2002 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

사용후핵연료 금속전환체의 저장에 대한 핵임계 안전성 분석
Criticality Safety Analysis for the Storage of Metalized Spent Fuel

신희성, 이주찬, 방경식, 서기석, 노성기, 김호동
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

사용후핵연료 저장용기인 HI-STAR 100 를 리모델링한 사용후핵연료 금속전환체의 저장용기에 대한 핵임계 안전성 분석을 수행하였다. 이 저장용기의 24 개 저장랙 각각에 4 개 사용후핵연료 다발에 해당하는 금속전환체봉이 2x2 와 4x4 배열로 장전되는 것으로 가정하였다. 정상상태에서 캐니스터의 내부공간의 수분농도를 0.0~1.0 g/㎤ 로 변화시키면서 계산을 수행하였다. 그리고 피복관, 랙 및 바스켓이 제거되는 가상조건에 대해서도 계산을 수행하였다.

그 결과, 연소도 이득을 적용한 경우에 정상상태에서의 핵임계도는 내부공간의 수분농도에 관계없이 두 배열 모두 미임계 한계치 0.95 보다 낮은 값을 보였고, 또한 피복관 혹은 랙을 제거한 경우에도 모두 미임계한계치 이하의 값을 보였다. 그러나 랙과 바스켓을 모두 제거한 경우 2x2 배열에서의 핵임계도는 내부공간의 수분농도가 0.77 g/cm^3 이상이면 미임계 한계치를 초과하고, 4x4 배열 경우의 핵임계도는 0.70 g/cm^3 이상이면 미임계 한계치 0.95 를 초과하는 것으로 나타났다.

ABSTRACT

Critcality safety analysis has been carried out for the storage of the metalized spent fuel which was re-modeled on the basis of the HI-STAR 100 designed for spent fuel storage cask. The storage cask has been assumed that the metalized spent fuel rods fabricated from four spent fuel assemblies could be loaded by 2x2 or 4x4 arrays in each of 24 racks installed in the cask. The criticality calculations have been performed for the normal condition with the water concentration in the gap changed from 0.0 to 1.0 g/cm^3 and for hypothetical conditions in which cladding, rack or/and basket were removed.

The results for both arrays show that Keff values for the normal condition and also the cases of cladding or rack removing are lower than the subcritical limit of Keff=0.95 when the burnup credit is applied. But the Keff for the 2x2 array with rack and basket removed simultaneously appears to be higher than the subcritcal limit when the water concentration in the gap be over 0.77 g/cm^3. The Keff for 4x4 array seems to go over the subcritical limit if the water concentration in the gap is above 0.70 g/cm^3.

1. 서론

사용후핵연료에 속한 고방사성붕괴열 핵종인 세슘과 스트론튬 등을 제거하고 금속으로 전환(이를 금속전환체라 함)하면 사용후핵연료에서 방출하는 열량과 부피를 크게 줄일 수 있다[1]. 이를 저장이나 처분에 적용하면 저장공간을 크게 줄일 수 있어 관련 필요 경비를 저감할 수 있을 것으로 추정된다. 이의 실용화를 위해서는 금속전환체에 적합한 방식의 저장이나 처분 조건을 설정해야 한다. 이를 위한 분야별 안정성 평가가 필요한데 특히 핵임계 안전성 평가가 필수적이다.

본 연구에서는 먼저 기준 사용후핵연료인 4.5 wt%, 48 GWd/tU 및 5 년 냉각한 사용후핵연료로부터 13 개 원소를 제거하고 금속으로 전환한 금속전환체의 구성핵종의 핵종량을 산출하였다. 다음 HI-STAR 100를 리모델링한 저장용기에 이 금속전환체의 장전시에 정상상태와 가상조건하에서 핵임계 안전성 평가를 수행하였다.

