

Evaluation of Silicon Carbide (SiC) for Deep Borehole Disposal Canister

심부시추공 처분용기 재료로서 SiC 세라믹의 적합성 평가

Minsoo LEE*, Jongyoul LEE, Heuijoo CHOI, MalGoBalGaeBitNaLa YOO, and Sunghoon JI
Korea Atomic Energy Research Institute, 111, Daedeok-daero 989 beon-gil, Yuseong-Gu, Daejeon, Republic of Korea

이민수*, 이종열, 최희주, 유맑고빔게빛나라, 지성훈
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로989번길 111

(Received November 29, 2017 / Revised March 22, 2018 / Approved April 25, 2018)

To overcome the low mechanical strength and corrosion behavior of a carbon steel canister at high temperature condition of a deep borehole, SiC ceramics were studied as an alternative material for the disposal canister. In this paper, a design concept for a SiC canister, along with an outer stainless steel container, was proposed, and its manufacturing feasibility was tested by fabricating several 1/3 scale canisters. The proposed canister can contain one PWR assembly. The outer container was also prepared for the string formation of SiC canisters. Thermal conductivity was measured for the SiC canister. The canister had a good thermal conductivity of above $70 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ at 100°C . The structural stability was checked under KURT environment, and it was found that the SiC ceramics did not exhibit any change for the 3 year corrosion test at 70°C . Therefore, it was concluded that SiC ceramics could be a good alternative to carbon steel in application to deep borehole disposal canisters.

Keywords: SiC ceramics, Deep borehole disposal (DBD) system, Disposal canister, Nuclear waste disposal, High level waste

*Corresponding Author.

Minsoo LEE, Korea Atomic Energy Research Institute, E-mail: minm@kaeri.re.kr, Tel: +82-42-868-2081

ORCID

Minsoo LEE <http://orcid.org/0000-0001-7928-2415>
Heuijoo CHOI <http://orcid.org/0000-0001-9253-7697>
Sunghoon JI <http://orcid.org/0000-0002-2506-4049>

Jongyoul LEE <http://orcid.org/0000-0001-8482-9008>
MalGoBalGaeBitNaLa YOO <http://orcid.org/0000-0002-9461-8981>

본 연구에서는 탄소강 심부시추공 처분용기가 가지는 고온에서의 물성 저하와 내부식성 문제 등을 해결하기 위하여, 열전도도가 우수한 SiC를 이용한 심부시추공 처분용기의 제작 가능성을 살펴보았다. 먼저 사용후핵연료 집합체 1다발을 수용할 수 있는 심부시추공 처분용기를 설계하였으며, 설계된 처분용기는 내부 SiC 기밀용기와 취급 편의와 심부정치를 위한 외부 스테인리스 용기로 구성하였다. 그리고 SiC 세라믹 용기의 제작 가능성을 확인하기 위해, 1/3 규모의 소형 SiC 용기를 실제 제작하였다. 제작된 SiC 용기에서 시편을 추출하여 열전도도를 측정하였으며, KURT 지하 70℃ 고온조건에서 3년간 내구성 시험도 실시하였다. 그 결과 SiC는 100℃에서도 $70 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 이상의 열전도도를 보였으며, 내구성 시험 후에도 변화가 전혀 보이지 않았다. 따라서 SiC는 높은 열전도도와 우수한 내부식성을 갖고 있어, 심부시추공 처분용기 재료로 적합하다고 보았다.

중심단어: 실리콘 카바이드, 세라믹 처분용기, 심부시추공 처분, 핵연료 폐기물, 고준위 폐기물

1. 서론

고준위폐기물을 지하 500 m 부근의 무산소 심부 지반에 처분하고자 하는 심지층 처분연구가 많은 나라에서 수십 년간 수행되어 왔으나, 여전히 수천 년에서 수십만 년에 이르는 금속 처분용기의 부식수명에 대한 논쟁은 아직도 남아 있다. 500 m 심부 환경은 부식을 야기하는 산소가 없지만, 시추공 주변을 흐르는 지하수에 포함된 황화합물과 같은 잠재적 부식인자의 영향, 그리고 방사분해로 발생하는 H_2O_2 또는 라디칼에 의한 부식이 가능하기 때문이다[1]. 한편, 최근에는 고준위폐기물 처분용기의 보다 안전한 영구처분을 위해 500 m보다 더 깊은 지 3~5 km 심부시추공에 처분용기를 매몰하려는 연구가 유럽지역과 미국 등 몇몇 나라에서 검토되고 있다[2-4]. 지하 3~5 km 심부는 고염분 층상 지하수체가 지표의 지하수체와 전혀 혼합되지 않고 지하에 정체된 상태로 부존하기 때문에 방사성 핵종의 지상유출이 희박하며, 지각 변동에 의한 시추공의 영향도 무시될 정도로 줄어든다는 장점이 있다[2].

따라서 심부시추공 처분용기는 부식수명보다는 구조적 강성이 강조되기 때문에 일반적으로 두터운 탄소강관을 밀봉한 단순한 구조로 설계된다[5]. 하지만 심부 3~5 km는 100℃ 이상의 지열과 사용후핵연료에서 나오는 붕괴열로 인해 처분용기 주변온도가 비정상적으로 높이 상승한다. 또한 심부의 지하수압이 5 km 깊이에서 약 57 MPa에 달하기 때문에 처분용기의 기계적 구조 설계가 매우 중요해진다[6, 7].

심부시추공 탄소강 처분용기는 크게 두가지 단점이 있다. 첫째는 처분용기가 두터운 강관으로 제작되므로 매우 무겁다.

