

중성자흡수체를 이용한 사용후핵연료 저장대 설계에 관한 기술현황

장상균, 신태명
한국원자력연구소

요 약

원자력발전소내 사용후핵연료 습식저장 방식 중에서 중성자흡수체를 사용하여 핵연료를 보관하는 중성자흡수체 저장대에 대한 국내의 기술현황을 조사하였다. 핵연료저장대에 중성자흡수체를 사용하는 목적은 핵연료로부터 방출되는 중성자를 흡수하여 임계조건을 만족하면서 단위 핵연료 저장공간을 줄이기 위함이다. 본 논문에서는 국내 핵연료저장대 설치현황을 파악하고, 국내의 중성자흡수체 재료로 사용되는 Borated Stainless Steel, Boral 및 Boraflex의 재료특성 등을 조사하였다. 또한 국내외 특허 출원된 중성자흡수체 저장대에 관한 자료를 검토하였다. 현재 국내에 외국회사의 완성품 인도방식으로 설치되었던 중성자흡수체 저장대에 대한 조사결과는 차세대 원자로 핵연료저장대의 중성자흡수체 선정 및 구조설계에 참고자료로 활용될 것이다.

1. 서 론

현재 국내에서 가동중인 가압경수로형 원자력발전소는 고리 1,2,3,4호기, 영광 1,2,3,4호기, 울진 1,2호기가 있다. 건설 초기 이들 발전소의 핵연료저장대는 예기치 않은 노심의 고장이나 검사를 위한 1노심 분의 저장용량을 제외하고 적게는 1년분에서 최고 20년분까지의 저장용량을 갖도록 설계되었다[1]. 그후 핵연료 재처리금지조항의 유지와 중간저장시설 부지확보 등의 어려움으로 사용후핵연료 처리에 대한 정책도 상황변화에 맞추어 수정이 불가피하게 되었다. 따라서 저장조의 저장용량이 포화에 이른 고리 3호기와 울진 1,2호기는 중성자흡수체 저장대를 추가하거나 교체하여 저장용량을 확장한 바 있으며, 영광 1,2호기 등은 현재 저장대 교체를 계획하여 추진중에 있다. 최근에 설치된 영광 3,4호기 저장대는 연소도를 고려한 저장지역의 분리방법 및 저장밀도 개념(저장공간의 50% 및 75%만 사용)을 채택하여 저장용량을 증대시킨 스텐레스강 구조물로 추후 용량증대가 필요할 때 기존의 저장대에 중성자흡수체를 삽입하여 100% 저장밀도를 활용할 수 있어 최대 20년분 정도의 저장용량을 갖추고 있다. 앞으로 건설될 후속기(영광 5,6호기 등)의 경우는 설치 초기부터 중성자흡수체 저장대를 채택할 것으로 예상된다. 앞으로 핵연료저장대의 개발목표도 저장능력 및 경제성을 극대화하기 위해 연소도를 고려한 저장지역 분리방법 및 최적의 중성자

흡수체를 사용한 저장방법이 적용될 것이다. 발전소내 저장대 뿐만 아니라 중간저장시설에까지 폭 넓게 적용될 수 있는 중성자흡수체 저장대에 대한 개발에 대비하여 중성자흡수체 재료의 특성과 약 및 선택 또는 개발이 절실한 실정이다. 본 논문에서는 국내 핵연료저장대의 설치현황을 비교 분석하고, 추후 중성자흡수체 저장대에 대한 참고자료로 활용될 중성자흡수체에 대한 재료특성을 검토하며, 국내외 중성자흡수체 저장대에 대한 구조물의 특성을 조사 및 분석하고자 한다.

