

DUPIC핵연료주기 핵연료의 방사선적 특성

최종원, 고원일, 이재설, 박현수
한국원자력연구소

요 약

DUPIC 핵연료주기에서 기준 핵연료로 설정된 사용후 경수로핵연료, 신 DUPIC 및 사용후 DUPIC핵연료의 핵종별 농도, 방사능, 붕괴열, 위해지수 및 방사선원향을 시간의 함수로 그 변화 특성을 분석하고, 각 인자별로 크게 영향을 미치는 주요 핵종의 거동을 물질농도 측면에서 추적하여 분석·평가 하였다. 방사성물질의 농도와 방사능 및 붕괴열 측면에서 모두 사용후 DUPIC핵연료는 사용후 경수로핵연료에 비해 양적인 감소현상이 뚜렷하게 나타났다. 이는 DUPIC핵연료주기의 경제적인 이득은 물론 환경 안전성 측면에서 크게 기여할 것임을 시사하고 있다. 한편 섭취 위해지수는 냉각기간에 따라 약간의 차이를 보이나 두 경우 비슷한 것으로 나타났으며, 방사선원향의 세기에 있어서는 에너지 스펙트럼에 의존하는 것으로 나타났다. 이러한 결과는 향후 전체 DUPIC핵연료주기 평가에 있어서 기본 자료로 유용하게 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

1. 서 론

사용후 경수로핵연료를 중수로에 재활용하기 위한 DUPIC핵연료주기에는 각 단계별로 경수로 사용후핵연료, 신 DUPIC 및 사용후 DUPIC핵연료가 존재한다. 이러한 DUPIC핵연료주기의 기술성 및 안전성분석에는 각 단계별로 주어지는 핵연료의 특성에 따라 필요한 주요 인자들이 다르다. 따라서 본 연구에서는 향후 DUPIC핵연료주기 평가의 전단계로서 DUPIC(경.중수로 연계)핵연료주기의 각 단계별 사용후핵연료 및 신 핵연료의 방사능적, 열적 특성 인자는 물론 위해지수와 방사선원향을 장단기적인 시간의 함수로 그리고 기여도가 높은 주요 핵종의 증감변화에 따라 분석하였다. 계산 및 분석에 사용한 코드는 방사선원향 평가코드로 잘 알려진 ORIGEN2[A.G. Croff, "ORIGEN2 - A Revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code, ORNL-5621, 1980]이며, 가정된 기준연료의 조건 및 입력자료는 표 1에 제시된 바와 같다. DUPIC핵연료의 제조공정 특성상 사용후 경수로핵연료 펠렛은 약 400 - 1200°C 온도 범위에서 반복적인 산화/환원공정($UO_2 \leftrightarrow U_3O_8$)을 거치는 동안 UO_2 분말형태로 변화되고, 이때 핵연료물질내에 존재하고 있던 휘발성 및 준휘발성 핵분열생성물들은 표 2에 가정된 누출율에 따라 핵연료분말로부터 제거되기 때문에, DUPIC핵연료를 악티나이드계 물질 20여종과 휘발되지 않은 잔여 핵분열생성물 132여종으로 구성하였다.

2. 방사성물질 농도

표 3-4는 연소도 35,000 MWD/MTU을 가진 사용후 경수로핵연료가 10년 냉각된 후 DUPIC 연료로 제조된 신 DUPIC핵연료와 19,000 MWD/MTU의 연소도와 10년의 냉각기간을 가진 사용후 DUPIC핵연료의 방사성물질의 농도를 보여주는 것이다. 여기서 핵연료물질의 불순물이 조사된 조사생성물의 양은 극히 미미하여 포함시키지 않았다.

