

〈기술보고〉

고준위 방사성핵종 소멸처리 기술의 검토

—핵특성 관점에서—

김용희 · 조남진

한국과학기술원

(1993. 2. 6 접수)

요 약

원자력발전 핵연료주기에서 고려하여야 할 중요한 요소의 하나는 사용후핵연료에서 비롯되는 고준위 방사성핵종이다. 고준위 방사성핵종의 처분 방법으로서 심지층처분방식은 가장 손쉬운 방법이지만 하나 매우 장시간의 감시가 필요하며, 특히 자연환경으로의 누출가능성이 커서 이의 대안으로서 외국 몇 나라에서는 소위 소멸처리(Transmutation)방법에 대한 연구를 활발히 하고 있다. 현시점에서 소멸처리 방법으로 가장 타당성이 있는 것으로 여겨지는 것은 원자로를 이용하는 것과 가속기 구동 미임계 시스템(Accelerator-Driven Subcritical System)을 이용하는 방법이다. 본 기고문에서는 이들 방법을 중심으로 다양한 소멸처리 방법의 소개와 기술적인 문제점(특히 핵특성관점에서)에 대한 고찰 그리고 향후 연구과제 등에 대하여 기술하고자 한다. 비록 소멸처리 시스템의 현실화를 위해서는 해결되어야 할 과제가 많이 남아 있지만, 기술적인 가능성과 방사능의 소멸이란 면을 고려할 때 소멸처리시스템은 궁극적인 방사성핵종 처리기술로서 연구·개발할 충분한 가치가 있는 것으로 판단된다.

1. 서 론

원자력 발전소에서 나오는 장반감기 고준위 방사성핵종의 처리는 현재 고려중인 심지층처분방식의 효율성과 안전성을 고려할 때 원자력분야의 장기적인 발전을 위하여 반드시 해결되어야 할 문제로 인식되고 있다. 상용 원자로의 사용후 핵연료는 재처리를 통하여 우라늄(U)과 플루토늄(Pu)을 제거하고 나면 알파붕괴를 하는 마이너 악티나이드(Minor Actinide, MA)와 베타붕괴를 하는 핵분열생성물(Fission Product)이 남는다. 이들은 고준위 방사성 폐기물이라고 불리는 방사성핵종이다. MA는 Am, Cm, Np 등을 포함하고, 주요한 핵분열생성물은 Cs-137, I-129, Tc-99, Sr-90 등이다. 이들 고준위 방사성폐기물의 잠재적인 독성을 감소시키는 것을 목적으로 한 소위 CURE<sup>(1)</sup>(Clean Use of Reactor Energy) 연구는 기존의 재처리 과정인 Purex 방법과 새로운 Truex 방법에 근거한 개념이다. 사용후 핵연료의 몇 가지 처리과정에 따른 독성의 비교가 그림 1<sup>(2)</sup>에 나와 있다. 그림에서 보듯이 사용후 핵연료에서 U, Pu, MA 그리고 핵분열생성물을 제거한다

면 폐기물의 독성은 현저하게 감소하여 30년 후면 우라늄 원광의 독성과 비슷해짐을 알 수 있다.

소멸처리(Transmutation)는 핵파쇄(Spallation)나 핵분열과 같은 핵반응을 이용하여 장반감기 핵종을 단반감기 핵종으로 변환시키는 것을 말하며, 최