2. 금속전환체 및 저장용기 특성

가. 금속전환체의 특성

사용후핵연료 차세대관리공정을 통하여 사용후핵연료에 들어 있는 고방열성 원소인 Cs 및 Sr를 포함한 총 13개 원소 (O, Te, Se Br, Kr, Rb, Sr, Y, I, Xe, Cs, Ba, Pm)를 분리하여 제거한 후 금속전환체를 만든다[1]. 금속전환체는 사용후핵연료집합체에 비해서 부피가 1/4로 줄어들고, 방사능과 열량은 약 1/4로 줄어들기 때문에 저장공간이나 처분공간을 줄일 수 있는 장점이 있다. 그러나 금속우라늄은 상온에서 산화가 잘 되기 때문에 저장시에 특별히 안전성을 보장해야 한다.

나. 저장용기 모델

HI-STAR 100[2]을 기준으로 금속전환체의 저장용기를 설계하였다. HI-STAR 100 용기에는 24 랙이 있고, 각 랙에 사용후핵연료 집합체 한 다발 씩 장전할 수 있는데, 금속전환체 저장용기에서는 각 랙에 사용후핵연료 4 다발 분의 금속전환체를 저장하도록 설계하였다. 각 랙에서 금속전환체봉은 2x2와 4x4로 배열되는 것으로 모델링하였고, 각 부분에 대한 치수와 매질을 Table 1에 제시하였다[3].

3. 계산모델 및 가상조건

가. 계산모델

Table 1에 제시한 대로 저장용기의 각 부분을 모델링하였다. 그러나 용기의 몸체 부분인

inner shell, intermediate shell, neutron shield 및 outer shell은 앞으로 수행할 구조해석에 따라 치수가 가변적이기 때문에 이 부분들을 보수적인 관점에서 계산모델에 포함시키지 않았다. Fig.1에는 MCNP 코드[4]에서 사용한 기하학적인 모델을 제시하였다. 사용후핵연료 집합체 한 다발을 저장한 공간에 네 다발의 사용후핵연료 집합체에 해당하는 금속전환체를 장전하여 저장용기에 총 96 개 다발 분의 사용후핵연료에 해당하는 금속전환체를 장전하는 것으로 가정하였다.

Table 1. Dimensions and Materials for Inner Structures of Canister

(unit:mm)

Item	2x2 Array	4x4 Array	Material
Metal Fuel -Rod Diameter -Length	 90 3800	 45 3800	Carbon Steel
Can -Inner Diameter -Outer Diameter -Thickness	 92 97 2.5	 47 50 1.5	Carbon Steel
Spacer Grid -Thickness -Inner Width	 2.0 99 x 99	 2.0 52 x 52	Carbon Steel
Fuel Basket -Inner Width -Thickness	 200 x 200 10	 214 x 214 10	Carbon Steel
Canister -Outer Diameter -Inner Diameter -Thickness	 1434 1404 15	 1522 1492 15	Stainless Steel
Inner Shell -Inner Diameter -Thickness	 1444 76	 1532 76	Stainless Steel
Intermediate Shell -Thickness	 160	 160	Carbon Steel
Neutron Shield -Thickness	 110	 110	NS-4-FR
Outer Shell (O.D) -Thickness -Outer Diameter	 15 2174	 15 2262	Stainless Steel

나. 가상조건

가상조건으로 캐니스터 내부공간에서의 수분농도를 0.0~1.0 g/㎤로 변화시키면서 계산을 수행하였고, 금속저장체의 피복관, 랙 및 바스켓을 제거하는 경우에 대해서도 계산을 수행하였다. 내부공간에는 공기 혹은 수분이 채워져 있는 것으로 가정하였고, 피복관, 랙,

바스켓 및 용기의 재질을 모두 철로 가정하였다. 경계조건으로 반사경계조건을 도입하고 저장용기는 무한배열한 것으로 가상하였다.

