

SFR 금속핵연료심 주조 반응층 분석

류호진, 오석진, 이종탁, 김선기, 고영모, 우윤명, 이찬복

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

hjryu@kaeri.re.kr

1. 서론

소듐냉각 고속로(Sodium-cooled Fast Reactor, SFR)용으로 개발 중인 금속핵연료는 U-Pu-Zr 삼원계 합금을 기본 조성으로 하여 장수명 핵종인 Am, Np 등 마이너악티나이드를 함유하고 있다. 기존 금속 핵연료 제조 방법은 원료 금속을 유도용해로에서 흑연 도가니 속에서 용해한 후 석영관 몰드를 이용하여 감압 사출 주조를 하는 것으로 알려져 있다. 우라늄 합금은 반응성이 매우 높기 때문에 흑연 및 알루미나 도가니를 사용할 경우 상호 반응을 일으키게 된다. 용해 주조 시 용탕과 도가니 또는 몰드가 상호반응하게 되면 용탕의 조성이 변화되며, 도가니 및 몰드의 침식이 일어나고, 장수명 핵종으로 오염된 폐기물이 양산되는 단점이 있다. 따라서 반응을 억제할 수 있는 내화 코팅이 필요하며 우라늄 합금의 주조에는 열역학적으로 안정한 이트리아(Y_2O_3) 또는 지르코니아(ZrO_2) 코팅을 이형제로서 사용하고 있다. 미국 EBR-II 용 금속핵연료의 제조 시에는 도가니에는 이트리아 코팅을 하고 석영관 몰드에는 지르코니아 코팅을 하여 용탕과 도가니 및 몰드와의 반응을 억제하였다. 그러나 주조된 금속핵연료심이나 몰드 및 도가니의 반응층에 대한 분석은 상세하게 보고된 자료가 없는 실정이다. 따라서 국내에서 금속핵연료심을 용해 주조할 경우 이형제의 사용 여부와 종류에 따른 자료 확보가 필요하다. 본 연구에서는 제조된 U-Zr 및 U-Zr-Ce 금속 핵연료심의 미세조직 분석을 통해 SFR 금속핵연료심의 주조 시에 이형제의 사용 여부와 종류에 따라 형성되는 반응층을 분석하고자 하였다.

2. 실험방법

본 연구에서 분석한 금속핵연료심은 진공 사출 주조와 감압 중력 주조 두 가지 방법으로 제조되었다. 진공 사출 주조는 진공 분위기에서 석영관 다발의 개구부를 용탕에 침적한 후 불활성 분위기의 기체를 용탕 외부에 가하여 석영관 내부로 금속 핵연료 용탕이 사출되도록 제조하는 방법이며, 몰드 내부에는 이형제를 사용하지 않고 U-10wt%Zr 및 U-10wt%Zr-(2,4,6)wt%Ce 금속 핵연료심을 제조하였다. 진공 중력 주조는 불활성 분위기에서 용탕을 형성시킨 후 도가니 하부에 장착된 석영관 몰드를 진공 펌프로 감압하고 출탕하여 용탕이 중력과 압력 차이에 의해 석영관 몰드에 채워지도록 제조하는 방법이며, 몰드 내부에는 HOLCOTE-110 이형제를 사용하여 그림 1과 같이 약 6-10 mm 직경의 U-10wt%Zr 및 U-10wt%Zr-(2,4,6)wt%Ce 금속핵연료심을 제조하였다. HOLCOTE-110은 zircon ($ZrSiO_4$) 기반의 상용 이형제이다. 주조된 U-Zr 및 U-Zr-Ce 연료심의 미세조직은 주사전자현미경(SEM)을 이용하여 관찰하였으며 표면 반응층은 EDS (Energy Dispersive X-ray Spectroscopy)를 이용하여 구성 성분을 확인하였다.

