

## Zr 기지 분산핵연료의 계면접합과 계면반응 현상 및 기구

### Phenomena and Mechanism on Interfacial Reaction of Zr-based Dispersion Nuclear Fuel

\*손웅희, \*홍순형, \*\*김창규

\*한국과학기술원

대전시 유성구 구성동 373-1

\*\*한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

#### 요 약

지르코늄 기지와 알루미늄 피복재를 450-550°C의 온도와, 5-80MPa의 가압력, 1분에서 180분의 가압 시간에 따른 확산 접합 실험후의 계면 미세조직 관찰 결과 접합초기에는 압축하중이 가해질 때 접합될 재료가 기계적으로 밀착되는 단계로 표면의 돌기부(asperity)가 소성 변형되고 산화층이 부서지거나 변형되는 것을 볼 수 있다. 접합이 진행됨에 따라 첫 번째 단계에서 접촉이 일어나지 않은 부분은 가늘고 긴 공공(void)으로 존재하는데, 접합이 진행됨에 따라 이러한 공공은 계면 에너지가 안정되기 위해 구상화한다. 접합이 더욱 진행되면 입계확산에 의해 공공은 점점 소멸하고, 체적확산에 의한 결정립내에 형성된 기공이 축소되는 과정을 거쳐서 접합이 이루어졌다. 지르코늄 기지와 알루미늄 피복재의 접합 특성을 향상시키기 위하여 알루미늄의 산화막을 제거시키기 위한 방법으로 두가지 방법을 제시하였는데, 첫 번째 가압력 증가에 의한 방법은 가압력 증가 및 지르코늄의 표면거칠기를 증가시킬수록 표면 산화막을 깨뜨리는 현상이 증가하여 접합 특성을 향상시키는 것으로 판단되었다. 지르코늄 기지와 알루미늄 피복재의 접합 계면의 열적 안정성 해석을 위하여 열처리한 결과 연속의  $Al_3Zr$  상과 불연속의  $Al_3Zr$  상의 두 상이 형성되는 것을 EDAX 분석을 통해서 파악할 수 있었다. 이러한 상이 성장하는 원인을 분석하기 위하여 계면 생성물의 시간에 따른 성장거동을 살펴본 결과, 계면 생성물은 등은 열처리 시간의  $1/2$ 승, 즉  $\sqrt{t}$ ,에 비례하는 것을 알 수 있었으며, 이는 Al 원자의 확산이 계면 생성물 형성에 주요 제어 인자인 것으로 판단된다. 지르코늄 기지와 알루미늄 피복재의 접합 계면에서의 반응현상을 이해하기 위하여 확산현상에 관련되는 중요한 현상으로 금속간화합물의 성장을 관찰하였는데 이에 관련하여 접합온도 이하에서의 금속간화합물의 상안정성을 평가하기 위해 활성화에너지를 측정한 결과 약 155 kJ/mol 의 값으로 측정되었다.

## Abstract

From the experiments performed in this study in the temperature range from 450°C to 550°C, the following results have been obtained. When the load was applied in the initial stage under the experimental conditions (i.e., temperature range from 450°C to 550°C, pressure from 5MPa to 80 MPa and pressure time from 1 to 180 minute), the asperities formed on the surface were plastically deformed and the oxidation layers were damaged. As the more bonding proceeds, the parts that were not contacted in the initial stage contained thin, long voids and these voids appear to be of spherical shapes in order to stabilize the interfacial energy. With the extensive bonding achieved, the voids are gradually eliminated due to the grain boundary diffusion. Ascribing to the reduction of voids created in the crystalline parts by intergranular diffusion, bonding has been finally achieved. Two methods were proposed to remove the oxidation layers of aluminum for the purpose of improving bonding of Zr matrix and Al cladding material. Firstly, it is noted that, by increasing pressure, oxidation layers on the surface were damaged. Therefore, as an alternative, by increasing the surface roughness of Zr, the asperities on the bonding surface were large, and therefore, the oxidation layers on the surface were severely damaged, resulting in the improvement of bonding mechanism. From the performance of the thermal treatment, the presence of two continuous phases, i.e.,  $A_3Zr$  phase and  $Al_2Zr$  phase, was assured by performing EDAX analysis. The growth of intermetallic compound was observed as an important phenomenon to understand the reaction at the interface between Zr matrix and Al cladding material. Thermal stability was evaluated under the bonding temperature to be about 155 kJ/mol for the activation energy.

### 1. 서 론

핵확산 방지를 위해 연구로용 원자로의 고농축 핵연료를 저농축 핵연료로 대체하고자 하는 연구를 1978년부터 RERTR(Reduced Enrichment Research and Test Reactor) program을 통해 전 세계적으로 추진하고 있다. 그러나 아직도 일부 고성능 연구로에서는 현재까지 개발된 핵연료로 대체할 수 없어 우라늄 밀도가 더 높은 핵연료가 요구되고 있다 [1-3]. 우라늄 밀도가 높으면 핵연료 주기를 연장시킬 수 있으며 사용후 핵연료 발생량이 감소되는 효과도 있다. 현재는 알루미늄(Al) 기지에 우라늄 화합물( $U_3Si_2$ ,  $U_3Si$ 등)

