

사용후핵연료 중간 저장시설의 사고시
피복관의 산화 거동 연구

유길성, 김건식, 민덕기, 노성기, 김은가
한국원자력연구소

요 약

사용후핵연료 중간저장 시설의 누수사고시 예상되는 SFUEL 컴퓨터 코드 분석 결과에 따른 실제 피복관의 산화시험 결과 저장용기 밑바닥 세가지 구멍의 크기 조건들에 대해 환기회수가 시간당 0회인 경우는 사고후 48시간 경과시 매우 심각한 산화가 예상되며, 나머지 조건의 경우에는 48시간 산화 후 최대산화량이 $90\text{mg}/\text{dm}^2$ 으로 시설의 누수사고시 산화막에 의한 영향은 거의 무시 할 수 있는 것으로 나타난다. 9가지의 시험조건중 안전성은 구멍의 크기가 7.62cm, 환기회수가 시간당 2회인 경우가 가장 높으며, 두번째는 구멍의 크기가 5.08cm, 시간당 환기회수 2회의 경우였다. 같은 환기회수의 경우 구멍의 크기가 5.08과 7.62cm인 경우는 비슷하게 나타나지만 2.54와 5.08cm의 경우는 큰 차이를 보인다. 여기에서 수행된 시험은 미조사, 미전처리 시편을 사용한 것이므로 실제로 조사 및 로내 산화막이 입혀진 시편에 대한 추후 시험이 요구된다.

1. 서론

전세계적으로 원자력발전소를 가진 나라들은 사용후핵연료의 처리, 처분정책 결정이 지연됨에 따라 사용후핵연료 중간저장의 장기화가 불가피한 것으로 보이며, 이에 따른 중간저장 방법 또한 여러가지 방법으로 고려되어야 할 것으로 보인다. 사용후핵연료의 중간저장 방법은 습식 및 건식 저장방법으로 나누어지며, 습식 저장의 경우 지금까지의 경험 및 연구결과로부터 사용후핵연료를 장기간 저장하여도 특별한 핵연료의 열화 현상이 발생하지 않는 것으로 알려져 있다[1-10]. 그러나 습식저장방법은 이러한 장점에 반하여 시설의 유지, 보수비가 건식저장방법에 비해 상대적으로 많이 들고, 또한 2차폐기를 발생 등과 같은 단점도 있다. 건식저장의 경우 냉각재로 주로 공기나 불활성기체 등과 같은 기체를 사용하므로 2차폐기물의 발생량이 적고 시설 운영비가 비교적 적게드는 잇점을 가질 수 있다. 그러나 이러한 건식저장방법은 습식에 비해 피복관 온도가 높아 장기 저장 시 피복관의 산화문제가 핵연료봉의 저장 안전성에 영향을 줄 수 있으며[11-14], 특히 결합을 가진 핵연료봉의 경우 UO_2 의 산화 현상으로 인한 피복관의 이차적인 결합발생으로 핵연료봉의 건전성에 심각한 영향을 줄 수 있다[15-19]. 한편 습식 저장의 경우에도 사고에 의한 피복관의 공기노출을 예상할 수 있다. 본 연구는 사용후핵연료 중간저장시설의 안전성과 관련하여 가상 누수사고시 일어날 수 있는 공기중에서의 Zircaloy-4 피복관의 산화정도를 알아보기 위하여 SFUEL 컴퓨터 코드로 수행한 사고시 피복관 온도변화 자료를 기초로 하여 온도변화에 따른 실제 핵연료 피복관의 산화량을 측정하고 이에 따른 산화현상을 분석 검토하는 것이다.

