2002 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

개량핵연료 Spot Welded - Guide Tube의 용접성 평가

Evaluation of weldability of the spot-welded guide tube for advanced nuclear fuel

정용환, 박상윤, 이명호, 최병권, 백종혁, 정연호
한국원자력연구소

김용환, 김규태,
한전원자력연료㈜

요 약

SRA ZIRLO Guide Thimble과 Sleeve간의 점용접(SW ZLO S), RXA Zircaloy-4 Tube와 Sleeve 간의 점용접(SW Zry S) 그리고 SRA Zircaloy-4 Guide Thimble과 RXA Zircaloy-4 Grid간의 TIG 용접(TW Zry G) 및 점용접(SW Zry G)에 대한 용접 건전성을 평가하였다. Spot용접을 적용한 SW ZLO S 시편의 경우에 용접강도(1800 kgf)는 TIG 용접한 Zircaloy-4 시편의 경우(1400 kgf) 보다 우수한 것으로 나타났다. 부식 특성에서도 spot 용접부위는 TIG 용접 부위와 다른 부식특성을 보이는데, 이는 spot 용접을 하면 매우 미세한 martensite 조직이 형성되나 TIG 용접을 하면 약간 조대한 Widmannstatten 조직이 형성되기 때문으로 생각된다. SW Zry S 시편의 경우 용접 과정에서 발생된 것으로 추측되는 crack 들이 용접부 주위에서 많이 관찰되었으며 이 crack 들로 인해 용접강도가 많이 감소한 것으로 생각된다.

Abstract

The weldabilities of the spot-welded SRA Zirlo thimble/sleeve (SW ZLO S) and of the spot-welded RXA Zircaloy-4 tube/sleeve (SW Zry S) were evaluated. The welding performance of the SRA Zircaloy-4 guide thimble and RXA Zircaloy-4 grid welded by TIG- and spot-welding (TW Zry G and SW Zry G) methods were also evaluated. The SW ZLO S specimen showed higher welding strength than TW Zry G specimen. The spot-welded sample also showed a different corrosion behavior to the TIG-welded one. It would be attributed to the difference of microstructures in the both samples; the spot-welding provides very fine martensite structure whereas the TIG-welding reveals a little large Widmannstatten structure.

1. 서 론

한국표준원전용 개량핵연료인 PLUS7의 용접 방법인 SRA ZIRLO Guide Thimble과 SRA ZIRLO Sleeve간의 점 용접에 대한 건전성을 평가하고, 한국표준원전용 핵연료 집합체(KSNP) 국산화에 따른 SRA Zircaloy-4 Tube와 RXA Zircaloy-4 Sleeve 간의 점 용접에 대한 건전성을 평가하기 위하여 전단강도시험, 부식특성 시험 및 미세조직특성 평가시험을 수행하였다. 또한 용접 방법 및 재료에 따른 원자로내 조건에서 용접부위의 부식특성에 대한 data base 확보를 위해 SRA Zircaloy-4 Guide Thimble과 RXA Z Zircaloy-4 Grid간의 TIG 용접 및 점 용접에 대한 건전성도 평가하였다.

평가방법은 4가지 시편에 대한 전단강도 특성 시험과 미세조직 특성시험으로 나누어 실시하였으며, 전단강도 특성시험에서 각 용접 방법 및 시험편의 용접부 파손시 요구되는 최대 하중을 측정한 후 기존 용접방법과 비교하여 새로운 용접방법에 대한 건전성을 평가하였다. As-built 시편, 700 ppm Li 수용액에서 18.9 Mpa, 360^{o}C에서 6일간 부식시킨 시편에 대한 시험을 완료하였다. 미세조직특성은 OM 및 SEM 관찰을 이용한 부식 전후의 용접부 표면 관찰, 용접부의 N 및 Cu 오염 분석, 용접부 및 모재 TEM 관찰 등을 수행하여 평가하였다.

2. 실험방법

용접방법에 따른 시험시편의 파손시 요구되는 최대 하중을 측정하기 위하여 각 시편에 대한 인장시험을 수행하였다. Sleeve 시편은 내부에 Mandrel을 삽입하여 실험을 수행하였고, Grid 시편은 특수 grip을 제작하여 수행하였다. 실험 장비는 만능인장시험기인 DTU-900MLCD10T 을 사용하였는데 최대 하중 10ton 실험오차 0.2% 까지 측정 가능하였으며, Stress-Strain Curve 및 최대하중의 측정 등은 컴퓨터 프로그램인 UTM-200F에 의해서 자동으로 계산하였다.

각 시험시편에 대한 부식시험은 static autoclave를 사용하여 ASTM G2-81 절차에 따라 360°C(18.9 MPa)의 700 ppm LiOH 및 70 ppm LiOH 수용액 분위기에서 실시하였다. 700 ppm LiOH 수용액 분위기에서는 6일간 부식시험을 완료하여 일부 부식시편에 대한 특성평가를 실시하였다.

각 조건에서 부식 시험 및 수소 장입을 수행한 시편을 1200번까지 기계적 연마(grinding)를 수행한 후 HF 10% + HNO_3 45% + H_2O 45%의 수용액을 이용하여 swab 방법으로 etching한 후 편광현미경 및 SEM을 이용하여 모재의 미세조직 및 산화막을 관찰하였다.

3. 연구 결과 및 고찰

가. 전단강도 시험

용접방법에 따른 시험시편의 파손시 요구되는 최대 하중을 측정하기 위하여 각

시편에 대한 인장시험을 수행하였다. 측정한 두개의 시편에 대한 용접점의 파손시의 최대 하중 값을 계산하였다. 이와 같은 방법으로 구한 파손시 최대하중을 Fig. 1에 그래프로 나타내었다.

