

KTF설계안의 핵변환 특성연구
A Study of Transmutation Characteristics of KTF Design

배강목, 김명현
경희대학교

경기도 용인시 기흥읍 서천리 1

요 약

Seed와 blanket을 사용하는 KTF 설계안을 이용하여 APR-1400을 대상으로 노심설계가 가능함을 보였다. 이러한 KTF 설계안의 핵변환특성을 평가하기 위하여 KTF 노심과 주기길이가 같도록 10% TRU를 혼합하여 설계하였으며, TRU의 조성은 1000 MWe 원자로에서 방출후 10년의 냉각 기간을 적용하여 계산하였다. D_j , T_{EX} 와 SR 지수를 사용하여 KTF-TRU의 핵변환 특성을 평가하였다. KTF 노심은 seed의 경우 79.5 MWd/kgHM, blanket의 경우 94.6 MWd/kgHM의 매우 긴 연소도를 가지므로 KTF-TRU 개념을 적용하면 노심내에 TRU의 장전 시간을 늘여 핵변환 가능 시간을 늘일 수 있다. 계산결과 KTF-TRU 설계안은 Pu-239, Am-241, Cm-243에 대하여 월등한 핵변환 능력을 보였으며, 또한 소듐 냉각 고속로보다 SR 지수값이 크게 나타났다. 대부분의 짝수 MA들은 연소도에 따라 증가하는 경향을 보이나 KTF 설계안의 열화중성자 스펙트럼을 이용하면 TRU의 양을 줄일 수 있었다. 또한 KTF-TRU 설계안은 핵확산저항성이 증가하는 것으로 나타났다.

Abstract

A thorium-based seed and blanket design concept, KTF design, had been proposed and successfully applied for a Korea Next Generation Reactor(KNGR), APR-1400. In order to evaluate transmutation capability of a thorium-based KTF concept, U/Zr seed fuel mixed with 10% TRU which come from 1,000 MWe power reactor after 10 years decay was proposed to have same fuel cycle length and analyzed by transmutation indices such as D_j , T_{EX} and SR. Because KTF core had an ultra-long cycle burnup; average burnup of seed was 79.5 MWd/kgHM and blanket was 94.6 MWd/kgHM, residence time of TRU in the core could be extended than conventional PWR enough for transmutation when TRU is mixed in seed fuel. KTF-TRU shows an excellent transmutation capability for fissile MAs, especially Pu-239, Am-241 and Cm-243. The result of SR index also shows that KTF-TRU is more profitable for transmutation of TRU than Na cooled FR. Even isotopes of MAs were cumulated in the core during the burnup, however, KTF-TRU could reduce the amount of TRU in spent fuel by using well-thermalized neutron spectrum. Proliferation resistance potential of KTF-TRU is slightly increased.

1. 서론

원자력발전소에서 방출되는 사용후 핵연료는 원자력을 이용한 전력생산을 통하여 인류에 이로움을 줌과 동시에 고방사능을 방출하며 핵무기 사용의 가능성을 가진 양면성이 있다. 특히 우리나라의 경우 사용후핵연료 처리문제에 있어 정책적으로 뚜렷한 방향이 설정되어 있지 않은 상태이고 향후 사용후핵연료 처리문제는 수년내에 뜨거운 감자로 부상할 수 있다. 외국의 경우는 처분장을 운영하기도 하지만, Accelerator Driven System(ADS)이나 Fast Breeder Reactor(FBR)을 통한 핵변환으로 사용후핵연료 처리 문제를 연구하고 있으며, 국내에서도 한국원자력연구소에서는 HYPER 시스템을 통하여 가속기구동 미임계 원자로를 이용한 핵변환 연구가 구체적으로 수행중이다. 또한 개념적으로는 고속로에서 TRU 소모를 위한 연구들도 수행되고 있다. 그러나 ADS나 고속로 개념은 아직 개념적인 연구단계에 있으며, 이 시설들을 이용하여 사용후핵연료 문제를 처리할 수 있는 시기는 향후 십수년 이상이 지나야 가능할 것으로 예상된다. 따라서 두 종류의 시설을 이용하는 핵변환에 앞서 원천기술이 개발되어 있는 가압경수로를 이용하여 핵변환을 이용하는 방안이 필요하다.

