

폐 피복관 부피감용을 위한 Zr계 금속고화체 합금의 특성 연구

한승엽^{1*}, 장선아¹, 박환서¹, 김종우², 신상용²

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²울산대학교, 울산광역시 남구 대학로 93

*hsy@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료의 재활용을 위해 핵연료 봉을 사용 후핵연료집합체로부터 인출하여 탈피복하는 과정에서 폐 피복관이 발생한다. 폐 피복관에는 잔류 사용후핵연료, 핵분열생성물, 방사화생성물 등이 포함되어 있고 국내 분류기준으로는 중준위 폐기물, 미국 기준으로는 GTCC 폐기물로 분류되고 있다[1].

국내 개발 중인 건식 재처리 공정인 파이로 공정에서는 핵연료 물질 대비 약 25wt% 정도의 높은 비율의 폐 피복관이 발생하며, 사용후핵연료집합체 중 핵연료 물질을 제외한 공정폐기물 중에서는 약 62wt% 정도의 높은 비율을 차지한다[2]. 특히, 폐 피복관 폐기물은 공정 폐기물 중에서 가장 높은 부피비를 갖고 있어 안정성 및 경제성을 고려한 부피감용 기술 개발이 필수적이다.

미국에서는 1990년대 초반부터 EBR-II 핵연료 봉의 폐 피복관 처분을 위한 SS-15Zr 용융 금속폐기물고화체 기술개발을 진행하고 있다[3]. 폐 피복관을 용융하여 합금화한 뒤, 금속고화체 형태로 폐기 처분하게 되면 이론 밀도에 거의 근접한 부피감용 효과를 얻을 수 있다. 또한 금속폐기물고화체 합금 조성 조절을 통해 재처리공정시 주로 음극 잔류물(anode sludge)에 포함되는 귀금속 원소, 우라늄 및 금속계 산화물들을 내부에 고정화 할 수 있다. 이는 폐 피복관을 방사성물질 고정화용 합금 재료로 재활용한다는 개념으로서 경제성을 고려한 폐 피복관 처분 시 큰 장점을 갖는다. 미국과 달리 국내 파이로 공정에서 발생하는 폐 피복관은 Zirlo, Zircaloy-4 등의 Zr계 합금이며, 부피감용 측면에서 고화체 합금에 Zr을 많이 포함시키는 Zr-Metal계 합금 고화체 제조기술 개발 연구가 필수적이다.

본 연구에서는 우수한 고화성능과 기계적, 화학적 안정성을 갖는 금속폐기물고화체 합금 개발을 위해 조성을 달리한 Zr-Metal 이원계 합금 금속고화체를 유도용융을 통해 제조하였으며, 미세조직과 특성을 자세히 분석하여 고찰하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

특수 제작된 Silica 도가니에 99.9% 순도를 갖는 시료를 장입하여 Fig. 1의 진공유도용해로에 장착한 뒤, Ar 분위기 하에서 약 1400~1800°C 유도용해를 실시했다. 충분히 용해된 용융물을 구리 몰드에 부어 급냉하였고, 시편 무게 100 g 기준으로 약 3φ x 3 cm 크기의 금속고화체를 제조하였다. 제조된 시편을 가공하여 미세조직 분석, 경도시험, 인장시험, 부식시험을 진행하였다.

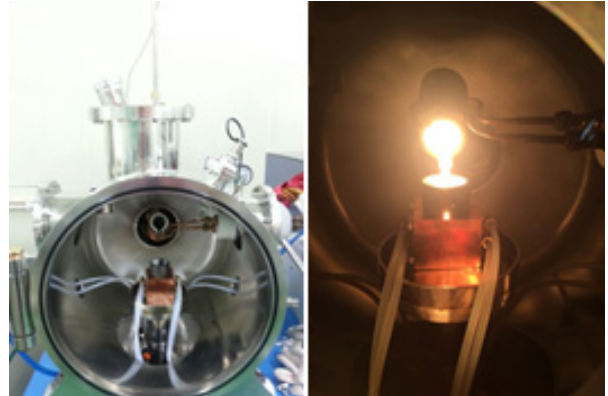


Fig. 1. (a) Vacuum induction melter and (b) pouring process.

