

Skull 용융법을 이용한 UO_2/ZrO_2 혼합물 용융 가능성 연구

A Feasibility Study on UO_2/ZrO_2 Mixture Melting using Induction Skull Melting Method

홍 성완, 김 종환, 김 희동

한국원자력연구소
대전 유성구 덕진동 150

요 약

용융점이 매우 높은 물질의 결정성장에 사용되고 있는 유도 스킨용융(Induction Skull Melting: ISM) 방법을 도입하여 UO_2/ZrO_2 혼합물(UO_2 : ZrO_2 의 무게비=8:2) 용융 가능성을 분석하였다. 유도 스킨용융을 위한 설계변수인 주파수는 UO_2/ZrO_2 혼합물의 전기저항으로부터 결정하였으며, 입력전원 크기를 결정하는 용기로 부터의 열손실은 UO_2 , ZrO_2 , ThO_2 등에 대한 기존 실험결과와 비교 분석함으로써 이루어졌다. 분석결과 유도스킬용융법으로 UO_2/ZrO_2 혼합물의 용융 및 과열이 가능하였으며, UO_2/ZrO_2 혼합물 20kg을 300K 까지 과열시키기 위해 주파수 100kHz, 유도 가열을 위한 입력전원 100kW, 분당 570L의 냉각수가 필요한 것으로 밝혀졌다. 이러한 연구결과는 한국원자력연구소에서 진행중인 실제 용융물을 사용한 FCI 실험에서 UO_2/ZrO_2 용융 방법으로 사용될 예정이다.

Abstract

Using ISM(Induction Skull Melting) method, which is usually used for the crystallization of refractory materials, a feasibility study on melting of the UO_2/ZrO_2 mixture(w/o 8:2) is carried out. Frequency, one of main design parameters for ISM, is determined from electrical resistance of UO_2/ZrO_2 mixture. Heat loss from the crucible for UO_2/ZrO_2 20kg melting is predicted by comparison with the existing experimental data for UO_2 , ZrO_2 , and ThO_2 . The analysis shows that melting and superheating of the UO_2/ZrO_2 mixture using induction skull melting method is possible. To attain the superheat of 300K for 20 kg of UO_2/ZrO_2 , 100kHz, 100 kW power input for induction coil, and 570L/min coolant flow rate are found to be required. The results of this feasibility study will be adopted for designing UO_2/ZrO_2 furnace using actual corium material at KAERI.

1. 서론

용융점이 매우 높은(2500K 이상) 물질을 용융하기 위해서는 기본적으로 고온의 용융물을 담기 위해 용융물질보다 높은 온도에서 용융되는 용기(Crucible)가 필요하며, 특히 UO_2/ZrO_2 혼합물(UO_2 : ZrO_2 무게비=8:2)처럼 용융점이 약 2850K인 물질의 경우 용기 재질 선정이 매우 어렵다. KROTOS 실험[1]에서는 UO_2/ZrO_2 용융물을 담기 위한 용기로 화학반응 등을 고려하여 용융점이 약 3,683K인 텅스텐을 사용하고 있고 이 것이 거의 유일한 물질로 알려져 있다. 지금까지 UO_2/ZrO_2 혼합물을 용융하여 수행된 용융물과 냉각수 반응(Fuel-Coolant Interaction) 실험으로는 텅스텐 가열기(heater)를 사용한 KROTOS 실험과 전극봉을 UO_2/ZrO_2 분말(powder)속에 장입하여 분

말 자체의 저항에 의한 열 발생으로 용융시킨 FARO 실험[2]이 있다. KROTOS 실험에서는 3-5kg 정도 소량의 UO_2/ZrO_2 를 용융하였으나, KAERI FCI 실험에서는 UO_2/ZrO_2 20kg 을 용융할 예정으로 대형 텅스텐 용기가 필요하나 제조가 매우 어렵다. 또한, FARO 실험에서 사용한 전극봉을 이용하는 방식은 매우 높은 고 전류를 필요로 하고, 용융된 질량을 예측할 수 없어 증기폭발실험에는 적합하지 않다. 따라서 고온 용융물을 담기 위한 용기가 필요없고, 비교적 제작이 용이한 유도 스킵 용융법(Induction Skull Melting: ISM)[3]을 이용하여 UO_2/ZrO_2 혼합물을 용융하는 방법을 연구하였다.

