

장기 건식저장 사용후핵연료 지르코늄 합금 피복관 내 수소화물 재배열 현상 영향 인자들에 대한 고찰

이지민¹ · 김호아¹ · 국동학² · 김용수^{1,*}

¹한양대학교 원자력공학과

²한국원자력연구원 경수로핵연료기술개발부

A Review of Factors Influencing the Hydride Reorientation Phenomena in Zirconium Alloy Cladding During Long-Term Dry Storage

Ji-Min Lee¹, Ho-A Kim¹, Dong-Hak Kook², and Yong-Soo Kim^{1,*}

¹Dept. of Nuclear Engineering, Hanyang University, Seoul 04763, Republic of Korea

²Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon 34057, Republic of Korea

Abstracts: Zirconium-based alloys, widely used for nuclear fuel cladding, are highly susceptible to hydride-induced embrittlement. The degree of the hydride embrittlement is strongly affected by not only its concentration but also its morphology. The hydride can drastically reduce the mechanical properties of the cladding, especially when it is radially precipitated. Recently it has been reported that circumferential hydrides can re-precipitate into radial hydrides if applied hoop stress in the cladding exceeds a certain limit, so-called threshold stress, during the long-term dry storage of spent nuclear fuel. This hydride reorientation phenomenon is now considered as one of the most critical issues in the nuclear fuel industry, threatening cladding integrity during the steady state storage period as well as transportation of spent nuclear fuel. In fact, the phenomenon is known to be quite complex, and affected by numerous factors. In this paper, the major influential factors affecting reorientation issues, namely temperature, stress, number of thermal cycles, cooling rate, and hydrogen concentration, are reviewed. In addition, recent studies on the synergistic effects of the factors on the threshold stress triggering the reorientation are discussed in detail. Finally, summarizing conclusions for mechanistic understanding are drawn and recommendations for future work are made.

(Received October 30, 2017; Accepted November 27, 2017)

Keywords: zirconium alloy cladding, zirconium hydride, hydride reorientation, threshold stress

1. 서 론

우리나라는 아직 사용후핵연료 최종 관리 정책을 수립하지 못하고 발생한 사용후핵연료를 계속 원전 부지 내 수중 저장조에 임시 보관하고 있다. 이러한 이유로 국내 사용후핵연료 습식저장 시설은 용량의 한계로 2024년 한빛원전부터 순차적으로 포화될 예정이다 [1]. 최근 정부는 최종 정책 결정까지 이러한 누적 문제를 해결하기 위해 원전 소내 임시 건식저장을 결정하였다 [2,3]. 이 방식의 경우 경제성이 높고, 최근 후쿠시마 사고에서도 그 안전성이 입증

되어 세계적으로 가장 활발히 운영하고 있거나 운영을 계획하고 있다 [4]. 미국의 경우는, 100년 이상의 사용후핵연료 장기 건식저장 운영을 준비하고 있다 [5]. 그러나 최근 연구결과들은 이러한 원전 운영 중 피치 못하게 흡수되는 지르코늄 합금 피복관 내 수소화물의 거동이 사용후핵연료 장기 건식저장 안전성과 성능에 결정적인 영향을 미칠 수 있다고 보고하고 있다 [6,7].

이 논문에서는 사용후핵연료 장기 건식저장 중 지르코늄 합금 피복관의 기계적 건전성을 위협할 수소화물 재배열 현상의 영향 인자들을 고찰하였다. 1절에서는 수소화물 재배열 현상을 논하기에 앞서 지르코늄-수소 이원계 거동과 수소화물의 특성 그리고 사용후핵연료 장기 건식저장 성능과 관련된 이슈들을 살펴보았다. 2절에서는 수소화물 재배

*Corresponding Author: Yong-Soo Kim

[Tel: +82-2-2220-0462, E-mail: yongskim@hanyang.ac.kr]

Copyright © The Korean Institute of Metals and Materials

열에 영향을 미치는 주요한 5개 인자에 대한 현안을 상세히 고찰하였다. 또한 수소화물 재배열은 특정 문턱응력 이상의 원주응력이 가해질 때 발생하는 것으로 알려져 있는 바, 3절에서는 온도, 응력 이축성, 수소 농도 등이 문턱응력에 미치는 영향에 관한 최근 연구 결과를 다루었다. 마지막으로 4절에서는 결론과 함께 추후 진행될 보다 면밀한 연구를 위한 몇 가지 제언을 남겼다.

1.1. 지르코늄-수소 이원계

지르코늄 합금은 낮은 중성자 흡수율, 높은 기계적 물성 및 내식성, 이산화우라늄 소결체와의 화학적 양립성 등 우수한 물성으로 인하여 원자력 발전을 위한 핵연료 피복관 재료로 널리 사용되고 있다. 이들 재료는 합금 원소에 따라 Zircaloy-2, Zircaloy-4, ZIRLO 등으로 구분되며, 지르코늄이 98 wt% 이상으로 조성되어 있다. 이러한 지르코늄 합금 피복관은 아래의 반응과 같이 원자로 운영 중 냉각수와의 부식반응에 의해 생성되는 수소를 흡수하며, 지르코늄 기지 내 수소화물로 석출되면 그 성능이 열화된다 [8-11].



이 때 f 는 수소 흡수율로, 합금 종류와 환경 조건에 따라 다양한 값을 갖는다 [12].

그림 1은 전형적인 지르코늄-수소 이원계 상태도이다 [13]. H/Zr 비율이 약 1.7 미만인 영역에서 수소화물은 주로 안정한 δ -상으로 존재하고, 그 이상의 영역에서는 ϵ -상으로 존재한다. γ -상은 준안정상으로 알려져 있으며 상태도에 나타나지 않는다. 표 1에 각 수소화물의 주요 특성을 정리하였다 [4,14-16]. 일반적인 원자로 운영 조건에서 수소화물은 지르코늄 합금 피복관에 얇은 판형인 δ -상으로 석출되는데, 이 상의 결정구조는 면심입방(face centered cubic, FCC)이며 밀도는 약 5.65 g/cm³ 이다. 특히 이렇게

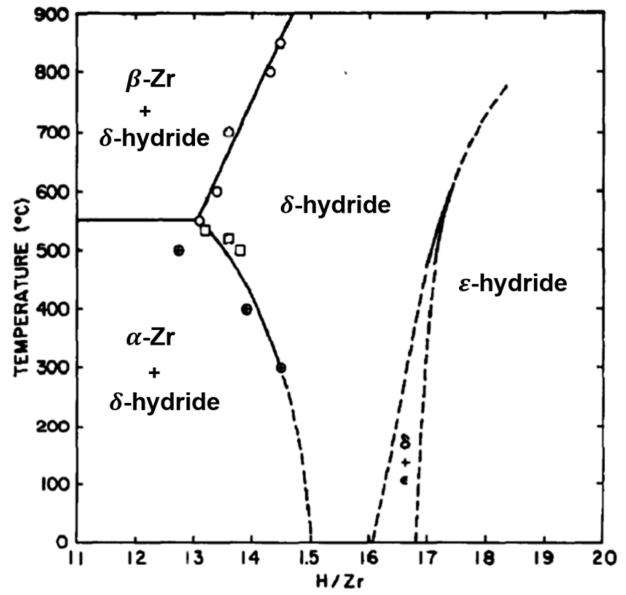


Fig. 1. Phase diagram of zirconium-hydrogen system [13].

흡수되는 수소는 지르코늄 기지 내에서 수소화물로 석출되는데 이 때 약 17%의 부피 팽창이 수반되어 큰 격자 변형을 야기하여 수소화물 주변에 대량의 전위를 생성한다 [17]. 수소화된 지르코늄 합금 피복관은 석출된 수소화물 자체의 취성으로 인해 연성과 파괴인성 등의 기계적 물성이 저하된다 [8-11,18]. 그림 2는 수소 농도에 따라 수소화된 Zircaloy-4의 기계적 물성 저하를 보여주는 전형적인 연구결과이다 [8,18].

1.2 사용후핵연료 장기 건식저장 성능 이슈들

수소화물에 의한 취화 정도는 수소화물의 방향성에 크게 영향을 받는데, 그림 3에서 보듯 특히 원주방향 보다 반경 방향으로 석출된 수소화물은 피복관의 기계적 건전성을 급격하게 감소시킨다 [19-23]. 이러한 이유로, 피복관 제조 시 튜브 축소공정(cold pilgering)을 통해 결정학적 집합도(texture)를 제어하여 원자로 운영 중 수소화물이 피복관의

Table 1. Characteristics of several hydride phases [4,14-16].

Phase	δ	γ	ϵ
H/Zr ratio (ZrH _x)	1.30 ≤ x ≤ 1.66	x = 1.00	1.71 ≤ x ≤ 2.00
Stability	stable	metastable	stable
Morphology	platelets	needles	-
Crystal structure	FCC	FCT	FCT
Density (g/cm ³)	5.646	5.837	5.617
Volume change (%)	16.3~17.2	12.3~15.7	-
Nucleate at	slow cooling rate < 2 °C/min	fast cooling rate > 10 °C/min	-

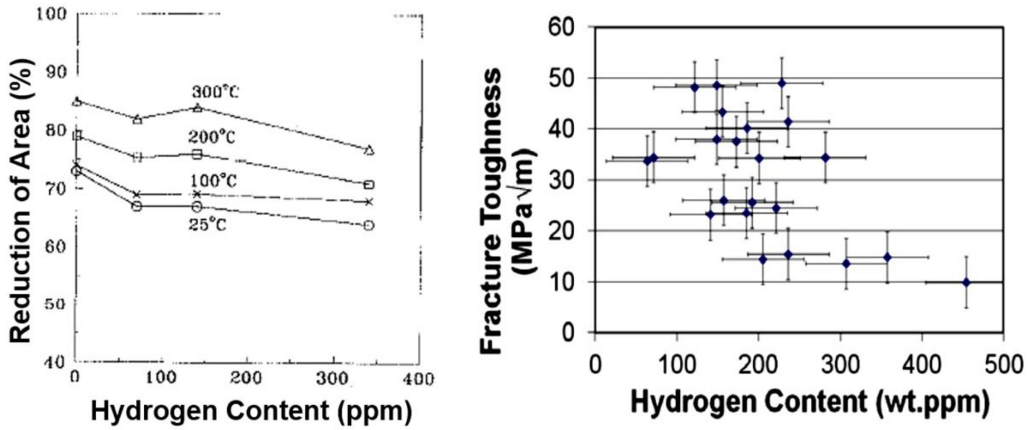


Fig. 2. Hydrogen content dependent degradation of reduction of area (left) [18] and fracture toughness (right) [8] of Zircaloy-4.