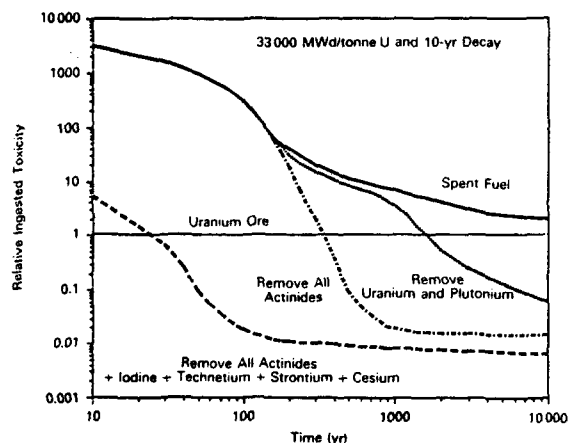


그림 1. 부분적인 방사성폐기물 처리에 따른 사용후 연료의 독성감소

종적으로 심지층처분을 해야 하는 폐기물의 양과 독성을 감소시키는 것을 주된 목적으로 하고 있다. 고준위 방사성핵종의 소멸처리를 위해서는 소위 군분리<sup>(3,4)</sup>(Partitioning)라는 과정을 거쳐야 한다. 군분리 과정은 고준위 방사성핵종을 비슷한 성질의 원소군으로 분리하는 것을 말한다. 군분리 방법<sup>(5)</sup>으로는 기존의 재처리 방법인 Purex 기술을 보완한 습식개념의 Truex 기술이 있다. Truex법은 Purex법에서의 분리효율 99.9%를 99.999%까지 향상시키는 것을 목적으로 하고 있다. 또한 보다 효과적인 군분리 방법으로서 Inoue<sup>(4)</sup> 등이 제안한 악티나이드를 합금이나 고온 용점체로서 처리하는 건식개념의 고온화학처리법(Pyrochemical Process) 및 미국의 알콘연구소 등에서 개발 중인 IFR 파이로프로세싱<sup>(6)</sup>(Pyroprocessing) 등도 있다. 파이로프로세싱은 전기적인 정제과정으로 볼 수 있고, 각 원소들간의 산화화 환원성의 차이를 이용하는 방법이다. 군분리를 거친후 남은 것에는 심지층처분을 해야 하는 대상이 있는데, 여기에 미량의 장반기이며 독성이 강한 원소가 섞이면 문제가 된다. 따라서 분리공정에서 고

준위 방사성핵종의 누수를 최소로 하고, 분리효율을 최고로 하는 군분리 방법은 소멸처리를 위해서 가장 먼저 해결되어야 할 중요한 과제로 생각된다. 그림 2<sup>(7)</sup>는 군분리와 소멸처리를 포함하는 고준위 방사성핵종의 전체적인 처리과정을 보여주고 있다.

최근에 매우 다양한 소멸처리 방식들이 제안되고 있는데, 이들은 고에너지 감마선이나 레이저를 이용하는 방법, 기존의 원자로 개념을 이용하는 방법, 가속기구동 미임계 시스템(Accelerator-Driven Subcritical System), 그리고 핵융합로를 이용하는 방법 등으로 나누어질 수 있다. 이 중 핵융합로를 이용하는 방식은 현재의 핵융합로 기술을 생각할 때 가까운 장래에 실현되기는 어려울 것으로 보이며, 고에너지의 감마선이나 레이저를 이용하는 방식은 비록 소멸효율은 좋을 수 있으나 기술면과 경제성에서 큰 난점이 있는 것으로 보인다. 현실성과 경제성을 고려할 때 다른 방법에 비하여 가장 타당성이 있는 것으로 간주되어 많은 연구가 이루어지고 있는 소멸처리 방식은 원자로에 의한 것과 가속기에 의해서 구동되는 미임계 시스템을 이용하는 방식이다. 최근에 KAERI의 연구진<sup>(8)</sup>이 각국의 소멸처리와 군분리 기술의 현황을 정리하였다. 여기에서는 앞의 두 가지 소멸처리 방법에 대한 기술적인 소개와 핵특성 관점에서의 문제점들을 파악하고 향후과제에 대하여 기술하고자 한다.

2절에서는 고준위 방사성핵종과 그 특성에 대하여 MA와 핵분열생성물을 중심으로 살펴보고, 3절에서는 원자로를 이용한 소멸처리 방법에 대한 고찰을 한다. 그리고 4절에서는 새로운 원자로의 개념으로 연구되고 있는 가속기구동 미임계 시스템에 대하여 기술한다. 마지막으로 5절에서는 전체적인 요약과 결어를 정리한다.

## 2. 고준위 방사성핵종과 그 특성

표 1<sup>(9)</sup>에는 가압경수로의 사용후 핵연료의 질량구성비를 보여주고 있는데, 대부분이 U이며, 나머지는 Pu과 고준위 방사성폐기물로 분류되는 MA와 핵분열생성물로 되어 있다. 이들 중 U은 대부분이 U-238이며 기존의 발전로에 연료로 재순환될 수 있다. Pu의 2/3는 핵분열성 물질인 Pu-239와 Pu-241