2. 본 론

2.1 국내 핵연료저장대 설치현황

국내 핵연료저장대의 설계는 1970년대 말부터 원자력발전소 건설과 함께 계속해서 개선되어 왔다. 건설초기 저장대의 저장용량설계는 교체주기당 최대교체량과 비상시 전 노심 해체량을 합한 최소저장용량 요건[2]에 기준을 두었으나, 그 후 핵연료 재처리 정책의 난항으로 발전소내 저장용량의 확대가 요구되자 발전소내 주어진 공간에 가능한 많은 양의 핵연료를 보관할 수 있도록 개선된 저장대가 설치되어 왔다. 국내에 설치된 저장대의 발전과정 및 특성을 비교하여 분류하면 표 1과 같이 나눌 수 있다. 표 1은 발전소별 전 노심의 핵연료 수, 핵연료의 사양, 저장대 피치 및 저장특성 등을 보여주고 있다. 국내발전소 저장대의 개선된 주요특징을 요약하면 다음과 같다.

- 원자로의 장주기운전(18개월 주기)에 대비해 핵연료의 최대 우라늄농축도를 5.0 w/o까지 가정
- 저장대의 재료로 기존의 스테레스강에 중성자흡수물질의 추가
- 저장 셀 사이의 간격(피치)을 10인치 내외로 줄임으로써 저장능력의 극대화
- 저장대의 저장용량을 최소 10년분에서 20년분까지 확보
- 핵연료의 연소도에 따라 저장지역을 분리한 보관방식 및 저장지역에서의 저장밀도개념 채택
- 저장대 구조물을 지지격자형의 고정형에서 벌집모양형의 자립형으로 구조개선
- 저장대의 설계 및 공급이 NSSS 공급사에서 전문 저장대 공급사로 이전하는 추세

2.2 중성자흡수체 종류 및 재료특성

발전소내 핵연료 저장능력을 증대시키기 위해 저장대에 중성자흡수물질을 사용하고 있는데, 그 물질로는 흡수단면적당 중성자 흡수율이 비교적 큰 화합물 즉, Borated stainless steel, Boral, Boraflex, Tetrabor, Cerashield, Boron-Al합금 및 Cadminox 등이 개발되었다. 중성자흡수체 재료의 주요 선택기준은 중성자에 대한 저항성, 내부식성, 기계적 안정도, 재료의 무게, 감속재의 소모성, 기체발생율, 가동중검사의 필요성, 사용사례 및 문제 발생이력 등이다[3]. 미국 원자력규제위원회(US NRC)는 중성자흡수체로 사용되는 물질의 기계적 건전성 및 장기간 동안의 안전성을 입증하려는 자료는 이를 확인하는 실제 시험을 포함하여야 함을 인허가 요건으로 규정하고 있다[4]. 국내에 사용중인 중성자흡수체의 종류로는 탄화붕소(B₄C)를 1100 계열 알루미늄합금에 피복시켜 만

든 Boral, 붕소농도가 1.7w/o 이상 함유된 Borated stainless steel(BSS) 및 Boraflex가 있다. 이들 중성자흡수체 재료에 대한 재료특성은 아래와 같다.

가. Boral[5]

Boral은 탄화붕소와 이를 피복한 1100 계열 알루미늄합금으로 구성되어 있으며 AAR Brooks and Perkins사의 특허 제품이다. Boral판의 중간층에 균질하게 분포되어 있는 탄화붕소는 ASTM C-750-80 type III의 미세한 분말로 입자 크기는 60 ~ 200 mesh이며, 물리적으로 안정되고, 화학적으로는 불활성형의 고붕소농도 함유물로 열중성자 제거 원이다. 1100 계열 알루미늄 합금은 고인장강도 특성을 갖는 가벼운 금속으로 방사선이나 대기방출시 표면에 형성되는 산화 막에 의해 부식저항을 갖으며 pH범위를 4.5 ~ 8.5까지 유지시켜준다. 탄화붕소와 알루미늄은 화학적으로 조화를 이루고 사용후핵연료의 방사능, 열적 및 화학적 환경에서 장기간 사용에 적합한데, 이는 장기간의 중성자 및 감마선 조사와 고온(540 °C)에서도 안정된 금속 알루미늄 고착제를 함유하고 있기 때문이다. Boral의 부식저항으로 저장수조의 화학성분에 대해 전기화학적부식, 틈새부식, 입계부식, 응력부식 등이 거의 발생하지 않는 것으로 보고되었다. Boral의 방사능저항에 대한 물리적 및 화학적인 성질변화를 조사하는 시험으로 총 방사능 노출 및 잔류 반응도, 치수 및 중량, 비중량, 경도, 기계적 강도, 중성자 감쇠, 용해된 붕소량, pH, 전도도 및 검출 할로젠, 조사동안 가스방출율, 총 가스방출량 및 가스성분 등이 검토되었다. Boral의 차폐능력은 탄화붕소 입자내의 B¹⁰ 동위원소의 함유량에 의해 결정되는데 단위면적(Cm²)당 3x10¹¹ rads 감마선 및 16x10¹⁹ 열중성자원의 노출에 계속 유지되고 있음이 보고되었다. 차폐능력에 대한 시험은 습식화학해석법 또는 중성자감쇠시험 등으로 수행되었다.

