

## 사용후핵연료 저장수조에서 사용후핵연료 피복관의 산화에 의한 수소 발생

박주영, 박광현, 김소영

경희대학교, 경기도 용인시 기흥구 서천동 1

kpark@khu.ac.kr

### 1. 서론

2011년 3월 11일 일본 동북부 센다이 근방 해저에서 진도 9.0의 강한 지진이 일어나 최고 20m 높이의 쓰나미가 동북부 해안지방을 덮치게 되었다. 지진 발생 직전 후쿠시마 제 1 원자력 발전소의 총6호기의 원자로 중 1, 2, 3호기는 운전 중에 있었고 4, 5, 6 호기는 점검 등의 이유로 가동 중지되어 있었다. 지진발생 직후 자동적으로 1, 2, 3호기는 가동정지 되었다. 그러나 잠시 후 밀려온 수십 미터 높이의 쓰나미에 의해 응급전원을 제공하는 디젤발전기가 멈춰졌고 원자로 내 잔열 제거 시스템이 제 기능을 못하게 되었다. 또한 전력 차단은 4호기의 사용 후 핵연료 저장 수조의 냉각시스템을 정지시켜 사용 후 핵연료들이 더 이상 냉각되지 못하여 수조 안의 물이 비등하기 시작하였고 공기 증으로 노출된 사용 후 핵연료는 수증기와 반응하여 수소를 생성하였다. 결국 수소 폭발로 인해 원자로 건물 옥상 외벽이 파괴되는 결과를 가져오게 되었다.

본 연구에서는 후쿠시마 원전(BWR형태)의 사용 후 핵연료의 붕괴열로부터 저장 수조의 수위변화에 따른 연료봉 표면 온도를 찾고 이 온도에서 피복관의 수증기와와의 반응에 의해 얼마 만큼의 수소가 발생 할 수 있는가를 알아내어 사용 후 핵연료의 안전성을 분석하는 것을 목표로 하였다.

### 2. 본론

BWR 의 Burn up이 40000 MWD/MT(Full extended burn up)일 경우 노심 정지 후 5주 후에는 연료봉의 출력이 정지 직후의 0.3% 가량으로 줄어들게 되는데 그 값은 약 36770.W/Ton 이다.

$A(t^*)$ 는 사용 후 핵연료 저장 수조의 물이 끓어 수위가 내려감에 따라 공기 증으로 노출되는 겉 표면의 넓이를 나타낸다. ( $r=0.615\text{Cm}$ ,  $L=406\text{Cm}$ )

$$A(t^*) = 2\pi rL \times t^* \dots\dots\dots (1)$$

$t^*$ 가 커짐에 따라 공기 증으로 노출되는 사용 후 핵 연료봉 겉 표면의 넓이는 증가한다.

$$t^* = \frac{t}{t_f} \dots\dots\dots (2)$$

$t$ 는 수조가 마르기 시작한 후 지나간 시간이며  $t^*$ 는 무차원 수로서  $0 < t^* < 1$ 의 범위의 수를 갖는다.

$$t_f = \frac{L}{V} \dots\dots\dots (3)$$

$t_f$ 는 사용 후 핵연료 수조의 물이 마르기 시작한 후 다 마르기 까지 걸리는 시간을 나타낸다.

( $V$  : 사용 후 핵연료 저장고의 수위가 내려가는 속력)

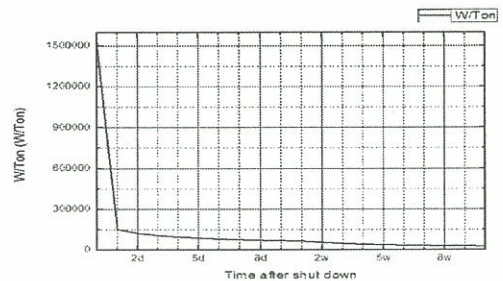


Fig. 1. Decay heat after Shut-down for BWR nuclear fuel

노심 정지 5주 후의 Decay Heat으로 부터 도출되는 Heat source를 이용하여 Comsol 프로그램을 사용하면 복사열전달계수와 사용 후 핵연료 저장 수조의 수위에 따른 공기 증으로 노출된 사용 후 핵 연료봉의 온도는 다음과 같다.

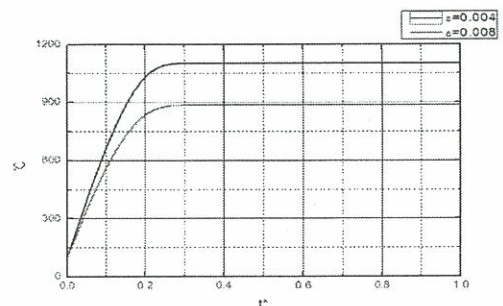


Fig. 2. Exposed fuel cladding Average Temp. change according to  $t^*$

물의 수위는 수조 안에 저장되어 있는 사용 후 핵연료의 높이를 10분할하여 측정 하였다. 프로그램 수행 결과 물과 접촉되어 있지 않은 부분의 온도는 높은 온도로 ( $\epsilon=0.004$  의 경우  $1104^{\circ}\text{C}$ ,  $\epsilon=0.008$  의 경우  $886^{\circ}\text{C}$ ) 일정하게 유지되고 있는 모습을 발견할 수 있었다.

