

Review of Research on Chloride-Induced Stress Corrosion Cracking of Dry Storage Canisters in the United States

미국의 건식저장 캐니스터에서의 CISCC 연구에 대한 검토

Hyoung-Gyu Park and Kwang-Heon Park*

Kyung Hee University, 1732 Deokyoung-daero, Giheung-gu, Yongin-Si, Gyeonggi-do, Republic of Korea

박형규, 박광현*

경희대학교, 경기도 용인시 기흥구 덕영대로 1732

(Received June 7, 2018 / Revised July 4, 2018 / Approved August 8, 2018)

It is important to study how to manage dry storage casks of spent nuclear fuels (SNF), because wet storage spaces for SNF will shortly be at full capacity in the Republic of Korea. The US has operated a dry storage cask system for several decades, and has carried out significant studies into how to successfully manage dry storage cask for SNF. This type of expertise and experience is currently lacking in the Republic of Korea. The degradation of dry casks is an important issue that must be considered. In particular, chloride-induced stress corrosion cracking (CISCC) is known to lead to the release of radioisotopes from canisters. The U.S. Department of Energy, U.S. Nuclear Regulatory Commission, and the Electric Power Research Institute have undertaken research into the CISCC mechanism. In addition, Sandia National Laboratories (SNL) has extensively researched CISCC and how to manage it in dry storage canisters. In this review paper, the probabilistic model proposed by the SNL is analyzed and, based on this model, US-based CISCC research is reviewed in detail. This paper will inform the management of dry cask storage of SNF from light water reactors in austenite stainless steel canisters in the Republic of Korea

Keywords: Dry storage cask, SNF, Degradation, CISCC, Probabilistic model

*Corresponding Author.

Kwang-Heon Park, Kyung Hee University, E-mail: kpark@khu.ac.kr, Tel: +82-31-201-2917

ORCID

Hyoung-Gyu Park

<http://orcid.org/0000-0003-1974-6358>

Kwang-Heon Park

<http://orcid.org/0000-0003-2477-6674>

국내의 사용후핵연료가 증가함에 따라 사용후핵연료 저장조는 곧 포화가 될 것으로 예상된다. 따라서 사용후핵연료 건식저장 운영 및 관리 방안에 대해 연구하는 것은 매우 중요하다. 미국에서는 오랜 기간 건식저장을 운영해왔으며 이를 바탕으로 사용후핵연료 건식저장 운영 및 관리 방안에 대해 많은 연구가 수행되고 있다. 그러나 우리나라에서는 경수로 사용후핵연료 건식저장 경험이 없으며 관련 관리방안 및 구체적인 기준이 매우 부족한 현실이다. 건식저장기간 동안 주요한 이슈중의 하나는 건식저장용기 열화현상이며 대표적으로 응력부식균열에 의한 부식현상이 있다. 미국에서는 U.S. DOE, U.S. NRC, 그리고 EPRI 주관 아래 건식저장 캐니스터에서의 염화물 응력부식균열에 관한 많은 연구들을 수행하고 있다. 또한 건식저장 캐니스터의 염화물 응력부식균열 현상을 설명하기 위해 SNL에서는 확률론적 응력부식균열 모델을 제시하였다. 본 논문에서는 SNL에서 제시한 확률론적 응력부식균열 모델을 검토하였으며 모델에 제시된 주요인자들을 세세하게 분석하였다. 본 논문은 우리나라에서 스테인리스 스틸로 제작된 캐니스터를 경수로 사용후핵연료 건식저장으로 이용할 경우, 건식저장 운영 및 관리 방안을 구축하는 데에 좋은 참고문헌이 될 것이라 사료된다.

중심단어: 건식저장용기, 사용후핵연료, 열화현상, 염화물 응력부식균열, 확률론적 모델

1. 서론

국내 경수로 사용후핵연료의 저장용량을 확장하기 전에는 고리는 2016년, 한빛은 2019년, 한울은 2021년, 신월성은 2022년에 포화가 될 것으로 예상되었었다. 하지만 기존 저장조에 대해 조밀렉 교체 및 설치를 수행함으로써 저장용량은 약 1.5 ~ 2배 정도가 증가될 것으로 예상되며 고리는 2028년, 한빛은 2024년, 한울은 2026년, 신월성은 2038년에 포화가 될 것으로 예상된다[1,2]. 이에 따라 경수로의 경우 2024년 이전에 소내 또는 소외 저장시설을 만들어 경수로 사용후핵연료를 저장해야 한다. 우리나라의 경우 월성에서 중수로 사용후핵연료 건식저장 운영 및 관리 경험이 있으나 경수로 사용후핵연료 건식저장 운영 및 관리 경험은 없다. 따라서 오랜 기간 경수로 사용후핵연료 건식저장 운영 및 관리를 해온 해외사례를 검토 및 분석하는 것은 앞으로 국내에서의 올바른 건식저장 운영 및 관리를 위해 매우 중요하다.

미국은 오랜 기간 건식저장을 운영해왔으며 건식저장용기 관리 방안에 대해 구체적인 기준을 가지고 있다[3-15]. 건식저장방식은 저장기간 동안 사용후핵연료의 대규모 파단사고를 예방하고, 사용후핵연료를 영구처분하기 전의 임시적으로 저장을 하는 방법이기 때문에 처분을 위한 수송 시점까지의 회수 가능성(Retrievability)을 유지하고 있어야 한다. 또한 최근에는 건식저장조건에서 사용후핵연료 또는 건식저장용기의 열화현상에 대한 연구의 중요성들이 언급되고

있다[16-22]. 사용후핵연료 또는 건식저장용기의 열화현상에 의해 대규모 파단사고가 발생하는 원인을 분석하여 원천적으로 예방하고, 사용후핵연료가 회수되는 시점까지 안전하게 보관하기 위해 열화현상을 파악하는 것은 매우 중요하다[23-33]. 건식저장조건에서의 사용후핵연료 열화현상은 방사선 조사에 의한 손상, 수소화 반응에 의한 취화현상 및 재배열화, 수소화 반응에 의한 지연수소화 균열(DHC) 현상, Creep등이 있다. 또한 건식저장용기의 열화현상에는 대표적으로 염화물 응력부식균열(CISCC)에 의한 부식현상이 있다[34-52].

미국에서는 다양한 경험을 바탕으로 U.S. Department of Energy (이하 DOE), U.S. Nuclear Regulatory Commission (이하 NRC), Electric Power Research Institute (이하 EPRI)의 주관 아래 건식저장 캐니스터에서의 염화물 응력부식균열에 관한 많은 연구들이 수행되고 있다[53-61]. 또한 건식저장 캐니스터의 염화물 응력부식균열 현상을 설명하기 위해 Sandia National Laboratories (SNL)에서는 확률론적 응력부식균열 모델을 제시하였으며 응력부식균열이 발생하기 위한 주요인자들을 주기적으로 분류 및 분석하였다[62,63].

우리나라가 경수로 사용후핵연료를 건식저장방식으로 저장할 경우, 앞으로 40년에서 60년 또는 그 이상 건식저장용기 운영 및 관리를 잘하기 위해서는 건식저장 관련 많은 연구가 수행되어야 한다[64-75]. 특히 삼면이 바다로 둘러싸인 우리나라의 경우 원전 부지 내 혹은 해안 주변에 건식저장

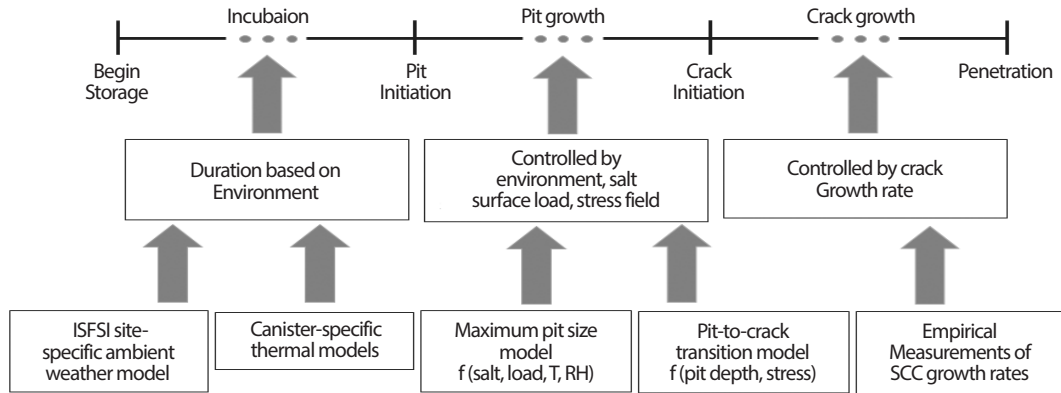


Fig. 1. General time line for SCC initiation and penetration [62,63].

용기를 운영할 가능성이 높다. 이에 따라 염의 환경에 노출되고 잔류응력이 존재할 경우 오스테나이트 스테인리스강으로 제작된 건식저장용기 캐니스터에서 염화물 응력부식균열이 발생할 수 있다. 때문에 건식저장이 운영될 지역에 대한 환경 분석 및 공기 중 염화물에 대한 연구가 필요하며, 추가적으로 국내에서 사용될 건식저장용기에 대한 용접으로 인한 열영향부위(heat affected zone)에서의 잔류응력에 관한 연구도 수행되어야 할 필요가 있다. 본 논문은 SNL에서 제시한 확률론적 응력부식균열 모델을 검토하였으며 모델에 제시된 주요인자들을 세세하게 분석하였다. 또한 국내에서 경수로 사용후핵연료를 건식저장방식으로 저장하고 염화물 응력부식균열에 취약한 재료로 제작된 캐니스터를 이용할 경우에 대한 연구방향을 제시하였다.

2. 염화물 응력부식균열 연구 목적, 현황 및 기본 모형

2.1 목적

염화물 응력부식균열 연구의 목적은 건식저장조건하에서 저장용기 관리 측면에서의 캐니스터 열화거동에 대해 파악하고 이를 정량적으로 분석하기 위함이다. 건식저장방식은 공기를 이용하여 사용후핵연료를 식히는 방식이므로 주변환경에 많은 영향을 받는다. 특히 우리나라의 경우 삼면이 바다로 이루어져있어 건식저장 시 염화이온에 의한 영향을

많이 받을 것으로 예측되므로 이에 따른 환경분석은 필수적이다. 또한 응력부식균열(SCC)은 인장응력 환경에서 발생하므로 캐니스터 용접부에서의 잔류인장응력 가능성에 대한 연구도 필요하다.