또는 우라늄 합금(U-Mo 등) 을 분산시키는 알루미늄계 분산핵연료를 알루미늄 피복재로 감싼 형태가 사용되고 있다. [2-3], 연료심의 알루미늄 피복재의 역할은 정상 운전조건에서 핵연료심을 유지하고, 중성자 흡수(neutron absorption)를 최소화하고, 핵연료봉 부식(corrosion)을 적게하며, 핵연료심 팽윤(swelling)에 의한 변형효과를 적게하고, 열전달을 좋게하고, 열수력적인 압력손실(hydraulic head loss)을 최소화하는데 있다. 그러나, 알루미늄 기지는 500°C에서도 약 0.8T<sub>m</sub>의 값을 가지므로 알루미늄이 핵연료 분말내로 확산이 쉽기 때문에 핵연료 분말과 반응에 의해, 결과적으로 500°C 이상에서 급격한 팽윤현상이 발생하는 단점이 있다. 이러한 문제점을 해결하기 위해서는 열전도도가 우수하고, 중성자 흡수율이 낮고, 핵연료 분말과의 반응성이 없는 새로운 지지재료를 사용한 분산핵연료가 필요하게 되었다. 이러한 특성을 갖는 지지재료로써 최근에 제기되고 있는 지지재료가 지르코늄이다 [4]. 지르코늄은 열전도도가 알루미늄보다 낮지만 중성자 흡수율이 낮고, 핵연료 분말과의 반응성이 없을 것으로 예상된다. 이러한 관점에서 지르코늄기지를 사용한 분산핵연료의 개발이 필요할 것으로 판단된다.

핵연료는 고온에서 오랜 시간동안 유지되어야하고, 운전중에 계면 과단이 이루어져서는 안되기 때문에 지르코늄은 알루미늄과의 접합이 잘 이루어져야한다. 따라서 본 연구에서는 연구로용 핵연료로 제조가 가능한 온도인 450-550°C에서 시간과 압력을 변화시키면서 두 재료를 접합시키고자 하였다. 또한 접합상태를 파악하기 위해서 지르코늄 표면의 거칠기의 변화를 주어서 접합에 미치는 영향을 살펴보고자 하였다. 그리고 지르코늄과 알루미늄과의 계면 반응 현상을 연구하고자 하였다. 또한 운전중의 고온의 영역에서 시간의 변화에 따라 지르코늄과 알루미늄과의 계면 반응층 분석을 통해 계면 반응층 현상을 조사하고 그에 따른 반응층의 생성원인을 열역학적인 관점에서 해석해보고자 한다. 그리고 지르코늄과 알루미늄 계면에서 형성된 반응층의 성장을 조사하고 이에 대한 원인을 kinetics 측면에서 성장 기구를 분석하고자 하였다.

## 2. 실험방법

본 연구에서는 알루미늄 피복재와 지르코늄 기지의 이종소재간의 접합을 위해서 50(mm)×50(mm)×2(mm)의 크기로 절단하였다. 1060 알루미늄 모재는 #2000의 사포를 이용하여 연마하였고, 지르코늄은 #60, #150, #800과 #2000의 사포로 연마하였으며 이후 아세톤 세척을 하였다. 접합 장치는 진공가압로(vacuum hot press)를 사용하였다. 이때 알루미늄과 지르코늄의 접합을 위하여 Fig. 1(a)에 나타난 것처럼 두께 2mm이고 50×50(mm×mm) 크기의 지르코늄 시편 위에 동일한 크기의 알루미늄 시편을 올려놓았다. 알루미늄 시편을 지르코늄 시편 위에 올려놓은 이유는 핵연료 제조시 핵연료봉에 알루미늄 재료의 변형을 통하여 피복을 실시하기 때문이다. 이때 향후 열처리 도중의 계면 이동

현상을 살펴보기 위하여  $50\mu\text{m}$ 의 Au wire를 알루미늄과 지르코늄 사이에 넣었다. 이렇게 고정시킨 시편들을 Fig. 1(b)에 나타낸 것처럼 SKD 몰드(mold)에 장입하고, 그 위에 편치를 올려 놓았다. 지르코늄과 알루미늄이 장입된 몰드를 진공가압로(Vacuum Hot Press, VHP)에 장입하고,  $10^{-5} \sim 10^{-6}$  Torr의 진공분위기에서 온도를 핵연료 성형공정 조건인  $450^{\circ}\text{C} - 550^{\circ}\text{C}$ 의 범위에서 실시하였다. 가압력은 성형 온도조건에서 알루미늄이 변형이 가능한 가압범위를 설정하여, 가압력을 10MPa에서 80MPa까지 변화시키면서 접합 실험을 실시하였다. 가압시간은 1분에서 최대 180분까지 실시하였다.

접합상태의 분석을 위하여 접합 시편을 절단한 후 시편 연마를 위해 #150-#2000 emery paper 및  $1\mu\text{m}$  크기의 미세한 산화 알루미늄 분말을 이용하였으며, 접합계면의 전체길이에 대하여 접합이 진행된 길이를 측정하여 접합도를 분석하였다. 또한 주사 전자 현미경(SEM)을 이용하여 접합계면을 관찰함으로써 알루미늄/지르코늄의 접합과정 및 금속간화합물의 성장 거동을 확인하고자 하였다. 각 원소의 성분분석은 EDS를 이용하였고, 금속간화합물의 두께는 SEM사진을 통하여 측정하였다. 그리고 접합시간에 따른 접합강도의 변화를 관찰하기 위한 알루미늄/지르코늄 접합 강도를 측정하기 위해 접합실험은  $15(\text{mm}) \times 10(\text{mm}) \times 2(\text{mm})$ 의 치수를 갖는 1060알루미늄, 지르코늄 모재를 사용하였다. 접합강도의 측정은 shear test를 이용하여 수행되었다.