2. 시험 방법

방사성폐기물관리 사업과 관련하여 진행되어온 사용후핵연료 중간저장 시설에 대한 개념설계에서 핵연료 저장용기 설계자료 및 외부조건을 이용하여 SFUEL 컴퓨터 코드로 분석한 연구결과[20]는 다음 표 1과 같다. 이 때의 저장시설의 외기온도는 여름철 우리나라에서 일년중 가장 높은 온도인 섭씨 38℃를 기준으로 하였으며, 사용후핵연료집합체 저장용기의 밑바닥 구멍의 크기는 2.54, 5.08 및 7.62cm로 하였다. 각 구멍의 크기

조건별 저장용기내 환기회수를 0,1 및 2회/시간으로 하였으며 대상 연료는 연소도가 40GWD/MTU이고 냉각시간이 5년인 가압경수로형 핵연료며, 저장시설에는 1815MTU의 핵연료가 저장되어 있다고 가정하였다. 산화시험은 상기한 모두 9가지 조건에 대한 컴퓨터 코드해석 결과에서 나온 조건별 온도상승과 일치하도록 전기로의 온도를 증가시키면서 수행하였다. 너무 높은 온도까지 상승되어 실제적인 시험이 어려운 조건은 시험가능한 온도구간까지만 시험을 하였으며 나머지는 사고후 48시간(이물)을 기준으로 시험을 수행하였다. 시험시편으로써는 가압경수로형 핵연료 피복관 재료로 사용되는 Teledyne WHA CHANG ALBANY사의 상용 피복관 재료를 사용하였다. 시편은 튜브형태(외경 10.7, 내경 9.3, 길이 18mm)의 시편을 사용하였으며 핵연료 피복관으로 사용되는 최종 생산품의 상태를 그대로 이용하였다. 시편들에 대한 산세(pickling)처리에는 $H_2O : HNO_3 : HF$ 를 50 : 47 : 3의 체적비로 섞어 실온에서 3분간 실시하였다. 산세를 마친 시편들은 먼저 증류수로 세척한 뒤 아세톤을 사용한 초음파세척기로 약 1분간 세척한 다음, 다시 증류수로 세척하여 전기 드라이어로 건조시켰다. 이들 시편에 대한 산화시험은 자동무계측방법을 이용하여 수행하였다.

3. 시험결과 및 토의

다음 그림 1-9는 시험방법에서 설명한 9가지 시험조건에 대한 시험결과들로서 초기 가열로 인한 부력의 영향을 보정해준 결과들을 보여준다. 그림 1, 2 및 3은 밀마다 구멍의 크기가 2.54cm, 환기회수는 각각 시간당 0회, 1회, 2회인 경우의 시간별 산화시험 결과를 보여주고 있다. 각 경우에 대한 시간에 따른 시험온도 증가는 시험결과 그림의 위에 표시되어 있다. 환기회수가 시간당 0회인 경우 그림에서 보듯이 사고 초기시, 즉 약 20시간이 경과 할 때까지는 특별한 피복관 산화가 진행되지 않다가 이 후 부터 급격한 산화경향을 보여주고 있으며 32시간 후 약 $80mg/dm^2$ 의 무게증가를 보여주었다. 그림 2는 환기회수가 시간당 1회인 경우의 시간별 산화시험 결과를 보여주고 있다. 사고 초기시, 즉 약 17시간이 경과 할 때까지는 특별한 피복관 산화가 진행되지 않다가 이 후 부터 서서히 산화가 진행되며 약 25시간 부터는 급격한 산화경향을 보여주고 있다. 48시간 후 약 $80mg/dm^2$ 의 무게증가를 보여주었다. 그림 3은 환기회수가 시간당 2회인 경우의 시간별 산화시험 결과로서, 약 20시간이 경과 할 때까지는 특별한 피복관 산화가 진행되지 않다가 이 후 부터 급격한 산화경향을 보여주고 있으며 48시간 후 약 $90mg/dm^2$ 의 무게증가를 보여주었다. 그림 4, 5 및 6은 밀마다 구멍의 크기가 5.08cm, 환기회수는 시간당 0회, 1회, 2회인 경우의 시간별 산화시험 결과를 보여주고 있다. 시간당 0회의 경우 약 25시간이 경과 할 때까지는 특별한 피복관 산화가 진행되지 않다가 이 후 부터 급격한 산화경향을 보여주고 있으며 32시간 후 약 $50mg/dm^2$ 의 무게증가를 보여주었다. 그림 5는 환기회수가 시간당 1회인 경우의 시간별 산화시험 결과로서 사고 초기시, 즉 약 20시간(395℃)이 경과 할 때까지는 특별한 피복관 산화가 진행되지 않다가 이 후 부터 서서히 증가하여 48시간 후에는 약 $13mg/dm^2$ 의 적은 무게증가를 보여주었다. 그림 6은 환기회수가 시간당 2회인 경우의 시간별 산화시험 결과를 보여주고 있다. 40시간이 경과할 때까지는 거의 무게증가를 보이지 않다가 이 후 부터 서서히 증가하여 48시간 후에는 약 $7mg/dm^2$ 의 무게증가를 보여주었다. 그림 7, 8 및 9는 밀마다 구멍의 크기가 7.62cm, 환기회수는 시간당 0회, 1회, 2회인 경우의 시간별 산화시험 결과를 보여주고 있다. 그림에서 보듯이 시간당 0회인 경우 약 18시간이 경과 할 때까지는 특별한 피복관 산화가 진행되지 않다가 이 후 부터 급격한 산화경향을 보여주었으며 36시간 후에는 약 $60mg/dm^2$ 의 무게증가를 보여주었다. 그림 8은 환기회수가 시간당 1회인 경우의 시간별 산화시험 결과로서 약 40시간까지는(425℃) 특별한 피복관 산화가 진행되지 않다가 48시간 후에는 약 $9mg/dm^2$ 의 무게증가를 보여주었다. 그림 9는 환기회수가 시간당 2회인 경우의 시간별 산화시험 결과를 보여주고 있다. 그림에서 보듯이 약 44시간이 경과 할 때 까지 특별한 피복관 산화가 진행되지 않는 것으로 나타났다.

