

사용후핵연료 및 금속전환체의 허용 누설률

Allowable Leakage Rate of Spent Fuel and Conditioned Spent Fuel

주준식, 방경식, 이주찬, 신희성, 서기석, 김호동

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

사용후핵연료 및 방사성물질을 저장하기 위한 저장시스템은 사용후핵연료를 저장하는 동안 안전성 문제를 야기하지 않도록 격납을 설계하고 평가하여야 하며, 격납 평가는 ANSI N14.5 또는 ISO 12807에서 규정하고 있는 절차에 따른 허용 누설률을 계산하여 평가할 수 있다. 따라서, ANSI N14.5에서 규정한 평가방법에 따라 PWR 사용후핵연료 24 다발을 저장하였을 경우와 24 다발의 금속전환체를 저장하였을 경우에 대한 격납 평가를 수행하였으며, 사용후핵연료를 저장하였을 경우보다 금속전환체를 저장하였을 경우 격납 조건이 수월해 짐을 알 수 있었다.

Abstract

A confinement of a storage system to storage spent fuel and radioactive material must be designed and estimated so that the storage system may be safe during storage period. The confinement can be estimated by calculation of allowable leakage rate in compliance with ANSI N14.5 or ISO 12807. Accordingly, the confinement was estimated in compliance with ANSI N14.5 in case of storage of 24 PWR spent fuel assembly and 24-conditioned spent fuel. The containment condition in case of storage of conditioned spent fuel is easier than in case of storage of PWR spent fuel.

1. 서 론

원자력연구소에서는 후행핵연료주기 정책 미결정국형 사용후핵연료 관리기술 개발을

위하여, 자원으로 가치 있는 PWR 사용후핵연료를 건식 개질하므로써 그 관리 부피를 초기 대비 1/4로 줄이고, 관리에 있어 안전에 문제를 일으키는 고 방열성 핵종인 세슘과 스트론튬을 선택적으로 제거하여 냉각부하를 1/2로 줄일 수 있는 사용후핵연료 금속전환기술개발에 대한 연구를 수행하고 있으며, 이에 따라 사용후핵연료 금속전환체의 저장에 대한 연구도 대두되었다.

IAEA Safety Series No.116[1] 및 10 CFR Part 72[2]에서는 사용후핵연료를 저장하기 위한 저장시스템은 사용후핵연료를 저장하는 동안 안전성 문제를 야기하지 않도록 격납 시스템을 설계하고 평가하도록 명시하고 있다.

격납 평가에 대한 절차는 미국규격인 ANSI N14.5[3]와 국제규격인 ISO 12807[4]에 나와있으며, 허용 누설률을 평가하기 위한 source term의 분류 및 source term에 따라 cavity로 방출되는 분량에 대해서는 NUREG/CR 6487[5]에서 규정하고 있다. 여기서는, ANSI N14.5의 규정을 따라 HI-STAR 100 저장용기에 PWR 사용후핵연료 집합체 24 다발을 저장하는 경우와 PWR 사용후핵연료 96 다발을 24 다발의 금속으로 전환한 금속전환체를 저장하는 경우에 대한 격납 평가를 수행하였다.

2. 방사성 핵종의 분류(Source Term Species)

NUREG/CR-6487에서는 사용후핵연료로부터 발생하는 source로 핵연료봉 표면에 형성된 crud, 핵연료봉 피복관 파손에 의해 발생하는 fine(particle), gas 및 volatile로 구분하고 있다. Crud에 있어서 가장 중요한 source는 Co-60이며, PWR 사용후핵연료의 경우에 있어 핵연료봉 표면 위의 crud에서의 Co-60 방사능은 140×10^{-6} Ci/cm²이라고 평가하고 있으며, crud 중 15%가 파쇄되어 cavity로 떨어져 나간다고 평가하고 있다.