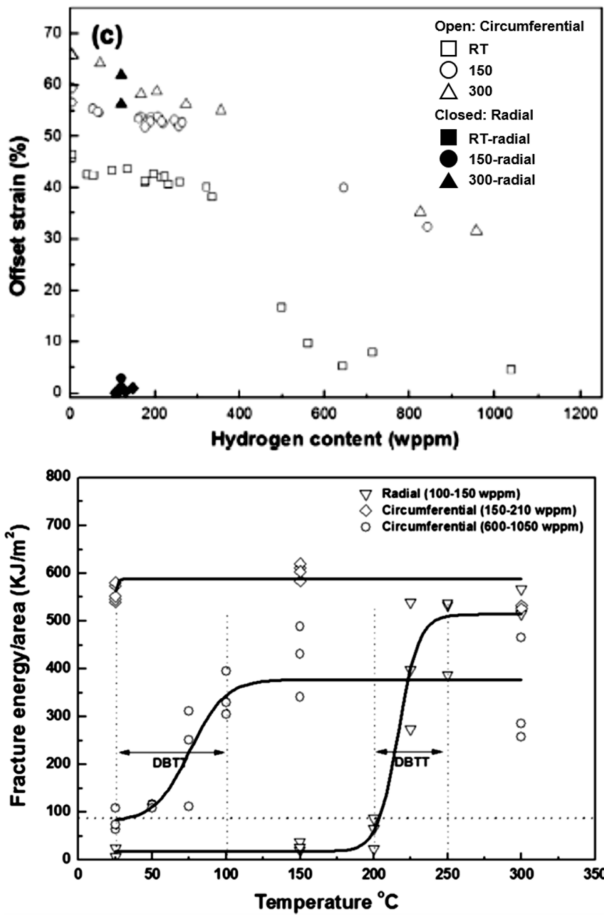


Fig. 3. Ductility degradation (upper) and DBTT increase (lower) of Zircaloy-4 cladding due to radial hydrides [19].

원주방향으로 석출되도록 유도한다 [24].

불행하게도 사용후핵연료의 장기 건식저장 환경은 피복관에 반경방향 수소화물이 형성될 수 있는 조건을 제공한

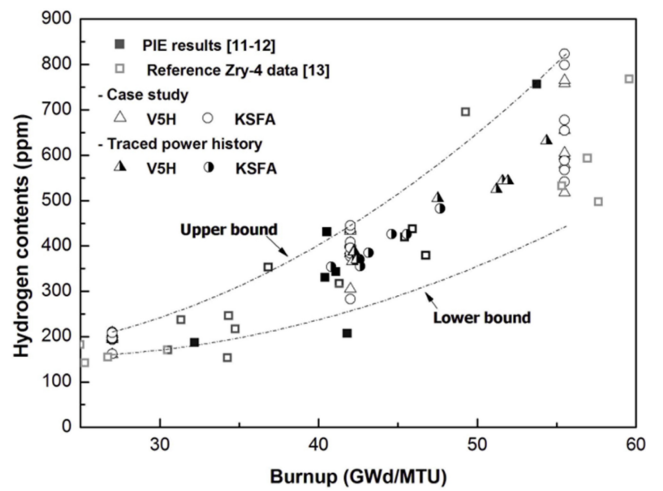


Fig. 4. Burnup dependent hydrogen concentration in spent nuclear fuel [25].

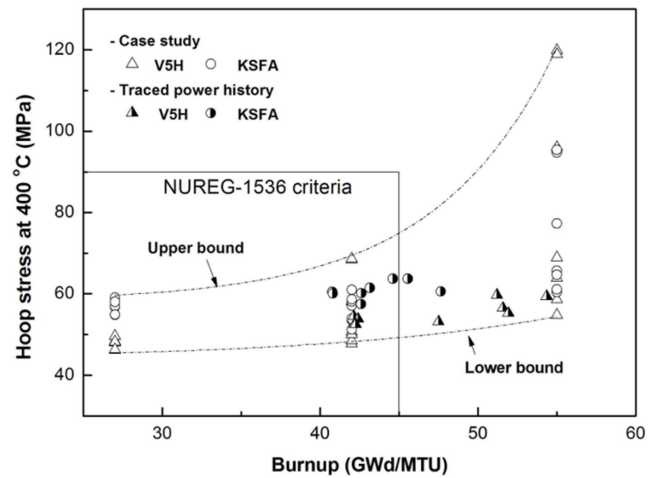


Fig. 5. Expected burnup dependent hoop stress at 400 °C [25].

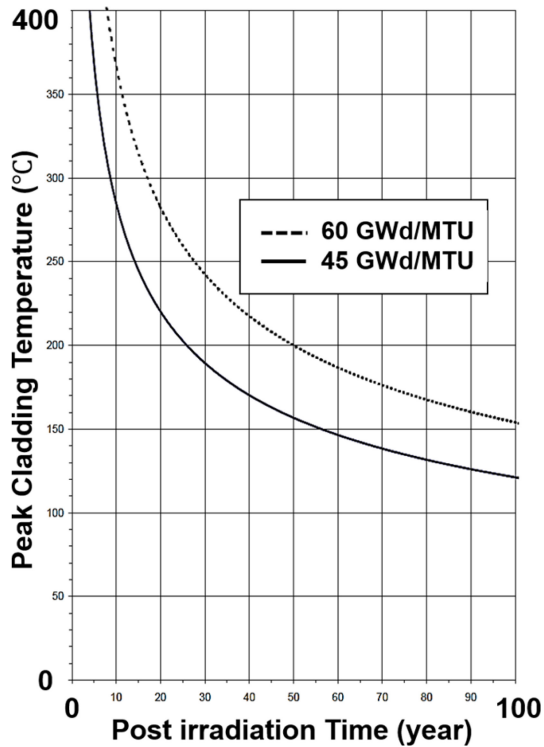


Fig. 6. Expected cladding temperature variation during dry storage [28].

다. 사용후핵연료 피복관은 그림 4와 같이 연소 이력에 따라 일반적으로 200~600 wppm의 수소를 함유하고 있다 [7,25]. 통상적으로 습식저장 시설에서 최소 5년의 냉각기간을 거친 후 인출된 사용후핵연료는 건식저장 시 필수 공정인 진공건조(vacuum drying) 및 헬륨 장입 과정을 통해 피복관 표면의 습기를 제거한다. 이 때 피복관의 온도는 약 400 °C로 상승하며[26,27], 핵연료봉 내부의 핵분열 기

체 생성물(fission gas)에 의한 봉내압 또한 상승하여 피복관에 지속적인 원주응력(hoop stress)을 가하게 된다. 그림 5에서 알 수 있듯이 400 °C의 온도에서는 약 50~100 MPa의 원주응력이 피복관에 인가될 것으로 예상된다 [25]. 이 때 피복관 내 원주방향 수소화물은 해당 온도의 수소 고용도(solubility)에 대응하는 양 만큼 지르코늄 기지로 용해(dissolution)되어 고용체(solid solution) 상태로 존재한다. 이후 건식저장이 시작되면 사용후핵연료의 특성과 저장 시스템의 냉각 성능에 따라 그림 6와 같이 피복관의 온도가 지속적으로 감소하며[28] 수소 고용도 역시 감소하므로 수소화물이 재석출하기 시작한다. 이 때 원주응력을 해소하기 위하여 그림 7와 같이 원주방향과 수직인 반경방향으로 수소화물이 배열되는데 이러한 현상을 수소화물 재배열(hydride reorientation)이라고 한다 [29-35]. 특히하게도 지르코늄 합금은 그림 8과 같이 수소화물 용해 및 석출 시 말단 고용도(terminal solid solubility, TSS)의 뚜렷한 이력현상(hysteresis)이 존재하기 때문에[36], 이것이 건식저장 중 온도 변화에 따른 수소화물 재배열에 중요한 역할을 한다.

