

DUPIC 핵연료 제조 공정의 방사능 분석

Radioactivity Analysis of DUPIC Fuel Fabrication Process

신진명, 박장진, 양명승, 이호희

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

DUPIC 핵연료제조공정의 방사능 분석을 하기 위해서는 DUPIC 핵연료제조과정 전·후의 사용후핵연료내 핵종들의 분포 및 방사능, 기체상 폐기물의 방사능, 기체상폐기물의 핵종들의 분포에 관한 분석 자료가 필요하다. 사용후핵연료의 연소도 및 냉각기간 변화에 따른 DUPIC 핵연료 제조과정 전·후의 방사능을 계산하기 위해서 ORIGEN II code를 이용하였다. DUPIC 핵연료제조과정 후 방사능 감소율이 40~51 %까지 감소하였다. 그리고 사용후핵연료의 연소도 및 냉각기간이 증가함에 따라 방사능 감소율이 증가함을 알 수 있었다. 기체상폐기물 중 세슘 및 Ba-137m이 연소도 및 냉각기간 변화에 상관없이 주요 부분을 차지함을 확인하였다.

Abstract

The distribution and radioactivity of nuclide in spent fuels, radioactivity of gaseous wastes and the distribution of gaseous wastes were required for analyzing radioactivity of DUPIC fuel fabrication process. In order to analyze the radioactivity before and after DUPIC fuel fabrication process with variations of burn up and cooling time, ORIGEN II code was used. The activity reduction of spent fuels after DUPIC fuel fabrication process was 40~51 % and increased with increasing burn up and cooling time of spent fuels.

1. 서 론

경수로 원자로에서 연소 후 방출된 사용후핵연료에는 약 1.5 %의 핵분열성 물질이 잔존하고 있어 0.71% U-235를 함유하는 천연 우라늄을 원료로 사용하는 중수로 원자로에서 재사용이 가능하다. 이러한 개념으로부터 출발한 DUPIC(Direct Use of Spent PWR Fuel

In CANDU reactor) 핵연료 주기 기술개발은 경수로 사용후핵연료를 직접 재가공하여 중수로에 다시 사용하고자 하는 자원 재활용 개념의 기술이다.¹⁻³⁾ 현재 DUPIC (Direct Use of Spent PWR Fuel In CANDU reactor) 핵연료 주기기술을 개발하기 위해 실제 사용후핵연료를 이용하여 1999년 4월부터 핫셀에서 DUPIC 핵연료를 제조하고 있다.⁴⁾ DUPIC 핵연료제조공정은 사용후 경수로핵연료의 탈피복, 산화·환원 및 소결과정을 거치게 된다. 산화·환원과정에서는 탈피복된 사용후핵연료 분말의 소결성을 향상시키기 위하여 산화분위기 및 환원분위기에서 각각 약 450 °C 및 700 °C로 처리하게 되며 산화·환원과정을 3 회 반복한다. 소결과정은 제조된 압분체를 고밀화시켜 단위체적당 가능한 많은 양의 핵분열성물질이 포함된 소결체를 제조하기 위하여 수소분위기 1700 °C하에서 수행된다. 한편 DUPIC 핵연료제조공정 중 산화·환원 및 소결과정에서는 휘발성 및 준휘발성 방사성 기체폐기물들이 발생하게 되는데 각 단위 공정에서 발생하는 방사성기체폐기물의 종류와 방사선량은 서로 다르다. DUPIC 핵연료제조공정의 방사능 분석을 하기 위해서는 사용후핵연료의 핵분열 생성물과 악티나이드 성분 및 핵종별 분포, 산화·환원 및 소결 공정에서 방출되는 핵종의 방사능 및 핵종별 분포에 관한 분석 자료가 필요하다. 사용후핵연료의 방사능은 여러 인자들에 의해 결정되는데 크게 연소도와 냉각기간이 주요 인자가 된다. 본 논문에서는 ORIGEN II code를 이용하여 사용후핵연료의 연소도 및 냉각기간 변화에 따른 DUPIC 핵연료 제조공정 전·후의 사용후핵연료의 방사능 및 핵종별 분포를 계산하였다. 또한 산화·환원 및 소결과정에서 발생하는 핵종의 방사능을 계산하여 핵종별 방사능 분포 등을 분석하였다.

