



**(19) 대한민국특허청(KR)**  
**(12) 등록특허공보(B1)**

(45) 공고일자 2015년09월21일  
 (11) 등록번호 10-1554641  
 (24) 등록일자 2015년09월15일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)

**G21C 3/02** (2006.01)

(21) 출원번호 10-2014-0024994

(22) 출원일자 2014년03월03일

심사청구일자 2014년03월03일

(65) 공개번호 10-2015-0103485

(43) 공개일자 2015년09월11일

(56) 선행기술조사문헌

JP11174185 A

KR1020100114392 A

JP11202072 A

KR1020120107283 A

(73) 특허권자

한국원자력연구원

대전광역시 유성구 대덕대로989번길 111(덕진동)

(72) 발명자

김준환

대전 유성구 은구비남로 34, 801동 1501호 (노은동, 열매마을8단지)

이찬복

대전 유성구 갑동로25번길 24-17, (갑동)

(뒷면에 계속)

(74) 대리인

이원희

전체 청구항 수 : 총 2 항

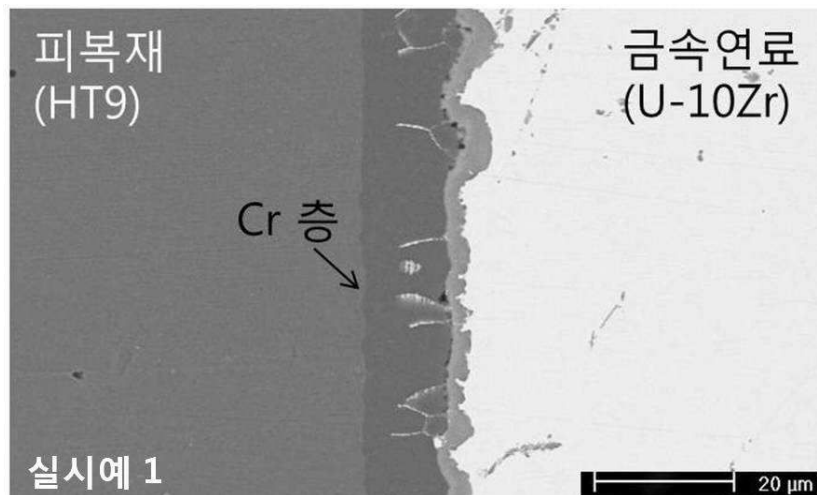
심사관 : 이용호

(54) 발명의 명칭 **금속 코팅층이 형성된 금속핵연료심 및 이를 포함하는 고속로용 핵연료봉**

**(57) 요약**

본 발명은 금속 코팅층이 형성된 것을 특징으로 하는 고속로용 핵연료봉에 사용되는 금속핵연료심을 제공한다. 본 발명에 따른 금속 코팅층이 형성된 금속핵연료심과 피복관을 포함하는 고속로용 핵연료봉은 금속핵연료심에 금속 코팅층을 형성하여 금속핵연료심의 수명을 제한하는 핵연료-피복관 상호 확산 반응 현상을 종래의 기술에 비하여 우수한 성능으로 억제할 수 있다. 이에 따라, 종래의 기술에 비하여 우수한 경제성 및 성능을 가진다.

**대표도** - 도2



(72) 발명자

**이병훈**

대전 유성구 엑스포로 448, 307동 1401호 (전민동, 엑스포아파트)

**김성호**

대전 유성구 배울1로 119, (용산동, 대덕테크노밸리12단지아파트)

**김기환**

대전 유성구 상대남로 26, 910동 802호 (상대동, 트리폴시티아파트)

**천진식**

대전 유성구 배울2로 19, 906동 1304호 (관평동, 대덕테크노밸리9단지아파트)

**김준형**

대전광역시 유성구 봉산로 39, 203동 604호

**박상규**

대전 유성구 유성대로828번길 46, 202호 (장대동)

**송훈**

대전 유성구 은구비남로 34, 808동 1502호 (노은동, 열매마을8단지)

**오석진**

대전 서구 청사서로 70, 104동 405호 (월평동, 무궁화아파트)

**고영모**

대전 중구 보문산로 31, 104동 1505호 (산성동, 한밭가든아파트)

**우윤명**

대전 유성구 어은로 57, 113동 1204호 (어은동, 한빛아파트)

**양성우**

대전 유성구 엑스포로 501, 106동 806호 (전민동, 청구나래아파트)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	53133-14
부처명	미래창조과학부
연구관리전문기관	한국연구재단
연구사업명	원자력연구개발사업
연구과제명	소듐냉각고속로 금속연료 성능평가
기 여 율	1/1
주관기관	한국원자력연구원
연구기간	2012.03.01 ~ 2021.02.28

## 명세서

### 청구범위

#### 청구항 1

삭제

#### 청구항 2

삭제

#### 청구항 3

삭제

#### 청구항 4

삭제

#### 청구항 5

삭제

#### 청구항 6

삭제

#### 청구항 7

삭제

#### 청구항 8

U, Pu, Th, Np, Am, Cm, La, Ce, Nd, Pr, Pm, Sm, Eu, Gd, Zr 및 Mo로 이루어지는 군으로부터 선택되는 1 종의 금속 또는 이들의 합금으로 이루어지는 고속로용 금속핵연료심을 준비하는 단계(단계 1);

상기 단계 1의 금속핵연료심을 전극으로써 사용하는 전해도금을 통해 금속핵연료심 표면에 금속 코팅층을 형성하는 단계(단계 2); 및

상기 단계 2에서 금속 코팅층이 형성된 금속핵연료심을 피복관에 넣고 밀봉하는 단계(단계 3);를 포함하는 고속로용 핵연료봉의 제조방법.

#### 청구항 9

U, Pu, Th, Np, Am, Cm, La, Ce, Nd, Pr, Pm, Sm, Eu, Gd, Zr 및 Mo로 이루어지는 군으로부터 선택되는 1 종의 금속 또는 이들의 합금으로 이루어지는 고속로용 금속핵연료심을 준비하는 단계(단계 1);

플라즈마 스프레이를 통해 금속핵연료심 표면에 금속 코팅층을 형성하는 단계(단계 2); 및

상기 단계 2에서 금속 코팅층이 형성된 금속핵연료심을 피복관에 넣고 밀봉하는 단계(단계 3);를 포함하는 고속로용 핵연료봉의 제조방법.

