研 究 論 文
大 韓 熔 接 學 會 誌
第11卷 第4號 1993年 12月
Journal of the Korean
Welding Society
Vol.11. No.4, Dec., 1993

베릴륨 용가재를 사용한 핵연료피복재 지르칼로이-4 브레이징에 대한 연구

고 진 현* · 김 형 수**

A Study on the Zircaloy-4 Brazing with Beryllium Filler Metal for the Nuclear Fuel

J. H. Koh* and H. S. Kim**

Key Words : Beryllium(베릴륨),Zircaloy-4(지르칼로이), Basketweave(바스켓위브), Brazing(브레이징), Surface Tension(표면장력), Weight gain(무게증가), Precipitates(석출물), Diffusion(확산)

Abstract

An attempt was made to investigate the effect of brazing time on microstructure, microhardness, and corrosion of Zircaloy -4 as well as the beryllium diffusion into its sheet. The sheets were coated with beryllium and brazed at 1020℃ for 20-40 minutes in 2×10^{-5} torr vacuum atmosphere.

1. Microstructurally the brazed zone was largely divided into three regions : a region of continuous or partially formed of eutectic liquid films along grain boundaries ; a region of precipitation in both grains and grain boundaries ; a region of elongated wide structure of α-laths, which was not affected by beryllium.

2. Due to the precipitates, the beryllium-migrated region was hardened and the width of the hardened region increased with increasing brazing time.

3. Beryllium brazed Zircaloy -4 sheets showed a higher corrosion rate than those of as-received and heat-treated at a brazing temperature.

* 정회원, 한국기술교육대학 산업기계공학과
** 정회원, 한국원자력연구소 중수로핵연료사업부

4. Diffusion coefficient of beryllium into Zircaloy -4 at 1020℃ for 30 minutes was $7.67 \times 10^{-7}cm^2/sec$. It seemed that Be penetrated into Zircaloy -4 by forming eutectic liquid films along grain boundaries in the proximity of Be/Zr interface and it, thereafter, diffused into Zircaloy mainly by interstitial solid solution.

1. 서 론

월성 원자력 발전소는 중수로(heavy water reactor)형으로서 여기에 사용되고 있는 핵연료 집합체는 고리원자력 발전소 등에 사용되는 가압수로(pressurized water reactor)형 연료와는 다른 많은 특징들이 있다. 그 중 하나는 핵연료 피복재료인 Zircaloy -4관(tube)에 간격체(spacer pads)가 부착되어 연소시 로내에서 인접 연료봉들과 일정간격을 유지하고, 또 최외각 연료봉에 냉각수가 흐르는 방향으로 방향지지체(bearing pads)가 부착되어 연료집합체가 장전되는 압력관(calandria tube) 내벽과 간격을 유지하고 연료봉과 압력관 사이의 마찰로 발생될 수 있는 피복관 마모를 방지한다. 이들 간격체와 방향지지체등의 부착물(appendages)들은 베릴륨(Be)을 용가재로 사용하여 브레이징(brazing)으로 접합된다. 이것은 다른 용융 용접등과 비교하여 간격체 및 지지체와 피복관 사이에 틈 발생을 방지할 수 있어 간격부식(crevice corrosion)을 예방할 수 있고 또 미세조직 변화의 영향을 작게할 수 있기 때문이다.

베릴륨이 그 독성(toxic)에도 불구하고 Zircaloy-4 브레이징에서 용가재로 사용되는 것은 Zr-Be 이 975℃에서 공정온도를 가지기 때문으로 이들의 융점에 비해 비교적 낮은 온도에서 접합이 가능할 뿐아니라 열중성자 흡수 단면적이 작고 열전도도가 크기 때문이다[1~3].

그러나 Zircaloy-4를 베릴륨을 사용하여 브레이징하면 모재/용가재 사이의 계면으로 액상의 Zr-Be 공정합금이 침투 또는 확산됨에 따라 금속간 화합물이 생성될 뿐아니라 미세조직 또한 변화된다. 따라서 이러한 현상은 피복관 유효 두께를 감소 시킬수 있기 때문에 이에 대한 연구가 필요하다. 본 연구에서는 Zr-4 피복관에 베릴륨을 용가재로 브레이징할때 베릴륨의 확산에 따른 피복관의 미세조직, 경도변화 및 부식성 등을 조사하고 아울러 그 침투기구(aggiession mechanism)를 조사한다.