이미 설명한 바와 같이 수소화물 재배열 현상은 사용후핵연료 건식저장 시 피복관의 안전성과 성능을 제한하는 주요 메커니즘(limiting mechanism)이다 [6,7]. 왜냐하면 반경방향으로 석출된 수소화물은 피복관 관통형 균열 전파의 직접적 경로로 작용하여 피복관의 연성과 파괴인성 등의 기계적 물성을 현저히 감소시킬 뿐만 아니라[19-23], 연성-취성 천이 온도(ductile-brittle transition temperature, DBTT)를 상승시키기 때문이다 [19,23]. 또한 피복관에 미세 결함이 존재할 경우, 응력이 집중되어 반경방향 수소화물 지원 지연수소화균열(radial hydride assisted delayed

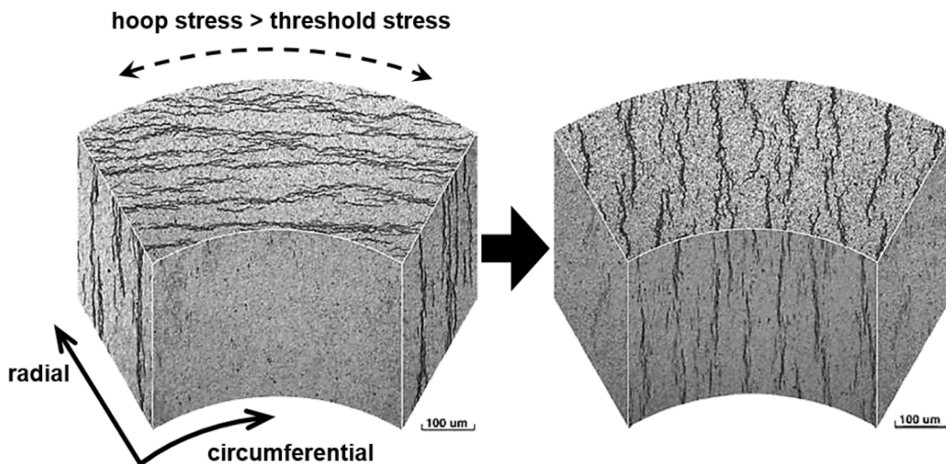


Fig. 7. Hydride reorientation from circumferential to radial direction [35].

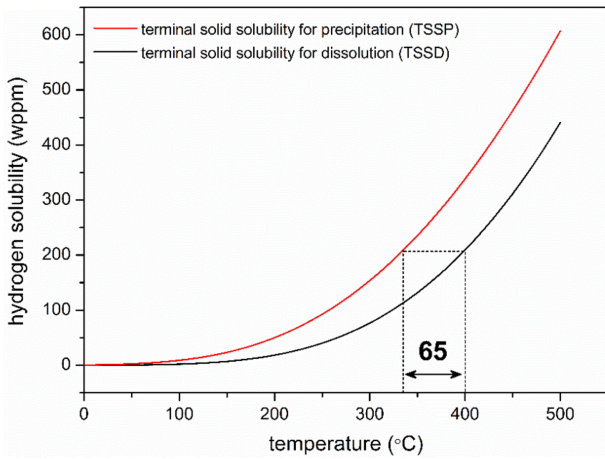


Fig. 8. Temperature dependent terminal solid solubility of hydrogen in Zircaloy-4 [36].

hydride cracking, RHA-DHC)과 같은 새로운 균열 메커니즘을 야기할 수도 있다 [37]. 이처럼 장기 건식저장 후 원주방향에서 반경방향으로의 수소화물 재배열이 발생하여 피복관이 취화된다면 사용후핵연료를 취급 및 수송할 때 굽힘 힘, 진동 등 다양한 외부 요인에 의한 작은 충격에도 취성 파괴될 수 있다. 이러한 이유로 국제적으로 수소화물

재배열 현상에 대한 이해, 평가, 발생 억제 등에 대한 다양한 연구가 진행중이며 미국(표 2)과 일본(표 3) 등 주요 원자력 선진국은 선제적으로 규제 기준을 개발·적용하고 있다 [38,39].

2. 수소화물 재배열에 영향을 미치는 주요 인자

수소화물 재배열에 영향을 미치는 요인은 다양하다. 환경적 요인으로 온도[33,35,40-42], 원주응력[35,40,41,43,44], 열 순환 횟수[35,42,45,46], 그리고 냉각률[31,33,47,48] 등이 있으며, 재료적 요인으로 합금 종류[33], 집합도 [40,42,49,50], 결정립(grain) 형태[44,49], 조사(irradiation) [22,33], 냉간가공(cold work)[49,50], 강도[44,50], 그리고 수소 농도[31,35,40,42,45,47,51] 등이 있다. 그 뿐만 아니라, 수소 확산(migration), 수소 고용, 그리고 수소화물 석출과 성장 등 지르코늄-수소 이원계에서의 물리적 거동이 수소화물 재배열에 직접적으로 관여한다 [52]. 수소화물 재배열은 이러한 인자들이 상호 영향을 미치는 복잡한 현상이나, 이 절에서는 주요한 5개 인자를 중심으로 이들이 수소화물 재배열에 미치는 영향을 살펴보았다.

참고적으로 미국재료시험협회(American society for test-

Table 2. Spent nuclear fuel integrity criteria for interim dry storage in USA [38].

In order to assure integrity of the cladding material, the following criteria should be met:	
1	For all fuel burnups (low and high), the maximum calculated fuel cladding temperature should not exceed 400 °C for normal conditions of storage and short-term loading operations (e.g., drying, backfilling with inert gas, and transfer of the cask to the storage pad). However, for low burnup fuel, a higher short-term temperature limit may be used, if the applicant can show by calculation that the best estimate cladding hoop stress is equal to or less than 90 MPa for the temperature limit proposed.
2	During loading operations, repeated thermal cycling (repeated heatup/cool-down cycles) may occur but should be limited to less than 10 cycles, with cladding temperature variations that are less than 65 °C each.
3	For off-normal and accident conditions, the maximum cladding temperature should not exceed 570 °C.

Table 3. Spent nuclear fuel integrity criteria for interim dry storage in Japan [39].

Cladding type	Threshold of No Ductility Degradation Affected by Hydride Reorientation	
	Temperature (°C)	Hoop stress (MPa)
BWR Zry-2 (RX ¹)	40 GWd/t No Liner	≤ 200
	50 GWd/t with Liner	≤ 300
	55 GWd/t with Liner	≤ 300
PWR (SR ²)	39 GWd/t Zry-4	≤ 275
	48 GWd/t Zry-4	≤ 275
	55 GWd/t MDA	≤ 250
	55 GWd/t ZIRLO	≤ 250

¹ Recrystallized annealed, ² Stress relieved annealed

Table 4. Comparison on terminal solid solubility of hydrogen in Zircaloy-4 [54].

Solubility	Measurement method	Temp. range (K)	A (wppm)	Q (kJ/mol)	Ref.
C_{TSSD}	Diffusion	533-798	99,000	34.541	[59]
	Diffusion	533-755	66,000	32.196	[36]
	Dilato-metry	506-714	107,600	35.515	[58]
	DSC ¹	423-598	106,000	35.990	[57]
	DSC	493-717	52,500	32.117	[56]
	DSC	533-783	172,000	36.308	[55]
	DSC	560-818	225,500	39.101	[54]
C_{TSSP}	Diffusion	533-700	31,000	25.279	[36]
	Dilato-metry	461-645	106,600	32.088	[58]
	DSC	423-543	138,700	34.469	[57]
	DSC	443-643	40,100	27.336	[56]
	DSC	533-733	57,200	27.287	[55]
	DSC	480-777	47,220	26.843	[54]

¹ Differential Scanning Calorimetry

ing and materials, ASTM) B811-02에 따르면 반경방향 수소화물은 피복관의 반경방향을 중심으로 $\pm 40^\circ$ 이내이면서 길이가 15 μm 이상인 수소화물로 정의된다 [53]. 그러나 연구자들마다 F_n/F_1 지수[33], HRF (hydride reorientation fraction)[41], RHF (radial hydride fraction)[45], RHCF (radial hydride continuity factor)[23], FE (fracture energy per unit area)[19] 등 다양하게 수소화물 재배열을 정의하고 있어 연구자들의 시험 결과를 직접적으로 비교하기는 어려우므로, 이 연구에서는 근본적인 경향성을 바탕으로 각 인자들의 영향을 비교·평가하였다.

2.1 온도

온도는 기본적으로 지르코늄 기지 내 수소의 고용과 확산, 수소화물의 핵 생성과 성장 등 지르코늄-수소 이원계에서의 제반 물리적 거동을 지배한다. 특히 지르코늄 합금은 수소화물 용해 및 석출 고용도의 뚜렷한 이력현상이 존재하며, 이것이 수소화물 재배열에 결정적인 영향을 미친다. 이들 말단 고용도는 열역학적으로 각각 식 (1) 및 (2)와 같이 표현되나, 연구자에 따라 측정값에 다소 차이가 존재한다. 표 4에는 실험적으로 확보된 여러 연구자들의 Zircaloy-4에 대한 열역학적 상수를 수록하였다 [36,54-59].

$$C_{TSSD} = A_D \exp\left(-\frac{Q_D}{RT}\right) \quad (1)$$

$$C_{TSSP} = A_P \exp\left(-\frac{Q_P}{RT}\right) \quad (2)$$

여기서, C_{TSSD} : terminal solid solubility for dissolution (TSSD), C_{TSSP} : terminal solid solubility for precipitation (TSSP), A : pre-exponential factor, Q : activation energy, R : gas constant, T : absolute temperature이다. 대표적으로 많이 인용되는 Kammenzind 등[36]의 Zircaloy-4에 대한 수소 고용도 곡선은 그림 8과 같다. 미국원자력규제위원회(United state nuclear regulatory commission, US NRC)는 이를 근거로 표 2에 명시된 것처럼 건식저장 시 피복관 최대 허용 온도 400 $^\circ\text{C}$ 를 기준으로 65 $^\circ\text{C}$ 이상 감소하지 않도록 규제하고 있다 [38]. 이는 냉각 시 온도가 TSSP 곡선에 도달하게 되면 지르코늄 기지로 고용되었던 수소가 수소화물로 재석출하기 시작하게 되고 이 때 만약 충분한 원주응력이 가해진다면 수소 석출물이 반경방향으로 재배열할 수 있기 때문이다. 최근 Kim 등[29]의 연구결과는 두 TSS (terminal solid solubility) 곡선 사이의 온도 범위 내에서는 상당한 응력이 인가되어도 새로운 수소화물이 석출되지 않는다는 것을 뒷받침하고 있다.