2.2 현황

EPRI의 주도하에 Calvert Cliffs, Hope Creek, 그리고 Diablo Canyon에서 운용되고 있는 경수로 사용후핵연료 건식저장용기에 대한 환경영향을 분석하였다[76,77]. 분석결과 건식저장용기는 각각의 지역특성에 따라 영향을 받는 것으로 확인되었다. 또한 U.S. NRC에서는 온도 및 상대습도에 따른 염화물의 조해성(Deliquescence)을 파악하기 위해 온도 및 상대습도에 따른 조해성 실험을 실시하여 그에 따른 조해점(Deliquescence Relative Humidity)을 파악하였다[76-80]. 스테인리스 스틸에서 국부적으로 파괴된 곳(=핏트)에 대한 연구 현황으로는 최대핏트크기를 예측하기 위해 Z.Y. Chen과 R.G. Kelly가 전기화학적으로 모델을 제시하였다[81,82]. Y. Kondo는 핏트와 균열의 친이점을 파악하기 위해 실험을 수행하였으며 이에 근거한 핏트 성장률에 관한 관계식을 제시하였다[83]. 건식저장 캐니스터에서의 인장응력을 파악하기 위해서 U.S. DOE에서는 캐니스터 실물 크기의 모형(full-diameter cylindrical mockup)을 제작하였고 용접 부분 및 열영향부위에 대해 여러 측정장치로 잔류인장응력을 측정하였다[84]. 추가적으로 U.S. NRC에서는 ABAQUS를 활용한 유한요소법으로 캐니스터의 잔류응력을 파악하였다[58].

Table 1. Composition of 304 L plate and 308 L filler metal used to construct mockup [84]

	C	Co	Cr	Cu	Mn	Mo	N	Ni	P	S	Si
304/304 L	0.0223	0.1865	18.10	0.4225	1.7125	0.3180	0.0787	8.027	0.0305	0.0023	0.2550
308 L (lot1)	0.014	-	19.66	0.16	1.70	0.11	0.058	9.56	0.025	0.010	0.39
308 L (lot2)	0.012	-	19.71	0.192	1.730	0.071	0.053	9.75	0.024	0.012	0.368

2.3 기본 모형

SNL에서는 캐니스터의 염화물 응력부식균열 현상을 설명하기 위해 확률론적 응력부식균열모형을 제시하였으며, 이 모형을 기간에 따라 “핏트발생하기 전 잠복기간(Incubation before pit initiation)”, “핏트성장기간(Pit growth)”, 그리고 “균열 성장기간(Crack growth)” 세 가지 단계로 분류하고 각 기간에 따른 영향인자들을 분석하였다 (Fig. 1).

2.3.1 핏트 발생하기 전 잠복기간. 핏트 발생하기 전 잠복기간에 대해서는 주로 환경조건(Environmental condition) 및 온도에 따른 염화물의 조해성에 관한 연구를 주로 하고 있다. 이에 따라 EPRI에서는 건식저장용기를 운용 중에 있는 Calvert Cliffs, Hope Creek, 그리고 Diablo Canyon 지역에 대해 저장용기 영향인자들을 조사 및 분석하였다[76-80]. 또한 U.S. NRC에서는 온도 및 상대습도에 따른 염화물들의 조해성을 파악하기 위해 염화나트륨, 염화마그네슘, 염화칼슘 및 황산나트륨의 조해점을 파악하기 위한 실험을 실시했다. 온도는 계절 및 캐니스터의 외부 표면에 따라 영향을 많이 받게 되며, 상대습도는 건식저장시설을 운영하는 지역의 계절 및 절대습도에 따라 결정된다. 즉, 조건에 따른 염화물의 조해성을 파악하기 위해서는 추가적으로 소내 또는 소외 저장시설의 지역적 특성 및 캐니스터 외부 표면에 대한 온도 정보가 필요하다[53,54].

2.3.2 핏트 성장기간. 크롬(Cr)을 함유한 스테인리스 스틸과 니켈 합금은 국부적인 파괴에 의한 공식(Pit corrosion)에 취약하다[81]. 핏트 내에서는 양극, 핏트 주변 부분은 음극을 띄게 됨으로써 부식가속화 현상이 발생되기 때문이다. Z.Y. Chen과 R.G. Kelly는 음극전류, 양극전류, 그리고 전압강하를 고려하여 최대 핏트크기를 전기화학적으로 계산

하였다[82]. 또한 Y. Kondo는 핏트와 균열의 경계점을 알아내기 위해 핏트 및 균열에 대한 천이점을 응력확대계수를 이용하여 모델링 하였다. Y. Kondo가 제시한 모델을 통해 핏트와 균열에 대한 천이점은 핏트의 깊이와 응력에 영향을 받는다는 것으로 나타났다[83].

2.3.3 균열 성장기간. 응력부식균열에서 인장응력은 균열 성장에 영향을 끼친다. 캐니스터 제작과정에서 오스테나이트 스테인리스강을 단조로 변형시켜 용접함으로써 잔류응력들이 용접부위를 따라 발생하게 된다. 잔류응력들의 분포 위치 및 정량을 파악하는 것은 잠재적인 부식 및 균열을 방지하기 위해 매우 중요하다. 잔류응력을 파악하기 위해 U.S. DOE에서는 Calvert Cliffs에서 사용하고 있는 캐니스터 실물 크기의 모형을 제작하였는데, 모형의 재료 성분 및 용접 방법은 Calvert Cliffs에서 운영되고 있는 캐니스터와 동일하게 하여 제작하였다 (Table 1). 잔류응력 측정을 위해 다양한 측정법이 이용되었으며, SNL에서 각 측정법에 따른 잔류응력 측정 결과를 최종보고서에 수록하였다[84].

3. 염화물 응력부식균열

3.1 환경영향분석

스테인리스 스틸로 제작된 캐니스터의 부식은 염, pH, 사용후핵연료의 연소도 및 붕괴열, 계절, 캐니스터의 표면 위치에 따라 많은 영향을 받는다[85]. 본 논문에서는 바닷물(바다)과 빗물(육지)에 대한 염 성분비, pH, 그리고 온도에 따른 염의 조해성에 대해 검토하였다. Calvert Cliffs, Hope Creek, 그리고 Diablo Canyon 지역에 대한 환경영향분석에 앞서 바닷물(바다) 또는 빗물(육지)에 의한 영향을 분석하기

Table 2. Composition of ASTM ocean water and typical inland rainwater [57]

Species	Syn. Ocean water (mg·L ⁻¹)	Iowa rainwater (μeq·L ⁻¹)
NH ₄ ⁺	-	29.22
Na ⁺	11031	2.045
K ⁺	398	0.511
Mg ²⁺	1328	3.208
Ca ²⁺	419	16.766
Cl ⁻	19835	1.975
Br ⁻	68	ND
F ⁻	1	ND
SO ₄ ²⁻	2766	17.685
NO ₃ ⁻	-	15.565
BO ₃ ⁻	26	ND
HCO ₃ ⁻	146	ND
pH	8.2	ND

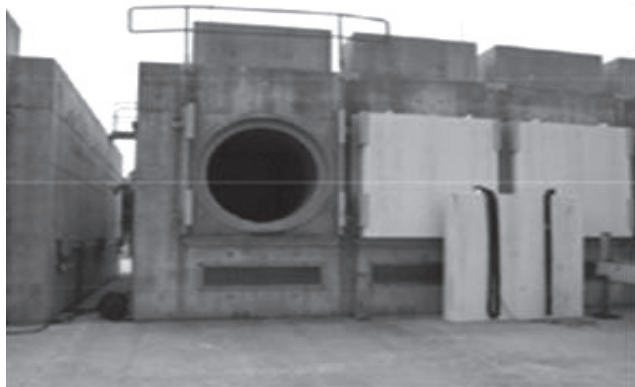


Fig. 2. NUHOMS horizontal storage module at the Calvert Cliffs ISFSI [57].

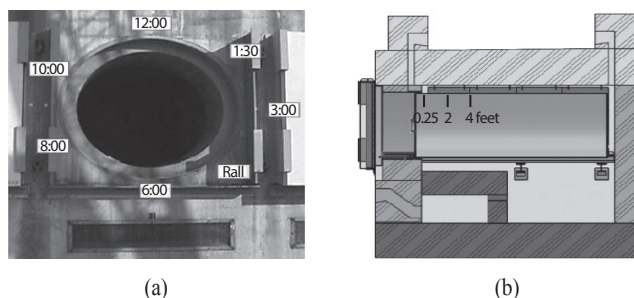


Fig. 3. Radial (a) and Axial (b) inspection locations NUHOMS [57].

위해 바닷물 및 빗물에 대한 성분 및 pH 분석을 실시하였다 [57]. 바닷물의 대부분을 구성하는 음이온은 염화염(~88%) 및 황산염(~12%)이었으며, 양이온은 나트륨(~84%) 그리고 소량의 마그네슘(~10%)이 대부분을 구성하고 있었고 pH는 대략 8정도를 나타내었다. 이와 반면 빗물의 대부분을 구성하는 음이온은 황산염(69~94%), 질산염(4.6~22%)이었으며, 양이온은 암모늄(~56%), 칼슘(~32%) 그리고 소량의 마그네슘(~6%), 나트륨(~4%)이었고 pH는 각 지역에 따라 편차가 크게 나타났다 (Table 2).

3.1.1 Calvert Cliffs. EPRI의 주도하에 Calvert Cliffs에서 운용되고 있는 NUHOMS 건식저장용기에 대해 수평저장방식(HSM-1, HSM-15)으로 저장되어 있는 두 개의 건식캐니스터(DSC-6, DSC-11) 표면 샘플을 채취하여 환경영향분석을 실시하였다(Fig. 2). 건식방법으로 4개, 습식방법으로 1개를 채취하여 총 5개의 샘플이 위치에 따라 분석되었다. 건식방법으로는 연마제를 이용하여 샘플을 채취하였으며 습식방법으로는 SaltSmart™ 을 이용하여 샘플을 채취하였다. Fig. 3a에 따라 반경 방향으로는 11, 7, 3시 방향에서, 캐니스터의 바닥으로부터는 10, 50, 100 cm 간격에 따라 샘플을 채취하였다(Fig. 3b). 채집된 샘플들은 Evans Analytical Group과 SNL에서 맡아 분석을 실시하였으며, 샘플 분석을 위해 XRD, XRF, SEM, 그리고 이온크로마토그래피 등의 분석장비들이 이용되었다.