사용후핵연료 중에는 Fission Product(FP)와 Trans-Uranic(TRU) 등이 존재하며 원료로 사용하는 우라늄 핵종이 포함되어 있다. 이 중 FP는 수백년이 경과하면 모두 붕괴하여 안정핵종으로 변환되므로 장기적으로 TRU가 문제가 된다. TRU는 플루토늄 핵종과 Minor Actinides(MAs)로 구성되는데 플루토늄을 따로 구분하여 처리하는 문제는 핵무기로의 전용 가능성을 포함하고 있기 때문에 주로 TRU의 핵변환을 고려하는 경우가 많다. 이러한 TRU를 핵변환 시키기 위한 연구중에서는 고속중성자 영역보다 well thermalized neutron field가 유리하다는 연구자료가 있다^[1]. 이는 동일한 플루엔스내에서의 제한조건을 가정하고 있지만, 실제로 MA들은 고속중성자에너지 영역에서 η 값이 크기 때문에 고속에너지의 중성자를 이용한 핵변환이 유리하다. 그러나 TRU에는 플루토늄의 비율이 크고 이 플루토늄 동위원소는 열중성자에 의한 핵분열 단면적이 크기 때문에 TRU 전체를 보아서는 열중성자 영역을 이용하는 것이 유리하다. 또한 MAs에는 일부 핵종을 제외하고 핵분열 단면적이 높은 핵종이 일부 있어서 열중성자 영역을 이용하게 되면 TRU의 핵변환은 고속에너지 영역보다 유리할 것으로 판단된다. 본 연구에서는 이러한 열중성자 에너지 영역을 사용하는 방안을 연구하였으며, KTF 설계안^[2]을 바탕으로 하였다. KTF 설계안은 seed와 blanket으로 구분되어 있으며, seed는 U/Zr 금속핵연료를 사용하고 blanket은 ThO₂+UO₂를 사용한다. KTF설계안은 핵변환에 대하여 두가지 장점을 가지고 있는데, 첫째는 seed의 경우 금속핵연료를 사용하여 M/F ratio가 매우 커서 열중성자를 이용한 TRU 핵변환에 유리하며, 둘째로는 18개월 주기로 설계되어 연소도가 매우 높기 때문에 TRU의 장전시간을 늘여 핵변환을 높일 수 있는 장점이 있다. 이러한 개념을 바탕으로 본 연구에서는 KTF 설계안을 이용하여 TRU 핵변환의 가능성을 판단해

보고, 기존 원자로와 핵변환 성능지수를 통한 비교를 수행하였으며, KTF 설계안의 핵변환 특성을 평가하였다.

2. 핵연료집합체 설계방법

KTF설계안은 이미 APR-1400원자로를 대상으로 한 노심설계를 통하여 사용가능성을 검토하였으며, 토륨핵연료 사용방안은 충분히 가능성이 있음을 보였다.^[3] KTF는 두 가지 개념의 핵연료집합체로 구성되며, 씨드 핵연료집합체는 U/Zr 금속핵연료로 블랭킷 핵연료집합체에 중성자를 제공하는 역할을 담당하며, 블랭킷은 UO_2 와 ThO_2 의 혼합물로 구성되며 씨드에서 제공하는 중성자를 Th-232가 흡수하여 U-233으로 핵변환되어 핵분열 물질을 생성하게 되고 U-233은 블랭킷에서의 핵분열을 담당한다. 이때 seed는 blanket에 중성자를 공급하기 위해 높은 농축도의 우라늄을 사용하므로 경제성을 높이기 위하여는 P/D 비율을 크게 설계하여야 하며, 이는 본 연구에서 관심을 가지는 well-thermalized neutron 환경을 제공해 줄 수 있다. Blanket 핵연료집합체는 seed와 반대로 Th-232의 핵변환이 주 목적이므로 중성자 스펙트럼은 PWR보다 약간 경화시킬수록 핵변환율이 높아진다. 이는 Th-232의 공명영역에서 중성자 흡수를 증가시키는 방안이 열중성자 영역을 이용하는 방안보다 유리하기 때문이다. TRU의 조성은 우리나라 표준형 원전인 영광3/4호기 핵연료집합체에 대하여 42 MWd/MTU 연소도까지 연소시킨후 10년의 냉각기간이 지났을 때의 조성으로 사용하였다. TRU 장전량은 KTF 핵연료와 동일한 주기길이를 갖도록 선형 반응도 모델에서 B1 지점을 일치시켰다. 10% TRU를 장전한 KTF-TRU 모델은 그림 1에 나타내었다. Seed와 blanket의 연소도가 기존 PWR보다 매우 높기 때문에 두 핵연료집합체에 TRU를 장전하는 방안을 고려할 수 있는데, seed의 경우 매 3주기(4.5년)마다 교체되고 blanket은 11주기(16.5년)마다 교체되므로 blanket 보다는 seed에 장전하는 방안이 유리할 것으로 판단된다. Seed에 10%를 장전한 경우 핵연료 집합체내에서 TRU의 변화과정을 그림 2와 3에 나타내었다. Pu-239와 Np-237, Am-241 핵종의 핵변환이 뚜렷하게 나타남을 볼 수 있으며 나머지 TRU 핵종들은 변화가 미미하거나 증가하는 경향을 보였다.