2. 실 험

2.1 시편준비

본 실험에 사용된 모든 시편은 두께 2mm의 Zircaloy-4 시트를 베릴륨 용가재를 사용하여 브레이징한 후 형광분석법으로 베릴륨 농도를 분석할 때 0.25 mm씩 연마한 중량이 분석 기준량인 0.5g 이상이 되도록 20mm × 150mm 크기로 준비하였다. Zircaloy-4 시트표면에 존재하는 이물질 및 산화막등을 제거하기 위하여 시편을 첫째 50℃ 온수에 10분간 유지하여 유지(油脂)를 제거한 후, 10% 폴리에탄올 용액에서 30초간 초음파 세척하였고, 이어 증류수, 아세톤에 헹군다음, 건조기로 60-70℃범위에서 30분간 건조시켜 세척하였다. 이렇게 세척된 시편은 다시 9% HF, 13% HNO_3, 17% 에틸렌글리콜(ethylene glycol) 및 61% H_2O의 혼합용액에서 3분간 산세(pickling)한 후 건조하였다.

이와 같은 세척 및 산세처리는 시편표면에 있는 이물질 및 산화막 등을 제거함으로써 Be 증착시 접착력 및 브레이징시 젖음성(Wettability)을 증대하기 위해서 였다.

2.2 Be 증착 및 브레이징

준비된 Zircaloy -4 시트를 시편 호울더(holder) 위에 장치한 후 스퍼터링 체임버(chamber)의 양극에 부착하고 지름 200mm의 원형의 고순도 (99%이상) Be을 음극에 위치하고, 체임버 내부를 2×10^{-5} Torr 이상의 고 진공으로 만든후, 일정한 압력의 알곤가스 분위기에서 플라즈마를 발생시켜 증착층 두께가 약 10μm이 되도록 5시간 스퍼터링(sputtering)하였다. Be 증착은 음극 스퍼터링 장비를 사용하여 수행되었다. 이상과 같이 Be가 증착된 시편을 진공로의 기판

(substrate)위에 여러개 쌓은 후 진공도를 2×10^{-5} torr 이하의 분위기로 만든 다음 브레이징 온도 1020 ±3℃ 까지 가열속도 15℃min로 가열하였고, 이 온도에서 유지시간은 20, 30, 40분이였다. 본 실험에서 사용된 진공로의 발열체는 몰리브데늄(Mo)이었다. 진공도는 페닝마노메터(penning manometer)를 사용하여 측정하였다.

2.3 브레이징부의 특성분석

시간을 변화시켜 Be 용가재를 사용 Zircaloy-4시트를 브레이징 하였을때 브레이징부의 특성 변화는 다음과 같이 분석하였다.

2.3.1 미세조직조사 및 미세경도시험

브레이징된 시편들의 미세조직을 조사 하기 위하여 각 시편을 Be 증착면과 수직 및 수평 두 방향으로 마운팅(mounting)하였다. 증착면과 수평인 시편은 Zr-Be 계면으로부터 0.3mm씩 연속적으로 연삭 및 연마하여 미세조직 및 확산깊이를 관찰하였고, 한편 증착면과 수직인 시편은 그대로 확산깊이와 미세조직을 광학현미경으로 관찰하였다. 이때 사용된 부식액은 HF 5%, HNO_3 45%, H_2O 50% 용액으로 약 5초간 부식하였다.

Be 증착면과 수직방향으로 미세조직관찰된 시편을 미소경도기로 Be-Zr계면으로부터 0.14mm간격으로 경도를 측정하였으며 이때의 하중은 500g이었다.

2.3.2 X-선 회절(X-ray Diffraction)

브레이징시 Be 용가재가 모재로 확산하여 형성된 금속간화합물은 각 시편의 표면으로 부터 수 μm씩 단계적으로 연마하여 X-선 회절로 분석하였다. 사용된 X-선 타겟은 CuKα(λ=1.542Å)였고, 2θ각도의 회절상은 ASTM Card를 사용하여 Zr-Be 금속간화합물의 종류를 규명하였다.

2.3.3 Be의 농도측정

Zircaloy-4모재에서 Be의 확산속도를 구하기 위하여 브레이징 온도에서 유지시간이 다른 3개의 시편을 선택하여 확산깊이에 따른 Be 농도를 측정하였다. Be은 주기율표에서 원자번호가 4번으로 EPMA (Electron Probe Micro Analyzer)[4, 5]로 농도변화 조사가 어렵기 때문에 형광분석법(fluorospectrometry)[6]으로 Be 농도를 측정하였다. 시편표면으로 부터 0.25 mm씩 칩(chip) 상태로 채취하여 무수황산나트륨(anhydrous sodium sulfate)과 황산용액에 용해시켜 Be량을 분석하였다. 칩의 오차범위는 ±0.001mm인 만능밀링기(Universal milling machine)를 사용하여 채취하였다.

2.3.4 부식실험

Be 용가재로 Zircaloy-4를 브레이징하였을때 확산침투된영역의 부식성 조사는 Be를 증착하고 브레이징한 시편, as-received상태의 시편, 브레이징온도로 열처리된 Zircaloy-4의 3가지 형태의 시편을 준비하였다. 각 시편은 ASTM G-2 규격에 따라 autoclave에서 온도 350℃ 및 5MPa (50bar) 수증기압의 조건하에 일정기간 부식한 후 시편 중량증가를 측정하였다. 부식시간은 24, 48, 72와 96시간으로 변화시켰다. 그리고 온도는 300, 350, 400 및 450℃로 변화하고 72시간 부식시켜 온도 변화에 따른 부식율을 조사 하였다.