전체 시험조건들로부터 나온 결과들을 요약하면 다음 표 2와 같다. 표에서 보듯이 중간저장 시설의 사고시(외기온도가 38℃) 예상되는 각 조건별 산화시험결과 저장용기 밀바닥의 세가지 구멍의 크기조건에 대해 환기회수가 시간당 0회인 세가지 경우에는 사고후 48시간 경과시 매우 심각한 산화가 예상되며, 나머지 조건의 경우에는 48시간 산화 후 최대 $90mg/dm^2$ 으로 사고시 산화막에 의한 영향은 거의 무시 할 수 있을 것으로

보인다. 9가지의 경우중 안전성이 가장 높은 것은 구멍의 크기가 7.62cm, 시간당 환기수가 2회인 경우이며, 두번째로 높은 것은 구멍의 크기가 5.08cm, 환기회수가 시간당 2회인 경우였다. 같은 환기회수의 경우 구멍의 크기가 5.08과 7.62cm인 경우는 비슷하게 나타났으나 2.54와 5.08cm의 경우는 큰 차이를 보인 것으로 나타났다. 여기에서 수행된 시험은 미조사, 미전처리 시편으로 실제 조사 및 로내 산화막이 입혀진 시편에 대한 추후 시험이 요구된다.

4. 결 론

SFUEL 컴퓨터 코드로 분석한 사용후핵연료 중간저장 시설의 누수사고시 예상되는 9가지 조건별 산화시험 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

- 1) 새가지 저장용기 밑바닥 구멍의 크기 조건에 대해 환기회수가 시간당 0회인 새가지 경우에는 사고후 48시간 경과시 매우 심각한 산화가 예상된다.
- 2) 나머지 조건의 경우에는 48시간 산화 후 최대 90mg/dm²으로 사고시 산화막에 의한 영향은 거의 무시할 수 있는 것으로 나타났다.
- 3) 9가지의 경우중 안전성은 구멍의 크기가 7.62cm, 시간당 2회 환기의 경우가 가장 높았으며 두번째는 5.08cm, 시간당 2회의 경우였다.
- 4) 같은 환기회수의 경우 구멍의 크기가 5.08과 7.62cm인 경우는 비슷하게 나타났으나 2.54와 5.08cm의 경우는 큰 차이를 보였다.