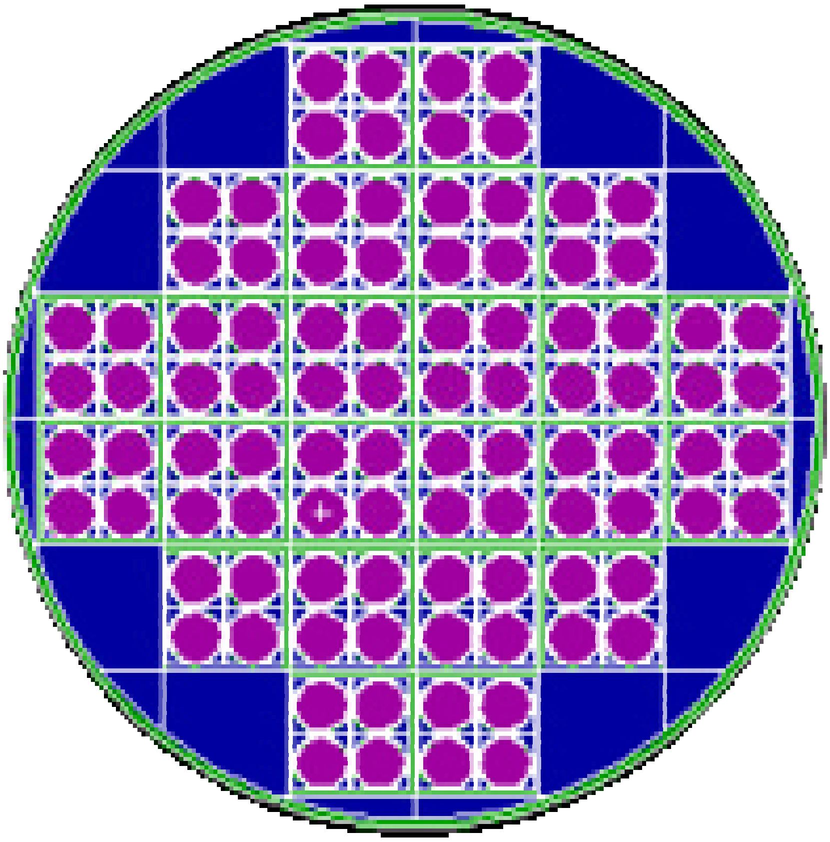

Fig. 1. MCNP Calculation Model for the Canister of 2x2 Array.

4. 핵임계 계산결과 및 분석

금속전환체를 구성하는 핵종 및 핵종량을 결정하고, 이를 기준으로 앞에서 설정한 계산모델에 따라 저장용기에 금속전환체 장전시에 대한 핵임계분석을 수행하였다. 또한 연소도 이득적용의 효과를 확인하기 위해서 신핵연료로부터 금속전환한 상태를 가정하여 핵임계분석을 수행하고 앞서 결과와 비교하였다. 핵임계도 계산 결과에서 생기는 표준편차를 두 배하고, MCNP 코드의 계산편차를 Δk=0.02로 가정하여 이들을 결합하여 핵임계도 계산값에 대한 95 % 신뢰도를 갖는 오차로 결정하였다.

가. 구성핵종의 핵종량 결정

ORIGEN2 코드[5]를 이용하여 기준 사용후핵연료인 4.5 wt%, 48 GWd/tU 및 5 년 냉각한 사용후핵연료를 대상으로 연소계산을 수행하여 사용후핵연료내 핵종량을 계산하였다. 이를 기준으로 금속전환시에 제거되는 13 개 원소를 제외하여 금속전환체의

구성핵종을 결정하고, 핵종량이 많은 순으로 30 개 핵종을 나열하여 Table 2에 제시하였다. 이들 중에서 핵임계에 미치는 영향이 크고 MCNP 코드내에 내장된 18 개 핵종의 핵자료를 핵임계도 계산에 고려하였는데 Table 3에는 이들 18 개 핵종의 핵종량(wt%)를 수록하였다. Table 3에 제시된 핵종량 비율은 Table 2의 핵종량을 기준으로 각 핵종의 무게비를 구한 것이며, 핵분열물질인 U-35와 Pu-239 및 Pu-241은 보정인자값[6]을 사용하여 보정한 보수적인 핵종량이다[7].