접합시 계면에서 일어나는 반응현상을 고찰하기 위하여, 지르코늄/알루미늄 접합한 시편을 온도  $500^{\circ}\text{C} - 550^{\circ}\text{C}$ 의 온도범위에서 최대 200시간까지 열처리를 실시하여 계면반응을 진행시켰다. 계면의 미세조직 분석은 SEM, EDAX 등의 장비를 사용하여 수행하였다.

### 3. 결과 및 고찰

알루미늄과 지르코늄을 접합시키기 위하여  $50(\text{mm}) \times 50(\text{mm}) \times 2(\text{mm})$ 의 크기로 절단하였다. 알루미늄 모재는 #2000의 사포를 이용하여 연마하였고, 지르코늄은 #2000, #800, #150 및 #60의 사포로 연마한 후 측정된 알루미늄과 지르코늄 시편의 표면 거칠기 결과를 나타낸 것이다. 또한 표면 거칠기에 대한 값을 table 1에 정리하였다. 사포 연마번호가 증가할수록 표면이 매끄러워지는 것을 표면거칠기 측정결과를 통해서 확인할 수 있었다.

알루미늄과 지르코늄의 접합 도중에 나타나는 계면의 접합 현상을 관찰하기 위해 알루미늄과 지르코늄 사이에  $50\mu\text{m}$ 의 Au wire를 두 금속사이에 삽입하였다. 계면 접합시 Au wire는 접합시 가해지는 가압력에 의하여 승온 중에 변형응력이 작은 알루미늄 접합 모재쪽에 박히게 되고, 그리고 지르코늄 모재쪽으로 변형이 되어 반원형으로 Au wire가 변형되게 된다. 그러므로 반원형의 Au wire의 가장 편평한 부분은 실질적으로 지르코늄과 알루미늄이 접하고 있는 경계라고 생각할 수 있다. 이러한 과정을 거쳐 향후 계면의 열적 안정성 실험에서 계면의 이동 현상을 관찰하고자 하였다.

550°C에서 알루미늄과 지르코늄을 접합시키기 위하여 5MPa의 가압력으로 접합을 10분부터 180분까지 접합한 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 1분간 접합하였을 경우에는 절단시 접합계면이 떨어져 미세조직을 관찰할 수 없었다. 접합초기에는 압축하중이 가해질 때 접합될 재료가 기계적으로 밀착되는 단계로 표면의 돌기부(asperity)가 소성 변형되고 산화층이 부서지거나 변형되는 것을 볼 수 있다. 즉 압축하중은 첫 단계에서 중요한 역할을 하는 것으로 판단된다. 약 10분 정도의 접합시간에서는 첫번째 단계에서 접촉이 일어나지 않은 부분은 가늘고 긴 공공(void)으로 존재하는데, 접합이 진행됨에 따라 이러한 공공은 계면에너지가 안정되기 위해 구상화한다. Fig. 2에서 나타낸바와 같이 화살표는 접합계면에서의 공공의 위치를 나타낸다. 접합이 진행될수록 입계확산에 의해 공공은 점점 소멸하고, 선상의 입계가 입계의 에너지를 보다 안정된 상태로 되도록 입계가 이동한다. 따라서 접합면에 형성된 기공이 제거되고 동시에 접합계면에 모상과 연속적인 결정립들이 결정립 계면이동에 의해 형성된다. 셋째 단계는 체적확산에 의한 결정립내에 형성된 기공의 축소되는 단계이다. 입계가 이동하고, 체확산에 의해 공공이 거의 소멸되는 것을 볼 수 있었다. 이때 접합 계면은 알루미늄과 지르코늄 이중소재의 접합계면이 형성되는 것을 알 수 있다.

450°C-550°C의 접합온도 및 1분에서 3시간까지의 접합시간의 변화에 따른 계면에서의 접합정도를 파악하기 위해서 접합정도를 나타내기 위하여 전체 접합 길이에 대하여 실제로 접합된 길이의 분율을 다음과 같이 정의하였다.

$$f = \frac{l_{bonded}}{l_{total}} \quad (1)$$

고상 확산 접합온도 500°C와 550°C에서 가압력과 가압시간의 변화에 따른 접합특성 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 동일한 온도, 동일한 가압력에서 접합시간이 증가함에 따라 초반에 급격히 증가하고 있으며, 일정시간후에는 90%정도이상의 접합이 이루어지는 것을 알 수 있었다. 또한 같은 접합온도, 접합시간에서 가압력이 증가할수록, 접합율이 증가하는 것을 알 수 있었다. 이러한 접합율을 기준으로 정리하면, 접합온도가 증가할수록, 가압력이 증가할수록, 접합시간이 증가할수록 접합율이 증가하는 것을 볼 수 있다.

