

사용후핵연료 장기 건식저장시 최대 초기저장 허용온도에 관한 연구

박 근일¹⁾, 이 후근, 변 기호, 노 성기, 박 현수

한국원자력연구소

요 약

사용후핵연료 장기 건식저장시 여러가지 저장조건에서 사용후핵연료 피복관 및 사용후핵연료(UO₂)에 대한 장기 건전성을 종합적으로 평가할 수 있는 SIECO 코드를 개발하였다. 건식저장 시스템은 사용후핵연료를 헬륨 및 공기분위기하에서 TN-24P 건식 저장용기에 장기 저장할 경우로 하였으며 피복관의 최대 표면온도는 COBRA-SFS코드를 사용하여 계산하였고, 열유동 해석결과를 바탕으로 SIECO코드를 이용하여 핵연료 연소도 및 냉각기간, 냉각매체에 따른 최대 건식저장 허용온도를 피복관의 열화 및 UO₂ 산화의 관점에서 계산하였다.

1. 서 론

사용후핵연료 장기 건식저장시 저장중인 사용후핵연료 피복관의 열화가 일어나며 또한 결함 사용후핵연료봉의 경우 핵연료가 공기와 접촉함으로써 산화가 일어나게 되는 데 이에 따른 재료의 건전성 여부를 평가하는 것은 시설의 안전성 측면에서 매우 중요하게 된다[1-4]. 따라서 본 연구에서는 건식저장 조건에서 사용후핵연료 피복관 및 사용후핵연료(UO₂)에 대한 장기 건전성을 종합적으로 평가할 수 있는 "SIECO 코드(Systematic Integrity Evaluation COmputer code)"를 개발하였다. 먼저 연소도가 33000, 55000 MWd/MTU인 PWR 사용후핵연료를 공기 및 헬륨분위기하에서 TN-24P 저장용기에 장기간 건식저장한다고 가정하고 사용후핵연료의 건식저장 기간에 따른 최대 피복관온도를 COBRA-SFS코드를 이용하여 계산하였으며[5], 열유동 해석결과를 바탕으로 SIECO코드를 이용하여 헬륨 및 공기분위기하에서 연소도가 33000, 55000 MWd/MTU인 사용후핵연료를 장기저장할 경우 핵연료의 냉각기간에 따른 건식저장 초기의 최대 저장허용온도(Maximum Allowable Initial Dry Storage Temperature)를 도출하였고 아울러 공기분위기에서 사용후핵연료(UO₂)가 산화되는 경우에 장기간의 건전성을 유지할 수 있는 최대 초기저장 허용온도를 계산하였다.

2. 종합 건전성평가 코드개발

2.1 SIECO 코드의 설계

SIECO를 설계 제작한 첫번째 목적은 현재 서로 다른 코드에 의해 독립적으로 계산되고 있는 creep rupture, 응력부식균열 및 피복관 산화를 한가지 코드에서 계산이 가능하도록 하는 것이고 두번째는 우리 현실에 적합한 시스템에도 적용 가능하도록 하는 것이다. 따라서 헬륨 및 공기분 위기에서 계산이 가능해야 하므로 이를 위해 장기간에 걸친 피복관 온도 변화는 COBRA-SFS로부터 계산된 결과를 이용한다. 세번째 목적은 기존 코드의 부족한 부분이나 불합리한 부분을 보완하는 것이다. Creep mechanism 중에서 온도가 athermal limit을 초과할 때 처리하는 방법을 개선했고 헬륨에 대한 temperature decay 함수도 보다 현실적이고 알기 쉬운 형태로 개선하였다[1]. 응력부식균열 분야도 단순한 difference equation으로 단순화하여 계산하던 기존 코드의 계산 방식을 governing equation으로 부터 연속적으로 계산할 수 있는 알고리즘으로 개선하였다[4]. 손상정도를 평가하는 메카니즘은 DATING 코드[1]에서와 마찬가지로 누적손상분율 모델을 사용하지만 최대 저장 허용온도를 구할 때는 단순한 iteration 방법을 사용하지 않고 효율성이 널리 증명된 수치해석 알고리즘을 사용하여 반복계산 시간을 최대로 줄였으며, 코드를 모듈화하여 코드의 중복을 배제하고 효율적인 변수 사용과 체계적인 프로그래밍을 통해 코드의 해석이 용이하도록 하였다.