참고 문헌

1. IAEA, "Behavior of Spent Fuel Assemblies during Extended Storage", IAEA-TECDOC-414 (1987)
2. IAEA, "Behavior of Spent Fuel and Storage Facility Components during Long-term Storage", IAEA-TECDOC-673 (1991)
3. 서인석외, "결합 핵연료의 습식 저장 시 거동에 관한 연구", 한국에너지연구소, 년말보고서, KAERI/RR-531/86 (1986)
4. I.S.Suh et al., "Study on the Behavior of Defected Light Water Reactor Spent Fuel in Wet Storage", Korea Advanced Energy Research Institute, Tae Jon, Korea, KAERI/TR-127/88 (1988)
5. 노성기 외, "결합 핵연료의 수중 저장에 따른 물성 변화 연구", 과학기술처, 년말보고서, KAERI/RR-674/87 (1987)
6. 노성기 외, "결합 핵연료의 수중저장특성 시험 연구", 한국에너지연구소, 년말보고서, KAERI/RR-744/88 (1988)
7. 김은가의, "조사제 시험 평가 기술개발 - 결합 핵연료 물성변화연구", 한국에너지연구소, 년말보고서, KAERI/RR-777/88 (1988)
8. 홍계원의, "사용후핵연료 관리 안전성 연구 - II. 결합 핵연료의 수중 저장거동연구", 한국에너지연구소, 년말보고서, KAERI/RR-889/89 (1989)
9. 유길성의, "습식 저장 시 결합 핵연료 거동 연구", 한국원자력연구소, 년말보고서, KAERI II/RR-27/90 (1990)
10. 유길성의, "결합 핵연료의 거동 연구", 한국원자력연구소 부설 원자력환경관리센터, 년말보고서, KAERI-NEMAC/RR-57/91 (1991)
11. 유길성의, "건식저장조건에서의 Zircaloy-4 핵연료 피복관 재료의 산화 거동", '93춘계학술발표회, 원자력학회 (1993)
12. 유길성의, "Zircaloy-4 피복관 재료의 공기 중에서의 산화 거동", '93추계학술발표회, 원자력학회 (1993)

13. 유길성의, "조사 및 미조사전처리 Zircaloy-4 피복관재료의 공기중 산화거동", '94춘계학술발표회, 원자력학회 (1994)
14. 유길성의, "사용후핵연료 피복관의 공기중 산화거동", '94추계학술발표회, 원자력학회 (1994)
15. 유길성의, "미 조사 및 조사 UO₂의 공기 중 산화 거동 연구", '92춘계학술발표회, 원자력학회 (1992)
16. G.S.You et al., Proceedings of 1992 Joint PIE Tech.Seminar between KAERI and JAERI, Oarai Establishment, JAERI, Nov. 9-10, 1992
17. 김건식의, "조사 및 미 조사 UO₂의 공기 중 산화 거동", '93춘계학술발표회, 원자력학회 (1993)
18. 김건식의, "공기 중에서의 UO₂의 무게 이득 거동과 U₃O₈상 형성에 관한 연구", '93추계학술발표회, 원자력학회 (1993)
19. 김건식의, "공기중에서 열변화가 UO₂ 산화에 미치는 영향과 UO₂ 표면에 U₃O₈상 형성에 관한 연구", '94춘계학술발표회, 원자력학회 (1994)
20. 노성기의, "사용후핵연료 저장시설의 장기적 건전성 연구" 제3권 사용후핵연료 저장중 특성변화 연구, KAERI-NEMAC/RR-126/94 (1994)