앞서의 접합 공정에서 나타났듯이 알루미늄에 대하여 비교적 고온임에도 불구하고 가압력이 낮을 경우에는 상당한 접합 시간이 필요한데, 이는 지르코늄과 알루미늄의 표면에 존재하는 산화막에 의한 것으로 판단된다. 즉, 산화막의 존재하여 금속원자의 이동을 방해하기 때문에 확산접합 시간이 증가하는 것으로 판단된다. 이러한 확산접합 시간의 증가에 대한 문제점을 해결하기 위하여 크게 두 가지 방법을 고려하고자 하였다.

첫 번째 방법으로 가압력을 증가시며 표면 산화막을 깰 수 있는 방법을 선택하였다. 즉 가압력을 20MPa에서 최대 80MPa까지 증가시켰다. 가압력을 증가시킴에 따라서 가압

시간을 1분간 실시하여도 접합이 가능함을 알 수 있었다. 가압시간을 1분으로 일정하게 하고, 가압온도와 가압력 변화에 따른 접합특성 결과를 Fig. 4에 나타내었다. 같은 접합온도, 접합시간에서 가압력이 증가할수록, 접합율이 증가하는 것을 알 수 있었다.

500°C와 550°C에서 가압력과 가압시간을 변화시킴에 따른 접합강도 변화를 Fig. 5에 나타내었다. 접합강도 측정시 5MPa과 10MPa의 경우에는 1분간 접합하였을 경우에는 절단도중에 떨어지는 현상으로 강도를 측정하지 못하였다. 또한 접합율에서 나타난 바와 같이, 같은 접합온도, 접합시간에서 접합력이 증가할수록 접합 강도가 증가하는 것을 알 수 있었다. 결과적으로 접합온도가 증가할수록, 가압력이 증가할수록, 접합시간이 증가할수록 접합율이 증가하는 것을 볼 수 있다. 그러나 전체적으로 알루미늄 피복재와 지르코늄 기지재료와의 접합강도가 약 20MPa 정도의 수준으로 모재의 강도에 비하여 상당히 낮은 값을 알 수 있다. 계면 접합강도 측정결과 접합 온도가 증가할수록 접합강도는 증가하였다. 이러한 결과는 고온으로 갈수록 피복재인 알루미늄의 성형성이 우수하고, 고온에서의 원자들의 확산이 빨라 지르코늄과의 계면에서 접합성이 향상하는 것으로 판단된다. 또한 가압력이 증가할수록 증가하였는데, 이는 알루미늄의 항복응력이상의 응력에서 가압하여 표면 산화막을 깨트려 금속의 확산 속도를 증가시키기 때문으로 판단된다.

접합 특성을 향상시키기 위한 두 번째 방법으로 지르코늄의 표면 거칠기를 달리한 후 고상 접합을 실시하였다. Fig. 6은 500°C에서 40MPa의 가압력 조건에서 실시한 핵연료 기지의 지르코늄의 표면거칠기 변화에 따른 접합강도의 변화를 나타내었다. 지르코늄의 표면 거칠기를 #80번의 sand paper로 갈아낸 상태가 #2000번의 sand paper로 갈아낸 상태보다 접합강도가 증가하고 있는 것을 볼 수 있다. 즉 표면 거칠기가 증가할수록 접합강도가 증가하는데, 이는 거칠기가 증가할수록 돌출부의 크기가 높아서 압력을 가했을 경우 국부적으로 높은 압력이 걸려 돌출부의 표면 산화막을 깨트려 금속 확산을 향상시켜 주는 것으로 판단된다.

알루미늄과 지르코늄의 계면에서의 열적안정성을 평가하기 위하여 550°C의 온도에서 열처리 시간을 36, 49hr, 81hr, 100hr, 200hr 및 400hr으로 변화시킴에 따른 지르코늄과 알루미늄의 접합계면에서의 미세조직 변화를 Fig. 7에 나타내고 있다. 미세조직 관찰 결과를 살펴보면, 50hr 열처리후에 지르코늄 시편부분으로 약 10 $\mu$ m정도의 어둡게 보이는 상이 형성되는 것을 볼 수 있다. 그런데 81hr 열처리 후에는 지르코늄 시편 쪽으로 약 15 $\mu$ m 정도 크기의 어둡게 보이는 2개의 층이 형성된 것을 확인할 수 있다. 특히 첫 번째 형성된 금속간화합물은 접합계면과 평행하게 연속적인 상이 형성되는 것을 볼 수 있다. 그러나 두 번째 형성된 금속간 화합물은 처음에는 불연속적으로 형성되다가 점차 열처리 시간이 증가함에 따라 연속적으로 성장하는 것을 알 수 있었다. 연속적인 상으로 되면서, 이후 열처리를 함에 따라 금속간화합물의 두께가 증가하는 것을 볼 수 있다. 400hr 열처리 시편은 냉각도중 계면에서 균열이 발생하였다. 이때 형성된 반응생성물의 성분을 조사하기 위하여 알루미늄 원소와 지르코늄원소의 분포에 대하여 line scan을 실시한 결과 반