Fig. 1에서 보는 바와 같이 As-built 시편과 700 ppm Li 조건에서 6일간 부식시킨 시편에 대한 인장시험 결과는, 동일한 크기의 시편인 Spot Welding Thin Sleeve for PLUS 7 Design 시편(SW ZLO S 시편), TIG Welding for the KSNP Design 시편(TW Zry G 시편) 및 Spot Welding for the KSNP Design(SW Zry G시편) 의 실험결과에서 보듯이 TIG 용접보다는 spot 용접의 용접강도가 강한 것을 알 수 있다. 그리고 이들 시편의 부식 전후 용접강도의 변화는 실험오차의 범위 내에서 크게 변화가 없는 것을 알 수 있다. 그러나 Spot Welding for 17X17 Design 시편 (SW Zry S 시편)은 700 ppm Li 분위기에서 6일 부식시킨 시편의 용접강도가 35%이상 감소하였다.

Fig. 2. 는 SW Zry S 시편이 부식 후 용접강도가 급격히 감소되는 이유를 알아보기 위하여 동일조건에서 부식시킨 시편의 단면을 잘라서 광학현미경으로 단면을 관찰한 사진이다. 전체 표면에서 수화물(hydride)이 많이 분포해 있으며 특히 열영향부위(HAZ)의 stress가 집중된 부분 주위에 특히 많이 분포해 있는 것을 알 수 있다. 또 오른쪽 사진에서 약 45° 방향으로 stress 방향을 따라 200μm 크기의 crack이 형성되어 있고 부식이 진행되는 동안 crack 내에 두꺼운 산화막이 형성된 것을 알 수 있다. 이 크랙의 깊이는 내부 tube 두께의 1/2에 해당하는 두께로 이로 인한 용접강도의 저하가 일어난 것으로 판단된다. 그리고 외부의 sleeve 와 내부의 tube 사이의 crevice에는 약 23 μm 두께의 균일한 산화막이 형성되어 있으며 이러한 부식이 진행되는 동안 발생된 수소가 내부의 기지조직으로 들어가 많은 hydride 가 형성되어 있는데 다른 3 종류의 시편에서는 볼 수 없는 현상이었다.

나. Metallurgical Test

(1) 용접부 표면관찰 및 표면오염 검사

전형적인 점 용접의 외부 표면을 SEM 을 이용하여 관찰한 결과, 점 용접부의 중앙은 비교적 고른 평면을 유지하고 있으나 가장자리 근처는 경사가 심하고 표면이 원호 방향과 같은 방향으로 굴곡이 심하게 형성되어있는 것을 알 수 있었다. 중앙부를 고배율(2000 배)로 찍은 사진에서는 금속 표면에 흰색의 물질들이 발견되어 이들에 대한 EDX 를 이용한 성분분석 결과를 Fig. 3 에 나타내었다. 이것들의 주성분은 탄소와 산소로 각각 43.1 및 40 At% 였다. 금속성분으로는 Zr 이 8%, Cu 가 3.9% 였다. 즉 이 흰색의 이 물질들은 금속 산화물과 유기물의 혼합물로써 오염물질로 판단된다. 이중 Cu 성분은 점 용접시 사용하는 전극이 Cu 합금이므로 전극에서 용융된 오염물질로 생각된다. 이 Cu 의 오염은 c)의 spectrum 에서 나타나 있듯이 이물질이 없는 기저 용접부에서도 2.6% 발견되었다. 분석 포인트에 따라서는 Cu 성분이 검출되지 않는 부분도 있었으며 장소에 따라서 3% 이내의 다양한 분포를 하고 있었다. 즉

전극으로부터 기인되는 Cu 오염은 4 atomic% 이내에서 이루어지고 있음을 알 수 있다. N 성분은 기저 용접부에서는 발견되지 않았으며 흰색의 이물질에서 3.3 at% 이내에서 발견되었다.

(3) 용접부 조직관찰

Fig. 4 는 ZIRLO Guide Thimble 과 ZIRLO Thin Sleeve 간의 점용접 부위의 미세조직을 광학현미경으로 관찰한 사진이다. (a) 및 (c) 는 외부의 SRA ZIRLO sleeve, 내부의 SRA ZIRLO tube 및 weld 가 만나는 지점의 사진으로 모재의 가공조직과 weld 의 조직간의 경계가 뚜렷하게 나타나 있다. 이는 용접시 전극을 수냉하기 때문에 weld 외부의 재료는 열을 받지 않고 weld 자체도 순간적으로 가열되었다가 비교적 빨리 냉각되기 때문인 것으로 판단된다. 또한 모재와 가공조직이 혼재한 HAZ 도 관찰할 수 있다. HAZ 밖의 영역에서는 (d) 및 (h)에서 보이는 가공조직과 동일한 조직을 볼 수 있다. (b) 및 (f) 용접부 중앙의 미세조직으로 미세한 침상의 Martensite 조직으로 생각된다. 점용접은 순간적인 고 전류로 순간 가열을 할 뿐만 아니라 전극자체를 수냉하기 때문에 전극과 접촉하고있는 용접부가 빨리 냉각하기 때문에 조직이 미세한 침상의 Martensite 조직이 형성되는 것으로 판단된다. (g) 및 (e) 는 모재와 용접부의 경계의 열영향부(HAZ)의 사진이다.

