

란탄족 원소와 Ferritic-Martensitic 피복재의 상호반응

김준환, 천진식, 김준형, 이병운, 이찬복, 윤영수*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*연세대학교, 서울특별시 서대문구 성산로 262

junhkim@kaeri.re.kr

1. 서론

금속연료는 높은 열전도도를 지녀 고출력 노심설계가 가능한 장점과 더불어 파이로프로세싱과 연계하여 높은 핵확산 저항성으로 사용후 핵연료를 재순환할 수 있는 특징으로 인하여 향후 대한민국에 건설될 소듐냉각고속로(SFR)의 핵연료로 유력하게 고려되고 있다. 반면에 금속연료의 주요 구성원소인 U 및 Pu가 SFR 핵연료 피복관 재료인 스테인리스강과 운전온도 650°C 이상에서 상호반응 및 공융(eutectic)현상을 일으켜 핵연료의 건전성을 약화시키는 단점(FCCI)을 갖는다. 또한 핵분열이 진행될수록 Ce, La, Pr, Nd, Sm과 같은 란탄족 원소가 생성되며 이들 란탄족 원소가 FCCI 현상을 가속화한다는 보고가 있다[1]. 아울러 파이로프로세싱 공정 부산물로 란탄족 금속이 형성되며 이러한 란탄족 원소가 가동중 피복관에 미치는 영향을 고려할 필요가 있다[2]. 본 연구는 고연소도 핵연료를 모사하고 파이로프로세싱 공정 후 생성될 란탄족 원소와 피복재와의 반응성을 평가할 목적으로 Ce-La 합금 및 Nd 금속을 이용한 확산쌍 시험을 수행하였다.

2. 실험 과정

2.1 시험 재료

본 연구에 사용된 란탄족 물질은 70wt%의 Ce에 29wt%의 La와 미량으로 Nd, Fe, Pr, Mg를 함유한 Misch metal 및 Nd가 99% 이상 함유한 Nd 금속이다. 란탄족 물질은 6.6mm의 지름에 1mm 두께의 disk로 가공하여 최대 2000번 거칠기를 갖는 연마지를 사용하여 연마하였다. 피복재 재료는 Ferritic-Martensitic 강인 Gr.92강을 사용하였으며 주요 합금 조성은 9wt%의 Cr에 2wt%의 W이 함유된 재료이다. 피복재 재료는 8mm 지름에 1.5mm 두께의 disk로 가공하여 표면 연마 후 시험에 사용하였다.

2.2 확산쌍 시험

란탄족 물질과 피복재에 대한 확산쌍 시험을 Fig. 1과 같이 수행하였다. 란탄족 원소와 피복재를 나사에 의한 체결로 밀착시켜 주어진 온도에서 상호확산을 유도하였다. 확산쌍 시험온도는 Ce-Fe 상태도 및 Nd-Fe 상태도에 의거하여 공융이 개시되는 온도 영역 중 원자로 가동온도와 근접한 온도로 설정하여 Misch metal의 경우 660°C에서 실시하였으며 Nd 금속은 700°C에서 실시하였다. 시험 후 조직시편 준비 및 SEM/EDS 분석을 수행하였다.

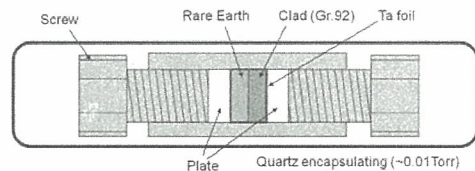


Fig. 1. Schematic illustration of diffusion couple test.

3. 결과

3.1 란탄족-피복재 상호반응 현상

Fig. 2는 시간에 따른 란탄족 원소와 피복재와의 상호반응층 성장거동을 나타낸 결과이다. 확산쌍 시험이 진행될수록 란탄족 원소와 피복재 간 반응이 발생하여 시간에 따라 반응층이 증가하는 거동을 보이고 있다. 반응층 성장거동은 시간에 따른 비선형 관계식을 보이고 있으며 속도지수는 Misch metal과 Nd 금속의 경우 각각 3.51과 4.11로 cubic rate law에 근접한 거동을 보이고 있다.

3.2 미세조직 평가

Fig. 3은 확산쌍 시험 후 각 시편의 단면의 미세조직을 나타낸 그림이다. Misch metal 내 Ce와 피복재의 Fe가 상호 확산하여 $(Fe,Cr)_xCe_y$ 형태의 금속간 화합물을 형성하고 있음이 관찰되었다. Nd 금속과 피복재 내의 Fe도 상호 확산 및 반응하여 $(Fe,Cr)_2Nd_{17}$ 형태의 금속간 화합물을 형성

하고 있음이 관찰되었다.