응생성물이 형성된 곳에서는 알루미늄의 조성이 거의 일정한 것을 확인할 수 있었으며, 두 개의 층이 형성된 것을 확인할 수 있었다. 이때 형성된 반응생성물의 조성을 측정하기 위하여 EDAX 측정 결과 계면에서 첫 번째 층은  $Al_3Zr$  금속간화합물로 측정되었으며, 두 번째 층은  $Al_2Zr$  금속간화합물로 측정되었다. 그러나 형성된 금속간화합물의 층은  $550^\circ C$ 의 고온일 경우가 더욱 큰 것을 확인할 수 있었으며, 이는 지르코늄 내부로 알루미늄 원자의 확산에 의한 것으로 판단된다. 이후 열처리 시간을 증가시킴에 따라 EDAX 분석결과 400hr까지는 다른 상들은 형성되지 않고  $Al_3Zr$ 과  $Al_2Zr$ 의 두 금속간화합물층이 약  $35\ \mu m$ 정도까지 성장하는 것을 확인할 수 있었다.  $500^\circ C$ 의 온도에서 알루미늄과 지르코늄의 계면에서의 열적안정성을 평가하기 위하여 열처리 시간을 400시간까지 변화시킴에 따른 지르코늄과 알루미늄의 접합계면에서의 미세조직 변화를 Fig. 8에 나타내고 있다.  $550^\circ C$ 와 마찬가지로 열처리 시간이 증가함에 따라 2개의 층이 형성된 것을 확인할 수 있다. 특히 첫 번째 형성된 금속간화합물은 접합계면과 평행하게 연속적인 상이 형성되는 것을 볼 수 있다. 그러나 두 번째 형성된 금속간 화합물은 처음에는 불연속적으로 형성되다가 점차 열처리 시간이 증가함에 따라 연속적으로 성장하는 것을 알 수 있었다. 연속적인 상으로 되면서, 이후 열처리를 함에 따라 금속간화합물의 두께가 증가하는 것을 볼 수 있다. 이때 형성된 반응생성물의 조성을 측정하기 위하여 EDAX 측정 결과 계면에서 첫 번째 층은  $Al_3Zr$  금속간화합물로 측정되었으며, 두 번째 층은  $Al_2Zr$  금속간화합물로 측정되었다. 이후 열처리 시간을 증가시킴에 따라 EDAX 분석결과 400hr까지는 다른 상들은 형성되지 않고  $Al_3Zr$ 과  $Al_2Zr$ 의 두 금속간화합물층이 약  $20\ \mu m$ 정도까지 성장하는 것을 확인할 수 있었다.

이러한 접합계면에서의 반응현상을 이해하기 위하여 확산현상에 관련되는 중요한 현상으로 금속간화합물의 성장을 관찰하였는데 이에 관련하여 접합온도 이하에서의 금속간화합물의 상안정성을 평가하고 이때의 성장기구를 고찰해 보고자 하였다.  $500$ 와  $550^\circ C$ 에서 열처리시간을 변화시키면서 금속간화합물의 두께를 측정하였다. Fig. 9는 고상에서 금속간화합물의 성장거동을 분석하기 위한 실험결과를 도시한 것이다. 초기에는 성장속도가 빠르다가 시간이 증가함에 따라 성장거동이 서서히 감소하는 것을 알 수 있다. 이때 성장기구를 규명하기 위해서 성장속도거동을 알아보기 위해 기울기를 관찰한 결과를 Fig. 10에 나타내었다. 기울기 측정결과 약 0.6정도의 값을 가지는 것을 알 수 있다. 즉 Fig. 10을 통해 고상확산에서도  $\sqrt{t}$ 에 비례하는 확산제한성장 거동을 보이고 있음을 알 수 있다. 이 확산제한이 어떤 원소의 확산에 기인한 것인지를 알아보기 위하여 활성화에너지를 측정하여 보았다. Fig. 11은 이때의 활성화에너지를 구하기 위해 도시한 것이다. 이 실험에 따르면 활성화에너지는 약  $155\ kJ/mole$ 의 값을 가지며, 이 값은 Al의 자기확산(self diffusion)에 필요한 에너지  $140\ kJ/mol$ , Zr의 자기확산에 필요한 활성화 에너지  $144\ kJ/mol$ 과 비슷한 값을 가지지만, Al 기지내에 Zr이 확산하는데 필요한 에너지  $242\ kJ/mol$ 보다는 낮은 값을 가진다. 따라서 정확한 성장기구를 규명하기 위해서는 다양한

온도에서의 성장속도를 추가로 확인할 필요가 있을 것으로 판단된다.