고하중 처분용기는 심부시추공 처분공정에서 매우 불리하게 작용한다. 심부 3~5 km까지 내리는 정치공정 시간을 줄이기 위해서 한번에 내리는 처분용기의 수량은 10~40개로 행렬을 이루게 되며, 무거운 처분용기는 정치용 권상기구와 하강용 파이프에 큰 부하를 주게 된다. 따라서 한 번에 내릴 수 있는 처분용기의 개수는 처분용기의 자체 하중에 따라 제한 될 수밖에 없고, 공정시간이 늘어나게 된다. 따라서 처분용기의 중량을 줄일 수 있다면, 좀 더 많은 개수의 처분용기를 내려 운영기간을 줄임으로써 경제적으로 이득을 가져올 수 있다. 두번째 탄소강관 처분용기의 단점은 고온으로 갈수록 기계적 강도가 떨어진다는 점이다[8, 9]. 5 km 심부는 지열로 인해 160℃까지 오를 수 있으며, 처분용기에 장입된 사용후핵연료의 붕괴열로 인해 용기 중심 온도는 최대 380℃까지 상승할 것으로 예측하고 있다[10]. 구조용 탄소강이 400℃를 기점으로 항복강도가 급격히 떨어지는 것을 고려할 때[9], 탄소강 외에 열적으로 안정한 처분용기 재료가 요구된다.

이에 본 논문에서는 일반적인 탄소강이 가지는 고중량과 고온에서의 강성 저하를 해결하는 방안으로 SiC를 심부시추공 처분용기 재료로 고려하고, 그 타당성을 검토하고자 하였다. SiC 심지층 처분(Depth geological disposal or Mined disposal)용기는 이미 A. Kerber[11] 등에 의해 이미 2013년 경 제안된 바 있다. 처분 깊이가 3~5 km에 달하는 심부시추공 처분의 경우에는 처분용기의 부식이 그다지 중요하지 않을 수 있기에 부식되지 않는 SiC 세라믹 용기는 적합한 대안으로 보여진다. 하지만 Table 1에서 알 수 있듯이 SiC는 내부식성 말고도, 금속보다 가볍고, 기계적 강도가 우수하고,

Table 1. Comparisons of density, compressive strength, and thermal conductivity between SiC (silicon carbide) and carbon steel

Materials	Density (g·cm ⁻³)	Compressive strength (MPa)	Thermal conductivity (W·m ⁻¹ ·K ⁻¹)
SiC [8]	3.16	2,500	200
Low carbon steel [9]	7.8~8.0	1,500	54

또한 열전도도는 탄소강보다 높다는 장점이 있다[12, 13].

따라서 심부시추공 처분용기로서 SiC가 적합한 재료라고 본 논문에서는 판단하였다. 왜냐하면 SiC 용기는 5 km 심부 처분환경에서 예상되는 400℃의 높은 온도에도 SiC는 기계적 강도 저하가 거의 없으며, 내부 붕괴열의 발산에 유리한 높은 열전도도를 지니고 있기 때문이었다. 본 논문에서는 SiC를 이용한 사용후핵연료 처분용기의 설계와 소형 SiC 용기의 제작 사례를 보였다. 그리고 국내 심부환경에서 SiC가 적합한 재료인지 평가한 시험내용을 함께 제시하였다.

2. 선행 연구

SiC는 높은 강도, 고온에서의 구조적 안정성, 그리고 뛰어난 내방사선 때문에 원자력 분야에서 구조재로 사용하려는 노력이 많이 있어왔다. 최근 한국원자력연구원에서 경수로 핵연료 피복관 재료로서 사용하려는 연구가 진행되고 있다[14].

SiC 피복관 제작공정은 SiC 섬유 혹은 그 섬유로 짠 피복을 3차원 원통으로 예비 성형하고, 그 성형체를 다시 SiC 전구체로 함침 한 후, 후처리하여 SiC 매질을 형성하는 공정으로 구성된다. 하지만 SiC composite는 제작 단가가 높은 편이며, 열전도도가 10~25 W/mK 수준으로 순수 SiC 소결체 보다 낮은 문제점이 있어 이를 해결하기 위한 연구가 필요하다.

독일 연구기관 SiCeram GmbH의 A. Kerber에 의해 사용후핵연료 처분용기 내부의 밀봉용기 재료로서 SiC 소결체가 제안되었다[11]. 제안된 SiC 용기는 내부 공간을 효율적으로 활용하기 위하여 집합체에서 분리된 연료봉만을 장입하도록 되어 있다. 연료봉 사이의 빈 공간은 ¹⁴C graphite 방사성폐기물 용융물을 채우는 것을 제안하였다. 왜냐하면 graphite는 열전도도가 우수하고, 기계적 강도가 양호하기 때문이다. 사용후핵연료 집합체를 해체하여 연료봉만을 장입하는 방법은 구경이 작을수록 유리한 심부시추공 처분공정에도

적합한 방법으로 판단된다.

