

'95 춘계학술발표회 논문집

한국원자력학회

## 사용전 및 사용후 DUPIC 핵연료의 방사선량률 분석

김 윤 구, 박 범 락, 임 재 용

박 광 현, 황 주 호

경희대학교 원자력공학과

### 요 약

DUPIC 핵연료의 사용전 그리고 사용후 조건에서 방사선량을 분석하였다. 사용후 핵연료로 35,000 MWD/MTU의 표준 연소도와 50,000 MWD/MTU의 고 연소도를 사용하였고 선량률을 계산하기 위해 CANDU의 핵연료 집합체를 균등 혼합체로 가정 하였다. 조사선량율은 건식가공을 거치지 않았을 때 매우 높은 수치를 나타내었지만 건식가공을 한 후에는 많이 감소하게 됨을 볼 수 있었다. 특히 Cs에 민감한 반응을 보였고 Cs을 100% 제거 하였을 경우 전체 선량율이 약 90%가 줄어드는 결과를 얻었다. 아울러 사용후 DUPIC핵연료의 선량율도 건식가공 방법에 많은 영향을 받고 있다.

### 1. 서 론

에너지 자원이 부족하고 인구밀도가 높은 우리나라에서 우라늄 자원의 효율적 이용과 고준위 방사성 폐기물 발생량의 감소를 위하여 경·중수로 연계 핵연료 (이하 DUPIC 핵연료라 칭함 , Direct Use of PWR fuel in CANDU)가 적극 연구되고 있다. DUPIC 핵연료는 사용후 경수로 핵연료를 건식 가공하여 중수로에 사용할 수 있게 만든 핵연료로서, 전량 수입되는 핵분열 물질을 효율적으로 사용할 수 있고, 단위 전력 생산량 당 고준위 폐기물 발생량을 줄일 수 있으며 또한 핵 확산 금지 조약에 위배되지 않아, 에너지 자원이 절대적으로 부족한 우리나라에 적합한 핵연료로 평가받고 있다[1]. 현재 2008년까지 상용화를 위해 DUPIC 핵연료의 개발에 많은 연구가 진행되고 있으나 실제 CANDU 원자로에 사용될 때 나타날 수 있는 문제에 관한 연구는 미흡한 실정이다. 특히 DUPIC 핵연료는 많은 핵분열 생성물을 함유하고 있어 취급시 주의가 요구되는데, 아직 DUPIC 핵연료의 방사선량률 분석이 시도된 적이 없어 이 분야에 대한 검토가 요구되고 있다. 본 논문에선 사용후 PWR핵연료로 만들어진 DUPIC 핵연료가 원자로에 들어가기 전과 나온 후에 얼마나 많은 방사선원을 함유하고 있으며, 이 선원에 의하여 얼마의 방사선량률을 나타내게 되는지 구하였고, 그 결과가 갖는 의미를 분석 하였다.

### II. 본 론

#### 2.1. 사용후 핵연료의 방사능

사용후 핵연료의 방사선적 특성은 여러가지 인자들에 의해 결정되어지나, 크게 연소도와 냉각 시간이 주된 인자가 된다. 아래 그림-1은 1톤의 우라늄 당 사용후핵연료가 갖는 방사능량을 나타낸 것이다.

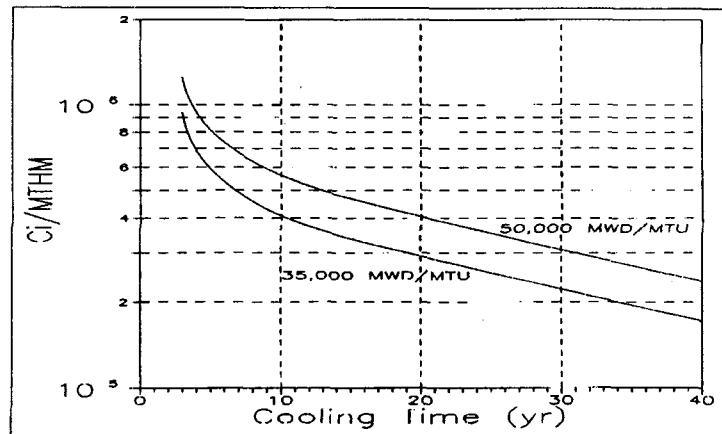


그림 1. Total radioactivity of spent PWR fuel.