#### 4. 결 론

1. 지르코늄 기지와 알루미늄 피복재를 450-550°C의 온도와, 5-80MPa의 가압력, 1분에서 180분의 가압 시간에 따른 확산 접합 실험후의 계면 미세조직 관찰 결과 접합초기에는 압축하중이 가해질 때 접합될 재료가 기계적으로 밀착되는 단계로 표면의 돌기부(asperity)가 소성 변형되고 산화층이 부서지거나 변형되는 것을 볼 수 있다. 약 10분정도의 접합시간에서는 첫번째 단계에서 접촉이 일어나지 않은 부분은 가늘고 긴 공공(void)으로 존재하는데, 접합이 진행됨에 따라 이러한 공공은 계면에너지가 안정되기 위해 구상화한다. 더 접합이 진행되면 입계확산에 의해 공공은 점점 소멸하고, 체적확산에 의한 결정립내에 형성된 기공의 축소되는 과정에 의해서 접합이 이루어졌다.
2. 지르코늄 기지와 알루미늄 피복재의 접합 특성을 향상시키기 위하여 알루미늄의 산화막을 제거시키기 위한 방법으로 두가지 방법을 제시하였는데, 첫 번째 가압력 증가에 의한 방법은 가압력을 증가시킬수록 표면 산화막을 깨뜨리는 역할을 하는 것으로 판단되었으며, 지르코늄의 표면 거칠기를 증가시킨 결과 접합 돌출부를 크게 하여 가압력에 의해 표면 산화막을 깨뜨리는 역할을 하여 접합 특성을 향상시키는 것으로 판단되었다. 이러한 결과를 바탕으로 450°C-550°C범위에서 가압력을 20-80MPa로 변화시킴에 따른 확산접합 지도를 작성할 수 있었다.
3. 지르코늄 기지와 알루미늄 피복재의 접합 계면의 열적 안정성 해석을 위하여 열처리한 결과 연속의  $Al_3Zr$  상과 불연속의  $Al_2Zr$  상의 두 상이 형성되는 것을 EDAX 분석을 통해서 파악할 수 있었다. 그러나 550°C에서 400시간 열처리한 후에 나타난 XRD pattern의 상분석 결과는 EDAX에 의해 측정된  $Al_3Zr$  금속간화합물과  $Al_2Zr$  금속간화합물외에  $AlZr$ 의 금속간화합물이 생성되는 것을 확인할 수 있었으며, 500°C에서 400시간 열처리한 후에 나타난 XRD pattern의 상분석 결과에는  $AlZr$ 상은 형성되지 않았다. 이러한 상이 성장하는 원인을 분석하기 위하여 계면 생성물의 시간에 따른 성장거동을 살펴본 결과, 계면 생성물은  $\sqrt{t}$ 에 비례하는 것을 알수 있었으며, 이는 Al 원자의 확산에 의한 것으로 판단된다.

#### 5. 참고문헌

- 1) T.R.G. Kutty, C. Ganguly, N.C. Jayadevan and D.H. Sastry, J. Nuclear Mater.,



230 (1996) 295-301.

- 2) C.K. Kim, K.H. Kim, C.T. Lee and I.H. Kuk, Pro. of 14th Inter. Meeting on RERTR, Jakarta, Indonesia, Nov. 4-7 (1991) 109.
- 3) J.L. Snelgrove, G.L. Hofman, C.L. Trybus and T.C. Wienczek, Pro. of 19th Inter. Meeting on RERTR, Seoul, Korea, Oct. 6-10 (1996) 46.
- 4) 이기순, 조사공학, 문경출판사 (1997), Ch.4.

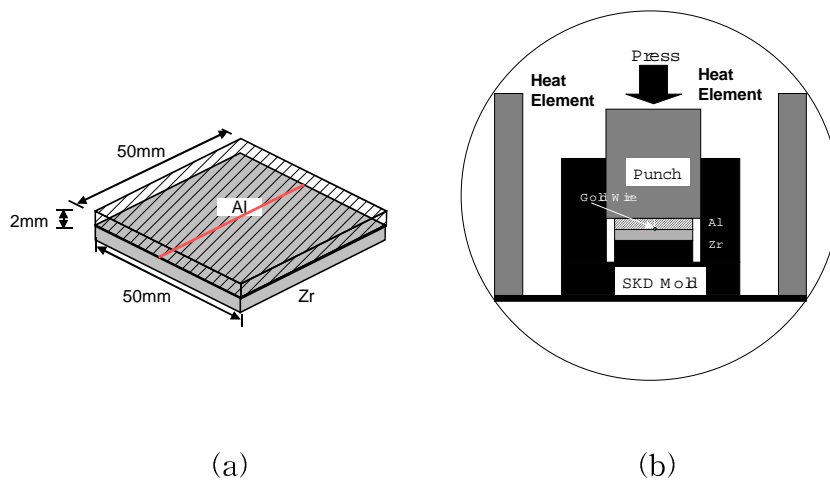


Fig. 1. (a) Schematic diagram of Zr and Al plate and (b) schematic diagram of diffusion bonding process of Zr and Al specimen in vacuum hot press.

Table 1. Surface roughness measured by alpha step 500 surface profiler.

	Al	Zr			
	#2000	#2000	#800	#150	#60
Average Rough (nm)	9.83	456.5	675.6	748.0	979.2
Valley to Peak ( $\mu\text{m}$ )	0.689	2.707	4.468	4.978	9.096

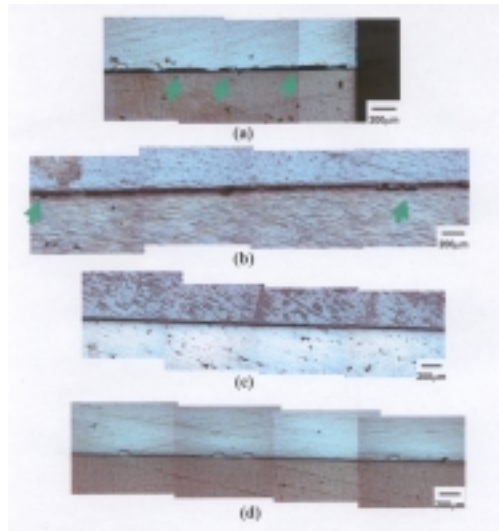


Fig. 2. Microstructures of Al/Zr bonded interface at 550°C for (a) 10minutes, (b) 30minutes, (c) 1hr and (d) 3 hrs under pressure of 10MPa.