한편, SiC 용기는 사용후핵연료 집합체 길이에 해당하는 4~5 m 길이로 단품 제작이 힘들다는 단점이 있다. 따라서 여러 개의 원통을 접합하면 충분히 긴 용기의 제작이 가능할 것으로 보고 있다. 그러나 소결된 SiC는 용융이 되지 않기 때문에 일반적인 용접방법으로 접합이 힘들다. SiC와 SiC 사이를 결합하는 방법으로는 Diffusion bonding, Transient eutectic phase joining, Solid-state displacement reactions, Glass-ceramic joining, Pre-ceramic polymer routes, Laser joining, 그리고 Selective area CVD (Chemical Vapor Deposition) 등 수많은 방법이 있지만[14], 처분용기의 제작에 레이저 접합(Laser joining)이 적합한 것으로 판단된다. 왜냐하면 세라믹 재료의 용융점은 매우 높기 때문에 원하는 지점을 짧은 시간에 고온으로 올리는 방법으로 레이저가 유리하기 때문이다. 레이저 접합에는 조건에 맞는 적합한 용착제를 선택하는 것이 중요하며, 방사선 안정성과 경제성 등을 고려하여 결정해야 한다. SiC 용기와 SiC 마감부의 레이저 접합은 J. Knorr[15]에 의해 레이저의 종류와 용착제에 관한 연구가 많이 연구되었다. J. Knorr는 파장이 10.6 μm인 CO₂ 레이저와 파장이 1.06 μm인 Nd:YAG 레이저가 접합에 적당한 것으로 제시되었으며, 용착제로는 Al₂O₃-Y₂O₃-SiO₂ 산화물 조합이 실제 시연에서 가장 우수한 접합강도와 낮은 헬륨 투과율을 나타낸다고 보고하였다.

SiC는 오랜 처분 기간에도 부식이 되지 않으면서, 기계적 건전성이 우수한 장점이 있는 물질이다. 하지만 심부시추공 처분용기에 적용되기 위해서는 사용후핵연료를 장입하고 나서 최소한의 작업으로 밀봉할 수 있는 접합 기술을 확보할 필요가 있다. 물론 접합부는 방사선에 의한 열화가 없어야 하고, 기계적 건전성이 충분히 유지되어야 한다. 또한 SiC는 세라믹이 가지는 취성을 극복할 필요가 있다. 이를 위해서는 내충격성을 보완할 수 있는 multi-layer wall 개념이나, 앞서 언급된 Fiber-reinforced SiC Composite 구조를 도입할 필요가 있어 보인다.

3. 심부시추공 처분용기의 설계

3.1 심부시추공 처분용기의 기본개념

국내 사용후핵연료 집합체 1다발을 처분할 수 있는 SiC 심부시추공 처분용기를 설계하고 그 적용가능성을 검토해 보았다. 한국 표준형 원전용 개량 연료인 Plus7(16×16 핵연료봉 배열 집합체)을 대상으로 하고, 초기농축도 4.5wt%와 방출연소도 55 GWd/MtU를 갖는 고연소도 사용후핵연료로 가정하였다. 실제 SiC 용기에 들어가는 1다발의 사용후핵연료 집합체의 치수는 길이 4,528 mm, 단면 길이 207×207 mm, 대각선 길이 293 mm를 고려하여 설계하였다. 기존 사용후핵연료 집합체 1다발을 밀봉할 수 있는 SiC 용기 크기와 그 구성을 다음과 같이 정하였다. 실제 큰 길이의 SiC 실린더를 한번에 제작할 수 없기 때문에, 약 330 mm 길이의 SiC 실린더 14개를 접합하여 내부 길이 4,620 mm 실린더를 구성하고, 실린더 양단을 40 mm 두께 SiC 판재로 마감하는 것으로 설정하였다. 각 부분을 접합하는 방법으로는 앞 절에서 제시한 바와 같이 레이저 접합으로 연결하는 것으로 하였다. 한편, 직사각 형태의 사용후핵연료 집합체와 원통형 SiC 용기 사이에는 빈 공간이 있으며, 내부 붕괴열의 외부 방출을 방해할 뿐만 아니라, 진동에도 취약할 수 있다. 따라서 빈 공간은 열전도도가 우수한 SiC 분말이나 graphite 분말로 채우는 것으로 하였다.

심부시추공 처분용기는 지상에서 지하로 약 3~5 km 구간을 내릴 수 있어야 한다. 따라서 취급을 위한 외부 구조가 필요하다. 그리고 SiC 용기는 그 자체로 충격에 약하기 때문에 충격에 강한 금속 외부용기로 재차 보호할 필요가 있다. 이러한 목적으로 내부식성이 뛰어나고 충격에 강한 외부 스테인리스 용기를 도입하였다. 스테인리스 용기는 SiC 기밀용기를 보호하고, 각각의 처분용기를 수십 개 단위로 연결할 수 있는 구조로 하였다. 스테인리스 외부용기로 구성된 수십 개의 처분용기 행렬은 일직선으로 연결하여 지상의 정치장치를 통해 심부시추공 하부로 내릴 수 있도록 하였다.

3.2 심부시추공 처분용기의 설계 조건

심부 5 km로 내려가면서, 수압은 깊이와 염도에 따라서 점차 상승한다. 계산을 용이하게 하기 위하여 염도의 수직적

분포를 보수적으로 가정하여 계산하였다. 처분심도 500 m 까지 지표면의 담수로부터 심도에 따라 (1.1× 담수 밀도)와 같이 변화하며, 그 이후에는 심도 5 km까지는 (1.3× 담수 밀도)로 변한다고 가정하여 계산하였다[16]. 한편 지하수의 온도와 관련해서는 25 °C·km⁻¹의 온도 구배를 가정하였다. 그 결과 심부시추공 바닥에서의 지하수압은 약 57 MPa (8,250 psi), 온도는 약 140°C로 추정되었다. 한편, SiC 용기는 최대 300°C (572°F)까지 붕괴열로 인하여 내부 온도가 상승한다고 가정하고, 300°C에서도 견딜 수 있도록 설계하였다. 처분용기 행렬의 하중 조건은 10~40 개의 처분용기가 한 줄로 약 50~200 m 길이로 처분공에 정치된다는 가정 하에 설계하였다. 따라서 단일 처분용기 구조는 사용후핵연료 집합체, 채움재, SiC 기밀용기, 그리고 스테인리스 금속용기 순으로 구성된다. 이에 기본 설계조건은 다음과 같이 정하였다.