그림 1에서 볼수 있듯이 10년 전후에 방사능은 급격히 감소하고 그 후 방사능은 지수적으로 감소한다. 그림 1에서의 방사선량은 전체방사선량으로 여기에는  $\alpha$ 선,  $\beta$ 선,  $\gamma$ 선 등이 포함되어 있다. 그러나 투과력이 약한  $\alpha$ 선과  $\beta$ 선은 Dose Rate에 거의 영향을 미치지 못하고 단지  $\gamma$ 선만이 Dose Rate를 변화시키는 주요인으로 작용한다. 아래 그림-2는 20년이 지난 표준연소도 및 고연소도 핵연료에서 1톤의 초기 우라늄당  $\gamma$ -선의 에너지별 발생량을 나타내고 있다.

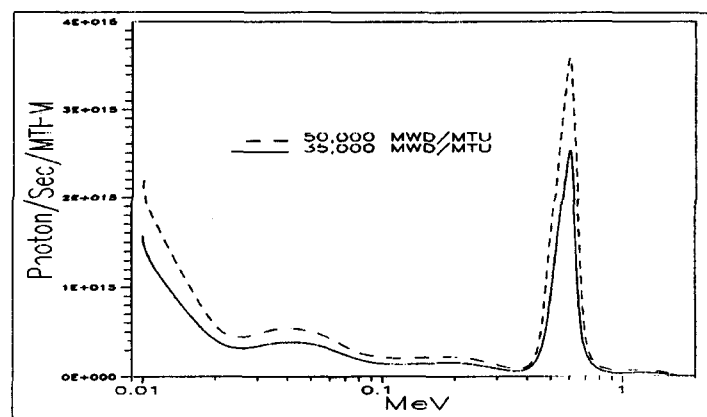


그림-2. The  $\gamma$ -ray spectrum of spent PWR fuels.

그림에서와 같이  $\gamma$ 선은 2MeV이하에서 주로 분포한다. 낮은 에너지 영역의  $\gamma$ 선은 강한  $\beta$ 선원인 Y-90, Sr-90, Cs-137의 핵연료내에서의 제동방사에 의해 방출되며, Eu-154, Tl-208은  $\beta$ 선과  $\gamma$ 선 모두를 방출하며 강한  $\gamma$ 선(0.66 MeV)은 오로지 Ba-137m으로부터 나온다.

사용후 핵연료의 피복관을 제거시키고 남은 소결체를 산화와 환원을 반복하면 소결체는 가루로 변하게 된다. 그 가루를 CANDU에 사용할 수 있도록 다시 소결시키고 피복관을 씌우면 CANDU의 핵연료 집합체로 사용할 수 있게 된다. 이런 과정들을 건식가공이라고 부르며 현재 OREOX라 불리우는 공정이 개발 중이다. 이 건식가공을 거치면 핵연료에 녹아있던 휘발성 원소와 불활성 기체의 대부분이 제거되는데 현재 이 공정이 개발중에 있어 초기 DUPIC핵연료의 성분을 알 수는 없다. 따라서 본 연구에선 두가지 경우로 분석을 하였다. 즉 사용후 PWR핵연료를 직접 -건식가공을 거치지 않고- CANDU 핵연료로 만든 경우(Direct DUPIC)와 건식가공을 거쳐 불활성기체 및 휘발성기체를 제거한 경우(Processed DUPIC)이다. 건식가공을 거친 경우에는 AIROX공정을 참조하여 아래와 같이 공정 중에 중요 원소가 제거되는 것으로 가정하였다[2,3,5] (표-1 참조).

| Elements    | Xe, Kr | I, Br | Cs, Rb | High Tm Metal |    |    | Low Tm Metal |    |    |    |    |    |
|-------------|--------|-------|--------|---------------|----|----|--------------|----|----|----|----|----|
|             |        |       |        | Ru            | Rh | Pd | Te           | Ag | Cd | In | Sn | Sb |
| Elimination | 100    | 100   | 90     | 10            | 10 | 5  | 10           | 30 | 75 | 30 | 30 | 30 |

표-1. The assumed elemental elimination during Dry Process.