Calvert Cliffs에서 운영중인 NUHOMS는 체서피크 만 주변에 위치하고 있어 대부분의 샘플이 바닷물 성분일 것으로 예측되었었다. 그러나 샘플 분석결과 예측한 바와 다르게 음이온에서는 황산염과 질산염이 대부분 발견되었으며, 양이온에서는 주로 칼슘이 많이 발견되었다. 또한 소량의 칼륨, 나트륨, 마그네슘이 에어로졸 형태로 발견된 것을 확인할 수 있었다. 따라서 Calvert Cliffs에서 운영중인 NUHOMS는 해안가 주변에 위치하지만 바닷물보다 빗물에 의한 영향을 더 많이 받는다는 것을 확인할 수 있었다[57].

3.1.2 Hope Creek. U.S. DOE 주관 아래 SNL에서 Hope Creek, Diablo Canyon에서 운용되고 있는 Holtec HI-STORM 100S-128, Version B system에 대하여 환경영향분석을 실시하였다 (Fig. 4). HI-STORM 100S-128은 NUHOMS와는 다르게 수직방향 콘크리트 오버팩에 스테인리스 스틸



Fig. 4. Holtec HI-STORM dry cask storage systems at Diablo Canyon [77].

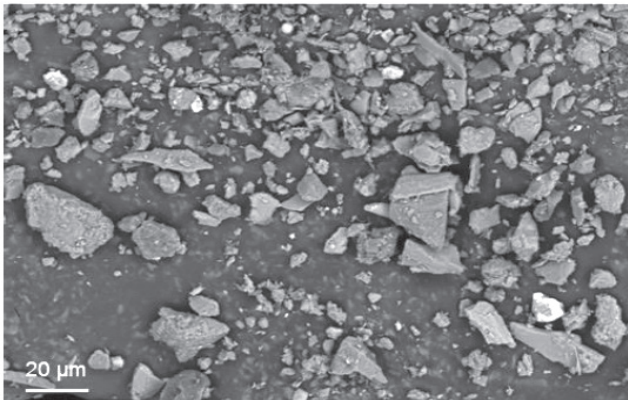


Fig. 5. SEM image of sample collected from the canister top at Hope Creek [77].

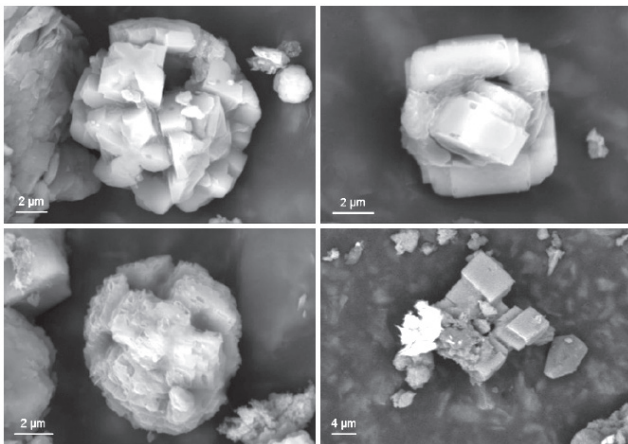


Fig. 6. SEM image of sample collected from the canister top at Diablo Canyon [77].

304로 만들어진 캐니스터가 들어가있다. MPC-144와 MPC-145에 대해 캐니스터의 윗부분, 캐니스터의 옆의 세 곳(위에서부터 0.46 m, 2.59 m, 그리고 4.11 m)에 대해 각 위치 별로 샘플을 채취하여 분석하였다. 위의 Calvert Cliffs에서 실시한 방법과 동일하게 건식방법 및 습식방법을 이용하여 샘플을 채취하였으며 채취된 샘플들은 SNL에서 진적으로 맡아 분석하였다. 건식방법으로 채취된 샘플들을 분석하기 위해서 SEM/EDS와 XRF가 이용되었으며, 습식방법으로 채취한 샘플들을 분석하기 위해 이온크로마토그래피와 ICP-OES 분석장비가 사용되었다.

Fig. 5는 SEM을 이용하여 캐니스터의 윗부분에서 건식방법으로 채취된 샘플 사진이다. EDS로 분석한 결과 Fe-Cr입자, 알루미늄 규산염, 장석, 석영, 석고, 그리고 꽃가루 등이 확인되었다. Fe-Cr입자는 캐니스터의 제작과정에서 생긴 스테인리스 스틸 304 입자들이며 관측된 꽃가루는 HI-STORM 주변에 있는 갈대밭의 영향으로 판단된다. 추가적으로 약간의 염화나트륨이 발견되는 것을 확인할 수 있는데 이는 주변에 있는 텔라웨어 강에 의한 영향으로 예측된다. XRF를 이용하여 정량 분석한 결과 철과 규소가 대부분을 차지하고 있었으며 추가적으로 칼슘, 칼륨, 황, 아연이 발견되었다. 아연이 발견된 이유는 캐니스터의 갈바닉 부식을 방지하기 위해 오버팩에 아연을 칠해두었기 때문이다. 습식방법으로 채취한 샘플을 이온크로마토그래피와 ICP-OES로 분석한 결과 양이온에서는 주로 나트륨, 칼슘, 암모늄이 발견되었으며, 음이온에서는 질산염, 황산염이 발견되었다. Hope Creek에서 운영중인 HI-STORM은 내륙에 위치하고 있기 때문에 빗물에 의한 영향이 바닷물에 의한 영향보다 클 것으로 예측되었으며, 분석결과 예상대로 바닷물 보다 빗물에 의한 영향을 많이 받는다는 것을 확인할 수 있었다[77].

3.1.3 Diablo Canyon. Hope Creek에서 실시되었던 방법과 같이 Diablo Canyon에서 운용되고 있는 HI-STORM에 대해 MPC-123과 MPC-170 캐니스터의 윗부분, 캐니스터의 옆의 세 곳(위에서부터 0.91 m, 2.29 m 그리고 3.35 m)에서 각각의 위치 별로 샘플을 채취하여 분석하였다. 마찬가지로 Diablo Canyon에서도 건식방법과 습식방법을 이용하여 샘플을 채취하였으며 분석은 SNL에서 실시하였다.

Diablo Canyon에서 운용되고 있는 HI-STORM도 Hope Creek에서 운영되고 있는 HI-STORM처럼 캐니스터의 윗부

Table 3. Summary of inspected canister at each locations

	Calvert Cliffs	Hope Creek	Diablo Canyon
Cask type	NUHOMS	HI-STORM 100S-218, Version B systems	HI-STORM 100S-218, Version B systems
Selected canister	DSC-6, DSC-11	MPC-144, MPC-145	MPC-123, MPC-170
Canister axis	Horizontal	Vertical	Vertical
Environment	Near ocean	Continent and near river	Near ocean
Operation period	16 ~ 19 years	6 years	2 ~ 4 years
Assay date	June, 2012	Nov, 2013	Jan, 2014
Analyzing agency	Evans Analytical Group, SNL	SNL	SNL

* SNL (= Sandia National Laboratories)

Table 4. Chemical composition of simulated sea salt (wt%) [86]

NaCl	MgCl ₂ ·6H ₂ O	Na ₂ SO ₄	CaCl ₂	KCl	NaHCO ₃	KBr	H ₃ BO ₃	SrCl ₂ ·6H ₂ O	NaF
58.49	26.46	9.75	2.77	1.65	0.48	0.24	0.07	0.10	0.01

분에서 샘플의 농도가 가장 높은 것으로 확인되었다. Fig. 6은 Diablo Canyon의 캐니스터의 윗부분에서 채취된 샘플들을 SEM을 이용하여 측정된 사진들이다. Fig. 5와 다르게 Fig. 6에서는 소금 결정들이 발견되었으며 EDS 분석결과 염화나트륨 결정 사이에 황산마그네슘이 침투해있는 것이 확인되었다. 추가적으로 질산나트륨이 발견되는 것을 확인할 수 있는데 이는 공기중의 질산과 염화나트륨이 반응함으로써 생산된 것으로 예측된다. XRF를 이용하여 분석한 결과로 철, 규소, 칼슘, 칼륨, 황, 아연들이 발견되었으며 Hope Creek과는 다르게 염소가 추가적으로 발견되었다. 습식방법으로 채취한 샘플들도 분석결과 마그네슘 및 염소이온이 추가적으로 발견되었다. Diablo Canyon에서 운용중인 HI-STORM은 태평양 근처에 위치하고 있으므로 빗물에 대한 영향보다는 바닷물에 의한 영향이 클 것으로 예측되었고, 분석결과 Diablo Canyon에서 운용되고 있는 건식저장용기는 Hope Creek과 다르게 바닷물에 의한 영향이 빗물에 의한 영향보다 크다는 것을 확인할 수 있었다[77]. Table 3은 각각의 지역에서 분석된 캐니스터들에 대해 간략하게 정리한 표이다.

3.2 염에 대한 조해성

연소도, 붕괴열, 계절, 그리고 캐니스터의 표면위치마다 캐니스터의 표면 온도는 다르다[85]. 전해질의 농도가 증가함에 따라 전도도를 증가시켜 부식을 가속화 시키기 때문에 온도에 따른 용해도를 파악하는 것은 중요하다. 표면 온도가 올라가면 포화 수증기량이 증가하여 상대습도는 내려가게 된다. 이와 반대로 캐니스터의 표면 온도가 내려가면 포화 수증기량이 감소하여 상대습도는 올라간다. 즉 표면 온도가 변화함에 따라 상대습도도 변화하게 되고 이에 따라 염화물의 용해도도 변하게 된다. U.S. NRC에서는 염화나트륨, 염화마그네슘, 염화칼슘 및 황산나트륨에 대해 온도 및 상대습도에 따른 실험을 실시하였으며 이를 기반으로 각각의 물질에 대한 조해성을 파악하였다. 35, 45, 60, 그리고 80℃에서 상대습도를 바꿔가며 조해점을 측정하였으며 모의 바다 소금을 만들어 이에 대해서도 온도 및 상대습도에 따른 조해점을 측정하였다[53,54]. Table 4는 모의 바다 소금(Simulated sea salt)의 화학적 조성비를 나타낸다[86]. Fig. 7은 실험을 기반으로 온도에 따른 염화물 및 모의 바다 소금의

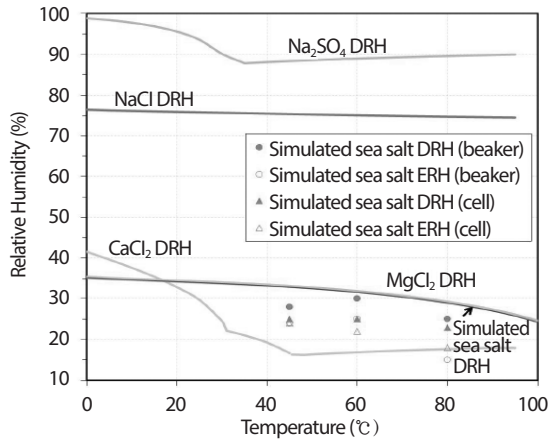


Fig. 7. Summary of simulated sea salt deliquescence [53].