- SiC 기밀용기 단독으로 외력 57 MPa를 감당할 수 있어야 한다.
- 금속용기는 처분용기 행렬의 인장 하중을 지탱할 수 있어야 한다.
- 기본 SiC 기밀용기의 내부 공간은 사용후핵연료 집합체 1다발이 충분히 들어갈 수 있어야 한다.

3.3 SiC 기밀용기의 설계

위의 설계 조건에 따라, SiC의 내부 공간은 ID 310 mm, IH 4,620로 설정하고 설계하였다. 그런데 SiC 용기와 같은 세라믹 재료의 외압용기 규정은 KS 규격이나 ASME 규격에는 명시되어 있지 않다. 대부분의 SiC 물성치는 고온 (1,000°C)과 상온에 국한되어 있지만, 상온과 300°C에서의 물성 차이는 거의 없다[17]. 따라서 Takagawa가 제시한 SiC Hull 물성치(Compressive Strength 2,500 MPa, Young's Modulus 440 GPa)를 용기 설계에 반영하였다[12].

SiC 용기의 외압조건에서 내력(buckling pressure)은 적어도 57 MPa 이상이 되어야 한다. 세라믹 용기 두께에 따른 내력(P_k)은 Takagawa가 제시한 식(1)을 통해 구하였다.

$$P_k = \frac{E}{4(1-\nu^2)} \left(\frac{t}{r_c} \right)^3 \quad (1)$$

여기서, E : Modulus, ν : Poisson's ratio, t : thickness,

Table 2. Approximation of the weight of one deep borehole disposal canister

Parts	OD (mm)	ID (mm)	Volume (cm ³)	Density (g·cm ⁻³)	Weight (kg)
SNF assembly					640
SiC vessel	344	310	88,075	3.15	277
STS canister	406	378	-	-	*594
SiC powder			154,506	1.25	193
Accessories	406			7.8	**455
Total					2,159

*Referred from STS Industrial Production Standard (400A Sch.40)

**Mass of a Joint head on a disposal canister

그리고 r_c : 벽체 중심반지름이다. 식(1)의 계산결과, 약 13 mm 두께인 경우, 용기의 내력은 약 59.1 MPa로 계산되었으며, 안전율을 충분히 고려하여 용기의 두께를 20 mm($P_k \sim 201$ MPa)로 설정하였다.

이밖에도 원통형 SiC 구조에서 반지름 방향, 원주 방향, 및 축방향의 응력은 각각 57 MPa, 619 MPa, 및 338 MPa로서, SiC의 재료 압축 강도 2,500 MPa 보다 충분히 낮게 계산되었다.

SiC 기밀용기의 상하 평판의 두께는 금속 외압용기 설계에 일반적으로 적용되는 KS B 6734 규격에 제시된 식(2)를 적용하여 정하였다. SiC 재료의 허용 응력은 압축강도의 1/2 수준인 1,250 MPa로 설정하였다.

$$t_h = d \sqrt{\frac{CP}{\sigma_a \eta}} \quad (2)$$

여기서, d : 용기내경, C : 부착방법에 따른 정수(=0.33), P : 설계압력, σ_a : 허용 응력, 그리고 η : 용접 효율(=1)이다. 계산결과 상하평판의 두께는 38 mm로 계산되었으며, 설계 두께는 보수적으로 40 mm를 적용하였다.

3.4 스테인리스 금속용기의 설계

금속용기는 SiC 기밀용기를 보호하고, 수십 개의 처분용기를 연결하여 심부로 내려가는 용기 행렬을 구성할 수 있어야 하므로, 인장하중에 견딜 수 있도록 설계하는 것이 매우 중요하다. 사용후핵연료 집합체 1다발의 무게는 약 640 kg이다.

여기에 앞서 설계된 SiC 세라믹의 재료 밀도를 3.15 g·cm⁻³로 산정하면 그 하중은 약 277.4 kg으로 계산된다. 금속용기 재질인 스테인리스 강은 연성이 좋은 STS 316L을 적용하였다. 금속용기는 범용 양산 규격 400A, Sch.40 (OD 406.4 mm, t 12.7 mm)을 적용하였으며, 금속용기 내부 길이는 SiC 용기 길이를 고려하여 약 4,750 mm로 설정하였다. 금속용기는 SiC 용기에 대해 내부 clearance 16.9 mm, 상부 간극 50 mm를 지닌다. 실제 SiC 용기 내부에는 완충을 위하여 사용후핵연료 주변에는 완충 및 열전달 목적의 채움재가 들어간다. 채움재로는 SiC powder를 설정하였다. 이를 근거로 금속용기의 하중을 계산한 결과, 처분용기의 총무게는 2.16 ton으로 추산되었다(Table 2).

처분용기 10개(약 50 m 길이)를 직렬로 연결할 경우, 행렬 무게로 인한 상단의 인장력은 최대 약 211.6 kN이며, 외부 스테인리스 용기 벽(두께 12.7 mm)에 걸리는 인장력은 약 12.0 MPa로 추산된다. 그리고 처분용기가 40개(약 200 m 길이)가 되면, 그 외부 스테인리스 용기 벽에 걸리는 인장력은 약 48.1 MPa로 증가한다. 이는 재료 STS 316L의 항복강도(175 MPa) 및 인장강도(480 MPa)에 비해 충분히 낮은 값이므로 범용 스테인리스 강관 규격 400A, Sch.40 (OD 406.4, t 12.7)로 금속용기를 제작하는데 충분하였다.

