

SFR 금속연료심 재사용 용해도가니 개발 현황

김기환^{1*}, 송훈¹, 홍기원², 우윤명¹, 박정용¹, 이찬복¹

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 99

*khkim2@kaeri.re.kr

1. 서론

그 동안 소듐냉각고속로(SFR) U-Zr 합금계 금속연료심은, 합금용탕 및 용해구조부품간 상호반응을 방지하기 위해, Y₂O₃ 슬러리 도포(slurry coating) 흑연도가니에서 용해되고, ZrO₂ 슬러리 도포 석영관 주형을 사용하여 구조되었다 [1]. 반응성 및 다공성을 가지는 슬러리 도포재는 각각 용탕 오염 및 연료 손실의 근원지가 될 수 있다. 핫셀에서의 노동집약적인 재도포의 방사성 폐기물 흐름 및 연료 손실을 감소시키기 위해, 금속연료 구조작업에 있어서 영구적인 비반응성 코팅을 실시한 재사용 도가니를 사용하는 것이 필요하다. 본 연구에서는 금속연료심 사출구조에서 합금용탕 및 용해부품간 상호반응을 방지하여 재사용 가능한 도가니 코팅기술을 개발하고자 하였다. 이를 위해, 금속연료 용탕 반응저항성 코팅재료를 선정하고, 도가니 기지재료 및 반응저항성 코팅재료간의 결합성 개선을 위한 접합코팅 재료 및 방법을 조사하고, 실제 금속연료심 제조에서 재사용 타당성을 평가하고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험방법 및 절차

고온에서 반응성을 연구한 참고문헌을 조사하여 [2], HfC, TaC, TiC 및 ZrC의 탄화물계 재료 4 종류와 Y₂O₃ 및 ZrO₂ 산화물계 재료 2종류를 플라즈마 코팅 재료로 선정하였다. 흑연과 Nb는 내열성이 있고 열팽창계수가 코팅재료와 유사한 유망한 도가니 기지재료이기 때문에, 플라즈마 코팅에 사용된 도가니 기지재료로서 선정하였다. U-Zr 합금계 용탕과의 반응시험은 직경 10 mm 봉을 사용하였고, 반복 가열과 냉각을 통한 열사이클링 시험은 직경 10~20 mm 디스크를 사용하였다. 도가니 기지재료에 고온 치밀질 코팅층을 형성하기 위해, 플라즈마 스프레이(plasma-spray, PS) 및 화학적 기상반응(chemical vapor reaction, CVR) 코팅법으로 코팅하였다. 도가니 기지재료 및 반응저항 코팅층 간의

결합성을 개선하기 위한 접합코팅 (bond coating)을 수행하고, 그 위에 도가니 기지재료에 금속연료 용탕의 반응을 방지하기 위해 반응저항 코팅 (protective coating)을 실시하였다. 세라믹 코팅층의 열응력 저항성을 통한 재사용 타당성을 조사하기 위해, 진공로에서 1450~ 1600°C까지 열사이클링 시험을 수행하였다. 금속연료 용탕과 코팅층 간의 반응 저항성을 조사하기 위해, 진공유도용해로에서 온도 1600°C인 U-Zr 합금계 용탕에 진공 또는 Ar 분위기하에서 침적시킨 후 인출하였다. 열사이클링 코팅층의 열응력 저항성 및 용탕 침적 반응 저항성을 확인하기 위해, SEM 및 EDS를 사용하여 분석하였다. 실제 연료심 제조에서 치밀질 코팅을 단층 또는 다층으로 실시한 흑연도가니를 사용하여 사출구조방법으로 금속연료심을 제조하여, 그 특성을 평가하였다.

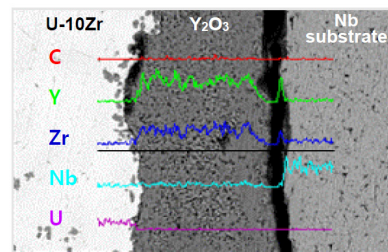


Fig. 1. Typical BSE images and EDS analyses of the plasma-spray coating layer after melt dipping test.

2.2 용탕반응 저항성 코팅재료

참고문헌 조사를 통해서 U-Zr 합금용탕과 반응저항성이 우수한 고온세라믹 코팅재 후보재료로서 TiC, Y₂O₃, ZrO₂, ZrC, TaC, HfC 등을 선정하였다 [2]. 흑연 및 Nb 도가니 기지재료에 치밀질 코팅층을 형성할 수 있는 플라즈마 스프레이(plasma-spray, PS) 코팅법으로 치밀질 코팅을 수행하여 열사이클링시험(TCT, thermal cycling test) 및 용탕침적시험(MDT, melt dipping test)을 수행하여, 그 결과를 평가하여 금속연료 용탕반응 저항 유망코팅재료로서 Y₂O₃, TiC 및 TaC를 선정하였다 (Fig. 1). 그

러나 Y_2O_3 , TiC 및 TaC 코팅재료는, 반응저항성 코팅층과 도가니 지지재료 간의 접합성 부족과 열팽창 불일치에 기인하여, 대체로 용탕반응 후에 지지재료와 코팅층 간의 분리 또는 균열이 발생하였다.