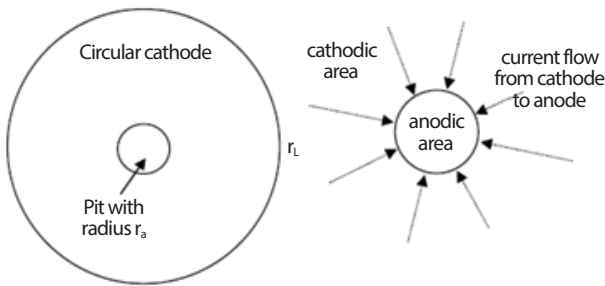


Fig. 8. Schematic showing the circular cathode around a pit [82].

조해점을 나타낸 그림이다. 건식저장 시 관심 있는 온도구역 40~80°C에서는 염화칼슘의 조해점이 가장 낮았으며 염화마그네슘, 염화나트륨, 황산나트륨 순으로 조해점이 낮은 것으로 확인되었다.

3.3 핏트 및 균열 메커니즘

3.3.1 최대핏트크기 모델. 부식이 발생하기 위해서는 음극과 양극이 존재하여야 하며 전자와 이온이 전달될 수 있는 통로가 존재하여야 한다. 특히 오스테나이트 스테인리스강의 경우에는 공식에 매우 취약하다. 공식이 발생하게 됨으로써 핏트부분에는 양극이 형성되고 핏트 주변에는 음극이 형성되어 부식이 가속화되기 때문이다[81]. 핏트 크기는 양극 전류, 음극 전류, 전압강하에 따라서 그 크기가 제한되며

환경조건인 침전물 밀도와 온도, 상대습도에 크게 영향을 받는다. 이에 따라 Z.Y. Chen과 R.G. Kelly[82]는 최대 전류를 이용한 최대 핏트 크기 예측모델을 제시하였다. 핏트 및 핏트를 둘러싸고 있는 음극부분은 Fig. 8과 같이 원으로 나타내었으며 음극부분과 양극부분은 이온이 전달될 수 있는 전해질 층으로 덮여있다고 가정하였다.

$$I_c = i_{eq} \pi r_{eq}^2 \quad (1)$$

식 (1)에서 I_c 는 총 음극 전류이며, i_{eq} 는 등가 전류 밀도, r_{eq} 는 등가 음극장의 반지름이다. i_{eq} 는 평균 전류 밀도를 E_{rp} (= 핏트 끝부분에서의 전위)와 E_{corr} (= 등가 음극장 끝부분에서의 전위)를 적분한 값을 양극 전위에 대해 나는 평균값을 나타낸다.

$$dE = i_{eq} (\pi r_{eq}^2 - \pi r^2) \frac{dr}{kW_L 2\pi r} \quad (2)$$

$$\Delta E = E_L - E_{rp} = \int_{r_a}^{r_{eq}} dV = \frac{i_{eq} r_{eq}^2}{2kW_L} \left[\ln \left(\frac{r_{eq}}{r_a} \right) - \frac{1}{2} \right] \quad (3)$$

식 (2)에서 k 는 전해질의 전도도, W_L 은 전해질의 두께이다. 전해질의 전도도와 전해질의 두께는 침전물의 밀도와 염용액(salt solution)의 밀도에 영향을 받는다. 두 전위의 전위차에 의해 전류가 흐르게 되며 전압강하가 발생하게 된다. 식 (3)은 식 (2)를 두 전위 E_{rp} 과 E_L (= 음극 끝부분에서의 전위)에 대해 적분함으로써 얻을 수 있으며 r_a 는 핏트의 반지름을 나타낸다.

$$\ln I_{c,max} = \frac{4\pi kW_L \Delta E_{max}}{I_{c,max}} + \ln \left[\frac{\pi e r_a^2 \int_{E_{corr}}^{E_c} (i_c - i_p) dE}{\Delta E_{max}} \right] \quad (4)$$

식 (4)에서 $I_{c,max}$ 는 최대 음극 전류, ΔE_{max} 는 E_{rp} 와 E_{corr} 의 차이를 나타낸다. 또한 i_c 와 i_p 는 각각 음극과 부동태의 전류 밀도를 나타낸다. 식 (3)을 이용하여 E_L 이 E_{corr} 에 도달할 때의 최대 음극 전류를 계산할 수 있으며, 이에 따라 최대 핏트 크기를 계산할 수 있다. 또한 핏트 크기가 커짐에 따라 핏트 끝부분과 음극 끝부분의 전위차가 줄어들기 때문에 핏트 성장률은 줄어든다는 것을 예측할 수 있다[82].

3.3.2 핏트와 균열의 천이점. 핏트의 생성은 피로 균열을 발생시킬 수 있다. 이에 따라 핏트로부터의 피로 균열을

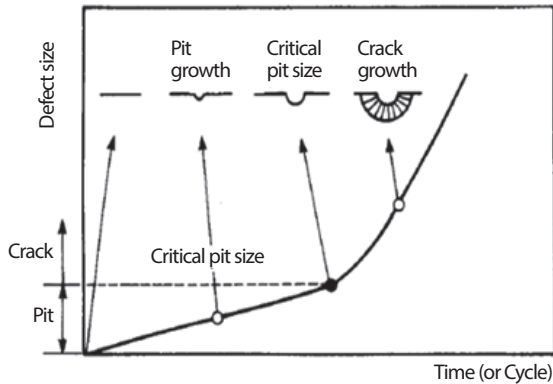


Fig. 9. Schematic processes of pit growth, critical pit size, and crack growth [83].

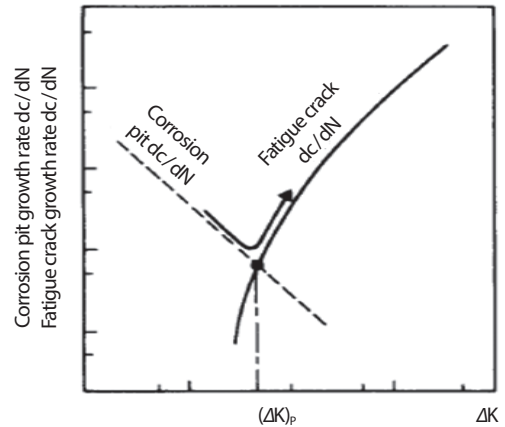


Fig. 12. Effect of stress amplitude on critical pit condition and model for transition into a crack from a pit [83].

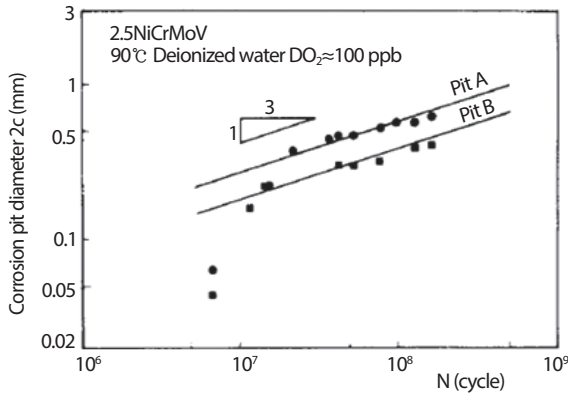


Fig. 10. Measurement of pit diameter on the same pit (for two pits on the same specimen) [83].

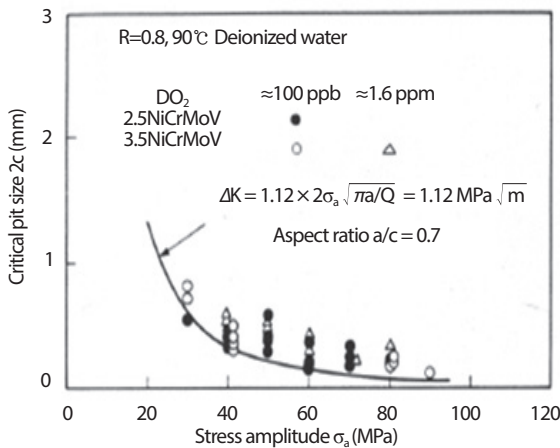


Fig. 11. Relationship between critical pit size and stress amplitude [83].

예측하기 위해 많은 연구들이 수행되고 있다[87-91]. 부식 피로 과정은 핏트 성장, 핏트에서의 균열 생성, 그리고 부식 피로 균열 성장 세가지로 구성되어있다(Fig. 9). Y. Kondo[83]는 핏트와 균열의 천이점을 파악하기 위해 핏트 성장률에 관한 실험을 수행하였다. 합금강 샘플에 일정한 응력비율을 주었으며 산소를 용해시킨 증류수를 이용하여 부식 환경을 형성하였다. 이 실험을 통해 핏트의 반지름은 시간의 1/3승에 비례한다는 것을 발견하였다(Fig. 10). 추가적으로 최대핏트 크기와 응력 진폭과의 상관관계를 파악하기 위해 실험을 실시하였다(Fig. 11). 핏트의 크기가 최대가 되는 지점은 예리한 균열로 가정하였으며 응력확대계수의 해석은 Newman-Raju식을 적용하였다.

$$\frac{dc}{dN} = \left(\frac{1}{3}\right) C_p^3 f^{-1} \alpha^2 \pi^2 Q^{-2} (2.24\sigma_a)^4 \Delta K^{-4} \quad (5)$$

실험을 토대로 응력확대계수에 대한 핏트 성장률 관계식을 제시하였다. 식 (5)에서 C_p는 보정계수, f는 진동수, α (=a/c)는 균열 형상비(= crack aspect ratio)이며 a는 핏트의 깊이, c는 핏트의 반지름이다. 또한 Q는 형상 계수, σ_a는 응력 진폭, ΔK는 응력확대계수이다.