### 2.3. 계산 모형

CANDU 핵연료 집합체는 37개의 핵연료봉으로 이루어져 있다. 이 집합체의 구조는 매우 복잡하기 때문에 조사선량 계산을 위해서는 그 구조를 간단히 해야 할 필요가 있다. DUPIC 핵연료는 주로  $UO_2$ 와 Zircaloy로 이루어져 있고, 특히  $UO_2$ 는 효과적인  $\gamma$  선 차폐 물질이므로 집합체내에서의  $UO_2$ 에 관한 모형은 타당한 계산을 위해서는 주의를 요하고 있다. 본 연구에선 3가지 모형을 설정하였다. 우선 가장 적절하다고 믿어지는 모형으로 핵연료 집합체가  $UO_2$ 와 Zircaloy, 그리고 빈 공간의 균일 혼합체로 이루어졌다고 가정한 것 균일혼합체(Homogeneous Mixture) 모형이다. 여기서 균일 혼합체의 외경은 원래 집합체의 외경과 동일하다. 두번째 모형은  $UO_2$ 의 차폐를 적게 고려한 핵연료봉 모형이다. 즉 한개의 핵연료봉에서 나오는  $\gamma$  선의 영향을 계산한 뒤, 총 연료봉의 수를 곱해준 모형 (Multiplication Model)이다. 이 모형은 조사선량의 최대값을 줄 것이다. 마지막으로 빈공간을 고려하지 않은 압축모형(Condensed Model)이다. 이 경우 Buildup Factor가 적어지므로 최소의 조사선량 값을 줄 것이다. 각 모형에 대한 간략한 그림 설명이 그림-3에 나타나 있고, 각 모형에서 사용한 중요 구조 및 밀도에 관한 값들이 표-2에 나타나 있다.

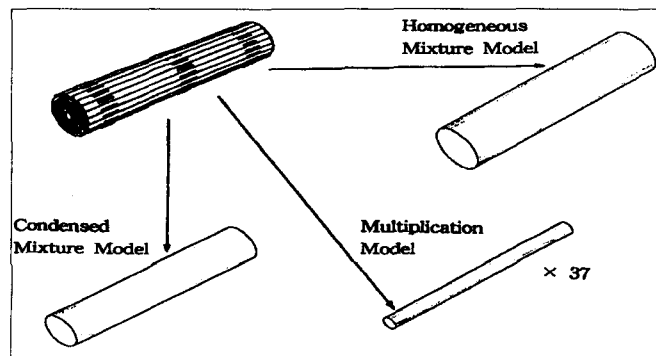


그림-3. The modelling of a fuel bundle assembly.

|                              | CANDU Assembly                       | Homogeneous Mixture Model | Condensed Mixture Model | Multiplication Model                 |
|------------------------------|--------------------------------------|---------------------------|-------------------------|--------------------------------------|
| O.D.(cm)                     | 10.24                                | 10.24                     | 7.90                    | 1.22 (one rod)                       |
| Density (g/cm <sup>3</sup> ) | UO <sub>2</sub> : 10.5<br>Zry : 6.46 | 6.0                       | 10.0                    | UO <sub>2</sub> : 10.5<br>Zry : 6.46 |
| Dose                         | --                                   | Reasonable                | Low Limit               | High Limit                           |

표-2. The geometry of each model.

#### 2.4. 계산 결과

방사선량률계산은 Microshield를 이용하여 계산을 하였다[6]. ORIGEN 2의 결과를 Microshield의 입력문으로 변형시켜 계산에 사용하였다. 계산에 사용한 구조 및 모형은 앞서 설명한 바와 같고, 기준을 DUPIC 핵연료 중심으로부터 1m 떨어진 곳에서의 피폭량으로 잡았다. 그리고 Buildup Factor는 Taylor 방법을 채택하였다. 그림-4는 35,000 MWD/MTU의 연소도를 갖는 핵연료를 사용한 direct DUPIC 핵연료의 조사선량률을 나타낸 것이다.

