

Zr합금의 대량수소화 반응에 미치는 산화막의 영향 Effects of Oxide Film on Massive Hydriding of Zr Alloys

김 선기, 김 용수

한양대학교
서울특별시 성동구 행당동 17

방 제건, 정 연호

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

산화막을 입힌 Zr 합금과 수소와의 반응실험을 TGA 장치를 이용하여 300°C~500°C 온도범위에서 수행하여 대량수소침투에 미치는 산화막의 영향을 평가하였으며 이를 산화막을 입히지 않은 Zr합금과 비교하였다. 실험 결과 기존에 알려진 연구결과와는 달리 잠복기는 산화막 두께에 비례하지 않고 무관하였으며 산화막의 두께에 관계없이 일단 대량수소침투를 허용하게 되면 산화막이 없는 경우의 수소침투 반응속도와 거의 유사한 값을 갖는 사실을 확인하였다. 또한 이러한 사실은 수소침투반응이 산화막을 통한 확산과정이 아닌 기공(pore)나 미세균열(microcrack)과 같은 물리적 결함을 통하여 Zircaloy metal substrate와의 직접적인 반응을 하기 때문으로 판단된다. 본 실험 결과로부터, 산화막의 대량수소침투 허용은 hypo-stoichiometry와 관련된 oxygen vacancy 증가에 따른 산화막내 수소의 확산속도의 빨라짐에 의해서라기 보다는 미세 균열과 같은 물리적 결함이 short circuit path로 작용하여 Zircaloy metal substrate와의 직접적인 반응을 하기 때문인 것으로 추론하였다.

Abstract

The effects of surface oxide film on massive hydriding of pre-oxidized Zr alloys are evaluated and compared with non-oxidized Zr alloys in the temperature range of 300°C~500°C by using TGA(thermo-gravimetric apparatus). Experimental results show that incubation time is not proportional to oxide thickness, rather independent to the thickness and that the massive hydriding kinetics of pre-filmed Zr alloys are similar to that of oxide-free Zr alloys once massive hydriding is initiated. This suggests that the massive hydriding process of pre-oxidized specimen is not hydrogen-diffusion controlled through the oxide, but direct surface-reaction process with Zircaloy metal substrate exposed to hydrogen atoms through the cracks or defects in the oxide. Therefore, in tentative conclusion, the massive hydriding of Zr alloys seems to be ascribed to short circuit path, mechanical or physical defects, rather than hydrogen diffusion through the oxide resulting from the increase of oxygen vacancies in the hypo-stoichiometric oxide.