

ISO 12807에 따른 사용후핵연료 및 금속전환체의 허용 누설률

Allowable Leakage Rate of Spent Fuel and Conditioned Spent Fuel in compliance with ISO 12807

방경식, 이주찬, 주준식, 서기석, 김호동

한국원자력연구소

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, ISO 12807에서 규정한 평가방법에 따라 PWR 사용후핵연료 24 다발을 저장하였을 경우와 금속전환체 24다발을 저장하였을 경우에 대한 허용 누설률을 평가하였다. PWR 사용후핵연료 24다발을 저장하였을 경우 허용 누설률은 1.38×10^{-10} m³/s로, 금속전환체 24다발을 저장하였을 경우 4.46×10^{-10} m³/s로 평가되었다. 따라서, 사용후핵연료를 저장하였을 경우보다 금속전환체를 저장하였을 경우 격납 조건이 수월해 짐을 알 수 있었다.

Abstract

The confinement of a storage system to accommodate spent fuel and radioactive material must be designed and estimated so that the storage system is safe during a storage period. The confinement can be estimated by calculation of the allowable leakage rate in compliance with ANSI N14.5 or ISO 12807. Accordingly, the allowable leakage rate was estimated in compliance with ISO 12807 in the case of storage of 24 PWR spent fuels and 24-conditioned spent fuels. In the case of the 24 PWR spent fuel assemblies, the allowable leakage rate was estimated as 7.43×10^{-11} m³/s, in the case of the 24 conditioned spent fuel assemblies, the allowable leakage rate was estimated as 1.80×10^{-10} m³/s. Therefore, the confinement condition in the storage of the conditioned spent fuel is easier than that for the storage of the PWR spent fuel.

1. 서 론

원자력연구소에서는 후행핵연료주기 정책 미결정국형 사용후핵연료 관리기술 개발을 위하여, 자원으로써 가치가 있는 PWR 사용후핵연료를 건식으로 개질함으로써 그 관리 부피를 초기 대비

1/4로 줄이고, 관리상에 있어 안전에 문제를 야기할 수 있는 I-129, Cs-135, C-14와 같은 장반감기 핵종 및 Cs-137, Sr-90과 같은 고방열성 핵종을 선택적으로 제거하여 냉각부하를 1/4로 줄일 수 있는 차세대 관리공정(Advanced spent fuel Conditioning Progress : ACP)에 대한 연구를 수행하고 있으며, 이에 따라 사용후핵연료 금속전환체의 저장에 대한 연구도 대두되었다.

저장시스템에서의 격납은 공공의 건강에 영향을 미칠 수 있는 방사성물질의 방출을 방지하기 위해 매우 중요하다. 따라서, 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.

미국규격인 ANSI N14.5[3]와 국제규격인 ISO 12807[4]에서는 격납 평가에 대한 절차를 기술하고 있으며, NUREG/CR 6487[5]에서는 허용 누설률을 평가하기 위한 source term의 분류 및 source term에 따라 cavity로 방출되는 분량에 대해서 규정하고 있다. 여기서는, ISO 12807의 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 허용 누설률을 비교 평가하였다.

2. 방사성 핵종의 분류(Source Term Species)

NUREG/CR-6487에서는 방출될 수 있는 방사능 물질에 대해 (1)이전의 수송 또는 장전 작업의 결과로서 용기 내부의 표면에 잔존하는 방사능, (2)사용후핵연료봉 표면위에 침착되어있는 crud, 그리고 (3)사용후핵연료봉 내의 방사성핵종의 3가지로 구분하고 있다. 그러나, 사용후핵연료의 저장에 있어서는 잔존하는 방사능은 없으므로, 저장시스템에서 방출될 수 있는 방사능 물질로서 crud와 사용후핵연료봉 내의 방사성핵종 두 가지를 고려하였다.

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}

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.

사용후핵연료봉의 피복관 파손에 의해 발생하는 방사성핵종은 fine(particle), gas 및 volatile로 구성된다. 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 분류하

고 있으며, 이들 핵종이 cavity로 방출되는 분량은 2×10^{-4} 라고 평가하고 있다.

ANSI N14.5에서는 NUREG/CR-6487에서 규정하고 있는 내용을 동일하게 적용하고 있다. 그러나, ISO 12807에서는 crud의 100%가 cavity로 떨어져 나가는 것으로 가정하고 있으며, crud 및 fine과 같은 고체 입자들이 공중에 떠서 방출될 수 있는 분량은 10%라고 규정하고 있다.