3. 핵변환을 평가방법

3.1 핵변환 성능평가 지수이용

핵변환 성능을 평가하기 위해서 정량화된 핵변환을 평가지수를 도입하였다. 핵변환을 평가지수는 복잡한 MAs의 반응들, 예를 들어, 핵분열에 의한 연소사슬, 중성자 흡수 및 붕괴 등을 시간중속으로 동시에 고려하는 것은 매우 복잡하면서도 어렵다. 따라서 대부분의 지수들은 목적하는 특성에 맞게 단순화 하여 평가하고 있다. 본 연구에서는 3가지 지수를 사용하여 핵

변환 성능을 평가하였으며, 각각의 지수는 아래와 같다.

D-value는 Salvatores^[4]에 의해 제안된 지수로 임의의 핵종이 붕괴사슬의 최종목적지까지 도달하는데 필요한 중성자의 소모량을 계산한다. D-value에 대한 지수는 아래와 같은 식으로 정의된다.

$$D_j = \sum_{J_1} P_{J \rightarrow J_1} \{R_{J_1} + \sum_{J_2} P_{J_1 \rightarrow J_2} \times [R_{J_2} + \sum_{J_3} P_{J_2 \rightarrow J_3} (\dots)]\}$$

$$\text{where, } P_{J,X} = \frac{\sigma_X \phi}{(\sigma_c + \sigma_f + \sigma_{2n})\phi + \lambda_d} \quad (X = c, f, \text{ or } 2n)$$

$P_{J_1 \rightarrow J_2}$ 는 핵종 J_1 에서 J_2 로 핵변환될 확률이고 R은 반응형태에 따른 중성자 생성 및 소모의 정도를 나타낸다. R값은 중성자 흡수시 1, 붕괴시 0, 핵분열시 $1-\nu$, (n,2n) 반응시 -1이 부여되며 D-value는 작은값을 가질수록 핵변환율이 좋음을 의미하여 중성자 소모율이 작음을 뜻한다. 다른 핵변환 성능평가 지수로 mukaiyama에 의해 제안된 effective fission half life time(T_{EFHL})^[5]을 들 수 있다. 이 지수는 임의의 핵종과 그의 딸핵종이 핵분열 반응에 의하여 초기 장전량의 반으로 줄어드는데 필요한 반감기로 정의된다. 그러나 T_{EFHL} 은 fission 반응에 의한 영향만 평가하므로 D-value와 의미상 차이를 보인다. 따라서 T_{EFHL} 을 개선한 extended effective fission half life time(T_{EX})^[6]을 적용하여 핵변환 성능을 평가하였다. 이 지수는 딸핵종의 붕괴를 포함한 것으로 아래와 같이 정의된다.