Fig.5 는 SRA Zircaloy-4 Guide Thimble 과 RXA Zircaloy-4 grid 간의 TIG 용접 부위의 미세조직을 광학현미경으로 관찰한 사진이다. (a) 는 grid 의 RXA(완전재결정) 조직을 나타내고 있으며 (b)는 RXA 인 모재와 HAZ 경계면의 사진이다. (c), (d), (e) 및 (f)는 용접부의 조직변화를 나타낸 사진이다. 용접부의 중앙으로 갈수록 조대한 조직을 보이고 있으며 가장자리로 갈수록 조직이 미세해 지고 있는데 이는 용접부 중앙으로 갈수록 용접 후 냉각 속도가 느리기 때문이다. (g)는 SRA 조직인 guide thimble 과 HAZ 의 경계를 찍은 사진으로 광범위한 영역까지 열 영향을 받고 있음을 알 수 있다. (i)는 grid 밑에 있는 guide thimble 의 열 영향부위를 나타내고 있는데 바깥의 grid 보다 열 영향부위가 좁은 것을 알 수 있다. (h) 및 (j)는 guide thimble 의 SRA 조직을 나타내고 있다.

SRA Zircaloy-4 Guide Thimble 과 RXA Zircaloy-4 grid 간의 점 용접주위의 미세조직을 광학현미경으로 찍은 사진에서는 전형적인 TIG 용접 조직을 나타내고 있으며 grid 용접시 받은 열 영향부위 위에 다시 점용접이 이루어진 곳으로써 경계 부분에서는 점용접 조직과 TIG 용접에 의한 조대한 조직이 혼재된 모습을 보이고 있다. 용접부와 외부의 grid 그리고 내부의 guide thimble 이 만나는 지점은 용접시 완전히 용접 되지않은 용접불량이 보인다. RXA Zircaloy-4 Tube 와 RXA Zircaloy-4 sleeve 간의 점 용접주위의 미세조직을 광학현미경으로 찍은 사진에서는 용접부의 중앙은 침상의 미세한 Martensite 조직을 갖고 있으며 상부 및 하부 표면에 가까워질수록 용접 후 냉각속도가 빨라 조직이 미세해 지고있다. 좌우 crevice 끝단에 형성된 크랙들을 볼 수 있으며 용접부와 모재 사이에 집중된 hydride 가 관찰되었다.

(4) 산화막 두께

Fig.6 은 360°C 700 ppm LiOH 용액 중에서 6 일 동안 부식시험을 수행한 후 ZIRLO Guide Thimble 과 ZIRLO Thin Sleeve 간의 Spot Welding 시편 표면에 형성된 산화막을 찍은 SEM 사진들이다. (a) 및 (b)는 모재 표면과 용접부 표면의 산화막에 대한 SEM 사진인데 큰 차이가 없고 약 1.9 μm 인 균일한 산화막이 형성되어 있는 것을 알 수 있다. 그리고 (c)는 외부의 sleeve 와 내부의 Guide Thimble 간의 crevice 내부 표면에 형성된 산화막인데 외부의 산화막 보다 야간 얇은 1.6 μm 였다. 그리고 산화막표면이나 금속과 산화막의 계면이 외부 산화막에 비하여 균일하지 못하고 굴곡이 있음을 알 수 있다.

그리고 (d) 및 (e)는 왼쪽 및 오른쪽 crevice 의 끝에 대한 SEM 사진이다. 이 사진에서 보듯이 금속과 내부의 산화막 외부에 상당히 많은 양의 산화물이 적층되어 있으며 특히 오른쪽은 초승달 모양의 두꺼운 산화물 층이 형성되어 있으며 이 산화물 층 내에는 모재와의 계면과 평행한 방향과 직각인 방향으로 크고 작은 크랙들이 많이 형성되어 있다.

360°C 700 ppm LiOH 용액 중에서 6 일 동안 부식시험을 수행한 후 Zircaloy-4 Guide Thimble 과 Zircaloy-4 Grid 간에 TIG 용접한 시편표면에 형성된 산화막을 찍은 SEM 사진에서는 외부의 모재 표면에 형성된 산화막은 약 1.5 μm 이었으며 용접부의 산화막은 이보다 약간 얇아서 1.3 μm 정도였다. 특이할 만한 사항은 용접부 표면의 산화막 외층은 아주 매끄러눈 면을 형성하고 있는 반면 TIG 용접부와의 경계면은 약 3 μm 의 주기로 물결모양의 골이 있었는데 이것은 미세한 grain 의 폭이 2 ~ 3 μm 였음을 감안하면 미세 grain 의 입계에서의 두께가 약간 깊은 것으로 판단된다. Crevice 내에서의 산화막 두께도 큰 차이가 없었으나 Guide Thimble 내부의 산화막이 1.1μm 약간 얇은 것을 알 수 있다. Zircaloy-4 Guide Thimble 과 Zircaloy-4 Grid 간의 spot welding 표면 산화막을 찍은 SEM 사진에서는 점용접부 표면의 산화막 두께는 4.2μm grid 표면의 산화막 두께는 3.7μm 으로써 용접부 표면의 산화막이 약간 두꺼운 것으로 나타났다. Grid 와 guide thimble 사이의 좌우 crevice 에는 용접이 완전하게 이루어 지지 않아 형성된 크랙이 있으나 부식이 진행되는 동안 크랙에서 부식이 진행된 흔적은 찾을 수 없었다.

Fig.7 은 360°C 700 ppm LiOH 용액 중에서 6 일 동안 부식시험을 수행한 후 Zircaloy-4 Cladding 과 Zircaloy-4 Sleeve 간의 spot welding 표면 산화막을 찍은 SEM 사진이다. 사진 (a) 및 (b)에서 보이듯이 점용접부나 모재 표면의 산화막 두께는 거의 유사하였으며 1.3μm 이었다. 그러나 외부의 sleeve 와 내부의 cladding 사이에 형성된 crevice 사이의 표면에는 20 ~ 30 μm 의 두꺼운 이 형성되어 있었다. 이것은 광학 사진과도 일치하는데 이와 같이 crevice 내부에서 심한 부식 반응 중에 발생된 수소가 금속내로 침투해서 많은 hydride 가 형성된 것을 알 수 있다. 그리고 (c)에서 볼 수 있듯이 왼쪽 crevice 끝에는 폭이 30 μm 깊이 200μm 정도의 inner crevice 가 있는데 이곳에는 산화물이 꽉 차 있는 것을 알 수 있다. 또한 inner crevice 원래의 모재

표면과 평행한 용접 결함이 보이며 sleeve 및 inner tube 방향으로 발생된 크랙도 보인다. 특히 (d)에 서와 같이 좌측 crevice 에서는 이 크랙의 깊이가 200μm 로써 내부 cladding 두께의 1/2 나 되었다. 그리고 sleeve 와 내부의 tube 사이에 용접이 완전히 이루어지지 않은 용접결함의 길이도 250μm 이상이나 되었다.

