

## 사용후핵연료 중간저장시설의 사고시 $UO_2$ 의 산화거동 연구

김건식, 유길성, 민택기, 김은가, 노성기

한국원자력연구소

### 요 약

사용후핵연료 중간저장 시설의 누수사고시 예상되는 핵연료봉의 온도상승을 SFUEL 컴퓨터 코드 분석결과에 따른 실제  $UO_2$ 의 산화거동을 실험하였다. 외기 온도  $38^\circ C$ 에서 환기회수가 시간당 0, 1, 2회인 조건에서 저장용기 밑바닥 구멍 크기가 2.54, 5.08, 7.62 cm인 경우의 실험결과 환기회수 0회 바닥구멍 크기 2.54 cm 일 때 약 15시간 후 건전성 상실(0.6% 무게증가)이 일어났으며 환기회수 2회 바닥구멍 크기 7.62 cm 일 때는 약 21시간 이후에 건전성 상실이 일어나 가장 느렸다. 바닥구멍 크기가 증가 할수록 공기 순환비의 영향을 크게 받으며, 또 외기 온도가 낮을 수록 공기 순환비의 영향을 크게 받았다.

### 1. 서 론

사용후핵연료 중간저장 방법은 습식 및 건식저장 방법으로 나누어지며, 습식저장의 경우 지금까지의 연구결과로 부터 저장온도가 낮으므로 사용후 핵연료를 장기간 저장하여도 특별한 열화현상은 발생하지 않는 것으로 알려져 있다[1]. 그러나 습식저장의 경우에도 사고에 의한 핵연료가 공기중에 노출될 경우 핵연료의 손상이 일어나게 된다. 핵연료가 공기중의 산소와 반응하면  $UO_2$ 은 준 안정 산화물인  $U_3O_7$ ,  $U_4O_9$  또는  $U_3O_8$ 상으로 변환된다.  $UO_2$ 가  $U_3O_7$ 나  $U_4O_9$  상으로 변환되면 약 2% 정도의 부피감소가 일어나 피복관에 응력을 주지 않으나,  $U_3O_8$ 상으로 변환되면 약 30%정도의 부피 증가가 생겨 피복관은 응력을 받아 파단된다[2]. 핵연료의 저장시 건전성 평가기준은 통상 세 가지 방법이 활용되고 있는데[3,4,5] 본 논문에서는 0.6% 무게증가가 일어나는 시간을 기준으로 하였다. 결합있는 핵연료의 실제 온도를 정확히 예측할 수 없으므로 본 실험에서는 피복관의 온도와 핵연료의 온도가 동일하다는 가정에서 실험을 수행하였다.

### 2. 시험 방법

한국원자력연구소 부설 원자력환경관리센터에서 진행되어온 사용후핵연료 중간저장 시설에 대한 개념설계에 따른 핵연료저장용기 설계자료에서 냉각수 누수사고시 핵연료

의 온도상승을 SFUEL 컴퓨터 코드로 분석한 결과[6]는 다음 표 1과 같다. 이때 외기 온도는 38, 13,  $-19^{\circ}\text{C}$ 로 하였으며, 사용후핵연료 집합체 저장용기의 밑바닥 구멍의 크기는 2.54, 5.08 및 7.62 cm로 하였다. 각 구멍의 크기 조건별 저장용기내 환기회수를 0, 1, 및 2회/시간으로 하였으며 대상 핵연료는 연소도가 40GWD/MTU이고 냉각시간이 5년인 가압경수로형 핵연료이며, 저장시설에는 1815MTU의 핵연료가 저장되어 있다고 가정하였다. 산화실험은 모두 13가지 조건에 대한 코드해석 결과를 참조하여 각 조건별 산화실험을 수행하였다. 산화실험에 사용된 시편은 경수로용 미조사 핵연료로서 밀도는  $10.45\text{g}/\text{cm}^3$ 이며 결정립은  $7\text{--}10\mu\text{m}$ 이다. 1mm 두께로 절단한 디스크 형태의 시편 표면을 600grit까지 기계적 연마를 한후 최종 연마는  $1\mu\text{m}$  다이아몬드 페이스트로 하였다. 시험 장치는 원통형 전기로에 시편을 장입 시키고 다중채널 온도 조절기로 핵연료의 온도를 변화 시키면서 연속적으로 무게증가를 측정하였다..