본 연구의 목적은 실제 용융물질인 UO_2/ZrO_2 를 이용한 증기폭발 실험을 위하여 UO_2/ZrO_2 용융에 용융점이 매우 높은 물질을 용융하여 결정성장에 사용되고 있는 유도 스킵 용융방법의 도입 가능성을 조사하고 설계제원을 분석하는 것이다. 이를 위해 기존 실험결과를 바탕으로 UO_2/ZrO_2 혼합물 20kg 을 용융하고자 할 때 유도스킬 설계를 위해 필요한 주파수, 공급전원의 크기, 냉각수 유량 등을 결정하였다. 이 연구 결과는 한국원자력연구소에서 수행 중인 FCI 실험에서 UO_2/ZrO_2 용융을 위한 방법으로 사용될 예정이다.

2. 본론

2.1 유도스킬용융법

유도스킬용융법의 원리는 그림 1 과 같다. 유도스킬용융법은 냉각수 튜브로 이루어진 스킵 속에 용융하고자 하는 물질을 분말 형태로 주입한 후 냉각수 튜브 외벽에 감겨 있는 유도 코일에 전원을 공급함으로써 스킵 내부 분말에 자장을 형성으로 열을 발생시켜 용융하는 방법이다. 일반적으로 산화물질의 분말은 비 저항이 커 전류가 통하지 못하여 자장 형성이 곤란하므로 처음에는 전류의 흐름이 가능한 물질(chip 이라고 함)을 분말 속에 넣어 용융 시킨다. 용융된 물질은 분말과는 달리 전류가 잘 통하여 자장 형성이 잘 이루어지며, 이 때 유도코일의 입력전원을 증가 시키면 분말의 용융이 시작된다. 입력전원을 점차 증가 시키면 분말은 계속 용융되어 스킵을 구성하고 있는 냉각수 튜브 근처까지 진행되나 분말 외벽에 냉각수가 흘러 용융물과 냉각수 사이에 분말이 소결(sintered)되어 수 mm 의 층이 형성된다[3]. 따라서 유도스킬용융법은 용융하고자 하는 물질의 외벽을 냉각시킴으로써 용융물질 자신이 소결층을 형성하여 용기(Self-Crucible)역할을 하기 때문에 일명 “Cold crucible” 용융법 이라고도 한다. 유도스킬의 장점으로는 유도전류의 특성상 전체 용탕에 골고루 보다 높은 온도로 가열이 가능하기 때문에[4] FCI 실험에서 처럼 가능하면 균일한 온도를 갖기를 원하는 경우 적합하다.

스킬을 이용한 용융 예로는 Y_2O_3 (용융점 : 2376 °C), ZrO_2 (용융점 : 2690 °C), La_2O_3 (용융점 : 2300 °C), HfO_2 (용융점: 2790 °C), $LaAlO_3$ (용융점: 2100 °C), $CaZrO_3$ (용융점 : 2345 °C) 등의 용융점이 매우 높은 산화물질을 유도스킬용융법을 이용하여 결정을 성장시켰으며[3], 티타늄(Ti) 및 이의 합금물질, 니켈(Ni) 및 이의 합금물질, 기타 지르코늄 및 이의 합금 물질인 금속산화물질도 이 방법으로 결정을 성장시킨 바 있다[4]. 따라서 용융점이 약 2577 °C(2850K)인 UO_2/ZrO_2 혼합물의 경우도 충분히 용융이 가능함을 알 수 있다. 한편, ZrO_2 (용융점: 2690 °C)의 경우 약 1.5kg 을 용융하기 위해 3.6MHz, 20KW 의 입력전원, 냉각수 유량은 3gallons/분(190cm³/sec)이 60psi 로 공급하여 용융하였으며, 수 mm 두께의 소결층이 형성되었다[3]. 이와 같은 유도 스킵용융법을 이용하여 용융하고자 할 때 주요 설계 변수는 용융물질에 따른 적정 주파수, 입력전원의 크기, 스킵에 공급되는 냉각수의 크기 등으로 이의 결정이 용융 성공여부를 결정한다.