이와 같은 용접 결함이나 용접시 발생된 크랙들은 상대적으로 직경이 작고 두께도 얇은 sleeve 및 내부 tube 의 용접시 과도한 스트레스로 인한 현상으로 판단되며 이와 같은 구조에서의 spot welding 은 문제점이 큰 것으로 사료된다.

4. 결 론

(1) As-built 시편의 용접강도는 TIG 용접보다 점용접이 강한 것으로 나타났고 부식시킨 시편의 용접강도도 같은 경향을 나타냈다. 그러나 SW Zry S 시편의 경우는 피 용접재인 tube 및 sleeve 의 직경이 작고 두께가 얇아서 용접부 주위에 stress가 많이 가해졌으며 이 stress를 따라서 크고 작은 크랙이 발생하였는데 가장 큰 크랙의 경우 내관 두께의 1/2 인 것도 관찰되었으며 이로 인해 용접강도가 매우 적은 값을 갖었으며, 360°C 700 ppm LiOH 용액 중에서의 부식에도 취약한 것으로 나타났다.

(2) 용접부 표면의 Cu나 N 성분의 오염은 TIG 용접의 경우 관찰되지 않았고, 점용접의 경우 관찰되었는데, 점용접의 경우 표면 오염도는 약 4 at% 이내인 것으로 나타났다. Cu 오염의 경우 점용접시 전극으로 사용되는 Cu 합금에서 기인되는 것으로 판단된다.

(3) 360°C 700 ppm LiOH 용액 중에서 6일 동안 부식시킨 시편의 용접부나 모재 표면에 형성된 산화막의 두께는 시편의 종류 및 위치에 따라 다양하였다. SW ZLO S 및 TW Zry G 시편의 경우는 2 μm 이내의 균일한 산화막이 형성되었으나, SW Zry G 시편의 경우는 3 ~ 5 μm 로써 상기의 두 시편의 경우보다 약간 두꺼웠다. 그리고 SW Zry S 시편의 경우는 외부 표면의 경우 모재나 용접부 모두 2 μm 이내의 양호한 산화막을 형성하고 있었으나 sleeve와 tube 사이의 crevice 에서는 부식이 많이 진행되어 산화막 두께가 외부 표면의 10 배 이상으로써 20 ~ 30 μm 이나 되었고, 모재에 많은 hydride가 관찰되었다. 그러므로 이 용접방법의 현장적용시 주의가 요망된다.

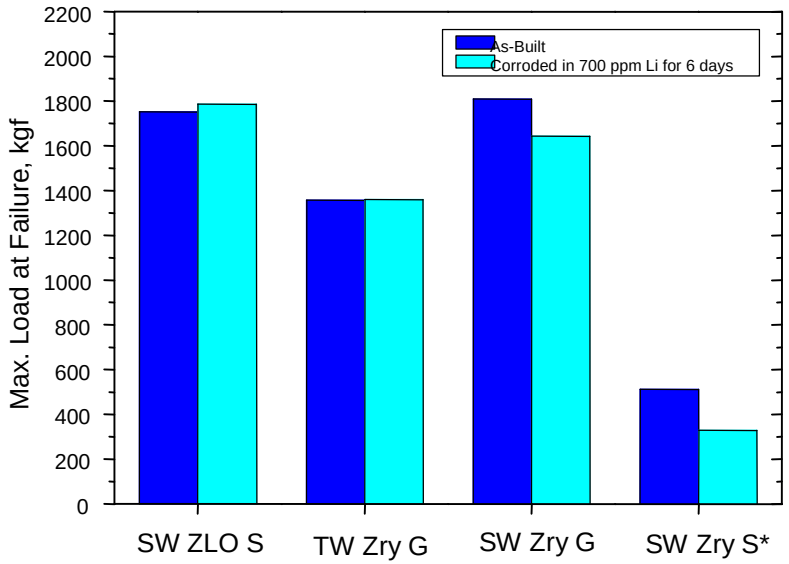

Fig. 1. Comparison of maximum load at failure of as-built with that of corroded specimen in 700 ppm LiOH at 360°C for 6 days

* SW ZLO S : Spot Welding Thin Sleeve for PLUS 7 Design
* TW Zry G : TIG Welding for KSNP Design
* SW Zry G : Spot Welding for KSNP Design
* SW Zry S : Spot Welding for 17X17 Design