Table 2. Isotopic Composition Contained in Metalized Spent Fuel

Nuclide	Amount(g/tHM)	Nuclide	Amount(g/tHM)
U-238	9.254E+05	Zr-94	1.101E+03
U-235	7.199E+03	Ru-101	1.100E+03
U-236	5.892E+03	Mo-95	1.094E+03
Pu-239	5.675E+03	Tc-99	1.094E+03
Pu-240	2.731E+03	Pu-241	1.082E+03
Nd-144	2.056E+03	Zr-93	1.061E+03
Ce-140	1.810E+03	Nd-146	1.041E+03
La-139	1.773E+03	Nd-143	1.035E+03
Ce-142	1.652E+03	Zr-92	9.540E+02
Pr-141	1.620E+03	Nd-145	9.504E+02
Mo-100	1.348E+03	Zr-91	8.838E+02
Mo-98	1.183E+03	Np-237	8.260E+02
Zr-96	1.172E+03	Ru-104	7.499E+02
Mo-97	1.152E+03	Pu-242	6.191E+02
Ru-102	1.116E+03	Rh-103	5.644E+02

Table 3. Nuclide ID and Weight Ratio Used in the MCNP Calculation

Nuclide ID	Wt%	Nuclide	wt%
92238.60c	97.7	92235.60c	0.821
92236.60c	0.622	94239.60c	0.647
94240.60c	0.288	59141.50c	0.171
42000.60c	0.389	40000.60c	0.434
44101.50c	0.116	42095.50c	0.116
43099.60c	0.116	94241.60c	0.123
40093.50c	0.112	60143.50c	0.109
60145.50c	0.100	93237.60c	8.723E-02
94242.60c	6.538E-02	45103.50c	5.961E-02

나. 연소도 이득적용의 영향

신핵연료에서 생산된 금속전환체를 가상한 경우와 또한 앞에서 결정한 사용후핵연료

금속전환체에 포함된 핵종량을 기준하여 핵임계 분석을 수행하고, 그 결과를 비교하였다. 2x2와 4x4 배열에 대한 신핵연료를 가정한 경우와 연소도 이득을 적용한 경우에 대한 계산결과를 Fig. 2에 나타내었다. 2x2와 4x4 배열의 계산결과는 서로 크게 차이를 보이지 않고, 모두 95 % 신뢰도 오차범위내 들어가는 것으로 나타났으며, 연소도 이득을 적용한 경우에는 모두 미임계한계치(keff=0.95)보다 매우 낮은 값을 갖는 것으로 나타났다. 그러나 신핵연료를 가정한 경우에는 캐니스터 내부공간의 수분 농도가 낮을 경우에는 미임계를 유지하지만, 0.5 g/㎤보다 높을 경우에는 미임계한계치보다 큰값을 보인다. 따라서 신핵연료를 가정한 핵임계분석으로는 정상상태에 대해서도 핵임계 안정성을 보장할 수 없음을 알 수 있다.

다. 가상조건하에서의 핵임계도

정상상태에서 공기중의 수분농도를 0.0 ~ 10 g/㎤까지 변화시키면서 핵임계 계산을 수행하였고, 가상조건으로는 피복관 혹은 랙을 무시한 경우와 랙과 바스켓을 동시에 무시한 경우에 대한 계산을 수행하였다. 2x2 및 4x4 배열에 대한 계산결과를 각각 Figs.3 및 4에 제시하였다. Fig. 3에서 볼 수 있듯이 대부분의 경우에 미임계 한계치이하의 값을 갖고, 단지 랙과 바스켓을 동시에 무시할 때 95 % 신뢰도를 갖는 불확도 범위가 미임계한계치를 넘는 경우가 발생한다. 4x4 배열에 대한 결과인 Fig. 4에서는 2x2배열의 경우와 유사한 경향을 보이지만, 랙과 바스켓을 동시에 무시한 경우에는 2x2 배열보다 더 높은 핵임계값을 갖는 것으로 나타났다.