#### 청구항 10

삭제

**청구항 11**

삭제

**청구항 12**

삭제

**발명의 설명**

**기술 분야**

[0001] 본 발명은 금속 코팅층이 형성된 금속핵연료심 및 이를 포함하는 고속로용 핵연료봉에 관한 것이다.

**배경 기술**

[0002] 고속로에서 핵연료는 관형, 환형, 봉형 등의 다양한 형태로 설계되며, 핵연료 봉 내에는 핵반응을 하는 물질을 포함되어 있다. 핵반응을 하는 물질은 냉각재와 양립성이 우수하여 반응성 없고 열전달 특성이 우수한 용기, 즉 피복관에 의해 밀봉된다. 핵연료봉은 일정한 간격을 유지한 채로 핵연료 집합체 형태로 조립되어 원자로 내에 장전된다. 이때 핵연료를 감싸는 피복관은 핵반응 물질과 냉각재 사이의 직접적인 접촉을 막아 화학적 상호 확산 반응이 일어나지 않도록 하여야 하며 핵분열 생성물의 누출을 방지해야 한다. 아울러 금속핵연료를 사용하는 고속로에서는 피복관과 핵반응 물질 사이 상호 확산 반응도 억제되는 것이 핵연료의 안전성 및 경제성 측면에서 매우 유리하다.

[0003] 특히, 금속핵연료가 사용되는 고속로에 있어서 금속핵연료심의 구성 원소들(U, Pu, Th, MA, Zr, Mo 및 핵분열 생성물 등)과 스테인레스강 피복관의 구성 원소들(Fe, Cr, W, Mo, V, Nb 등)이 확산에 의해 상호 침투하여, 금속핵연료심의 용융온도가 감소하거나 피복관의 강도가 저하되는 현상이 발생하여 고속로 금속핵연료의 최대 허용 연소도와 최대 허용 운전 온도를 제한할 수 있다[J. Nucl. Mater., 204 (1993) p.244-251 및 J. Nucl. Mater., 204 (1993) p. 141-147].

[0004] 또한, T. Ogata 등이 923 K에서 수행한 확산쌍(diffusion couple)실험에서 금속핵연료심과 피복관의 상호 확산으로 인한 반응이 발생함을 입증하였으며, 상호 반응층의 두께는 시간에 비례하여 증가하는 것을 보고하였다[J. Nucl. Mater., 250 (1997) p. 171-175].

[0005] 상기의 상호 확산 반응을 방지하기 위해 제네럴 일렉트릭(GE)사는 지르코늄(Zr), 타이타늄(Ti), 니오븀(Nb), 몰리브덴(Mo) 중에 하나의 금속을 이용하여 약 50  $\mu\text{m}$  두께의 라이너(liner) 또는 슬리브(sleeve)를 금속핵연료심과 피복관의 사이에 삽입하여 금속 연료심과 피복관의 상호 확산 반응을 억제하는 기술을 발표하였다.

[0006] 상기 GE사의 기술은 추가적인 공정의 도입이 필수적이기 때문에 제조가 복잡해질 뿐만 아니라 적지 않은 추가 비용이 소요되는 문제가 있다.

[0007] 또한, D.C. Crawford 등은 고속로 핵연료에 발생하는 석영관 물더 폐기물을 제거함과 동시에 금속핵연료심과 피복관 사이 화학반응(Fuel-cladding Chemical Interaction, FCCI)을 억제하기 위하여 약 200  $\mu\text{m}$  두께의 지르코늄 튜브를 용해 주조하여 그 결과를 보고하였으나, 지르코늄 튜브에 균열이 발생하는 문제가 있다.

[0008] 원자로용 금속핵연료는 높은 열전도도 및 파이로프로세싱과 연계한 높은 핵확산 저항성으로 인하여 차세대 핵연료인 소듐냉각고속로의 핵연료로 중요하게 고려되고 있다. 그러나 이러한 금속핵연료는 원자로 가동온도인 650

℃ 이상에서 핵연료 물질인 금속 우라늄과 핵연료 피복관 재료와 상호 확산 반응하여 시간에 따라 피복관 두께가 얇아져서 그 건전성이 약화되어 수명이 짧아지는 문제가 발생하고 있다. 이러한 상호 확산 반응 현상을 방지하고 피복관 소재의 성능향상을 위하여 금속핵연료와 피복관 사이에 상호확산 및 반응을 방지하기 위한 물질을 적용하는 연구가 진행되고 있다.

[0009] 특허문헌 1(공개특허 KR-2009-0018396)에서는 핵연료-피복관 상호 확산 반응을 억제하기 위하여 피복관 내면에 산화물 피막층이 형성된 고속로용 핵연료봉을 제안하였다. 구체적으로, 크롬 산화물, 바나듐 산화물 및 지르코늄 산화물을 산화법 및 고온산화법, 전해 산화법, 기상 증착법을 이용하여 피복관 내면에 부착시키는 개념을 제안하였다.

[0010] 특허문헌 2(공개특허 KR-2010-0114392)에서는 핵연료-피복관 상호 확산 반응을 억제하고 핵연료 피복관의 성능향상을 위하여 티타늄, 니켈, 크롬, 바나듐, 지르코늄 등과 같은 기능성 재료를 다층으로 증착하는 개념을 제안하였다.

[0011] 특허문헌 3(공개특허 KR-2010-0081961)에서는 핵연료 피복관 내벽을 균일하게 도금하는 방법 및 질화처리 부가공정을 통하여 도금층 표면에 질화층을 형성시키는 개념을 제안하였다.

[0012] 특허문헌 4(일본공개특허 2012-237574)에서는 고온 특성 및 발전 효율을 향상시킬 수 있는 피복관 및 이를 구비한 원자로를 제공하기 위해서, 원자로연료를 수용가능하고, 철계 재료로 구성되어지는 통상의 본체부와; 상기 본체부의 내주면에 형성된 탄소계 재료로 구성되는 내층부를 구비하는 피복관 및 이를 구비한 원자로를 제공하고 있다.

[0013] 그러나, 고속로용 핵연료 피복관은 직경 7 mm에 두께 0.6 mm, 길이 3,000 mm를 갖는 무계목(seamless) 관으로서 이러한 상호 확산 방지가능성 물질을 얇고 긴 관 내면에 부착하는데 한계가 있고, 처리비용이 비싼 문제가 있다.