주파수 선정은 용융하고자 하는 물질에 따라 달라지며, 적정 주파수의 선정은 피 가열체(용융하고자 하는 물질)에 가능한 한 많은 열을 발생시키기 위해 매우 중요하다. 주파수 선정은 피 가열체로의 표피효과에 의한 침투깊이(penetration depth)에 따라 달라지며, 침투깊이는 피 가열물질의 전기저항(electrical resistance)에 의해 결정된다. 그림 2는 전기 저항, 침투깊이, 주파수와의 관계를 보여주고 있다. 이 그림에서 같은 물질이라도 침투깊이에 따라 주파수를 달리해야 하며, 용융하고자 하는 물질의 전기저항과 필요한 침투 깊이를 선정하면 적정 주파수를 결정할 수 있다.

입력전원의 크기는 스킨 용융 시 냉각수 튜브와 용융물사이에 형성된 실린더 튜브 형태의 용기에서 용융물에서 냉각수로 전달되는 전도 열손실과 용융물 상부표면에서 대기로 전달되는 복사 열손실을 고려하여 결정해야 한다. 전도 열전달은 용융물 외벽에 소결된 입자층에서 냉각수 튜브로 전달되는데, 소결된 입자층의 두께가 작을수록 전도 열손실은 증가한다. 용융물 상부 표면에서의 복사 열손실은 상부 표면 온도 및 주변 대기온도를 알아야 한다. 기존 실험결과 산화물질의 경우 열복사가 커($3\text{kW/in}^2=0.465\text{kW/cm}^2$ at $3000\text{ }^\circ\text{C}$) 용융물 상부 표면이 용융상태로 유지될 수 없어 피막층이 잘 생성되었으며, ZrO_2 실험에서도 상부에 피막층이 생성되었다[5]. 복사 열손실은 피막층(Crust)이 형성된 후 피 가열체에 더욱 더 많은 열이 전달되어 다시 피막층의 두께가 얇아지면 복사열전달을 증가 시키나 이 과정에서 열 평형 상태가 이루어져 복사에 의한 열손실은 더 이상 증가하지 않을 것으로 예상된다. 즉, 복사 열손실은 상부에 피막층이 형성되어 열 보호막(thermal shield)역할을 할 것으로 예상된다.

냉각튜브로의 유량은 냉각수 튜브 입.출구 온도차이의 설정에 달려 있다. 보통 수도 내의 온도 차이를 고려하여 설계하는 것으로 알려져 있다.

2.2 UO_2/ZrO_2 혼합물 용융

여기서는 기존 실험결과를 바탕으로 UO_2/ZrO_2 20kg 용융하기 위해 필요한 주파수, 입력전원 크기 결정을 위한 열손실, 냉각수 유량을 계산하였으며, 이들 토대로 KAERI FCI 실험에서 용융로에 대한 설계 제원을 제시하였다.