랙과 바스켓을 무시한 경우, 정밀한 분석을 위하여 앞에서 언급한 95 % 신뢰도를 갖는 계산오차와 핵임계도 계산값을 합하여 최대핵임계도 값을 결정하고, 그 결과를 Fig. 5에 나타내었다. 4x4 배열의 핵임계도가 2x2배열보다 약간 높은 값을 보이고 있으며, 캐니스터 내부공간의 수분농도가 0.70 이상이면 미임계 한계치를 초과하는 것으로 나타났다. 한편 2x2배열의 경우에는 내부공간의 수분농도가 0.77 g/㎤ 이상이면서 미임계한계치를 넘는 것으로 나타났다.

5. 결 론 및 향후계획

기존의 사용후핵연료 저장용기로 개발한 HI-STAR 100 용기를 리모델링하여 금속전환체의 저장에 적합한 저장용기로 가정하고, 이에 대한 핵임계 안전성 분석을 수행하여 다음과 같은 결론을 얻었다. 정상상태인 경우에도 연소도 이득을 적용하지 않으면 핵임계 안전성의 보장이 불가능함을 확인하였고, 연소도 이득을 적용한 경우에는 미임계한계치(keff=0.95)보다 매우 적은 값을 보여 핵임계 안전성이 충분함을 확인할 수 있었다. 저장용기내 금속전환체의 피복관 혹은 랙을 무시한 경우, 핵임계 안전성은 보장되지만, 랙과

바스켓을 동시에 무시한 경우에는 공기중 수분농도가 약 0.7 g/cm^3 보다 높아지면 미임계한계치를 초과한다. 이와 같은 결과를 바탕으로 앞으로 핵임계 안전성을 확보할 수 있는 조건하에서 금속전환체의 최적형태와 배열방법에 대한 연구를 수행할 계획이다.

본연구는 과학기술부의 원자력 연구개발사업의 일환으로 SF특성계량화 기술개발과제에서 수행한 것임.

참 고 문 헌

[1] S.C.Oh, "Analysis of reduced metal ingot properties in LiCl molten salt," Proceedings of Korean Nuclear Society Autumn Meeting, 2001 (2001).

[2] *Topical Safety Analysis Report for the HI-STAR 100 Cask System*, Holtec Report HI-941184, Rev.5, NRC Docket No. 72-1008, September, 1996.

[3] J.S. Lee, "Thermal evaluation of storage cask loaded with metalized spent fuel under the normal transport condtion," To be presented in Korean Nuclear Society Autumn Meeting, 2002 (2002).

[4] Briesmeister, J. F., *MCNP-4B Monte Carlo N-Particle Transport Code System*, CCC-200 (1993).

[5] A.G. Croff, *A User's Manual for the ORIGEN2 Computer Code*, ORNL/TM-7175, Oak Ridge National Laboratory (1980).

[6] S. G. Ro et al., *Development of Advanced Spent Fuel Management Process*, KAERI/TR-994/98, KAERI (1998).

[7] H. S. Shin, S. G. Ro, K. M. Bae, I. S. Kim and Y. J. Shin, "Application of burnup credit for PWR spent fuel storage pool," JAERI-Conf 99-004(part 1), pp. 68-76 (1999).