[0014] 이에, 본 발명자들은 금속핵연료심 표면에 간단하고 균일하게 금속 코팅층을 형성하여 금속핵연료심 구성요소 및 핵분열 생성물 혹은 불순물을 안정화시킴으로써, 금속핵연료심과 피복관 간의 상호 확산 반응을 억제할 수 있음을 알아내고 본 발명을 완성하였다.

**발명의 내용**

**해결하려는 과제**

[0015] 본 발명의 목적은 금속 코팅층이 형성된 금속핵연료심 및 이를 포함하는 고속로용 핵연료봉을 제공하는 데 있다.

**과제의 해결 수단**

[0016] 상기 목적을 달성하기 위하여, 본 발명은

[0017] 금속 코팅층이 형성된 것을 특징으로 하는 고속로용 핵연료봉에 사용되는 금속핵연료심을 제공한다.

[0018] 또한, 본 발명은

- [0019] 금속 코팅층이 표면에 형성된 금속핵연료심; 및
- [0020] 상기 금속핵연료심을 밀봉하는 피복관;을 포함하는 고속로용 핵연료봉을 제공한다.
  
- [0021] 나아가, 본 발명은
- [0022] 금속핵연료심 표면에 금속 코팅층을 형성하는 단계(단계 1); 및
- [0023] 상기 단계 1에서 금속 코팅층이 형성된 금속핵연료심을 피복관에 넣고 밀봉하는 단계(단계 2);를 포함하는 고속로용 핵연료봉의 제조방법을 제공한다.
  
- [0024] 또한, 본 발명은
- [0025] 금속핵연료 분말 표면에 금속 코팅층을 형성시키는 단계(단계 1);
- [0026] 상기 단계 1에서 얻은 금속핵연료 분말을 성형하여 금속핵연료심을 제조하는 단계(단계 2); 및
- [0027] 상기 단계 2에서 준비한 금속핵연료심을 피복관에 넣고 밀봉하는 단계(단계 3);를 포함하는 고속로용 핵연료봉의 제조방법을 제공한다.
  
- [0028] 나아가, 본 발명은
- [0029] 상기의 고속로용 핵연료봉을 포함하는 핵연료봉 집합체를 제공한다.
  
- [0030] 더욱 나아가, 본 발명은
- [0031] 금속핵연료심 또는 금속핵연료 분말 표면에 금속 코팅층을 형성하여 고속로용 핵연료봉에서의 핵연료-피복관 상호 확산 반응을 억제시키는 방법을 제공한다.

**발명의 효과**

- [0032] 본 발명에 따른 금속 코팅층이 형성된 금속핵연료심과 피복관을 포함하는 고속로용 핵연료봉은 금속핵연료심에 금속 코팅층을 형성하여 금속핵연료심의 수명을 제한하는 핵연료-피복관 상호 확산 반응 현상을 종래의 기술에 비하여 우수한 성능으로 억제할 수 있다. 이에 따라, 종래의 기술에 비하여 우수한 경제성 및 성능을 가진다.

**도면의 간단한 설명**

- [0033] 도 1은 본 발명에 따른 실시예 1에서 제조된 고속로용 핵연료봉을 주사 전자 현미경(SEM)으로 관찰한 사진이고;
- 도 2는 본 발명에 따른 실시예 1에서 제조된 고속로용 핵연료봉의 확산 쌍 실험 후 단면을 주사 전자 현미경(SEM)으로 관찰한 사진이고;
- 도 3은 본 발명에 따른 실시예 2에서 제조된 고속로용 핵연료봉의 확산 쌍 실험 후 단면을 주사 전자 현미경(SEM)으로 관찰한 사진이고;
- 도 4는 본 발명에 따른 실시예 3에서 제조된 고속로용 핵연료봉의 확산 쌍 실험 후 단면을 주사 전자 현미경(SEM)으로 관찰한 사진이고;
- 도 5는 본 발명에 따른 실시예 4에서 제조된 고속로용 핵연료봉의 확산 쌍 실험 후 단면을 주사 전자 현미경(SEM)으로 관찰한 사진이고;
- 도 6은 본 발명에 따른 실시예 5에서 제조된 고속로용 핵연료봉의 확산 쌍 실험 후 단면을 주사 전자 현미경(SEM)으로 관찰한 사진이고;

도 7는 본 발명에 따른 비교예 1에서 제조된 고속로용 핵연료봉의 확산 쌍 실험 후 단면을 주사 전자 현미경 (SEM)으로 관찰한 사진이다.

**발명을 실시하기 위한 구체적인 내용**

- [0034] 본 발명은
- [0035] 금속 코팅층이 형성된 것을 특징으로 하는 고속로용 핵연료봉에 사용되는 금속핵연료심을 제공한다.
- [0036] 이하, 본 발명에 따른 금속핵연료심에 대하여 상세히 설명한다.
- [0037] 본 발명은 종래의 기술에서 제기된 문제점을 극복하고자 금속핵연료심에 금속 코팅층을 형성하였다. 이에, 금속 핵연료심의 수명을 제한하는 핵연료-피복관 상호 확산 반응 현상을 종래의 기술에 비하여 우수한 성능으로 억제할 수 있으며, 우수한 경제성 및 성능을 가진다.
- [0038] 구체적으로, 표면에 형성된 금속 코팅층은 금속핵연료심의 주성분인 우라늄과 피복관 주성분인 철의 상호 확산을 억제하여 시간에 따른 피복관 재료의 두께 감소를 방지할 수 있다. 상기 금속핵연료심은 핵분열이 진행될수록 고체, 기체 핵분열 생성물의 발생이 내부에서 이루어져 점차 그 부피가 늘어나게 된다. 부피가 늘어남에 따라 표면에 형성되는 원주 방향 팽창 응력을 충분히 수용하고 팽창에 따른 금속 코팅층의 기계적 건전성을 보장받기 위하여 상기의 금속 코팅층은 연성을 지닌 금속으로 코팅층을 형성하는 것이 바람직하다.
- [0039] 본 발명에 따른 금속핵연료심에 있어서, 상기 금속 코팅층은 지르코늄, 크롬, 바나듐, 티타늄, 니오븀, 탄탈륨 및 이들의 합금 등의 금속을 사용할 수 있으며, 상기 금속은 우라늄에 대한 확산 속도가 철보다 낮기 때문에 상기의 핵연료-피복관 상호 확산 반응 현상을 효과적으로 억제할 수 있으며, 연성을 가짐으로써 부피가 늘어남에 따라 표면에 형성되는 원주 방향 팽창 응력을 충분히 수용할 수 있다.
- [0040] 본 발명에 따른 금속핵연료심에 있어서, 상기 금속핵연료심은 금속핵연료 분말이 성형되어 형성될 수 있다.
- [0041] 본 발명에 따른 금속핵연료심에 있어서, 상기 금속핵연료심은 U, Pu, Th, Np, Am, Cm, La, Ce, Nd, Pr, Pm, Sm, Eu, Gd, Zr 및 Mo 등을 단독으로 또는 혼합하여 제조한 것을 사용할 수 있으나, 고속로용 핵연료봉에 적용 가능한 금속핵연료심이라면 모두 사용가능하다.
- [0042] 본 발명에 따른 금속핵연료심에 있어서, 상기 금속 코팅층의 두께는 0.5 내지 100  $\mu\text{m}$ 인 것이 바람직하다. 만약, 상기 금속 코팅층의 두께가 0.5  $\mu\text{m}$  미만일 경우에는 상호 확산 반응 현상을 충분히 억제하지 못할 뿐 아니라 원자로에서 연소시 팽창하는 금속핵연료심에 의하여 형성된 금속 코팅층이 파괴될 가능성을 지닌다. 만약, 상기 금속 코팅층의 두께가 100  $\mu\text{m}$ 를 초과하는 경우, 두꺼운 코팅층의 두께로 인해 열전도도가 감소하여 핵연료에서 방출하는 열이 효율적으로 전달되기 어려움과 동시에 연소 중 팽창하고자 하는 금속핵연료심 표면을 금속 코팅층이 억제하게 되어 금속핵연료심의 성능을 저하시키는 문제가 있다.
- [0043] 또한, 본 발명은
- [0044] 금속 코팅층이 표면에 형성된 금속핵연료심; 및
- [0045] 상기 금속핵연료심을 밀봉하는 피복관;을 포함하는 고속로용 핵연료봉을 제공한다.