2.2.1 주파수 결정

UO_2/ZrO_2 의 경우 전기저항은 온도에 따라 표 1 과 같이 달라진다[6]. FCI 실험에서는 과열 효과를 최대한 증대 시키기 위해 UO_2/ZrO_2 용융물의 용융온도부터 과열상태(최대 300K)까지의 온도 범위에서 최대의 열을 발생시키기 위해 가능한 이 온도 범위인 $2700\text{ }^\circ\text{C}$ 를 기준으로 하여 전기 저항을 구하면 표 1에서 $2.47\text{E-}5\ \Omega\cdot\text{m}$ 이다. 한편, 스킨 용융 시 침투깊이는 도가니 직경의 12.5%(10-20%)가 적정 주파수, 즉

$$P=(0.1\sim 0.2)D \text{ -----}(1)$$

이므로[7], 약 20kg 을 용융하고자 하는 용기 크기($D=20\text{cm}$: 제원은 다음절에서 설명)에서 침투깊이를 약 2cm 정도 고려하면 사용 주파수는 약 100kHz 가 된다.

2.2.2 입력전원 크기

스킨용융 시 소결된 실린더 형태의 용기로부터의 열손실은 용융물에서 냉각수로 전달되는 전도열전달과 용융물 상부표면에서 대기로 전달되는 복사열전달에 의해 이루어지며, 이들 열손실의 크기는 스킨 설계를 위한 입력전원의 크기를 결정한다. 여기서는 간단한 계산을 통하여 이들 열손

실을 예측하였다. 유도스컬용기로부터 열손실 개념도는 그림 1의 아래와 같다.

전도 열전달

전도 열전달은 용융물 외벽에 소결된 입자층에서 냉각수 튜브로 전달된다. 전도 열전달을 계산을 위해 다음과 가정이 사용되었다.

- 1) 정상상태 : 용융물로부터 소결된 입자층을 통하여 전도된 열은 모두 냉각수로 모두 전달된다.
- 2) 유체 분포를 위한 하부 받침(Fluid distribution bustle)으로 열전도는 무시한다.
- 3) 소결된 입자층에서의 열전달은 1차원 열전달로 한다.
- 4) 소결층은 균일하게 형성된다.

실린더 형태의 소결층을 통해 손실되는 전도 열전달 방정식은 아래와 같다.

$$Q_{wall} = Q_{water} \text{-----} (2)$$

$$Q_{wall} = -kA(r) \frac{dT}{dr} = \frac{(T_i - T_o)2\pi k_p H_m}{\ln\left(\frac{r_o}{r_i}\right)} \text{-----} (3)$$

여기서

T_i (K): 용융물과 소결층의 안쪽 경계면 온도로 피 가열물질의 용융온도와 같다. UO_2/ZrO_2 혼합물의 경우 2850K 이다.

T_o (K): 소결층 바깥 표면온도로 냉각 튜브의 바깥온도와 같다. 여기서는 이 값의 정확한 값은 예측할 수 없으나 전체 전도 열전달에 크게 영향을 미치지 않으므로 약 20 °C(~293K)로 가정하였다.

r_o (m): 소결층을 포함한 용기 반경

r_i (m): 용융물 반경

k_p (W/m-K): 소결층 열전도도

H_m (m): 용융 후 용융물질의 높이

분말로 이루어진 소결층의 열전도도는 아래의 식들에 의해 구해질 수 있다[8].

$$\frac{1}{k_p} = \frac{f_1}{k_1} + \frac{f_2}{k_2} \text{-----} (4)$$

$$\rho_p = (\rho_1 V_1 + \rho_2 V_2)/V = (\rho_1 f_1 + \rho_2 f_2) \text{-----} (5)$$

$$f_1 + f_2 = 1 \text{-----} (6)$$

f : 체적분율, k : 열전도도(W/m=K), ρ : 밀도(kg/m³), V : 체적(m³)