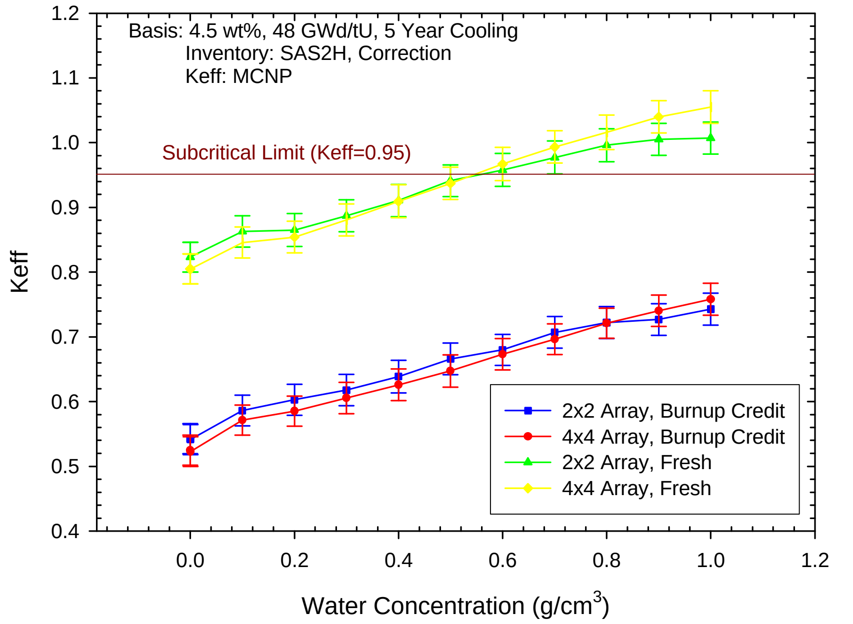

Fig. 2. Comparison of Keff values Based on the Assumption of Fresh Fuel and Burnup Credit.

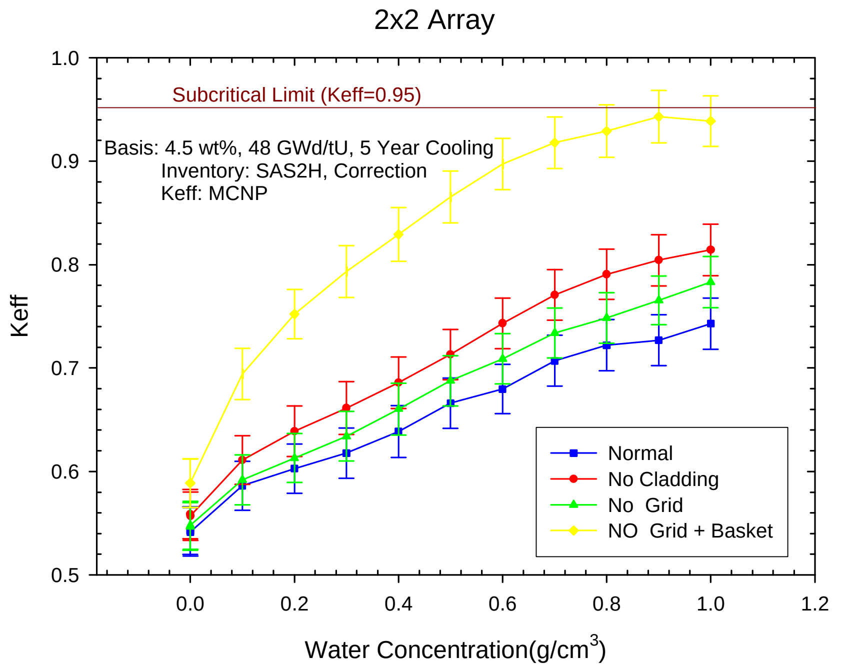

Fig. 3. Keff Values for Hypothetical Assumptions in case of 2x2 Array.