- [0046] 이하, 본 발명에 따른 고속로용 핵연료봉에 대하여 상세히 설명한다.
- [0047] 본 발명에 따른 고속로용 핵연료봉에 있어서, 상기 금속핵연료심은 U, Pu, Th, Np, Am, Cm, La, Ce, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Zr 및 Mo 등을 단독으로 또는 혼합하여 제조한 것을 사용할 수 있으나, 고속로용 핵연료봉에 적용 가능한 금속핵연료심이라면 모두 사용가능하다.
- [0048] 본 발명에 따른 고속로용 핵연료봉에 있어서, 상기 금속 코팅층의 두께는 0.5 내지 100  $\mu\text{m}$ 인 것이 바람직하다. 만약, 상기 금속 코팅층의 두께가 0.5  $\mu\text{m}$  미만일 경우에는 상호 확산 반응 현상을 충분히 억제하지 못할 뿐 아니라 원자로에서 연소시 팽창하는 금속핵연료심에 의하여 형성된 금속 코팅층이 파괴될 가능성을 지닌다. 만약, 상기 금속 코팅층의 두께가 100  $\mu\text{m}$ 를 초과하는 경우, 두꺼운 코팅층의 두께로 인해 열전도도가 감소하여 핵연료에서 방출하는 열이 효율적으로 전달되기 어려움과 동시에 연소 중 팽창하고자 하는 금속핵연료심 표면을 금속 코팅층이 억제하게 되어 금속핵연료심의 성능을 저하시키는 문제가 있다.
- [0049] 본 발명에 따른 고속로용 핵연료봉에 있어서, 상기 피복관은 Fe, Cr, W, Mo, V, Ti, Nb, Ta, Si, Mn, Ni, C, N 및 B 등을 단독으로 또는 혼합하여 합금의 형태로 사용할 수 있으나, 이에 제한하지 않는다.
- [0050] 나아가, 본 발명은
- [0051] 금속핵연료심 표면에 금속 코팅층을 형성하는 단계(단계 1); 및
- [0052] 상기 단계 1에서 금속 코팅층이 형성된 금속핵연료심을 피복관에 넣고 밀봉하는 단계(단계 2);를 포함하는 고속로용 핵연료봉의 제조방법을 제공한다.
- [0053] 이하, 본 발명에 따른 고속로용 핵연료봉의 제조방법에 대하여 각 단계별로 상세히 설명한다.
- [0054] 먼저, 본 발명에 따른 고속로용 핵연료봉의 제조방법에 있어서, 단계 1은 금속핵연료심 표면에 금속 코팅층을 형성하는 단계이다.
- [0055] 구체적으로, 상기 단계 1에서 금속 코팅층의 형성은 전해도금, 기상 증착법 및 플라즈마 스프레이 등의 방법으로 수행될 수 있다.
- [0056] 또한, 상기 단계 1의 금속핵연료심은 U, Pu, Th, Np, Am, Cm, La, Ce, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Zr 및 Mo 등을 단독으로 또는 혼합하여 제조한 것을 사용할 수 있으나, 고속로용 핵연료봉에 적용가능한 금속핵연료심이라면 모두 사용가능하다.
- [0057] 나아가, 상기 단계 1에서 형성되는 금속 코팅층의 두께는 0.5 내지 100  $\mu\text{m}$ 인 것이 바람직하다. 만약, 상기 단계 1에서 형성되는 금속 코팅층의 두께가 0.5  $\mu\text{m}$  미만일 경우에는 상호 확산 반응 현상을 충분히 억제하지 못할 뿐 아니라 원자로에서 연소시 팽창하는 금속핵연료심에 의하여 형성된 금속 코팅층이 파괴될 가능성을 지닌다. 만약, 상기 단계 1에서 형성되는 금속 코팅층의 두께가 100  $\mu\text{m}$ 를 초과하는 경우에는 두꺼운 코팅층의 두께로 인해 열전도도가 감소하여 핵연료에서 방출하는 열이 효율적으로 전달되기 어려움과 동시에 연소 중 팽창하고자 하는 금속핵연료심 표면을 금속 코팅층이 억제하게 되어 금속핵연료심의 성능을 저하시키는 문제가 있다.
- [0058] 다음으로, 본 발명에 따른 고속로용 핵연료봉의 제조방법에 있어서, 단계 2는 상기 단계 1에서 금속 코팅층이



형성된 금속핵연료심을 피복관에 넣고 밀봉하는 단계이다.