2.2 실험결과 및 고찰

Zr-SS, Zr-Cr의 2종의 이원계 합금에 대해 조성을 달리하여 시편을 제조하였다. Zr-8SS 시편의 경우는 용융 후 급냉 시 응고 균열로 인해 파괴가 발생하였다. SS-11~19Zr 시편은 균열없는 균일한 형태의 금속고화체가 제조되었으며, SS-19Zr 시편에서 인장강도 약 450 MPa와 함께 연신율 약 7% 정도를 갖는 우수한 인장 특성이 나타났다. 그러나 SS-Zr 합금에 약 4wt% 정도의 산화물을 포함하여 고화체를 제조하였을 때, 완전 용융이 이루어지지 않아 불균일한 형태로 고화체가 제조되었으며, 인장강도는 85 MPa 정도로 매우 낮았다. Zr-Cr 이원계 합금의 경우는 일부 시편에서 균열이 존재하였으나, Zr-20Cr 시편에서 균일한 금속고화체가 제조되었으며, 우수한 기계적 특성을 나타냈다. 특히

Zr-20Cr 시편은 매우 높은 산화물 고정성을 나타냈으며, 산화물들이 내부에 균일하게 분포하는 것을 확인하였다.(Fig. 2)

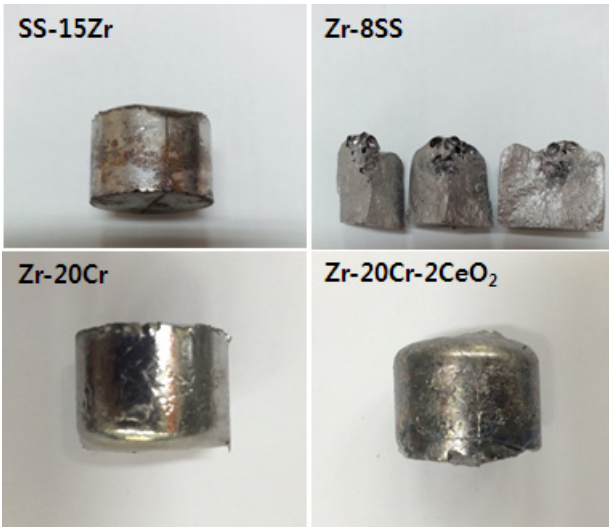


Fig. 2. Morphology of metallic waste form controlled by binary alloy element compositions.

3. 결론

본 연구에서는 폐 피복관 부피감용 및 음극 잔류물 고화 처리를 위해 유도용융법을 통해 이원계 합금 금속고화체를 제조하였다. SS-15Zr 및 Zr-20Cr 합금을 사용하여 고화체를 제조하였을 때, 균일한 형태의 안정적인 금속고화체를 제조할 수 있었다. 특히 Zr-20Cr 합금의 경우는 산화물을 포함하고도 균열이 없는 안정적인 고화체가 형성되었으며, 내부 산화물들은 균일한 형태로 전체 시편에 고르게 분포되었다. Zr 합금으로 이루어진 피복관은 연소도에 따라 표면 산화물이 다량 존재하며, 파이프 공정에서 발생하는 음극 잔류물에도 상당한 양의 산화물이 포함된다. Zr계 합금을 사용하여 이러한 산화물들을 고정화하기 위한 연구는 전세계적으로 거의 이루어지지 않고 있으므로 본 연구를 통해 기초적인 방향을 제시하고 추후 지속적 연구 개발을 통해 한국의 건식 재처리 실정에 맞는 금속폐기물 고화체 개발에 기여할 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

[1] M. Nutt et al., "Information Basis for Developing Comprehensive Waste Management System - US-Japan Joint Nuclear Energy

Action Plan Waste Management Working Group Phase I Report", FCR&D-USED-2010-000051, (2010).

[2] 강권호, 이창화, 전민구, 이유리, 최용택, 박근일, "폐 피복관 처리기술", KAERI/TR-5288/2013 (2014).

[3] D. P. Abraham, S. M. McDeavitt, J. Y. Park, "Microstructure and Phase Identification in Type 304 Stainless Steel-Zirconium Alloys", Metallurgical and Materials Transactions A, 27A, 2151-2159 (1996).