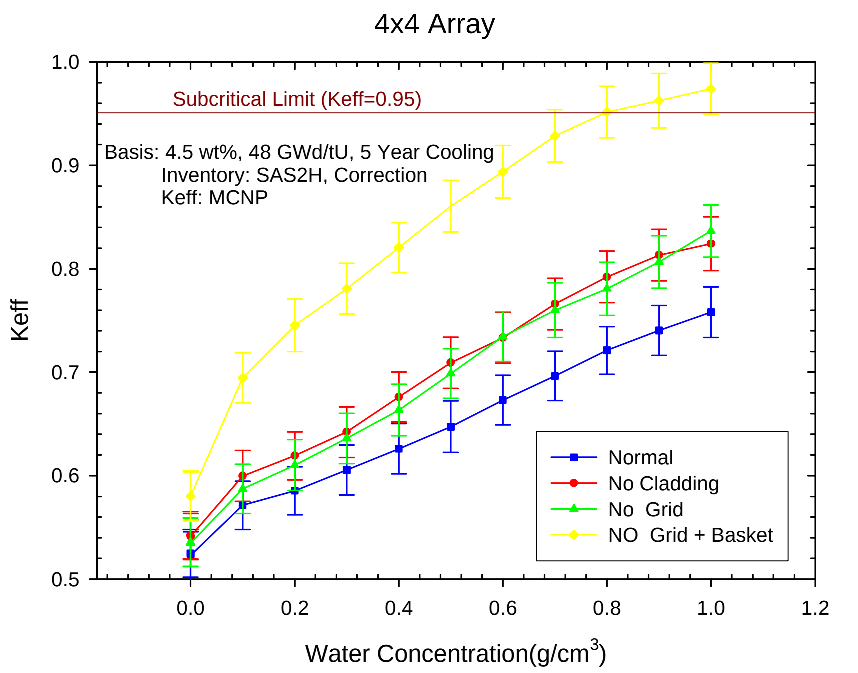

Fig. 4. Keff Values for Hypothetical Assumptions in case of 4x4 Array.

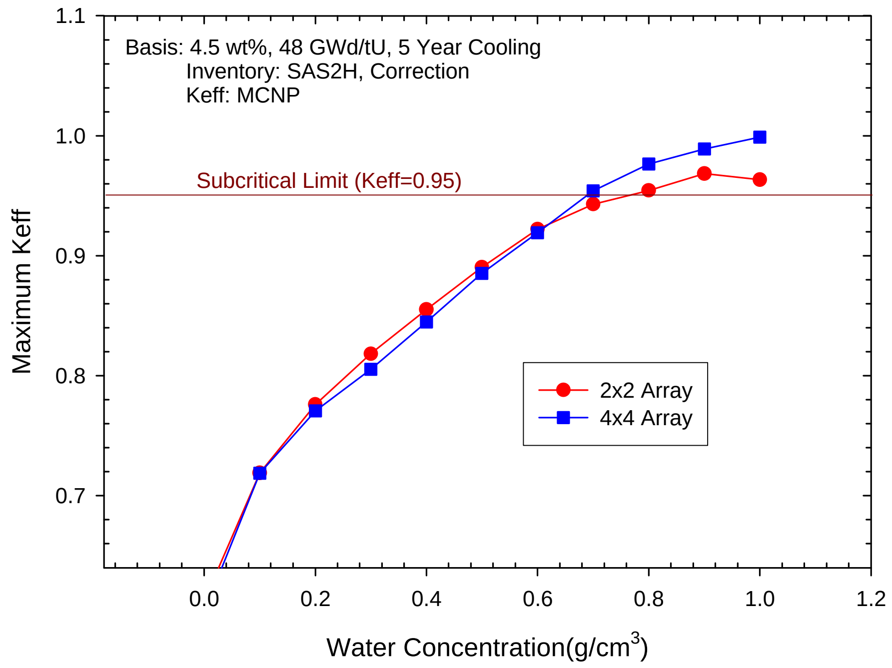

Fig. 5. Maximum Keff for 2x2 and 4x4 Arrays.