사용후 경수로핵연료에 존재하고 있는 악티나이드계 물질들은 DUPIC핵연료 제조과정에서 휘발되는 것이 없기 때문에 신 DUPIC핵연료내의 악티나이드계 물질의 양과 같지만, 사용후 DUPIC

핵연료에 존재하는 전체 악티나이드 양은 크게 증가된 것으로 나타났으나, 핵분열물질(fissile)인 U-235, Pu-239, Pu-241 등은 약 34 - 85% 감소되어 나타났다. 이러한 경향은 경수로에서 중수로에 이르는 동안 동일 핵연료물질의 누적 연소 효과에 기인된 것으로 핵분열물질들은 핵분열생성물로 전환되었고, 그 외의 악티나이드계 물질들은 중성자 흡수반응, 알파붕괴등의 각 원소별 고유 붕괴특성에 따른 핵변환에 의해 누적된 것으로 해석된다. 따라서 전체적인 악티나이드계 물질의 양적인 측면에서는 재활용 목적의 DUPIC핵연료주기가 직접처분 경우의 사용후 경수로핵연료에 비해 약 2.1%의 소멸효과를 가져다 준 것으로 평가될 수 있다. 그러나 사용후 DUPIC핵연료에 경수로핵연료보다 많이 존재하고 있는 Pu-238 및 Cm-244 등은 다음장에서 논의될 방사능의 장기적 붕괴특성 거동 및 방사선 선원항 평가에 큰 변수로 작용하게 될 것이다.

핵분열생성물의 경우에는 사용후 DUPIC핵연료에 존재하는 핵분열생성물중 몇 가지 핵종을 제외하고는 대체로 사용후 경수로핵연료에 비해 약 40 - 50% 적게 나타나고 있다. 이러한 경향은 DUPIC핵연료의 제조과정에서 제거되었던 휘발성(H-3, Kr, I, Xe등)/준휘발생물질(Ru, Cs, Zr, Sb, Ba, La등)의 양이 이미 경수로의 연소과정에서 생성되었던 핵분열생성물 총량의 34%에 해당된다는 것을 고려하더라도 사용후 DUPIC핵연료에 존재하는 핵분열생성물의 양은 신 DUPIC핵연료 물질에 존재하는 것들 보다도 약 20% 작게 나타나고 있어 현재로서는 사용후 경수로핵연료 또는 신 DUPIC핵연료에 존재하던 핵분열생성물의 상당량이 중수로의 재활용 과정에서 소멸되었을 것이라는 평가가 가능하다. 이러한 평가는 향후 좀더 세밀하게 계산도구의 각 핵종별 decay library등을 검토한 후에 내릴 결론이지만 현재까지의 결과로 예상되는 소멸효과는 사용후 경수로핵연료를 중수로에 재활용하고자 하는 DUPIC핵연료주기의 경제적 이득 이외에 환경 안전성 측면에서 기여하는 바가 적지 않음을 시사하는 것이다.

3. 방사능 및 붕괴열

사용후핵연료의 총 방사능 및 붕괴열의 시간에 따른 변화도를 살펴보면, 그림 1 - 2에 나타난 바와 같이 약 70년까지는 핵분열생성물에 의해 주도적으로 지배되고 있으며, 그 이후 300년 부터는 악티나이드에 의해 지배되고 있음을 알 수 있다. 이러한 경향은 일반적으로 사용후핵연료의 붕괴특성 변화도에서 보여주는 것과 유사하다. 그러나 사용후 경수로핵연료와 사용후 DUPIC핵연료의 방사능적 붕괴특성을 비교해 볼 때, 방사능 및 붕괴열의 총 양은 대체적으로 사용후 경수로핵연료의 경우가 크게 나타나 보이지만 그에 기여하는 악티나이드의 방사능과 붕괴열은 다소 차이를 보여 주고 있다.

악티나이드 원소에 의한 방사능의 경우, 사용후 DUPIC핵연료가 약 30년까지는 15 - 20%정도 낮게 나타나고 있으나 70년 이후부터는 거의 같은 값을 보여주고 있다. 그리고 핵분열 생성물의 경우에는 냉각시간 전반에 걸쳐 사용후 DUPIC핵연료가 경수로핵연료 방사능의 거의 절반에 해당하는 값을 보여주고 있다. DUPIC핵연료 제조과정에서 제거되었던 휘발성 및 준휘발생생성물을 고려하더라도 경.중수로의 누적 연소과정에서 총 방사능의 약 60%가 소멸처리된 것임을 알 수 있다. 또한, 사용후 DUPIC핵연료에 존재하고 있는 악티나이드 원소중 U-236, Pu-238/240, Am-243, Cm-244등의 방사능은 경수로핵연료에 존재하는 해당 핵종들의 방사능에 비해 앞의 1항에서 언급한 방사성물질 농도와 동일한 비율로 큰 값을 보여주고 있다. 그러나 악티나이드에 의한 방사능은 사용후 DUPIC핵연료의 경우가 약 20% 작게 나타나고 있으며, 총 방사능은 핵분열생성물의 지배적인 영향으로 약 45% 작게 나타났다.