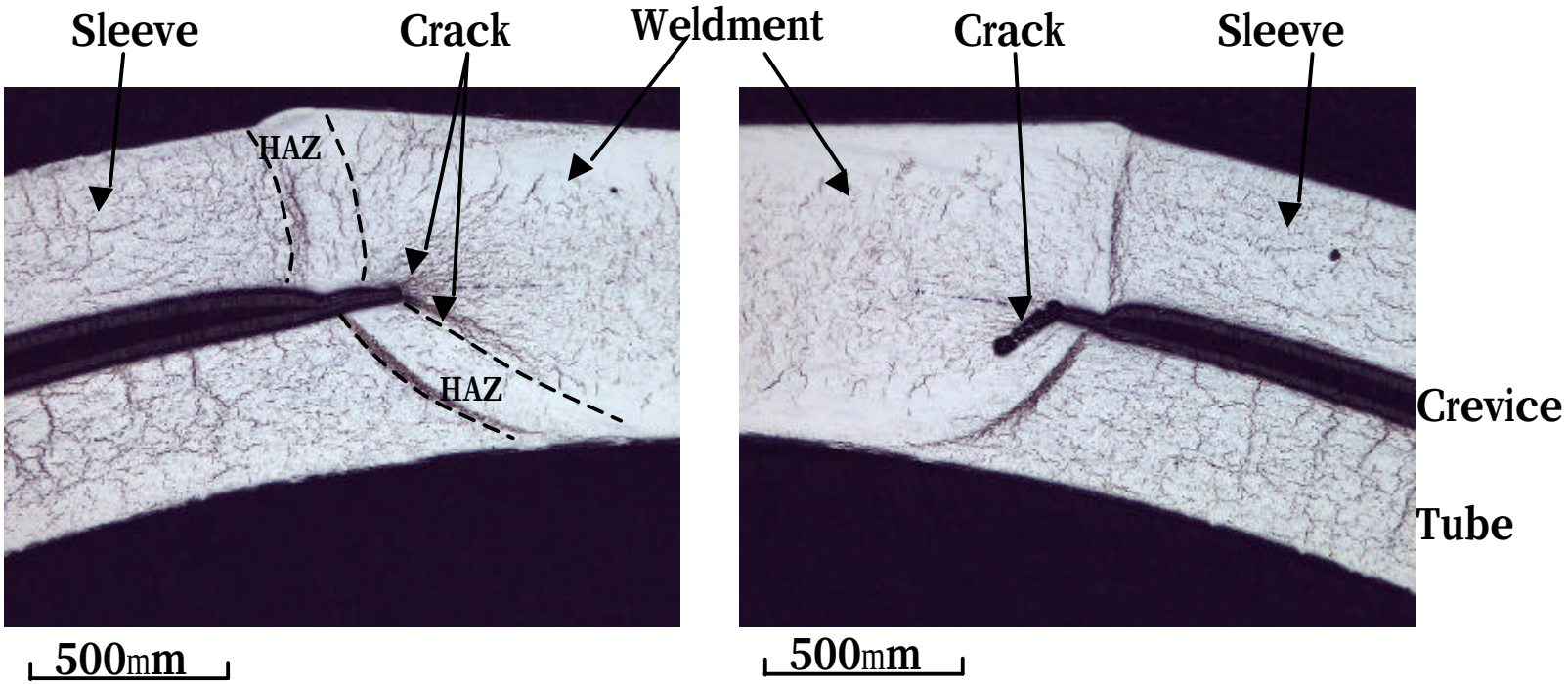

Fig. 2. Cross-sectional microstructures of the the spot welding for 17x17 design after corrosion in 700 ppm LiOH at 360°C for 6 days, showing hydride distribution and cracks