$\delta_{\text{r}}^2$  은  $(\text{g}/\text{cm}^2)^2/\text{sec}$  로서 단위시간당 Zr cladding에 대한 단위면적당  $\text{O}_2$  소모량의 값을 (소모량의 제곱 :  $\delta_{\text{r}}^2$ ) 나타낸다.

$$\frac{\delta_{\text{r}}^2}{2} = 0.1811 \times e^{\frac{-39940}{1.98 \times T(\text{K})}} \dots\dots\dots (4)$$

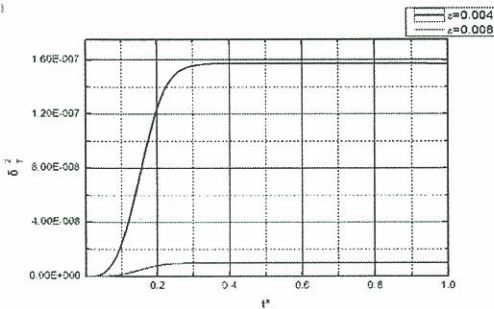


Fig. 3.  $\delta_{\text{r}}^2$  ( $(\text{g}/\text{cm}^2)^2/\text{sec}$ ) according to  $t^*$

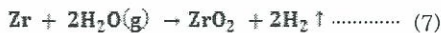
그러므로 이로부터 사용 후 핵 연료봉의 cladding과 결합하여 소모된  $\text{O}_2$  의 총합(총합의 제곱:  $M^2$  ( $\text{g}^2$ ))을 유도할 수 있는데 아래와 같은 수식으로 유도된다.

$$M^2[\text{g}^2] = \int A^2 \delta_{\text{r}}^2 dt \dots\dots\dots (5)$$

$$dt = t_f dt^* \quad \text{이므로}$$

$$= (2\pi r L)^2 t_f \int \delta_{\text{r}}^2 (t^*)^2 dt^* \dots\dots\dots (6)$$

위 식의 결과는  $t_f$  를 어떤 값으로 하느냐에 따라 그 값이 변화하게 된다.  $\text{O}_2$  의 소모량을 알면 아래 화학식으로  $\text{H}_2$  의 발생량을 계산 할 수 있다.



Zr은 고온상태에서 수증기와 만나게 되면 Zr이 산소 원자와 결합하여 Zr Oxide가 되며 수소 기체를 발생 시킨다. 이때 수소의 발생량을 계산해보면 저장되어 있는 사용 후 핵연료 하나당 아래와 같은 수소를 발생시킴을 알 수 있다.

$$\text{H}_2 \text{ generated}(\text{L}) = \sqrt{M^2} \times \frac{4\text{g}}{32\text{g}} \times \frac{22.4\text{L}}{2\text{g}} \dots\dots\dots (8)$$

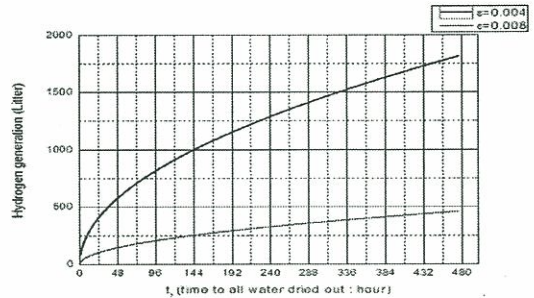


Fig. 4. Generation of Hydrogen ( $\text{H}^2$ /spent fuel rod)

### 3. 결론

BWR의 사용 후 핵연료는 아직 많은 양의 잔열을 방출할 수 있고, 이 열 에너지는 반드시 냉각 시스템에 의하여 냉각이 필요하다. 후쿠시마 제1원전 4호기에서와 같이 냉각이 안될 경우 물은 비등하여 핵연료 봉이 공기 중으로 드러나면서 수증기와 반응하게 된다. 노출된 사용 후 핵연료봉은 수증기/공기의 혼합기체와 반응할 정도로 높은 온도까지 올라가며 이로 인해 피복관의 주성분인 Zr은 공기 중의 수증기와 만나 산화되며 수소를 발생시킨다. 수면위로 노출된 핵연료는 복사열에 의한 열전도가 주된 냉각 형태로 보고, 수위에 따른 노출된 핵연료의 온도를 구하였다. 이 온도분포를 근거로 시간대별 수소발생량을 유추하였다. 수소가스는 복사열전달 계수(Geometry factor)가 작아 피복관의 온도가 높을수록, 그리고 수위가 천천히 내려갈수록 수소가스발생이 높고 이를 정량화하는 계산체계를 구축하였다.

### 4. 감사의 글

본 연구는 연구재단의 지원에 의해 수행되었습니다. (Grant code: 2010-0017505)

### 5. 참고문헌

[1] R.E. Pawel,\*J.V. Cathcart,\* and R.A.McKee. The kinetics of Oxidation of Zircaloy-4 in Steam at High Temperatures.