

사용후핵연료의 저장과 열화기구

Spent Fuel Storage and Degradation Mechanism

우리 나라는 12기의 원자력발전소를 운전하고 있는 세계 10위의 원자력 발전국으로 매년 많은 양의 사용후핵연료를 방출하고 있고 사용후핵연료 관리정책이 "기다리면서 관망(wait and see)"하는 것으로 되어있어 저장기간이 장기화 할 것으로 예상되고 있기 때문에 사용후핵연료를 장기간동안 안전하고 효율적으로 저장할 수 있고 국내 실정에 맞는 기술을 선정하는 것이 필요하다.



閔德基*
Min, Duck Kee

1. 머리말

1950년대 원자력에 의한 상업발전이 시작된 이후, 원자력발전소의 수는 계속 증가하여 현재는 440기를 넘었고, 총 전력소요량의 약 17%를 원자력에 의존하고 있으며, 이런 추세는 당분간 계속될 전망이다. 특히 최근에 심각한 환경문제가 되고 있는 지구온난화가 화석연료를 사용함으로써 발생하는 이산화탄소에 기인한다는 것이 알려지면서, 원자력이 대량 에너지의 안정적 공급과 지구환경 보전을 가능케 하는 현실적인 화석에너지의 대체 에너지로서 그 중요성이 강조되고 있다.

그러나 원자력발전소가 점점 증가함에 따라 원자력발전소에서 타고 나온 핵연료, 즉 사용후핵연료는 매년 증가하고 있어 이를 안전하고 효율적으로 장기간 저장관리할 수 있는 방안을 모색할 필요가 생겼다. 더구나 사용후핵연료의 재활용에 대한 국제적 여건과 처분시의 안전성 입증

및 부지 확보의 어려움 등을 고려할 때 사용후핵연료의 저장기간이 장기화 할 것으로 예상된다.

따라서 사용후핵연료를 장기간 안전하고 효율적으로 저장·관리할 수 있는 기술의 개발은 우리나라 뿐만 아니라 원자력발전 국가의 공동된 현안문제가 되고 있다.

2. 사용후핵연료 저장

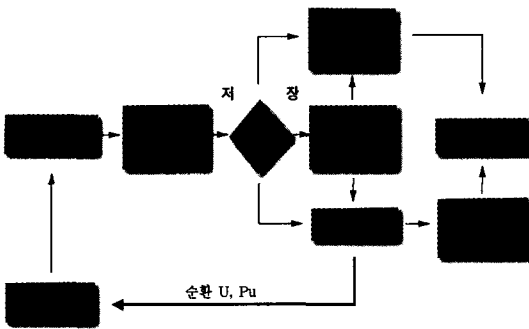
가. 사용후핵연료 저장과 핵연료 주기

1960년대 이전의 사용후핵연료 저장개념은 사용후핵연료를 재처리하기 전까지 수개월 정도의 단기적이고 임시적 개념이었으나, 1970년대 들어 오면서 원자력발전이 활발해지고 여기에서 방출되는 사용후핵연료의 효율적 관리문제가 중요시되면서 사용후핵연료 저장은 후행(back-end)핵연료주기의 독립적인 한 단계로 인식하게 되었다(<그림 1>). 또 1980년대 중반까지는 사용후핵연료의 저장기간이 50년을 초과하지 않을 것으로

*핵연료기술사, 한국원자력연구소 책임연구원.

예상하였으나 최근에는 사용후핵연료 처분시의 안전성 입증 및 부지 확보의 어려움으로 사용후핵연료의 저장기간이 장기화하면서 100년으로 확장하여야 한다는 의견이 대두되고 있다.

현재까지의 저장경험을 토대로 할 때 50년 이상의 장기저장시 안전성 문제는 아직도 입증미안된 상태로 앞으로 해결하여야 할 문제로 남아 있다.



〈그림 1〉 후핵연료주기에서의 사용후핵연료 저장

나. 저장방식의 분류 및 비교

사용후핵연료의 저장방식은 저장시설의 장소에 따라 부지내(at reactor, AR) 저장과 부지의외(away-from-reactor, AFR) 저장으로, 냉각매체에 따라 습식과 건식으로 분류할 수 있지만 후자가 기술적 특성을 기술하기에 편리하다.

또 건식 저장은 금속 캐스크, 콘크리트 캐스크, vaults와 dry well 방식으로 구분된다[1].