$$T_{\text{EX}} = \frac{\ln 2}{\sigma_f^i \phi + \sum_j f_j \sigma_c^i \frac{\sigma_j^j \phi}{\sigma_i^j \phi + \lambda} \phi + \sum_k \lambda_i^{i \rightarrow k} \frac{\sigma_f^k \phi}{\sigma_i^k \phi + \lambda}}$$

T_{EFHL} 과 개선된 T_{EX} 지수를 D-value와 비교한 결과 핵변환 능력을 표현하는데 있어서 비슷한 경향을 가지는 것으로 평가되었다.^[6] 특히, T_{EX} 결과는 딸핵종의 붕괴를 고려한 결과 D-value에 더 근접한 값으로 표현되었다.

마지막으로 Support Ratio(SR) 지수를 사용하였는데 이 지수는 매우 간단하게 계산할 수 있다. 연소도 초기에 장전하는 TRU양과 방출핵연료에 존재하는 TRU양의 질량차이로 계산할 수 있으며, 계산식은 아래와 같다.

$$SR = \frac{\text{Decreased TRU Mass during 1yr at Transmuter}}{\text{Produced TRU Mass during 1GWe Production at PWR}}$$

이 지수는 핵종별 핵변환 특성보다 원자로 형태별 특성을 비교하는데 사용한다. 이상의 세 가지 지수를 바탕으로 핵변환 특성을 평가하였으며, 상호비교를 위하여 각각의 지수값은 최대치와 최소값이 1과 -1 사이에 존재하는 값으로 표준화하였다. 표 1과 2는 각 설계안별 핵변환율을 MA 핵종에 대하여 평가한 결과이다. 결과비교를 위하여 두개의 고속로 설계안값과 비교하였으며, 핵변환 성능은 FR에서 가장 우수하게 나타났고, 같은 PWR 조건에서는 KTF-TRU가 핵변환 성능이 조금 유리하게 나타났다. 위의 세가지 지수값을 계산하는데 있어서 가장 큰 영향을 미치는 요인은 플럭스값이다. FR에서는 높은 플럭스 값으로 모든 지수 계산 결과가 우수하게 나타났고, PWR에서는 플럭스값이 상대적으로 낮아 작게 나타났다.

3.2 TRU Isotopic Comparison

TRU 핵종들의 주기초 장전량 대비 주기말 존재량의 비를 이용하여 핵변환된 양을 계산하여 평가하였다. 이는 각 핵종별로 연소도에 따른 변화를 알아보기 위한 것이다. 계산 자료는 18개월 주기길이를 갖기 위하여 APR-1400의 경우는 52 MWd/kgHM, KTF와 KTF-TRU의 경우 79.5 MWd/kgHM만큼 연소시킨 후의 핵연료내 장전량을 계산하여 비교하였다. 계산식은 다음과 같다.

$$\text{Net Isotope Generation Rate} = \frac{M_F^j - M_I^j}{\text{Power Generation}}$$

where, j= isotope

M_F : Final Isotope Mass

M_I : Initial Isotope Mass

Power Generation [MWe-yr]

플루토늄 핵종에 대한 계산결과는 그림 4와 같다. KTF-TRU의 경우 seed에서 well-thermalized neutron spectrum을 갖고, 초기 10%의 TRU 장전량이 있어 상대적으로 높은 소모율을 보인다. KTF-TRU 노심의 경우 플루토늄중 Pu-239와 Pu-241 핵종의 비율이 약 55.5%를 차지하는데 이값은 PWR에서의 비율보다 상당히 낮은 값으로 핵확산 저항성 측면에서도 유리하다. 그림 5는 MAs에 대한 핵변환 성능을 나타낸다. 계산결과 Np-237과 Am-241 핵종은 장전량 대비 소모량이 매우 크게 나타났고 이로 인해 전체 MAs는 장전량 대비 방출량이 큰 폭의 감소를 보였다. 이는 두핵종의 높은 열중성자에 대한 핵분열 단면적을 갖기 때문이다. 특이하게도 Cm-244 핵종은 큰폭의 증가를 나타내었는데 이는 플럭스가 높은 경우 Am-243 핵종의 생성이 증가하는 현상을 보인다고 알려져 있다. 즉 Am-242m으로부터

