

핵연료 피복재 Zircaloy-4의 Nd:YAG 레이저 빔 용접성 연구

A Study on the Weldability of Zircaloy-4 Sheet
using Nd:YAG Laser Beam Welding

이정원, 김기호, 김종호, 양명승

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

고진현

한국기술교육대학교
충남 천안군 병천면 가전리 산37-1

요 약

핫셀(hot-cell)에서의 핵연료 봉단용접을 위한 원격 용접기술로 개발중에 있는 레이저 빔 용접(laser beam welding) 기술의 적용 가능성을 평가하기 위해 핵연료봉 피복재인 Zircaloy-4에 적용하여 그 용접성에 대한 기초적 특성을 분석하고, 관련 용접변수들의 용접성에 미치는 영향을 알아보았다. 평균출력 150W급인 펄스형 Nd:YAG 레이저 용접기를 사용해 Zircaloy-4를 용접할 때 용접부에 미치는 각 용접변수들의 영향을 기계적 시험 및 미세조직학적 관점에서 평가하였으며 기계적 시험으로는 인장시험 및 경도시험 등이 수행되었고, 미세조직 검사로는 광학현미경, 주사전자현미경 및 EPMA (electron probe microanalyzer) 분석 등이 수행되었다. 그 결과 용접변수로 빔 파워 125W 이상, 초점위치 2mm, 그리고 보호가스로는 He가스가 적절하였다.

Abstract

For the endcap welding of nuclear fuel element remotely conducted in hot cell, a laser beam welding is seriously considered. A study was undertaken to determine the influence of laser welding variables on the quality of the welds in Zircaloy-4 sheet. A pulsed Nd:YAG laser of 150W average power was used for this experiment and the welding parameters were investigated. The mechanical and microstructural characteristics of the Zircaloy-4 welds were evaluated by tensile and microhardness tests, optical and SEM as well as EPMA for local chemical analysis of Zircaloy-4 weld metal. As a result, 125 W of the beam power, 2 mm of focus depth, and He gas shielding atmosphere were optimal conditions.

1. 서 론

핵연료 봉단마개 용접은 Zircaloy-4 피복관에 소결체를 장전한 후 피복관 양단을 봉단마개로 끼워 맞춘 다음 원주방향으로 용접하여 밀봉하는 공정이다. 이렇게 제조된 핵연료봉들을 일정 형태로 조립하여 구성한 것이 핵연료 집합체이며 이것이 원자로 내에서 연소된다. 이러한 핵연료봉들이 원자로에서 연소되는 동안 핵분열 생성물(fission products)의 누출 가능성이 가장 높은 부위가 용접부이기 때문에 용접부의 견건성에 대한 요구조건은 아주 엄격하다. 그 외 핵연료 제조시 용접이 적용되는 부분은 경수로형 핵연료의 경우 상부 및 하부노즐(nozzle)과 그리드(grid) 조립, 중수로형 핵연료의 경우 연료다발 조립시 접합판(end plate) 용접과 간격체 및 지지체(spacer and bearing pads)의 피복관의 브레이징(brazing) 등 핵연료 제조에 있어 용접은 아주 중요한 공정이다. 이러한 핵연료 부품들의 용접에는 TIG, 저항용접, 브레이징 등이 이용되고 있으나 핵연료 제조와 같이 정밀용접이 요구되며, 특히 핫셀에서의 원격용접을 위해 레이저 빔 용접의 적용 가능성에 상당한 관심을 갖고 연구가 다양하게 진행 중에 있다[1,2].

본 연구에서는 평균출력 150W의 펄스형 Nd:YAG 레이저를 사용하여 Zircaloy-4를 용접할 때 용접부에 미치는 용접변수들의 영향을 조사하였다. 각 용접변수별로 시편을 준비해 기계적 시험 및 미세조직학적 관점에서 평가하였다. 기계적 시험으로는 인장시험 및 경도 시험 등이 수행되었고, 미세조직 검사로는 광학현미경, 주사전자현미경 및 EPMA(electron probe microanalyzer) 분석 등으로 용접부의 미세조직, 파단면 관찰 및 성분변화 등을 조사하였다.

2. 실험 방법

2.1. 재료

용접시편은 열처리(annealing)된 Zircaloy-4 판재(두께 2mm)로, 폭 30mm×길이 120mm 크기로 절단하여 사용하였다. 용접될 시편의 표면은 용접하기 전 아세톤으로 깨끗하게 세척하였다.