습식 저장개념은 약 40년의 저장경험을 갖고 있어 안정성이 실증된 방식으로서 현재까지도 사용후핵연료의 저장에 가장 큰 역할을 담당하고 있다.

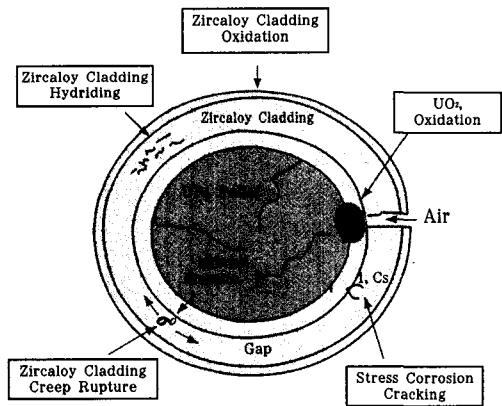
습식 저장방식은 건식에 비하여 냉각효율이 양호하기 때문에 핵연료의 온도를 낮게 유지할 수 있는 반면, 냉각수 정화, 순환계통의 지속적인 유지보수가 필요하고 2차 폐기물이 많이 발생하는 단점을 갖고 있다[2].

건식 저장개념은 1970년대 초 파일럿 규모의 시설이 등장하기 시작하여 1980년대 와서는 소규모 용량의 부지내 저장시설 확장용으로 많이 활용되고 있다.

건식 저장방식은 자연대류에 의한 냉각(passive cooling)이 가능하여 시설운영비가 저렴하고 2차 폐기물의 발생이 적다는 이점이 있으나 사용후핵연료 피복관 온도가 습식에 비하여 높기 때문에 이 피복관 온도가 시설의 인허가에 있어서 사용후핵연료 건전성과 관련된 가장 중요한 제한요건이 되고 있다.

3. 사용후핵연료 열화기구

사용후핵연료 저장 중에 발생할 수 있는 열화기구는 피복관의 크립, 산화 및 수소화, 응력부식 균열(SCC) 및 예민화(주로 스테인리스 강 피복관 연료의 경우)와 손상된 핵연료의 UO_2 산화 등으로 나눌 수 있으나(〈그림 2〉), 저장방식과 사용후핵연료 피복관 재질에 따라 조금씩 다르기 때문에 여기서는 지르칼로이 피복관을 사용하는 가압경수로 핵연료의 건식저장에 관한 내용을 중심으로 기술하고자 한다.



〈그림 2〉 사용후핵연료 저장시의 열화기구

사용후핵연료의 습식저장 경우 냉각효율이 양호하여 사용후핵연료의 저장온도를 낮게(실제 50℃ 이하) 유지할 수 있기 때문에 정상 운전조건에서는 사용후핵연료를 장기간 저장하여도 특별한 핵연료의 열화현상이 발생하지 않는 것으로 알려져 있다[3-4]. 지금까지의 저장경험과 연구 결과에 의한 피복관 산화를 기준으로 할 때 약 100년의 저장도 사용후핵연료의 건전성에 문제가 없을 것으로 예측하고 있다.

건식저장의 경우 냉각재로써 주로 공기나 불활성 기체 등을 사용하기 때문에 습식에 비해 핵연료의 온도가 높아 사용후핵연료를 장기간 저장할 경우 UO_2 의 산화와 피복관의 크립 파괴로 사용후핵연료의 건전성에 영향을 줄 수 있다[5].

사용후핵연료의 건식저장에는 충전기체의 종류에 따라 불활성기체 저장방식과 공기 저장방식으로 나눌 수 있다. 불활성기체 저장방식은 미국, 독일, 영국 등 원자력 선진국에서 이미 실용화되어 상당량의 사용후핵연료의 저장을 담당하고 있다. 그러나 이 방법은 사용후핵연료 장전작업이 복잡하고 저장기간중 충전가스의 누설을 연속적으로 감시하여야 하는 등, 경제적으로 불리한 단점도 있기 때문에 최근에는 저장용기의 충전기체로 공기를 사용하는 방식에 대한 관심이 증가하고 있다(〈표 1〉).