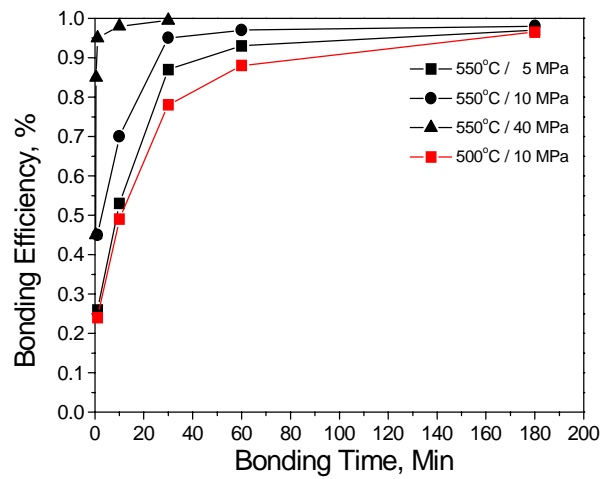


Fig. 3. Variations of bonding efficiency between Al and Zr with varying the diffusion bonding temperature and pressure.

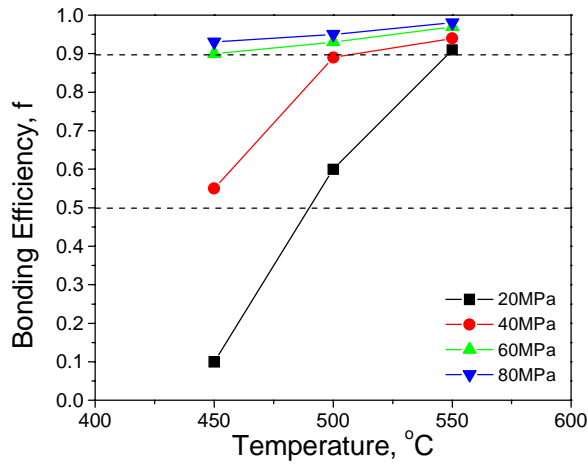


Fig. 4. Variations of bonding efficiency between Al and Zr with varying the diffusion bonding temperature and pressure at 1 minute bonding time.

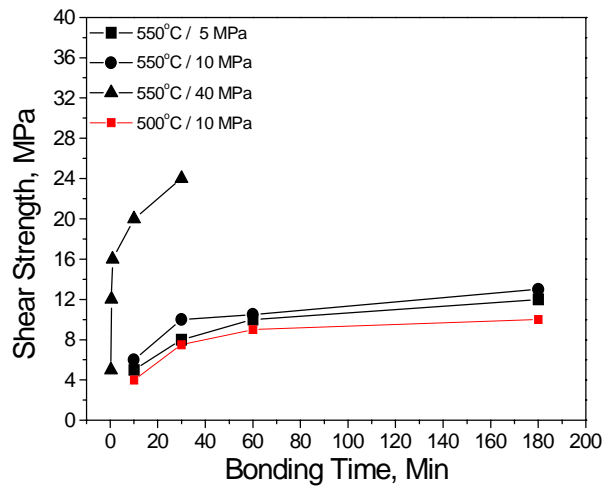


Fig. 5. Variations of bonding shear strength with varying the bonding time at different the bonding temperature and pressure.

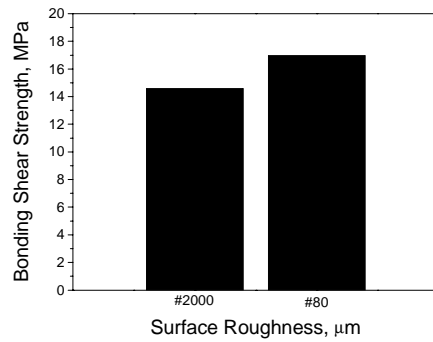


Fig. 6. Variations of bonding shear strength with varying (a) the temperature and (b) surface roughness.

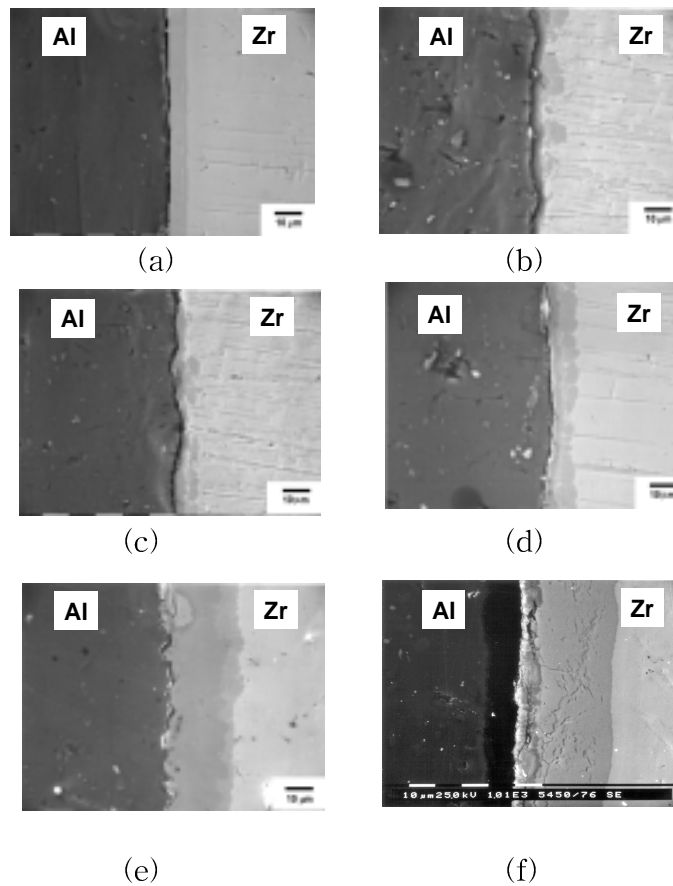


Fig. 7. Microstructures of Zr/Al interface with varying the heat treatment time in the heat treatment temperature at 550°C. (a) 36hr, (b) 49hr, (c) 81hr, (d) 100hr, (e) 200hr and (f) 400hr.