2.2 SIECO코드의 개요

본 연구에서 개발한 건전성평가 코드는 사용후핵연료 피복관 및 핵연료(UO₂)에 대한 건전성평가 부분으로 크게 나눌 수 있다. 먼저 사용후핵연료 피복관의 건전성평가 코드는 피복관 내부압력에 의한 creep rupture 열화, 응력 및 핵분열생성물 중 요오드와의 복합적인 상호작용에 의한 응력부식균열, 피복관 산화에 의한 열화를 주요 열화기구로 하였으며, 온도와 응력이 저장기간에 따라 감소하므로 피복관에 가해지는 손상정도는 다음과 같은 누적손상법칙 식을 적용하여 구하였고 모든 열화기구에 의하여 발생하는 손상을 독립적으로 취급하여 누적손상율을 계산한다[2].

$$1 = \frac{t_1}{\tau_1} + \frac{t_2}{\tau_2} + \frac{t_3}{\tau_3} + \dots$$

여기서 τ_i 는 i 번째의 일정온도와 응력에서 피복관이 파손되는 데 소요되는 시간이며, t_i 는 i 번째 온도에서 소요되는 시간을 의미한다. 즉 상기 식으로부터 구한 누적손상율이 “1”에 도달하였을 때 피복관은 파손되는 것으로 본다. 참고적으로 독일에서는 creep rupture에 의하여 피복관 변형율이 1%를 초과하였을 경우 건전성이 상실되는 것으로 간주하여 최대 허용온도를 설정하고 있다[6].

또한 열화기구에 대한 코드개발은 기존에 개발된 코드가 있을 경우 이를 수정·보완하였으며, 건

조공기 분위기하에서의 피복관의 산화 영향은 본 연구소의 조사후 시험시설에서 수행한 연구결과들을 바탕으로 시간에 따른 피복관 산화층을 추정할 수 있는 상관식을 도출하여 사용하였다[7].

공기중에서 UO_2 의 산화에 의하여 나타나는 재료의 열화현상을 방지할 수 있는 기준을 설정하기 위하여 선형누적방법(Linear Cumulative Method)을 적용하였고[2], 미국의 PNL 및 캐나다의 AECL, 그리고 국내의 경우 조사후시험시설(PIEF)에서 이제까지 발표된 자료들을 바탕으로 건전성평가 기준별 상관식을 적용하였다[7].

3. 건식저장 시스템의 열유동해석

사용후핵연료를 장기 건식저장할 경우 저장 허용온도 산출에 중요한 매개변수가 되는 피복관의 표면 온도는 열유동 해석 코드인 COBRA-SFS 코드[5]를 사용하여 계산하였다. 본 연구에서는 건식 저장용기 모델로 TN-24P 저장용기를 선정하였으며, 최대 24개의 PWR 가압경수로형 사용후핵연료 집합체를 저장할 수 있도록 되어 있다. 냉각기간에 따른 붕괴열은 U.S. NRC Reg. Guide 3.54에 제시된 값을 사용하였으며[8], TN-24P 저장용기에 사용후핵연료를 건식 저장시 피복관 온도를 계산하여 이를 추정할 수 있는 상관식을 도출하였으며 이를 그림 1에 도식하였다.

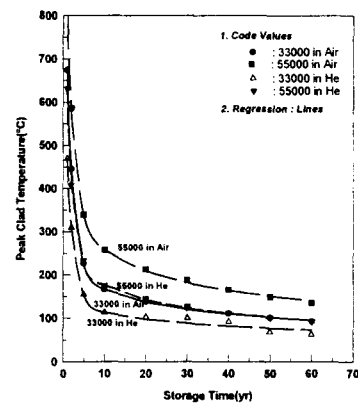


Fig. 1. Comparison of temperature decay predictions of the SIECO model for 1-yr-old fuel to COBRA-SFS data for the air and helium-backfilled TN-24P cask containing 1-yr-old PWR fuel with 33000 and 55000 MWD/MTU burnup.