2.2. 용접장비 및 시편용접

실험에 사용된 장비는 평균출력 150W급 펄스형(pulsed) Nd:YAG 레이저 용접 시스템으로 용접헤드, 전원제어장치 및 냉각장치로 구성되었다. 용접시편은 폭 30mm×길이 120mm×두께 2mm의 크기로 압연방향과 평행 및 수직방향으로 제살(autogeneous) 비드 온 플레이트(bead-on-plate)용접을 하였다. 시편용접은 고정된 용접헤드에서 발생하는 빔 아래 용접시편을 일정 속도로 이동시키면서 용접하였다.

2.3. 인장 시험

모재와 용접부의 기계적 성질을 용접조건에 따라 비교하기 위하여 Zircaloy-4 판재를 압연방향과 평행하게 비드 온 플레이트 용접한 후 용접비드가 압연방향과 평행인 종방향(longitudinal direction) 인장시편과 용접비드가 압연방향에 수직인 횡방향(transverse

direction) 인장시편 및 모재의 인장 시편을 CNC 가공기로 제작하였다. 인장시편의 게이지 길이는 50mm였고 인장시험시 크로스헤드의 속도는 5mm/min 였다.

2.4 미세경도 시험

미세조직 검사에 사용되는 용접시편의 미세경도를 시험하였다. 표면이 미세하게 연마된 시편을 표면으로부터 1mm 거리에서 표면과 평행하게 모재에서 용접부 전체로 마이크로 비크스 경도시험(하중 50g)을 0.2mm 간격으로 수행하였다.

2.5 미세조직 검사

용접시편을 용접 길이 방향 및 횡방향으로 절단하고 에폭시 마운팅한후 emery paper 로 연삭 및 미세연마한 다음 HNO_3 , HF , H_2O (47:3:50Vol%) 용액으로 부식한후 금속현미경으로 저배율에서 용접비드의 길이와 폭 등 용접형상을 조사하고 고배율에서 용접부 및 열영향부의 미세조직을 조사하였다.

2.6 파단면 및 용접부 화학성분조사

용접조건에 따라 준비된 시편을 인장시험한 후 파단면의 파단모드를 주사전자현미경으로 비교, 조사하였고, 또 용융부의 레이저 용접시 비등점 이상 가열로 Zircaloy-4에 함유된 화학성분중 비등점이 가장 낮은 원소인 Sn의 증발손실 가능성을 조사하기 위해 용접부의 화학성분 변화량을 EPMA로 조사하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 기계적 시험

표 1은 보호가스가 Zircaloy-4 레이저 빔 용접부에 미치는 영향을 기계적 성질로 비교, 조사한 것으로 비 보호가스 분위기인 공기중에서 용접된 시편중 횡방향 시편은 모두 열영향부에서 파괴되었고, 거의 연성이 없는 취성파괴를 보였다. 보호가스를 Ar과 He를 사용하여 용접된 횡방향 시편의 경우에는 인장하중시 열영향부에서 파괴가 발생되었지만 비 보호가스 분위기인 공기중에서 용접된 시편 보다는 연성이 상당히 컸다. 그러나 횡방향 인장시편은 게이지 길이 내에서의 용접부의 면적은 작고 대부분이 모재였기 때문에 연성은 비교하지 않았다. 종방향 용접부 시편에서는 Ar+He 혼합가스 분위기에서 용접된 시편은 Ar과 He의 분위기에서 제작된 용접시편과 비교하여 연성, 항복강도 및 인장강도에서 별 차이가 없었다. 비록 같은 보호가스 분위기에서 용접된 시편이라도 횡방향 시편보다 종방향 시편의 항복 및 인장강도가 더 높았다. 또 종방향 시편 모두 인장 및 항복강도가 모재보다 훨씬 크다. 횡방향 시편도 종방향 시편보다는 다소 낮으나 모재보다 모두 크다.

3.2 미세경도 시험

그림 1은 보호가스 구성에 따라 용접된 Zircaloy-4 용접부의 경도분포로 용융부와 열영

향부 모두 모재보다 경도가 높다. 이것은 레이저 용접이 고에너지 밀도 프로세서이기 때문에 빠른 냉각속도에 의해 용융부와 열영향부가 경한 미세조직으로 구성되고 있기 때문에 모재보다 경도가 더 높다.

