 성분 및 산소의 함량을 EPMA를 사용하여 분석해 보았다. 산화막 바깥쪽에서 안쪽으로 0.2 $\mu$ m간격으로 50 $\mu$ m만큼 분석하였다(Fig. 12, Fig. 13). 그 결과 용융부 안쪽표면 부식층에서

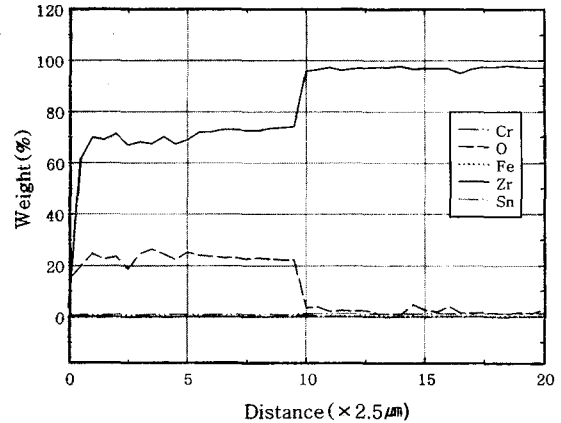


Fig. 12 Component distribution of oxide film (inner surface of F.Z)

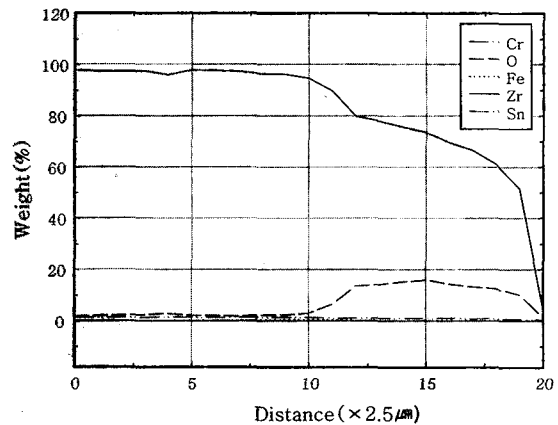


Fig. 13 Component distribution of oxide film (outer surface of B.M)

Zr과 산소의 함량이 조금 많았으며, 합금원소의 차이는 거의 없었다. 이것은 용접시 불활성 분위기를 형성시키지 않은 안쪽표면이 이미 얼마간의 산화가 진행되었던 것을 뒷받침한다. 부식층의 성분분석을 통한 산화층의 두께는 안쪽과 바깥쪽이 거의 비슷한 두께를 나타내었다.

## 4. 결 론

본 연구에서는 지르칼로이-4 피복관을 이용한 봉단마개 레이저 용접부의 고온인장 및 부식시험의 특성에 대하여 검토하였다. 기계적시험 및 부식시험에서 얻어진 결과는 다음과 같다.

- 1) Virgin tube보다 용접부의 인장강도는 400 $^{\circ}$ C에서 약 10~25%정도 높고, 연신율은 약 28~32%정도 낮게 나타났고, 모재보다 용접부가 강도가 높았다.
- 2) 부식 시험 결과 최초 3일 이전과 40일을 전후한 천이점 이후에 모재에 비해 레이저 용접부의 부식속도가 증

가됨을 알았다.

3) 용융부와 PMZ는 용접과정에서 지르코늄 합금의 내식성 재료로 첨가되는 Fe, Cr원소의 고용도가 떨어져 내식성이 저하됨을 알았다.

4) 용융부 안쪽표면 산화막이 바깥쪽 보다 더 두껍게 나타남을 보아 용융부 안쪽이 바깥쪽 보다 내식성이 떨어짐을 알 수 있다.

## 후 기

본 연구는 2001년도 과학기술부의 원자력연구개발사업과 두뇌한국21 사업에 의하여 지원되었음.

## 참 고 문 헌

1. G.P.Sabol, S.G.Mcdonald, P.Alrey, G.P.Airey : Microstructure of the Oxide Films Formed on Zirconium-Based Alloys, ASTM STP 551(1973), 435-439
2. 유한일 : Zr 합금의 부식기구 연구, 한국원자력 연구소 (2000) (in Korean)
3. 김창호 : Zr 신합금 피복관의 부식특성연구, 한국원자력 연구소(1995) (in Korean)
4. 김선재 : 지르코늄 합금의 부식모델 조사, 한국원자력 연구소 (1999) (in Korean)
5. 백종혁 : 원자력 발전소에서 지르코늄 합금의 부식, 한국원자력 연구소(1999) (in Korean)
6. A.W.Urquhart, D.A.Vermilyea : Characterization of Zircaloy Oxidation Films, ASTM STP 551(1973), 463-478
7. Edward Hillner : Corrosion of Zirconium Base Alloys An Overview, ASTM STP 633(1976), 211-235