NUREG-1536에서는 사용후핵연료를 저장할 경우에 사용후핵연료봉이 손상될 확률은 정상조건인 경우 1%, 비정상조건인 경우 10%, 그리고 사고조건인 경우에 대해서는 100%로 규정하고 있으며[6], 핵연료봉 피복관 파손에 의해 발생하는 fine이 cavity로 방출될 수 있는 분량은 0.003%로 평가하고 있다. 핵연료봉으로부터 cavity로 빠져나가는 핵분열성 gas의 핵종으로는 H-3, I-129, Kr-81, Kr-85 및 Xe-127을 분류하고 있으며, 이들의 30%가 cavity로 방출된다고 규정하고 있다. 또한, Cs-134, Cs-135, Cs-137, Ru-106, Sr-89 및 Sr-90을 volatile 핵종으로 분류하고 있으며, 이들 핵종이 cavity로 방출되는 분량은 2×10^{-4} 라고 평가하고 있다.

표 1. Fractions available for Release in accordance with Source Species

Primary Sources	Radio-nuclide Species	Fractions Available for Release		
		Normal	Off-Normal	Accident
Clud	Co-60	0.15	0.15	1.0
Gases	H-3, I-129, Kr-81, Kr-85, Xe-127	0.3	0.3	0.3
Volatiles	Cs-134, Cs-135, Cs-137, Ru-103, Ru-106, Sr-89, Sr-90	2×10^{-4}	2×10^{-4}	2×10^{-4}
Fines	Others	3×10^{-5}	3×10^{-5}	3×10^{-5}

3. 허용 누설률(Allowable Leakage Rate)

3.1 PWR 사용후핵연료의 저장

적납 평가를 수행하기 위한 기준 핵연료로는 연소도 48,000 MWD/tU, 농축도 4.5 wt%, 냉각기간 10년인 사용후핵연료를 적용하였다. 사용후핵연료 집합체 1 다발에서 발생하는 방사능량은 ORIGEN2 전산코드를 사용하여 계산하였으며, 방사능량의 총 99.9%를 차지하는 30개 핵종으로부터의 방사능량은 9.5×10^3 TBq로 계산되었다. 따라서, 저장 용기에 저장되는 사용후핵연료 집합체 24 다발로부터 발생하는 총 방사능은 2.28×10^5 TBq으로 평가된다.

허용 방출률을 계산하기 위해서는 사용후핵연료에서 발생하는 핵종의 source term에 따라 방출되는 분량을 적용하여 방출 제한치인 A_2 값을 구해야 하며, 표 2의 결과로부터 아래와 같이 계산되었으며,

$$A_{2eq} = \frac{1}{\sum(F_i/A_{2i})} = \frac{1}{0.307} = 3.26 \times 10^0 \text{ TBq}$$