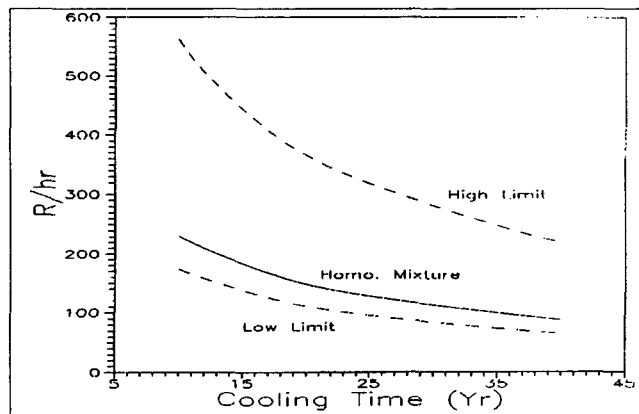


그림-4 The dose rate of fresh DUPIC fuel made from 35,000 MWD/MTU PWR fuels without Dry Process.

그림-4를 보면 균일 혼합체의 조사선량률이 압축모형(Condensed Model)으로 설정한 최소값보다 크고, 핵연료봉 모형(Multiplication Model)으로 설정한 최대값보다는 낮음을 알 수 있어 모형 설정이 어느 정도 타당함을 알 수 있다. 조사선량은 냉각기간 10년 이후부터는 지수적으로 감소하고 있으나 그 값은 매우 크다.

전체 선량율에서 차지하는 각  $\gamma$ 선 핵종의 비중(또는 기여도)을 구하여 보았다. Microshield에서 사용하는 방법에 의하면, 총 조사선량은 각 핵종의 영향을 합친 값이 된다. 아래 표-3은 20년 냉각시킨 사용후 핵연료를 건식가공을 거치지 않고 직접 CANDU핵연료 (direct DUPIC)로 만들었을 때, 핵종별 영향을 나타낸 것이다. 이 표에 의하면 강한  $\gamma$ 선 선원 6개에 의하여 총 방사선량의 99.9% 이상을 차지함을 볼 수 있다.

그림-5는 건식가공 후 원소의 구성이 표-1을 따를 경우, 냉각 기간에 따른 조사선량의 값이다. 여기서 주의해야 할 사항으로 Cs-137의 역할을 들 수 있다. Cs-137( $T_{1/2}$  =30.17년)은 붕괴하여

Ba-137m ( $T_{1/2} = 2.25$ 분)이 되는데, 모핵종에 비해 자핵종의 반감기가 매우 짧아, Cs-137과 Ba-137m은 secular equilibrium을 이루게 된다. 따라서 건식가공으로 Cs를 제거할 경우 Ba-137m이 곧 붕괴되어 없어지므로 동일한 양의 Ba-137m이 제거되는 효과가 있다.

| $\gamma$ -source | 35,000 MWD/MTU  |           | 50,000 MWD/MTU  |           |
|------------------|-----------------|-----------|-----------------|-----------|
|                  | Contribution(%) | Sum       | Contribution(%) | Sum       |
| Ba-137m          | 92.0            | 92.0      | 90.4            | 90.4      |
| Eu-154           | 7.0             | 99.0      | 8.5             | 98.9      |
| Cs-134           | 0.8             | 99.8      | 0.9             | 99.8      |
| Co-60            | 0.09            | 99.89     | 0.08            | 99.88     |
| Sb-125           | 0.07            | 99.96     | 0.06            | 99.94     |
| Kr-85            | 0.01            | 99.97     | 0.01            | 99.95     |
|                  | Dose Rate       | 147.7 R/h | Dose Rate       | 214.8 R/h |

표-3. The contribution of each strong  $\gamma$ -source on the dose rate of fresh DUPIC fuel. 20 year cooling and no Dry Process. Calculation model is a homogeneous mixture.

이러한 붕괴 사슬(decay chain)을 고려하여 방사선량을 구한 결과가 그림-5에 나타나 있다. 이 경우 선량율이 약 1/6로 감소되어 있는데 대부분 제거된 Ba-137m에 의한 것으로 볼 수 있다.