나. Borated Stainless Steel(BSS)[6]

독일의 Siemens사에 의해 1970년대초 개발된 고밀도 핵연료저장대에 중성자흡수체로 활용되어 온 BSS은 스테레스강에 크롬과 니켈을 주성분으로 천연 혹은 농축붕소를 보통 1.6 ~ 1.9 w/o 첨가시킨 화합물이다. BSS의 주요특징은 Boral이 샌드위치형으로 저장대 벽면에 부착되는 것과 달리 스테레스강과 유사한 강도를 갖고 중성자흡수재질이 쉘 상하단 전체에 걸쳐 균질하게 분포되어 있어 저장활용 범위가 넓다는 점이다. BSS의 기계적 성질은 붕소농도에 좌우되는데 붕소의 함량이 증가함에 따라 재료의 인장, 항복강도 및 경도는 증가하나 연성, 충격강도 및 내부식성등은 급격히 감소하는 것으로 나타났다[3]. 따라서 재료의 기계적 성질 및 제작성을 고려할 때 붕소함유량은 최대 2.2 w/o로 제한된다. BSS내 붕소의 증가에 기인한 붕화물의 침전(입계주위에서의 크롬의 감소)은 재료의 감도(sensitization)에 대한 시험관점에서 중요한데, 특히 질산 및 황산에서의 크롬 감소가 보고된 바 있다. BSS재질에 대한 추가적인 시험으로 전기화학적 부식 및 전기적

결합 효과와 관련한 시험, 부식침투, 입계부식, 응력부식 등이 수행되었다. BSS의 장기간의 성능 평가는 부식효과 및 B¹⁰의 연소도에 따라 영향을 받는데 B¹⁰의 연소도는 저장수조 환경요건에서 무시할 수 있다. 일반적으로 탈염된 물에서의 BSS의 중량감소는 0.1 mg/cm²/month으로 가정되며 이것은 50년 동안 약 2μm의 재료손실 및 반응도의 증가를 초래한다고 보고되었다. BSS 재질에 대해 수행된 시험에는 열분석, 상온인장시험, 굽힘시험, 치수검사, 표면처리, 가열에 의한 붕소분포도, 판내 붕소분포도, 재료 동일성 검사, 열처리조건의 검증 등이다.

다. Boraflex[3]

미국 BISCO사 제품의 Boraflex는 실리콘 고분자 유기화합물과 탄화붕소의 복합체로 실리콘 화합물보다 내방사성이 양호한 것으로 알려져 있으나 중성자 조사에 의한 기체발생으로 밀봉용 판에 배기구를 사용토록 권고하고 있다. 또한 1993년 Palisades 발전소의 Boraflex 쿠폰을 사용한 감시프로그램에서 조사되는 감마선 및 저장수조의 화학적 환경에 의해 쿠폰의 기능저하가 관찰되었고, 이로 인해 임계도의 안전여유가 5% 이상에서 2%까지 감소되는 것으로 보고되었다[7]. 따라서 이와 같은 재료의 문제점 및 제작사의 도산으로 공급이 중단된 상황이다.