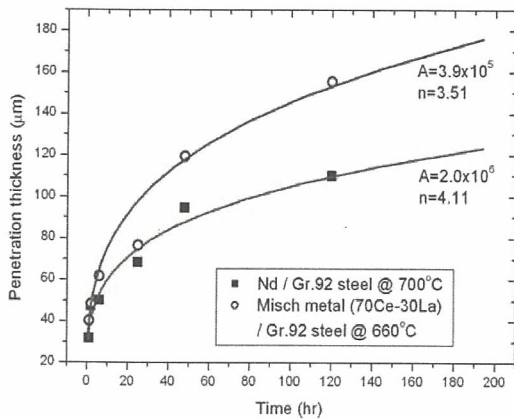
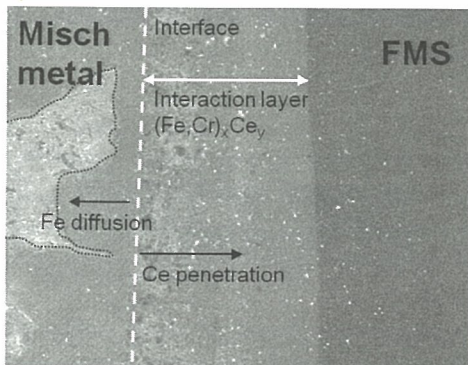
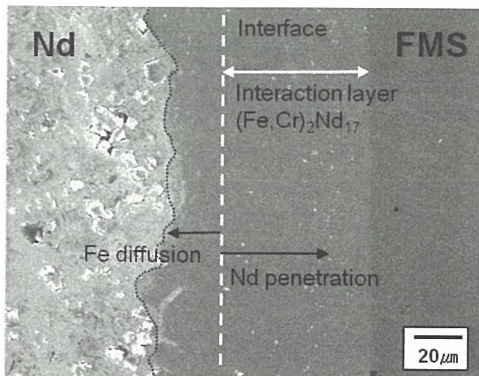


Fig. 2. Growth behavior of rare earth material and ferritic martensitic steel.



(a)



(b)

Fig. 3. Microstructure of the specimen after diffusion couple test (a) Misch metal at 660°C for 25 hours (b) Nd metal at 700°C for 25 hours.

3.3 파이로프로세싱 모사 란탄족 합금 제조

사용후 핵연료에는 소량의 (=1wt%) 란탄족 산화물이 포함되어 있으며 이들 란탄족 산화물은 파이로프로세싱을 거쳐 란탄족 합금으로 변환되어 금속연료의 일부로서 SFR에서 연소가 이루어진다[2]. 파이로프로세싱 후 생성되는 화합물을 모사하기 위하여 란탄족 합금으로 구성된 잉곳을 시험 제조하였다. 진공 아크 용해를 이용하여 Nd, Ce, Pr, La로 구성된 200g 규모 4원계 합금을 제조하였으며 현재 위치에 따른 조성 분석 및 상호반응 시험을 위한 제반 준비를 진행하고 있다.

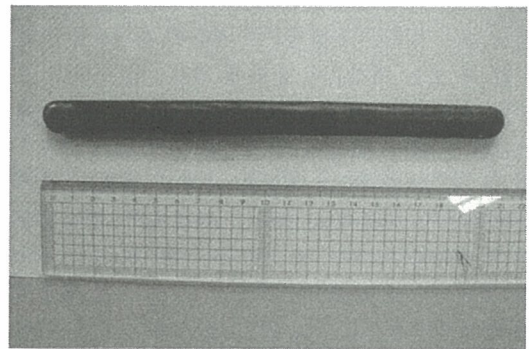


Fig. 4. Rare earth alloy ingot (200g scale).

4. 결론 및 향후 계획

금속연료-피복관 상호반응에 영향을 미치는 란탄족 원소의 영향을 평가하기 위하여 Misch metal (Ce-La 합금) 및 Nd 금속과 피복재와의 확산쌍 시험을 수행하였으며 반응 거동을 정량화하였다. 파이로프로세싱을 모사한 란탄족 합금을 시험 제조하였으며 향후 이를 이용한 확산쌍 시험을 계획하고 있다.

5. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발사업의 일환으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

6. 참고문헌

[1] D. D. Keiser, ANL-NT-240, 2006.
 [2] H. S. Lee, KAERI/RR-3132/2009, 2010.