### 3. 실험 결과 및 분석

시간당 공기순환비가 0회인 경우는(그림 1), 사용후핵연료 노출사고후 핵연료의 온도가 급격히 상승하는 경향을 보여주고 있다. 이 온도 상승 조건에서 핵연료의 산화거동은 누수후 14시간까지 바닥구멍 크기에 관계없이 무게증가가 일어나지 않다가 이후에 급격히 증가하는 경향을 볼 수 있다. 저장용기 바닥 구멍 크기가 2.54, 5.08 및 7.62 cm인 경우에 0.6wt% 무게증가가 일어나는 시간과  $\text{U}_3\text{O}_8$ 로 100% 변환되는 시간은 각각 14.7, 15.4, 16.2시간 및 16.6, 17.3, 18.0시간 이었다. 시간당 공기 순환비가 1회인 경우 사고후 핵연료의 산화거동은 공기 순환비가 0회인 경우와 같이 일정시간 무게증가가 일어나지 않다가 어느 시점에 도달하면 급격히 증가하는 경향을 보여주고 있다(그림 2). 저장 용기 바닥구멍 크기가 2.54, 5.02, 7.62 cm인 경우에 0.6wt% 무게증가가 일어나는 시간과  $\text{U}_3\text{O}_8$ 으로 100% 변환되는 시간은 14.7, 16.3, 18.2시간 및 16.6, 18.5, 21.8 시간이었다. 시간당 공기 순환비가 2회인 경우 0.6wt% 무게이득이 일어나는 시간과  $\text{U}_3\text{O}_8$ 으로 100% 변환되는 시간은 바닥 구멍 크기가 2.54, 5.08, 7.62 cm인 경우 각각 14.9, 16.5, 20.5시간 및 16.7, 18.9, 25시간 이었다(그림 3). 표 2에는 공기 순환비, 저장용기 바닥구멍 크기와 외기 온도에 따라 노출 사고후 0.6wt%의 무게증가가 일어나는 시간을 나타내었으며, 그림 4에는 외기 온도가  $38^{\circ}\text{C}$ 인 조건에서 바닥구멍 크기와 공기 순환비에 따라 저장조의 사용후핵연료 노출사고후 0.6wt%에 도달하는 시간의 변화를 나타 내었다. 바닥구멍 크기가 2.54 cm인 경우는 공기 순환비의 영향이 없으며 바닥구멍 크기가 클수록 공기 순환비가 증가하면 0.6wt% 무게증가가 일어나는 시간이 길어짐을 알 수 있다. 그림 5와 6에는 저장조 사용후핵연료의 노출 사고시 외기온도 변화에 따른  $\text{UO}_2$ 의 산화거동을, 그림 7에는 외기 온도 변화에 따른 0.6wt%의 무게증가에 도달하는 시

간을 도시하였는데, 외기 온도가 낮을 수록 공기 순환비의 영향이 크게 나타났다.

본 실험의 온도는 중간저장시설 냉각수 누수후 피복관의 최고 온도를 코드로 계산하여 얻어진 값이므로 실제 핵연료의 온도와 차이가 있다. 그러나 냉각수 누수후 핵연료의 산화실험에서는 핵연료봉에 결함이 있어 핵연료가 공기와 직접 접촉하는 상황을 가정하여 실험 하므로 결함이 없는 핵연료 보다는 온도가 낮을 것으로 예측되며, 극단적으로 피복관이 완전히 파단되어 핵연료가 냉각수나 공기중에 직접 노출되는 경우는 계산된 피복관의 온도와 핵연료 온도차는 크지 않을 것으로 예상된다. 중간저장시설 누수 사고시 최초로 핵연료의 건전성이 상실(0.6% 무게증가)되는 조건은 외기온도 38°C, 바닥 구멍 크기가 2.54 cm인 경우에 약 15시간 이후에 건전성이 상실된다. 그러나 실제 핵연료는 bare상태가 아니므로 핵연료봉에 결함이 있는 경우에도 건전성 유지 시간은 더 길어질 것으로 예상된다. 중간저장시설의 누수 사고시 핵연료의 건전성 예측을 위한 정확한 자료를 얻기 위해서는 누수후 결함있는 핵연료의 온도상승을 정확히 계산하여야 하며, 핵연료의 결함형태와 크기에 따른 핵연료의 산화속도를 정확히 측정하여야 한다.

#### 4. 결 론

1. 외기 온도 38°C, 공기 순환비 0회, 바닥구멍 2.54 cm인 경우가 핵연료의 건전성이 상실 되는 시간이 약 15시간으로 가장 빨랐다.
2. 외기 온도 38°C 조건에서 저장용기 바닥구멍 크기가 증가할 수록 핵연료 건전성 유지 시간에 미치는 공기 순환비의 영향이 크다.
3. 외기 온도가 낮을 수록 핵연료의 건전성 유지시간에 미치는 공기 순환비의 영향이 크다.