한편 붕괴열의 경우에는 사용후 경수로핵연료와 사용후 DUPIC핵연료간에 큰 차이는 보여주지 않고 있다. 사용후 경수로핵연료의 경우, 앞에서 언급된 방사능 붕괴특성과 같이 냉각초기 단계에서는 핵분열생성물에 의한 영향이 지배적으로 나타나고 있지만, 사용후 DUPIC핵연료의 경우에는

냉각초기 단계에서부터 악티나이드에 의한 영향이 크게 미쳐 전체 붕괴열량에 미치는 악티나이드와 핵분열생성물의 기여도는 각각 다르게 나타나고 있다. 약 100년 이후에는 악티나이드에 의한 기여도가 사용후 경수로핵연료 경우에는 약 66% 이상, DUPIC핵연료의 경우에는 약 83% 이상인 것으로 나타났다. 이와 같은 악티나이드의 기여도에 영향을 크게 미치는 원소들은 주로 Pu-238, Am-241, Cm-244등인 것으로 나타났다.

4. 섭취위해지수

그림 5-6은 사용후 경수로핵연료와 DUPIC핵연료가 갖고 있는 섭취위해지수를 사용후핵연료의 냉각시간에 따라 나타낸 것이다. 전체적인 유형은 앞에서 언급한 방사능 및 붕괴열의 붕괴특성과 유사하나 각 핵종의 방사능 독성도(radiotoxicity)가 방사능의 크기와 선형적인 관계에 있지 않기 때문에 악티나이드에 의한 기여도가 다소 다르게 나타나고 있다. 그림에서 보여주는 바와 같이, 냉각초기에는 사용후 DUPIC핵연료에 존재하는 악티나이드의 위해지수 값이 약 8 - 72%의 비교적 큰 범위로 크게 나타나고 있지만, 약 300년 이후부터는 반대로 경수로핵연료에 존재하는 악티나이드의 위해지수가 DUPIC의 경우 보다 약 16 - 23% 크게 나타나고 있다. 이러한 경향은 냉각초기 약 300년까지는 사용후 DUPIC핵연료에 존재하고 있는 악티나이드중 Pu-238, Pu-240, Cm-244가 물질농도 측면에서 경수로핵연료의 경우보다 각각 143, 31, 328%의 비율로 많이 존재하고 있기 때문인 것으로 해석될 수 있다. 그리고 그 이후의 반대현상은 사용후 경수로핵연료에 존재하고 있는 Am-241의 큰 위해지수가 300년 이후까지 지속적으로 높게 유지되고 있는 반면, DUPIC핵연료의 위해지수를 지배하던 Pu-238, Cm-244의 위해지수 값이 상대적으로 짧은 반감기에 의해 비교적 빠른 감소효과를 나타내고 있기 때문인 것으로 해석된다. 그리고 1,000년 이후부터는 다시 사용후 DUPIC핵연료의 위해지수가 다시 경수로핵연료 보다 약 10 - 30% 크게 나타나고 있다. 이러한 현상은 사용후 DUPIC핵연료에 비교적 많이 존재하고 있던 핵분열성물질(fertile) 및 악티나이드 원소의 붕괴생성물인 Pb-210, Po-210 및 Ra-226에 의한 것임을 알 수 있다.