2. 사용후핵연료의 방사능 및 조성

사용후핵연료의 방사능은 여러 인자들에 의해 결정되는데 크게 연소도와 냉각기간이 주요 인자가 된다. ORIGEN II code는 핵연료주기에 관련된 계산과 연소도에 따른 핵연료 성분 및 특성변화를 분석하는데 사용된다. 따라서 사용후핵연료의 연소도 34,770 및 44,000 MWD/MTU에서 발생 초기부터 냉각기간 변화에 따른 1톤의 우라늄당 사용후핵연료의 방사능량을 ORIGEN II code를 이용하여 계산하였다. Fig. 1에서 보는 바와 같이 사용후핵연료의 방사능은 냉각기간 5 년 전후에 급격히 감소하고 냉각기간 변화에 따라 지수적으로 감소함을 알 수 있었다. Fig. 2는 연소도는 34,770 MWD/MTU 및 44,000 MWD/MTU 이고 냉각기간은 13 년인 사용후핵연료를 1 kg UO₂ 기준으로 주 방사선원을 분석한 결과, Sr-90 및 그 자핵종인 Y-90, Cs 그룹(Cs-134, Cs-137) 및 Cs-137의 자핵종인 Ba-137m, Pu 그룹(Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Pu-242), Kr-85, Eu 그룹(Eu-154, Eu-155) 이었다. 또한 이들 핵종별 방사능 분포 및 반감기를 Table 1에 나타내었다.

3. DUPIC 핵연료 제조공정 및 조업조건

DUPIC 핵연료 산화/환원 공정 및 소결공정의 공정도는 Fig. 3에 제시하였으며 조업조건은 다음과 같다.⁴⁾

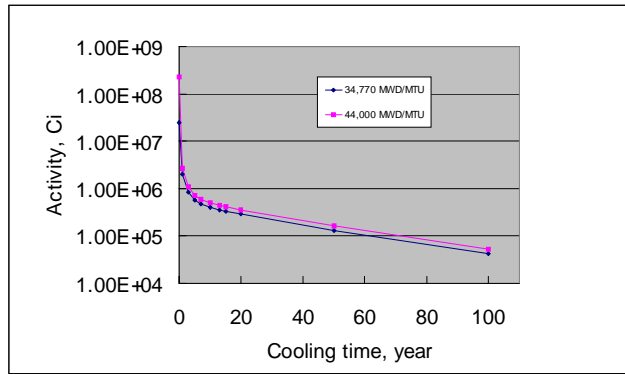


Fig. 1. Activity of spent PWR fuels.

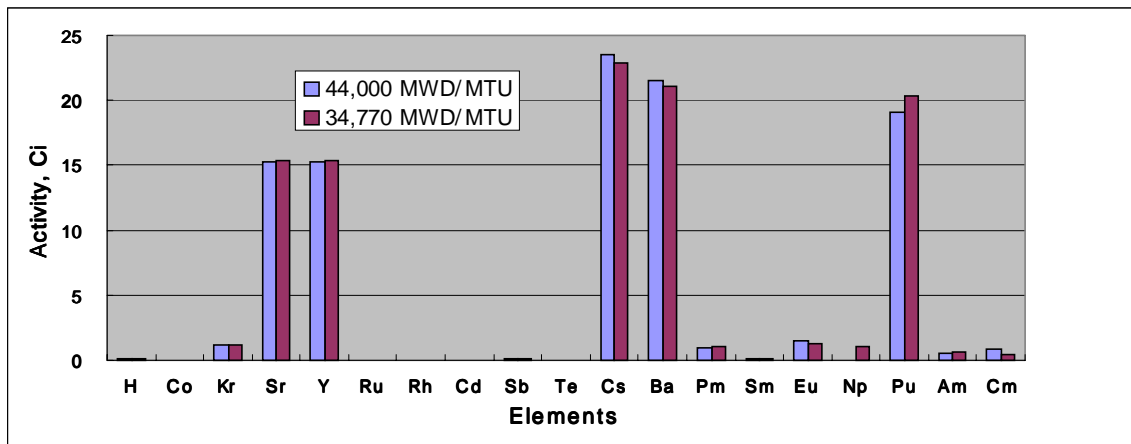


Fig. 2. Activity of each element in spent PWR fuels.