#### 참고 문헌

1. IAEA, "Behavior of Spent Fuel and Storage Facility Components during Long-term Storage", IAEA-TECDOC-673 (1991)
2. R.E. Einziger and R.V. Strain, Nucl. Technol. 75, 82 (1986)
3. D.J. Wheeler, "Application of the UO<sub>2</sub> Oxidation Data to the Dry Storage of Irradiated Fuel in Air Environment", CEGB, 2, 357 (1987).
4. P. Taylor, D.D. Wood and A.M. Duclos, J. of Nucl. Material, 189, 116 (1992).
5. I.J. Hastings and J. Novak, CONF-860417, AECL-9182, W-6 (1986).
6. 노성기의, "사용후핵연료 저장시설의 장기적 건전성 연구", KAERI-NEMAC /RR-126/94 (1994).

표 1. 저장조의 사용후핵연료 노출사고시 핵연료 온도변화

Ext.T(°C)	38									13		-19	
Hole Size(cm)	2.54			5.08			7.62			5.08		5.08	
Vent (no./hr)	0	1	2	0	1	2	0	1	2	1	2	1	2
4	140	140	140	140	140	140	139	139	139	117	117	91.5	91.4
8	231	231	231	228	227	227	225	223	222	203	203	175	175
12	314	314	314	304	299	298	297	286	282	271	269	239	234
16	389	387	386	372	354	350	362	331	318	322	313	282	269
20	460	451	450	434	395	382	422	361	334	356	337	312	284
24	530	509	507	493	422	397	479	381	343	380	348	333	294
28	610	563	557	557	440	404	539	397	351	397	355	350	301
32	710	609	594	626	454	409	602	410	357	410	360	362	306
36	887	644	620	709	465	414	674	418	360	420	364	370	309
40	924	670	632	834	473	417	765	425	361	427	367	376	311
44	992	684	633	856	478	419	905	429	361	432	369	380	312
48	1940	690	631	879	482	420	939	432		435	370	383	313
52		692	629	1490	484	420	1000	433		437	371	384	
56		692	626	1890	486		2010	434		438	371	386	
60			625		488			434		439		387	
64			624		489					440		387	
68			623		490					441			
72			622		491					441			

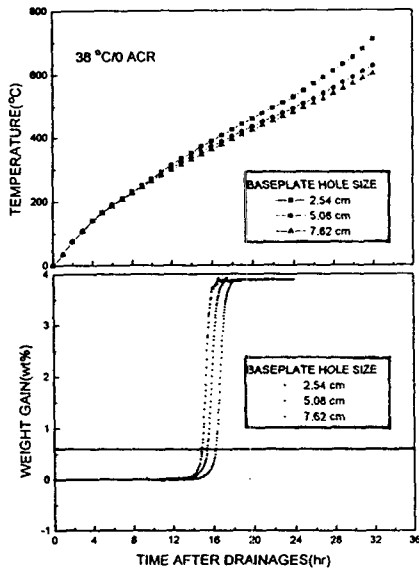


그림 1. 저장조의 사용후핵연료 노출시 핵연료 온도변화에 따른  $UO_2$ 의 산화특성 (의기온도: 38°C, 공기순환비: 0회/hr)

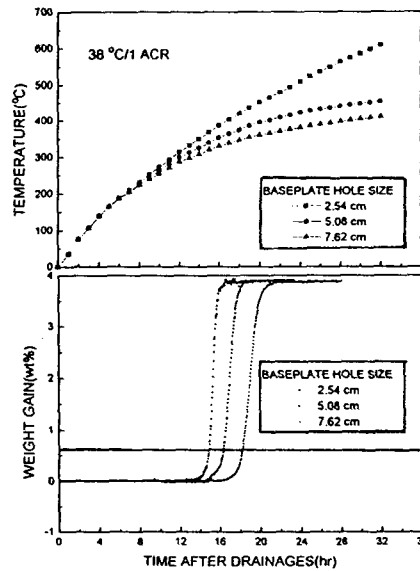


그림 2. 저장조의 사용후핵연료 노출시 핵연료 온도변화에 따른  $UO_2$ 의 산화특성 (의기온도: 38°C, 공기순환비: 1회/hr)

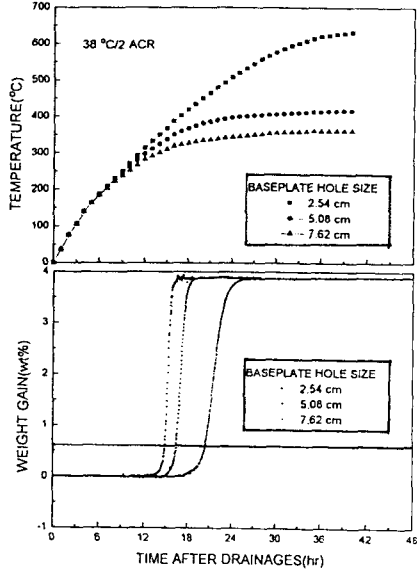


그림 3. 저장조의 사용후핵연료 노출시 핵연료 온도변화에 따른  $UO_2$ 의 산화특성 (외기온도:  $38^{\circ}C$ , 공기순환비: 2회/hr)