UO_2/ZrO_2 (w/o 8:2) 혼합물의 경우 $\rho_f = 7960$, $k_f = 2.88$ 이며, 공기의 온도는 573K로 가정하면 $\rho_{air} = 0.596$, $k_{air} = 0.0429$ 이다. 한편, ZrO_2 의 경우 분말이 용융되었을 때 70-80 정도 수축하므로 UO_2/ZrO_2 의 경우 약 75% 정도 수축한다고 가정하면 분말 밀도(ρ_p)는 분말이 용융되어 수축되는 분율 만큼 감소하므로 $\rho_p = 7960 \times (1 - 0.75) = 2,000$ 이다. 따라서 식(5)와 (6)에서 UO_2/ZrO_2 분말과 공기의 체적 분율은 각각 $f_f = 0.25$, $f_{air} = 0.75$ 이다. 이를 이용하여 방정식 (4)로부터 소결층의 열전도도 k_p 는 0.0569로 용융물의 열전도도 2.88보다 훨씬 낮아진다.

한편, KAERI FCI 실험에서는 UO_2/ZrO_2 혼합물(w/o 8:2)을 약 20kg을 용융할 예정이지만, 용기를 형성하는 소결된 양을 고려하여 약 25kg의 분말을 주입하는 것을 기준으로 스컬 외반경

$r_o=10\text{cm}$, 높이 $h= 40\text{cm}$ 크기의 용기를 결정하였으며, 이 때 용융물 높이는 약 12cm 로 계산된다. 소결층의 두께는 보통수 mm 보다 작은 것으로 알려지고 있으며, 전도 열전달은 식(3)에서 소결된 입자층의 두께가 작을수록 비례하여 증가하는데, 보수성을 고려하여 소결층의 두께를 약 1mm 로 가정하면 약 10kW 의 전도 열손실이 발생한다.

복사열전달

용융물 표면으로부터 복사 열손실 방정식은 아래와 같다.

$$\dot{Q}_r = \varepsilon \sigma (T_{m,s}^4 - T_{sur}^4)A \text{-----} (7)$$

$$\sigma = 4.88\text{E}-08\text{Kcal/m}^2 \text{- hr - K} = 5.67\text{E}-8\text{J/m}^2 \text{- K - sec}$$

여기서,

ε : Emissivity

$T_{m,s}$: 용융물 표면온도 (K)

T_{sur} : 용융물 표면 상부 대기 온도 (K)

A : 용융물 표면적 (m^2)

복사 열손실은 용융물의 표면온도 및 대기온도의 예측이 곤란하므로 UO_2 실험결과[9]를 바탕으로 전도 및 복사 열손실을 통해 UO_2/ZrO_2 혼합물의 열손실을 추정하였다. UO_2 (용융점: $2878^\circ\text{C}=3151\text{K}$)의 경우 내경 8.04cm , 길이 12.38cm 튜브의 크기를 이용하여 용융물 약 1.5kg 용융 시 키는데 24KW 의 입력전원을 이용하였으므로 피 가열체에 가해진 열량은 유도 코일의 효율을 65% [7]라 가정하면 약 15.6kW 이다. 여기서 앞의 전도 방정식 (3)을 이용하면 벽면의 두께가 1mm 인 경우 2.2kW 가 전도 열전달에 의해 손실되며($\rho_f =8,000$, $k_f =12$, $\rho_{air} =0.596$, $k_{air}=0.0429$), 13.4kW 가 복사열전도에 손실됨을 알 수 있다. 복사 열손실은 용융물과 피막층 사이의 공간을 통한 복사 열손실이 모두 외부대기로 방출된다고 가정하였다. 복사 열전달에 의해 13.4kW 의 열손실을 발생시키기 위해 $T_{m,s}$ 는 용융점보다 300K 과열온도인 3450K , T_{sur} 은 용융온도 보다 100K 낮은 3050K 를 사용하면 약 13.4 kW 의 열손실이 발생한다($\varepsilon =0.825$). UO_2/ZrO_2 혼합물(용융점 : 2850K)의 경우도 UO_2 의 경우와 같이 용융물 온도, $T_{m,s}$, 3150K , 대기온도, T_{sur} , 2750K 를 사용하면 약 58kW 정도가 복사열로 방출된다.