표 2. Radioactivities for 24 PWR Spent Fuel Assembly

Radionuclide	Activity (ci/tU)	Activity (TBq/tU)	Package Activity (TBq)	Release Fraction	Failed Fuel Rod	Releasable Activity (TBq)	Activity Fraction (Fi)	Activity Limit (A2i)	Fi/A2i		
C0 - 60	Clud	2.44E+01	9.01E - 01	4.24E - 01	24	1.5E - 01	1.0E+00	1.53E+00	1.50E - 02	4.0E - 01	3.75E - 02
Cs137	Volatile	1.20E+05	4.42E+03	2.08E+03	24	2.0E - 04	1.0E - 01	9.97E - 01	9.81E - 03	6.0E - 01	1.63E - 02
Ba137m		1.13E+05	4.18E+03	1.97E+03	24	3.0E - 05	1.0E - 01	1.41E - 01	1.39E - 03	6.0E - 01	2.32E - 03
Pu241		8.77E+04	3.24E+03	1.52E+03	24	3.0E - 05	1.0E - 01	1.10E - 01	1.08E - 03	6.0E - 02	1.80E - 02
Y90		8.62E+04	3.19E+03	1.50E+03	24	3.0E - 05	1.0E - 01	1.08E - 01	1.06E - 03	3.0E - 01	3.53E - 03
Sr90		8.61E+04	3.19E+03	1.50E+03	24	3.0E - 05	1.0E - 01	1.08E - 01	1.06E - 03	3.0E - 01	3.53E - 03
Pm147		1.08E+04	4.00E+02	1.88E+02	24	3.0E - 05	1.0E - 01	1.35E - 02	1.33E - 04	2.0E+00	6.65E - 05
Cs134	Volatile	1.01E+04	3.74E+02	1.76E+02	24	2.0E - 04	1.0E - 01	8.43E - 02	8.29E - 04	7.0E - 01	1.18E - 03
Kr85	Gas	7.27E+03	2.69E+02	1.26E+02	24	3.0E - 01	1.0E - 01	9.11E+01	8.95E - 01	1.0E+01	8.95E - 02
Eu154		6.92E+03	2.56E+02	1.20E+02	24	3.0E - 05	1.0E - 01	8.67E - 03	8.52E - 05	6.0E - 01	1.42E - 04
Pu238		4.79E+03	1.77E+02	8.33E+01	24	3.0E - 05	1.0E - 01	6.00E - 03	5.90E - 05	1.0E - 03	5.90E - 02
Cm244		3.34E+03	1.24E+02	5.81E+01	24	3.0E - 05	1.0E - 01	4.18E - 03	4.11E - 05	2.0E - 03	2.06E - 02
Eu155		2.40E+03	8.86E+01	4.16E+01	24	3.0E - 05	1.0E - 01	3.00E - 03	2.95E - 05	3.0E+00	9.83E - 06
Am241		1.90E+03	7.04E+01	3.31E+01	24	3.0E - 05	1.0E - 01	2.38E - 03	2.34E - 05	1.0E - 03	2.34E - 02
Sb125		1.54E+03	5.69E+01	2.68E+01	24	3.0E - 05	1.0E - 01	1.93E - 03	1.89E - 05	1.0E+00	1.89E - 05
Ru106	Volatile	7.59E+02	2.81E+01	1.32E+01	24	2.0E - 04	1.0E - 01	6.34E - 03	6.23E - 05	2.0E - 01	3.11E - 04
Rh106		7.59E+02	2.81E+01	1.32E+01	24	3.0E - 05	1.0E - 01	9.51E - 04	9.34E - 06	8.0E - 01	1.17E - 05
Pu240		6.24E+02	2.31E+01	1.09E+01	24	3.0E - 05	1.0E - 01	7.82E - 04	7.68E - 06	1.0E - 03	7.68E - 03
H3	Gas	6.02E+02	2.23E+01	1.05E+01	24	3.0E - 01	1.0E - 01	7.54E+00	7.41E - 02	4.0E+00	1.85E - 02
Sm151		4.38E+02	1.62E+01	7.61E+00	24	3.0E - 05	1.0E - 01	5.48E - 04	5.39E - 06	1.0E+00	5.39E - 06
Te125m		3.76E+02	1.39E+01	6.53E+00	24	3.0E - 05	1.0E - 01	4.70E - 04	4.62E - 06	9.0E - 01	5.14E - 06
Pu239		3.53E+02	1.31E+01	6.14E+00	24	3.0E - 05	1.0E - 01	4.42E - 04	4.34E - 06	1.0E - 03	4.34E - 03
Ce144		2.17E+02	8.04E+00	3.78E+00	24	3.0E - 05	1.0E - 01	2.72E - 04	2.67E - 06	2.0E - 01	1.34E - 05
Pr144m		2.17E+02	8.04E+00	3.78E+00	24	3.0E - 05	1.0E - 01	2.72E - 04	2.67E - 06	6.0E - 01	4.46E - 06
Co60		5.38E+01	1.99E+00	9.35E - 01	24	3.0E - 05	1.0E - 01	6.73E - 05	6.62E - 07	4.0E - 01	1.66E - 06
Cd113m		4.80E+01	1.78E+00	8.35E - 01	24	3.0E - 05	1.0E - 01	6.01E - 05	5.91E - 07	5.0E - 01	1.18E - 06
Np239		3.02E+01	1.12E+00	5.25E - 01	24	3.0E - 05	1.0E - 01	3.78E - 05	3.71E - 07	4.0E - 01	9.29E - 07
Am243		3.02E+01	1.12E+00	5.25E - 01	24	3.0E - 05	1.0E - 01	3.78E - 05	3.71E - 07	1.0E - 03	3.71E - 04
Cm243		2.47E+01	9.13E - 01	4.29E - 01	24	3.0E - 05	1.0E - 01	3.09E - 05	3.04E - 07	1.0E - 03	3.04E - 04
Tc99		1.86E+01	6.86E - 01	3.23E - 01	24	3.0E - 05	1.0E - 01	2.32E - 05	2.28E - 07	9.0E - 01	2.54E - 07
Am242m		1.35E+01	4.98E - 01	2.34E - 01	24	3.0E - 05	1.0E - 01	1.68E - 05	1.66E - 07	1.0E - 03	1.66E - 04
SUM		5.46E+05	2.02E+04	9.50E+03	24						
Total		5.46E+05	2.02E+04	2.28E+05			1.02E+02				3.07E - 01