그러나 지르코늄 합금의 수소 TSSP는 TSSD에 비하여 열적, 기계적 이력, 즉, 침투 온도, 유지 시간, 냉각률 등에 민감하기 때문에 [54] 연구자에 따라 그 값이 약 100 wppm 이상의 큰 편차를 보이고 있다 [36,54-58]. 즉, 온도 뿐만 아니라 열적, 기계적 이력에 따라 수소화물 석출량과 석출 반응 예측이 어려워지고 그에 따른 피복관 건전성 열화 결과도 상이할 수 있다는 것이다. 그럼에도 불구하고 우선적으로 온도에 따른 수소 고용도 이력현상을 정확히

이해하는 것이 수소화물 석출 및 재배열에 의한 피복관의 열화 연구의 기본임은 분명하다.

2.2 원주응력

원주응력은 수소화물을 재배열시키는 직접적인 주요 요인으로써 온도와 함께 가장 중요한 인자이다. 실제 사용후 핵연료의 건식저장을 위해서는 진공건조 과정을 필수적으로 거쳐야 하는데 이 과정에서 수반되는 온도 상승은 Xe, Kr 등 피복관 내부에 존재하는 핵분열 생성 기체에 의한 봉내압을 증가시켜 피복관에 지속적인 원주방향 응력을 가하게 된다. 특히 그림 5에서 볼 수 있듯이 현재 진행중인 원전의 고연소·장주기 운전 방식은 피복관에 상당한 원주응력을 야기할 수 있으므로 이 응력에 대한 수소화물 재배열 특성 분석은 매우 필수적이다.

이미 설명한 바와 같이, 수소화물 재배열 현상은 지르코늄 기지 내에 용해된 수소가 냉각 과정에서 특정 값 이상의 원주응력, 즉 문턱응력 이상의 원주응력이 가해질 때 반경방향 수소화물로 재석출 되는 현상이다. 그림 9에서 볼 수 있듯이, 문턱응력 이상의 원주응력이 가해질 경우 수소화물 재배열은 원주응력에 비례하여 증가하다가 고응력 영역에서 포화되는 것으로 알려져 있다 [35,40,41,43,44]. 이 연구 결과는 기본적으로 동일한 열 이력을 전제로 하고 있으나 실제 연구자들에 따라 수소화물 재배열의 정의가 상이하여 직접 비교가 어려운 것이 사실이다. 그럼에도 Zircaloy-2, Zircaloy-4, Zr-2.5Nb 등 합금 종류, 판재나 튜브 등 시편 형상과 관계없이 그 경향성은 동일하다. Ells[60]는 이 과정은 시간이 관여되는 핵 성장보다는 핵 생성에 지배된

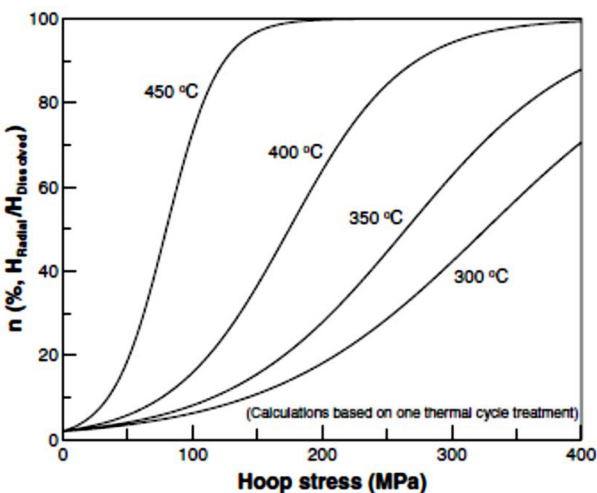


Fig. 9. Effect of hoop stress on the hydride reorientation in Zircaloy-4 solution-annealed at various temperatures [35].

다고 설명하였고 Hardie and Shanahan[40]는 이 주장을 실험적으로 뒷받침하였다. 또한 Puls[61]는 외부 응력에 의한 과포화 고용체 내 임계 핵 생성에 필요한 자유 에너지 변화를 열역학적 모델로 제안하였다. 이를 토대로 Chu 등 [35]은 원주응력 증가에 따라 수소화물 재배열이 더 많이 발생하는 이유는 원주응력이 클수록 증가하는 변형 에너지를 완화하기 위하여 응력 방향에 수직인 반경방향 수소화물이 우선적으로 석출되기 때문이라고 주장하였다.

문턱응력은 수소화물 재배열 발생을 야기시키는 최소한의 원주응력으로써, 사용후핵연료 안전 장기 저장을 위한 규제 지침 설정에 매우 긴요한 값이다. 이러한 이유로 여러 조건에서의 다양한 문턱응력 값이 보고되고 있는데 이에 대한 상세한 내용은 3절에서 다룬다.

2.3 열 순환 횟수

건식저장 조건에서 사용후핵연료 피복관은 온도의 상승과 하강이 반복되는 열 순환을 겪을 수 있으므로 이러한 열 순환 횟수에 따른 수소화물 재배열 특성 평가도 중요하다. 반복되는 열 순환은 지르코늄-수소 이원계에서의 TSS 이력현상에 영향을 미쳐 수소화물을 불안정하게 하고[35] 반경방향 수소화물로 재석출 가능한 수소 용해량을 증가시키기 때문에[62], 다양한 조건에서의 여러 연구가 진행되었다. 비록 연구자들에 따라 시편의 재질과 형상, 열 순환 온도 범위, 수소 농도 범위, 냉각률 등 시험 조건이 상이하지만 일반적으로, 그림 10과 같이, 열 순환 횟수가 많아질수록 반경방향 수소화물 분율 및 길이가 증가하다가 포

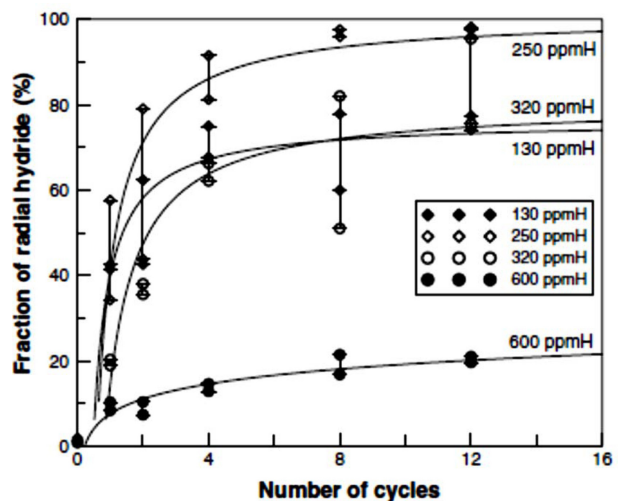


Fig. 10. Effect of number of thermal cycle on the hydride reorientation in Zircaloy-4 with various hydrogen concentrations under the condition of solution temperature 400 °C and hoop stress 160 MPa [35].

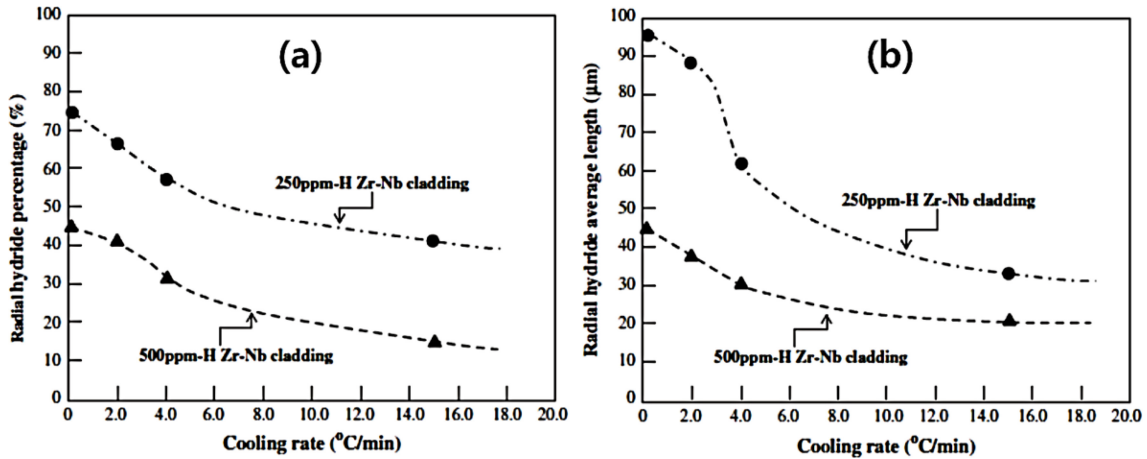


Fig. 11. (a) Percentages and (b) average lengths of precipitated radial hydrides depending on cooling rates [47].

화되는 것으로 알려져 있다 [35,42,45,46]. 그림에서 볼 수 있듯이 시편의 수소 농도가 130, 250, 320 wppm인 경우에는 반경방향 수소화물의 분율이 약 75% 이상으로 수렴하는 반면, 600 wppm의 경우 약 20%에 수렴한다. 이는 첨두 온도 400 °C에서의 수소 고용도가 약 210 wppm인 점을 고려할 때, 600 wppm 시편의 경우 이 온도에서 용해되지 않고 잔존하는 수소화물의 양이 많아 열 순환 횟수가 증가하여도 재배열될 수 있는 수소의 양이 한정되어 있다는 사실에 기인하는 것으로 판단된다 [35]. US NRC에서는 이러한 열 순환이 수소화물 재배열에 미치는 영향을 고려하여 사용후핵연료의 열 순환 횟수를 10회 미만으로 규제하고 있다(표 2) [38]. 최근 Colas 등[45]은 열 순환 횟수가 증가할수록 반경방향 수소화물의 분율 뿐만 아니라, 수소화물 간의 연결이 원활히 이루어져 반경방향 수소화물의 길이가 크게 증가하는 것을 발견하고 열 순환 횟수가 피복관의 취성에 결정적인 영향을 끼친다고 주장하며 US NRC 규제의 타당성을 뒷받침하였다.

