

## 고주파 유도용해 U-Zr-Mn의 망간 휘발성 고찰

오석진, 장세정, 김기환, 이종탁, 이찬복  
 한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045  
 sioh@kaeri.re.kr

## 1. 서론

휘발성 원소를 함유한 SFR 합금 연료제조는 휘발원소 방지기술이 오래 전부터 부각되고 있다. 기존 연료심 제조에서는 휘발물질 원소를 목표조성보다 초과하여 휘발물질을 맞추어 진공 용해주조를 실시하였었다. 하지만 휘발성 물질을 함유한 방사성 물질의 확대 오염 및 폐기물 발생 증가에 따라 진공상태에서 금속 연료심 합금 제조에는 적합하지 않다. SFR 핵연료 및 사용 후 핵연료 TRU의 재활용 측면에서 연료심 합금 제조 시 Am의 증기압이 높기 때문에 상당한 양이 휘발되어 오염시키므로 Am 휘발성이 큰 문제를 일으킨다. 본 연구에서는 TRU 내 존재하는 Am 휘발거동에 대한 기초연구로써, Am과 유사한 휘발거동을 갖는 Mn을 대체물질로 선정하였다. 연료심 용해주조는 고주파유도용해로(Vacuum Induction Melting)를 이용하여 휘발 방지를 하고자 불활성 분위기에서 온도와 압력조건을 달리하여 용해하였다. 기존 진공에서 실시한 결과와 비교하기 위하여 화학분석으로 Mn 휘발 양을 측정하고 미세조직 및 결정구조를 관찰하였다.

## 2. 본론

## 2.1 실험방법

휘발방지 대체물질 원소로 선정된 Mn을 첨가하여 U-10Zr-2Mn 합금 목표조성으로 제조하였다. 용해 순수금속 장입 순서는 도가니 하단부에 Zr, 중앙에 Mn, 상부에 U Lump 순으로 장입을 시행하였다. 가열 및 승온 속도는 용융 전 1000°C까지  $1.0 \times 10^{-3}$  torr 진공상태로 30°C/min 실시하고, 이후 Ar 분위기 0.8기압, 1.0기압에서 각각 15°C/min로 1500°C까지 용해하여 하부 증력주조 방식에 의한 주형에 출탕하였다. 그림 1은 진공유도용해장치 사진이다. 제조한 금속 연료심은  $\varnothing 10 \times L300$ mm로 각각 상, 중, 하 부위별 Button 형태의 시편을 채취하여 조성분석, 밀도측정을 실시하였다. 결정구조 X선 회절장치(XRD; X-ray Diffraction)로

4°/min,  $20 \leq 2\theta \leq 120$  측정하고, SEM(Scanning Electron Microscope)과 EDS(Energy Dispersive Spectroscopy)를 이용하여 미세구조를 관찰하였다.