● 산화/환원 : 산화된 분말을 산화/환원로에 장전한 후 3 회에 걸쳐 산화/환원 운전을 반복하여 재소결 가능한 DUPIC 분말을 제조한다. 이때 처리작업 내용은 상온에서 450 °C로 승온-산화(1)-승온-환원(1)-감온-산화(2)-승온-환원(2)-감온-산화(3)-승온-환원(3)의 3 cycle의 반복처리를 한 다음 분말의 산화피막 형성을 위해 80 °C로 감온하여 Ar-2%O₂ 분위기에서 4 시간 유지한다. 각 단계별 공정조건은 다음과 같다.

- 산화 : 450 °C, 5 시간, 공기분위기(유량 : 3 L/min)
 - 환원 : 700 °C, 3 시간, Ar-4%H₂ 분위기(유량 : 3 L/min)
 - passivation : 80 °C, 4 시간, Ar-2%O₂ 분위기(유량 : 3 L/min)
- 산화·환원로 승온 및 감온속도 : 4 °C/min

● 미분쇄(milling) : 분말의 조성을 균일하게 하고 입자크기를 작게 하기 위하여 수평식 볼밀 분쇄기에서 산화/환원된 분말을 450 rpm으로 10 분간씩 3 회 분쇄한다.

Table 1. Activity and distribution of each element in spent PWR fuels

Element	34,770 MWD/MTU		44,000 MWD/MTU		Half-life
	Activity, Ci	Activity, %	Activity, Ci	Activity, %	
H	3.52E-01	0.11	4.28E-01	0.11	H-3 : 12.32 yr(β^-)
Co	2.57E-02	0.01	3.23E-02	0.01	Co-60 : 5.27 yr(β^- , γ)
Kr	3.60E+00	1.14	4.45E+00	1.13	Kr-85 ; 10.76 yr(β^- , γ)
Sr	4.86E+01	15.36	5.97E+01	15.21	Sr-90 : 28.0 yr (β^-)
Y	4.86E+01	15.37	5.97E+01	15.21	Y-90 : 64.5 hr(β^- (γ))
Ru	5.69E-02	0.02	7.88E-02	0.02	Ru-106 : 1.0yr (β^-)
Rh	5.69E-02	0.02	7.89E-02	0.02	Rh-106 : 30 sec(β^- , γ)
Cd	2.73E-02	0.01	3.86E-02	0.01	Cd-109 : (ϵ c), Cd-113m : 9E+15 yr(β^-)
Sb	4.64E-01	0.15	6.06E-01	0.15	Sb-125 : 2.6 yr(β^- , γ)
Te	1.13E-01	0.04	1.48E-01	0.04	Te-125m : 57.40 d
Cs	7.23E+01	22.84	9.22E+01	23.50	Cs-134 : 2.1 yr(β^- , γ), Cs-137 : 30 yr(β^- (γ))
Ba	6.67E+01	21.06	8.45E+01	21.51	Ba-137m : 2.6 min
Pm	3.51E+00	1.11	3.62E+00	0.92	Pm-147 : 2.65 yr(β^- ,(γ))
Sm	3.01E-01	0.09	3.45E-01	0.09	Sm-151 : 90 yr
Eu	4.00E+00	1.26	6.01E+00	1.53	Eu-154 : 8.6 yr(β^- , γ), Eu-155 : 4.9 yr(β^- , γ)
Np	1.88E-02	0.01	3.33E-02	0.01	Np-239 : 2.35 d(β^- , γ)
Pu	6.44E+01	20.34	7.49E+01	19.07	Pu-239 : 2.4 x10 ⁴ yr (α , γ), Pu-240 : 6,600 yr (α (γ))
Am	1.95E+00	0.62	2.20E+00	0.56	Am-241 : 458 yr(α)
Cm	1.46E+00	0.46	3.52E+00	0.90	Cm-242 : 163 d (α , γ)
	3.17E+02	100.0	3.93E+02	100.00	