방사능의 허용 방출률(R_N)은 식 (1)로부터 9.06×10^{-10} TBq로 계산되었다.

$$R_N = A_{2eq} \times 10^{-6} \times \frac{1}{3600} \text{ TBq} \dots\dots\dots (1)$$

허용 누설률은 단위 시간당 격납 경계로부터 누설되는 유체의 허용 체적이므로 단위 체적당 방사능 농도로부터 결정된다.

저장용기의 격납 경계는 사용후핵연료를 적재하고 있는 다목적 캐니스터(이하 MPC : Multi Purpose Canister)이다. 다목적 캐니스터는 두께 12.7 mm, 외경 1,737 mm, 길이 4,534 mm를 가지고 있으며, PWR 사용후핵연료 집합체 24 다발을 저장할 때 MPC의 자유체적(V_N)은 8.392 m^3 이므로, 단위체적 당 방사능 농도(C_N)은 식 (2)로부터 1.22×10^1 TBq/ m^3 로 계산되었으며,

$$C_N = \frac{R_{TN}}{V_N} \text{ TBq/m}^3 \dots\dots\dots (2)$$

PWR 사용후핵연료 집합체 24 다발을 다목적 캐니스터에 저장할 경우 허용 누설률(L_N)은 식 (3)으로부터 7.43×10^{-11} m^3/s 로 계산되었다.

$$L_N = \frac{R_N}{C_N} \dots\dots\dots (3)$$

3.2 금속전환체의 저장

사용후핵연료를 금속전환체로 전환하게 되면 gas 및 volatile의 핵종은 제거되기 때문에, 방사능량의 총 99.9%를 차지하는 30개 핵종 중 약 20개의 핵종만 남게 된다. 따라서, PWR 사용후핵연료 1 다발을 금속전환체로 전환하였을 경우 방사능량은 1.94×10^3 TBq이며, 동일한 저장용기에 PWR 사용후핵연료 96 다발을 금속전환체로 전환하여 저장할 수 있으므로 저장용기에 저장되는 금속전환체 24 다발로부터 발생하는 총 방사능량은 1.86×10^5 TBq으로 평가된다.

NUREC 규정사항을 고려하여 계산된 복합 핵종에 대해 허용할 수 있는 방출 제한치인 A_2 값은 표 3의 결과로부터 1.02×10^{-2} TBq로 계산되었으며, 허용방출률은 식 (1)로부터 2.84×10^{-12} 로 계산되었다.

금속전환체를 저장할 때 저장용기의 격납 경계인 MPC의 자유체적은 8.784 m^3 이므로, 단위체적 당 방사능 농도는 식 (2)로부터 1.58×10^{-2} TBq/ m^3 로 평가된다. 따라서, 금속전환체를 저장할 경우 허용 누설률은 식 (3)으로부터 1.80×10^{-10} m^3/s 로 계산되었다.

4. 결과 및 토의

사용후핵연료를 금속전환체로 전환하면서, 전체 방사성 핵종 중 큰 방사능량을 차지하는 Kr-85가 제거됨으로써 방출 가능한 방사능이 작아지고, 유효 체적이 커짐으로서 단위 체적 당 평균 방사능이 커짐으로 인하여, 동일한 공간의 저장체에 저장할 경우 약 4배 더 많은 양을 저장하면서도 금속전환체의 허용 누설률이 커짐으로 인하여, 사용후핵연료를 저장하는 경우보다 격납 조건이 유리해 짐을 알 수 있다. 다시 말해서, 사용후핵연료를

저장하는 경우의 허용 누설률이 금속전환체를 저장하는 경우보다 더 작게 산출되었기 때문에 격납 경계에 대한 밀봉 기준에 있어 사용후핵연료를 저장하는 경우가 금속전환체를 저장하는 경우보다 더 엄격해지는 결과를 초래하게 되는 것이다.

