

# 폐 피복관 부피감용을 위한 SS-Zr계 금속폐기물고화체 합금의 미세조직 및 특성 연구

장선아<sup>1\*</sup>, 한승엽<sup>1</sup>, 박환서<sup>1</sup>, 김종우<sup>2</sup>, 신상용<sup>2</sup>

<sup>1</sup>한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

<sup>2</sup>울산대학교, 울산광역시 남구 대학로 93

\*sajang@kaeri.re.kr

## 1. 서론

폐 피복관은 사용후핵연료의 재활용을 위해 핵연료 봉을 집합체를 해체하여 탈 피복하는 과정에서 발생한다. 국내 개발 중인 전기화학적 처리법인 파이로 공정에서 발생하는 폐 피복관은 핵연료 물질 대비 약 24.5wt% 정도의 높은 비율을 차지하며, 사용후핵연료집합체 중 핵연료 물질을 제외한 공정 폐기물 중에서는 약 62wt% 정도의 높은 비율을 차지한다[1]. 이러한 폐 피복관 폐기물은 주요 폐기물 중에서 대부분을 차지하기 때문에 가장 높은 부피비를 갖고 있고, 따라서 안정성 및 경제성을 고려한 부피감용 기술 개발이 필수적이다.

한편, 1990년대 초반부터 미국에서는 EBR-II 핵연료 봉의 폐 피복관 처분을 위한 SS-Zr계 금속고화체합금 개발을 진행하고 있다. 특히 SS-15Zr 용융 금속고화체 기술개발은 SS(stainless steel) 폐 피복관을 용융하여 합금화한 뒤, 금속고화체 형태로 처분하게 되면 이론 밀도에 근접한 부피감용 효과를 얻을 수 있는 것으로 알려져 있다.[2] 또한 금속고화체 합금 조성 조절을 통해 재처리공정시 주로 음극 잔류물(anode sludge)에 포함되는 귀금속 원소, 우라늄 및 금속계 산화물들을 내부에 고정화 할 수 있다. 따라서 금속고화체 제조를 통한 폐기물 처리는 피복관을 재처리 없이 방사성물질 고정재료로 활용하는 base 합금으로 바로 적용하는 개념으로써 부피감용 효과 및 경제성에 큰 장점을 갖는다.

본 연구에서는 높은 안정성을 갖는 금속폐기물고화체 합금화 처리를 위해 SS304와 Zr의 합금 조성을 조절하여 미세조직을 분석하고, 고화체 특성을 평가하였다.

## 2. 본론

### 2.1 실험방법

Silica 도가니에 99.9% 순도를 갖는 SS 및 Zr 시료를 장입하여 진공유도용해로에 장착한 뒤, Ar

분위기 하에서 유도용해를 실시했다. 이때 열처리 온도 범위는 약 1400~1800°C 이며, 충분히 용해된 용융물을 구리 몰드에 부어 급랭하여 시편 무게 100 g 기준으로 약 3φ x 3 cm 크기의 금속고화체를 제조하였다. 이와 같은 방법으로 Zr 함량을 11~19wt%로 조절하여 5종류의 SS-Zr계 합금을 제조하였다. 제조된 시편을 25 x 6 mm 크기의 인장시편으로 가공하여 인장시험을 실시하였고, 일부 시편을 연마하여 에탄올, HCl, HNO<sub>3</sub>을 배합한 용액에 에칭한 뒤 미세조직을 관찰하였다. 또한 위치별 경도시험 및 부식시험을 진행하였다.

### 2.2 실험결과 및 고찰

SS-Zr계의 이원계 합금에 대해 Zr 함량을 조절하여 Fig.1의 5종류의 금속고화체 시편을 제조하였다. 그 중에서 SS-11Zr, SS-15Zr, SS-19Zr 을 대표로 가공하여 인장시험을 실시하였으며, 결과 값은 Table 1에 나타내었다. SS-15Zr 에서 인장강도와 연신율이 급격히 낮아져 추가적으로 열처리를 진행한 결과, 조직이 연화되어 경도는 감소했지만 인장 강도와 연신율은 각각 520 MPa, 5.5% 으로 값이 증가하는 결과를 보였다.