그러나 대부분의 연구들은 160 MPa 이상의 원주응력, 30회에 이르는 열 순환 횟수 등 상당히 가혹한 환경을 시험에 적용하여 열 순환 횟수의 극명한 효과를 도출하고 있어 [35,42,45,46], 좀 더 실질적인 건식저장 환경을 고려한 영역에서의 데이터 확보가 필요하다고 판단된다.

2.4 냉각률

사용후핵연료의 온도는 건식저장 시작과 동시에 지속적으로 감소하며 이러한 변화는 반경방향 수소화물 재석출에 중요한 역할을 한다. 이전 연구에 따르면 냉각률이 느릴수록 반경방향 수소화물의 분율과 평균 길이가 증가하는데 (그림 11) 이는 냉각률이 느릴수록 상대적으로 고온

에서 유지되는 시간이 길어지므로 반경방향 수소화물의 성장이 충분히 발생하여 그 길이가 길어진다는 해석이 가능하다 [31,33,47,48]. 또한 냉각률이 느리면 수소가 확산하여 안정된 위치에서 석출되기에 충분한 시간이 제공되므로 수소화물 재배열이 활발해지기 때문이라고 알려져 있다 [35].

그러나 이들 연구자들이 모사한 실험실 시험의 냉각률 조건은 일반적으로 0.01~15 °C/min 정도로[31,33,47,48], 실제 건식저장 시스템 내 사용후핵연료 피복관의 냉각률보다 약 $10^2 \sim 10^4$ 배 빠르다. 그림 6에서 알 수 있듯이 연소도 45 GWd/MTU 핵연료의 경우 최초 약 400 °C에서 100년 경과 후에야 약 130 °C 수준으로 냉각되어 평균 냉각률 5×10^{-4} °C/min을 갖는다. 물론 실질적인 사용후핵연료 냉각률은 지속적으로 변화해 건식저장 초기에는 빠르다가 서서히 느려진다. 그러므로 이전 연구 데이터들은 건식저장 초기에 적용가능한 수소화물 재배열 거동을 모사한 것으로 판단할 수 있다. 그러나 최근에는 100년 이상의 건식저장 운영이 현실화되고 있는 바[5], 장기 건식저장 조건에서의 피복관 열화를 평가하기 위해서는 반드시 이러한 낮은 냉각률의 변화를 고려해야 할 것으로 판단된다. Bradbrook 등[15]에 따르면 냉각률은 수소화물이 석출되는 위치, 크기, 구조 등에도 영향을 미친다. 그들의 연구에 따르면 냉각률이 10 °C/min 미만인 경우 석출물 대부분은 안정상인 FCC 구조의 δ -상이며, 냉각률이 10 °C/min 보다 클 경우에는 준안정상인 면심정방(face-centered tetragonal, FCT) 구조의 γ -상 석출이 우세하다(표 1). 따라서 장기 건식저장 관점에서 석출되는 수소화물 상과 그 수소화물의 특성과 연관된 미시적 수소화물 재배열 특성을 냉각률 구간을 나누어 평가하는 것이 필요할 것으로 사료된다.

2.5 수소 농도

피복관은 냉각수와의 부식반응에 의해 방출되는 수소를 적극적으로 흡수하여, 그림 4와 같이 방출된 사용후핵연료의 피복관은 연소도에 따라 약 200~600 wppm의 수소를 함유하게 된다 [7]. 지금까지 알려진 연구 결과에 따르면, 건식저장 초기 진공건조 과정에 의해 피복관의 온도가 400 °C로 상승한다고 할 때, 실질적으로 약 200 wppm 이상의 수소를 함유한 피복관의 경우 수소 농도 증가에 따라 수소화물 재배열 정도가 감소한다 [31,35,40,45,47,51]. 이는 침투 온도에서도 용해되지 않고 잔존하는 원주방향 수소화물이 결정적인 역할을 하기 때문이라는 설명이 지배적이다. 즉, 침투 온도에서 수소 고용도 이상 수소를 함유한 경우에만, 고용도 만큼의 수소가 용해되고 오직 이 용해된 수소만이 반경방향 수소화물로 석출 가능하다는 것이다. 따라서 수소 농도가 높아질수록 침투 온도에서도 용해되지 않고 잔존하는 원주방향 수소화물의 양이 많아지므로, 그로 인한 격자 변형 정도와 주변의 전위 등 결함 농도가 증가하여 결국 반경방향 수소화물의 성장을 방해해 그 길이가 짧아지며 전체 수소화물 중 반경방향 수소화물의 분율도 작아지게 된다 [31,35,40,45,47,51]. 최근 Lee 등[51]은 건식저장 환경을 모사한 시험 조건에서 수소 농도에 따른 반경방향 수소화물의 연결성을 보고하였다(그림 12). 그에 따르면 침투 온도에 대응하는 수소 고용도 만큼의 수소 농도를 함유한 경우 반경방향 수소화물 길이가 최대화되며, 고용도 보다 적은 수소를 함유한 영역에서는 침투 온도에서 모든 수소가 용해되므로 수소 농도가 많아질수록 응력 구배에 의해 고용력 영역으로 확산 가능한 수소의 양이 많아지므로 반경방향 수소화물이 길어진다. 반면 고용도 보다 많은 수소를 함유한 영역에서는 수소 농도가 증가할수록 용해되지 않고 잔존하는 원주방향 수소화물의 양이 증가하므로 고용력 영역으로의 수소 확산이 저지되고 반경방향 수소화물의 길이가 짧아진다 [51].

사용후핵연료 지르코늄 합금 피복관 내에 이미 원주방향으로 석출되었던 수소화물들을 반경방향으로 재배열시키는 수소 농도의 영향을 살펴 보았다. 이상의 연구들에 따르면 고용도 이상의 수소를 함유한 영역에서는 수소 농도가 증가함에 따라서 수소화물 재배열 정도가 감소한다. 그러나 수소화물 재배열 정도가 작다고 해서 건전성이 유지되고 있다고 해석하기는 어렵다. 왜냐하면 수소 농도가 증가함에 따라 수소화물 양 자체가 증가하므로 기본적으로 수소 농도와 피복관의 기계적 물성과의 관계에 대한 연구가 동시에 수행되어야만이 종합적인 이해가 가능하기 때문이다. 좀더 실질적인 문제는, 원자로 운영 중 피복관 내면과 외

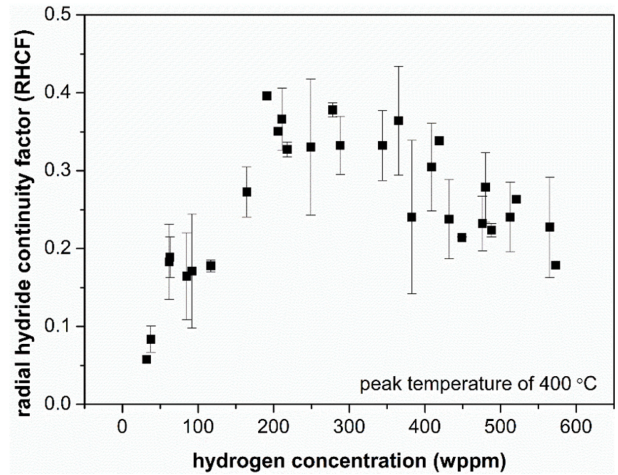


Fig. 12. Hydrogen concentration dependent radial hydride continuity factor [51].

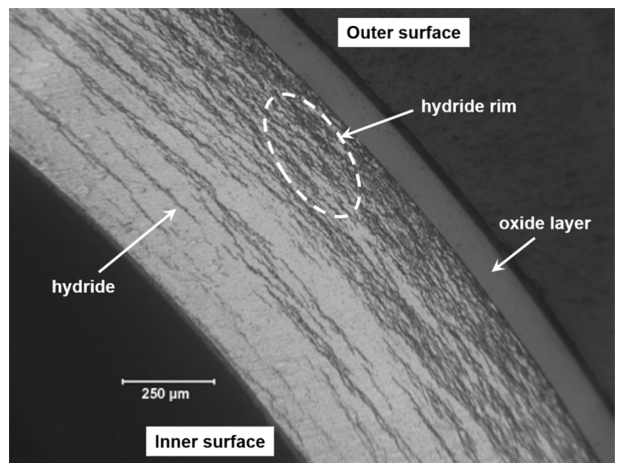


Fig. 13. Typically observed hydride distribution and morphology in the high-burnup zirconium alloy nuclear fuel cladding [63].

면의 온도 구배에 의한 수소 확산의 결과로 실제 사용후핵연료의 피복관 내에는 수소화물의 농도 구배가 존재한다는 사실이다. 이러한 현상은 고연소 사용후핵연료 피복관에서 더욱 심하게 나타나며, 그림 13과 같이 피복관 외면에 수소화물이 집중적으로 몰려있는 hydride rim 영역이 존재하게 된다 [23,63]. 따라서, 더욱 정교한 사용후핵연료 피복관 특성 모사를 위해서는 이러한 수소화물 농도 구배와 hydride rim 현상도 반드시 함께 고려되어야 한다 [63].

3. 수소화물 재배열 문턱응력에 영향을 미치는 인자

앞에서 설명한 바와 같이 수소화물 재배열 문턱응력은

Table 5. Comparison of threshold stress determination methods.