따라서 UO_2/ZrO_2 혼합물의 경우 UO_2 의 경우와 같은 방법으로 전도 및 복사 열손실을 가정하여 계산하면 약 68kW 의 열손실이 발생하므로 유도 코일의 효율이 65% 정도 이므로 약 100kW 의 입력전원을 사용하면 용융 및 과열이 가능하다. UO_2 의 경우 UO_2/ZrO_2 혼합물보다 용융점이 300K 높아 같은 용융물 표면적에 대해 복사 열손실이 훨씬 클 것으로 예상되어 UO_2/ZrO_2 혼합물에 대한 위와 같은 열전달 계산결과는 보수적이라 판단된다.

용융물 과열 가능성

용융물의 과열(superheat)은 증기폭발 실험시 용융물이 물과 반응하기 전에 용융물은 최소한 용융점 보다 높아야 하므로 매우 중요한 변수중의 하나이다. 따라서 증기폭발 실험서는 용융물을 과열시켜야 하는데 KAERI 증기 폭발실험에서는 최대 300K 까지 과열시킬 예정이다. 표 2 는 지금까지 유도스킬용융법을 이용하여 용융물의 온도를 측정한 자료이다. 표 2 에서 스킨용융시 과열 전에 용융물이 냉각수 튜브와 접촉하리라는 우려는 없으며, 약 300K 이상의 과열이 잘 이루어지는 것으

로 나타났다.

3.4 UO₂/ZrO₂ 용융로 실험장치 구성도

그림 3은 UO₂/ZrO₂ 용융 실험장치 개념도를 나타내고 있다. 그림에서 고주파 발진기는 적정 주파수 및 전원공급을, 냉각수는 용융물 냉각을 위해 필요하다. 냉각수 튜브로의 냉각수 공급유량은 튜브 입,출구에서의 온도차이를 2도로 가정하여 아래의 식에 의해 계산하였다.

$$\dot{Q}_{\text{water}} = \dot{m} c_p \Delta T \quad (c_p = 4182\text{J/kg}\cdot\text{K}, \Delta T = 2) \text{-----}(8)$$

튜브 냉각수 유량은 전도 열손실은 20kW로 하여 결정하였으며, 복사열손실은 37kW이나 보수성을 감안하여 약 60kW로 하여 계산하였다.

3. 결론

용융점이 2850K인 UO₂/ZrO₂ 혼합물의 용융이 유도 스킨용융법으로 가능하며, 유도스킬 용융법의 장점 및 ZrO₂, UO₂, ThO₂ 등의 실험결과로 판단할 때 용융 및 과열이 충분히 가능할 것으로 판단된다. 계산결과 UO₂/ZrO₂ 20kg 용융을 위해 전원은 100kW, 100Hz의 전원 공급이 필요하며, 스킨 크기는 반경 10cm, 높이 40cm, 냉각수 유량은 570L/min 정도 필요하였다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

1. I. Hutiniemi 등, "FCI Experiments in the Corium/Water System", NUREG/Cp-0142 Vol. 3, p 1712-1727, Sep. 1995
2. A. Benuzzi, D. Magallon, "FARO-LWR Programme L-14 Test Quick Report", Technical Report No. I.94.171, JRC, Dec. 1994.
3. Joseph F, Wenckus 등, "Cold Crucible System", US patent No 4,049,384, Sep. 20, 1977.
4. 임채현, "금속저널 전문지: 구조와 열처리, 1995.10
5. E. Kaldis, "Current Topics in Materials Science Vol. 1", North-Holland Publishing Company, 1978.
6. S. Abalin 등, "Study of Corium Electrical Resistance", RRC,RP-TR-7, July, 1995
7. 이재건, "실무고주파 가열", 1995년 3월
8. Jacob Bear 등, "Introduction to Modeling of Transport Phenomena in Porous Media", Kluwer Academic Publishers, 1990
9. Claude C. Herrick 등., "Growth of Large Uraninite and Thorianite Single Crystal from the Melt using A Cold-Crucible Technique", Journal of Crystal Growth 51, 1981, p.183-189
10. John E. Keem 등, "Growth of ThO₂ Single Crystals by a Crucibleless Skull-Melting Technique", American Ceramic Society Bulletin, Vol. 56, Nov. 1977