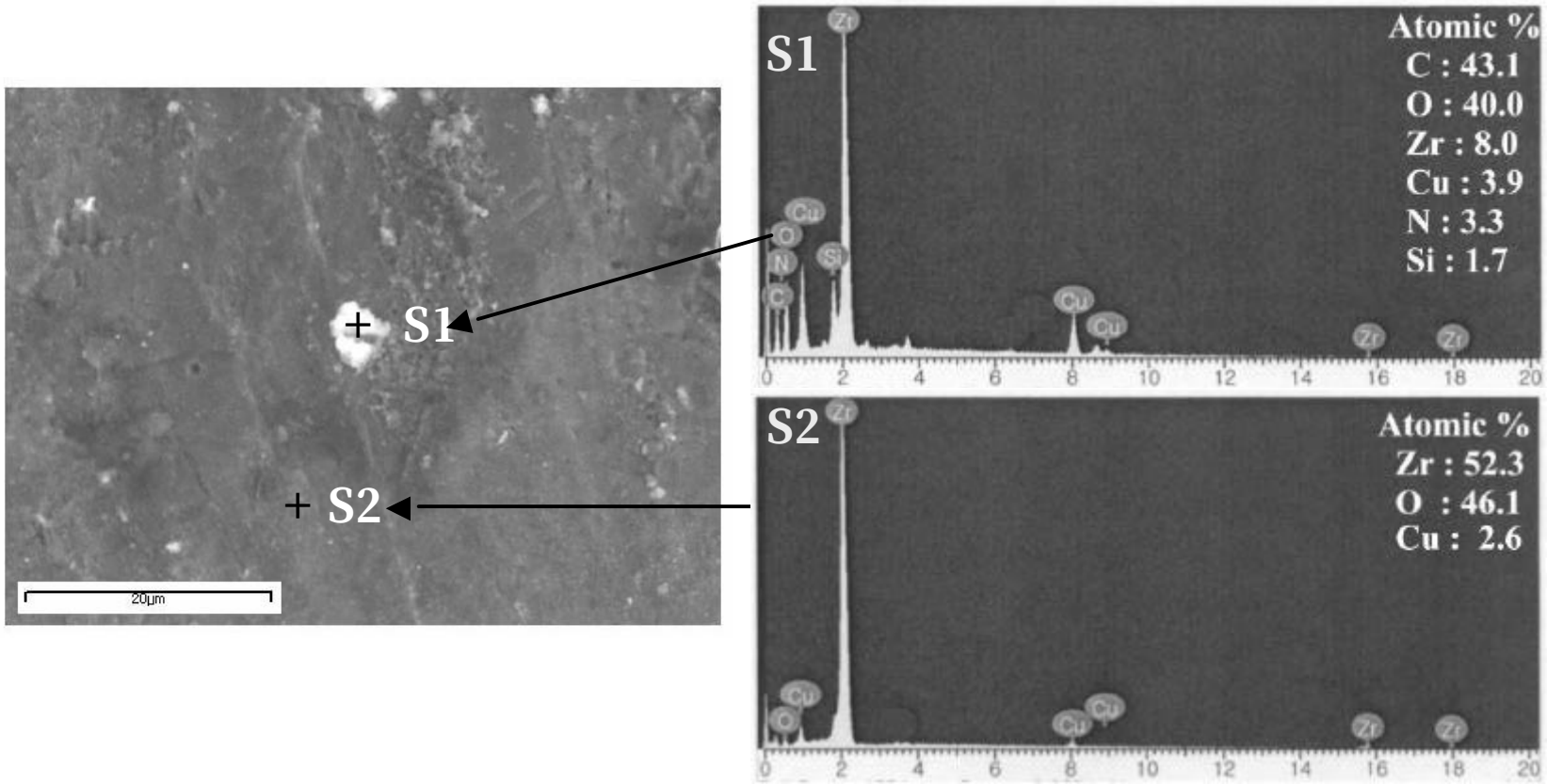

Fig. 3. SEM micrograph and EDX spectra of spot welding surface

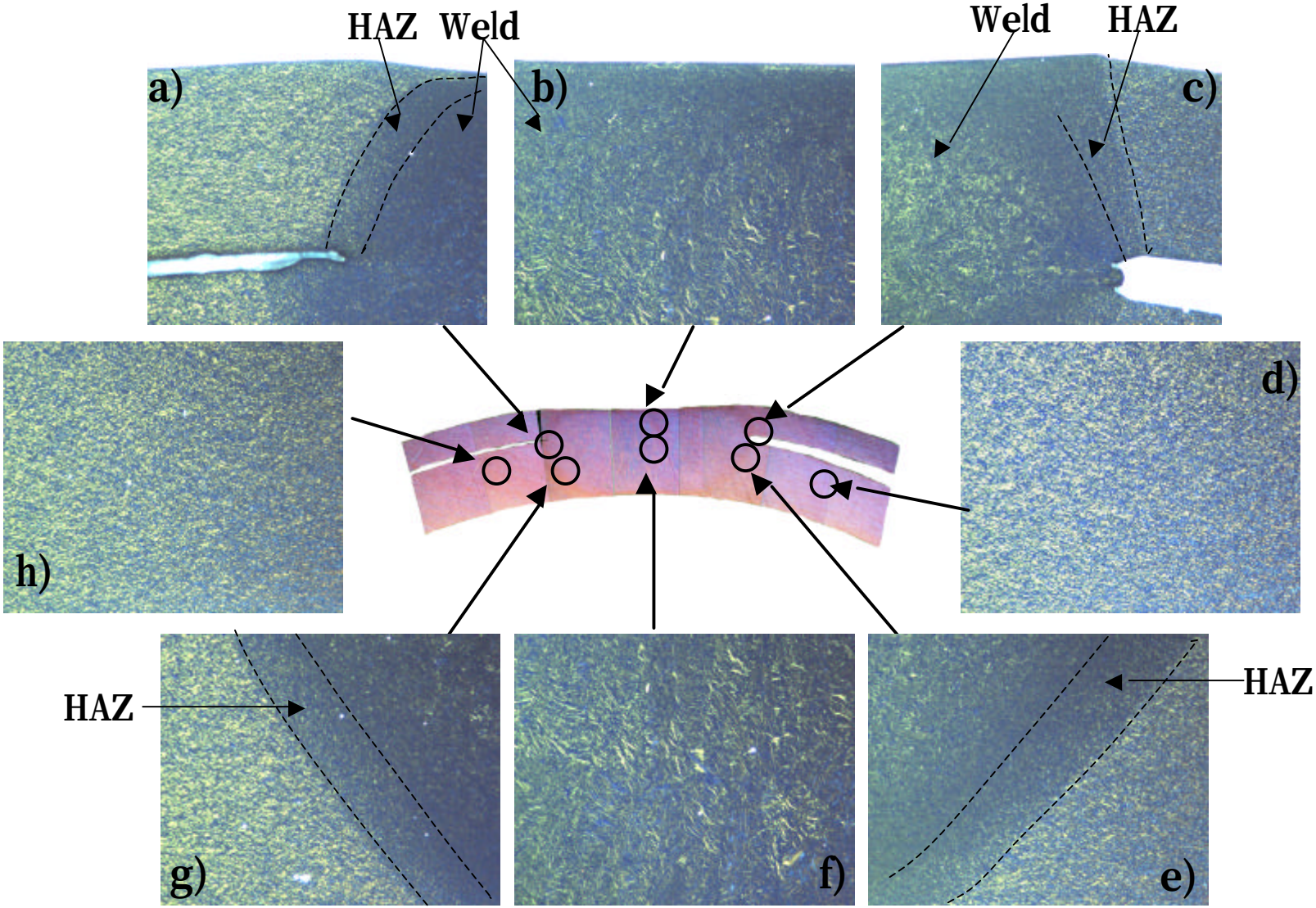

Fig. 4. Microstructures of spot welding parts of SRA ZIRLO guide thimble and thin sleeve spot weld