〈표 1〉 불활성기체 및 공기중 저장방식 특성 비교

저장 방식	active system	passive system
저장 온도	비교적 고온 (~380℃)	상대적 저온 -CANDU:160℃ 이하 -PWR : ?
기술성	양호(실증기술)	비 실증기술
경제성	비교적 양호 - 장전비 - 장기간 누설 감시	양호
안전성	밀봉용기 파손시 핵연료 손상	양호

사용후핵연료의 저장매체로 공기를 사용할 경우 사용후핵연료 열화기구중 가장 문제가 되는 것은 피복관의 크립과 UO_2 의 산화이며, 이에 의한 손상을 방지하기 위해서는 사용후핵연료의 최대 저장허용온도를 설정하는 것이 필요하다.

실제로 이 최대 저장허용온도는 저장 방식과 기간을 제한하는 인·허가요건이 된다.

가. 최대 저장허용온도의 결정

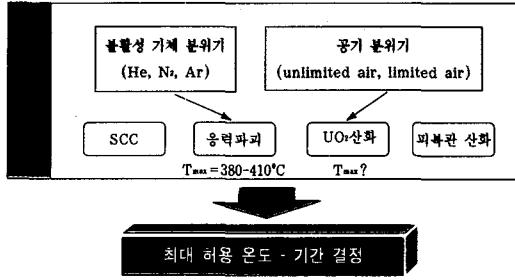
건식저장시의 사용후핵연료 안전성에 대하여 미국의 10CFR Part 72[6], Subpart F에서는 사용후핵연료 피복관의 손상을 방지하도록 규정하고 있으며(“The fuel cladding shall be protected against degradation and gross rupture”), 미국의 민간기준인 ANS/ANSI 57.9[7]에서는 건식 저장방식을 비산화 분위기(불활성기체 분위기)와 산화 분위기로 구분하고, 산화분위기는 다시 무제한 공기분위기(unlimited air)와 제한된 공기분위기(limited air)로 구분하여 제한조건을 규정하고 있다.

즉, 비산화 분위기의 최대 저장허용온도를 380℃로 규정하고 있으며, 산화 분위기에 대해서는 전 저장기간동안 UO_2 의 산화생성물인 U_3O_8 가 생성되지 않아야 하고(“incubation time for U_3O_8 formation is not exceeding during the storage life time of the fuel unit”), 크립 변형량이 1%를 초과하지 않도록 규정하고 있다.

위의 조건을 만족할 수 있는 저장조건 즉, 최대 저장허용온도 및 기간은 사용후핵연료의 열화거동을 평가하여 이론적/실험적 방법으로 결정할 수 있으며, 최대 저장허용온도를 제한하는 임계 열화기구는 저장방식별로 활성화되는 온도가 가장 낮은 열화기구가 된다.

즉, 불활성기체 분위기 저장의 경우는 피복관 크립 파괴이고, 공기 분위기(limited and

unlimited) 저장의 경우는 UO_2 의 산화가 된다. (〈그림 3〉)



〈그림 3〉 최대 저장허용온도를 결정하는 열화기구

나. 크립 파괴

피복관의 크립 파괴는 불활성 기체분위기의 저장조건을 제한하는 임계 열화기구이다.

핵연료봉은 제조시 고압의 헬륨기체가 채워져 있으며 원자로 운전 중에 핵분열기체가 방출되고 연료봉 피복관이 크립 다운(creep-down) 되어 봉 내부 압력은 더욱 증가하게 된다.

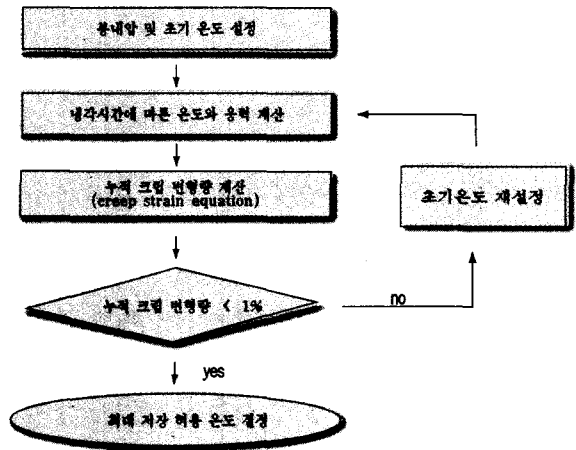
이 봉내압이 피복관에 응력으로 작용하게 되고 이 응력이 피복관을 크립 변형시켜 파손시키게 된다.

따라서 최대 저장허용온도를 결정하기 위해서는 사용후핵연료 냉각시간에 따른 온도와 응력 분포 및 이로 인한 크립 파괴시간을 계산하여 온도와 크립파괴 시간의 관계로부터 전 저장기간 동안 크립 파괴가 일어나지 않는 온도를 찾아야 한다[8].