- 예비압분 및 조립(granulation) : 성형다이에 분말의 충전율을 높이기 위해 분말을 400 kg/cm²으로 예비 성형한 후, 성형체를 #12(1 mm) sieve에 놓고 분쇄, 통과시켜 분말을 과립화한다. 이때 예비 압분체의 밀도는 6.00~6.17 g/cm³ 이다.

- 최종압분 : 조립화 분말에 0.2 wt%의 윤활제(zinc stearate)를 첨가하고 polyethylene 병에 담은 후 5 분 정도 흔들여 균일하게 혼합한다. 최종압분은 800, 1200, 1600 kg/cm² 의 3 가지 조건의 가압력으로 행한다. 최종압분 후 압분체 밀도는 다음과 같다.

- 6.35~6.40 g/cm³ at 800 kg/cm²
- 6.54~6.58 g/cm³ at 1200 kg/cm²
- 6.68~6.71 g/cm³ at 1600 kg/cm²

- 탈왁스 : 원활한 압분을 위해 첨가된 윤활제(zinc stearate)를 제거하기 위해 최종 압분된 압분체를 탈왁스로에 넣고 환원성 분위기(Ar-4%H₂)하 800 °C에서 2 시간 가열하여 탈왁스 처리한다. 이때 가온 및 냉각속도는 4 °C/min 이다.

- 소결 : 탈왁스 처리한 압분체를 수소의 환원성 분위기(Ar-4%H₂)하 1,700 °C에서 4 시간동안 소결한다. 소결온도인 1,700 °C까지는 분당 5 °C의 속도로 가열하며, 냉각도 분당 5 °C의 속도로 150 °C까지 냉각한다.

- 소결체 연마 : 제조된 소결체를 무심연마기에서 건식연마하여 소결체 직경 및 표면거칠기를 조정한다.
- 소결체 장전길이 조정 : 완성된 소결체들을 일렬로 나열하여 피복관에 장전할 길이로 조정한다.

4. 핵분열생성물의 예상 누출율

DUPIC 핵연료 제조과정 중 산화·환원로 또는 소결로에서 방출되는 배기체에는 소량의 미립자, 휘발성 및 준휘발성 방사성핵종 등이 포함되어 있다. DUPIC 핵연료 제조과정은 새로운 공정이라 할 수 있기 때문에, DUPIC 핵연료 공정중의 핵분열 생성물의 누출율에 대한 구체적인 실험 분석자료가 매우 부족한 실정이다. 그러나 1950년대 말부터 1960년대 중반에 걸쳐 미국 Atomics International사에서 시도했던 AIROX(Atomics International Reduction Oxidation) 공정은 OREOX와 유사한 공정으로 볼 수 있다. 따라서 AIROX 공정에서 핵연료내 핵분열생성물의 누출율에 관한 자료, 국제공동 연구중인 캐나다 AECL 관련 자료, 경희대학교 박광현 등의 핵연료내 핵분열생성물의 형태 및 거동연구 자료 및 핵분열생성물의 끓는점(b.p), 녹는점(m.p), 증기압 등의 물성치등을 고려하여 Table 2에 기체상 핵분열생성물의 예상 누출율을 결정하였다.⁵⁻⁷⁾

Table 2에 제시된 바와 같이 산화·환원 및 소결과정 중에 H-3, He, Br, C-14, Xe, Kr, I, Cs, Se, Sb, Rb, Te 은 100 %의 누출율, Cd은 75 %의 누출율, Ru은 2 %의 누출율, Mo 및 Tc은 10 %의 누출율로 예상하였다. 이에 대한 좀 더 정확한 자료는 향후 핵종 누출실험을 거쳐 확보할 필요가 있다.