Geometry	Test method	FEM ¹	Determination criterion	Ref.	
Tapered plate	Tensile	X	Location where radial hydride was observed	[21,65]	
		O	Location where radial hydride was observed	[30,64]	
		O	Location where radial hydride was observed on the edge of the hydride band farthest from the wall	[43]	
Ring	Tensile	O	Position where transition occurs from circumferential to radial hydride	[29]	
		O	Radial hydride tip continuously connected from the highest stressed region	[51]	
	Compression	Ring	O	Angular position where transition occurs from circumferential to radial hydride	[22]
		C-shaped ring	O	Deepest location where radial hydride was observed in the stress concentrated region	[66]
Tube	Internal pressurization	X	Applied hoop stress where radial hydride was precipitated	[41,43]	

¹ Finite element modeling

피복관의 급격한 기계적 물성 열화를 일으키는 반경방향 수소화물 석출 발단 응력 값이므로 이를 정확히 평가해야만 장기 건식저장 사용후핵연료의 성능 열화를 미연에 방지할 수 있는 규제 기준을 설정할 수 있다. 최근 연구결과는 이 문턱응력에도 수소화물 재배열에 영향을 미치는 인자들이 그대로 작용하나 이들 중 특히 온도[21,29,37], 응력 이축성(stress biaxiality)[30,64], 그리고 수소 농도[35,43,51]가 가장 주요한 영향을 미친다고 보고하고 있다.

참고적으로 가장 많이 사용되는 문턱응력 결정 시험 방법은 크게 세 가지이다 (표 5). 첫 번째 방법은 점점 가늘게 만든(tapered) 판재 시편을 이용한 단축 인장 시험법으로써[21,30,65], 시편의 게이지(gauge) 영역 폭이 선형적으로 변하도록 설계하여 인장 하중이 걸렸을 때 인가되는 응력이 그 넓이에 비례하여 선형적으로 분포하도록 고안된 시험 방법이다. 이 시험은 시험 후 시편 단면 분석을 통하여 수소화물 재배열이 발생한 영역과 그렇지 않은 영역을 구분하여 문턱응력을 결정한다. 그러나, 이 방법은 실제 피복관의 형태와 다른 판재형 시편을 이용하므로, 별도의 튜브 편평화 공정(flattening process)을 수행해야 하며 주요 축 방향에 대한 Kearns factor[49]를 측정하여 튜브 시편의 결정학적 집합도와 비교해야만 한다. 두 번째 방법은 피복관 두께에 걸쳐 균일한 원주응력을 가하는 튜브 내부 가압법이다 [41,43]. 이 방법은 건식저장 중 사용후핵연료 피복관의 상황을 유사하게 모사할 수 있으며, 유한요소해석(finite element modeling, FEM) 등 별도의 응력분포 계산이 불필요하여 결과 해석이 비교적 용이하다. 그러나 시편의 소모가 많아 중성자 조사된 피복관을 다루는데 적

합하지 못하다. 마지막 방법은 링 인장[29,43] 또는 링 압축[22,66] 시험법으로써, 시편 크기가 작아 많은 데이터를 수집할 수 있으므로 시편의 확보가 어려운 조사 피복관 시험 시 유리하다. 그러나 시험의 특성상 시편에 불균일한 응력 분포가 형성되므로 이를 정량적으로 해석하기 위해 반드시 별도의 FEM을 수행해야만 한다 [22,29,43,66]. 또한 FEM 해석을 위해 입력하는 재료의 물성치가 연구자들마다 상이하므로 연구 결과의 편차가 발생할 수 있다. 그럼에도 불구하고, 시편의 소모가 적어 반복 시험을 통해 일관성있는 실험 결과를 확보할 수 있다는 점과 FEM을 효과적으로 수행할 경우 신뢰성있는 데이터를 확보할 수 있다는 점 등으로 인해 최근 이 시험법이 각광받고 있는 추세이다.

이 절에서의 논의는 이들 실험 방법이 동일하고 신뢰성 있는 실험 결과를 도출했다는 전제 아래, 이들 실험을 통해 발표된 자료들의 정리를 기반으로 진행된다.

3.1 온도

US NRC는 1998년에 보고된 Kese[67]의 연구결과를 근거로 수소화물 재배열에 의한 사용후핵연료의 열화를 막기 위해 건식저장 과정 중 피복관에 인가되는 원주응력이 90 MPa를 넘지않도록 규제하고 있다 (표 2) [38]. 이후 Chung[37]은 그간 발표된 수소화물 재배열에 대한 시험 데이터를 수집·분석한 결과, 문턱응력이 역시 약 90 MPa이며 250~550 °C 범위에서는 온도의 영향이 거의 없다고 보고하였다. 그러나 최근 Kim 등[29]은 Zircaloy-4을 이용한 체계적 링 인장시험 결과와 최신 데이터를 종합하여 그

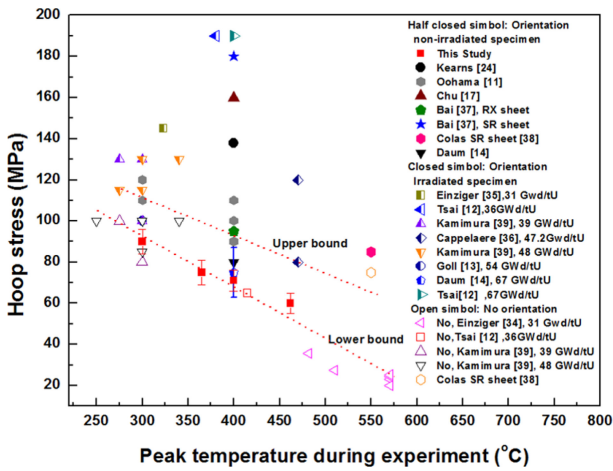


Fig. 14. Peak temperature dependent threshold stress for hydride reorientation [29].

림 14와 같이 첨두 온도가 증가함에 따라 문턱응력이 감소한다는 것을 보고하였다. 그들은 온도가 증가함에 따라 더 많은 수소화물이 용해되고, 이것이 반경방향 수소화물의 석출을 촉진시켜 결국 문턱응력을 낮춘다고 설명하였다. 그들의 결과에 따르면, 건식저장 환경에서 규제치인 90 MPa[38] 보다 훨씬 낮은 약 60 MPa의 원주응력 조건에서도 수소화물 재배열이 발생할 수 있다. 이러한 경향은 Singh 등[21,65]이 Zr-2.5Nb 압력관 재료를 이용해 수행한 시험 결과에서도 동일하게 나타나고 있는데, 그들은 온도의 증가에 따라 재료의 항복강도가 감소하기 때문이라고 설명하고 있다.

현재 일본은 이러한 문턱응력 값의 첨두 온도 의존성에 바탕한 사용후핵연료 건식저장 규제 기준을 적용하고 있다. 예를 들어, 표 3에 명시된 것과 같이 저연소도 Zircaloy-4 피복관에 대해 온도는 275 °C, 원주응력은 100 MPa 이하로 설정되어 있다 [39]. 이는 미국의 규제 기준인 400 °C[38]에 비해 상당히 낮은 값으로써, 피복관의 재료적 열화를 사전에 방지하기 위한 매우 보수적 조치라 판단된다.

3.2 응력 이축성(stress biaxiality)

수소화물 재배열 문턱응력에 대한 대부분의 시험 데이터는 단축(uniaxial) 인장시험에 의한 원주응력만을 고려하여 얻은 결과이다. 그러나 실제 건식저장 조건에서 피복관은 봉내압에 의한 원주응력 뿐만 아니라 반경방향 응력과 축방향 응력이 동시에 작용하고 있으므로, 이러한 응력들을 함께 고려하여 평가하는 것이 필요하다. Cinbiz 등[30,64]은 최초로 응력 이축성에 따른 문턱응력을 체계적으로 시

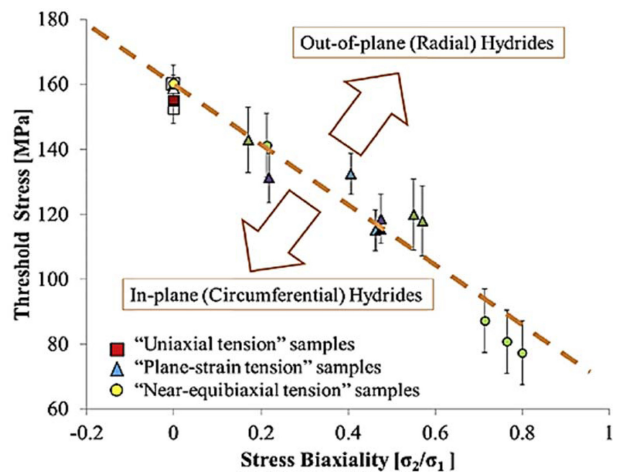


Fig. 15. Stress biaxiality dependent threshold stress for hydride reorientation [30].

험하고 정량화시켰다. 그는 하중 인가 시, Zircaloy-4 판재 시편 내 위치에 따른 이축 응력비 분포를 FEM으로 계산하였다. 그리고 시편 단면의 수소화물 형태와 직접 비교하여 문턱응력을 도출하였다. 그림 15의 결과에서 볼 수 있듯이, 순수 단축 응력만이 작용한 경우($\sigma_2/\sigma_1 = 0$), 문턱응력이 약 155 MPa이었으나, 이축 응력비가 0.8일 때는 약 75 MPa에서도 수소화물 재배열이 발생하였다. 즉, 단축 응력 상태보다 이축 응력 상태가 되어 이축 응력비가 증가할수록 문턱응력이 감소하여 반경방향 수소화물 석출이 더욱 용이해진다는 것이다. Desquines 등[68]에 따르면, 진공건조 과정 중 피복관은 봉내압 상승 뿐만 아니라 소결체-피복관 역학적 상호작용(pellet-cladding mechanical interaction, PCMI) 등으로 인해 피복관에 작용하는 이축 응력비가 0.5 이상으로 증가할 수 있다. 이는 향후, 건식저장 중 사용후핵연료 피복관에 작용되는 원주응력 뿐만 아니라 반경방향 또는 축방향 응력을 동시에 고려하여 보수적 규제 기준을 수립해야 함을 시사한다.