3. 실험결과

3.1 미세조직

Photo. 1은 브레이징하기전에 Be이 Zircaloy-4표면에 증착된 것을 보여주고 있으며 Be층 두께 측정에 사용되었다. Photo. 2는 브레이징부 전체의 사진으로 Be 증착층으로부터 모재로 Be가 확산침투된 영역을 보여주고있고 브레이징부에서는 둥근형상의 결정체들이 생성되어 있는데 이들은 Zr-Be 금속간 화합물로서 뒤에 자세히 고찰된다. Photo. 3은 Photo. 2보다 큰 배율의 미세조직으로, 40분동안 브레이징한 것으로 Be가 모재로 확산 침투함에 따라 나타나는 것을 영역별로 보여주고 있다. 이 그림에서와 같이 전 브레이징 영역을 세 영역으로 나눌 수 있다. 즉 Be/Zr 계면에서는 Zr-Be이 큰 검은 띠들로 보이는 금속간화합물이 편석된 영역으로 영역 I (Region I) 이라고 한다. Be/Zr 계면에서 모재쪽으로 멀어질수록 조대한 결정입내에 점차크기가 작은 입자들이 존재

Photo. 1 A typical micrograph showing a layer of sputtered Be on Zircaloy-4 Surface.

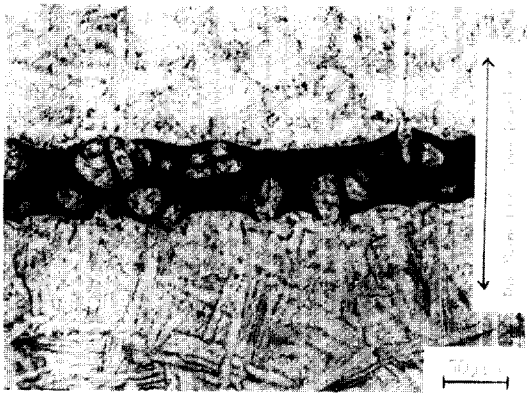

Photo. 2 A typical Zr-Be brazed microstructure

하며 이것이 영역 II(Region II)이며 영역 I과는 뚜렷하게 구분된다.

또한 영역 II에서 오른쪽으로 멀어짐에 따라 α-lath들이 서로 연결되어 마치 광주리를 짠듯한 형상의basketweave조직이 나타나며 Be 확산침투에 따라 생성되는 석출입자들이 아주 감소된 부분이 영역 III (Region III)이다.

3.2 경 도

Fig. 4는 Be 용가재가 일정한 브레이징 온도에서 시간에 따라 Be의 확산침투된 깊이와 경도치이다. 브레이징 시간이 20분인 경우 Zr/Be 계면으로부터 거리의 증가에 따라 경도가 증가하고 0.4mm에서 최고치에 도달한 후 감소되고 0.7mm에서 모재경도에 수렴하고 있다. 브레이징 시간이 30분인 경우 0.6 mm에서 최고치이고, 점차 감소하여 0.8mm에서는 모재경도치에 수렴하며 40분인 경우 0.7mm에서 최고 경도치이고, 점차 감소하여 약 1mm에서 모재 경도치와 같다.

브레이징 시간이 증가함에 따라 최고 경도치가 증가될뿐 아니라, 경도 증가 영역도 커지고 있다.