## 2.2 고찰 및 결과

Mn은 1200°C~1500°C 구간에서는 Am과 유사한 증기압을 나타내는 것으로 알려져 있다. 그러므로 용해주조 연료심 제조에서 Am 휘발량을 비교하기 위하여 대체물질로 2wt.%Mn을 첨가하였다. C.L.Trybus 논문에 의한 U-Zr-Mn 3원계 합금 사출주조법에 의한 연료심 제조 휘발원소 대체물질 Mn의 첨가로 Pu와 Minor Actinide를 함유한 연료심의 증기압은 대략 일치하는 것으로 보고되었다. Minor Actinide 연료 전체 증기압은 U-20Pu-10Zr-2.1Am-1.3Np 합금 연료 1500°C에서 ~43Pa(0.3torr)로 알려져 있는데 이는 U와 Zr의 증기압이 1500°C에서 Pu보다 3~4.5배 낮으므로 근본적으로 minor actinide 함유 연료 전체 증기압에는 영향이 없는 것으로 알려져 있다. 본 실험에서 사용한 연료심은 고찰에서 언급하였듯이 휘발 증기압을 고려하여 0.8 기압 Ar 분위기에서 진공유도용해를 실시하여 화학분석한 결과는 약 10%의 휘발량을 보였으며 1.0기압(대기압; 760 torr)에서는 휘발 손실량이 없었다. 미국 및 일본 등 해외에서는 Mn 휘발손실을 40%까지 된다는 보고가 있었지만 이는 진공중에서 실시한 손실률이다. 그러나, 본 실험 결과로 보면 TRU-Zr 합금 연료 제조시 Am 휘발방지 대책으로 용해주조시 압력을 760 torr(대기압) 이상 유지한다면 즉, 온도와 압력 조건을 달리하면 휘발량은 줄일 수 있을 것으로 보여진다. 또한, 진공유도용해 연료심의 길이가 300mm이었지만 상중하 위치별 커다란 조성 차이가 없는 것으로 보아 건전한 연료심이 제조 되었음을 알 수 있었다. 그림 2는 1.0기압(대기압)조건, 그림 3은 0.8기압조건에서 제조한 U-10Zr-2Mn 합금 연료심 미세조직관찰 분석결과 사진이다. 그림 2에서 흰색 부위의  $\alpha$ -U 기지 내에 검은색 부위의  $Mn_2Zr$  상 및 회색 부위의 UZrMn 화합물로 형성된 것을 확인하였다. 시편

위별 밀도 측정과 XRD 측정결과도 커다란 차이가 나지 않는 건전한 연료심을 제조하였다. 압력 차이에 따른 미세조직 차이점이 존재하는 것으로 보아 향후 실험은 용해 가열온도, 가열유지 시간, 압력을 변화시켜 휘발원소 휘발량과 미세조직 거동 및 상변화를 관찰하고자 한다.

### 3. 결론

0.8기압(약 600torr) Ar 분위기에서 제조한 연료심은 Mn의 높은 증기압으로 인해 화학분석결과 약 10%정도 휘발량이 발생되었음을 알 수 있었다. 이러한 결과로 보아 핵연료 제조공정상 용해 주조시 압력을 높여야 되며 휘발증기압 곡선에 따라 가열온도는 낮출수록 휘발거동이 건전한 금속연료심 제조를 수행할 수 있을 것으로 판단된다.

### 4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 중장기 연구과제의 일환으로 작성되었으며 연구지원에 감사드립니다.

### 5. 참고문헌

- [1] C. L. Trybus, J. E. Sanki, S. P. Henslee, Journal of Nuclear Materials, Vol.204, pp.50-55, 1993.
- [2] F. H. Ellinger, K. A. Johnson, V. O. Struebing Journal of Nuclear Materials, Vol.20, pp.83-86, 1966.

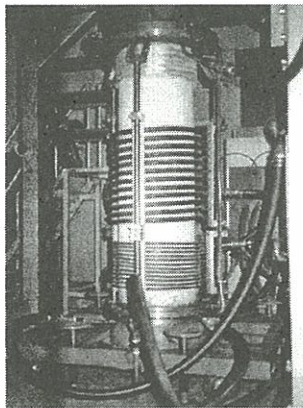


Fig. 1. Vacuum Induction Melting System

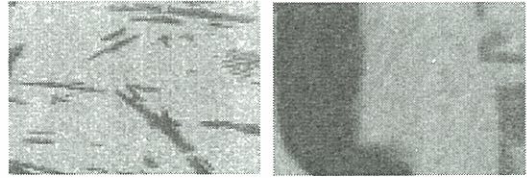


Fig. 2. Microstructure of U-10Zr-2Mn(1.0atm;760torr)

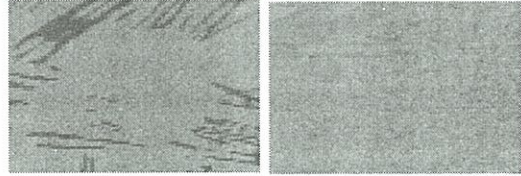


Fig. 3. Microstructure of U-10Zr-2Mn(0.8atm;600torr)