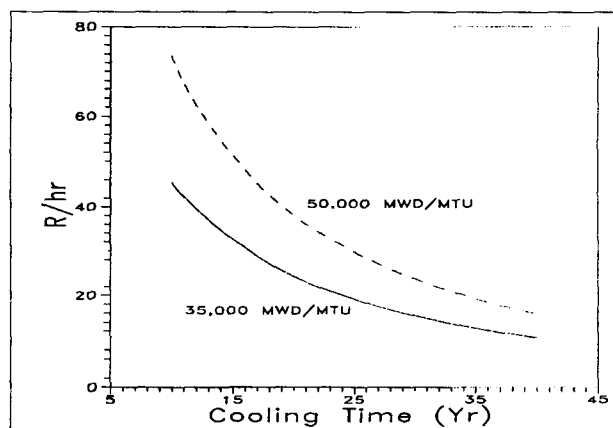


그림-5. The dose rate of fresh DUPIC fuel from spent PWR fuels after the Dry Process. The initial composition is given in Table 3.

그림-6은 DUPIC핵연료를 CANDU 원자로에서 연소시킨 뒤에 갖을 방사선량을 나타내고 있다. 조사선량의 기준은 앞에서 정의한 것과 같고, CANDU에서 7,500 MWD/MTU 만큼 연소시킨 경우이다. 초기에 매우 높은 선량률을 나타내고 있으나 급속히 감소하여 점차 지수적으로 감소하고 있다. 아울러 건식처리를 하고(Processed DUPIC) 안하고(Direct DUPIC)에 따라서 선량률에 많은 차이가 보이고 있다.

### III. 결론

- 1) DUPIC핵연료를 두가지 제작 조건 - 건식 가공을 거친 경우와 안거치고 직접 사용한 경우 -

에서 조사선량률을 분석하였다. 직접 사용한 DUPIC핵연료의 조사선량률은 매우 높게 나타났고 지수적으로 감소하였다. 건식가공을 거친 핵연료의 조사선량은 본 연구에서 가정한 경우에선 약 직접 사용한 경우에 비해 약 1/6정도 감소하는 것으로 나타났다.

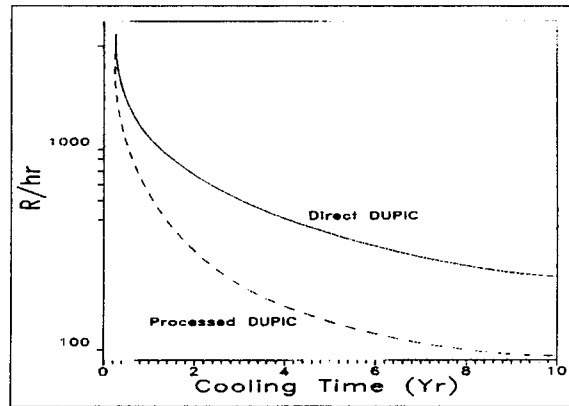


그림-6. Dose rate of Spent DUPIC fuel with 7,500 MWD/MTU.

- 2) 각 핵종별 선량률에 미치는 영향을 분석하였다. 10년 이상 냉각기간을 갖는 사용후 핵연료에서 Ba-137m이 기여하는 선량률은 약 90%정도이고 Cs를 제거하였을 경우 Ba-137m도 제거되는 효과가 있다( secular equilibrium).
- 3) 사용후 DUPIC핵연료의 선량분석을 수행하였다. 건식가공을 거친 DUPIC핵연료의 선량률이 사용후 PWR핵연료를 직접 사용한 경우보다 매우 낮은 값을 갖게 된다.

### 감사의 글

본 연구에 많은 도움을 주신 원자력연구소의 양 명성박사님과 전 관식박사님께 감사를 드린다. 본 연구는 원자력 중장기 사업에서 부분적인 지원을 받았음을 알린다 (계약 번호: 94c-19).

### Reference

1. 박 현수, 'A Study on the Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU', KAERI/RR-1244/92 (1993)
2. A.G.Croff, Nuclear Technology 62 (1983) 335
3. H. Kleykamp, J. Nucl. Mater. 131 (1985) 221
4. W.R. Smith and R.W. Missen, 'Chemical Reaction Equilibrium Analysis : Theory and Algorithms', John Wiley and Soos (1982)
5. R.C. Hoyt and B.W. Rhee, ESG-DOE-13277 (1979)
6. Microshield manual, version 3, Grove Engineering (1987)
7. T.Lindemer, T.Bessman, and C. Johnson, J. Nucl. Mater, 100 (1981) 178