3.3 X선 회절

Be을 증착하여 브레이징된 시편에서 Be이 확산

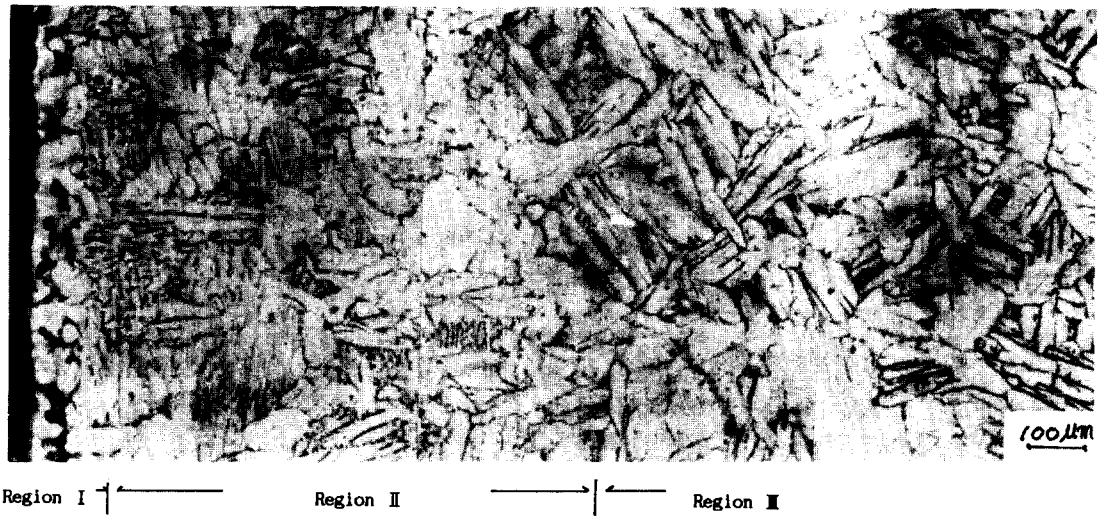

Photo. 3 Microstructure of Be-brazed Zircaloy-4 for 40 minutes and cut perpendicular to Be-Coated Surface Region I Region II Region III 100μm

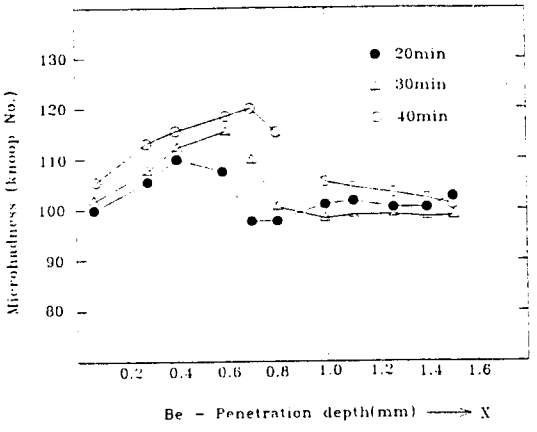

Fig. 4 Microhardness of Zircaloy−4 as a function of Be−Penetration depth.

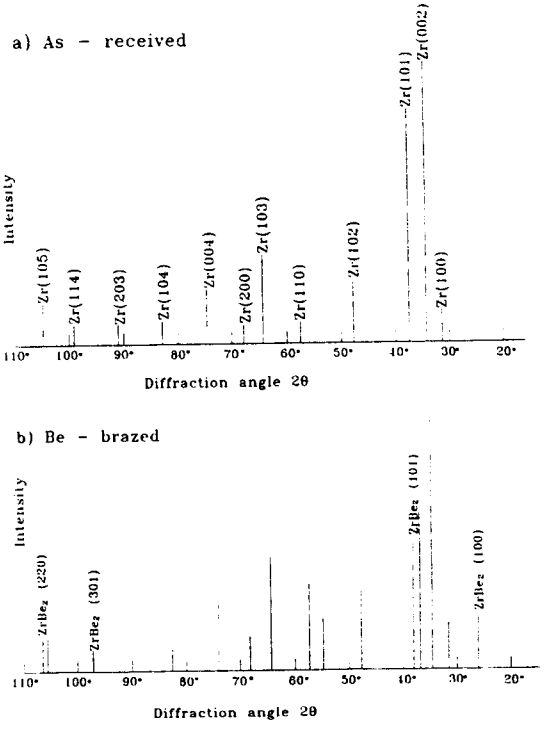

Fig. 5 X−ray diffraction patterns of Zircaloy−4.

침투하여 형성된 금속간 화합물의 형태를 조사하고 또 Be가 증착되지 않은 Zircaloy−4 모재시편을 브레이징 사이클과 같이 열처리한 시편을 사용 X−선 회절한 결과를 비교한 것이 Fig. 5이다. Fig. 5(a)와 (b)를 비교하면 Be 브레이징한 시편의 회절피이크로부터 ZrBe2의 금속간 화합물이 생성되어 있음을 식별할 수 있다.

3.4 Be 농도분포

Fig. 6은 30분 동안 브레이징 된 시편을 Be 농도 분석한 결과를 확산속도를 구하기 위하여 Semi−log 그래프를 사용하여 거리의 함수로 도시한 것이다. 이것은 최소제곱법 (least−square−fitting)을 이용하여 일련의 점군들을 지나는 직선을 그어 그 기울기가 박막 확산의 해에서 1/4Dt 로서 이미 브레이징 시간을 알고 있기 때문에 확산계수 D값을 구할 수 있었다[11].

브레이징시 Be가 1020℃에서 30분동안 모재 Zircaloy로 확산했을때 확산계수를 구하여 보자.

Fick 확산 제 2법칙의 해(solution)중 하나인 박막의 해(thin-film solution)는 다음과 같이 표현된다.