표 1. 사용후핵연료 중간저장시설의 누수 사고시 열해석 결과

cond.	baseplate hole size (cm)								
	2.54			5.08			7.62		
	air change rate (no./hr)								
hours	0	1	2	0	1	2	0	1	2
4	140	140	140	140	140	140	139	139	139
8	231	231	231	228	227	227	225	223	222
12	314	314	314	304	299	298	297	286	282
16	389	387	386	372	364	350	362	331	318
20	460	451	450	434	395	382	422	361	334
24	530	509	507	493	422	397	479	381	343
28	610	563	557	557	440	404	539	397	351
32	710	609	594	626	454	409	602	410	357
36	887	644	620	709	465	414	674	418	360
40	924	670	632	834	473	417	765	425	361
44	992	684	633	856	478	419	905	429	361
48	1940	690	631	879	482	420	939	432	
52		692	629	1490	484	420	1000	433	
56		692	626	1890	486		2010	434	
60			625		488			434	
64			624		489				
68			623		490				
72			622		491				

표 2. 계장용기 및 환기조건별 산화시험 결과

구멍의 크기	2.54cm			5.08cm			7.62cm		
환기회수 (회/시간)	0	1	2	0	1	2	0	1	2
22시간후무게 이득(mg/dm ²)	80	-	-	50	-	-	40	-	-
36시간후무게 이득(mg/dm ²)	-	-	-	-	-	-	60	-	-
48시간후무게 이득(mg/dm ²)	80	90	-	13	7	-	9	0	-
규격편무게증가시간(온도)	20 (460)	17 (500)	20 (450)	25 (500)	21 (395)	40 (417)	18 (400)	40 (425)	44 (361)
48시간 후 예상최고온도	1940	690	631	879	482	420	939	432	361
안전도 순위	9	5	6	7	4	2	8	3	1