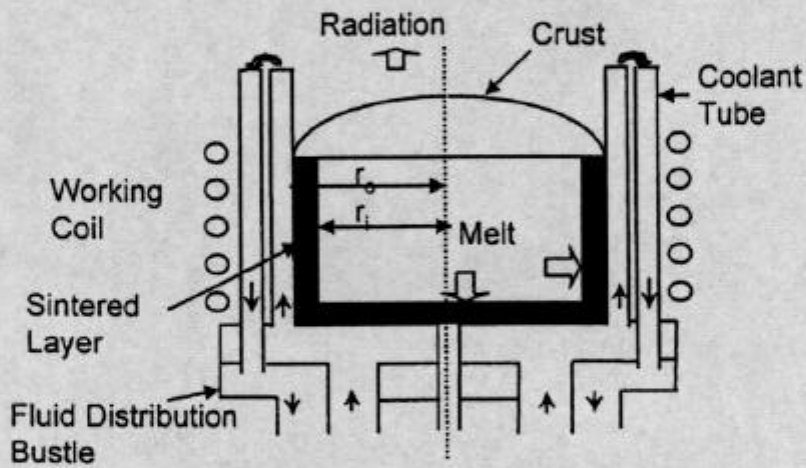
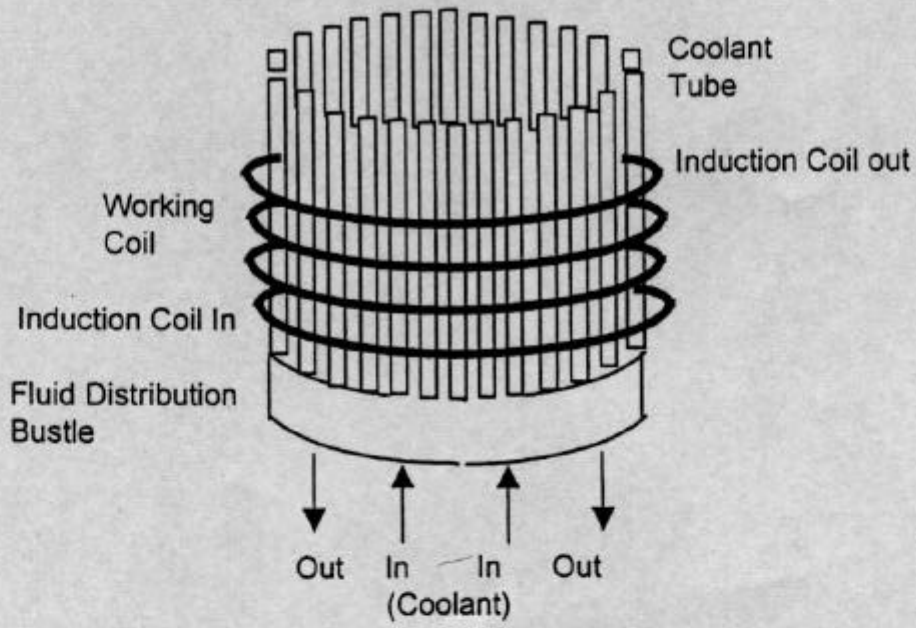


그림 1. 스킨 용융장치 개념도(상) 및 용융 후 축 방향 단면도(상)