앞장에서 심부 57 MPa 지하수압에 고려하여 설정된 용기의 치수를 근거로 SiC 기밀용기, 스테인리스 행렬 용기를 상세 설계하고, Fig. 1에 나타내었다. Fig. 1에 SiC 설계도와 사용후핵연료가 들어간 단면 모습을 표시하였으며, 스테인리스 금속용기와 SiC 내부 용기가 들어간 단면 모습을

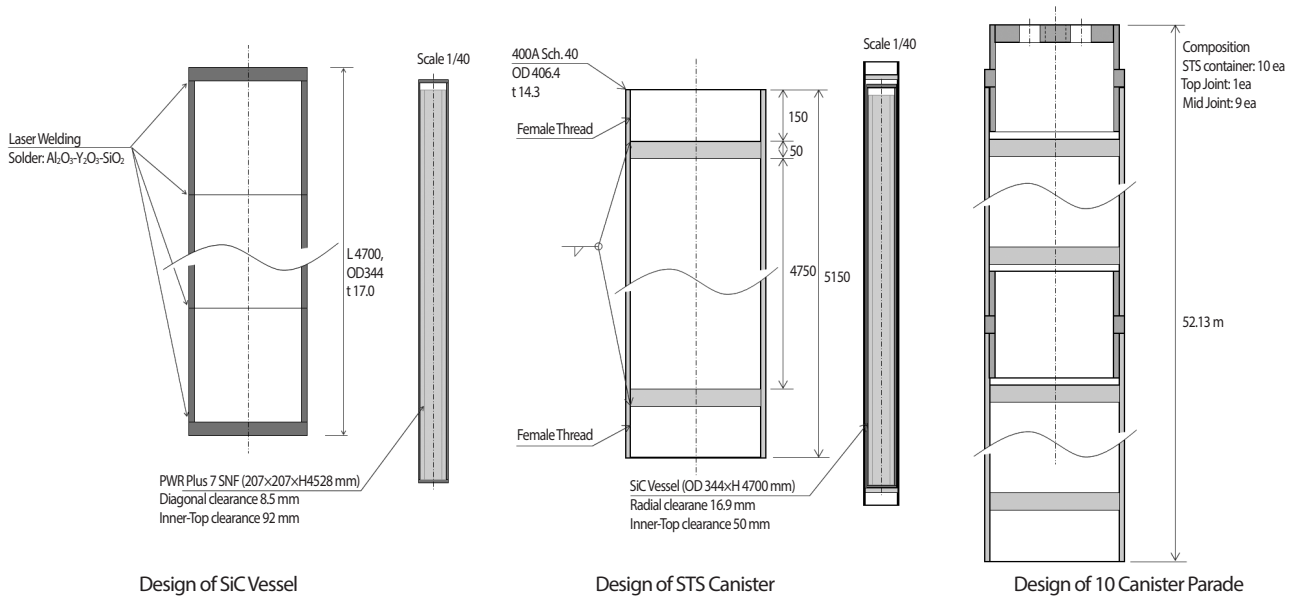


Fig. 1. Design of SiC inner vessel, STS outer canister, and the 10 canister parade.

표시하였다. 그리고 스테인리스 금속용기 10개를 연결한 단면 모습을 나타내었으며, 용기 사이에는 소켓 방식의 연결 조인트가 표시되어 있다.

4. 처분용기의 제작과 특성

4.1 SiC 용기 제작

SiC 용기의 제작 가능성을 살펴보기 위하여 국내 세라믹 업체인(주)맥테크에 의뢰하여 1/3 축소 규모 SiC 용기를 상압 소결법으로 제작하였다. 상압소결법은 SiC 분말과 바인더를 혼합, 압축성형, 및 고온소결하는 방법으로 형상을 얻는 공법이다. 상압소결법은 우수한 품질의 SiC 성형품을 얻을 수 있다는 장점이 있으나, 대형 제품 제작이 어렵고, 가공비가 비싸서 제작 단가가 높다는 단점이 있다. 한편 성형품을 소결하게 되면 바인더가 증발하면서 부피가 20% 가까이 줄어들게 되므로 최종 제품의 치수 조절에 세밀함이 필요하다. 열처리를 통해 소결된 SiC 용기는 2차로 원하는 직경과 두께로 정밀 가공을 하였으며, 마개도 함께 제작하였다. 제작된 SiC 용기의 크기는 OD 115×t 6.0×L 470 mm이었다(Fig. 2(a)).

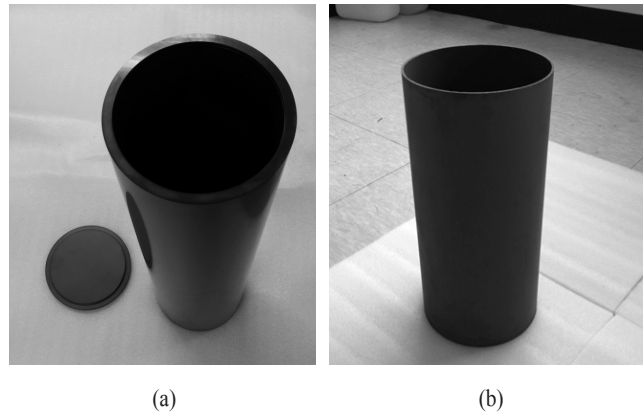


Fig. 2. SiC Canisters manufactured by (a) pressureless sintering and (b) a reaction sintering.