5. 방사선원형

표 5는 사용후 경수로핵연료, 신 DUPIC핵연료 및 사용후 DUPIC핵연료의 감마선에너지 스펙트럼을 평균에너지별 단위시간당 photon수(gamma intensity)로 나타낸 것이다. 신 DUPIC핵연료의 경우는 앞장에서 설명된 바와 같이 DUPIC핵연료 제조과정에서 휘발된 핵종중 감마선원인 Kr-85, Cs-134, Cs-137, Sb-125, Ba-137m등의 감마 스펙트럼이 제외된 것이다. 이를 사용후 경수로핵연료의 스펙트럼과 비교해 볼 때, DUPIC연료의 경우가 감마선의 평균에너지 0.01 - 0.085MeV 범위에서 약 10 - 20% 감소되었고, 0.125 - 0.375 MeV에서는 약 6%, 그리고 0.575 - 0.85 MeV에서는 50 - 70%로 비교적 크게 감소된 것으로 나타나고 있다. 이러한 감소현상에 기인한 휘발성물질(Kr-85, Cs-134, Cs-137, Sb-125, Cs-137m)의 감마선 스펙트럼은 시설에서 발생되는 고체폐기물의 취급, 수송 및 처분에 필요한 용기와 관련시설의 차폐설계에 활용될 수 있을 것이다. 사용후 DUPIC핵연료가 갖는 감마 스펙트럼을 경수로핵연료의 경우와 비교해 볼 때, 전체적인 특징은 사용후 DUPIC핵연료의 경우가 0.01 - 0.575 MeV의 낮은 에너지 범위에서는 경수로핵연료 보다 약 40 - 50% 낮은 감마선 세기를 보여주고 있으나, 3.5MeV이상의 높은 에너지 범위에서는 사용후 DUPIC핵연료의 감마선 세기가 크게 나타났는데, 이는 사용후 DUPIC핵연료에 상대적으로 많이 존재하고 있던 악티나이드의 Cm-244와 Rh-106에 의한 것으로 해석되었다.

사용후 경수로핵연료와 DUPIC핵연료의 중성자 선원형 모두 악티나이드 물질의 (α , n)반응 및 자발핵분열에 의해 결정되고는 있으나 특히, Cm-244의 자발 핵분열에 의한 중성자 선원이 지배

적인 것으로 나타났다. 이런 이유에 기인하여 사용후 DUPIC핵연료의 중성자 선원이 경수로핵연료보다 4 배 이상 크게 나타났다.

이상과 같은 감마선원과 중성자선원량의 양적 비교에서 나타난 바와 같이, 사용후 경수로핵연료, 신 DUPIC핵연료가 취급되는 DUPIC핵연료 제조시설 및 핵연료 운반설비는 경수로 사용후핵연료의 선원량을 설계인자로 활용할 수 있지만, 사용후 DUPIC핵연료가 취급되는 중수로내의 사용후핵연료 취급, 저장, 운송설비등은 기존의 천연우라늄 사용후핵연료 기준으로는 방사선 차폐에 많은 위험을 초래할 수 있다는 것을 알 수 있다.

Table 1. Irradiation Conditions of Spent PWR and DUPIC Fuel

Parameter	Spent PWR Fuel	Spent DUPIC Fuel
Enrichment(wt.% of fissile)	3.5(U-235)	1.43(Fissile material)*
Discharge Burnup(MWD/MTU)	35,000	19,000
Cooling Time(year)	10	10
Specific Power(MW/MTU)	38	25.5
Capacity Factor	0.8	0.9
EFPD/Cycle(days)	293	745
Others	Natural Decay ^b	-

* Note : a)Fissile content = U-235(0.819%) + Pu-239(0.533%) + Pu-241(0.075%)

b)Natural decay for 100 days of refuelling period

Table 2. Release Rate of Volatile and Semi-volatile Elements

Volatile	Release Rate(%)	Semi-volatile	Release Rate(%)
Tritium(H-3)	100	Zirconium(Zr)	10
Krypton(Kr)	100	Antimony(Sb)	11
Iodine(I)	100	Ruthenium(Ru)	100
Xenon(Xe)	100	Cesium(Cs)	100
-	-	Barium(Ba)	10

Table 3. Concentration of radionuclides contained in Spent PWR Fuel with 35,000MWD/MTU, and DUPIC Fuel with 19,000 MWD/MTU at 10 years after Discharge