4. 장기 건식저장시 최대 초기저장 허용온도 해석

4.1 피복관의 열화에 의한 건전성평가

냉각매체, 연소도 및 핵연료의 냉각기간(Fuel age)을 변수로 하여 피복관의 초기 hoop stress의 변화에 따른 최대 초기저장 허용온도를 SIECO코드를 이용하여 계산하였다.

연소도 33000 MWD/MTU의 사용후핵연료 피복관의 건전성을 평가한 결과 건전성에 영향을 미치는 주요 인자는 내부응력에 의한 creep rupture임을 간접적으로 알 수 있었다. 냉각매체가 헬륨과 공기인 경우 초기 최대 저장허용온도와 최대 피복관 온도와의 차이를 초기 hoop stress 변화에 따라 그림 2에 도식하였는데, 그림에서와 같이 초기 최대 저장허용온도와 최대 피복관 온도와의 차이는 헬륨분위기 보다 공기중에 저장할 경우 줄어들며 피복관 산화가 영향을 미침을 알 수 있었다. 5년 냉각된 핵연료 피복관의 초기 내부응력이 70MPa이고 초기 산화층이 $50\mu\text{m}$ 일 경우 헬륨분위기에서 최대 저장허용온도는 374°C 로 나타났는데, 이는 미국 NRC에서 제안한 CASTOR

-V/21 저장용기의 헬륨분위기에서 최대 저장허용온도인 370℃(초기 내부응력 : 66MPa)[2]와 비교하여 불 때 비슷한 값을 나타내었으나 독일에서 PWR핵연료의 최대 허용온도로 제안한 390℃[6]와는 큰 차이를 보였다. 연소도가 55000 MWD/MTU인 핵연료를 40년간 장기저장할 경우 냉각매체별 피복관의 저장 초기 최대 저장 허용온도변화를 분석한 결과(그림 3 참조), 5년 냉각된 핵연료를 공기중에 저장할 경우 피복관의 hoop stress를 90MPa라고 하면 초기 최대저장허용온도와 최대 피복관 온도와의 차이는 불과 29~33℃ 정도이지만 헬륨분위기에서는 약 150℃로 나타났다. 따라서 냉각계통사고를 고려하여 불 때 초기 최대 저장 허용온도와 최대 피복관 온도와의 차이를 100℃ 이상 유지하여야 한다면 적어도 10년 이상 냉각된 핵연료만을 공기중에서 저장할 수 있을 것이다. 또한 핵연료 냉각기간에 따른 초기 최대 저장 허용온도를 계산한 결과, 전반적으로 냉각기간이 긴 핵연료일수록 초기 최대저장허용온도는 감소하게 되는데, 냉각기간이 7년일 경우 저장허용온도의 감소 폭이 냉각기간이 6년일 경우와 비교하여 보면 급격히 떨어짐을 알 수 있었다(그림 4 참조). 이상의 결과로부터 저장되는 핵연료의 특성에 따라 단일 저장허용온도를 설정하는 것보다는 다중 초기 저장허용온도를 설정하는 것이 저장시설의 안전성평가할 때 보다 효과적일 것으로 생각되며, 이를 위하여 피복관의 건전성과 관련된 광범위한 실험자료등을 바탕으로 향후 종합적인 SIECO코드의 검증을 수행할 필요가 있을 것이다.