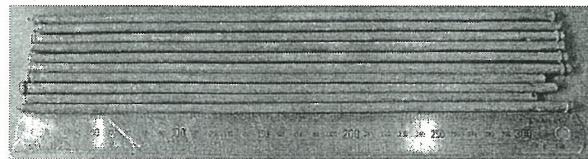


그림 1. 감압 중력 주조를 이용하여 제조된 U-10wt%Zr 금속핵연료심 (직경 6mm)

3. 결과 및 분석

그림 2는 진공 사출 주조로 제조된 U-Zr-Ce 금속핵연료심의 단면을 보여주는 사진이다. HOLCOTE-110 이형제를 사용하지 않았기 때문에 반응층이 표면에 형성된 것을 확인할 수 있다. 특히

그림 2와 같이 Ce이 4wt% 함유된 시편의 경우 외부에는 약 50 μm 정도의 Si과 Zr, Ce, U이 함께 반응한 산화물이 형성되고, 중간층 또는 반응층 내부에는 주로 Si과 Zr이 반응한 화합물이 형성되며 표면 반응 층 가까이 약 50 μm 정도의 층은 Ce이 Zr과 반응한 부위와 Ce이 존재하지 않는 U-Zr 부위가 교대로 형성되는 것을 알 수 있었다. 따라서 이형체를 사용하지 않을 경우 용탕과 석영관과의 반응이 일어나게 되는 것을 알 수 있었고 희토류 원소들이 존재할 경우 석영관과의 반응이 더욱 심하게 일어남을 알 수 있었다.

그림 3은 감압 중력 주조에 의해 제조된 U-10wt%Zr 금속핵연료심의 미세조직에 대하여 EDS 분석을 수행한 결과를 나타낸다. 금속핵연료심의 표면을 비교해보면 HOLCOTE-110 이형체를 사용한 결과 반응층의 두께가 10 μm 로 감소했음을 알 수 있었으며 반응층은 대부분 Zr으로 구성되어 있는 것을 확인할 수 있었다. 이는 용탕 내에 존재하는 Zr-rich 석출물들이 표면에서 연결되어 형성된 것으로 판단된다. Si은 반응층 표면에서 검출되지 않았으나 금속핵연료심 내부에 존재하는 긴 리본 형태의 석출물에서 Si의 존재를 확인할 수 있었다. Si이 포함된 상이 금속 핵연료 내부에 석출된 원인은 도가니 내에 코팅한 이형체와 용탕의 반응에 의한 것으로 판단된다.

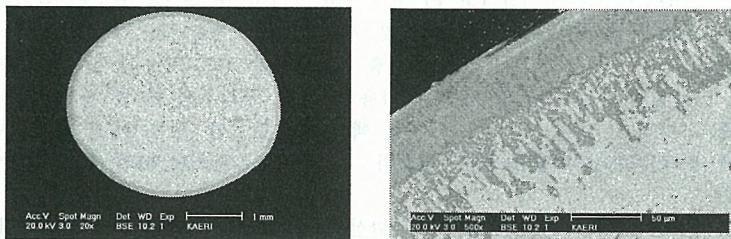


그림 2. Quartz tube를 사용하여 injection casting된 U-Zr-Ce 봉의 단면 SEM 사진

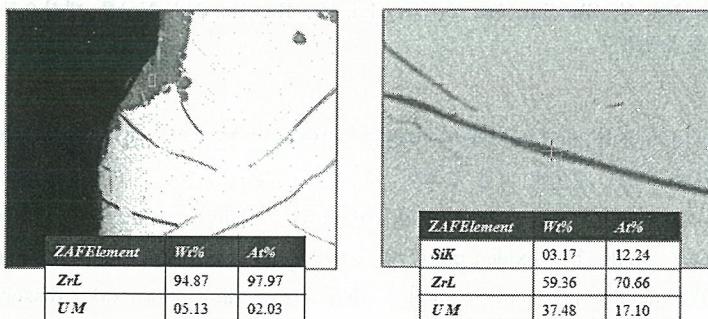


그림 3. 감압중력주조에 의해 제조된 U-Zr 봉의 EDS 분석 (HOLCOTE-110 사용)

4. 향후 연구방향

금속핵연료의 주조 시 이형체의 유무에 따라 연료심 표면 반응층의 형성 거동을 확인할 수 있었다. 향후에는 이트리아 또는 지르코니아 이형체를 사용하여 표면 반응층 및 내부 Si 함유 석출상의 거동을 확인할 필요가 있다. 또한 주조 후 도가니 및 몰드에 잔류하는 이형체의 성분 분석을 통하여 우라늄 성분의 함량을 평가할 계획이다.