Fig. 12는 응력확대계수에 따른 부식 핏트 성장률과 피로 균열 성장률의 관계를 나타낸다. 응력확대계수 대비 핏트 성장률은 감소하는 반면 피로 균열 성장률은 증가하는 경향을 보이고 있다. 두 개의 성장률이 교차하는 지점부터 핏트

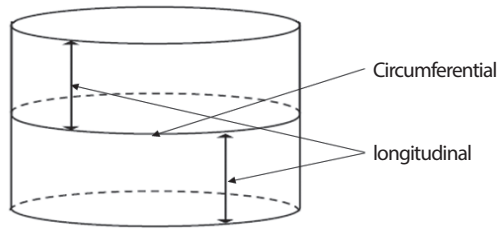


Fig. 13. The location of the welds on the mock-up canister.

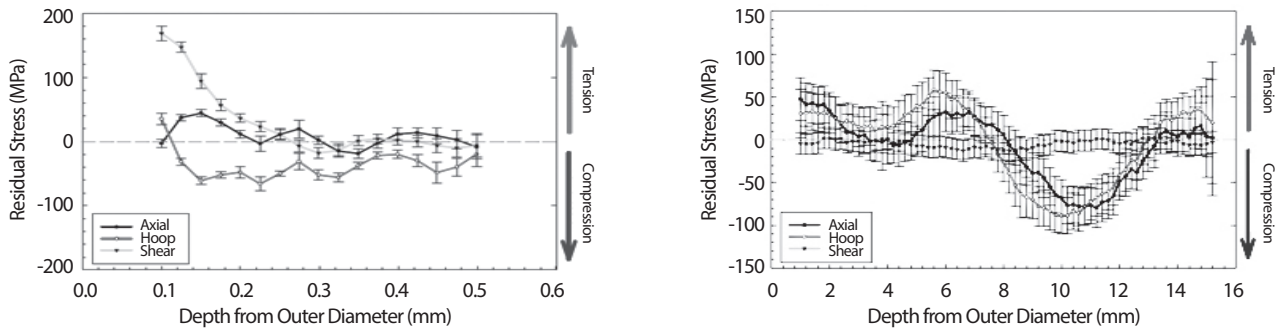


Fig. 14. The data for region located for a base-metal region located far from any longitudinal or circumferential weldments [84].

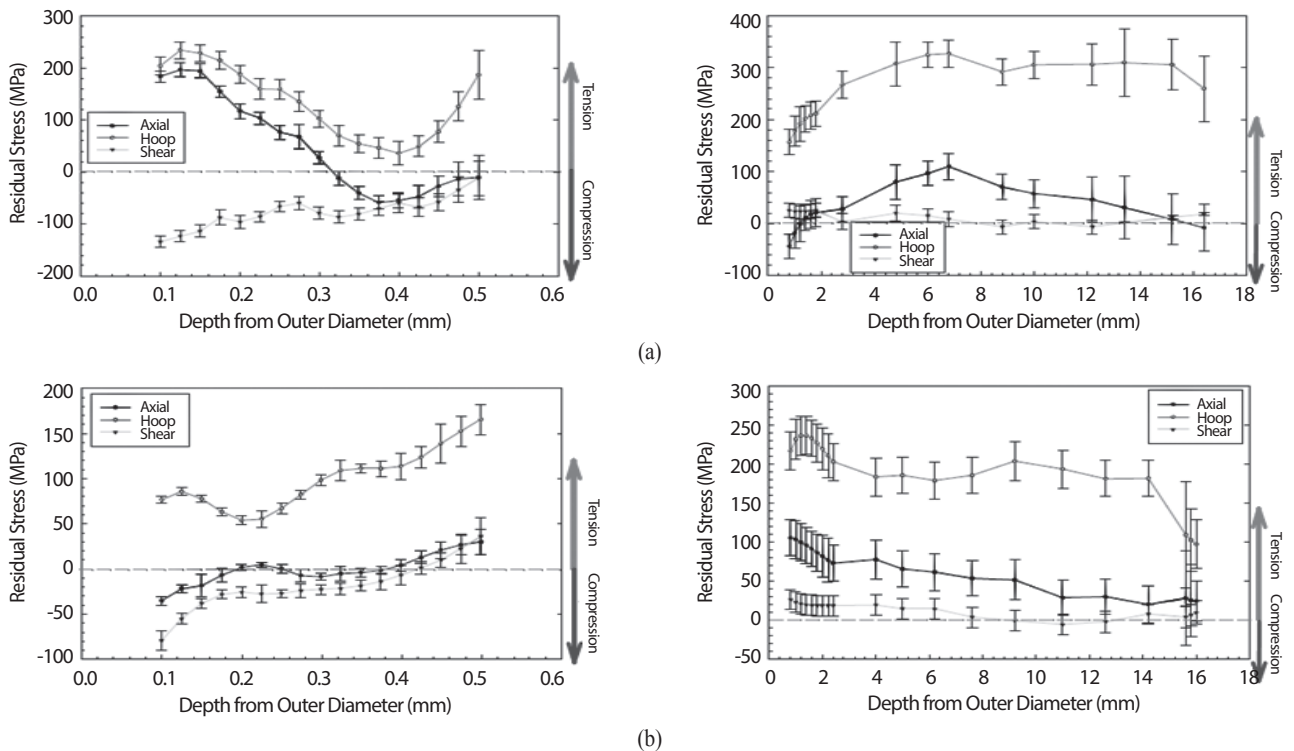


Fig. 15. The data as a function of distance from the outer diameter of the container for (a) the fusion zone and (b) the heat-affected zone of a circumferential weld [84].

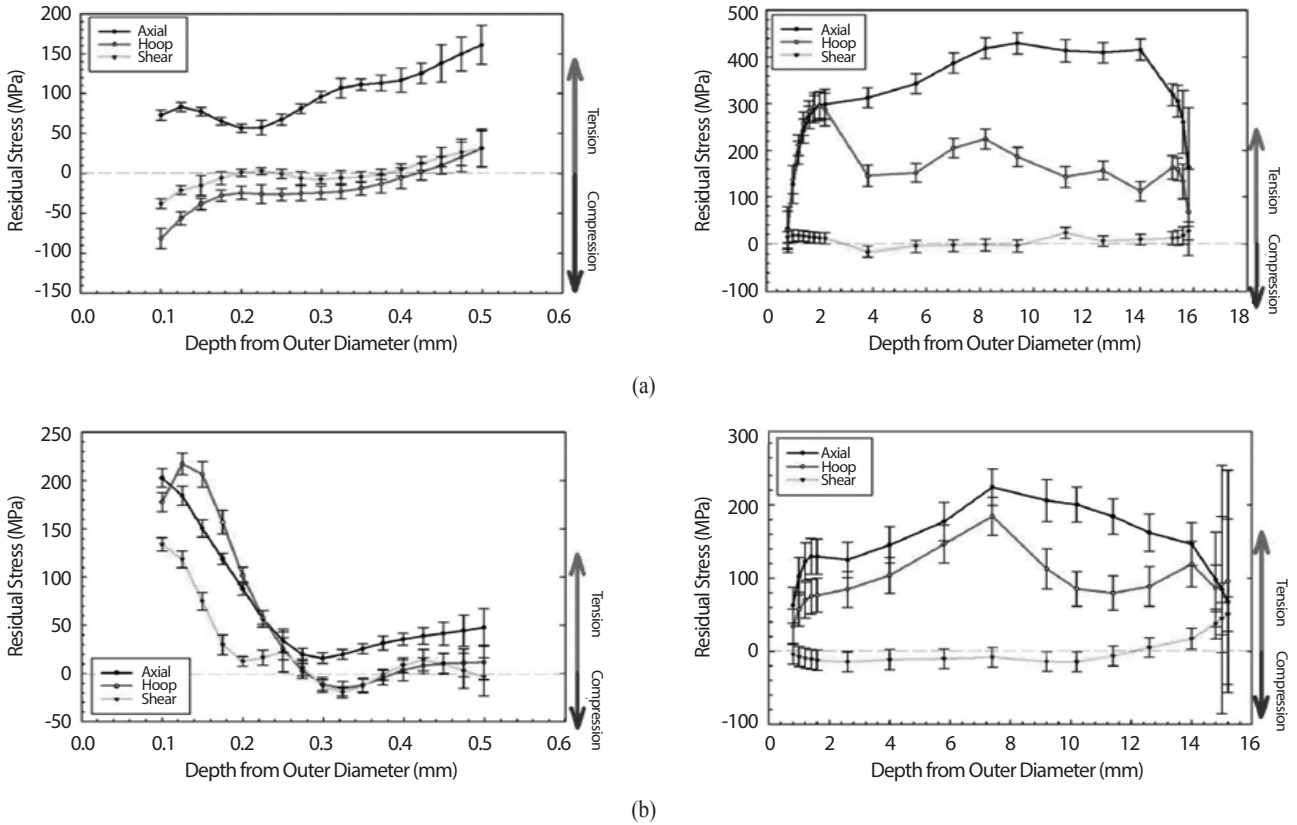


Fig. 16. The data as a function of distance from the outer diameter of the container for (a) the fusion zone and (b) the heat-affected zone of a longitudinal weld [84].

성장률보다 피로 균열 성장률이 크기 때문에 피로 균열로 간주가 된다[83].

3.4 인장 응력

오스테나이트 스테인리스강에서 응력부식균열이 발생하기 위해서는 문턱 값 이상의 인장응력이 필요하다. 특히 생성된 균열이 성장하기 위해서는 높은 인장응력이 오랜 기간 유지가 되어야 한다[81,92-94]. 용접된 캐니스터에서의 인장응력은 크게 내부 압력에 의한 작용응력과 용접으로 인한 잔류응력 이렇게 두 가지로 구분된다. 내부 압력으로 인한 작용응력은 응력부식균열이 발생하기 위한 문턱 값보다 작으므로 고려하지 않아도 된다. 하지만 용접으로 인한 잔류응력은 응력부식균열이 발생하기에 충분히 크므로 캐니스터 제작 시 중요한 인자로 분류된다[95-101].

캐니스터의 용접은 크게 원주 방향으로의 용접과 종

방향으로의 용접으로 나누어진다(Fig. 13). 융합부(fusion zone)에서도 잔류인장응력이 많이 발생하지만 특히 중요한 부분은 열영향부위이다. 왜냐하면 열영향부위는 용접 시 많은 열 사이클로 인해 용접 주변부위에서 크롬 탄화물이 석출되며 이로 인해 크롬 감소 지역이 발생하게 되어 부식에 취약하기 때문이다[53,102-104].