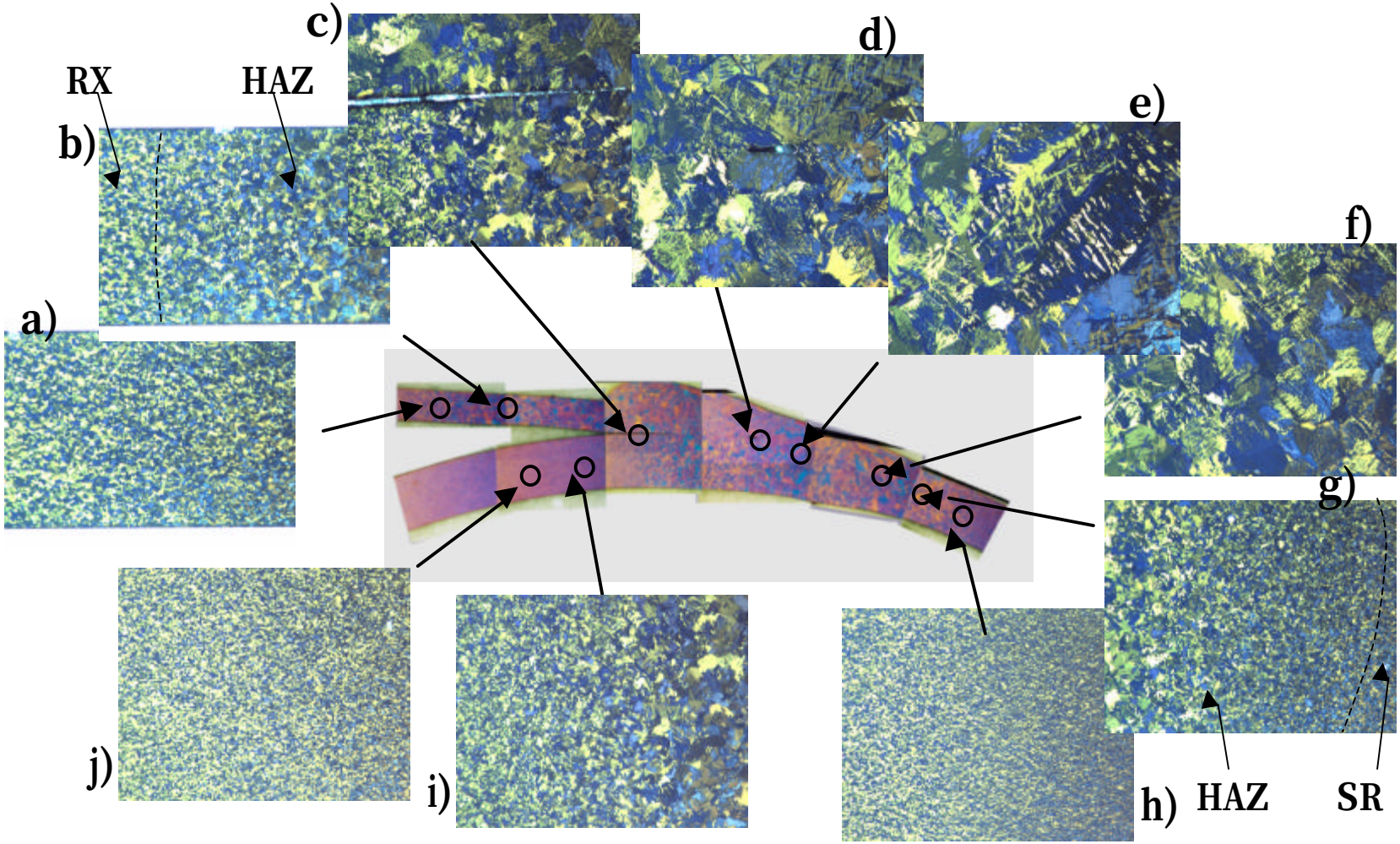

Fig. 5. Microstructures of TIG welding parts of the SRA Zircaloy-4 guide thimble and RXA Zircaloy-4 grid