2.3 국내의 중성자흡수체 저장대의 구조특성

현재 국내외적으로 중성자흡수체를 사용하여 저장능력을 증대한 저장대가 주종을 이루고 있다. 국내 발전소에서도 중성자흡수체 저장대를 사용하여 용량 확장한 고리 3호기와 울진 1,2호기가 있다. 본 절에서는 국내에 설치되었거나 국내외 특허 출원된 중성자흡수체 저장대에 관한 자료 등을 토대로 그 설계특성을 살펴보기로 한다.

가. Siemens 핵연료저장대

국내 고리 3호기에 핵연료 저장용량 확장을 위하여 기존의 저장조 빈 공간에 추가 설치된 저장대로 중성자흡수체 재질은 천연붕소를 1.7 w/o 이상 함유하고 있는 BSS로 스텐레스강과 유사한 강도를 갖고 있는 구조재이다. 저장대의 구조는 크게 중성자흡수채널, 바닥판 및 높낮이 조절용 패드로 구성되어 있다. 채널은 BSS 재질의 튜브형 구조물로 정방형 튜브를 얇은 철판으로 용접하여 서로를 연결하고 있다. 채널의 바닥은 바닥판과 볼트로 체결되며 채널과 바닥판은 단위 셀의 냉각수 흐름을 형성하기 위해 일정 크기의 구멍을 가지고 있다. 모듈의 수지도 맞춤작업은 모듈의 상단에서 모듈의 높낮이 조절용 나사를 조정함으로써 수행된다. 최근 Siemens에서는 저장조 내에서 사용후핵연료가 담겨진 채로 이송용기를 이송 및 저장하는 개념을 적용한 겹층 핵연료저장대를 제시하였다[8]. 이는 장기간 저장조내에 보관되는 저장대 상단의 여유공간(핵연료취급 및 이송용 공간)을 활용하는 것으로 기존의 저장대위에 1개의 핵연료와 저장 통만이 이송되어 보관

되는 개념이다.

나. Holtec 핵연료저장대

국내 올진 1호기에 핵연료 저장용량 확장을 위하여 교체된 미국 Holtec사의 중성자흡수체 저장대로 기존의 저장대를 저장조로부터 제거한 후 저장지역 I, II에 설치하였다. Region I의 단위 모듈은 각 단위 셀의 측면에 중성자흡수체로 Boral을 부착하고 각 셀 사이를 연결용 요소로 용접, 결합시킨 구조물로 셀 사이의 공간은 냉각 유로를 형성하며, 셀 사이를 연결하는 연결용 요소는 다지 플랜지 보구조로 연결요소를 발전소 부지 지진특성에 맞도록 고려할 수 있다. 모듈의 하단은 냉각수 유로를 형성하는 구멍을 갖는 바닥판과 용접되고, 바닥판은 각 모듈당 4 ~ 5개의 높낮이 조절대에 용접되어 있다. Region II의 단위 모듈은 단위 셀의 측면에 중성자흡수체로 Boral을 끼워 넣은 후 이들 각각을 벌집모양으로 용접한 구조물로 모듈 하단부의 구조는 Region I과 동일하다.

다. ABB-CE 핵연료저장대[9]

ABB-CE사가 영광 3,4호기 저장대와 동일한 중성자속 트랩 원리를 적용한 것으로 핵연료로부터 방출된 고속의 중성자가 스텐레스 강판사이의 물을 통과하면서 열중성자화되어 다시 핵연료로 되돌아 가지 못하게 하는 원리를 사용하여 설계하였다. 저장대의 구성은 영광 3,4호기 저장대와 유사한 각 셀 내부에 앵글형 삽입부재인 스텐레스 강판(L형)을 삽입할 수 있는 장치를 만들고 추후 다양한 형상의 중성자 흡수판 설치가 가능하도록 설계되어 있다. 이 저장대의 장점은 언제든지 핵연료 저장용량 확장시 저장대의 교체없이 추가적으로 L형 삽입 판이나 중성자흡수판을 삽입하여 용량확장을 기할 수 있기 때문에 고밀도 저장용 설비(중성자흡수체)의 투자를 지연시킬 수 있고, 장주기 운전에 대비하여 핵연료의 우라늄 농축도 증가에 따라 흡수체 설계를 적절히 맞춰 사용할 수 있는 장점이 있다.