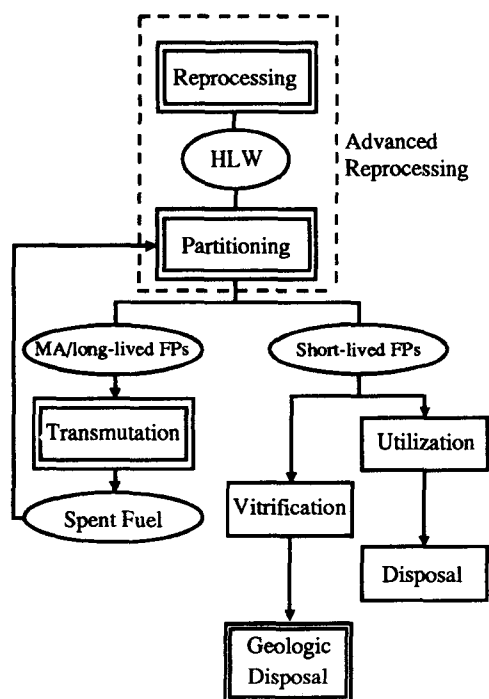


그림 2. 군분리-소멸처리-심지층처분 과정을 고려한 고준위 방사성핵종 관리의 흐름도

인데, 이들은 매우 독성이 강하다. 그렇지만 사용후 핵연료에서 Pu의 양과 이들 대부분이 핵분열성 물질이라는 특징을 고려할 때 Pu를 폐기물 보다는 핵연료로 취급하는 것이 타당하다. 나머지 악티나이드는 Np, Am, Cm 등의 소위 MA이다. MA의 구성을 표 2<sup>(7)</sup>에 나타내었는데, Np-237과 Am-241이 대부분을 차지한다. MA는 매우 긴 반감기를 가질 뿐만 아니라 독성이 자연붕괴에 의하여 U 원광의 독성에 이르기 위해서는 약 백만년 정도가 걸린다. 여기에 MA를 소멸처리해야 할 필요성이 있다. MA의 소멸을 위해서는 핵분열을 통해야 한다. 그 이유는 MA 원소의 중성자흡수만으로는 또 다른 악티나이드의 생성을 가져 오기 때문이다.

표 1. 경수로 사용후 핵연료의 구성

MA	FP	Pu	U
0.9kg	31kg	9kg	956kg

Burnup: 33 GWD/MT  
per 1 ton of fresh fuel

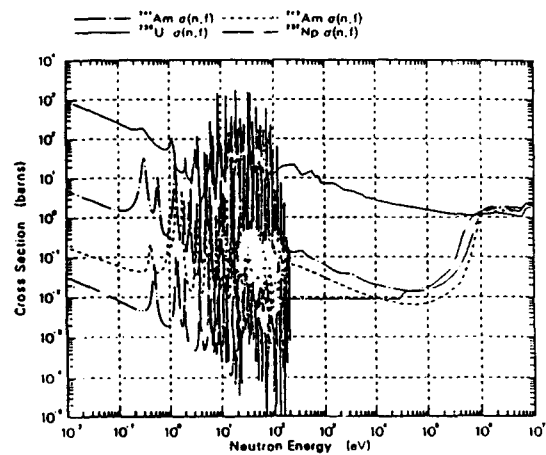
표 2. 3410 MWt 경수로에서 1년 동안에 생성되는 마이너 악티나이드

Nuclide	Half-Life(yr)	Fraction(%)
Np-237	$2.1 \times 10^6$	56.2
Am-241	432	26.4
Am-243	$7.4 \times 10^3$	12.0
Cm-243		0.03
Cm-244	18.1	5.11
Cm-245		0.28
Total		100%(23.8kg)

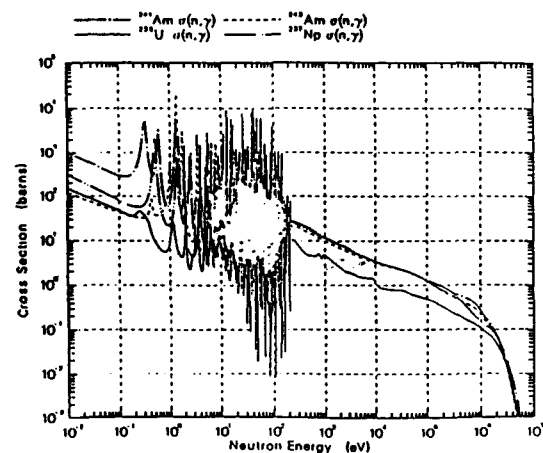
Burnup: 33 GWD/MT  
Cooling: 3 years  
Recovery of U and Pu: 100%

MA는 열중성자속에 대해서는 핵분열 단면적 보다 중성자흡수 단면적이 큰 반면 중성자 스펙트럼이 매우 경한(Hard) 속중성자속인 경우는  $\sigma_f/\sigma_a$  값이 커지는 특징을 가지고 있다. 그림 3<sup>(7)</sup>은 대표적 MA인 Np과 Am의 중성자 포획단면적과 핵분열 단면적을 U-235의 각 단면적과 비교하여 보여주고 있다. 약 700 KeV 이상 부터는 흡수단면적은 급격하게 작아지고, 핵분열단면적은 증가함을 알 수 있는데, 다른 MA 원소도 이와 비슷한 특징을 나타낸다. 따라서 MA의 직접적인 핵분열에 의한 소멸처리를 위해