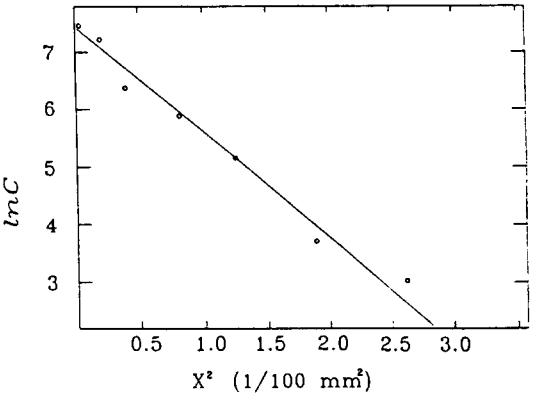

Fig. 6 Be−Concentration in Zircaloy−4 brazed for 30minutes Versus X^2.
(X : Be Penetration depth)

$$C=\frac{\alpha}{2\sqrt{\pi Dt}}\ exp(-\frac{X^2}{4Dt}) \qquad (1)$$

여기서

C : 용질원소의 농도

α : 용질원소가 없는 재료의 긴 환봉의 일단에 용질원소가 박판으로 도금되었을때 용질원소의 량

D : 확산계수 (cm^2/sec)

t : 확산시간 (sec)

x : 초기 용질원소막에 수직방향으로의 거리 (즉, 용질원소의 확산깊이)

(1)의 양변에 ℓn를 취하면

$$\ell nC=\ell n[\frac{\alpha}{2\sqrt{\pi Dt}}]-\frac{X^2}{4Dt} \quad (2)$$

(2)를 y=ax+b 형태로 변형하면 다음과 같다.

$$\ell nC=-\frac{1}{4Dt}X^2+\ell n[\frac{\alpha}{2\sqrt{\pi Dt}}] \quad (3)$$

확산계수(D)를 구하기 위해서 (3)에서 다음과 같은 식을 얻을수 있다.

$$\frac{\ell nC}{X^2}=-\frac{1}{4Dt} \quad (4)$$

따라서 $D=-\frac{1}{4t}\frac{X^2}{\ell nC}$ (5)

Fig. 6은 실험 데이타를 Plot 한것으로 x축이 X^2으로 Be이 증착층에서 수직방향으로 Zircaloy모재에 확산된 거리의 제곱이고, Y축은 ℓnC(Be의 농도)이다. Zr모재로 Be의 확산계수를 구하기 위하여 확산깊이(또는 거리)의 제곱 X^2이 2.5와 0.5mm^{2}일때 각각의 농도를 ℓnC로 표현된 값은3과 6.62이다. 이 값들을 (식-5)에 대입하면 확산계수는 7.67×10^{-7}cm/sec 이다.

3.5 부식실험

Fig. 7과 8은 as - received Zircaloy, Be이 증착되지 않고 브레이징 온도에서 열처리된 시편과 Be 증착 후 브레이징 된 3가지의 시편을 시간 및 온도를 변

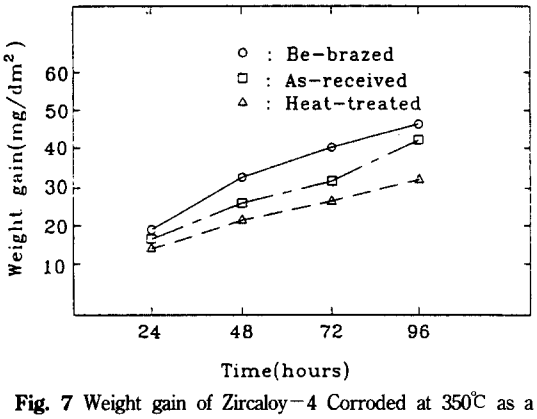

Fig. 7 Weight gain of Zircaloy-4 Corroded at 350℃ as a function of Corrosion time.

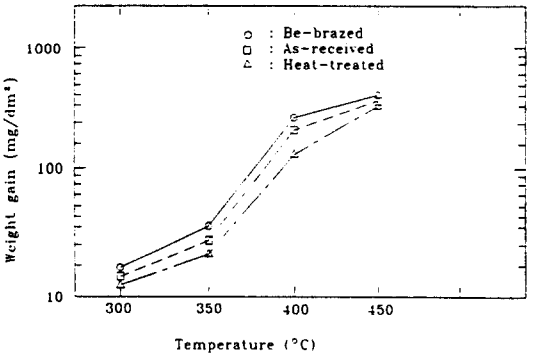

Fig. 8 Weight gain of Zircaloy-4 Corroded for 72 hours as a function of corrosion temperature.

화시켜 부식한 후 중량을 측정하여 내식성을 비교하여 보여주고 있다. 동일한 시험조건에서 Be 브레이징 된 시편의 무게증가율이 가장컸고 다음이 as - received 와 브레이징 온도로 열처리 된 시편의 순이였다.

Fig. 7에서와 같이 부식시간 증가에 따라 세 조건의 시편에서의 무게는 거의 일정하게 증가하고 있으나 Fig. 8에서는 350℃ 이상에서는 무게가 급격하게 증가하고 400℃ 이상에서는 완만하게 증가하고 있다.