- [0059] 구체적으로, 상기 단계 2에서는 일례로써, 피복관과 금속핵연료심을 맞대어 석영관 밀봉 처리를 통해 밀봉할 수 있다. 또한, 밀봉 후에 상기 핵연료봉을 확산 쌍(diffusion couple) 처리를 수행할 수 있으며, 이때, 상기 확산 쌍 처리는 500 내지 1000 °C의 온도에서 수행할 수 있으나, 이에 제한하지 않는다.
- [0060] 또한, 상기 단계 2의 피복관은 Fe, Cr, W, Mo, V, Ti, Nb, Ta, Si, Mn, Ni, C, N 및 B 등을 단독으로 또는 혼합하여 합금의 형태로 사용할 수 있으나, 이에 제한하지 않는다.
- [0061] 나아가, 본 발명은
- [0062] 금속핵연료 분말 표면에 금속 코팅층을 형성시키는 단계(단계 1);
- [0063] 상기 단계 1에서 얻은 금속핵연료 분말을 성형하여 금속핵연료심을 제조하는 단계(단계 2); 및
- [0064] 상기 단계 2에서 준비한 금속핵연료심을 피복관에 넣고 밀봉하는 단계(단계 3);를 포함하는 고속로용 핵연료봉의 제조방법을 제공한다.
- [0065] 본 발명에 따른 고속로용 핵연료봉의 제조방법은 금속핵연료 분말 표면에 금속 코팅층을 형성시킴에 따라 금속핵연료심의 수명을 제한하는 핵연료-피복관 상호 확산 반응 현상을 종래의 기술에 비하여 우수한 성능으로 억제할 수 있으며, 다양한 형태의 핵연료로 제조할 수 있다. 특히, 고속로용 핵연료봉 제조시 금속핵연료심 형태로 성형되어 이를 밀봉하는 피복관과의 상호 확산 반응 현상을 억제할 수 있다.
- [0066] 먼저, 본 발명에 따른 고속로용 핵연료봉의 제조방법에 있어서, 단계 1은 금속핵연료 분말 표면에 금속 코팅층을 형성시키는 단계이다.
- [0067] 구체적으로, 상기 단계 1에서 금속 코팅층의 형성은 전해도금, 기상 증착법 및 플라즈마 스프레이 등의 방법으로 수행될 수 있다.
- [0068] 또한, 상기 단계 1의 금속핵연료심은 U, Pu, Th, Np, Am, Cm, La, Ce, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Zr 및 Mo 등을 단독으로 또는 혼합하여 제조한 것을 사용할 수 있으나, 고속로용 핵연료봉에 적용가능한 금속핵연료심이라면 모두 사용가능하다.
- [0069] 나아가, 상기 단계 1에서 형성되는 금속 코팅층의 두께는 0.5 내지 100 μm인 것이 바람직하다. 만약, 상기 단계 1에서 형성되는 금속 코팅층의 두께가 0.5 μm 미만일 경우에는 상호 확산 반응 현상을 충분히 억제하지 못할 뿐 아니라 원자로에서 연소시 팽창하는 금속핵연료심에 의하여 형성된 금속 코팅층이 파괴될 가능성을 지닌다. 만약, 상기 단계 1에서 형성되는 금속 코팅층의 두께가 100 μm를 초과하는 경우에는 두꺼운 코팅층의 두께로 인해 열전도도가 감소하여 핵연료에서 방출하는 열이 효율적으로 전달되기 어려움과 동시에 연소 중 팽창하고자 하는 금속핵연료심 표면을 금속 코팅층이 억제하게 되어 금속핵연료심의 성능을 저하시키는 문제가 있다.
- [0070] 다음으로, 본 발명에 따른 고속로용 핵연료봉의 제조방법에 있어서, 단계 2는 상기 단계 1에서 얻은 금속핵연료 분말을 성형하여 금속핵연료심을 제조하는 단계이다.
- [0071] 구체적으로, 상기 금속핵연료 분말을 원통 피복관으로 구성된 핵연료봉 내부에 적층하는 방법, 금속핵연료 분말을 가열로에 넣은 후 열처리하여 소결하는 방법, 금속핵연료 분말을 금속 및 세라믹 기지(matrix)에 넣은 후 열처리하여 원통형 소결체로 만드는 방법을 들 수 있다.
- [0072] 다음으로, 본 발명에 따른 고속로용 핵연료봉의 제조방법에 있어서, 상기 단계 2에서 준비한 금속핵연료심을 피

복판에 넣고 밀봉하는 단계이다.

- [0073] 구체적으로, 상기 단계 3에서는 일례로써, 피복관과 금속핵연료심을 맞대어 석영관 밀봉 처리를 통해 밀봉할 수 있다. 또한, 밀봉 후에 상기 핵연료봉을 확산 쌍(diffusion couple) 처리를 수행할 수 있으며, 이때, 상기 확산 쌍 처리는 500 내지 1000 °C의 온도에서 수행할 수 있으나, 이에 제한하지 않는다.
- [0074] 또한, 상기 단계 3의 피복관은 Fe, Cr, W, Mo, V, Ti, Nb, Ta, Si, Mn, Ni, C, N 및 B 등을 단독으로 또는 혼합하여 합금의 형태로 사용할 수 있으나, 이에 제한하지 않는다.
- [0075] 나아가, 본 발명은
- [0076] 상기의 고속로용 핵연료봉을 포함하는 핵연료봉 집합체를 제공한다.
- [0077] 본 발명에 따른 금속 코팅층이 형성된 금속핵연료심과 피복관을 포함하는 고속로용 핵연료봉은 금속핵연료심에 금속 코팅층을 형성하여 금속핵연료심의 수명을 제한하는 핵연료-피복관 상호 확산 반응 현상을 종래의 기술에 비하여 우수한 성능으로 억제할 수 있다. 이에 따라, 종래의 기술에 비하여 우수한 경제성 및 성능을 가지는 핵연료봉 집합체를 구성하여 사용할 수 있다.
- [0078] 더욱 나아가, 본 발명은
- [0079] 금속핵연료심 또는 금속핵연료 분말 표면에 금속 코팅층을 형성하여 고속로용 핵연료봉에서의 핵연료-피복관 상호 확산 반응을 억제시키는 방법을 제공한다.
- [0080] 본 발명은 고속로용 핵연료봉의 성능향상을 위한 핵연료-피복관 상호 확산 반응을 억제시키는 방법에 관한 것으로, 금속핵연료심에 금속 코팅층을 형성하여 금속핵연료심의 수명을 제한하는 핵연료-피복관 상호 확산 반응을 종래의 기술에 비하여 우수한 성능으로 억제할 수 있어서 종래의 기술에 비하여 우수한 경제성 및 성능으로 금속핵연료를 사용하는 핵연료의 수명향상을 달성할 수 있어 추후 원자로용 핵연료 제조에 유용하게 적용될 수 있다.
- [0081] 이하, 본 발명을 하기 실시예 및 실험예에 의하여 상세히 설명한다.
- [0082] 단, 하기 실시예 및 실험예는 본 발명을 예시하는 것일 뿐 발명의 범위가 실시예 및 실험예에 의해 한정되는 것은 아니다.
- [0083] <실시예 1> 고속로용 핵연료봉의 제조 1
- [0084] 단계 1: 크롬산( $\text{CrO}_3$ )과 황산( $\text{H}_2\text{SO}_4$ )이 각각 250 g/l 및 2.5 g/l 함유한 용액을 준비한 후, 납 선재와 핵연료 소재인 U-10Zr 금속핵연료심을 각각 양극과 음극으로 준비하여 상온에서  $180 \text{ A/dm}^2$ 의 전류밀도로 20 분 동안 전해 도금하여 금속핵연료심 표면에 30  $\mu\text{m}$ 의 두께를 갖는 크롬 코팅층을 형성하였다.
- [0085] 단계 2: 상기 단계 1에서 크롬 코팅층이 형성된 금속핵연료심을 HT9(12Cr-1Mo) 피복관과 맞대어 석영관 밀봉 처리한 후, 800 °C의 온도에서 25 시간 동안 확산 쌍 처리하여 고속로용 핵연료봉을 제조하였다.
- [0086] <실시예 2> 고속로용 핵연료봉의 제조 2