Am-243의 생성은 낮은 플럭스의 경우 4% 정도이나 높은 플럭스 조건에서는 53%라고 알려져 있으며^[7] 이로 인해 Am-243의 생성량이 증가하면, 중성자 흡수 후 붕괴하여 Cm-244로 변환된다. Cm-244는 반응단면적이 매우 작기 때문에 변화량이 크지 않다. 결과적으로 KTF 노심에 TRU를 장전한 경우 초기 장전량에 비하여 충분히 핵변환 능력을 가진다고 평가되었다. 특히 짝수 번호의 원자량을 갖는 핵반응 단면적이 작은 핵종들에 대한 핵변환은 PWR 조건에서는 크지 않으므로 ATW나 FR과 연계한 핵주기를 개발해야만 핵변환이 가능하다.

4. 사용후핵연료 특성평가

4.1 핵확산저항성

핵확산 저항성은 토륨핵연료를 사용하는 경우 한가지 중요한 장점으로 인식되고 있으며 토륨을 사용하는 KTF설계안에 TRU를 혼합하여 사용하는 방안은 핵확산 저항성이 높을 것으로 예상된다. 핵확산저항성은 BCM, SNS, TG의 지수를 이용하여 평가하였으며 이 지수들은 플루토늄내 핵분열 물질비율이 작을수록 좋다. 이는 상대적으로 핵원료물질의 존재비가 증가하게 되는데 Pu-238은 매우 높은 붕괴열을 생성하여 사용후핵연료의 취급에 어려움을 주고 Pu-240과 Pu-242는 임계질량을 높인다. 또한 이 세가지 핵종(Pu-238, Pu-240, Pu-242)은 모두 매우 높은 자발중성자를 방출하여 플루토늄내 핵분열물질의 조성을 변화시킨다. 계산결과는 표 3에 나타내었다. 계산방법은 각 플루토늄 동위원소의 핵확산저항성 특성에 조성비를 가중하여 계산하였다. BCM의 경우 KTF-TRU가 약간 낮게 나타나는데 플루토늄 조성을 이용한 가중시 Pu-238의 비중이 높기 때문이다. 이는 그림 4에서 나타나듯이 KTF-TRU 노심에서는 Pu-238 핵종의 증가가 높게 나타나기 때문이다. SNS와 TG는 모두 높은 핵확산 저항성을 보이는데 플루토늄내 짝수 원자량을 갖는 동위원소의 비율이 높고 특히 Pu-238의 비율이 커서 TG의 증가가 크게 나타났다.

4.2 방사능 독성

사용후핵연료의 방사능 독성은 ORIGEN-II코드를 이용하여 수행하였으며, 단위 무게당의 방사능값으로 비교하였다. 그림 6에 제시한 계산결과와 같이 KTF-TRU 설계안이 전체적으로 높은 방사능값을 보이는데 이는 10% TRU의 장전효과에 기인한 것이며, 시간경과에 따라 서도 PWR이나 KTF 핵연료보다 상대적으로 높은 방사능값을 갖는다. 높은 방사능은 사용후 핵연료 처분시 환경 친화적인 면에서는 불리하다.

5. 결론

이상으로 토륨을 기반으로 하는 KTF 설계안을 이용하여 동일한 주기길이를 갖는 핵연료

집합체를 선정하고 KTF 설계안의 핵변환 가능성을 평가하였다. KTF 노심과 동일한 주기길이를 갖는 10% TRU를 seed에 혼합하여 핵변환 특성을 평가한 결과 D-value와 T_{EX} 지수로 평가한 결과 높은 열중성자 반응단면적을 갖는 핵종은 KTF 노심이 핵변환에 유리하였지만 대부분의 MAs는 고속로가 좋은 것으로 나타났다. 그러나, KTF-TRU에서는 TRU의 핵변환 정도를 나타내는 SR값이 소듐 냉각 고속로보다 높게 나타나므로 KTF-TRU 노심을 이용한 핵변환의 경우 소듐 냉각 고속로보다 유리할 것으로 판단되었다.