Actinide	Concentration		Fission Product	Concentration	
	PWR	DUPIC		PWR	DUPIC
U-234	2.00E+02	1.72E+02	Kr-85	1.33E+01	5.62E+00
U-235	8.19E+03	1.23E+03	Sr-90	4.54E+02	1.79E+02
U-236	4.36E+03	5.12E+03	Y-90	1.40E-01	4.45E-02
U-238	9.41E+05	9.29E+05	Tc-99	8.22E+02	4.49E+02
Np-237	5.23E+02	5.43E+02	Ru-106	1.60E-01	1.67E-01
Pu-238	1.54E+02	3.74E+02	Cs-134	4.53E+00	2.04E+00
Pu-239	5.33E+03	3.11E+03	Cs-137	1.00E+03	5.57E+02
Pu-240	2.20E+03	2.88E+03	Ba-137	3.05E+02	1.61E+02
Pu-241	7.52E+02	4.94E+02	Pm-147	1.04E+01	6.28E+00
Am-241	4.97E+02	3.68E+02	Sm-151	1.37E+01	2.32E+00
Am-243	9.13E+01	2.41E+02	Eu-154	1.60E+01	8.66E+00
Cm-243	2.94E-01	2.02E+00	Eu-155	3.26E+00	1.70E+00
Cm-244	1.85E+01	7.94E+01	Sub.total	3.61E+04	1.94E+04
Sub.total	9.64E+05	9.44E+05	Total	1.00E+06	9.63E+05

Table 4. Radioactivity of radionuclides contained in Spent PWR Fuel with 35,000MWD/MTU, and DUPIC Fuel with 19,000 MWD/MTU at 10 years after Discharge (unit : C/MTHM)

Actinide	Radioactivity		Fission Product	Radioactivity	
	PWR	DUPIC		PWR	DUPIC
U-234	1.25E+00	1.08E+00	Kr-85	5.23E+03	2.21E+03
U-235	1.77E-02	2.67E-03	Si-90	6.20E+04	2.45E-04
U-236	2.82E-01	3.31E-01	Y-90	6.20E+04	2.45E-04
U-238	3.17E-01	3.12E-01	Tc-99	1.39E+01	7.61E+00
Np-237	3.69E-01	3.83E-01	Ru-106	5.44E+02	5.60E+02
Pu-238	2.63E+03	6.41E+03	Cs-134	5.87E+03	2.64E+03
Pu-239	3.31E+02	1.94E+02	Cs-137	8.70E+04	4.84E+04
Pu-240	5.02E+02	6.60E+02	Ba-137m	8.23E+04	4.58E+04
Pu-241	7.75E+04	5.09E+04	Pm-147	9.69E+03	5.82E+03
Am-241	1.71E+03	1.62E+03	Sm-151	3.60E+02	6.12E+01
Am-243	1.82E+01	4.82E+01	Eu-154	4.32E+03	2.34E+03
Cm-243	1.52E+01	1.04E+02	Eu-155	1.52E+03	7.93E+02
Cm-244	1.50E+03	5.31E+03	Sub.total	3.24E+05	1.59E+05
Sub.total	8.42E+04	6.61E+04	Total	4.08E+05	2.25E+05

Table 5. Photon Spectrum of Spent PWR Fuel with 35,000MWD/MTU, Fresh DUPIC Fuel, and Spent DUPIC Fuel with 19,000 MWD/MTU at 10 years after Discharge (unit : photons/sec-MTHM)