- [0087] 단계 1: 물리적 기상증착법을 이용하여 금속핵연료심 표면에 지르코늄 코팅층을 증착하였다. Direct-current magnetron sputtering 방식을 이용하여 증착하였으며 200 W의 출력과 0.4 A의 전류로 상온에서 U-10Zr 금속핵연료심 표면에 4  $\mu\text{m}$ 의 두께를 갖는 지르코늄 코팅층을 형성하였다.
- [0088] 단계 2: 상기 단계 1에서 지르코늄 코팅층이 형성된 금속핵연료심을 HT9(12Cr-1Mo) 피복관과 맞대어 석영관 밀봉 처리한 후, 800  $^{\circ}\text{C}$ 의 온도에서 25 시간 동안 확산 쌍 처리하여 고속로용 핵연료봉을 제조하였다.
- [0089] <실시에 3> 고속로용 핵연료봉의 제조 3
- [0090] 상기 실시예 2의 단계 1에서 금속핵연료심 표면에 바나듐 코팅층을 형성한 것을 제외하고는 상기 실시예 2와 동일하게 수행하여 고속로용 핵연료봉을 제조하였다.
- [0091] 이때, 상기 바나듐 코팅층의 두께는 5  $\mu\text{m}$ 를 나타내었다.
- [0092] <실시에 4> 고속로용 핵연료봉의 제조 4
- [0093] 상기 실시예 2의 단계 1에서 금속핵연료심 표면에 타이타늄 코팅층을 형성한 것을 제외하고는 상기 실시예 2와 동일하게 수행하여 고속로용 핵연료봉을 제조하였다.
- [0094] 이때, 상기 타이타늄 코팅층의 두께는 3  $\mu\text{m}$ 를 나타내었다.
- [0095] <실시에 5> 고속로용 핵연료봉의 제조 5
- [0096] 단계 1: 플라즈마 스프레이(Plasma spray)를 이용하여 U-10Zr 금속핵연료심 표면에 크롬 코팅층을 형성하였다. 30  $\mu\text{m}$ 의 평균 입도를 갖는 크롬 분말을 준비하여 아르곤 및 수소가 각각 3 : 1인 분위기에서 630 A의 전류로 플라즈마 상태로 만든 후 220 mm 간격에서 분당 4 리터의 속도로 U-10Zr 금속핵연료심 표면에 90  $^{\circ}$ 의 각도로 2회 (pass) 용사 코팅 처리하여 금속핵연료심 표면에 20  $\mu\text{m}$ 의 두께를 갖는 크롬 코팅층을 형성하였다.
- [0097] 단계 2: 상기 단계 1에서 크롬 코팅층이 형성된 금속핵연료심을 HT9(12Cr-1Mo) 피복관과 맞대어 석영관 밀봉 처리한 후, 800  $^{\circ}\text{C}$ 의 온도에서 25 시간 동안 확산 쌍 처리하여 고속로용 핵연료봉을 제조하였다.
- [0098] <비교예 1>
- [0099] 핵연료 소재인 U-10Zr 금속핵연료심을 별도의 표면처리 없이 HT9(12Cr-1Mo) 피복관과 맞대어 석영관 밀봉 처리한 후, 800  $^{\circ}\text{C}$ 의 온도에서 25 시간 동안 확산 쌍 처리하여 고속로용 핵연료봉을 제조하였다.
- [0100] <실험예 1> 고속로용 핵연료봉의 표면 관찰
- [0101] 본 발명에 따른 금속 코팅층이 형성된 금속핵연료심의 표면을 살펴보기 위하여, 상기 실시예 1에서 제조된 고속로용 핵연료봉의 표면을 주사 전자 현미경(Scanning electron microscope, SEM)으로 관찰하였으며, 그 결과로도 1에 나타내었다.
- [0102] 도 1에 나타난 바와 같이, 금속 코팅층으로 크롬 코팅층이 형성된 금속핵연료심을 포함하는 고속로용 핵연료봉인 실시예 1의 경우에는 금속핵연료심인 U-10Zr 표면에 크롬 코팅층이 형성된 것을 확인할 수 있었다.
- [0103] <실험예 2> 금속핵연료심-피복관 확산 쌍(Diffusion couple) 실험
- [0104] 실시예에서 제조한 고속로용 핵연료봉에서 금속핵연료심과 피복관의 상호 확산성을 평가하기 위하여 다음과 같

이 실험하였다.

