

SS-Zr계 금속폐기물고화체 합금의 미세조직 및 특성에 미치는 열처리 영향 연구

장선아^{1*}, 한승엽¹, 김나영¹, 한아름¹, 이태교¹, 조인학¹, 박환서¹, 김종우², 신상용²

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²울산대학교, 울산광역시 남구 대학로 93

*sajang@kaeri.re.kr

1. 서론

폐 피복관은 사용후핵연료의 재활용을 위해 핵연료 붕을 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 붕의 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 고정화 할 수 있다. 따라서 금속고화체 제조를 통한 폐기물 처리는 피복관을 재처리 없이 방사성물질 고정재료로 활용하는 base 합금으로 바로 적용하는 개념으로써 부피감용 효과 및 경제성에 큰 장점을 갖는다.

본 연구에서는 높은 안정성을 갖는 고화체 합금화 처리를 위해 SS304와 Zr의 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 SS-Zr계 금속폐기물고화체의 미세조직에 미치는 열처리 영향을 자세히 고찰하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

Silica 도가니에 99.9% 순도의 SS 및 Zr 시료를 장입하여 진공유도용해로에 장착한 뒤, Ar 분위기 하에서 유도용해를 실시했다. 이때 열처리 온도 범위는 약 1400~1800°C 이며, 충분히 용해된 용융물을 구리 몰드에 부어 급랭하여 시편 무게 100 g 기준으로 약 3φ x 3 cm 크기의 금속고화체를 제조하였다. 이와 같은 방법으로 Zr 함량을 11~19 wt%로 조절하여 5종류의 SS-Zr계 합금을 제조하였다. 이 중에서 SS-11Zr, SS-15Zr, SS-19Zr 시편에 대해서 1200°C에서 1 시간 동안 열처리 공정을 적용하였다. 제조된 시편에 대해 인장 및 경도시험을 실시하였고, SEM을 통해 미세조직을 관찰하였다.

2.2 실험결과 및 고찰

SS-Zr계의 이원계 합금에 대해 Zr 함량을 조절하여 Fig. 1의 5종류의 금속고화체 시편을 제조하였다. 각각의 시편에 대한 인장시험 및 경도시험을 실시한 결과, Zr 함량이 증가할수록 경도가 증가하였으며 이는 Laves 상의 증가 때문으로 보인다. 다른 시편들과는 다르게 SS-15Zr 에서 인장강도와 연신율이 급격히 낮아 추가적으로 모든 시편에 대해 1200°C에서 1 시간 동안 열처리를 진행하였고 열처리 전, 후에 대한 물성 값을 Table 1에 정리하였다. 전체 시편에서 열처리 후 경도값은 감소하였는데 이는 미세하고 치밀한 공정조직이 줄어들었기 때문이다. 특히 SS-15Zr 시편은 미세조직의 변화가 가장 컸으며, 이로 인해 열처리 전, 후 기계적 특성 변화치가 가장 높았다.

또한 열처리 전과 후의 인장 파단면을 비교 관찰한 결과(Fig. 2), SS-11Zr 경우는 열처리 후에도 여전히 작은 결정립 단위(~ 1 μm)의 준벽개파면이 존재한다. SS-15Zr 시편은 열처리 전 시편에서 dendrite로 추정되는 조직을 따라 긴 균열이 발생했으나, 열처리 후 시편에서는 미세 균열만 관찰되

었으며, 벽개파괴 단위가 증가하였다. 열처리 전 비교적 큰 결정립 단위(~ 10 um)의 벽개파면이 관찰되었던 SS-19Zr 에서는 열처리 후에도 비슷한 크기의 2차 균열이 존재하였고 다른 시편들과 마찬가지로 열처리 효과에 의해 파면의 결정립 크기가 증가하였다. Fig. 3는 SEM을 이용하여 SS-15Zr 시편의 열처리 전과 후의 미세조직을 관찰 한 것이다. 인장 파단면에서 확인했던 것과 같이 dendrite 방향으로의 긴 균열이 사라졌지만 미세한 균열은 여전히 존재하였으며, lamellar 구조가 사라지고 조직 구상화가 발생하였다.



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

Table 1. Physical properties of metallic waste form

	T/S(MPa)		E/L(%)		Hardness	
	열처리 전	열처리 후	열처리 전	열처리 후	열처리 전	열처리 후
SS-11Zr	425	389	7.1	3.7	373	281
SS-13Zr	511	640	3.5	4.8	484	303
SS-15Zr	113	520	3.9	5.5	478	294
SS-17Zr	617	489	4.2	3.9	517	349
SS-19Zr	477	361	6.7	3.1	517	358

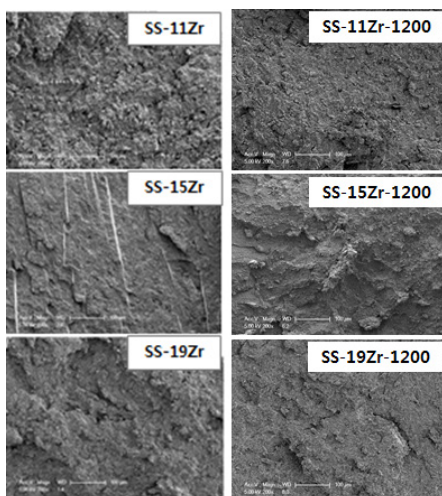


Fig. 2. SEM images of fracture surface for three different compositions.

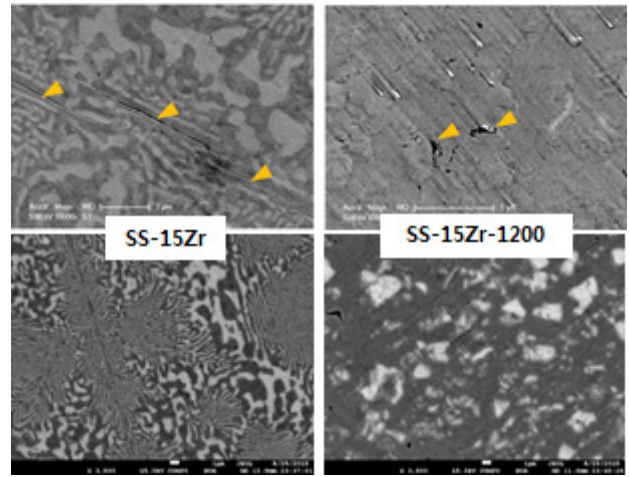


Fig. 3. SEM images of microstructure for SS-15Zr and SS-15Zr-1200.

3. 결론

본 연구에서는 파이로 공정에서 발생하는 폐 피복관 부피감용을 위한 금속폐기물고화체 합금의 고화성능을 테스트하기 위해 유도용융법을 통해 금속 고화체 합금을 제조하였다. SS-Zr 이원계 합금을 기준으로 Zr 함량이 다른 5종류의 안정적인 고화체를 제조할 수 있었다. Zr 조성이 증가하면 Laves 상의 분율 및 경도가 증가하는 것을 확인하였고, 제조된 시편들을 1200°C의 열처리 공정을 적용했을 때 dendrite를 따라 발생했던 긴 균열은 줄어드는 경향을 나타냈으며, 특히 SS-15Zr 시편은 열처리 후에 연신율과 인장강도가 크게 향상되었다.

4. 참고문헌

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