그림 1(a)는 Ar, He과 비보호가스 분위기 즉, 공기중에서 용접된 용접부의 경도를 비교한 것으로 공기중에서 용접된 용접부의 경도는 아주 높다. 이것은 용접중 용접부가 산화되었기 때문이다. 그림 1(b)는 He과 Ar+He 혼합가스를 보호가스를 사용하여 용접한 용접부의 경도시험 결과로 경도분포에서 큰 차이가 없다.

3.3 미세조직 검사

Zircaloy-4는 레이저 빔 용접중 고에너지 밀도의 빔 특성에 의해 재료가 비등점 이상의 온도에 도달하여 일부 증발된다. 이 과정에서 비등점이 낮은 원소는 쉽게 손실될 수 있다. Zircaloy-4에 함유된 가장 낮은 비등점을 갖는 원소로는 Sn이다. 용접시 증발에 따른 손실을 조사하기 위하여 EPMA로 성분분석을 한 결과 Sn이 Zircaloy-4의 표준성분 범위인 1.20~1.70% 범위로 유지되었으며 증발이 그다지 심하지 않았다.

그림 2(a), 3(a) 및 4(a)는 보호가스 He, Ar과 25%Ar-75%He으로 용접된 Zircaloy-4의 용접부 단면이다. 여기서 용접부 단면의 거시적 조직은 보호가스에 따라 용접부 상단부에서 증상으로 등축정 α 입자(equiaxed grain)들로 구성되어 있어 용접후 냉각속도가 느린 영역이었고 외부로 갈수록 주상정 β 입자(columnar grains)로 형성되었고 그 내부에 α 입자들이 생성되었다. 외각 검은띠 부분은 용융부와 모재의 경계로 열영향부이다. 이 열영향부는 TIG나 PAW용접부에서 나타나는 열영향부 보다 훨씬 작다. 이것은 TIG 용접법에서의 냉각속도 범위인 $10 \sim 10^2 \text{ }^\circ\text{C}/\text{sec}$ 와 비교하여 레이저 빔 용접은 고에너지 밀도용접법으로 냉각속도가 $10^2 \sim 10^3 \text{ }^\circ\text{C}/\text{sec}$ 범위로 상당히 빠르기 때문이다[3].

그림 2(b), 3(b) 및 4(b)는 보호가스 He, Ar과 25%Ar-75%He으로 용접된 Zircaloy-4 용접부의 미세조직이다. 3가지 조건에서 냉각속도에서 큰 차이가 없었고 dark etched 부분은 martensite 형태의 미세한 Widmanstatten α plate의 미세조직으로 빠른 냉각속도 때문이다[45].

용접한 그대로 (as-welded)의 용융부는 좁은 열영향부와 epitaxial nucleation된 조직이고 열영향부는 구 β 입자로부터 용융부로 직접 Columnar 구 β grain 들이 성장하였다. 용융경계 가까이에서 cellular growth로부터 용접부 중심으로 가면 cellular-dendritic growth로 변화됨을 알 수 있다.

3.4 파단면 조사

용접보호가스 변화에 따른 Zircaloy-4 용접부의 인장시험에 의해 파단된 파면은 Ar과 He 경우 그림 5와 같이 dimple rupture이다. Cuplike depression은 미소기공의 합체 (microvoid coalescence)의 직접 결과이고, 이와 같은 cuplike depression을 dimple이라 부르고 이때의 파괴모드를 dimple rupture라 하며 이것이 대표적인 연성파괴이다. 그러나 공기중에서 용접된 인장시험의 파단면으로 파괴가 시작된 표면근처에는 취성파괴가 압도

적이다. 용접시편의 인장시험에 의해 파괴된 파면으로부터 일부 시편에서는 큰 기공이 발생되었다.

그리고 용접부의 성분변화를 확인하기 위해 EPMA로 분석한 결과 이 재료의 화학조성이 97.4%Zr-1.28%Sn-0.29%Fe-0.99%Cr으로 구성되었음이 확인되었는데 이는 모재와 화학조성이 같은 것으로 석출물이나 이물질이 아니었다. 따라서 레이저 용융용접에 따른 성분원소의 변화는 미미한 것으로 사료된다.

4. 결 론

본 실험의 목적은 핵연료 피복재료인 Zircaloy-4 재료를 평균출력 150W급인 펄스형 Nd:YAG 레이저 용접기로 용접시 주요 용접변수들이 용접에 미치는 영향을 조사하여 최적의 용접조건을 확립하기 위한 기초자료를 얻기 위함이었다고 본 실험에서 얻은 주요 결과는 다음과 같다.