4. 고 찰

4.1 Zr - Be 공정합금의 액상 확산 침투

Smith[7] 와 Cottrel[8]은 표면장력의 개념을 이용하여 Fig. 9와 같이 α, β상의 계면(OA 와 OB)과 β상간의

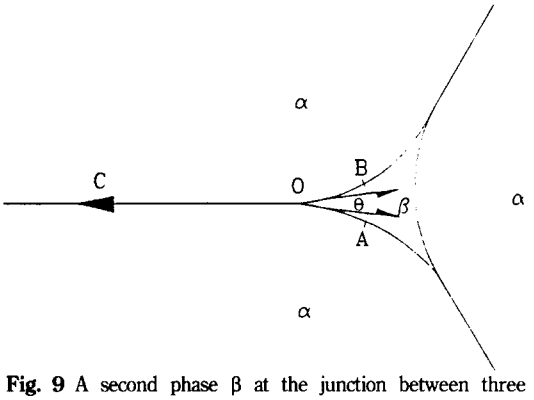

Fig. 9 A second phase β at the junction between three grains of the phase α.

계면 OC와의 집합점 O에서의 표면장력의 평형으로부터 이면각(dihedral angle)을 유도하였다. 이 표면장력을 Tαα와 Tαβ라 하면 이면각 θ는 다음과 같은 관계식으로 나타내어진다.

$$T\alpha\alpha = T\alpha\beta \cos \theta/2 \qquad (6)$$

즉 β상의 이면각은 Tαα/Tαβ에 의하여 변화되며 θ가 0° 일때 β상은 입계를 따라 연속막 (continuous film)으로 침투되나, 합금에서는 β상의 부정합(incoherency) 때문에 입자들 사이가 고각경계가 되어 모두 입계영역을 형성할려는 경향이 있어 β상은 입계에 편석되는 경향이 있다.

Photo. 10은 공정 Zr-Be 합금이 Zr/Be 계면근처에서 입계를 따라 침투 확산되는 것을 보여주고 있으며 이면각이 작음을 알 수 있다. Photo. 11에서는 검은색 띠는 연속적으로 나타나지 않고, Be-rich 제 2상의 입계와 Zr-Be 공정합금의 계면에서도 완전한 표면상태를 이루지 못하므로 표면장력에 의한 확산 침투 기구뿐 아니라 다른기구 즉 체적확산기구에 의해 확산되는 것으로 사료된다.

Be 원자가 Zircaloy-4로의 확산이 치환형인지 아니면 침입형인지 살펴보자. Zr과 Be의 전기음성도(electronegativity)가 각각 1.4와 1.5로 비슷하나 두 원소의 원자반경은 Be가 1.12A°이고 Zr이 1.60A°으로서 이들의 원자반경비 (Be/Zr)가 0.7로서 Hume-Rothery 법칙에 의하여 치환형 고용체를 형성하는데 가장 중요한 인자인 원자크기요인(Size factor)을 만족하지 못하기 때문에 치환형 고용체를 이루기가 어려운것으로 사료된다. 그러나 α-Zr(HCP)에서의 침입형 장

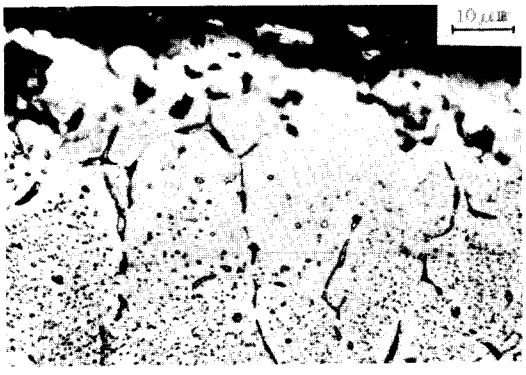

Photo. 10 Microstructure in the proximity of Be-Coated surface of Zircaloy-4 brazed for 30minutes and cut parallel to the surface.

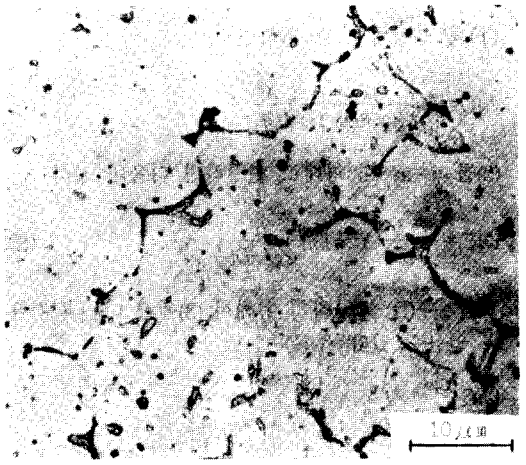

Photo. 11 Micristructure in the proximity of Be-Coated of Zircaloy-4 brazed for 30minutes and cut perpendicular to the surface.