한편, (주)에코텍코리아에 의뢰하여 반응소결법으로도 외경 190 mm의 SiC 를 제작하였다. 반응소결법은 Carbon 혹은 Graphite를 molten Silicon과 직접 반응시켜 SiC 구조체를 얻는 공법이다. 반응소결법으로 얻어진 물질은 SiSiC로서 금속 silicon이 포함되어 있어, 열전도도가 높고 취성도 높은 특징이 있다. 반응 소결법(reaction sintering)으로 제작된 원통 모형의 SiC 기밀용기 크기는 OD 190×t 3.0×L 405 mm 내경 184 mm 이었다(Fig. 2(b)).

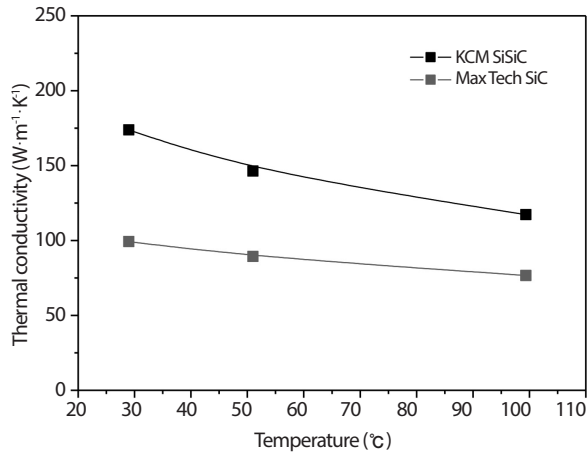


Fig. 3. Temperature dependence of thermal conductivity of SiC (MaxTech) and SiSiC (KCM).

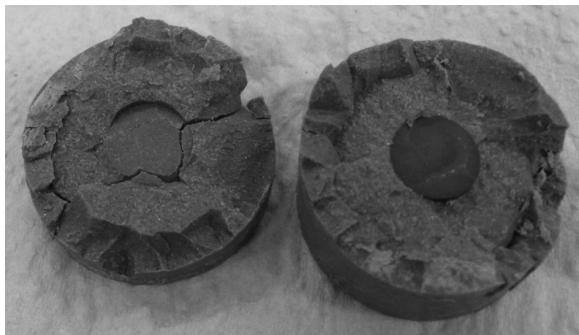


Fig. 4. Three year old SiC specimen embedded in a compact bentonite block.

국내 세라믹 중소기업들은 SiC 용기 제작기술을 충분히 확보하고 있었다. 하지만 실규모 제작을 하려면 소결로 규모가 커지게 되므로, 예상하지 못한 공정상의 어려움도 예상된다. SiC 용기의 치수를 정확히 맞추기 위해서는 후가공을 해야 하지만, SiC 재료 경도가 너무 높아서 가공이 어렵다. 따라서 가공비용이 올라가는 단점은 보완할 필요가 있다. 이상으로 향후 SiC 용기 제작기술을 확립하기 위해서는 아래와 같은 추가적인 실증 시험이 필요하다고 보았다.

- 채움재가 포함된 SiC 용기 열전도 측정
- SiC 마개와 SiC 용기 몸체의 접합 실증
- 내충격성이 보완된 SiC 구조체(다층 혹은 복합구조) 실증

4.2 SiC 용기의 성능분석

4.2.1 열전도도

(주)맥테크(MacTech)에서 상압소결로 제작한 SiC 용기에서 채취한 샘플과 한국셀마스터(KSM)에서 제공한 반응소결 방식의 SiSiC 샘플의 열전도도를 비교하였다. SiC의 열전도도는 극저온에서는 온도에 따라 증가하지만, -173℃(100 K) 이상에서는 감소한다[18]. 순수한 SiC 단결정의 경우 상온 열전도도는 400 W·m⁻¹·K⁻¹ 이상 높게 나오며, 무정형인 경우에는 소결방식과 불순물의 함유량에 따라 감소폭을 달리하지만, 일반적인 SiC 상온 열전도도는 100~200 W·m⁻¹·K⁻¹ 사이에서 결정된다[19]. SiC 열전도도는 열확산도(thermal diffusivity)를 측정하여 식(3)으로부터 계산하였다. 식(3)에서 κ 는 열전도도, ρ 는 재료 밀도, C_p 는 비열, 그리고 열확산도이다.

$$\kappa = \rho C_p D \tag{3}$$

시험에서는 30℃, 50℃, 그리고 100℃에서의 열확산도를 측정하였으며, 계산으로부터 얻어진 열전도도 비교 그래프를 Fig. 3에 제시하였다. 측정 결과, 반응소결 방식의 SiSiC가 상온소결방식의 SiC 보다 높은 열전도도를 보였다. 그리고 제작된 SiC 시험용기는 Table 1에 제시된 저탄소강의 열전도도 54 W·m⁻¹·K⁻¹[13]보다 높은 열전도도를 갖고 있음을 확인하고, 처분용기의 우수한 방열기능을 기대할 수 있었다.