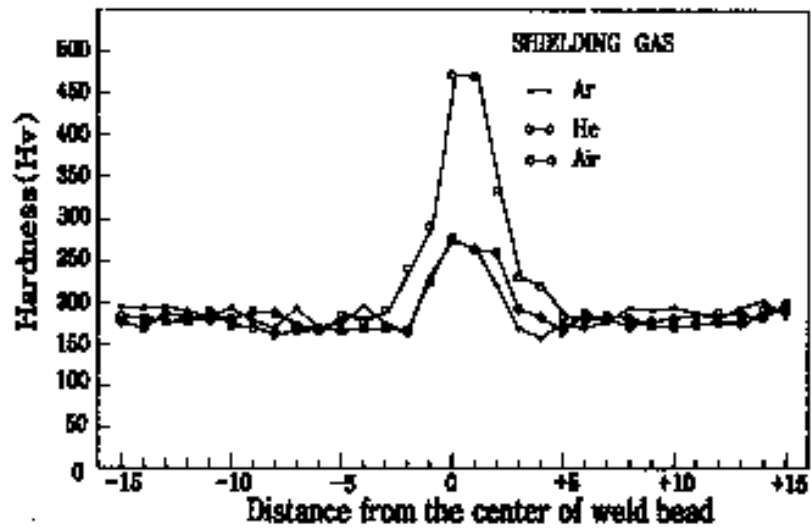
1. 인장시험 결과 Ar 및 He 보호가스 분위기에서 용접된 시편에서는 연성이 20% 이상이나 대기중에서 용접된 시편의 연성은 12%로 취약하다. 그러나 모든 용접시편은 인장하중 하에서 열영향부에서 파괴되었다. 용접부 미세경도는 보호가스 구성에 관계없이 용융부와 열영향부 모두 모재보다 경도가 더 높았다.
2. 미세조직검사 결과 용접부 조직은 전형적인 급냉응고 조직인 martensite 형태의 Widmanstätten 조직을 보여주었다.
3. 파단된 용접부의 형태는 Ar과 He 보호가스 분위기에서 용접된 시편의 경우 dimple rupture 형태로 연성파괴 거동을 보여주며, 대기중에서 용접된 시편의 경우 취성파괴를 보였다.
4. 용접부의 조성을 EPMA로 조사한 결과 비등점이 가장 낮은 Sn 원소의 평균조성이 Zircaloy-4의 표준 성분범위를 유지하고 있어 증발 손실은 없었다.

감사의 글

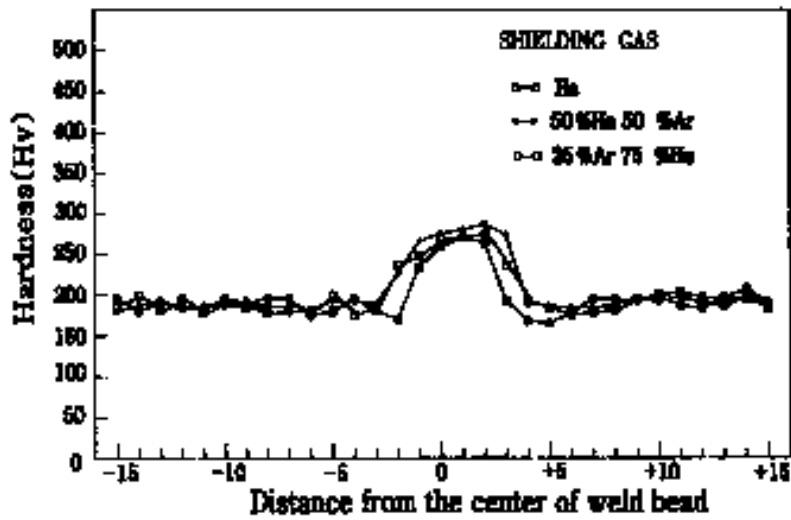
본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

1. V. Ham, G. Kohn and A. Stern, *Welding Journal*, July, 33 (1986)
2. S. S. Kim, D.H. Kim, C. J. Kim and J. M. Lee, *J. Kor. Wel. Soc.*, 9(1) 23 (1991)
3. J. A. Greenwood, *British Welding Journal*, 8 (1961)p 316
4. V.G. Parfenov, et. al., *Corrosion of Zirconium and its Alloys*, Publ Atomized Moscow, (1976)
5. A.A. Bryukhanov, et. al., *Aut Svarka*, 11 (1985) p17