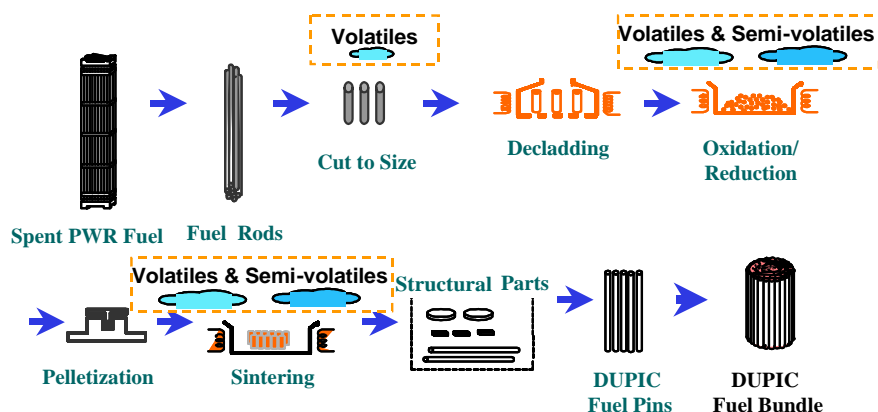


Fig. 3. DUPIC fuel fabrication process.

Table 2. Expected release rate of fission product during OREOX and sintering process

Element	Release Rate (%)		Remarks
	OREOX	Sintering	
H	100	-	약 50%는 피복관과 결합되어 있음
He	100	-	
Br	100	-	
Kr	100	-	
I	40	60	
Xe	100	-	
Ru	2	-	
Cs	5	95	
Tc	10	-	
Cd	-	75	
Mo	10	-	
Se	10	90	
Sb	-	100	
Rb	5	95	
Te	10	90	
C	100	-	
Ag	10	-	

5. 사용후핵연료의 방사능 감소율

Table 2의 예상 누출율을 고려하여 사용후핵연료의 연소도 및 냉각기간 변화에 따른 DUPIC 핵연료 제조과정 전·후의 사용후핵연료의 방사능 감소율을 Fig. 4에 나타내었다. 핵연료의 방사능량 계산에서 Cs-137(모핵종)과 Ba-137m(자핵종)의 영년 평형(secular equilibrium)을 고려하였다. 따라서 건식공정중 Cs이 제거되면 Ba-137m도 곧 붕괴되어 없어지므로 동일한 양의 Ba-137m도 제거되는 효과가 있었다. Fig. 4에서 제시된 바와 사용후핵연료의 연소도 및 냉각기간이 증가함에 따라 방사능 감소율이 증가하며 방사능 감소율이 40~51 % 임을 확인하였다. 따라서, 연소도 및 냉각기간 변화에 따라 DUPIC 핵연료 제조과정 후 제조된 DUPIC 핵연료의 예상 activity를 Fig. 5에 나타내었다. Fig. 5에 제시된 것처럼 사용후핵연료의 냉각기간과 연소도가 증가함에 따라 DUPIC 핵연료의 activity가 감소함을 확인하였다.

6. 기체상 폐기물의 조성

Table 2의 예상 누출율을 고려하여 연소도 및 냉각기간 변화에 따른 기체상 폐기물의 조성을 Fig. 6에 나타내었다. Fig. 6에 제시된 것처럼 연소도 및 냉각기간 변화에 무관하게 Cs 및 Ba137m이 주요 부분을 차지함을 알 수 있었다. 반감기가 1년인 Ru-106의 경우 냉각기간 5 년일 때 루테튬이 약 7 %을 차지하고 있었고 냉각기간 5 년 이상의 경우 냉각기간이 증가함에 따라 상당히 감소되어 냉각기간이 길어짐에 따라 차지하는 비율