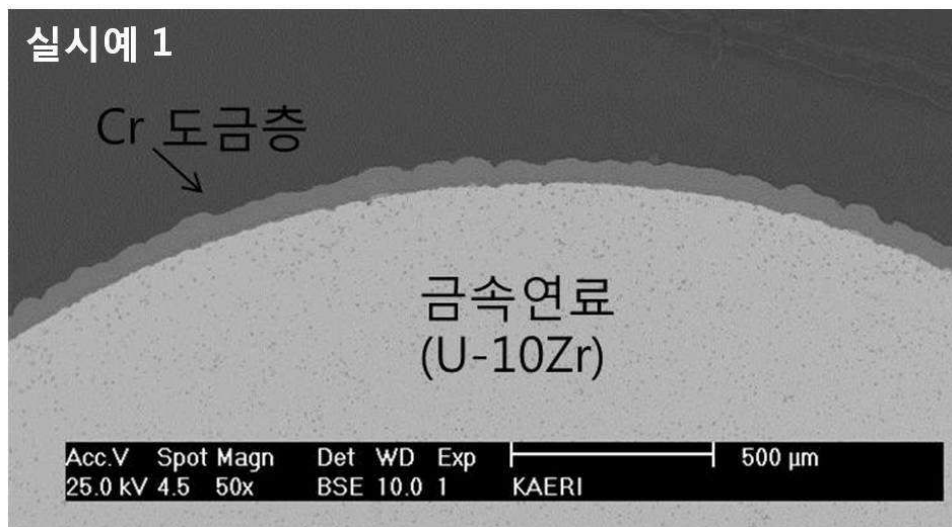
[0105] 구체적으로, 실시예 1 내지 5 및 비교예 1에서 제조한 고속로용 핵연료봉을 10 mm로 절단한 다음, 직경 반향으로 반으로 나눈 후 금속핵연료심-피복관 확산 쌍(diffusion coupling) 실험을 800 °C의 온도에서 25 시간 동안 수행하였다. 확산 쌍 시험 후, 냉각하여 접합된 시편의 단면을 주사 전자 현미경으로 관찰하였고, 그 결과를 도 2 내지 7에 나타내었다.

[0106] 도 2 내지 7에 나타난 바와 같이, 금속 코팅층이 형성된 실시예 1 내지 5의 경우에는 금속핵연료심 표면에 치밀한 금속 코팅층이 형성되어 금속핵연료심과 피복관 사이의 상호 확산 반응이 발생하지 않은 것이 관찰되고 있는 반면, 금속 코팅층을 형성하지 않은 비교예 1의 경우 확산쌍 시험 도중에 금속핵연료심 재료와 피복관 재료가 상호 확산 반응하는 현상을 관찰할 수 있었다.

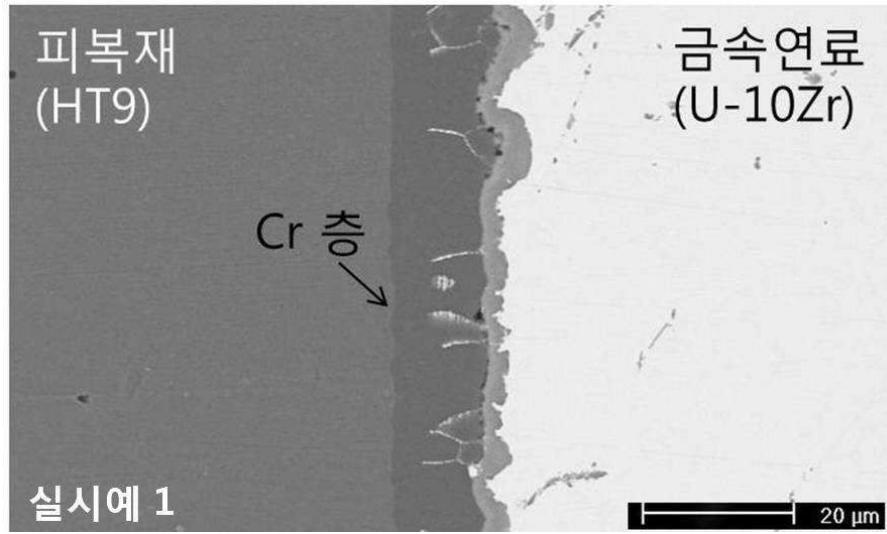
[0107] 따라서, 본 발명에 따른 금속 코팅층이 형성된 금속핵연료심과 피복관을 포함하는 고속로용 핵연료봉은 금속핵연료심에 금속 코팅층을 형성하여 금속핵연료심의 수명을 제한하는 핵연료-피복관 상호 확산 반응 현상을 종래의 기술에 비하여 우수한 성능으로 억제할 수 있다. 이에 따라, 종래의 기술에 비하여 우수한 경제성 및 성능을 가지므로, 고속로용 핵연료봉의 제조에 유용할 수 있다.