또한 인장 파단면을 관찰한 결과(Fig. 2(a)), SS-11Zr 경우는 작은 결정립 단위(~1 μm)의 준벽 개파면이 존재했고, SS-15Zr 은 dendrite로 추정되는 조직을 따라서 긴 균열이 발생했다. SS-19Zr 에서는 비교적 큰 결정립 단위(~10 μm)의 벽개파면을 관찰 할 수 있었다. SS-15Zr 시편을 수직 절단하여 위치별로 Top, Middle, Bottom 으로 나누어 경도를 측정하였다. Top에서 Bottom으로 갈수록 void가 감소하고 조직이 치밀하여 경도가 증가하였고, Center에서 Edge쪽으로 갈수록 개재물 수가 증가하였다. 미세조직 분석 결과, Fig. 2(b)에서 보는 바와 같이 SS-11Zr~19Zr 로 갈수록 개재물 양이 증가하는데, 이는 Fe-Zr 상태도에 따라 intermetallic 양이 증가되기 때문인 것으로 판단된다. 따라서 Zr 함량이 증가될수록 경도가 증가하였고 center와 edge의 차이는 거의 없었다. Fig. 3는 SEM을 이

용하여 SS-15Zr 의 미세조직을 관찰 한 것이다.  $\gamma$ -Fe(흑색), Laves phase( $ZrFe_2$ )(흰색)으로 구성되어 있음을 확인하였는데, 11Zr, 19Zr도 마찬가지로 두 개의 상이 존재하였다.

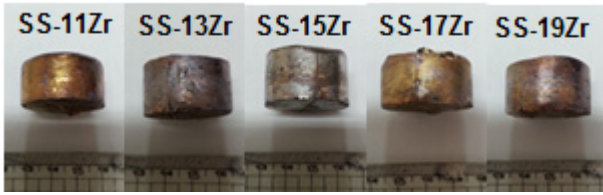


Fig. 1. Morphology of metallic waste form controlled by binary alloy element compositions.

Table 1. Physical properties of metallic waste form

	T/S(MPa)	E/L(%)	Hardness
SS-11Zr	425	7.1	355
SS-15Zr	113	3.9	460
SS-19Zr	447	6.7	520

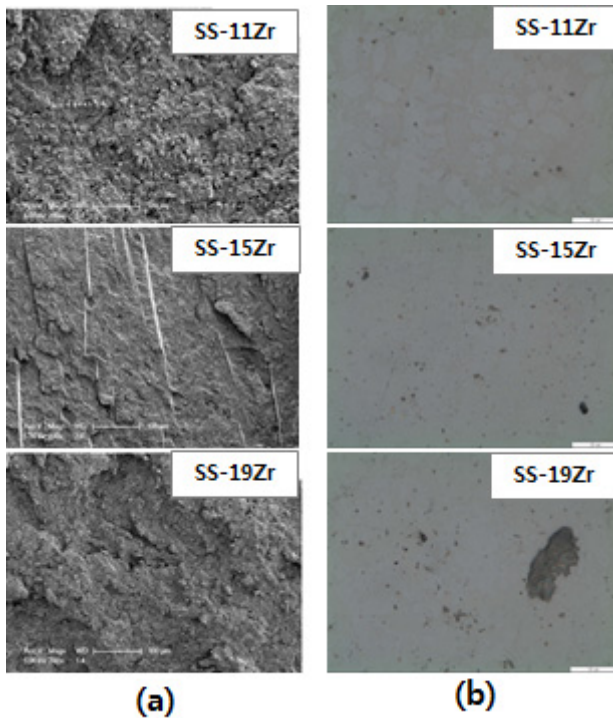


Fig. 2. (a) SEM images of fracture surface and (b) OM images of microstructure for three different compositions.

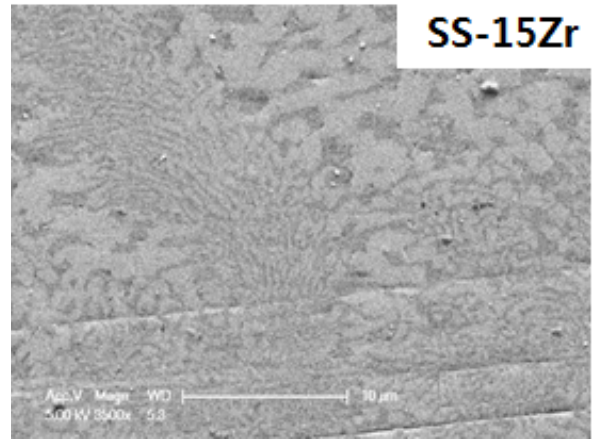


Fig. 3. Microstructure of SS-15Zr specimen.

### 3. 결론

본 연구에서는 파이로 공정에서 발생하는 폐 피복관 부피감용을 위한 금속폐기물고화체 합금의 고화성능을 테스트하기 위해 유도용융법을 통해 금속 고화체 합금을 제조하였다. SS-Zr 이원계 합금을 기준으로 Zr 함량이 다른 5종류의 안정적인 고화체를 제조할 수 있었다. Zr 합금의 조성을 늘릴수록 intermetallic의 분율 및 경도가 증가하는 것을 확인하였고, 미세조직 분석을 통해 시편의 top에서 bottom으로 갈수록 조직이 치밀해지고 center에서 edge 부근으로 갈수록 개재물이 증가함을 알 수 있었다. 모든 시편들에서 주요 상은  $\gamma$ -Fe 및 Laves phase( $ZrFe_2$ )으로 구성되어 있음을 확인하였다.

### 4. 참고문헌

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