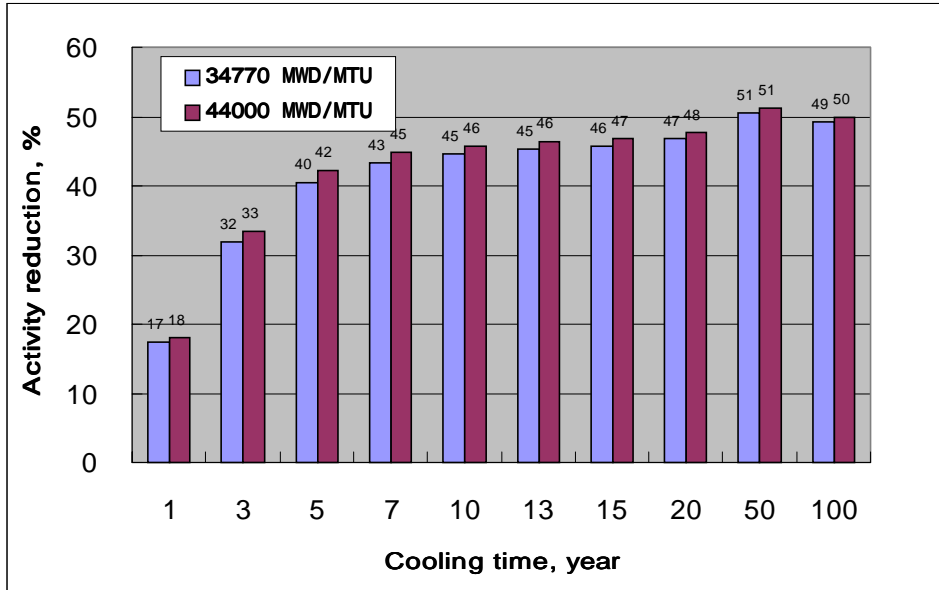


Fig. 4. Expected activity reduction of spent PWR fuels after DUPIC fuel fabrication process.

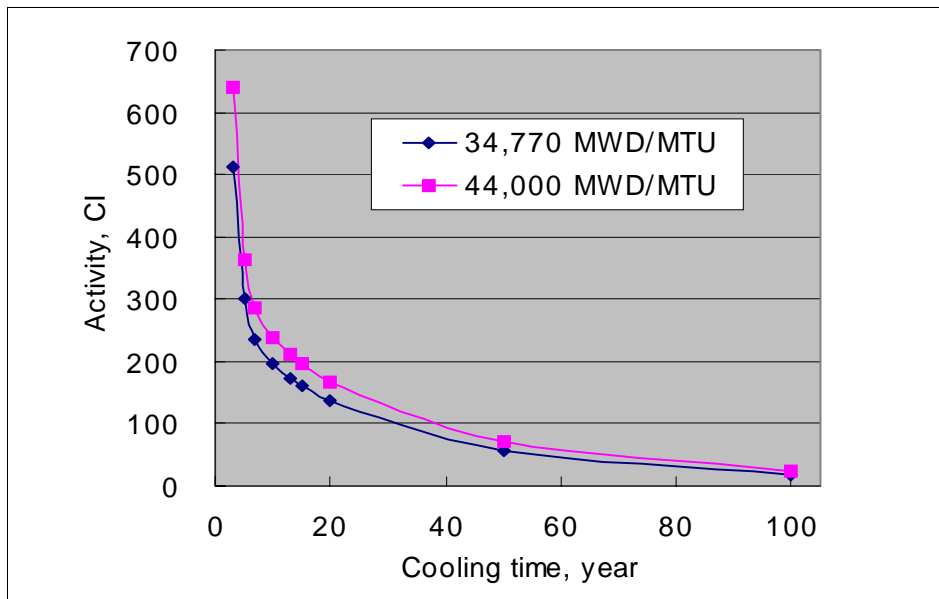


Fig. 5. Expected activity of DUPIC fuel according to burn-up and cooling time.