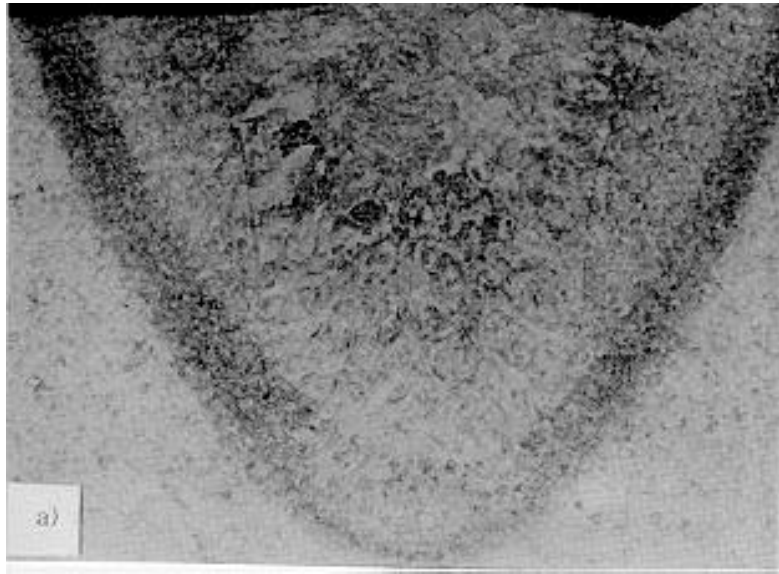


(a) Ar, He 및 Air 용접부



(b) He, 50%He-50%Ar 및 25%Ar-75%He 용접부

그림 1. 보호가스조성에 따른 용접부의 경도분포

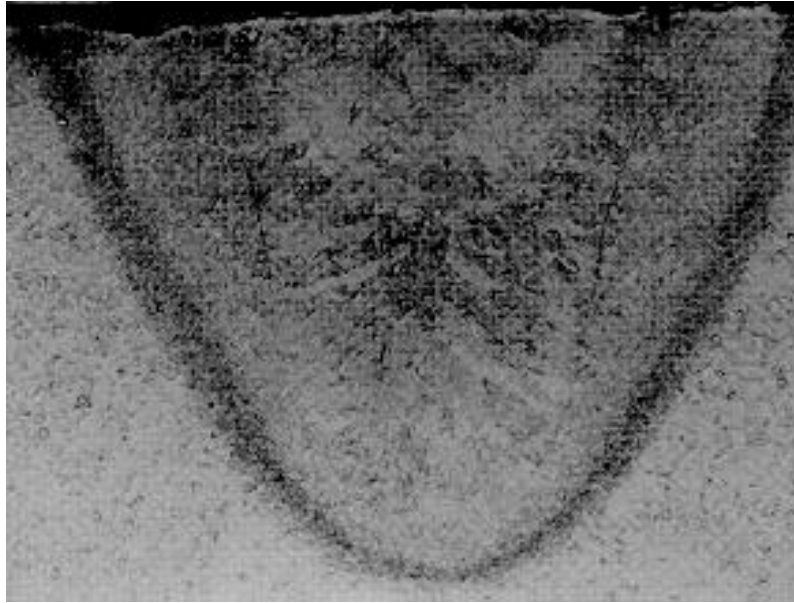


(a) 용접부 단면(x100)



(b) 용접부 미세조직(x200)

그림 2. 레이저 빔 용접부의 미세조직(He 보호가스)

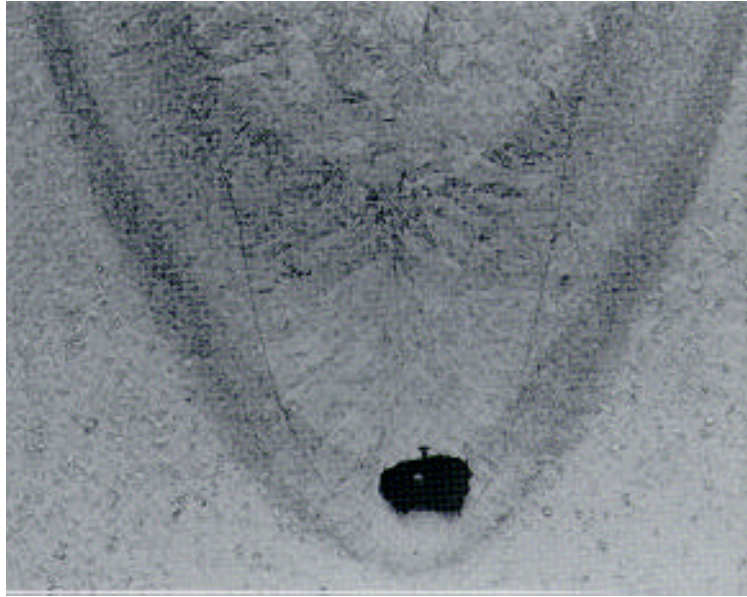


(a) 용접부 단면(x100)