그러나 실제로는 공학적 편리성 때문에 크립 파괴시간보다는 1%의 크립 변형량(러시아의 경우 2%)을 기준으로 하고 있다.(〈그림 4〉)

크립 변형량 및 파괴시간의 계산을 위해서는 실험적 상수가 필요하지만, 수십년 이상의 저장기간에 해당하는 실험결과가 없기 때문에 단기간의 실험결과를 등가의 장기간 실험결과로 확

장할 수 있는 Larson-Miller 인자(P)를 이용하고 있다.



〈그림 4〉 불활성 기체분위기의 최대 저장허용온도 결정방법

다. UO_2 산화

사용후핵연료봉의 산화기구는 UO_2 가 다른 우라늄 산화물(U_3O_8 , UO_3)로 변환되어 체적이 증가하게 (U_3O_8 의 경우 30% 증가) 되며 이로 인하여 피복관에 응력이 작용하여 손상되는 열화기구이다.

이러한 UO_2 의 산화는 산소가 핵연료봉 피복관을 통하여 내부로 침투하여 발생하는 것이기 때문에 먼저 피복관의 손상과 산소의 존재가 전제되어야 한다. 따라서 UO_2 산화는 불활성 기체분위기 저장에서는 핵연료 피복관이 파손되었다 하더라도 큰 영향을 주지 못하지만, 산화분위기 저장에서는 피복관이 쉽게 손상될 수 있기 때문에 실제로 최대 저장허용온도를 제한하는 임계 열화기구이다[9].

UO_2 의 산화는 온도와 저장 분위기에 따라 매우 복잡한 양상을 띠고 있지만 일반적으로 공기 중에서의 산화는 크게 두 단계의 과정으로 진행되는

데, 1단계는 U_3O_7 형성반응이고 2단계는 U_3O_8 형성반응이다.

첫 번째 단계인 U_3O_7 에서는 UO_2 격자 결정구조가 약간 수축하여 약 3%의 부피가 감소하며 두 번째 단계인 U_3O_8 형성반응에서는 약 30%의 부피가 증가하여 핵연료의 분말화를 유발한다.(<표 2>) 따라서 U_3O_8 산화물의 형성은 피복관에 응력을 주어 손상시키기 때문에 U_3O_8 산화물의 형성을 제한하는 것은 사용후핵연료의 저장에서 매우 중요한 요소가 된다.

<표 2> 우라늄 산화물의 특성 산화물

UO_2	cubic(fluorite)	brownish black	10.96	$2.0 \pm x$
U_3O_8	bcc	brownish black	11.26	2.25
U_3O_7	tetragonal	-	11.32	2.33
U_5O_8	orthorhombic	greenish black	8.40	2.67
UO_3	orthorhombic	yellowish red	8.03	$3.0 \pm x$

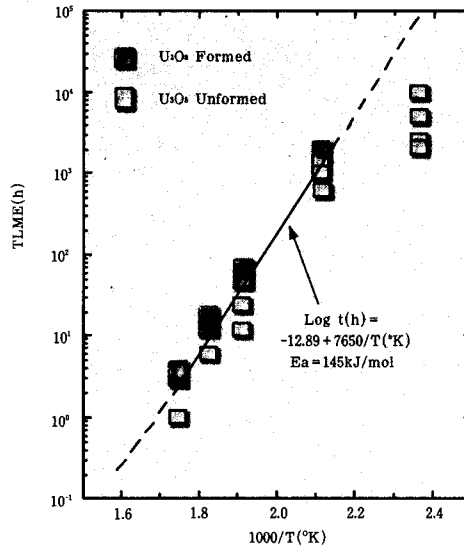
UO_2 산화에 의한 최대 저장허용온도를 결정하는 방법은 다음과 같은 방법들이 있다.

o U_3O_8 형성시간을 기준으로 하는 방법 :

U_3O_8 형성이 시작되는 시간(onset-time)이 사용후핵연료의 전 저장기간보다 길어야 한다는 기준 하에, 단기간의 실험에 의하여 U_3O_8 형성시간과 온도의 관계식을 유도하고 저장기간으로 외삽하여 최대 저장허용온도를 결정하며 가장 보수적인 방법이다. (예시 : <그림 5>)

o UO_2 의 분말화 시간을 기준을 기준으로 하는 방법 : U_3O_8 형성이 시작된 후 어느 정도 산화가 계속되면 부피 팽창에 의한 분말화가 일어나게 되는데, 이 분말화 시간이 전 저장기간보다 길어야 한다는 기준 하에, 단기간의 실험에 의하여 UO_2 분말화 시간과 온도의 관계식을 유도하고 저장기간으로 외삽하여 최대 저장허용온도를 결정한다.