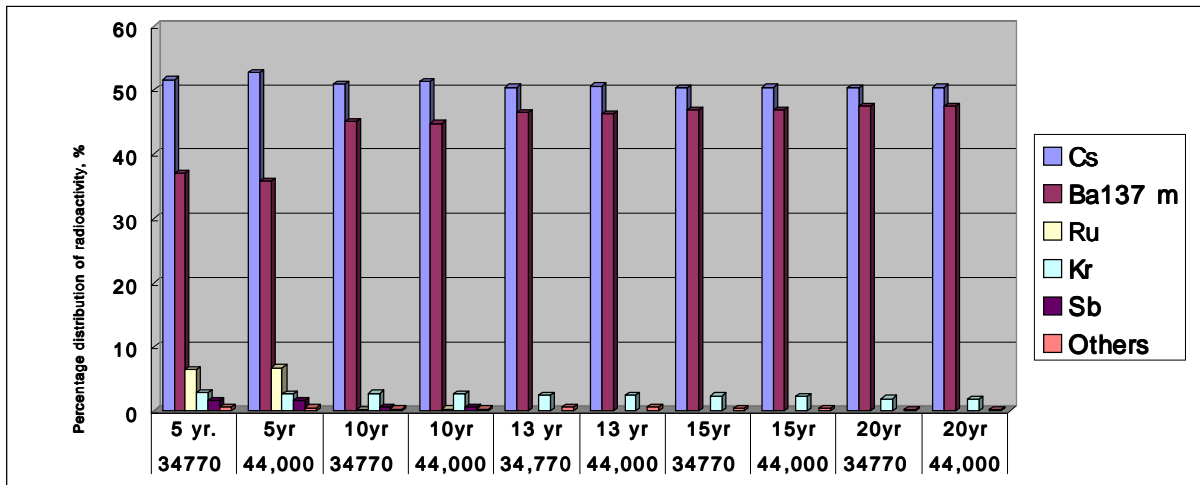


Fig. 6. The percentage distribution of gaseous waste generated from DUPIC fuel fabrication process according to burn up and cooling time.

이 급격히 감소하였다. 크립톤의 경우 연소도 및 냉각기간 변화에 상관없이 전체 방사선량 중 차지하는 비율이 약 2.5 % 정도로 일정 부분을 차지하고 있었다.

7. 배기체처리계통의 설계

DUPIC 핵연료 제조공정 중 산화·환원과 소결 공정중에 발생하는 핵종제거를 위한 배기체 처리계통도는 Fig. 7 및 Fig. 8에 제시한 바와 같다. DUPIC 핵연료제조공정 중 산화·환원 공정중에 발생하는 핵종제거를 위한 배기체 처리계통도는 Fig. 7에 제시한 바와 같으며 미립자제거장치인 SUS로 된 metal wool을 통하여 우선 부유입자를 제거하고, 다음 요오드 제거장치로 CH₃I 와 I₂를 silver impregnated zeolite로 포집하고 이어 삼중수소 흡수장치로 molecular sieve 5A로 HTO를 제거하도록 하였다. 최종적으로 HEPA filter를 설치하여 미처리된 배기체를 처리한 후 핫셀의 주환기계통으로 방출한다. DUPIC 핵연료제조공정 중 소결 공정중에 발생하는 핵종제거를 위한 배기체 처리계통도는 Fig. 8에 제시한 바와 같으며 석탄회 세라믹필터를 이용한 세습포집장치로 방사선적 위험도가 높고 처리온도가 높은 세습을 처리한다. 다음 은침착제 제올라이트를 사용한 요오드제거장치로 배기가스중 요오드화합물을 제거한 후 이어 온도구배관(Thermal Gradient Tube, TGT)을 이용하여 준휘발성핵종을 응축시킨 후 최종적으로 HEPA filter를 설치하여 미처리된 배기체를 처리한 후 핫셀의 주환기계통으로 방출하도록 설계하였다.

8. 결론

1. 사용후핵연료의 연소도 및 냉각기간 변화에 따른 DUPIC 핵연료제조공정 전·후의 방사능 감소율은 40~51 % 이었고 사용후핵연료의 연소도 및 냉각기간이 증가함에 따라 방사능 감소율이 증가하였다.