캐니스터의 위치에 따른 잔류응력 분포를 파악하기 위해 U.S. DOE에서는 캐니스터실물크기의 모형을 제작하여 잔류응력을 파악하였다. 총 네 가지 분석도구를 이용하여 잔류응력을 파악하였으나 본 논문에서는 DHD (= Deep Hole Drilling)을 이용한 잔류응력 측정 결과만을 언급하였다. Fig. 14, Fig. 15, Fig. 16은 DHD를 이용한 잔류응력측정 결과를 용접부위 및 위치에 따라 나타낸 그래프이다. 모재에서는 표면 잔류인장응력이 낮으며 내부로 갈수록 인장응력이 감소하는 것을 확인할 수 있다. 그러나 원주 방향 및 종 방향 용접부에서는 내부로 갈수록 잔류인장응력이 증가하는 것을 확인

할 수 있으며, 이 잔류응력들은 균열 발생시 균열 성장을 유지하기에 충분할 것으로 판단된다[84].

4. 국내의 연구방향

우리나라에서는 현재 경수로 사용후핵연료의 경우 원전의 관계시설인 임시저장시설(습식시설)에서 저장 및 관리되고 있다. 2020년까지 원전 내 경수로 금속 및 콘크리트 용기에 대한 건식저장기술을 확보할 계획이며, 2030년까지 중간저장을 위한 운반기술 및 지하연구시설을 확보, 2035년까지 국내에 적합한 심층처분시설의 설계기술을 개발할 예정이다[105]. 고준위방사성폐기물 관리 기본계획에 따르면 민주적 방식에 의한 부지선정(약 12년), 부지확보 이후 중간저장시설 건설(약 7년)과 인허가용 URL 건설 및 실증연구(약 14년)를 동시에 추진할 계획이다. 이에 따라 중간저장시설 운영 및 관리 이전까지는 원전 내 건식저장시설을 만들어 보관 및 저장중인 사용후핵연료를 관리해 나갈 계획이다[106].

염화물 응력부식균열에 취약한 오스테나이트 스테인리스강으로 제작된 캐니스터를 소내 또는 소외에 50년이상 장기 저장할 시 염화물 응력부식균열이 발생할 수 있다. 국내에서는 경수로 사용후핵연료 건식저장 경험이 없으며 관련 관리방안 및 구체적인 기준이 매우 부족한 현실이다. 따라서 올바른 건식저장시설을 운영하기 위해서는 미국에서 이미 수행된 염화물 응력부식균열 연구를 참고하여 국내에 적용될 수 있는 환경영향 및 잔류응력 분석 등 다양한 연구가 수행되어야 한다.

먼저 환경영향분석에서는 계절에 따른 온도, 절대습도, 공기 중 염의 성분비 및 pH 등에 대한 연구가 수행되어야 한다. 염의 조해성에 영향을 끼치는 상대습도는 온도 및 절대습도에 따라 변하게 된다. 따라서 원전 내 건식저장시설을 만들거나 소외 중간저장시설을 건설할 경우 그 지역에 대해 온도 및 절대습도에 대한 분석이 수행되어야 한다. 또한 미국에서 바닷물 및 빗물에 대한 염 성분비 및 pH분석이 수행된 것처럼 국내에서도 원전 주변 및 중간저장시설이 운영될 지역에 대하여 바닷물 및 빗물에 대한 염 성분비 및 pH 분석이 수행되어야 한다.

용접된 캐니스터의 잔류응력을 측정하기 위해 미국 SNL

에서는 DHD, Contour Method, X-ray Diffraction, 그리고 Ultrasonic Measurement 방법들을 이용하였다. 다음 네 가지 방법을 이용하여 비교해본 결과 DHD와 Contour Method 측정결과값이 비슷하였으며 다른 두 가지 방법들로 인한 측정 결과 보다 신뢰성 있게 나온 것이 확인되었다[84]. 이를 토대로 국내에서 사용될 건식저장용기 캐니스터에 대해 모형을 제작하여 DHD 및 Contour Method 측정법을 이용한 잔류응력 측정이 수행되어야 한다. 또한 측정된 잔류응력에 영향을 받는 균열 성장률에 관한 연구도 추가적으로 수행되어야 한다.

올바른 건식저장시설을 운영하기 위해 국내 건식저장시설이 운영될 지역에 대한 환경영향분석 및 운영될 캐니스터의 잔류응력에 관한 연구가 수행되어야 한다. 이를 토대로 저장환경에 따른 건식저장용기의 포괄적인 염화물 응력부식균열에 대한 평가지침 및 장기저장에 따른 건식저장용기 부식의 기초분석모형이 개발되어야 할 것이다.

5. 결론

본 논문에서는 미국의 건식저장 캐니스터에서의 염화물 응력부식균열 연구들에 대해 알아보았다. 건식저장기간 중 이슈는 건식저장용기의 열화현상이며 그 중 염화물 응력부식균열은 주요한 이슈중의 하나이다. 건식저장 캐니스터의 염화물 응력부식균열 현상을 설명하기 위해 SNL에서는 확률론적 응력부식균열 모델을 제시하였으며 제시된 모델은 응력부식균열이 발생하기 위한 주요인자들을 주기적으로 나열하였다.

먼저 핏트 발생하기 전 잠복기간에 대해서는 주로 환경영향조건 및 온도에 따른 염화물의 조해성에 관한 연구를 수행하였다. EPRI의 주도하에 Calvert Cliffs, Hope Creek, 그리고 Diablo Canyon에서 운용되고 있는 건식저장용기에 대해 환경영향분석을 실시했다. Calvert Cliffs에서 운영되고 있는 NUHOMS는 바다 주변에 위치하고 있어 바닷물에 의한 영향이 클 것으로 예측되었으나 분석 결과 빗물에 대한 영향이 큰 것으로 나타났다. Hope Creek에서 운영되고 있는 HI-STORM은 내륙 및 강가 주변에 위치하고 있어 빗물의 영향이 클 것으로 예측되었으며 분석 결과 빗물에 의한 영향이 큰 것으로 나타났다. 추가적으로 약간의 염분 및 꽃가루

가 발견되었는데 이는 건식저장용기 주변에 있는 강가 및 갈대밭의 영향으로 간주된다. Hope Creek과는 다르게 Diablo Canyon에서 운영중인 HI-STORM은 태평양 연안 근처에 위치하고 있어 바닷물에 의한 영향이 클 것을 예측되었고 분석 결과 마그네슘과 염소이온의 함유량이 높은 것으로 나타났다. U.S. NRC에서는 온도 및 상대습도에 따른 염화물의 조해성을 파악하기 위해 염화나트륨, 염화마그네슘, 염화칼슘 및 황산나트륨에 대해 조해점을 파악하는 실험을 실시했다. 관심 있는 온도구역에서는 염화칼슘의 조해점이 가장 낮았으며 염화마그네슘, 염화나트륨, 황산나트륨 순으로 조해점이 낮았다.

핏트가 발생한 뒤의 핏트 성장기간에 대해서는 최대핏트크기 예측과 핏트와 균열의 천이점에 관한 연구가 수행되었다. 핏트 크기는 침전물의 밀도, 온도 및 상대습도에 크게 영향을 받으며 양극 전류, 음극 전류, 전압강하에 따라 그 크기가 결정된다. 이를 토대로 최대핏트크기를 예측하기 위해 Z.Y. Chen과 R.G. Kelly가 최대 음극전류를 이용한 모델을 제시했다. 또한 핏트와 균열의 천이점을 파악하기 위해서 Y. Kondo는 핏트 성장률에 관한 실험을 수행하였고 이를 바탕으로 응력확대계수에 대한 핏트 성장률 관계식을 제시했다.

문턱 값 이상의 인장응력은 오스테나이트 스테인리스강 균열 성장에 필수적인 요소이다. 건식저장 캐니스터에서의 인장응력을 파악하기 위해서 U.S. DOE에서는 캐니스터 실물 크기의 모형을 제작하여 용접부 및 열영향부위에 대해 잔류인장응력을 측정했다. 다양한 측정법으로 잔류인장응력을 측정하였지만 본 논문에서는 DHD를 이용한 잔류인장응력측정 결과만을 제시하였다. 용접 부분에서의 잔류인장응력이 높지만 열영향부위가 용접 부분보다 부식에 취약하므로 열영향부위에서의 잔류인장응력이 더 주목받고 있다.

우리나라에서는 월성에서 중수로 사용후핵연료 건식저장 운영 및 관리 경험이 있으나 경수로 사용후핵연료 건식저장 운영 및 관리 경험은 없다. 따라서 오랜 기간 경수로 사용후핵연료 건식저장 운영 및 관리를 해온 미국의 사례를 검토 및 파악하는 것은 앞으로 우리나라에서의 올바른 건식저장 운영 및 관리를 위해 매우 중요하다. 미국 사례뿐만 아니라 관련 연구를 먼저 수행한 해외 사례를 토대로 국내 여건을 고려한 건식저장 운영 및 관리 방안을 수립해야 된다.

감사의 글

본 연구는 한국원자력안전재단이 지원하는 “사용후핵연료 및 방사성폐기물 안전연구센터” 과제의 일환으로 수행되었음을 밝힙니다. 또한 본 연구는 2018년도 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 에너지인력양성 사업으로 지원받아 수행한 인력양성 성과입니다.(No. 2018 4030202170)

REFERENCES

- [1] Y.C. Jeong, “The Status of Spent Fuel Management”, Winter School on Topical Issues, Kyung Hee university, Republic of Korea (2015).
- [2] B.I. Choi, “The Development Status of Spent Fuel Transportation & Storage Technology”, Winter School on Topical Issues, Kyung Hee university, Republic of Korea (2015).
- [3] U.S. NRC, 10 CFR Part 72, Licensing requirements for the independent storage of spent nuclear fuel and high-level radioactive waste, and reactor-related greater than Class C waste (2018).
- [4] U.S. NRC, Division of Spent Fuel Storage and Transportation Interim Staff Guidance - 1, Revision 2, Classifying the condition of Spent Nuclear Fuel for Interim Storage and Transportation Based on Function (2007).
- [5] U.S. NRC, Division of Spent Fuel Management Interim Staff Guidance - 2, Revision 2, Fuel Retrievability in Spent Fuel Storage Applications (2016).
- [6] U.S. NRC, Spent Fuel Project Office Interim Staff Guidance - 4, Revision 1, Cask Closure Weld Inspections (2016).
- [7] U.S. NRC, Spent Fuel Project Office Interim Staff Guidance - 9, Revision 1, Storage of components Associated with Fuel Assemblies (2002).
- [8] U.S. NRC, Spent Fuel Project Office Interim Staff Guidance - 10, Revision 1, Alternatives to the ASME code (2000).