참고문헌

1. Tomohiko IWASAKI and Haohiro HIRAKAWA, " Neutron Economy of Transmutation of TRU in Thermal and Fast Neutron Fields," Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 31[12], pp. 1255-1264, December (1994).
2. M.H. Kim and I.T. Woo "Once-Through Thorium Fuel Cycle Options for the Advanced PWR Core", Proc. ANS Int. Top. Mtg. on Advances in Reactor Physics, Pittsburgh, PA, USA, XV.C.3, 1-11, (2000).
3. K.M.Bae and M.H.Kim, "A Heterogeneous Thorium Fuel Core Design for Enhanced Fuel Cycle Economy," Global03, New Orleans, LA, USA, Nov. (2003).
4. M. Salvatores, et al., "A Global Physics Approach to Transmutation of Radioactive Nuclei," Journal of Nuclear Science and Engineering, 116, 1-18, (1994).
5. J.Y. Lim, et. al., "Proliferation Resistance and Transmutation Capability of PEACER Core," Proc. of 2003 GLOBAL, New Orleans, Louisiana, (2003).
6. T. Mukaiyama, and Y. Gunji, "Characteristic of Minor Actinide Transmutation in Minor Actinide Burner Reactor and Power Reactor," Proc. 1st Int. Information Exchange Mtg. on Actinides and F.P., Mito, Japan, 326-346, (1990).
7. Tomohiko IWASAKI and Naohiro HIRAKAWA, "Transmutation of Minor Actinide in Well Thermalized Neutron Field and Application of Advanced Neutron Source(ANS)", Journal of Nuclear Science Technology, Vol. 32[1], pp. 8~17, (1995).