표 2. Radioactivities for 24 Conditioned Spent Fuel

Radionuclide	Activity (ci/tU)	Activity (TBq/tU)	Package Activity (TBq)		Release Fraction	Failed Fuel Rod	Releasable Activity (TBq)	Activity Fraction (Fi)	Activity Limit (A2i)	Fi/A2i (TBq)	
Pu241	8.77E+04	3.24E+03	1.52E+03	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.10E-01	7.87E-01	6.0E-02	1.31E+01
Eu154	6.92E+03	2.56E+02	1.20E+02	24	4	3.0E-05	1.0E-01	8.67E-03	6.21E-02	6.0E-01	1.04E-01
Pu238	4.79E+03	1.77E+02	8.33E+01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	6.00E-03	4.30E-02	1.0E-03	4.30E+01
Cm244	3.34E+03	1.24E+02	5.81E+01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	4.18E-03	3.00E-02	2.0E-03	1.50E+01
Eu155	2.40E+03	8.86E+01	4.16E+01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	3.00E-03	2.15E-02	3.0E+00	7.17E-03
Am241	1.90E+03	7.04E+01	3.31E+01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	2.38E-03	1.71E-02	1.0E-03	1.71E+01
Sb125	1.54E+03	5.69E+01	2.68E+01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.93E-03	1.38E-02	1.0E+00	1.38E-02
Rh106	7.59E+02	2.81E+01	1.32E+01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	9.51E-04	6.81E-03	8.0E-01	8.52E-03
Pu240	6.24E+02	2.31E+01	1.09E+01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	7.82E-04	5.60E-03	1.0E-03	5.60E+00
Sm151	4.38E+02	1.62E+01	7.61E+00	24	4	3.0E-05	1.0E-01	5.48E-04	3.93E-03	1.0E+00	3.93E-03
Pu239	3.53E+02	1.31E+01	6.14E+00	24	4	3.0E-05	1.0E-01	4.42E-04	3.17E-03	1.0E-03	3.17E+00
Ce144	2.17E+02	8.04E+00	3.78E+00	24	4	3.0E-05	1.0E-01	2.72E-04	1.95E-03	2.0E-01	9.75E-03
Pr144m	2.17E+02	8.04E+00	3.78E+00	24	4	3.0E-05	1.0E-01	2.72E-04	1.95E-03	6.0E-01	3.25E-03
Co60	5.38E+01	1.99E+00	9.35E-01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	6.73E-05	4.83E-04	4.0E-01	1.21E-03
Cd113m	4.80E+01	1.78E+00	8.35E-01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	6.01E-05	4.31E-04	5.0E-01	8.62E-04
Np239	3.02E+01	1.12E+00	5.25E-01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	3.78E-05	2.71E-04	4.0E-01	6.77E-04
Am243	3.02E+01	1.12E+00	5.25E-01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	3.78E-05	2.71E-04	1.0E-03	2.71E-01
Cm243	2.47E+01	9.13E-01	4.29E-01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	3.09E-05	2.21E-04	1.0E-03	2.21E-01
Tc99	1.86E+01	6.86E-01	3.23E-01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	2.32E-05	1.67E-04	9.0E-01	1.85E-04
Am242m	1.35E+01	4.98E-01	2.34E-01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.68E-05	1.21E-04	1.0E-03	1.21E-01
SUM	1.11E+05	4.12E+03	1.94E+03	24	4						
Total	1.11E+05	4.12E+03	1.86E+05					1.39E-01			9.77E+01

참고문헌

- [1] IAEA Safety Series No.116, Design of Spent Fuel Storage Fuel Storage Facilities, 1994.
- [2] US 10 CFR Part 72, Licensing Requirements for the Independent Storage of Spent Nuclear Fuel and High-Level Radioactive Waste, 1997.
- [3] ANSI N14.5, Leakage Tests on Packages for Shipment for Radioactive Materials, 1997.
- [4] ISO 12807, Safe Transport of Radioactive Materials-Leakage Testing on Packages, 1996.
- [5] NUREG/CR-6487, Containment Analysis for Type B Packages Used to Transport Various Contents, 1996.
- [6] NUREG-1536, Standard Review Plan for Dry Cask Storage Systems, 1997.