4.2 UO₂의 산화에 의한 최대 초기저장허용온도 추정

결함핵연료가 저장시설에 유입되거나 피복관의 열화로 인하여 연료봉에 핀구멍같은 결함이 발생할 경우 UO₂가 공기와 접촉하여 산화가 일어나게 되며 피복관의 파손이 가속화되기 때문에 UO₂의 산화에 의한 건전성평가를 수행하여 핵연료의 산화를 제어할 수 있는 최대 초기저장허용온도를 여러 조건에서 도출하였다. 저장기간을 40년으로 하고 연소도 33000, 55000 MWD/MTU인 핵연료의 냉각기간에 따른 초기 최대 저장 허용온도 변화를 계산한 결과를 그림 5에 도식하였는데, 전반적으로 핵연료 냉각기간이 증가할수록 초기 최대 저장 허용온도는 떨어지고 있으며 냉각기간이 3년~15년범위에서 초기저장허용온도는 200℃~150℃범위를 나타내고 있다. 연소도가 33000 MWD/MTU이고 냉각기간이 7년인 핵연료의 초기저장허용온도와 최대 피복관 온도와의 차이가 15℃로서 건전성에는 다소 여유가 있으나, 55000MWD/MTU이고 냉각기간이 7년인 핵연료의 경우는 허용온도와 최대 피복관 온도와의 차이는 115℃로서 최대 피복관 온도가 높은 값을 보여주고 있으므로 건전성에는 여유가 크지 않음을 알 수 있었다. 참고적으로 월성 1호기 사용후핵연료 건식저장시설은 Concrete Silo로서 6년이상 냉각된 핵연료만을 저장하며, 핵연료나발 '바스켓' 캐니스터의 열역학적 특성에 따라 콘크리트 캐니스터내의 사용후핵연료 최고온도는 159℃라고 검토되어 이 온도에서 핵연료의 산화에 따른 바스켓 내부의 오염은 문제가 없을 것으로 검토한 바

있다[9]. 본 계산결과에서는 0.6Wt% 무게이득을 기준으로 할 경우 7년 냉각된 핵연료의 최대 저장허용온도는 162℃로 나타났으며 향후 CANDU핵연료의 온도이력등의 보완이 수행되어야 할 것이다.

5. 결 론

사용후핵연료 장기저장시 여러가지 저장조건에서 사용후핵연료 피복관 및 사용후핵연료(UO₂)에 대한 단기간 및 장기건전성을 종합적으로 평가할 수 있는 SIECO 코드를 개발하였다. TN-24P 저장용기에 연소도가 33000, 55000 MWD/MTU인 핵연료를 냉각매체가 헬륨 및 공기하에서 장기 건식저장할 경우 최대 피복관 표면온도를 COBRA-SFS코드를 이용하여 계산하였고 이 계산 결과를 바탕으로 건식저장시 최대 초기저장 허용온도를 추정한 결과, 55000MWD/MTU인 고연소도 핵연료를 공기중에서 장기저장할 경우 건전성에 영향을 미치는 주요 인자는 내부응력에 의한 creep rupture 뿐만 아니라 피복관의 산화에도 많은 영향을 받으며 10년이상의 냉각기간이 필요하고, 장기 건식저장시 요오드의 농도가 10⁻⁴ kg/m²까지 피복관 내부에 존재하여도 응력부식 균열에 의한 영향은 나타나지 않았다. 핵연료 산화에 의한 건전성을 유지할 수 있는 최대 초기저장허용온도를 계산한 결과, 냉각기간이 3년~15년범위인 핵연료의 경우 200℃~150℃범위를 나타내며, 연소도가 33000MWD/MTU이고 냉각기간이 7년인 핵연료는 건전성에 큰 문제가 없으나 연소도가 55000MWD/MTU인 핵연료일 경우는 충분한 냉각을 필요로 한다.

참 고 문 헌

1. E.P. Simonen and E.R. Gilbert, "DATING-A Computer Code for Determining Allowable Temperatures for Dry Storage of Spent Fuel in Inert and Nitrogen Gases", PNL-6639, 1988.
2. I.S. Levy, B.A. Chin, E.P. Simonen, C.E. Beyer, E.R. Gilbert, and A.B. Johnson, Jr., "Recommended Temperature Limits for Dry Storage of Spent Light Water Reactor Zircaloy-Clad Fuel Rods in Inert Gas", PNL-6189, Pacific Northwest Laboratory, 1987.
3. M.Peehs, "Spent Fuel Dry Storage Performance in Inert Atmosphere", CONF-860417, Vol.1, S-215, 1986.
4. 노성기 등, "사용후원전연료 저장시설의 장기적 건전성연구 - 제 3권 종합건전성 평가코드 개발", 한국원자력연구소 부설 원자력환경관리센터, 연말보고서, KAERI-NEMAC/RR-101/93, 1993.
5. D.R. Rector, J.M. Cuta and N. J. Lombardo, T.E. Michener, and C.L. Wheeler, COBRA-SFS : A Thermal-Hydraulic Analysis Computer Code ; Volume II-user's Manual PNL-6049, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington, 1986.
6. M. Peehs, G. Kasper and E. Steinberg, "Experimentally Based Spent Fuel Storage

Performance Criteria and its Application for Performance Test Evaluation". CONF-860417, Vol. 1, 1986.