3.3 수소 농도

사용후핵연료 피복관은 그림 4에서 볼 수 있듯이 연소도에 따라 약 200~600 wppm의 수소를 함유하고 있다 [7]. 2절에서 수소 농도가 수소화물 재배열 현상에 직접적으로 영향을 미친다는 것을 살펴보았지만[31,35,40,42,45,47,51], 그와는 별도로 건식저장 중 안전 규제 기준 평가에 직접적으로 활용하기 위해서는 수소 농도와 문턱응력의 상관관계를 정확하게 파악해야 한다.

이전 연구에 의하면 수소화물 재배열 문턱응력은 수소 농도에 따라 증가한다고 알려져 있으나[43,66] 이러한 주

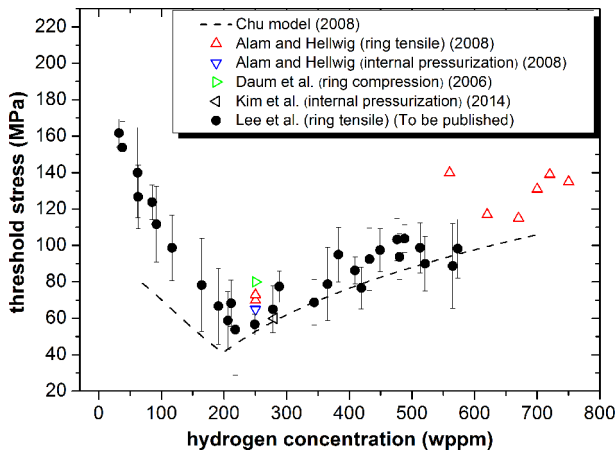


Fig. 16. Hydrogen concentration dependent threshold stress for hydride reorientation [51].

장은 정성적·이론적 해석없이 단순히 실험 결과에 의존한 것으로, 그 원리는 아직까지 명확히 밝혀지지 않고 있다. Chu 등[35]은 수소화물 재배열 정도가 자유 에너지와 직접적으로 연관되어 있다고 가정하고 첨두 온도에 대응하는 수소 고용도 보다 수소 함유량이 많은 경우, 첨두 온도에서 용해되지 않고 잔존하는 원주방향 수소화물 양이 많기 때문에 수소화물 재배열이 발생하기 위해 필요한 문턱응력이 수소 농도에 따라 증가한다고 주장하였다. 최근 Lee 등[51]은 건식저장 환경을 모사한 시험 결과와 이전 결과들을 체계적으로 종합하여 수소 농도에 따른 문턱응력 의존성을 보고하였다(그림 16). 이 결과에 따르면 400 °C의 첨두 온도에 대응하는 수소 고용도 값인 약 210 wppm[54,59]을 기준으로, 수소 함유량이 적으면 수소 농도 증가에 따라 문턱응력이 감소하고, 더 많으면 문턱응력이 수소 농도 증가에 따라 증가하다가 포화된다. 그는 이러한 경향성의 근본 원인은 링 시편에 형성된 응력 구배에 따른 수소의 고용력 영역으로의 확산으로, 첨두 온도에서도 용해되지 않고 잔존하는 원주방향 수소화물이 문턱응력 크기에 결정적인 역할을 한다고 설명하고 있다.

지금껏 알려진 연구 결과를 종합하면, 건식저장 초기 진공건조 과정에 의해 피복관의 온도가 400 °C로 상승한다고 할 때, 해당 온도의 용해도인 약 210 wppm의 수소를 함유한 피복관의 경우 문턱응력이 최소가 된다는 것에 많은 연구자들의 의견이 일치한다. 즉, 거시적 측면으로 보면, 실제 300 wppm 이상의 수소를 함유하고 있는 사용후핵연료 피복관의 경우 수소 농도가 증가함에 따라 수소화물 재배열에 의한 피복관 건전성 열화 정도는 오히려 개선된다고 해석할 수 있다. 그러나 수소 농도가 증가하면 미시적으로

피복관 내 취성 수소화물의 양 자체가 많아져 피복관의 금속속성이 감소하기 때문에, 단순히 문턱응력이 높아지므로 반경방향 수소화물 석출에 대한 저항성이 높아진다고 해석하는 것은 무리가 있다는 것이 분명하다.

4. 결론 및 제언

4.1 결론

(1) 사용후핵연료 건식저장 방식은 우리나라 뿐만 아니라 세계적으로 운영 및 운영을 계획하고 있다. 수소화물 재배열 현상은 건식저장 시 사용후핵연료 지르코늄 합금 피복관의 안전성과 기계적 건전성을 위협할 주요 현상으로 고려되어 전 세계적으로 광범위하게 연구되고 있다.

(2) 이 논문에서는 온도, 원주응력, 열 순환 횟수, 냉각률, 수소 농도 등이 수소화물 재배열에 미치는 영향과 현안을 상세히 고찰하였다. 온도는 지르코늄 기지 내 수소의 고용과 확산, 수소화물의 핵 생성과 성장 등 지르코늄-수소 이원계에서의 제반 물리적 거동을 지배하며 원주응력은 수소화물을 재배열시키는 직접적인 주요 요인으로써 온도와 함께 가장 중요한 인자이다. 또한 온도의 상승과 하강이 반복되는 열 순환 횟수가 많아질수록, 냉각률이 느릴수록 반경방향 수소화물 분율 및 길이가 증가한다. 마지막으로, 첨두 온도에서 수소 고용도 이상 수소를 함유한 경우에는, 수소 농도가 높아질수록 첨두 온도에서도 용해되지 않고 잔존하는 원주방향 수소화물의 양이 많아지므로 이들이 반경방향 수소화물의 성장을 방해해 그 길이가 짧아지며 전체 수소화물 중 반경방향 수소화물의 분율도 작아지게 된다.

(3) 또한 수소화물 재배열은 특정 문턱응력 이상의 원주응력이 가해질 때 발생하는 것으로 알려져 있는 바, 온도, 응력 이축성, 수소 농도 등이 문턱응력에 미치는 영향에 관한 최근 연구 결과를 다루었다. 온도가 증가함에 따라 재료의 항복강도가 감소하고 더 많은 수소화물이 용해되어, 이것이 반경방향 수소화물의 석출을 촉진시켜 문턱응력을 낮추게 된다. 또한 단축 응력 상태보다 이축 응력 상태가 되어 이축 응력비가 증가할수록 문턱응력이 감소하여 반경방향 수소화물 석출이 더욱 용이해진다. 마지막으로 수소 농도에 따른 문턱응력 의존성은 아직까지 명확히 밝혀지지 않았으나, 수소 농도가 많아질수록 첨두 온도에서도 용해되지 않고 잔존하는 원주방향 수소화물이 결정적인 역할을 하여 문턱응력이 증가한다고 알려져 있다.

(4) 이러한 이해를 넘어 이 고찰을 통해 얻은 결론 중의 하나는, 수소화물 재배열 현상을 명확하게 이해하기 위해서는 영향 인자들이 반드시 복합적으로 고려되어야 한다는 점이다.

4.2 연구 방향 제언

(1) 사용후핵연료 피복관은 수소화물 농도 구배와 함께 외면에 수십 μm 두께의 산화막과 크러드(CRUD)가 형성되어 있다. 특히 고연소 사용후핵연료 피복관의 경우, 원자로 운영 중 피복관 외면으로의 수소 확산에 의해 수소화물이 피복관 외면에 집중적으로 몰려있는 hydride rim 영역이 존재한다. 이처럼 과도한 국부적 수소의 침전은 사용후핵연료 피복관의 국부적 열화를 촉발시켜 예측된 평균적 거동보다 더 빨리 심각한 열화를 유발시킬 수 있다. 그러므로 정교하게 사용후핵연료 특성을 모사하기 위해서는 이러한 수소화물 농도 구배와 hydride rim을 주요 실험 인자로 고려해야 한다.

(2) 조사 유도 경화(irradiation-induced hardening), 조사 유도 결함(irradiation-induced defects) 등 원자로 운영 중 가혹한 중성자 조사 효과를 고려해야 한다.

(3) 현재 국내 사용후핵연료 피복관의 재질은 Zircaloy-4와 ZIRLO이며 곧 본격적으로 HANA 피복관이 사용될 예정이다. 이렇듯 다양한 피복관 재질에 따른 수소화물 재배열 특성 비교 시험도 요구된다.

(4) 현재 대부분의 연구는 수소화물 재배열 정도에 따른 피복관 기계적 물성 열화 평가를 위한 거시적 관점의 실험 연구에 집중되어있다. 그러나 반경방향 수소화물 석출에 관한 상 변화, 결정학적 구조, 전위 생성 등 재료적 관점의 미시적 연구가 수행되어야 한다.

(5) 수소화물 재배열 현상을 이해하기 위한 수소 용해와 수소화물 석출, 수소 확산 등 지르코늄-수소 이원계 물리적 거동의 철저한 이해가 요구된다. 특히 이러한 이해를 위해서는 수소화된 지르코늄 기지 내 수소의 확산과 수송 해석 그리고 이들의 확산 및 수송 특성값들의 확보가 필수적이다.