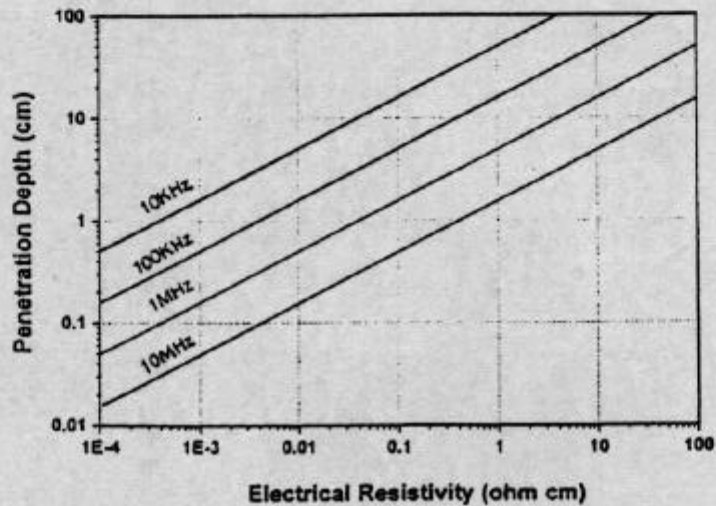


그림 2. 전기 저항, 침투깊이, 주파수와의 관계

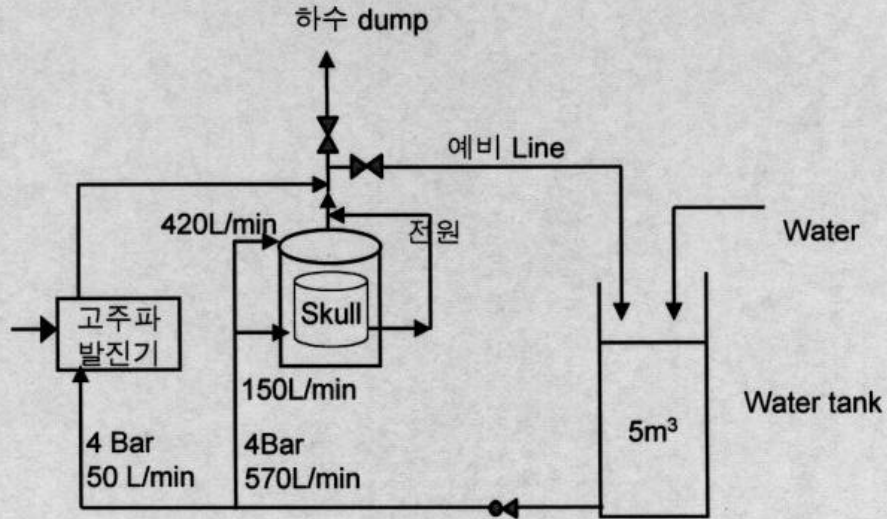


그림 3. UO₂/ZrO₂ 용융 실험장치 구성도

표 1. 액체상태 UO₂/ZrO₂ 혼합물 전기저항(Ω.m.10⁻⁵)[6]

Composition wt %	N sample	Mode	Temperature, ° C			
			2570	2620	2700	2800
C-100 UO ₂ -77.8 ZrO ₂ -22.2	16	Heating	-	3.0	2.25	1.96
		Cooling	-	-	-	-
	17	Heating	4.3	3.15	2.47	1.95
		Cooling	-	2.92	-	1.95
	18	Heating	4.28	3.15	2.47	-
		Cooling	-	-	-	-

표 2. 용융물질에 따른 과열측정 자료

Material	Melt Mass (Kg)	Skull Size (Cm)	Frequency	Power Input (kW)	Melting Point (° C)	Measured Temp. Or Superheat	References
ThO ₂	1.5	10.16 ID	450kHz 3MHz	19-23	3390	3120-3680 ° C	[10]
Ti	34	25 ID 30 H	2800Hz	500	-	339K	[4]
ZrO ₂	2-6	10.8 ID 8 H	-	-	2690	3000 ° C	[5]
Ti	20	-	-	350	-	310K	[4]

ID : Tube Inner Diameter, H : Tube Height, - : Not Available