3. 허용 누설률(Allowable Leakage Rate)

3.1 PWR 사용후핵연료의 저장

격납 평가를 수행하기 위한 기준 핵연료로는 연소도 48,000 MWD/tU, 농축도 4.5 wt%, 냉각 기간 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, 저장용기에 저장되는 사용후핵연료 집합체 24 다발로부터 발생하는 총 방사능은 2.28×10^5 TBq으로 평가되었다.

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,

$$A_{2eq} = \frac{1}{\sum(F_i/A_{2i})} = \frac{1}{0.167} = 5.99 \text{ TBq}$$

방사능의 허용 방출률(R_N)은 식 (1)로부터 1.66×10^{-9} 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 체적 당 방사능 농도로부터 결정된다.

저장용기의 격납 경계는 사용후핵연료를 적재하고 있는 캐니스터이다. 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 m³이므로, 단위체적 당 방사능 농도(C_N)은 식 (2)로부터 1.20×10^1 TBq/m³로 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 1.38×10^{-10} m³/s로 평가되었다.

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

3.2 금속전환체의 저장

사용후핵연료를 금속전환체로 전환하게 되면 장반감기 핵종 및 고방열성 핵종들이 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 TBq로 계산되었으며, 동일한 저장용기에 PWR 사용후핵연료 96 다발을 금속전환체로 전환하여 저장할 수 있으

므로 저장용기에 저장되는 금속전환체 24 다발로부터 발생하는 총 방사능량은 1.86×10^5 TBq로 평가되었다.

NUREC 규정사항을 고려하여 계산된 복합 핵종에 대해 허용할 수 있는 방출 제한치인 A_2 값은 표 3의 결과로부터 1.02×10^{-2} TBq로 계산되었으며, 허용 방출률은 식 (1)로부터 2.83×10^{-12} 로 계산되었다.

금속전환체를 저장할 때 저장용기의 격납 경계인 MPC의 자유체적은 8.784 m^3 이므로, 단위체적당 방사능 농도는 식 (2)로부터 6.35×10^{-3} TBq/ m^3 로 계산되었다. 따라서, 금속전환체를 저장할 경우 허용 누설률은 식 (3)으로부터 4.46×10^{-10} m^3/s 로 평가되었다.

표 2. Dominant radionuclide and their limits for the 24 PWR Spent Fuel Assemblies under normal and off-normal conditions.