(6) 여러 인자들의 제반 효과를 반영한 반경방향 수소화물의 핵 생성과 성장 이론을 도입하여 종합적이고 해석적인 이론 연구가 필요하다.

ACKNOWLEDGEMENTS

This research was supported by the Radioactive Waste Management Technology Program of the Korea Institute of Energy Technology Evaluation and Planning (KETEP), funded by the Ministry of Trade, Industry & Energy (MOTIE), Republic of Korea (No. 2014171020166A).

REFERENCES

1. Korea Radioactive Waste Management Corporation (KRMC), Alternatives and Roadmap of Spent Fuel Management in South Korea, p.172 (2011).
2. Korea Atomic Energy Research Institute(KAERI), *KAERI/CM-1397*, pp.5-13 (2010).
3. J.-S. Kim, D.-H. Kook, J.-H. Sim, and Y.-S. Kim, *J. Nuclear Fuel Cycle and Waste Technology* **11**, 333 (2013).
4. D.-H. Kook, *Ph.D. Thesis*, pp.1-25, Hanyang University, Seoul, Korea (2014).
5. US Nuclear Regulatory Commission (NRC), *NUREG-2157* (2014).
6. Electric Power Research Institute, *EPRI-1003416* (2002).
7. D.-H. Kook, J.-W. Choi, J.-S. Kim, and Y.-S. Kim, *Nucl. Eng. Technol.* **45**, 115 (2013).
8. P. A. Raynaud, D. A. Koss, and A. T. Motta, *J. Nucl. Mater.* **420**, 69 (2012).
9. G. Bertolino, G. Meyer, and J. P. Ipina, *J. Nucl. Mater.* **320**, 272 (2003).
10. L. A. Simpson and C. K. Chow, *ASTM STP 939*, pp.579-596 (1987).
11. A. C. Wallace, G. K. Shek, and O. E. Lepik, *ASTM STP 1023*, pp.66-88 (1989).
12. US Nuclear Regulatory Commission (NRC), *NUREG/CR-7022, Vol. 1, Rev. 1* (2014).
13. George G. Libowitz, *J. Nucl. Mater.* **5**, 228 (1962).
14. J.-S. Kim, *Ph.D. Thesis*, p.27, Hanyang University, Seoul, Korea (2014).
15. J. S. Bradbrook, G. W. Lorimer, and N. Ridley, *J. Nucl. Mater.* **42**, 142 (1972).
16. G. J. C. Carpenter, *J. Nucl. Mater.* **48**, 264 (1973).
17. G. J. C. Carpenter, J. F. Watters, and R. W. Gilbert, *J. Nucl. Mater.* **48**, 267 (1973).
18. J.-H. Huang and S.-P. Huang, *J. Nucl. Mater.* **208**, 166 (1994).
19. J.-S. Kim, T.-H. Kim, D.-H. Kook, and Y.-S. Kim, *J. Nucl. Mater.* **456**, 235 (2015).
20. S.-I. Hong and K.-W. Lee, *J. Nucl. Mater.* **340**, 203 (2005).
21. R. N. Singh, R. Kishore, S. S. Singh, T. K. Sinha, and B. P. Kashyap, *J. Nucl. Mater.* **325**, 26 (2004).
22. R. S. Daum, S. Majumdar, Y. Liu, and M. C. Billone, *J. Nucl. Sci. Technol.* **43**, 1054 (2006).
23. M. C. Billone, T. A. Burtseva, and R. E. Einziger, *J. Nucl. Mater.* **433**, 431 (2013).
24. H. M. Chung, R. S. Daum, J. M. Hiller, and M. C. Billone,

- ASTM STP 1423*, pp.561-582 (2002).
25. J.-S. Kim, H.-K. Yoon, D.-H. Kook, and Y.-S. Kim, *Nucl. Eng. Technol.* **45**, 377 (2013).
 26. M. A. McKinnon and M. E. Cunningham, *PNNL-14390* (2003).
 27. R. Limon and S. Lehmann, *J. Nucl. Mater.* **335**, 322 (2004).
 28. FuelSolutions™, FuelSolutions™ W21 Canister Storage System Final Safety Analysis Report, Revision 5, April 2007, *Document No. WSNF-221, Docket No. 72-1026* (2007).
 29. J.-S. Kim, Y.-J. Kim, D.-H. Kook, and Y.-S. Kim, *J. Nucl. Mater.* **456**, 246 (2015).
 30. M. N. Cinbiz, D. A. Koss, and A. T. Motta, *J. Nucl. Mater.* **477**, 157 (2016).
 31. H.-J. Cha, J.-J. Won, K.-N. Jang, J.-H. An, and K.-T. Kim, *J. Nucl. Mater.* **464**, 53 (2015).
 32. S.-J. Min, J.-J. Won, and K.-T. Kim, *J. Nucl. Mater.* **448**, 172 (2014).
 33. M. Aomi, T. Baba, T. Miyashita, K. Kamimura, T. Yasuda, Y. Shinohara, and T. Takeda, *ASTM STP 1505*, pp.651-673 (2009).
 34. H. C. Chu, S. K. Wu, K. F. Chien, and R. C. Kuo, *J. Nucl. Mater.* **362**, 93 (2007).
 35. H. C. Chu, S. K. Wu, and R. C. Kuo, *J. Nucl. Mater.* **373**, 319 (2008).
 36. B. F. Kammenzind, D. G. Franklin, H. R. Peters, and W. J. Duffin, *ASTM STP 1295*, pp.338-370 (1996).
 37. H.-M. Chung, *Proc. of the 2004 Int. Meeting on LWR Fuel Performance*, pp.470-479, Orlando, Florida, USA (2004).
 38. US Nuclear Regulatory Commission (NRC), *Interim staff guidance-11, Rev. 3*, pp.2-3 (2003).
 39. K. Kamimura, *Int. Seminar on Spent Fuel Storage (ISSF)*, Nov. 15-17, Tokyo, Japan (2010).
 40. D. Hardie and M. W. Shanahan, *J. Nucl. Mater.* **55**, 1 (1975).
 41. Y.-J. Kim, D.-H. Kook, T.-H. Kim, and J.-S. Kim, *J. Nucl. Sci. Technol.* **52**, 717 (2014).
 42. K. Sakamoto and M. Nakatsuka, *J. Nucl. Sci. Technol.* **43**, 1136 (2006).
 43. A. M. Alam and C. Hellwig, *ASTM STP 1505*, pp.635-650 (2008).
 44. M. Leger and A. Donner, *Canadian Metallurgical Quarterly* **24**, 235 (1985).
 45. K. B. Colas, Arthur T. Motta, M. R. Daymond, and J. D. Almer, *J. Nucl. Mater.* **440**, 586 (2013).
 46. Y. Mihima and T. Okubo, *Can. Metall. Q.* **11**, 157 (1972).
 47. S.-J. Min, M.-S. Kim, and K.-T. Kim, *J. Nucl. Mater.* **441**, 306 (2013).
 48. S.-J. Min, M.-S. Kim, C.-C. Won, and K.-T. Kim, *Korean J. Met. Mater.* **51**, 487 (2013).
 49. J. J. Kearns and C. R. Woods, *J. Nucl. Mater.* **20**, 241 (1966).
 50. J. B. Bai, C. Prioul, and D. Francois, *J. Adv. Sci.* **3**, 188 (1991).
 51. J.-M. Lee, H.-A. Kim, D.-H. Kook, and Y.-S. Kim (To be published).
 52. M. P. Puls, *J. Nucl. Mater.* **393**, 350 (2009).
 53. ASTM International, *ASTM B811-02*, p.7 (2007).
 54. J.-S. Kim and Y.-S. Kim, *Int. J. Hydrogen Energy* **39**, 16442 (2014).
 55. P. Vizcaíno, A. V. Flores, P. B. Bozzano, A. D. Banchik, R. A. Versaci, and R. O Rios, *ASTM STP 1529*, pp.754-783 (2011).
 56. R. Tang and X. Yang, *Int. J. Hydrogen Energy* **34**, 7269 (2009).
 57. A. McMinn, E. C. Darby, and J. S. Schofield, *ASTM STP 1354*, pp.173-195 (2000).
 58. G. F. Slattery, *J. I. Met.* **95**, 43 (1967).
 59. J. J. Kearns, *J. Nucl. Mater.* **22**, 292 (1967).
 60. C. E. Eells, *J. Nucl. Mater.* **35**, 306 (1970).
 61. M. P. Puls, Atomic Energy of Canada Limited, *AECL-8381* (1984).
 62. B. F. Kammenzind, B. M. Berquist, R. Bajaj, P. H. Kreyn, and D. G. Franklin, *ASTM STP 1354*, pp.196-233 (2000).
 63. M. Billone, Y. Yan, T. Burtseva, and R. Daum, *NUREG/CR-6967*, p.183 (2008).
 64. M. N. Cinbiz, A. Motta, and D. Koss, *TOPFUEL reactor fuel performance*, Zurich, Switzerland, A0151 (2015).
 65. R. N. Singh, R. Lala Mikin, G. K. Dey, D. N. Sah, I. S. Batra, and P. Stähle, *J. Nucl. Mater.* **359**, 208 (2006).
 66. J. Desquines, D. Drouan, M. Billone, M. P. Puls, P. March, S. Fourgeaud, C. Getrey, V. Elbaz, and M. Philippe, *J. Nucl. Mater.* **453**, 131 (2014).
 67. K. Kese, *SKI Report 98:32*, SKI project number 97228 (1998).
 68. J. Desquines, D. A. Koss, A. T. Motta, B. Cazalis, and M. Petit, *J. Nucl. Mater.* **412**, 250 (2011).