라. Westinghouse 핵연료저장대 [10]

Westinghouse는 저장 셀의 형상 및 피치 간격을 핵연료형태에 적합하도록 설계하였는데, 즉 셀 사이의 간격 그리드없이 공간이용도를 향상시키고 피치간격을 미입계로 유지하기 위함이다. 그 방법으로 각 셀은 변형된 금속판으로 이루어진 몸체(단위 셀)로 구성되며, 인접하는 몸체사이와는 중성자흡수체의 수용을 위한 다수의 포켓을 포함하였다. 인접하는 몸체와의 접합은 몸체의 종방향으로 일정간격을 이루는 용접에 의해 형성되며, 각 용접에 대한 간격은 저장대가 설치될 발전소 부지의 지진가속특성에 대한 응답을 최소화하기 위해 결정된다.

마. AEA O'Donnel 핵연료저장대[11]

AEA O'Donnel 저장대는 미리 구부러진 다양한 판넬 부재를 사용함으로써 구조적 건전성을 향상시키고, 특히 조립 및 용접작업을 검사와 함께 진행하는 제작상의 개선으로 치수조절이 용이한 장점이 있다. 또한 저장대 상단 및 하단에 홈이 있는 판을 서로 고정함으로써 견고성, 수직도 및 내전단성을 향상시키고 핵연료 낙하시 보호장치구실을 하며, 중성자흡수체를 위한 포켓설치 등이 가능하도록 설계되어 있다. 또한 지지다리를 사용하여 각 모듈의 수직도를 만족하는 높낮이 조절 메커니즘이 설치되어 있으며, 지진시 충격완화장치가 설치되어 있어서 미끄러짐 및 기울어짐을 억제하도록 설계되어 있다. 상하단 지지 벌집형 저장대의 경우 상하지지구조물은 내진성 등에 구조적 장점이 있으나 저장공간의 활용성 및 냉각수 유로형성 등이 문제점으로 지적된다.

3. 결 론

1. 국내 핵연료저장대는 미입계요건을 만족하면서 저장용량 확장을 위한 조밀형 저장대 형태로 개선되어 왔으며, 앞으로는 중성자흡수체를 사용하고 연소도를 고려한 저장영역 분리기술 등이 적용된 저장대 형태로 개선될 것으로 전망된다. 국내 저장대에 중성자흡수체를 사용한 사례는 기존의 저장조 빈 공간에 중성자흡수체 저장대를 설치한 고리 3호기와 기존 저장대를 제거한 후 중성자흡수체 저장대로 교체되었거나 계획중인 울진 1,2호기 및 영광 1,2호기가 있다.
2. 국내에 사용된 중성자흡수재료는 울진 2호기에서 사용된 Boraflex, 고리 3호기의 Borated Stainless Steel(BSS), 울진 1호기의 Boral이 있다. BSS는 샌드위치형의 Boral과 달리 구조가 간단하고 재질 전체에 균질한 고 강도를 갖는 구조재로서 붕소농도증가에 따른 부식성 및 기계적 강도 저하 등이 문제점으로 지적되고 있다. Boral은 내부식성이 있으며 장주기운전에 대비하여 고려되는 고농축 핵연료의 저장에도 적합하다. 그러나 중성자흡수체 재질은 재료 및 방사능과 관련하여 미국 원자력규제위원회 (NRC)가 요구하는 다양한 시험결과가 필요하며, 차세대 저장대는 시험결과에 근거한 중성자흡수체 재료의 적절한 선택, 설계 및 제작측면에서 우수성 및 경제성이 검토되어야 할 것으로 판단된다.
3. 현재 국내에 교체용으로 사용된 중성자흡수체 저장대 및 특허자료에서 제시된 저장대의 구조특성을 파악함으로써 차세대 저장대의 구조설계시 참고자료로 활용될 수 있다.