Radionuclide		Activity (ci/tU)	Activity (TBq/tU)	Package Activity (TBq)		Release Fraction to cavity	Failed Fuel Rod	Airbone	Releasable Activity (TBq)	Activity Fraction (Fi)	Release Limit (A2i)	Fi/A2i (TBq)
CO-60	Clud	2.44E+01	9.01E-01	4.24E-01	24	1.0E+00	1.0E+00	1.0E-01	1.02E+00	1.01E-02	4.0E-01	2.52E-02
Cs137	Volatile	1.20E+05	4.42E+03	2.08E+03	24	2.0E-04	1.0E-01	1.0E+00	9.97E-01	9.90E-03	6.0E-01	1.65E-02
Ba137m		1.13E+05	4.18E+03	1.97E+03	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.41E-02	1.40E-04	6.0E-01	2.34E-04
Pu241		8.77E+04	3.24E+03	1.52E+03	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.10E-02	1.09E-04	6.0E-02	1.82E-03
Y90		8.62E+04	3.19E+03	1.50E+03	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.08E-02	1.07E-04	3.0E-01	3.57E-04
Sr90		8.61E+04	3.19E+03	1.50E+03	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.08E-02	1.07E-04	3.0E-01	3.57E-04
Pm147		1.08E+04	4.00E+02	1.88E+02	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.35E-03	1.34E-05	2.0E+00	6.71E-06
Cs134	Volatile	1.01E+04	3.74E+02	1.76E+02	24	2.0E-04	1.0E-01	1.0E+00	8.43E-02	8.37E-04	7.0E-01	1.20E-03
Kr85	Gas	7.27E+03	2.69E+02	1.26E+02	24	3.0E-01	1.0E-01	1.0E+00	9.11E+01	9.04E-01	1.0E+01	9.04E-02
Eu154		6.92E+03	2.56E+02	1.20E+02	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	8.67E-04	8.60E-06	6.0E-01	1.43E-05
Pu238		4.79E+03	1.77E+02	8.33E+01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	6.00E-04	5.95E-06	1.0E-03	5.95E-03
Cm244		3.34E+03	1.24E+02	5.81E+01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	4.18E-04	4.15E-06	2.0E-03	2.08E-03
Eu155		2.40E+03	8.86E+01	4.16E+01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	3.00E-04	2.98E-06	3.0E+00	9.92E-07
Am241		1.90E+03	7.04E+01	3.31E+01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	2.38E-04	2.36E-06	1.0E-03	2.36E-03
Sb125		1.54E+03	5.69E+01	2.68E+01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.93E-04	1.91E-06	1.0E+00	1.91E-06
Ru106	Volatile	7.59E+02	2.81E+01	1.32E+01	24	2.0E-04	1.0E-01	1.0E+00	6.34E-03	6.29E-05	2.0E-01	3.14E-04
Rh106		7.59E+02	2.81E+01	1.32E+01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	9.51E-05	9.43E-07	8.0E-01	1.18E-06
Pu240		6.24E+02	2.31E+01	1.09E+01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	7.82E-05	7.76E-07	1.0E-03	7.76E-04
H3	Gas	6.02E+02	2.23E+01	1.05E+01	24	3.0E-01	1.0E-01	1.0E+00	7.54E+00	7.48E-02	4.0E+00	1.87E-02
Sm151		4.38E+02	1.62E+01	7.61E+00	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	5.48E-05	5.44E-07	1.0E+00	5.44E-07
Te125m		3.76E+02	1.39E+01	6.53E+00	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	4.70E-05	4.67E-07	9.0E-01	5.18E-07
Pu239		3.53E+02	1.31E+01	6.14E+00	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	4.42E-05	4.38E-07	1.0E-03	4.38E-04
Ce144		2.17E+02	8.04E+00	3.78E+00	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	2.72E-05	2.70E-07	2.0E-01	1.35E-06
Pr144m		2.17E+02	8.04E+00	3.78E+00	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	2.72E-05	2.70E-07	6.0E-01	4.50E-07
Co60		5.38E+01	1.99E+00	9.35E-01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	6.73E-06	6.68E-08	4.0E-01	1.67E-07
Cd113m		4.80E+01	1.78E+00	8.35E-01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	6.01E-06	5.97E-08	5.0E-01	1.19E-07
Np239		3.02E+01	1.12E+00	5.25E-01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	3.78E-06	3.75E-08	4.0E-01	9.38E-08
Am243		3.02E+01	1.12E+00	5.25E-01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	3.78E-06	3.75E-08	1.0E-03	3.75E-05
Cm243		2.47E+01	9.13E-01	4.29E-01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	3.09E-06	3.07E-08	1.0E-03	3.07E-05
Tc99		1.86E+01	6.86E-01	3.23E-01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	2.32E-06	2.31E-08	9.0E-01	2.56E-08
Am242m		1.35E+01	4.98E-01	2.34E-01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.68E-06	1.67E-08	1.0E-03	1.67E-05
SUM		5.46E+05	2.02E+04	9.50E+03	24							
Total		5.46E+05	2.02E+04	2.28E+05					1.01E+02			1.67E-01

4. 결 론

차세대관리공정을 통해 사용후핵연료를 금속전환체로 전환하면서, 전체 방사성 핵종 중 큰 방사능량을 차지하는 Kr-85가 제거된다. 또한, 장반감기 핵종 및 고방열성 핵종들도 제거된다. 그 결과로서, 동일한 저장시스템에 저장할 경우 약 4배 더 많은 양을 저장하면서도 방출 가능한 방사

능이 작아지고, 단위 체적 당 평균 방사능이 커짐으로 인하여 허용 누설률이 커져 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 초래하게되는 것이다.

표 3. Dominant radionuclide and their limits for the 24 conditioned Spent Fuels under normal and off-normal conditions.

Radionuclide	Activity (ci/tU)	Activity (TBq/tU)	Package Activity (TBq)	Release Fraction to cavity	Failed Fuel Rod	Airbone	Releasable Activity (TBq)	Activity Fraction (Fi)	Release Limit (A2i)	Fi/A2i (TBq)		
Pu241	8.77E+04	3.24E+03	1.52E+03	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	4.39E-02	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	1.0E-01	3.47E-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	1.0E-01	2.40E-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	1.0E-01	1.67E-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	1.0E-01	1.20E-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	1.0E-01	9.53E-04	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	1.0E-01	7.71E-04	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	1.0E-01	3.80E-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	1.0E-01	3.13E-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	1.0E-01	2.19E-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	1.0E-01	1.77E-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	1.0E-01	1.09E-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	1.0E-01	1.09E-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	1.0E-01	2.69E-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	1.0E-01	2.40E-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	1.0E-01	1.51E-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	1.0E-01	1.51E-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	1.0E-01	1.24E-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	1.0E-01	9.29E-06	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	1.0E-01	6.74E-06	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						5.58E-02			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.