

Zr-Cr계 금속폐기물고화체 합금의 제조조건에 따른 미세조직 및 건전성 평가

장선아*, 한승엽, 김나영, 한아름, 이태교, 박환서
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*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 고정화할 수 있다. 따라서 금속고화체 제조를 통한 폐기물 처리는 피복관을 재처리 없이 방사성물질 고정체로 활용하는 base 합금으로 바로 적용하는 개념으로써 부피감용 효과 및 경제성에 큰 장점을 갖는다.

본 연구에서는 높은 안정성을 갖는 고화체 합금화 처리를 위해 Zr과 Cr의 합금 조성을 조절하여 금속폐기물고화체를 제조하였고, 전체 조성에서 비교적 안정한 고화체를 확보했다. 파면 분석 결과, 시편 내부에 다양한 크기의 균열들이 존재하였고, 열처리를 실시하여 미세조직 및 균열 형태 변화 거동을 분석하여 열처리 전, 후 Zr-Cr계 금속폐기물고화체의 미세조직에 미치는 열처리 영향을 자세하게 고찰하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

Silica 도가니에 99.9% 순도의 Zr 및 Cr 시료를 장입하여 진공유도용해로에 장착한 뒤, Ar 분위기 하에서 유도용해를 실시했다. 이때 열처리 온도 범위는 약 1400-1800°C이며, 충분히 용해된 용융물을 구리 몰드에 부어 급랭하여 시편 무게 100 g 기준으로 약 3φ x 3 cm 크기의 금속고화체를 제조하였다. 이와 같은 방법으로 Cr 함량을 조절하여 다양한 종류의 Zr-Cr계 합금을 제조하였다. 이 중 Zr-27Cr 시편에 대해서 용융 시간 및 냉각 조건을 조절한 공정을 적용하였다. 제조된 시편의 외관 평가를 통해 건전성을 검사하고, SEM을 통해 미세조직을 관찰하였다.

2.2 실험결과 및 고찰

기존 시편 제조 시 높은 냉각 속도로 인해 시편 균열 및 중심부 기공 등의 문제가 많이 발생하였다.(Fig. 1) Zr-Cr계의 이원계 합금에 대해 용융 온도와 시간 및 냉각 속도를 Table 1 조건에 따라 수행하였다. 각 조건에 따라 QC, AC, FC1, FC2 로 시편을 분류하였으며, QC에서 FC2 순서로 적은 용융 시간 및 느린 냉각속도를 갖는다. 특히 FC1과 FC2 조건은 응고 시작 온도인 1350°C에서 약 5-10분 정도 온도를 유지하여 도가니 내 온도 구배 발생을 억제하였다.

시편 내 균열 및 중심 기공은 대부분 도가니 내 온도 구배에 따른 차별적 응고 거동으로 인해 발생하며, 표면부 응고가 선행적으로 발생하면서 중심부에는 부피 수축에 따라 잔류 기공 및 불순물들이 집중된다. 급랭 시편인 QC 시편에서는 높은 비율의 기공 및 균열이 함께 발생하여 시편이 파단되었으며, AC 시편에서는 외부 균열은 없었으나, 내부에 균열 및 기공이 많이 존재하였다. FC1 조건에서는 내, 외부 균열은 소멸되었으나 여전히 일부 기공들이 내부에 존재함을 알 수 있다. FC2 조건에서는 대부분의 균열 및 기공이 소멸되었으며, 일

부 기공들은 중심부가 아닌 시편 표면 부분에 집중되어 존재하는 것을 확인하였다.

시편 내부 미세조직 관찰 결과, 냉각속도 증가에 따라 시편 내부 미세조직 단위들이 점점 증가하는 경향을 나타냈다. 특히 공정 조직(eutectic structure)의 크기 및 분율이 점점 증가하는 것을 관찰할 수 있고, 이는 공정온도 아래에서 온도 유지가 잘 이루어 졌음을 나타낸다.

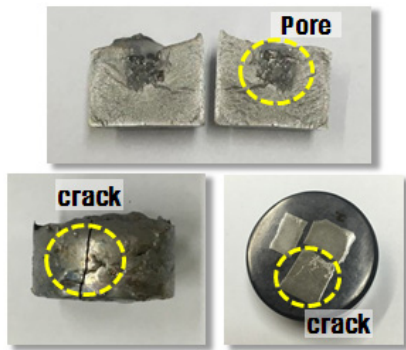


Fig. 1. Morphology of metallic waste form controlled by binary alloy element compositions.

Table 1. Conditions of controlled melting and cooling process

전력량(kW)	2.0	2.5	2.0	1.5	1.0	0.5
기존	20	5	0	0	0	0
시간 (min)						
1차	20	5	5	5	5	5
2차	20	5	10	10	5	5



Fig. 2. Changing distribution of crack and center pore as process conditions.

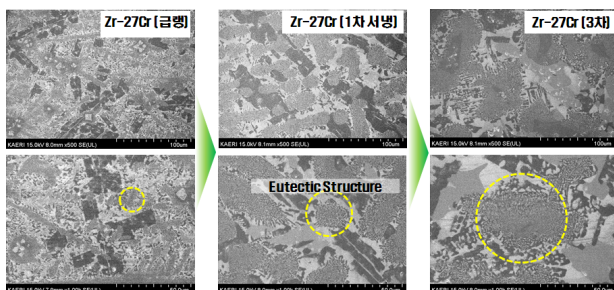


Fig. 3. SEM images of microstructure for Zr-27Cr has different process conditions.

3. 결론

본 연구에서는 파이로 공정에서 발생하는 폐 피복관 부피감용을 위한 금속폐기물고화체 합금의 고화 성능을 테스트하기 위해 유도용융법을 통해 금속고화체 합금을 제조하였다. Zr-Cr 이원계 합금을 기준으로 FC2 제조 조건에서 안정적인 고화체를 제조할 수 있었다. FC2 제조 조건에서 시편은 도가니 내 온도구배가 억제되어 시편 전체적으로 균일한 응고가 발생하였고, 건전성 및 미세조직의 균질도가 향상되었다.

4. 참고문헌

- [1] 강권호, 이창화, 전민구, 이유리, 최용택, 박근일, "폐 피복관 처리기술", KAERI/TR-5288/2013 (2014).
- [2] D. P. Abraham, S. M. McDevitt, and J. Y. Park, "Microstructure and Phase Identification in Type 304 Stainless Steel-Zirconium Alloys", Metallurgical and Materials Transactions A, 27A, 2151-2159 (1996).