

세라믹 재료와 U 반응성에 대한 열역학적 분석 및 Y₂O₃ 코팅 도가니 제작

이성호, 조춘호, 이운상, 이한수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

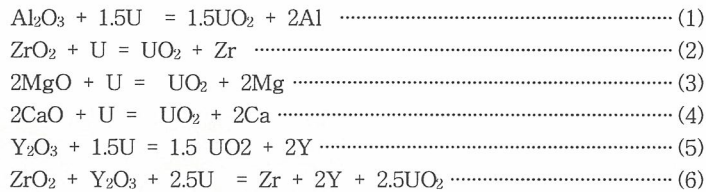
shlee6@kaeri.re.kr

1. 서론

전해정련공정에서 회수되는 우라늄 전착물을 염증류시킨 후 U의 재활용 및 중간 저장을 위해, 잉곳 주조 공정에서 U 잉곳을 제조한다. 고온에서의 열 안전성 때문에 잉곳주조용 용해 도가니(melting crucible)로 일반적으로 흑연 도가니를 많이 사용한다. 그러나, U 용해 주조시 흑연도가니를 사용할 경우 용융 상태의 U과의 강한 반응성으로 인해 U 잉곳주조 용해용 도가니는 고온 용융 상태에서 U 및 UCl₃ 과 반응성이 없는 다공성 세라믹 재질로 코팅하던지, 또는 용해 U과 반응성이 적은 세라믹 재료를 사용하여 한다. 본 연구에서는 일반적으로 코팅 재질로 많이 사용되는 6개의 다공성 세라믹 도가니 재료들과 U 및 UCl₃ 과의 반응성 여부를 열역학적으로 분석하기 위하여, 열역학 분석 S/W인, "HSC"를 이용하여 각 반응식에서 온도에 따른 ΔG (Gibb's Free Energy) 값을 계산하였다. 또한 여러 가지 코팅 방법중 비교적 코팅 후 코팅 박막의 내구성이 우수한 플라즈마 용사코팅 방법에 의해 Y₂O₃ 코팅 가능성을 기술 검토하였고, 150μm-250 μm 두께의 Y₂O₃를 균질하게 코팅시킨 Lab-scale 잉곳주조용 용해 도가니를 제작하였다.

2. HSC 열역학적 분석 SW를 이용한 U 및 UCl₃ 반응성에 대한 열역학적 분석

세라믹 도가니들과 U 및 UCl₃과의 반응성을 열역학적으로 평가하기 위하여 열역학 분석 S/W인 HSC를 이용하여 온도에 따른 ΔG 값을 계산하였다. 대상 세라믹 재질은 Al₂O₃, ZrO₂등 6가지 종류의 세라믹 재질을 고려하였고, U과의 세라믹 재질들의 반응성 평가를 위한 반응식은 다음과 같다.



또한, 세라믹 재료들과 UCl₃와의 반응에 대해 반응 온도에 따른 ΔG 값의 계산을 위한 반응식은 다음과 같다.

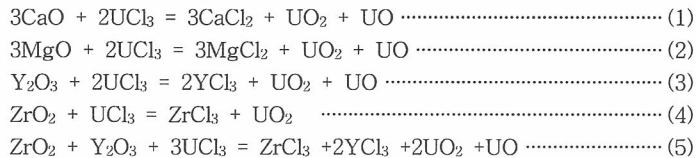


그림 1에 나타낸 U과 세라믹 재질들의 반응성 평가를 위해 온도에 따른 ΔG 값 분석 결과에서와 같이, Al₂O₃ 및 ZrO₂는 700~1100℃ 온도 범위에서 U과 반응성이 있었으나 ZrO₂는 1200℃ 이상에서는 U과의 반응성이 없었다. 그러나 그 외의 세라믹 재료들은 반응성이 없는 것으로 조사되어졌다.

그림 2의 UCl₃ 반응성에 대한 열역학적 분석결과에서와 같이 CaO 및 MgO는 U과 반응하지 않지만, UCl₃ 와 반응함으로 적절하지 못함을 알수 있었다. Ytria 및 YSZ(Ytria Stabilized Zirconia)는 UCl₃ 와의 반응성이 없음이 열역학적 분석결과 입증되었다.