참고문헌

1. KRC-84N-T18, 사용후핵연료 중간저장에 관한 연구, 한국원자력연구소, 1985.
2. ANSI/ANS-57.2-1983, Design requirements for light water reactor spent fuel storage facilities at nuclear power plants
3. KAERI/RR-668/87, 사용후핵연료 저장용기 개발(핵입체 및 구조설계해석), 한국원자력연구소, 1987

4. Dockets No. 50-269/270/287, OT Position for Review and Acceptance of Spent Fuel Storage and Handling Applications, 1978.
5. Boral - The Neutron Absorber, Product Performance Report 62, AAR BROOKS & PERKINS.
6. Siemens' Experience in Utilization of Borated Stainless Steel, Siemens AG Power Generation Group KWU, March 1993.
7. NRC Information Notice 93-70, Degradation of Boraflex Neutron Absorber Cupons, 1993.
8. With Double Tiering, Pools Surrender Hidden Reserves, Siemens AG KWU, Germany.
9. 대한민국 특허공고번호 82-2281 (1982.12.13), 핵연료저장장치, CE, 1982.
10. 대한민국 특허공고번호 91-5107 (1991.7.22), 사용후 연료저장대, Westinghouse, 1991.
11. U.S. Patent No. 5, 361, 281 (1994.11.1), Storage Rack for Spent Nuclear Fuel Assemblies, AEA O'Donnell Inc. 1994.

표 1. 국내 발전소별 핵연료저장대 비교분석

	발전소 특성		저장대 설계 특성			
	전노심수	핵연료	재질	피치 [단위: 인치]	저장용량 (노심수)	구조 및 저장특성
고리 1호기	121	14x14형	ASS**	21.00	162(4/3)	격자지지형, 고정형, 100% 저장밀도
고리 1호기*	121	14x14형	ASS	14.17	562(14/3)	조밀형 저장대로 교체, 100% 저장밀도
고리 2호기	121	16x16형	ASS	13.00	920(23/3)	격자지지형, 고정형, 100% 저장밀도
고리 3,4호기 영광 1,2호기	157	17x17형	ASS	14.00	746(14/3)	격자지지형, 고정형, 100% 저장밀도
고리 3호기*	157	17x17형	BSS**	9.25	1201(23/3)	저장지역 II에 중성자흡수체 저장대로 455개 추가용량 확보, 벌집형, 자립형
울진 1,2호기	157	17x17형	ASS	14.57	472(9/3)	고정형, 100% 저장밀도
울진 1호기*	157	17x17형	ASS+Boral	R-I(10.52x10.86) R-II(8.94)	1114(21/3)	저장지역 I, II에 중성자흡수체 저장대로 교체, 벌집형, 자립형
울진 2호기*	157	17x17형	ASS+Boraflex	10.43	893(17/3)	중성자흡수체 저장대로 교체, 100% 저장밀도
영광 3,4호기 울진 3,4호기	177	16x16형	ASS	9.78	678(11/3)	저장지역 I (50% 저장밀도), II (75% 저장밀도)로 분리, 벌집형, 자립형
영광 5,6호기	177	16x16형	BSS 혹은 ASS+Boral	*** R-I:10.78(10.70) R-II:9.37(10.70)	1095(21/3) 1184(22/3)	저장지역 I, II에 중성자흡수체 저장대 설치, 벌집형, 자립형, 건설초기 약 10년분 저장용량 확보
차세대원자로	241	16x16형	BSS 혹은 ASS+Boral	약 9.00내외	20년분	저장지역 I, II에 중성자흡수체 저장대 설치

* 저장용량확장을 위하여 저장대가 추가되거나 교체된 발전소
 ** ASS(Austenitic Stainless Steel), BSS(Borated Stainless Steel)
 *** R-I(Region-I), R-II(Region-II)