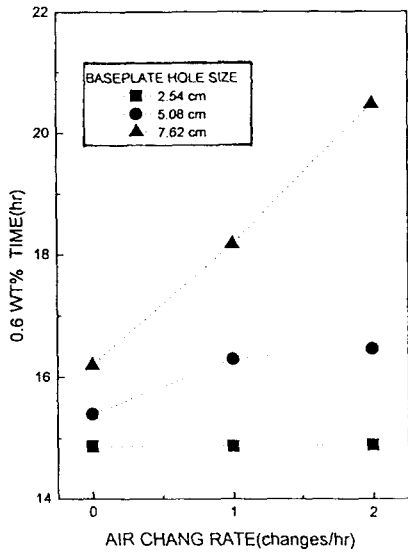


그림 4. 저장조의 사용후핵연료 노출시 0.6%의  $UO_2$  무게 증가가 일어나는 시간

표 2. 저장조의 사용후핵연료 노출사고후 0.6%의  $UO_2$  무게 증가가 일어나는 시간

Hole size (cm) \ Vent (Air changes/hr)	2.54	5.08	7.62
0	14.7	15.4	16.2
1	14.74	16.3	18.2
2	14.9	16.5	20.5

Hole size/ External Temp. ( $^{\circ}C$ ) \ Vent	5.08 cm/1 Acr	5.08 cm/2 Acr
-19	25.17	27.4
13	19.13	20.4
38	16.3	16.5

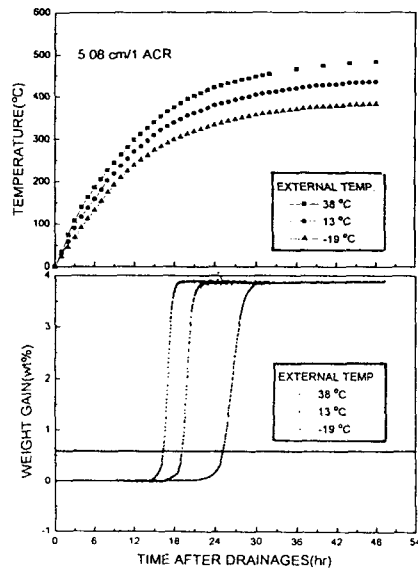


그림 5. 저장조의 사용후핵연료 노출시 외기 온도에 따른  $UO_2$ 의 산화특성 (구멍크기: 5.08cm, 공기순환비: 1회/hr)

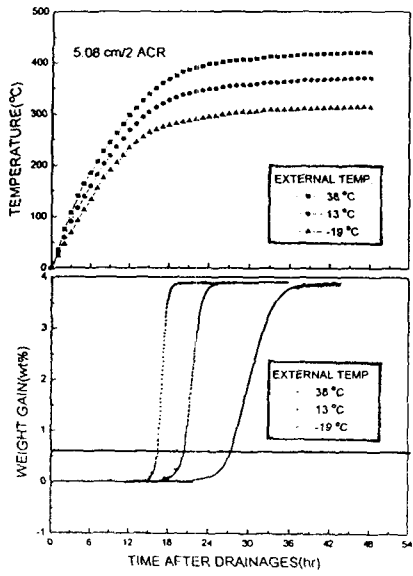


그림 6. 저장조의 사용후핵연료 노출시 외기 온도에 따른  $UO_2$ 의 산화특성  
(구멍크기: 5.08cm, 공기순환비: 1회/hr)

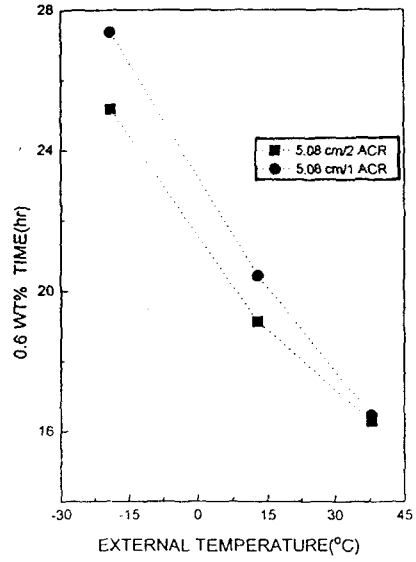


그림 7. 저장조의 사용후핵연료 노출시 외기 온도에 따른 0.6% 무게증가 시간