4.2.2 장기안정성

SiC 용기의 심부처분조건에서의 장기안정성을 살펴보기 위하여 맥테크에서 제작한 SiC 용기에서 채취한 원형 시편(두께 1.0×직경 10 mm)을 처분공과 유사한 조건에서 3년간 장기안전성을 시험하였다. SiC 시편을 Ca형 경주 압축 벤토나이트(건조밀도 1.6 g·cm⁻³) 사이에 넣은 후, 이들을 부식셀에 넣고, 70℃ KURT 지하수에 약 3.2년간 KURT 항온챔버에서 유지하였다. 공급된 KURT 지하수의 pH는 약 8.3~8.5의 약알카리였으며, 용존산소량은 2.0~2.5 mg·L⁻¹로 많은 편이었다. 3년이 경과된 부식셀의 해체 모습을 Fig. 4에 나타내었다. 회수된 SiC 시편은 초음파로 깨끗이 표면을 세척한 후, 분해능 10⁻⁴ g 수준에서 무게 변화를 측정하고, 광학현미경으로 표면을 관찰하였다. 그 결과, SiC 시편 무게는

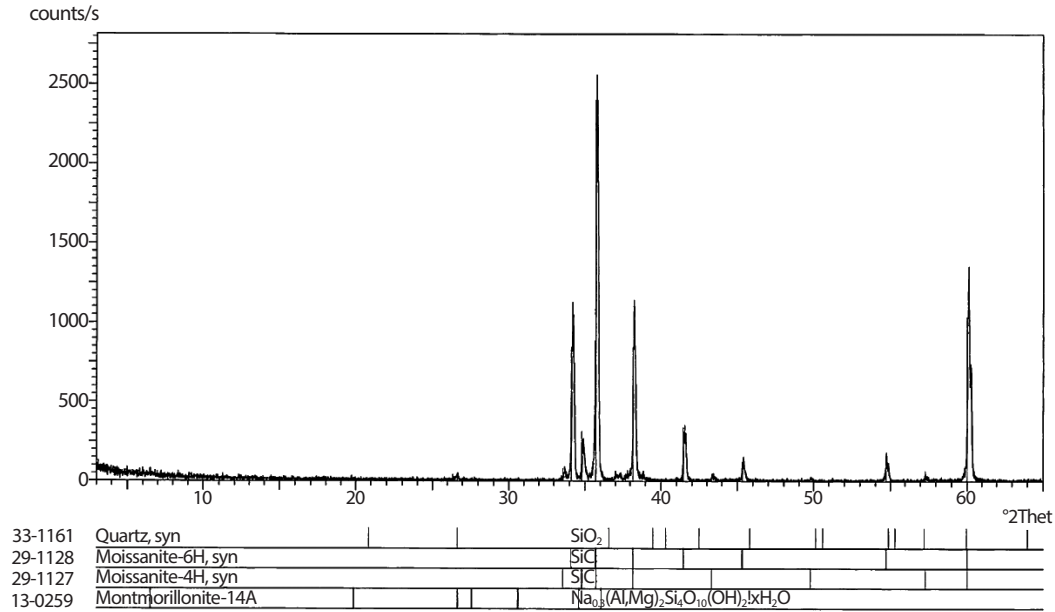


Fig. 5. XRD graph of the 3 year old SiC sample in 70°C KURT environment.

3년 동안 전혀 변하지 않았으며, 표면 상태도 깨끗하였다. 그리고 SiC 표면을 XRD로 분석을 한 결과, 표면에는 벤토나이트로부터 나온 montmorillonite와 Silica만 미량 검출되었을 뿐, SiC와 관련되는 새로운 생성물은 전혀 나타나지 않았다. 수분에 의해 Silicon carbide는 산화가 촉진될 수 있으나[20], 400°C 이상의 고온에서 산화가 시작된다는 선행 연구결과를 참조하면[21], 시험온도 70°C에서는 산화반응이 발생하기 힘들었다고 판단된다. 따라서 SiC 용기는 지하 처분 환경에서 사용하기에 문제가 없다고 보았다.

5. 결론

심부시추공 처분은 지하 5 km까지 내려가기 때문에, 높은 열과 외압 조건에서는 일반적으로 사용되는 탄소강 용기는 강성의 저하와 내부식성이 문제가 있었다. 이에 본 연구에서는 부식이 되지 않고, 열에 안정한 세라믹 소재의 SiC 심부시추공 처분용기를 제안하고자 하였다.

문헌 분석 결과, 세라믹 재료인 SiC는 기계적 건전성, 높은 열전도도, 그리고 화학적 안정성이 매우 높은 물질이었으나, 세라믹이 가지는 취성과 SiC와 SiC를 접합하는 방법이

문제가 되었다. 이들 문제점을 극복하는 방안으로 Fiber-reinforced SiC Composite 구조가 파악되었으며, SiC 용접방범으로는 레이저 용접이 효과적인 것으로 판단되었다.

본 연구에서는 PWR Plus 7 사용후핵연료 집합체를 가정하고, 높은 압력에도 견딜 수 있는 심부시추공 SiC 기밀 용기와 이를 심부로 정치하기 위한 스테인리스 행렬 용기를 설계해 보았다. 그리고 SiC 용기의 국내 제작 가능성과 특성을 평가하기 위해, 국내 세라믹 기업에 의뢰하여 소형 SiC 용기 제작을 시연하였다. 제작된 SiC 용기에서 채취한 샘플에서 측정된 열전도도는 탄소강 보다 높게 측정되었다. 그리고 KURT 70°C 고온 환경에서 3년간 SiC 샘플의 내구성 시험을 통하여, SiC는 KURT 지하 시험 환경에서 재료의 변화가 전혀 없음을 확인하였다.