Mean Energy (MeV)	Spent PWR Fuel				Fresh DUPIC Fuel				Spent DUPIC Fuel					
	Activation-F	Actinides	FPs	Total	Activation-F	Actinides	FPs	Total	Activation-F	Actinides	FPs	Total		
0.010	8.81E+10	4.42E+13	2.00E+15	2.62E+12	8.81E+10	4.42E+13	1.63E+15	0	1.67E+15	3.03E+13	8.66E+14	2.80E+11	9.90E+14	
0.025	1.87E+10	1.17E+12	4.37E+14	4.76E+12	1.87E+10	1.17E+12	3.68E+14	0	3.69E+14	4.59E+12	1.21E+13	1.92E+14	8.70E+11	2.10E+14
0.038	9.50E+09	2.49E+11	5.21E+14	1.34E+12	9.50E+09	2.49E+11	4.60E+14	0	4.60E+14	4.71E+13	4.13E+11	2.55E+14	2.40E+11	3.03E+14
0.058	9.53E+09	2.36E+13	3.85E+14	2.66E+11	9.53E+09	2.36E+13	3.31E+14	0	3.55E+14	1.29E+13	1.75E+13	1.65E+14	2.70E+10	1.95E+14
0.085	3.84E+09	6.71E+11	2.39E+14	1.07E+11	3.84E+09	6.71E+11	2.12E+14	0	2.13E+14	1.76E+13	2.04E+12	1.03E+14	1.10E+10	1.23E+14
0.125	1.78E+09	5.76E+11	2.16E+14	6.72E+10	1.78E+09	5.76E+11	2.03E+14	0	2.04E+14	6.77E+13	2.04E+12	9.93E+13	9.20E+09	1.69E+14
0.225	8.43E+08	4.26E+11	1.98E+14	4.08E+11	8.43E+08	4.26E+11	1.89E+14	0	1.89E+14	1.23E+13	1.85E+12	8.39E+13	7.70E+10	9.81E+13
0.375	2.44E+09	3.03E+10	9.48E+13	2.36E+12	2.44E+09	3.03E+10	9.17E+13	0	9.17E+13	2.67E+12	6.65E+10	4.19E+13	4.50E+11	4.51E+13
0.575	2.88E+09	1.10E+09	3.49E+15	3.03E+12	2.88E+09	1.10E+09	2.88E+15	0	2.88E+15	1.43E+13	8.36E+08	1.91E+15	5.80E+11	1.92E+15
0.850	8.12E+08	1.67E+09	2.80E+14	3.47E+10	8.12E+08	1.67E+09	8.86E+13	0	8.86E+13	6.97E+13	1.90E+09	1.33E+14	2.77E+08	2.03E+14
1.250	3.19E+12	8.00E+08	1.02E+14	7.78E+13	3.19E+12	8.00E+08	8.94E+13	0	9.26E+13	7.68E+13	8.39E+08	5.34E+13	6.73E+12	1.37E+14
1.750	1.16E+07	1.13E+08	2.94E+12	1.12E+04	1.16E+07	1.13E+08	2.94E+12	0	2.94E+12	2.30E+12	3.24E+08	1.59E+12	3.55E+02	3.89E+12
2.250	1.69E+07	4.16E+07	7.29E+10	4.12E+08	1.69E+07	4.16E+07	7.29E+10	0	7.30E+10	5.39E+04	1.78E+08	8.89E+10	3.57E+07	5.91E+10
2.750	5.23E+04	3.28E+08	4.36E+09	1.28E+06	4.69E+09	5.23E+04	4.36E+09	0	4.69E+09	7.88E+01	1.55E+08	4.48E+09	1.10E+05	4.64E+09
3.500	2.14E+07	2.17E+07	5.65E+08	0	2.14E+07	2.17E+07	5.65E+08	0	5.87E+08	1.05E+02	9.29E+07	5.82E+08	0	6.75E+08
5.000	3.00E+08	9.27E+06	0	0	3.00E+08	9.27E+06	0	0	9.27E+06	1.75E+05	3.97E+07	3.34E+05	0	3.97E+07
7.000	2.00E+09	1.07E+06	0	0	2.00E+09	1.07E+06	0	0	1.07E+06	1.75E+06	4.58E+06	2.17E+06	0	4.58E+06
9.000	1.00E+10	1.23E+05	0	0	1.00E+10	1.23E+05	0	0	1.23E+05	7.19E+07	5.26E+05	1.37E+07	0	5.26E+05
Total	3.33E+12	7.13E+13	7.97E+15	9.28E+13	8.14E+15	3.33E+12	7.13E+13	6.53E+15	0	6.62E+15	3.59E+14	3.91E+15	8.97E+12	4.40E+15

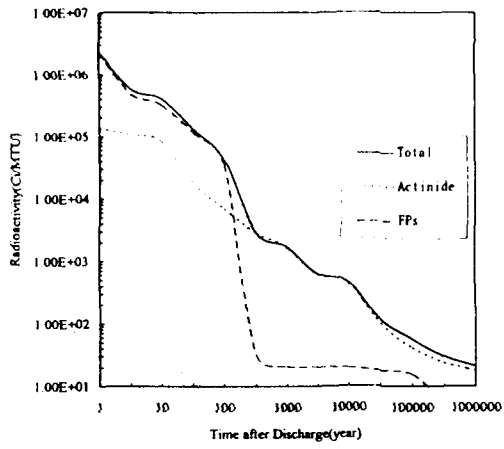


Fig. 1. Radioactivity of Spent PWR Fuel with 35,000MWD/MTU as a Function of Cooling Time