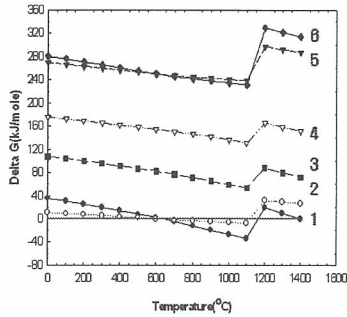


그림 1. U 반응성에 대한 열역학적 분석결과

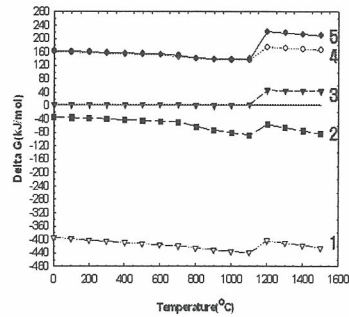


그림 2. UCl₃ 반응성에 대한 열역학적 분석결과

3. 플라즈마 용사코팅법에 의한 잉곳주조용 Y₂O₃ 코팅 도가니 제작

플라즈마 용사법은 역극성 아크 (Non-Transferred Arc)에 의해 불활성 가스로부터 생성되는 플라즈마흐름 (속도: 마하 2, 중심온도: 16,500 °C)에 피막재료를 투입하고, 순간적으로 용융시켜 완전 용융된 분말 용사재를 고속으로 분사 밀착시켜 피막을 형성시키는 코팅 방법으로, 비교적 다른 코팅방업에 비해 코팅 방박의 탈리가 적고 내구성이 우수한 코팅 방법이다.

잉곳주조장치내에서 전해정련공정에서 음극에 전착된 dendrite 형태의 우라늄 전착물을 염증류 공정에서 염을 제거시킨 후 잉곳주조공정에서 U 잉곳을 주조하게된다. 그림 3에 나타난 lab-scale 잉곳주조용 흑연도가니는 용융상태에서 우라늄과의 강한 반응성으로 인해 다공성 세라믹 재료로 코팅하여 사용한다. 본연구에서는 플라즈마 용사코팅 방법에 의해 Y₂O₃ 코팅 가능성을 기술 검토하였고, 플라즈마 용사코팅법에 의해 그림 4에서와 같이 150µm-250 µm 두께의 Y₂O₃를 균질하게 코팅시킨 U 잉곳주조를 위한 용해 도가니를 제작하였다.

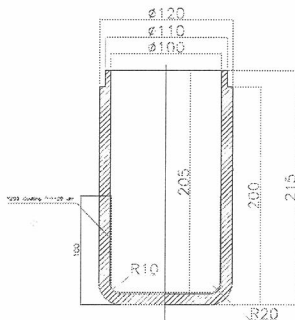


그림 3. lab-scale 흑연도가니의 dimension

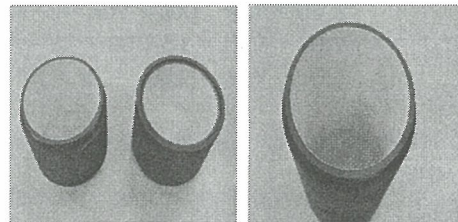


그림 4. 제작된 Y₂O₃ 코팅 흑연도가니

4. 결론

열역학 분석 SW인 HSC를 이용하여 반응 온도에 따른 ΔG 값을 계산함으로써 세라믹 도가니들과 U 및 UCl₃과의 반응성 여부를 조사/분석하였다. 분석결과 Ytria 및 YSZ는 U와의 반응성이 없음이 입증되었고, 최적 코팅 세라믹 재료로 Ytria를 선정하였다. 또한 플라즈마 용사코팅법에 의해 150µm-250 µm 두께의 Y₂O₃를 균질하게 코팅시킨 Lab-scale U 잉곳주조용 용해 도가니를 성공적으로 제작하였고, U 잉곳제조를 위한 도가니 코팅 기초기술을 확립하였다.