7. 노 성기 등, 조사후핵연료 시험평가기술개발(III), KAERI/RR-1127-92, 과학기술처, 1992.
8. U.S. NRC Reg. Guide 3-54, Spent Fuel Heat Generation in an Independent Spent Fuel storage Installation, Sept., 1984.
9. 월성 1호기 사용후핵연료 임시저장시설 심사 보고서, KINS AR-126, 한국원자력 안전기술원, 1991.

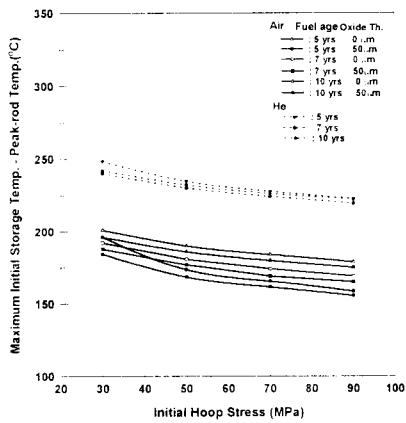


Fig. 2. Difference of initial storage temperature and peak clad temperature as a function of initial cladding hoop stress for various fuel age with 33000MWD/MTU burnup under the air and helium-backfilled atmospheres (Initial oxide thickness = 0.50.μm).

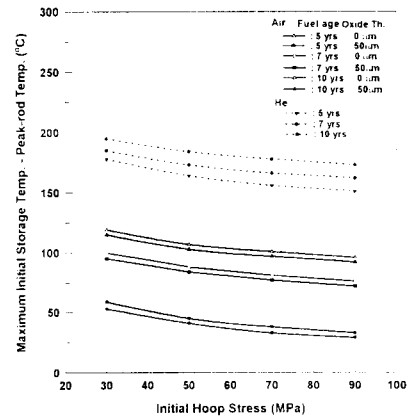


Fig. 3. Difference of initial storage temperature and peak clad temperature as a function of initial cladding hoop stress for various fuel age with 55000MWD/MTU burnup under the air and helium-backfilled atmospheres (Initial oxide thickness = 0.50.μm).

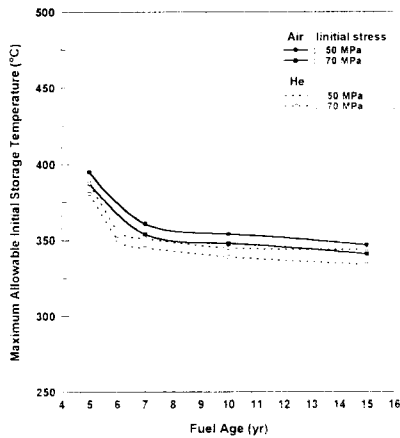


Fig. 4. Maximum allowable initial storage temperature as a function of fuel age with 33000MWD/MTU burnup under the air and helium-backfilled atmospheres (Initial oxide layer thickness=50.μm).

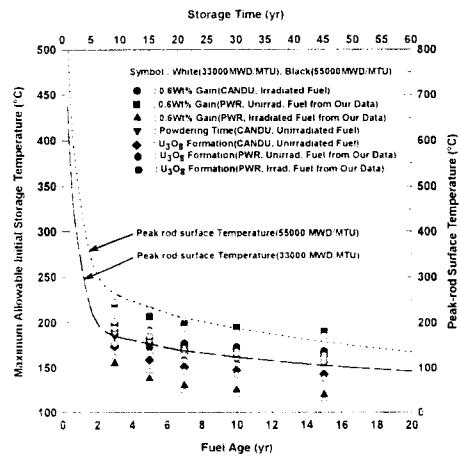


Fig. 5. Comparison of maximum allowable initial storage temp. to control UO₂ oxidation by various integrity criteria as a function of fuel age and burnup in a air-filled atmosphere (Storage period=40yrs).