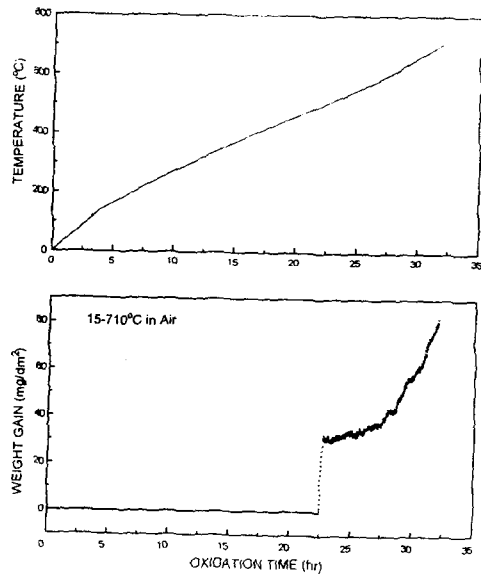


그림 1. 중간저장 시설 사고시 온도변화에 따른 산화 경향
외부온도 : 38°C, 계장용기 구멍 크기 : 2.54cm,
환기회수 : 0회/시간

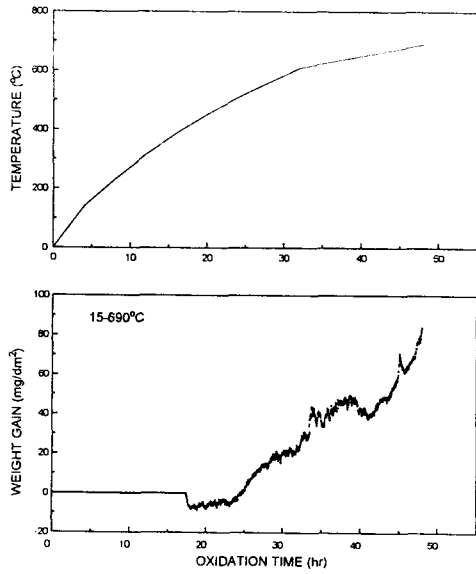


그림 2. 중간저장 시설 사고시 온도변화에 따른 산화 경향
외부온도 : 38°C, 저장용기 구멍 크기 : 2.54cm,
환기회수 : 1번/시간

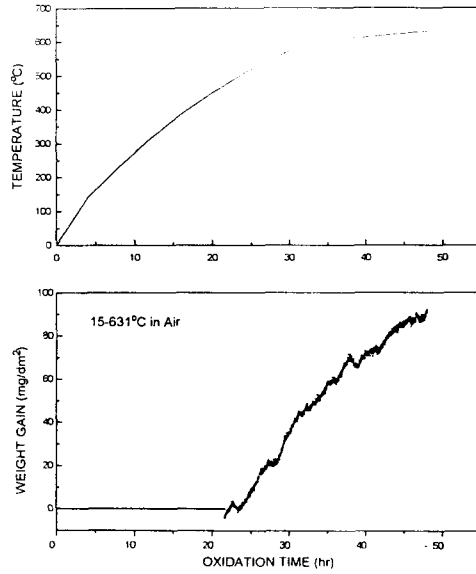


그림 3. 중간저장 시설 사고시 온도변화에 따른 산화 경향
외부온도 : 38°C, 저장용기 구멍 크기 : 2.54cm,
환기회수 : 2번/시간

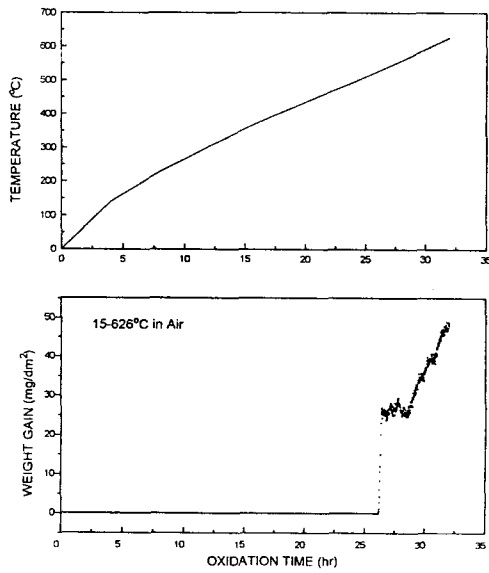


그림 4. 중간저장 시설 사고시 온도변화에 따른 산화 경향
외부온도 : 38°C, 저장용기 구멍 크기 : 5.08cm,
환기회수 : 0번/시간

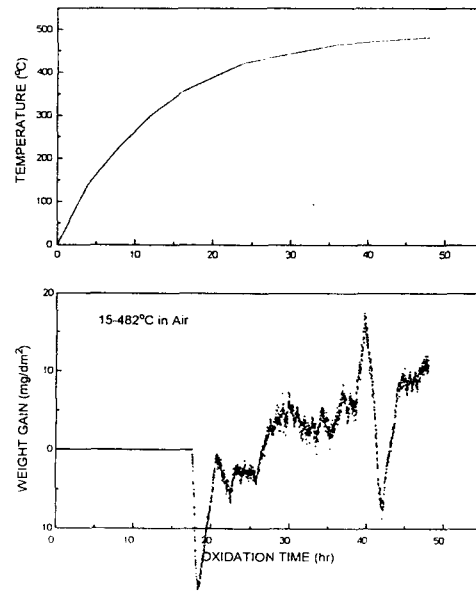


그림 5. 중간저장 시설 사고시 온도변화에 따른 산화 경향