소가 될 수 있는 공극(interstice)은 8면체(octahedral)와 4면체(tetrahedral)로 그 크기는 각각 1.5A과 1.2A°이고, β-Zr(BCC)에서는 8면체 및 4면체의 경우 1.05Å과 1.26 A임을 계산으로 얻을 수 있다. 이와같이 원자크기로 보아 Be원자는 모재의 β-Zr뿐 아니라 β-Zr의 입계를 따라 단락(short-circuit)경로로 확산하여[8] 침입형 고용체를 형성할 수 있으므로 지배적으로 침입형에 의한 고용체 확산될 것으로 사료된다.

4.2 용가재 Be의 확산이 모재에 미치는 영향

Be가 Zircaloy-4로 확산됨에 따라 변화된 미세조직 (Fig.3)은 Be가 확산된 Zr/Be 계면으로 부터의 깊이에 따라 경계는 뚜렷하지 않지만 입계확산이 지배적이고 점차 체적 확산 되는 영역 I, 석출물이 입계와 입내에 동시에 존재하는 영역 II 및 모재 그대로 유지되고 β-조직이 넓게 연신된 조직을 보이는 영역 III로 구별될 수 있었다.

영역 I에서는 Be 원자가 Zr과 상호반응하여 생성된 Be-rich 제 2상이 입계에 연속막으로 석출되기 때문에 Photo. 11과 같이 입계를 따라 큰 검은 띠를 형성하고 있다. X선 회절 결과 (Fig. 5) 이것은 $ZrBe_2$임이 입증되었다.

Zr/Be 계면에서 모재쪽으로 더욱 이동하여 영역 II에는 입계뿐 만 아니라 입내에서도 석출물들이 많이 존재하고 있으며 미세하고 균일하게 분포되고 있다.

모재쪽으로 더욱 멀어진 영역III에서는 β-Zr 입내에서 생성된 석출물은 급격히 감소하고 입계석출이 많다. β-Zr의 래쓰(laths)들은 점차 넓어지고 형상비 (aspect ratio)가 크고, 길게 연신된 조직으로 모재 미세조직과 비슷하다. 이것은 침상형태의 래쓰들이 서로 연결되는 형상으로 흡사 광주리를 엮은것 처럼 보이는 basketweave 조직이다.

이와같이 Be를 용가제로 시간을 달리하여 브레이징한 결과 Be 확산에 따른 $ZrBe_2$ 석출과 미세조직 변화에 의한 영역을 시간별로 살펴본 것이 Fig. 12이다. 브레이징 시간에 따라 Be-rich 제 2상들이 입계에 연속적인 검은띠로 형성되는 고용체 확산 영역(영역 I)은 점차 작아지고, 입내 및 입계에 석출된 영역 II는 점점 커지고, 입계 석출 영역(영역 III)은 큰 차이가 없었다.

브레이징 시간이 증가함에 따라 경도가 증가하고, 영역 I에서의 경도는 모재의 경도와 비슷하며 이는 미세조직에서 관찰하였듯이 비록 Be-rich 제 2상들이 입계에 생성되었지만 결정입자 조대화로 경도가 증가되지 못한것으로 사료되며, 영역 II에서 경도가 가장 높은 것은 미세한 금속간 화합물들이 Photo. 11과 같이 입계.입내에 분포되었기 때문으로 사료된다. 또한 이 영역은 브레이징 시간이 증가 할 수록 더욱 커지는 것은 Fig. 12와 같은 경향이다. 이는 브레이징 시간이 길수록 Be가 Zircaloy-4로 침투확산되는 거리가 증가되고 더 많은 량의 미세한 제 2상들이 석출되어 분포되기 때문으로 사료된다.

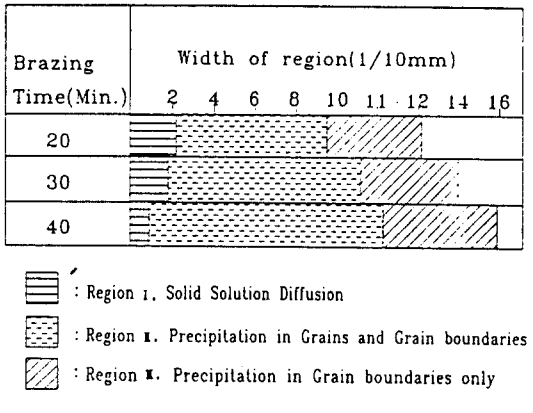

Fig. 12 Widths of regions as a function of brazing time.