- [9] U.S. NRC, Spent Fuel Project Office Interim Staff Guidance – 15, Materials Evaluation (2001).
- [10] U.S. NRC, Spent Fuel Project Office Interim Staff Guidance – 17, Interim Storage of Greater Than Class C Waste (2001).
- [11] I.S. Levy, B.A. Chin, E.P. Simonen, C.E. Beyer, E.R. Gilbert, and A.B. Johnson, “Recommended Temperature Limits for Dry Storage of Spent Light Water Zircaloy-Clad Fuel Rods in Inert Gas”, PNL-6189 (1987).
- [12] A.B. Johnson and E.R. Gilbert, “Technical Basis for Storage of Zircalloy-Clad Spent Fuel in Inert Gases”, Pacific Northwest Lab., PNL-4835 (1983).
- [13] R.D. Manteufel and N.E. Todreas, “Effective Thermal Conductivity and Edge Configuration Model for Spent Fuel Assembly”, Nuclear Technology, 105(3), 421–440 (1994).
- [14] U.S. NRC, Division of Spent Fuel Storage and Transportation Interim Staff Guidance – ISG-18, Revision 1, The Design and Testing of Lid Welds on Austenitic Stainless Steel Canisters as the Confinement Boundary for Spent Fuel Storage (2008).
- [15] U.S. NRC, Division of Spent Fuel Storage and Transportation Interim Staff Guidance - 24, Revision 0, The Use of a Demonstration Program as a Surveillance Tool for Confirmation of Integrity for Continued Storage of High Burnup Fuel Beyond 20 Years (2014).
- [16] U.S. NRC, “Standard Review Plan for Spent Fuel Dry Storage Systems at a General License Facility”, NUREG-1536, Rev. 1 (2010).
- [17] U.S. NRC, 10 CFR Part 72, Licensing Requirements for the Independent Storage of Spent Nuclear Fuel, High-Level Radioactive Waste, and Reactor-Related Greater than Class C Waste (2007).
- [18] U.S. NRC, 10 CFR Part 72, Licensing Requirements for the Independent Storage of Spent Nuclear Fuel and High-Level Radioactive Waste (1988).
- [19] U.S. NRC, “Storage of Spent Fuel in NRC Approved Storage Casks at Power Reactor Sites”, 55 FR 29181, Washington, DC (1990).
- [20] U.S. NRC, “Retrievability, Cladding Integrity and Safe Handling of Spent Fuel at an Independent Spent Fuel Storage Installation and During Transportation”, 78 FR 3853, Washington, DC (2013).
- [21] U.S. NRC, “Summary of the July 29, 2015 Public Meeting on Retrievability of Spent Fuel at an Independent Spent Fuel Installation”, ADAMS Accession No. ML15216A272 (2015).
- [22] International Atomic Energy Agency, “Storage of Spent Nuclear Fuel”, IAEA Safety Standards Series No. SSG-15 (2012).
- [23] U.S. NRC, “Standard Review Plan for Spent Fuel Dry Storage Facilities”, NUREG-1567 (2000).
- [24] U.S. NRC, “Preoperational Testing of an Independent Spent Fuel Storage Installations”, ADAMS Accession No. ML073100468, Washington, DC (2008).
- [25] U.S. NRC, “Operation of an Independent Spent Fuel Storage Installations”, ADAMS Accession No. ML073100489, Washington, DC (2008).
- [26] U.S. NRC, “Project Plan for the Regulatory Program Review to Support Extended Storage and Transportation of Spent Nuclear Fuel”, ADAMS Accession No. ML101390216, Washington, DC (2010).
- [27] U.S. NRC, “Standard Review Plan for Renewal of Spent Fuel Dry Cask Storage System Licenses and Certificates of Compliance”, NUREG-1927 (2011).
- [28] U.S. NRC, “Standard Review Plan for Renewal of Specific Licenses and Certificates of Compliance for Dry Storage of Spent Nuclear Fuel”, Draft NUREG-1927, Rev. 1. ADAMS Accession No. ML15068A331, Washington, DC (2015).
- [29] J. Wise, “Managing Aging Processes in Storage (MAPS) Report”, Extended Storage Collaboration Program Meeting, Charlotte, NC (2016).
- [30] American Nuclear Society, “Design Criteria for an Independent Spent Fuel Storage Installation (Dry Storage Type)”, ANSI/ANS-57.9 (1984).
- [31] J.W. McConnell, A.L. Ayers, and M.J. Tyacke, “Classification of Transportation Packaging and Dry Spent

- Fuel Storage System Components According to Importance to Safety”, U.S. NRC, NUREG/CR-6407 (1996).
- [32] Lawrence Livermore National Laboratory, “CASKS (Computer Analysis of Storage Casks): A Microcomputer Based Analysis System of Storage Casks Design Review”, U.S. NRC, NUREG/CR-6242 (1995).
- [33] M.W. Schwartz and M.C. Witte, “Spent Fuel Cladding Integrity during Dry Storage”, Lawrence Livermore National Laboratory, UCID-21181 (1987).
- [34] Electric Power Research Institute, “Technical Bases for Extended Dry Storage of Spent Nuclear Fuel”, 1003416, Palo Alto, CA (2002).
- [35] B. Hanson, H. Alsaed, C. Stockman, D. Enos, R. Meyer, and K. Sorenson, “Gap Analysis to Support Extended Storage of Used Nuclear Fuel Rev. 0”, FCRD-USED-2011-000136, PNNL-20509 (2012).
- [36] International Atomic Energy Agency, “Spent Fuel Performance Assessment and Research”, IAEA-TECDOC-1771, Vienna (2015).
- [37] M.E. Cunningham, E.P. Simonen, R.T. Allemann, I.S. Levy, R.F. Hazelton, and E.R. Gilbert, “Control of Degradation of Spent LWR Fuel During Dry Storage in An Inert Atmosphere”, PNL-6364 (1987).
- [38] International Atomic Energy Agency, “Spent Fuel Performance Assessment and Research”, IAEA-TECDOC-1343, Vienna (2003).
- [39] International Atomic Energy Agency, “Spent Fuel Performance Assessment and Research”, Final Report of a Coordinated Research Project (SPAR-II), IAEA-TECDOC-1680, Vienna (2012).
- [40] International Atomic Energy Agency, “Behaviour of Spent Fuel Assemblies During Extended Storage (BEFAST-I)”, IAEA-TECDOC-414, Vienna (1987).
- [41] International Atomic Energy Agency, “Extended Storage of Spent Fuel (BEFAST-II)”, IAEA-TECDOC-673, Vienna (1992).
- [42] International Atomic Energy Agency, “Further Analysis of Extended Storage of Spent Fuel (BEFAST-III)”, IAEA-TECDOC-944, Vienna (1997).
- [43] Electric Power Research Institute, “Development of a Metal/Hydride Mixture Model for Zircaloy Cladding with Mixed Hydride Structure”, 1009694, Palo Alto, CA (2004).
- [44] U.S. DOE, “Strategy for the Management and Disposal of Used Nuclear Fuel and High-level Radioactive Waste”, Washington, DC (2013).
- [45] U.S. NRC, “Identification and Prioritization of the Technical Information Needs Affecting Potential Regulation of Extended Storage and Transportation of Spent Nuclear Fuel”, Washington, DC (2012).
- [46] U.S. NRC, “Resolution of Licensing Process Expectations for Pressurized Water Reactor Fuel Assemblies Susceptible to Top Nozzle Stress Corrosion Cracking in Dry Cask Spent Fuel Storage and Transportation”, Washington, DC (2013).
- [47] International Atomic Energy Agency, “Survey of Wet and Dry Spent Fuel Storage”, IAEA-TECDOC-1100, Vienna (1999).
- [48] M. Peehs and K. Einfeld, “Effects of long term dry storage of spent fuel”, Proc. of IHLRWM 1992”, 1181–1187, American Nuclear Society, Las Vegas, NV (1992).
- [49] Electric Power Research Institute, “Failure Criteria for Zircaloy Cladding Using a Damage-based Metal/Hydride Mixture Model”, 1009693, Palo Alto, CA (2004).
- [50] Electric Power Research Institute, “Spent Fuel Transportation Applications: Fuel Rod Failure Evaluation under Simulated Cask Side Drop Conditions”, 1009929, Palo Alto, CA (2005).
- [51] Electric Power Research Institute, “Spent Fuel Transportation Applications: Global Forces Acting on Spent Fuel Rods and Deformation Patterns Resulting from Transportation Accidents”, 1011817, Palo Alto, CA (2005).
- [52] Electric Power Research Institute, “Spent Fuel Transportation Applications: Modelling of Spent-fuel Rod Transverse Tearing and Rod Breakage Resulting from Transportation Accidents”, 1013447, Palo Alto, CA (2006).