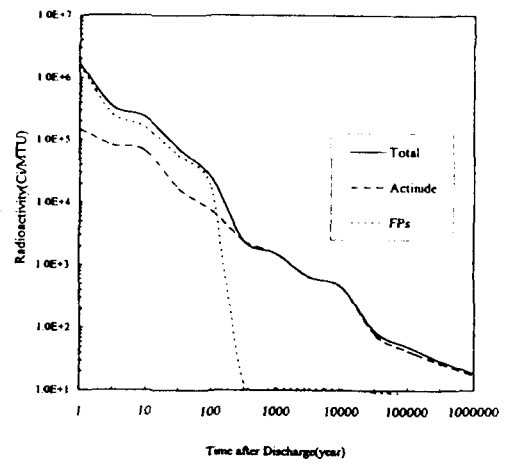


Fig. 2. Radioactivity of Spent DUPIC Fuel with 19,000MWD/MTU as a Function of Cooling Time

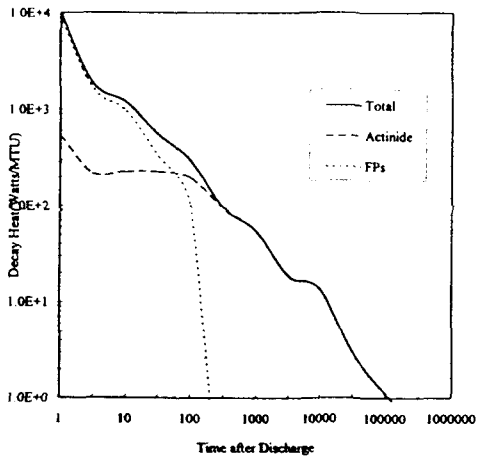


Fig. 3. Decay Heat of Spent PWR Fuel with 35,000MWD/MTU as a Function of Cooling Time

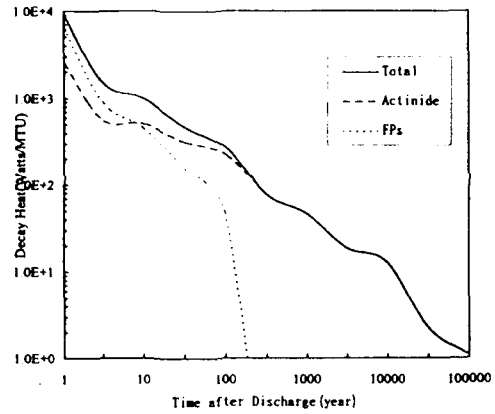


Fig. 4. Decay Heat of Spent DUPIC Fuel with 19,000MWD/MTU as a Function of Cooling Time

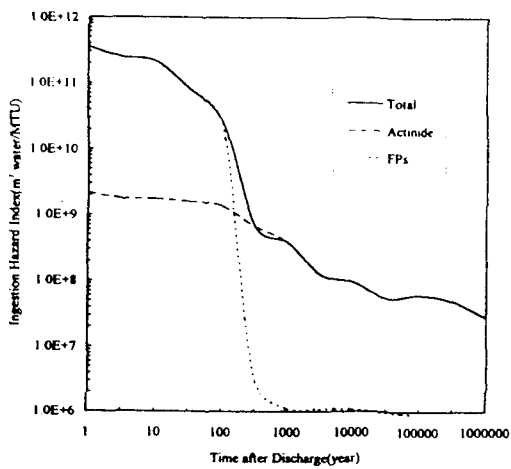


Fig. 5. Radioactive Ingestion Hazard Index of Spent PWR Fuel with 35,000MWD/MTU as a Function of Cooling Time

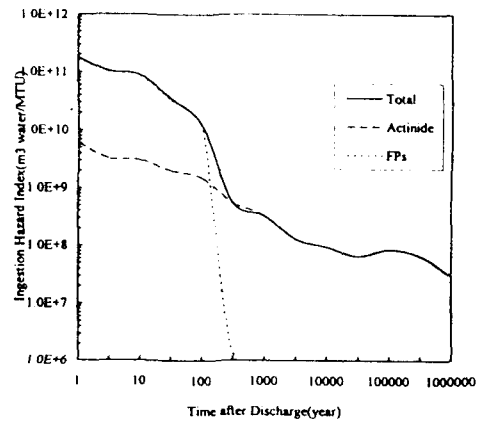


Fig. 6. Radioactive Ingestion Hazard Index of Spent DUPIC Fuel with 19,000MWD/MTU as a Function of Cooling Time