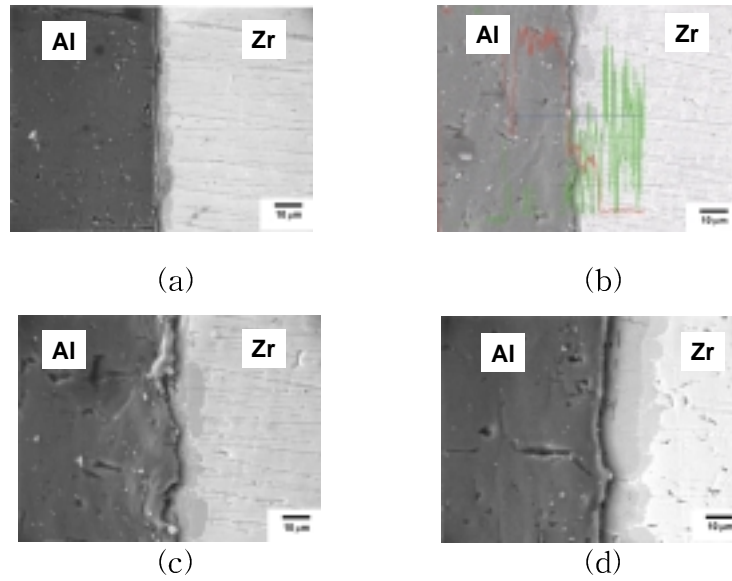


Fig. 8. Microstructures of Zr/Al interface with varying the heat treatment time in the heat treatment temperature at 500°C. (a) 49hr, (b) 81hr, (c) 200hr and (d) 400hr.

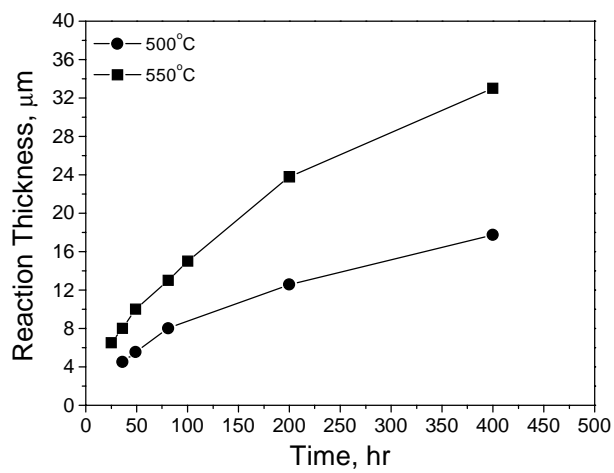


Fig. 9. The variation of reaction thickness of intermetallics layer with increasing heat treatment time at 500°C and 550°C.

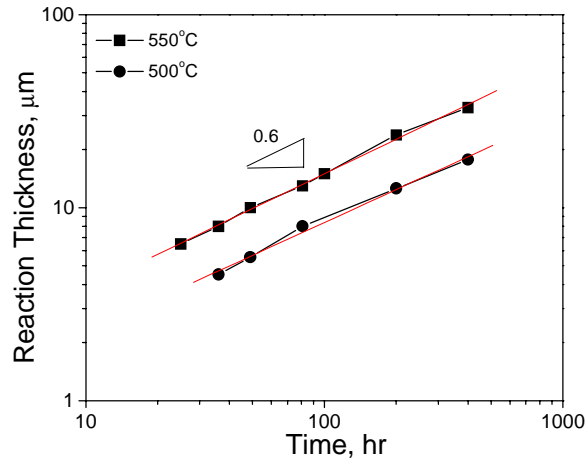


Fig. 10. The variation of reaction thickness of intermetallics layer with increasing heat treatment time at 500°C and 550°C.

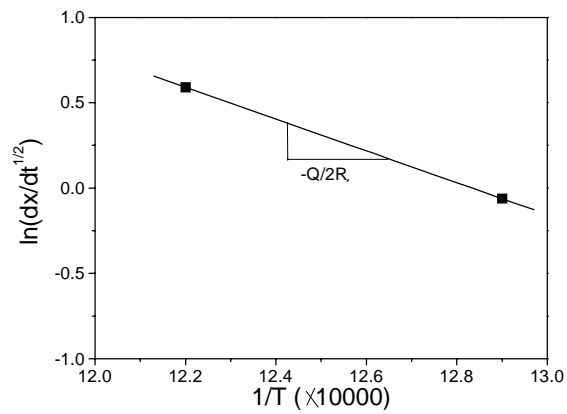


Fig. 11. The calculation of activation energy for intermetallics layer growth between Al and Zr.