- [53] U.S. NRC, "Assessment of Stress Corrosion Cracking Susceptibility for Austenitic Stainless Steels Exposed to Atmospheric Chloride and Non-Chloride Salts", NUREG/CR-7170 (2014).
- [54] U.S. NRC, "Atmospheric Stress Corrosion Cracking Susceptibility of Welded and Unwelded 304, 304L, and 316L Austenitic Stainless Steels Commonly Used for Dry Cask Storage Containers Exposed to Marine Environments", NUREG/CR-7030 (2010).
- [55] U.S. Nuclear Waste Technical Review Board, "Chloride-Induced Stress Corrosion Cracking Potential In Dry-storage Canisters for Spent Nuclear Fuel Rev. 1A", U.S. NWTRB (2017).
- [56] Electric Power Research Institute, 1011820, "Effects of Marine Environments on Stress Corrosion Cracking of Austenitic Stainless Steels", Palo Alto, CA (2006).
- [57] Electric Power Research Institute, 1025209, "Calvert Cliffs Stainless Steel Dry Storage Canister Inspection", Palo Alto, CA (2014).
- [58] J. Kusnick, M. Benson, and S. Lyons, "Finite Element Analysis of Weld Residual Stresses in Austenitic Stainless Steel Dry Cask Storage System Canisters", U.S. NRC Technical Letter Report, ML13330A512 (2013).
- [59] U.S. NRC, 10 CFR 51.60, Environmental Report – Materials Licenses (2017).
- [60] U.S. NRC, 10 CFR 51.61, Environmental Report – independent spent fuel storage installation (ISFSI) or monitored retrievable storage installation (MRS) license (2017).
- [61] U.S. NRC, "Standard review plan for the review of safety analysis reports for nuclear power plants", NUREG-75/087 (1980).
- [62] C. Bryan, R. Dingreville, and D. Enos, "Weld Residual Stress Final Results and CISCC Model Development", Extended Storage Collaboration Program Meeting, Charlotte, NC (2016).
- [63] N. Larson, "U.S. DOE Spent Nuclear Fuel Storage & Transportation R&D Activities", ESCP Fall Meeting, Charlotte, NC (2017).
- [64] J. Tani, M. Mayuzumi, and N. Hara, "Initiation and Propagation of Stress Corrosion Cracking of Stainless Steel Canister for Concrete Cask Storage of Spent Nuclear Fuel", *Corrosion*, 65(3), 187-194 (2009).
- [65] J. Tani, M. Mayuzumi, and N. Hara, "Stress corrosion cracking of stainless-steel canister for concrete cask storage of spent fuel", *J. Nucl. Mater.*, 379(1-3), 42-47 (2008).
- [66] A. Kosaki, "Evaluation method of corrosion lifetime of conventional stainless steel canister under oceanic air environment", *Nuclear Engineering and Design*, 238(5), 1233-1240 (2008).
- [67] R. L. Shamakian, A. R. Troiano, and R. F. Hehemann, "Influence of Chloride Concentration on Stress Corrosion Cracking of Austenitic Stainless Steel in LiCl Solutions", *Corrosion*, 36(6), 279-284 (1980).
- [68] M. Mayuzumi, T. Arai, and J. Tani, "Chloride-Induced Stress Corrosion Cracking of Candidate Canister Materials in Air", Proc. 13th APCCC, Osaka University, Japan (2003).
- [69] G.S. Chae, K.W. Shin, B.M. Park, J.H. Han, G.H. Lee, and J.S. Park, "Preliminary Design of the Forced Gas Drying System for Spent Nuclear Fuel Dry Storage", *J. Nucl. Fuel Cycle Waste Technol.*, 15(4), 403-409 (2017).
- [70] T.M. Kim, H.S. Dho, C.H. Cho, and J.H. Ko, "Preliminary Shielding Analysis of the Concrete Cask for Spent Nuclear Fuel Under Dry Storage Conditions", *J. Nucl. Fuel Cycle Waste Technol.*, 15(4), 391-402 (2017).
- [71] C.Y. Baeg and C.H. Cho, "Development of the Vacuum Drying Process for the PWR Spent Nuclear Fuel Dry Storage", *J. Nucl. Fuel Cycle Waste Technol.*, 14(4), 435-443 (2016).
- [72] C.Y. Baeg and C.H. Cho, "Status Analysis for the Confinement Monitoring Technology of PWR Spent Nuclear Fuel Dry Storage System", *J. Nucl. Fuel Cycle Waste Technol.*, 14(1), 35-44 (2016).

- [73] D.H. Kim, K.S. Seo, J.C. Lee, C.H. Cho, H.K. Jang, and B.I. Choi, "A Test for Verifying a Tip-Over Analysis of a Dry Storage Cask", *J. Nucl. Fuel Cycle Waste Technol.*, 4(3), 245-253 (2006).
- [74] D.H. Kim, K.S. Seo, J.C. Lee, Y.D. Lee, C.H. Cho, and D.G. Lee, "A Test for Verifying a Tip-Over Analysis of a Dry Storage Cask", *J. Nucl. Fuel Cycle Waste Technol.*, 4(2), 139-152 (2006).
- [75] R.M. Kain, "Marine Atmosphere Corrosion Cracking of Austenitic Stainless Steels", *Materials Performance*, 29(12), 60-62 (1990).
- [76] D.G. Enos, C.R. Bryan, and K.M. Norman, "Data Report on Corrosion Testing of Stainless Steel SNF Storage Canisters", FCRD-UFD-2013-000324, SAND2013-8314 (2013).
- [77] C.R. Bryan and D.G. Enos, "Analysis of Dust Samples Collected from Spent Nuclear Fuel Interim Storage Containers at Hope Creek, Delaware, and Diablo Canyon, California", SAND2014-16383, Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM (2014).
- [78] U.S. NRC, "Calvert Cliffs Independent Spent Fuel Storage Installation Lead and Supplemental Canister Inspection Report", TAC No. L24475, ADAMS ML12212A216, Washington, DC (2012).
- [79] U.S. NRC, "License Renewal Request – Fourth Request For Additional information", TAC No. L24475, ADAMS ML13170A574, Washington, DC (2014).
- [80] C.R. Bryan and D.G. Enos, "Memo to Laszlo Zsidai of Holtec International entitled: Analysis of SaltSmart™ Samples from Holtec Test Run", SAND2013-9948P, Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM (2013).
- [81] M.G. Fontana, *Corrosion Engineering*, 3rd ed., 12-152, McGraw-Hill, Singapore (1987).
- [82] Z.Y. Chen and R.G. Kelly, "Computational Modelling of Bounding Conditions for Pit Size on Stainless Steel in Atmospheric Environments", *J. Electrochem. Soc.*, 157(2), C69-C78 (2010).
- [83] Y. Kondo, "Prediction of Fatigue Crack Initiation Life Based on Pit Growth", *Corrosion*, 45(1), 7-11 (1989).
- [84] D.G. Enos and C.R. Bryan, "Final Report: Characterization of Canister Mockup Weld Residual Stresses", FCRD-UFD-2016-000064, SAND2016-12375R (2016).
- [85] Y. Xie and J. Zhang, "Chloride-induced stress corrosion cracking of used nuclear fuel welded stainless steel canisters: A review", *J. Nucl. Mater.*, 466, 85-93 (2015).
- [86] American Society for Testing and Materials, "Standard Practice for the Preparation of Substitute Ocean Water", ASTM D1141-98, ASTM International, West Conshohocken, PA (2008).
- [87] H.A. El Dahan, "Pitting Corrosion Inhibition of 316 Stainless Steel in Phosphoric Acid-Chloride Solutions: Part I, Potentiodynamic and Potentiostatic Polarization Studies", *J. Mater. Sci.*, 34(4), 851-857 (1999).
- [88] H.A. El Dahan, "Pitting Corrosion Inhibition of 316 Stainless Steel in Phosphoric Acid-Chloride Solutions: Part II, AES Investigation", *J. Mater. Sci.*, 34(4), 859-868 (1999).
- [89] C.S. Brossia and R.G. Kelly, "Influence of Alloy Sulfur Content and Bulk Electrolyte Composition on Crevice Corrosion Initiation of Austenitic Stainless Steels", *Corrosion*, 54(2), 145-154 (1998).
- [90] K.T. Chiang, D.S. Dunn, and G.A. Cragnolino, "Effect of Simulated Groundwater Chemistry on Stress Corrosion Cracking of Alloy 22", *Corrosion*, 63(10), 940-950 (2007).
- [91] J.F. Grubb, T. DeBold, and J.D. Fritz, "Corrosion of Wrought Stainless Steels", *Corrosion: Materials*, 13B, ASM International, Materials Park, Ohio, USA (2005).
- [92] T. Kawamoto, "An Investigation into the Actual Condition of External Stress Corrosion Cracking (ESCC) of Austenitic Stainless Steels", *Zairyo-to-Kankyo*, 37(1), 30-33 (1988).
- [93] T. Nakamura, K. Yamamoto, and N. Kagawa, "External SCC of austenitic stainless steels in atmosphere containing sea salt particles", *Zairyo-to-Kankyo*, 34(6),

- 346-354 (1985).
- [94] M. Mayuzumi, T. Arai, and K. Hide, "Chloride Induced Stress Corrosion Cracking of Type 304 and 304L Stainless Steels in Air", *Zairyo-to-Kankyo*, 52(3), 166-170 (2003).
- [95] American Society for Testing and Materials, "Standard Specification for Carbon Structural Steel", ASTM A36/A36M-05, ASTM International, West Conshohocken, PA (2005).
- [96] American Society for Testing and Materials, "Standard Specification for Pipe, Steel, Black and Hot-Dipped, Zinc-Coated, Welded and Seamless", ASTM A53/A53M-00, ASTM International, West Conshohocken, PA (2001).
- [97] American Society for Testing and Materials, "Standard Specification for Carbon-Steel Wire and Welded Wire Reinforcement, Plain and Deformed, for Concrete", ASTM A1064/A1064M-17, ASTM International, West Conshohocken, PA (2017).
- [98] American Society for Testing and Materials, "Standard Specification for High-Strength Low-Alloy Structural Steel", ASTM A242/A242M-13, ASTM International, West Conshohocken, PA (2018).
- [99] ANSI/AWS A2.4-98, Standard Symbols for Welding, Brazing and Nondestructive Examination, AWS, Miami, FL (2007).
- [100] AWS D1.1/D1.1M, Structural Welding Code - Steel, AWS, Miami, FL (2015).
- [101] AWS D1.4/D1.4M, Structural Welding Code - Reinforcing Steel, AWS, Miami, FL (2011).
- [102] T.M. Angelu, P.L. Andresen, E.L. Hall, J.A. Sutliff, and S. Sitzman, "Strain and Microstructure Characterization of Austenitic Stainless Steel Weld HAZs", Presentation at Corrosion 2000, 26-31 March, Orlando, Florida (2000).
- [103] P.L. Andresen, T.M. Angelu, W.R. Catlin, L.M. Young, and R.M. Horn, "Effect of Deformation on SCC of Un-sensitized Stainless Steel", Presentation at Corrosion 2000, 26-31 March, Orlando, Florida (2000).
- [104] K.T. Chiang and P.K. Shukla, "Assessment of Stress Corrosion Cracking Susceptibility of 316 Stainless Steel in Different Disposal Environments", Proceedings of the 13th International High-Level Radioactive Waste Management Conference, Albuquerque, New Mexico (2011).
- [105] J.S. Song, "Spent Nuclear Fuel, The fact is? Truthful answer", SNU Nuclear Energy Policy Center, Republic of Korea (2018).
- [106] Ministry of Trade and Industry, "Master Plan for High-Level Radiation Waste Management", MTI, Republic of Korea (2016).