또한 Be을 사용하여 브레이징 된 Zircaloy-4 시편이 as-received 상태 및 브레이징 온도로 가열처리된 Zircaloy-4 시편들 보다 부식시간 및 온도변화에서 부식속도가 가장 크게 증가하였다. 이는 $ZrBe_2$의 부식속도가 Zircaloy-4와 비교하여 약 50배 정도(9)로 크기 때문으로 사료되며 또한 350℃ 이상에서 부식률이 급격히 증가한 것은 $ZrBe_2$의 석출 뿐아니라 Zircaloy-4 표면에 형성된 4면체산화물(tetrahedral oxide)이 단사정 지르코니아(monoclinic Zirconia)로 변태되었기 때문[10, 11]으로 추측된다. 이는 Be이 Zircaloy에 확산 침투하여 생성된 금속간 화합물인 $ZrBe_2$의 량이 증가하였기 때문으로$ZrBe_2$가 거의 없는 모재보다 부식율이 컸었던 것으로 고려된다.

이상에서와 같이 고찰한 바와 같이 Be 용가재로 브레이징 된 Zircaloy-4에서 Be 확산에 따른 $ZrBe_2$ 석출과 이들의 석출량에 의한 모재의 조직변화에 의하여 브레이징부에서 내식성이 감소하였다.

결과적으로 이는 Be가 Zircaloy-4로 확산함으로서 모재의 효율적인 두께가 감소하는 효과가 있다고 하겠다. 중수로형 핵연료 피복재료는 명목상 최소두께가 0.38mm이기 때문에 Be 브레이징부가 장기간 고온. 고압 분위기의 원자력 발전소에서 유지된다변 피복관의 성능이 떨어질 수 있을것이다. 따라서 이에대한 예방적인 대책의 후속 연구가 수행되어야 할 것으로 사료된다.

결 론

Zircaloy-4 피복관을 Be 용가제를 사용하여 온도 1020℃, 2×10^{-5} torr 진공 분위기에서 시간을 변화시켜 브레이징 하였을때 모재에서의 Be의 확산기구와 계수 및 미세조직 변화에 따른 모재의 특성변화를 조사하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. Zircaloy-4를 Be로 브레이징하면 Be의 확산에 의한 미세조직은 Zr/Be 계면으로부터 크게 3영역으로 분류할 수 있었다. Zr-Be의 금속간 화합물이 검은띠로 석출된 확산영역, $ZrBe_2$ 석출물이 입계와 입내에 공존하는 영역, 입계에 석출물이 존재하나 미세조직이 α-Zr의 넓고 길게 연신된 형상으로 basketweave조직을 갖는 영역이였다.

2. 브레이징 온도(300~450℃)및 시간(24~96hr)이 증가함에따라 브레이징부의 미세경도가 증가하고 또한 석출물이 입계 및 입내에 공존하는 영역인 경화층 범위도 커졌다.

3. 온도 1020℃에서 브레이징 하였을때 Zircaloy-4

에서 Be의 확산계수는 각각 7.67 × 10^{-7} cm^2/sec였다. Zircaloy−4에서 Be의 확산은 Zr/Be 계면인접부에서 액상공정합금의 표면장력에 의한 입계확산침투이다. 또, Zr/Be계면에서 멀어짐에 따라 침입형고용체 확산이 지배적인 것으로 사료된다.

4. 브레이징 온도 및 시간이 증가함에 따라 Be로 브레이징된 Zircaloy−4시편은 as−received 및 열처리된 Zircaloy−4 시편들과 비교하여 내식성이 크게 떨어졌다.

참 고 문 헌

1. A.S. Brain, W.R. Tarasuk, K.T. Bates and D.G. Hardy : CANDU Fuel, the Influence of Design on Fuel Performance, IAEA-SM-223/31, (1978), p.79
2. K.T. Bates : Brazing of Zircaloy in Nuclear Fuel, AECL-2813 (1966)
3. P.P. King : Brazing Zircaloy Fuel Assembly Components for the Carolinas Virginia Tube Reactor, CVTR Project AT (30-1)-2289 (1961)
4. J.I. Goldstein,et al, in Scanning Electron Microscopy and X-Ray Microanalysis, Plenum Press, New York, (1981), pp.447~449
5. F.J. Heirich and D.E.Newbury : in Metals Handbook on Materials Characterization, 9th ed. Vol.10, ASM, (1986), p.516
6. P.D. Snell : Photometric and Fluorometric Method of Analysis, Metal, Part 1,McGraw-Hill, New York, Ch.16 (1978)
7. C.S. Smith : Transaction, America Institute Mining Metallurgical Engineers, 175(1948)
8. A.H. Cottrel : Theoretical Structure Metallurgy, St. Martin's Press, New York, (1948), p.150
9. D.g. Hardy and N.A.Graham : The Perfomance, Strength and Corrosion Resistance of Brazed Joints on CANDU Fuel Bundles, Trans. ANS, (1974), p.19
10. J.K. Dawson, U.C. Baugh and J.F. White : Observation on the Early Stages of Oxidation of Zirconium and Zircaloy-2, Electrochem. Technol.4, (1966), p. 137
11. P.G. Shewon, Diffusion in Solids. McGraw - Hill, New York. (1963), p.9