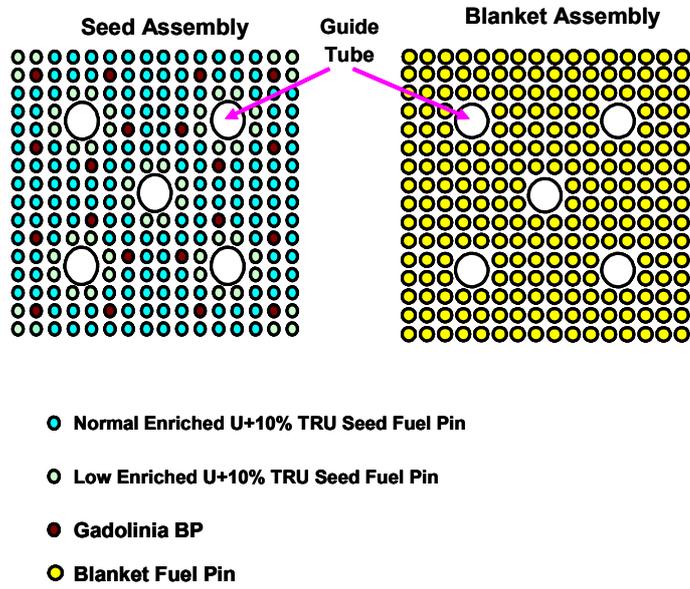


Figure 1. KTF-TRU Assembly Design

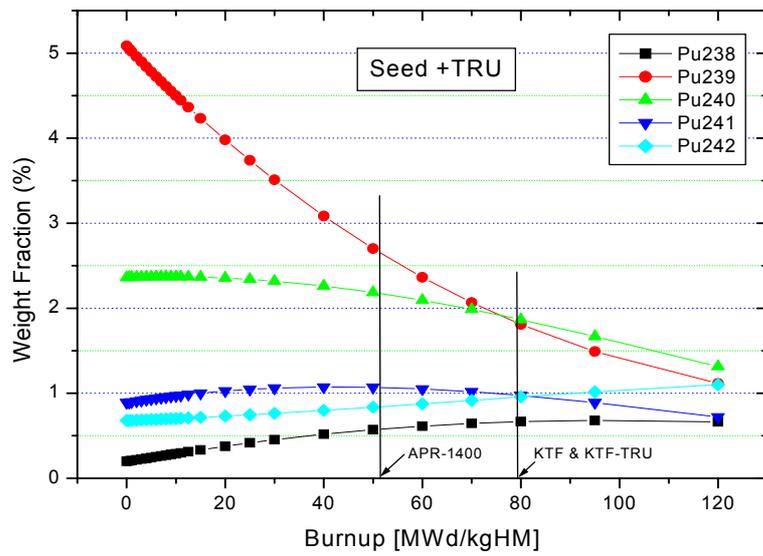


Figure 2. 플루토늄 핵종의 연소도에 따른 변화

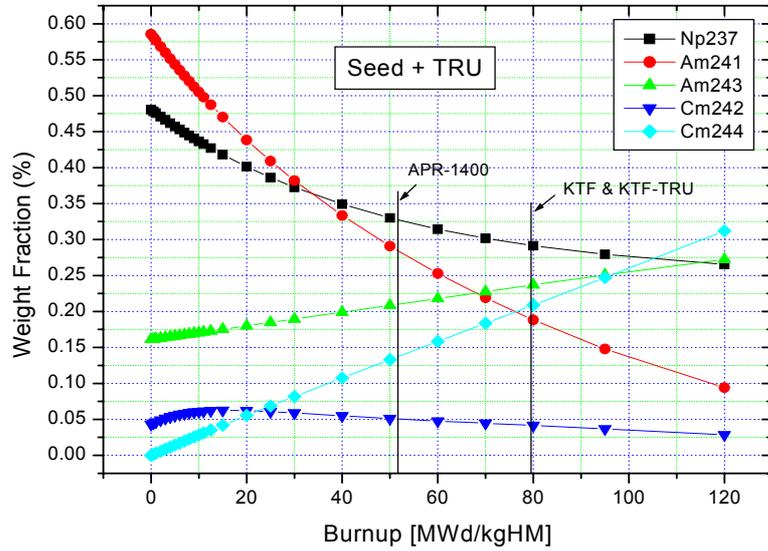


Figure 3. MA 핵종의 연소도에 따른 변화

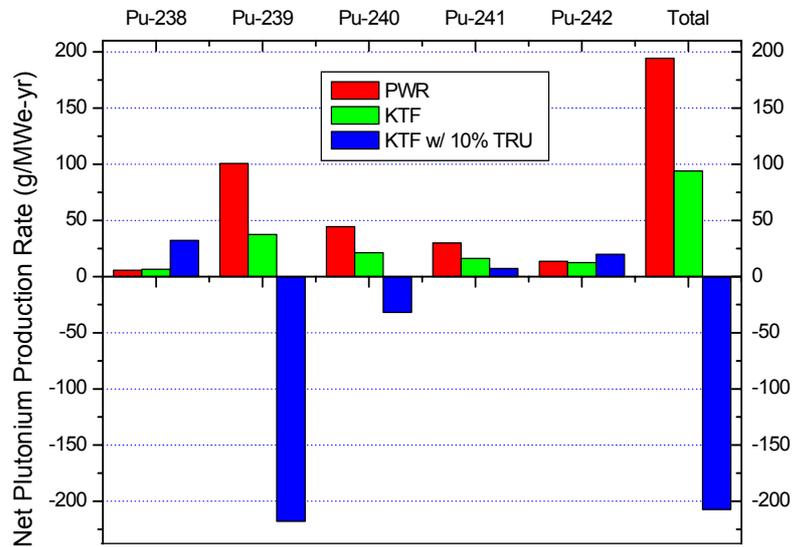


그림 4. 핵연료 종류에 따른 플루토늄 핵종별 생성률

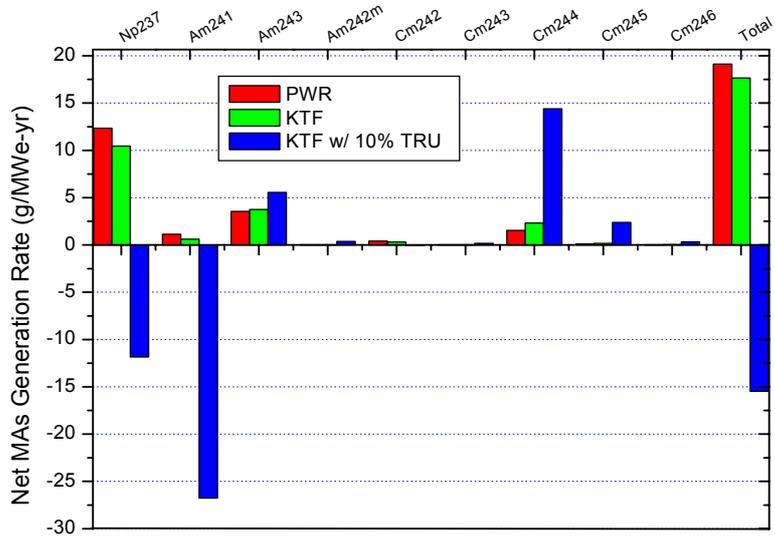


그림 5. 핵연료 종류에 따른 MA 핵종별 생성률

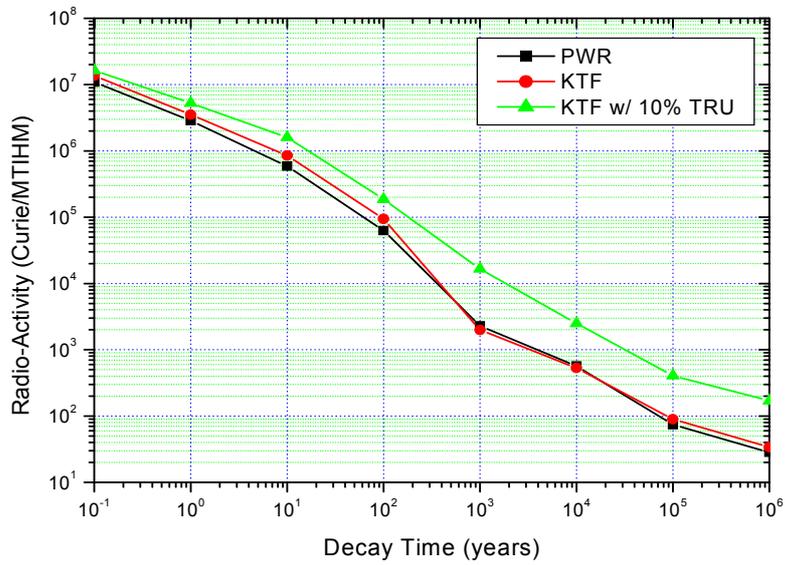


그림 6. 핵연료 종류별 시간에 따른 방사성 독성

표 1. MA 핵종별 D-value & SR 지수 평가결과

Isotope Design	Np-237	Am-241	Am-242m	Am-243	Cm-242	Cm-243	Cm-244	Support Ratio
APR-1400	0.88	0.63	-1.85	0.05	-0.11	-2.20	-0.92	-1.00
KTF	0.88	0.63	-1.85	0.03	-0.12	-2.21	-0.93	-0.52