(b) 용접부 미세조직(x200)

그림 3. 레이저 빔 용접부의 미세조직(Ar 보호가스)

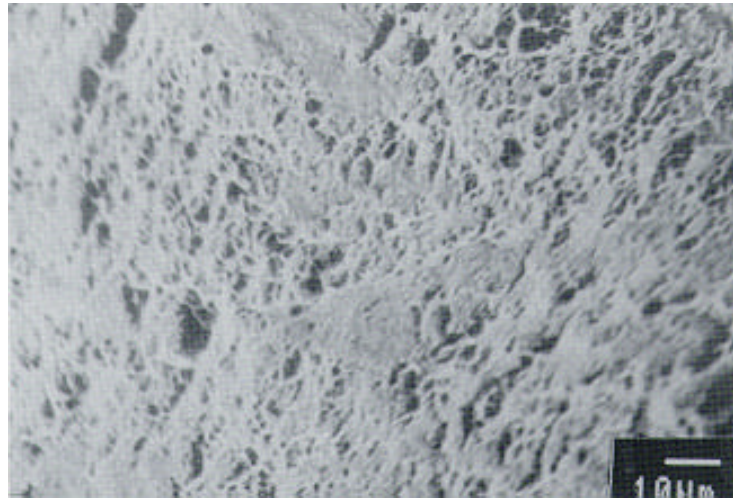


(a) 용접부 단면(x100)

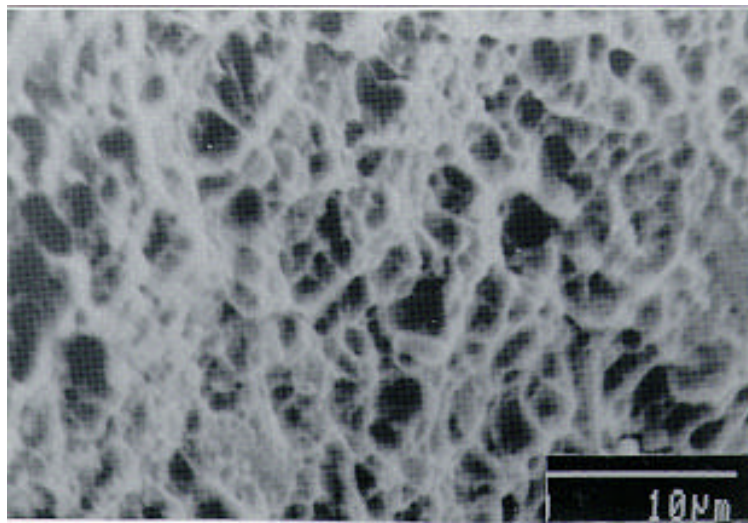


(b) 용접부 미세조직(x200)

그림 4 레이저 빔 용접부의 미세조직 (25%Ar-75%He 보호가스)



(a) 저배율



(b) 고배율

그림 5. He를 보호가스로 사용하여 용접한 시편의 인장하중에 의해 파괴된 파단면

표 1. 보호가스에 따른 Zircaloy-4용접부의 기계적 성질

Shielding gas	Type of weld specimen	Elongation (%)	Reduction in area (%)	Y. S. (kgf/mm ²)	T. S. (kgf/mm ²)	Fracture
Ar	transverse	-	-	30.2	47.15	HAZ
	longitudinal	20.2	42	33.1	49.1	
He	transverse	-	-	30.6	47.3	HAZ
	longitudinal	20.4	38.3	30.6	49.5	
Air	transverse	-	-	31.2	37.2	HAZ
	longitudinal	12.2	22	31.8	46.4	brittle
25%Ar-75%He	transverse	-	-	29.4	47.2	HAZ
	longitudinal	20	46.1	33.1	49.1	
50%Ar50%He	transverse	-	-	30.6	47.3	HAZ
	longitudinal	20.4	44.1	33.1	49.4	
75%Ar25%He	transverse	-	-	29.4	47.3	HAZ
	longitudinal	20.4	41.2	35	49	
Base metal		21.8	25	27.2	33.7	