Table 1. Typical melt dipping test results of the plasma-spray coating specimens including bond coating layer

No.	Coating sequence (Thickness, μm)	Fuel melt (Dipping No.)	Reaction or separation of coating layer
1	Nb/ Y_2O_3 (150)	U-Zr (3)	Sound state
		U-Zr-RE (1)	Partial reaction
		U-Zr-RE (2)	Partial reaction
2	Nb/TaC(50)/ Y_2O_3 (100)	U-Zr (3)	Sound state
		U-Zr-RE (1)	Sound state
		U-Zr-RE (2)	Partial reaction
3	Nb/ Y_2O_3 (50)/TaC(100)	U-Zr (3)	Sound, but crack between substrate and Y_2O_3 bond
		U-Zr-RE (1)	Sound, but separation between Y_2O_3 and TaC bond
		U-Zr-RE (2)	Crack penetration
4	Nb/ Y_2O_3 (50)/TiC(100)	U-Zr (3)	Sound, but crack between substrate and Y_2O_3 bond
		U-Zr-RE (1)	Sound, but crack between Y_2O_3 and TaC bond
		U-Zr-RE (2)	Crack penetration
5	Nb/ Y_2O_3 (100)/TaC(100)/ Y_2O_3 (100)	U-Zr (3)	Sound, but separation between Y_2O_3 and TaC bond
		U-Zr-RE (1)	Sound, but separation between Y_2O_3 and TaC bond
		U-Zr-RE (2)	Separation between substrate and Y_2O_3 bond
6	Nb/ Y_2O_3 (100)/TiC(100)/ Y_2O_3 (100)	U-Zr (3)	Sound state
		U-Zr-RE (1)	Sound, but separation between TiC and Y_2O_3 bond
		U-Zr-RE (2)	Crack penetration

2.3 접합코팅 재료 및 방법

도가니 지지재료 및 반응저항 코팅층 간의 결합성 및 열팽창계수 차이를 극복하기 위해 접합코팅 (bond coating)을 수행하여 용탕침적 반응시험을 수행한 결과, Table 1과 같은 결과를 얻었다. 모든 단층 또는 다층 플라즈마 코팅시편은 U-10wt.%Zr 용탕 침적시험후에 건전한 상태를 유지할 수 있었다. 단층 Y_2O_3 (150 μm) 및 다층 TaC(50 μm) - Y_2O_3 (100 μm) 코팅 시편은, U-10wt.%Zr-5wt.%RE 용탕 침적시험 후에, 반응저항성 코팅층에 용탕 반응 또는 침투가 거의 없는 건전한 상태를 나타내 보여주었다. 그러나 다른 플라즈마 코팅시편은 U-

10wt.%Zr-RE 용탕 반응시험 후에, 코팅층의 균열 및 코팅계면의 분리에 의한 금속연료 용탕의 침투가 발생하였다.

2.4 실제 코팅 흑연도가니의 사출주조 반응시험

흑연도가니에 단층 Y_2O_3 (150 μm) 및 이중층 TaC(50 μm)- Y_2O_3 (100 μm) 플라즈마 코팅을 수행하여, U-10wt.%Zr and U-10wt.%Zr-5wt.%RE 연료심 사출주조시험을 수행한 결과, Fig. 2와 같이 흑연도가니와 금속연료 용탕과의 반응은 거의 없었으며, 재사용도 가능하였다.

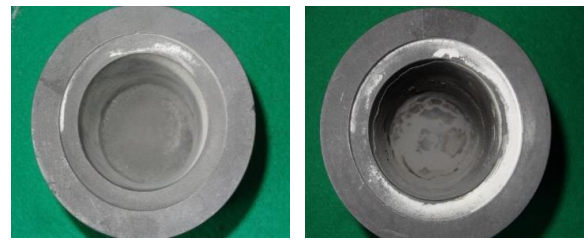


Fig. 2. Used graphite crucibles coated with (a) Y_2O_3 and (b) TaC- Y_2O_3 after injection casting of U-10 wt.%Zr-5wt.%RE fuel slug.

3. 결론

Y_2O_3 슬러리 도포방법에 의해 코팅되어 사용되는 SFR 금속연료심 사출주조 도가니는 금속연료와의 용탕 반응성으로 인해 재사용이 거의 불가능하며, 용탕 오염 및 연료 손실의 근원지가 되고 있다. 이에 따라, 재사용 가능한 용해도가니 기술을 개발하고자 용탕반응 저항성 유망 코팅재료를 선정하고, 도가니 지지재료 및 반응저항성 코팅재료간의 접합 코팅 재료 및 방법을 평가하여, 실제 금속연료심 제조에서 용해도가니 재사용 타당성을 검증하였다.

4. 참고문헌

- [1] H.F. Jelinek and G.M. Iverson, "Equipment for Remote Injection Casting of EBR-II Fuel," Nuclear Science and Engineering, 12(3), 405-411, 1962.
- [2] S. M. McDeavitt, G. W. Billings, J. E. Indacochea, and J. E. Indacochea, Proc. from Joining of Advanced and Specialty Material ASM International Materials 2001, Indianapolis, USA (2001).