KTF-TRU	0.67	0.37	-1.89	-0.86	-0.29	-2.17	-1.87	0.96
Na Cooled FR	-0.82	-0.74	-1.93	-0.86	-1.31	-2.26	-1.60	-0.98
Pb-Bi Cooled FR	-0.79	-0.85	-2.17	-1.07	-1.27	-2.33	-1.74	2.15

표 2. MA 핵종별 T_{EX} 지수 평가결과

Isotope Design	Np-237	Am-241	Am-242m	Am-243	Cm-242	Cm-243	Cm-244
APR-1400	23.63	4.14	0.14	25.45	4.34	0.79	38.49
KTF	22.36	3.85	0.12	23.37	4.29	0.74	35.23
KTF-TRU	20.91	9.24	0.43	32.04	2.66	1.37	35.33
Na Cooled FR	10.30	17.48	4.17	18.81	0.62	3.56	9.42
Pb-Bi Cooled FR	7.04	11.75	2.00	15.11	0.64	1.87	7.21

표 3. 핵확산저항성 지수 평가결과

INDEX	APR-1400	KTF	KTF-TRU
BCM (kg)	22.54	30.36	28.41
SNS(#/kg-sec)	4.02E5	4.08E5	5.04E5
TG (Watts/kg)	19.03	45.22	68.19