2. DUPIC 핵연료제조공정의 산화·환원 및 소결공정 중에서 누출되는 기체상폐기물의 분포는 연소도 및 냉각기간 변화에 상관없이 세슘 및 Ba-137m이 주요 부분을 차지함을 확인하였다.

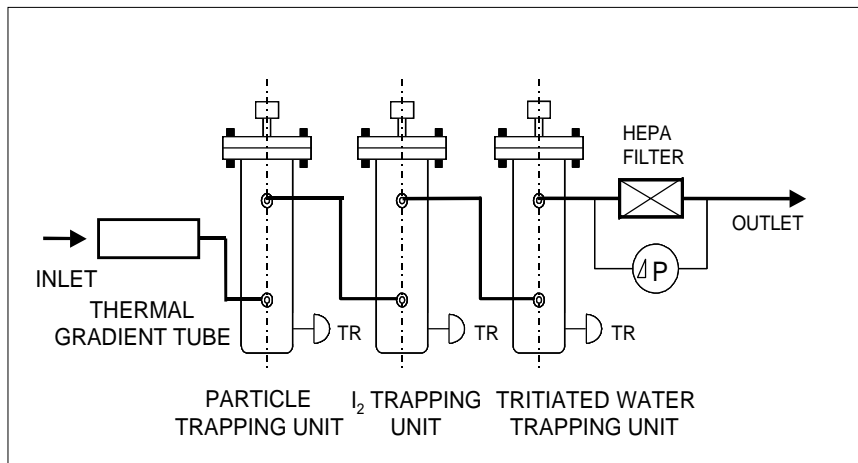


Fig. 7. Off-gas treatment system for OREOX furnace at IMEF.

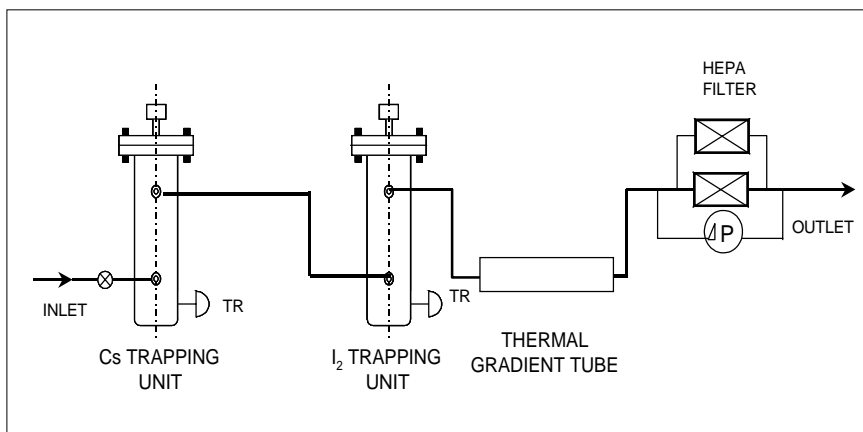


Fig. 8. Off-gas treatment system for sintering furnace at IMEF.

참고문헌

1. J.S. Lee et al., "Burn spent PWR again in CANDU reactors by DUPIC", GLOBAL' 95, Sept. 1995, Versailles
2. H.S.Park et al., "The DUPIC Fuel Cycle Alternative: Status & Perspective ", Proceedings of the 10th PBNC, 1996, Kobe, Japan
3. M.S.Yang et al., "Prospect and Challenges of DUPIC Development in Korea", Proceedings of the 11th PBNC, 1998, Banf, Canada
4. 양명승 등, DUPIC 핵연료제조 및 공정기술개발, 한국원자력연구소, KAERI/RR-2022/99, 2000
5. A. Chad et al., Environmental and Economic Performance of Direct Use of PWR Spent Fuel IN candu Reactors, Department of Nuclear Engineering Massachusetts Institute of Technology, MIT-NFC-TR-014

6. Conceptual Design and Cost Evaluation of the DUPIC Fuel Fabrication Facility
Final Report, SCIENTECH, Inc., and Gamma Engineering Corp., SCIECOM-219-96,
1996
7. 박광현 등, 핵연료내 핵분열생성물의 형태 및 거동연구, KAERI/CM-062 /95,
한국원자력연구소, 1995

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발 사업의 일환으로 수행되었습니다.