외부온도 : 38°C, 저장용기 구멍 크기 : 5.08cm,
환기회수 : 1번/시간

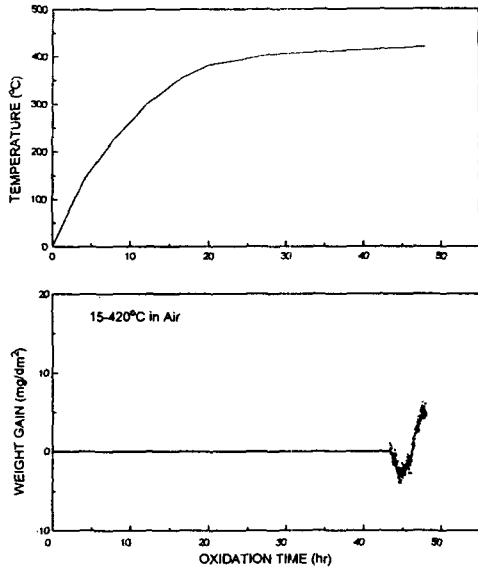


그림 6. 중간계장 시설 사고시 온도변화에 따른 산화 경향
 외부온도 : 38℃, 저장용기 구멍 크기 : 5.06cm,
 환기회수 : 2번/시간

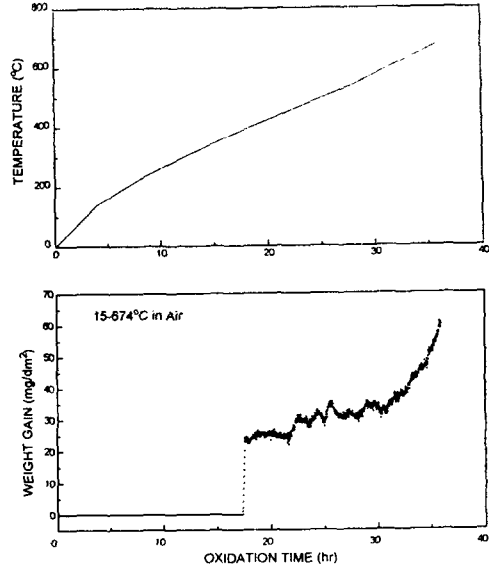


그림 7. 중간계장 시설 사고시 온도변화에 따른 산화 경향
 외부온도 : 38℃, 저장용기 구멍 크기 : 7.62cm,
 환기회수 : 0번/시간

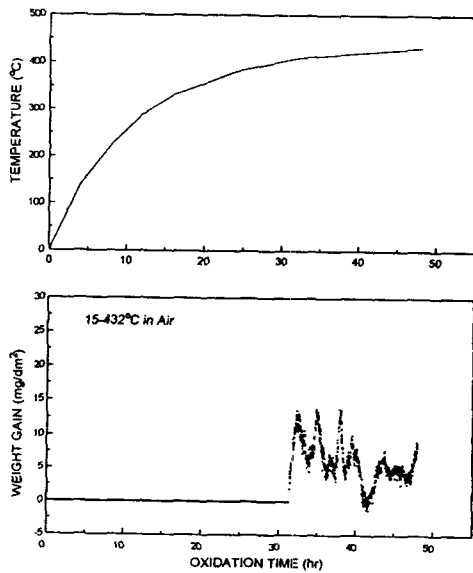


그림 8. 중간계장 시설 사고시 온도변화에 따른 산화 경향
 외부온도 : 38℃, 저장용기 구멍 크기 : 7.62cm,
 환기회수 : 1번/시간

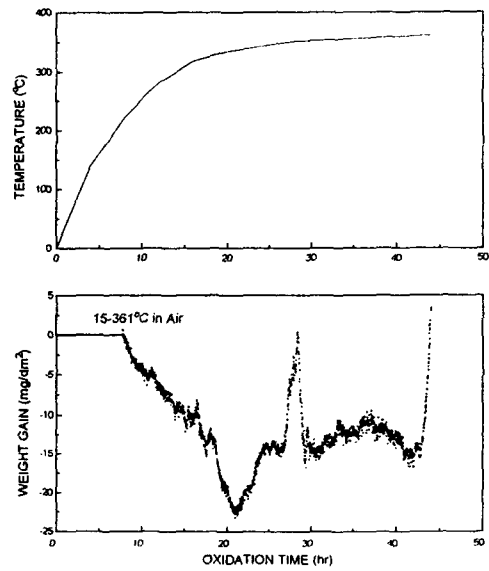


그림 9. 중간계장 시설 사고시 온도변화에 따른 산화 경향
 외부온도 : 38℃, 저장용기 구멍 크기 : 7.62cm,
 환기회수 : 2번/시간