**도면**

**도면1**

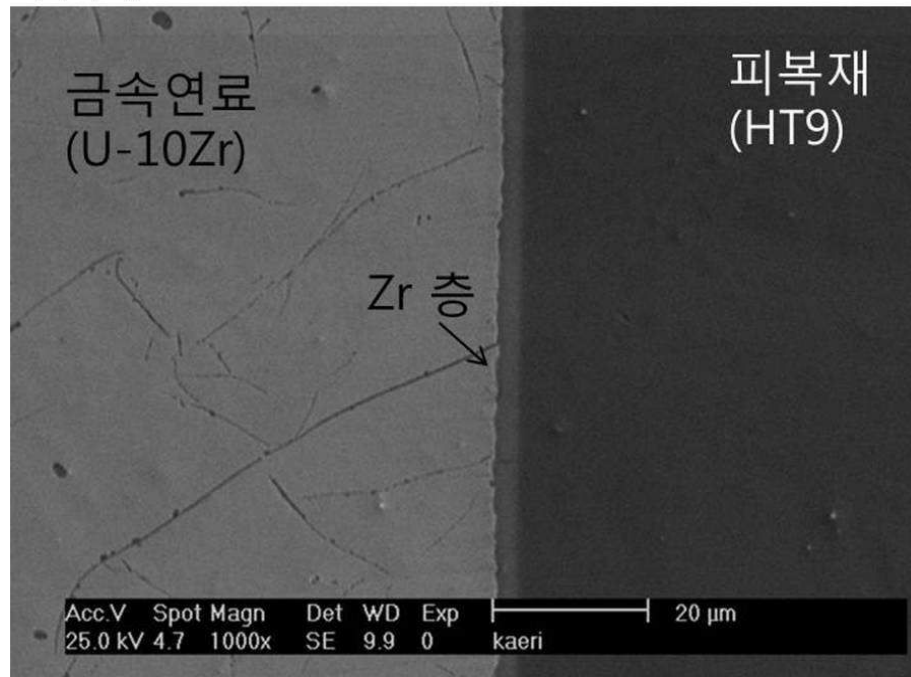


도면2



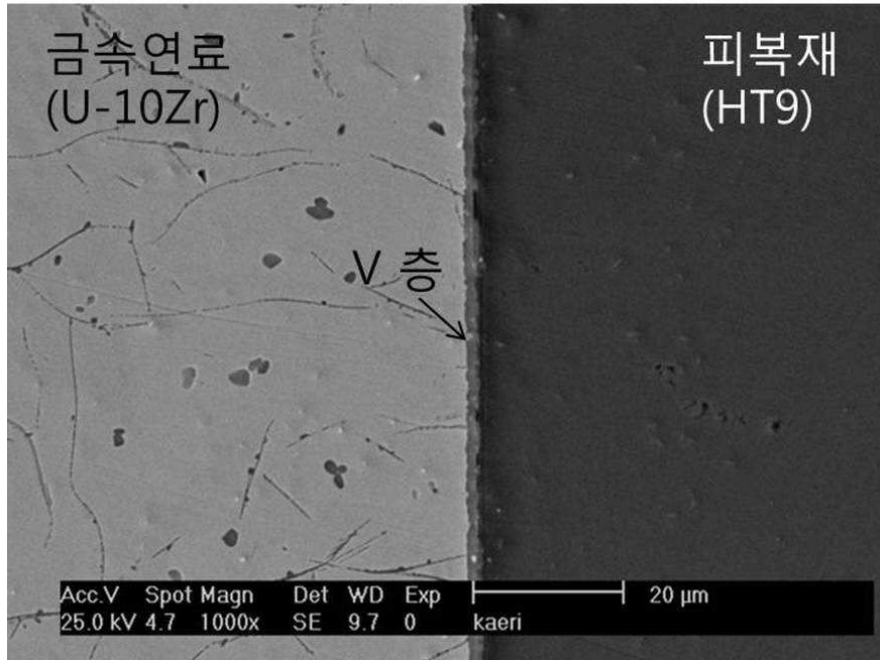
도면3

실시예 2



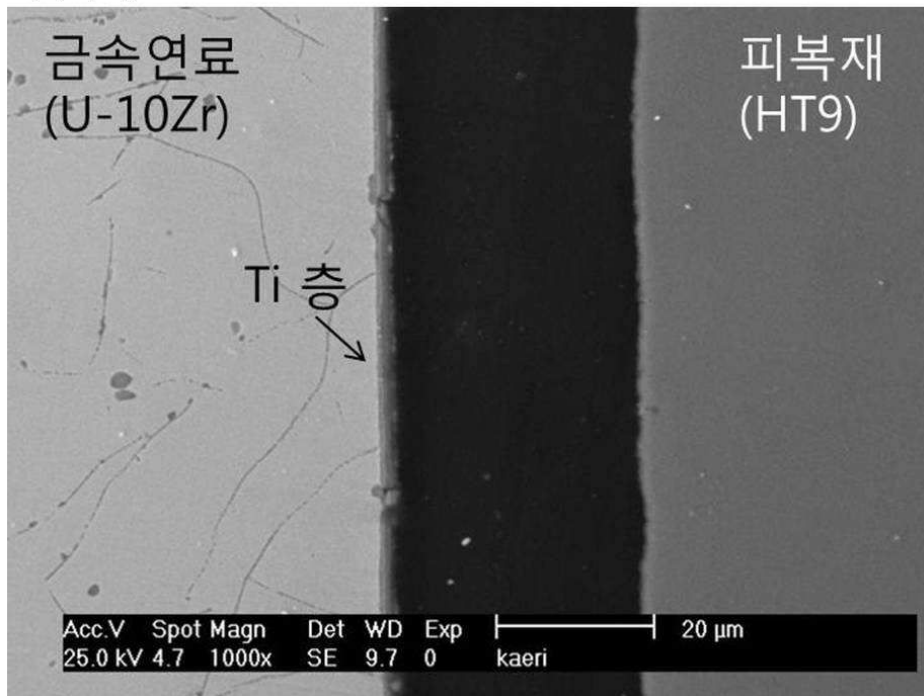
도면4

실시예 3



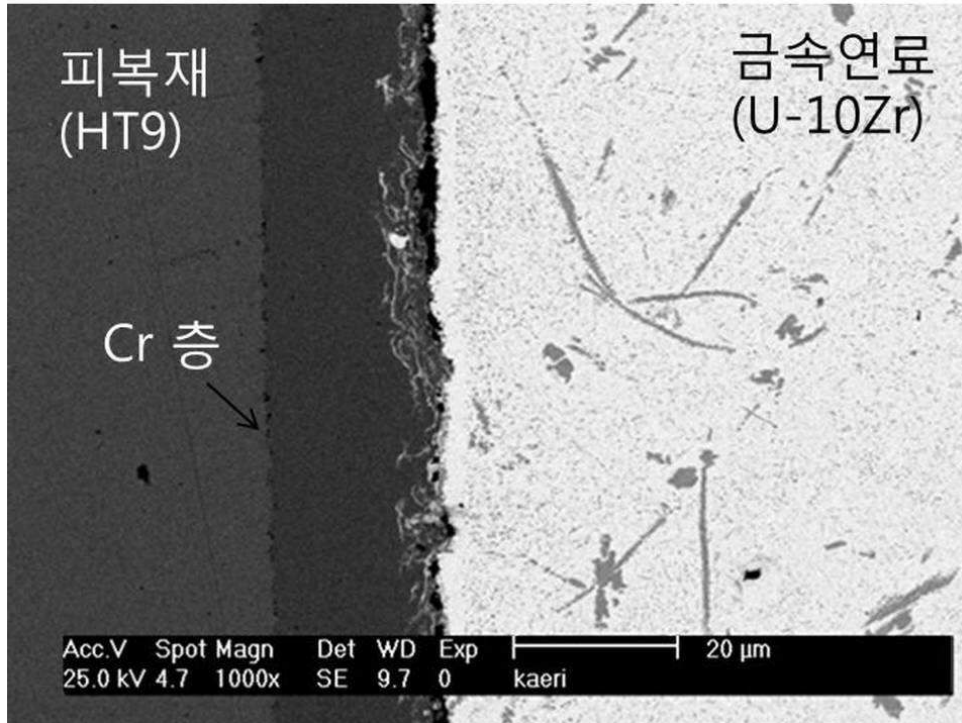
도면5

실시예 4



도면6

실시예 5



도면7

비교예 1