이상으로 SiC 용기는 제작과 내구성 측면에서, 심부시추공 처분용기 재료로 사용하는데 문제가 없음을 확인하였다. 하지만 SiC 용기를 최종적으로 심부시추공 현장에 적용하기 위해서는 심부시추공과 유사한 고온 고압의 혹독한 환경에서 장기안정성 시험을 거친 후에 가능할 것으로 본다. 충분한 실험을 통해 SiC 용기의 안정성이 확보된다면, 장반감기 핵종이나 고준위 폐기물의 영구 밀봉을 위한 기밀 용기 재료로 사용될 수 있을 것이다.

감사의 글

본 연구는 과학기술정보통신부 지원에 의한 원자력기술개발사업 처분시스템 처분지질환경 진화모델 개발(NRF-2017 M2A8A5014836)의 일환으로 수행되었습니다.

REFERENCES

- [1] B. Kursten, E. Smailos, I. Azkarate, L. Werme, N.R. Smart, and G. Santarini, State-of-the-art document on the Corrosion Behaviour of Container Materials, European Commission 5th Euratom Framework Programmne 1998-2002 Final Report, Contract N° FIKW-CT-20014-20138 (2002).
- [2] Nuclear Industry Radioactive Waste Executive, A Review of the Deep Borehole Disposal Concept for Radioactive Waset, Nirex report no.N/108 (2004).
- [3] P.V. Brady, B.W. Arnold, and P.N. Swift, Deep Borehole Disposal of High-Level Radioactive Waste, Sandia Report, SAND2009-4401 (2009).
- [4] K.S. Kim, State-of-the Art Report on the Very Deep Borehole Disposal Concept for High-level Radioactive Waste, Korea Atomic Energy Research Institute Report, KAERI/AR-929/2012 (2012).
- [5] B. Arnold and P. Brady, Geological and Practical Aspects of Deep Borehole Disposal, Sandia Report, SAND2012-138 (2012).
- [6] J.Y. Lee, H.J. Choi, M.S. Lee, G.Y. Kim, and K.S. Kim, “Key Factors to Determine the Borehole Spacing in a Deep Borehole Disposal for HLW”, Proceedings of the Korean Nuclear Society 2015 Spring Meeting, 47(8), 1, Jeju (2015).
- [7] B W. Arnold, P.V. Brady, and S. Pye, Reference Design and Operations for Deep Borehole Disposal of High-Level Radioactive Waste, Sandia Report, SAND2011-6749 (2011).
- [8] G.N. Vigilante, A. Fish, G.P. O'Hara, D. Crayon, and T. Hickey, Elevated Temperature Properties of Steels, US ArmyArmamentResearch,DevelopmentandEngineering Center, Technical Report ARCCB-TR-96023 (1996).
- [9] J. Outinen and P. Makelainen, “Mechanical Properties of Structural Steel at Elevated Temperatures and After Cooling”, Second International Workshop « Structures in Fire » – Christchurch – March, 273-289 (2002).
- [10] C.I. Hoag, “Canister Design for Deep Borehole Disposal of Nuclear Waste”, A Thesis for the Degree of Master of Science in Nuclear Science and Engineering at the Massachusetts Institute of Technology, May (2006).
- [11] A. Kerber and J. Knorr, “SiC Encapsulation of High Level Waste for Long-term Immobilization”, ATW 58. Jg. Heft 1 January, 8-13 (2013).
- [12] Shinichi Takagawa, “Pressure test of a pressure vessel with glass dome and cylinder of other material”, Underwater Technology (UT) 2011 IEEE Symposium, Workshop on Scientific Use of Submarine Cables and Related Technologies (SSC), 1-5 (2011).
- [13] Matweb, “Overview of materials for Low carbon steel”, Material Property Data, Accessed Nov. 29 2017, Available from: www.matweb.com
- [14] W.J. Kim, D.J. Kim, and J.Y. Park, “Fabrication and Material Issues for the Application of SiC Composites to LWR Fuel Cladding”, Nuclear Engineering and Technology, 45(4), 565-572 (2013).
- [15] J. Knorr, W. Lippmann, A.M. Reinecke, R. Wolf, A. Kerber, and A. Wolter, “SiC Encapsulation of (V) HTR Components and Waste by Laser Beam Joining of Ceramics”, Nuclear Engineering and Design, 238, 3129–3135 (2008).
- [16] C.G. Herrick, Reference Design and Operations for Deep Borehole Disposal of High-Level Radioactive Waste, Sandia Report, SAND2011-6749 (2011).
- [17] A.L.McNaughton, “High Temperature Compression Testing of Monolithic Silicon Carbide (SiC)”, A Thesis for the Degree of Mater of Science in Mechanical Engineering in University of Maine, August (2007).
- [18] D. Morelli, J. Hermans, C. Beetz, W.S. Woo, G.L. Harris, and C. Taylor, in Silicon Carbide and Related

Materials Eds. Spencer, M.G., et al., Institute of Physics Conference Series N137, 313-316 (1993).

- [19] R.G. Munro, "Materials Properties of a Sintered α -SiC", J. Phys. Chem. Ref. Data, 26(5), 1195-1203 (1997).
- [20] J. Roy, S. Chandr, S. Das, and S. Maitra, "OXIDATION BEHAVIOUR OF SILICON CARBIDE -A REVIEW", Rev.Adv.Mater.Sci., 38, 29-39 (2014).
- [21] H.K. Tran and P.M. Sawko, "Thermal Degradation Study of Silicon Carbide Threads Developed for Advanced Flexible Thermal Protection Systems", NASA Technical Memorandum 103952; Accessed Oct. 29 2017. Available in <https://ntrs.nasa.gov/search.jsp?R=19920023232> 2018-03-26 (2018).