o 0.6 wt.%의 무게이득 시간을 기준을 기준



<그림 5> U_3O_8 형성 개시시간과 온도와 관계

으로 하는 방법 : U_3O_8 가 형성되면 산소원자가 증가한 것만큼의 무게이득이 일어나게 되는데, 0.6 wt.% 무게이득은 UO_2 의 15%가 U_3O_8 으로 산화되었을 때에 해당한다.

0.6 wt.%의 무게이득 시간이 저장기간보다 길어야 한다는 기준 하에, 단기간의 실험에 의하여 0.6 wt.% 무게이득 시간과 온도의 관계식을 유도하고 저장기간으로 외삽하여 최대 저장허용온도를 결정하는 방법이다.

사용후핵연료봉 내의 UO_2 소결체가 산화되어 0.6 wt.%의 무게이득이 일어나면 UO_2 의 부피가 팽창하여 연료봉의 직경이 약 2% 증가하게 되며, 이 양을 피복관에 대한 건전성 기준으로 사용하고 있다(공학적 측면에서 편리함).

4. 맺음말

우리 나라는 12기의 원자력발전소를 운전하고 있는 세계 10위의 원자력 발전국으로 매년 많은 양의 사용후핵연료를 방출하고 있고 사용후핵연료 관리정책이 “기다리면서 관망(wait and

see)"하는 것으로 되어있어 저장기간이 장기화할 것으로 예상되고 있기 때문에 사용후핵연료를 장기간동안 안전하고 효율적으로 저장 할 수 있고 국내 실정에 맞는 기술을 선정하는 것이 필요하다.

사용후핵연료 장기 저장할 경우, 건식(특히 산화 분위기)저장이 장기간 운영측면에서 다소 유리할 것으로 판단되며, 이 때 저장조건을 제한하는 열화기구는 피복관의 크립 파괴와 UO_2 의 산화이다.

불화성 분위기 저장(50년 미만의 중·단기)의 경우 피복관 재료의 크립 거동에 의하여 380~410

°C 를 최대 저장허용온도로 결정하여 사용하고 있으나, 공기중 저장의 경우 아직 UO_2 산화거동이 정확히 규명되지 않은 상태로 최대 저장허용온도를 결정하기 위해서는 계속적인 실험/연구개발이 필요하다.

특히 앞으로 사용후핵연료 저장기간이 50년 이상 장기화 할 것에 대비한 사용후핵연료 장기저장기술을 실용화하기 위해서는 피복관의 크립과 UO_2 산화와 같은 장기 열화거동의 규명/검증이 선행되어야 한다.

(원고 접수일 1998. 4. 27)

참고문헌

1. IAEA, Guidebook on Spent Fuel Storage, Tech. Rep. Ser. 240, IAEA, Vienna(1984).
2. IAEA, Storage of Water Reactor Spent Fuel in Water Pools, Tech. Rep. Ser. 218, IAEA, Vienna (1982).
3. IAEA, "Behavior of Spent Fuel Assemblies during Extended Storage", IAEA-TECDOC-414 (1987).
4. AEA, "Behavior of Spent Fuel and Storage Facility Components during Long-Term Storage," IAEA-TECDOC-673 (1991).
5. R.E. Einziger, Analyses of Expected Rod Performance During the Dry Storage, HEDL-SA-2750, Westinghouse Hanford Co. (1982).
6. CFR Parts 72 (1994) Licensing Requirements for the Storage of Spent Fuel in an Independent Spent Fuel Storage Installation.
7. ANSI/ANS 57.9 Design Criteria for an ISFSI (dry storage)
8. M. Mayuzumi et. als., The Maximum Allowable Temperature of Zircaloy-2 Fuel Cladding under Dry Storage Conditions, Research Rep. T88068, Central Research Institute of the Electric Power Industry (1989).
9. L.E. Thomas, Storage of LWR Spent Fuel in Air, Vol. 3, Results from Exposure of Spent Fuel to Fluorine-Contaminated Air, PNL-10600 (1995).