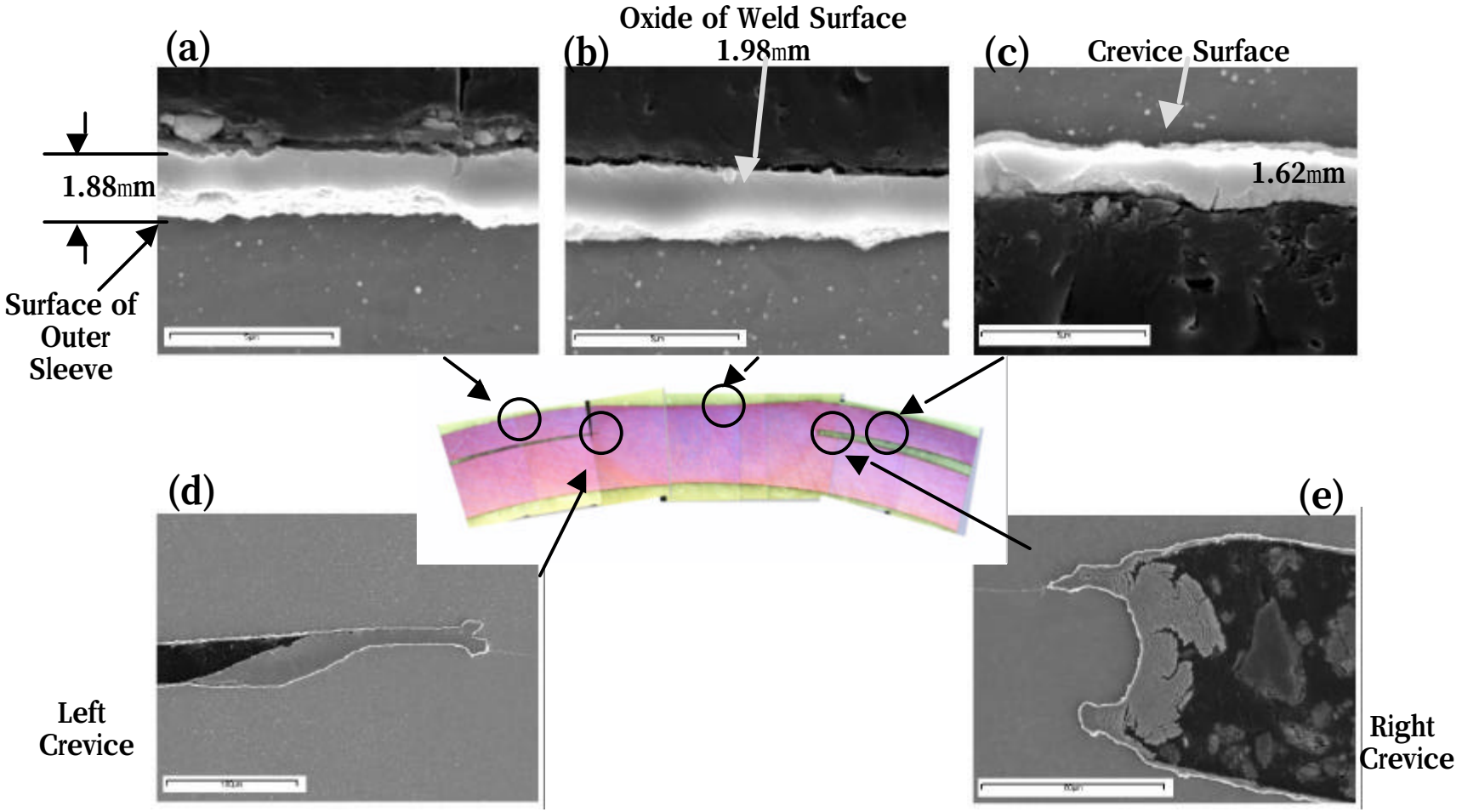

Fig. 6. Oxide morphologies of the ZIRLO guide thimble and thin sleeve spot welding specimen

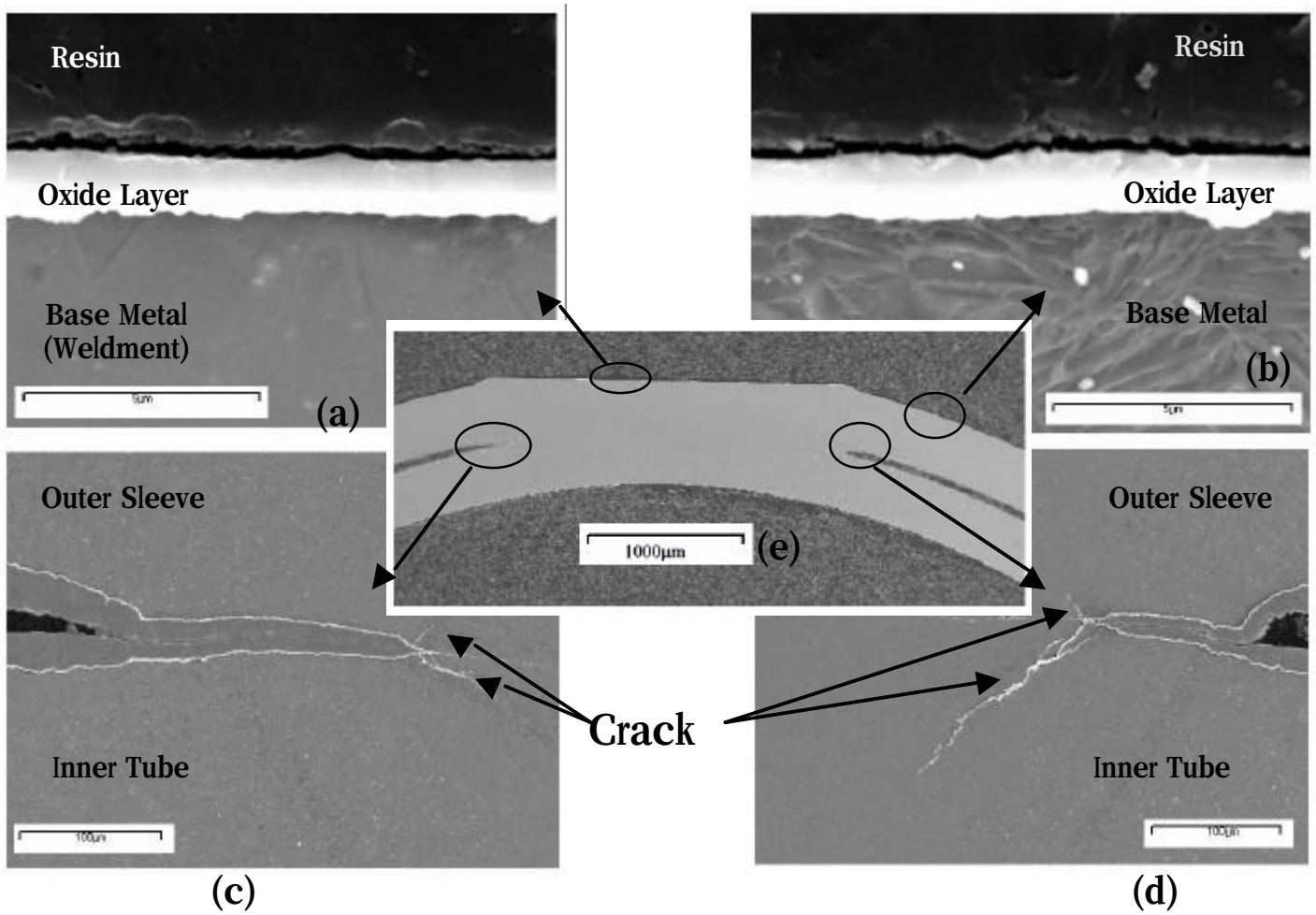

Fig. 7. Oxide morphologies of the spot welded RXA Zircaloy-4 tube/RXA Zircaloy-4 sleeve for 17x17 design. (a) Oxide layer on the Weldment, (b) Oxide layer on the outer surface of sleeve(10,000X), (c) Left side of the welded crevice(300X), (d) Right side of the welded crevice(270X), (e) Cross-section of the spot weldment(25X)