서는 매우 경한 중성자 에너지 스펙트럼이 필요함을 알 수 있다. 결과적으로 경수로와 같이 중성자 스펙트럼이 경하지 못한 경우는 MA의 양이 감소하지 않고, 고속로와 같이 중성자 에너지 스펙트럼이 경한 원자로에서 이들의 소멸처리가 유리할 것임을 예측할 수 있다. 그러나 이에 대한 지금까지의 많은 연구의 결과는 효과적이고 경제적인 MA의 소멸처리를 위해서는 고속로 경우보다 더 경한 중성자 에너지 스펙트럼이 필요하다는 것을 보여주고 있다.



(a) 핵분열 단면적



(b) 포획단면적

그림 3. U-235, Np-237, Am-241, Am-243의 중성자 포획단면적과 핵분열 단면적

사용후 핵연료에서 핵분열생성물은 그 종류가 다양한데, 주된 원소들의 반감기와 독성이 그림 4<sup>(2)</sup>에 나와있다. 이들 중 Zr-93, Pd-107, Cs-135는 다음과 같은 이유 때문에 보통 소멸처리의 대상으로 간주되지 않는다. Zr-93은 방사성이 낮고 낮은 에너지의 베타선(0.06 MeV)을 방출하기 때문에 핵종변환을 함으로써 얻는 이득이 별로 없으며, Pd-107인 경우는 감마선을 방출하지 않고 베타에너지도 30 KeV로서 Zr-93의 1/3 밖에 되지 않으며, 또한 이 원소는 동위원소분리(Isotope Separation)를 하지 않고는 핵종변환이 어렵기 때문에 일반적으로 소멸처리의 대상으로 분류하지 않는다. Cs-135는 매우 큰 중성자 포획단면적( $2.6 \times 10^6$  b)을 가지므로 생성된 후 몇 분 지나지 않아 중성자를 포획함으로써 Xe-135로 되기 때문에 Cs-135의 대부분이 핵분열생성물의 형태로 존재하지 않는다. 그러나 Sr-90, Cs-137, Tc-99, I-129 등은 위험한 폐기물로서 분류되고 있다. Sr-90과 Cs-137은 반감기가 수 십년으로 다른 원소에 비해 매우 짧지만 독성이 상대적으로 강하다. 이들 원소는 강한 방사성을 가지므로 열도 많이 방출한다. 한편, Tc-99와 I-129는 Sr-90과 Cs-137 보다 반감기는 매우 길고 독성은 적다. 그러나 이들 원소는 다른 핵분열 생성물과 MA보다도 유동성(Mobility)이 좋기 때문에 지하 심지층처분시 환경으로의 유출 가능성이 훨씬 크다. 이러한 관점에서 Pigford<sup>(10)</sup>는 MA의 소멸처리보다 핵분열생성물을 어떻게 처리할 것인가에 대한 연구가 더욱 중요하다고 주장하고 있다.

이들 핵분열생성물의 단반감기 핵종으로의 변환은 주로 중성자의 흡수에 의하여 이루어지므로 속중성자속에서 보다 열중성자속에서 효과적이다. Tc-99와 I-129는 열중성자속이  $10^{16}$  n/cm<sup>2</sup>sec 정도이면 만족할 만한 핵종변환을 달성할 수 있는 반면에 Sr-90이나 Cs-137은 보다 큰  $10^{17}$  n/cm<sup>2</sup>sec의 열중성자속을 필요로 한다. 따라서  $10^{16}$  n/cm<sup>2</sup>sec 정도를 원자로에서 달성할 수 있는 현실적인 최대 중성자속으로 생각할 때, 열중성자에 의한 핵종변환은 Sr-90과 Cs-137에 대해서는 이용하기가 곤란할 것으로 여겨진다. 그렇지만 Sr-90과 Cs-137은 열외(Epithermal) 영역에서는 중성자에 대해서 흡수공명을 일으키는 특징이 있다. 따라서 이들 원소의 단반감기 핵종으로의 변환을 위해서는 가능한 한 열외에너지 영역의 중성자속을 크게 해주어야 할 것이다. 한편, Sr-90과 Cs-137은 핵분열생성물 중에서 상당히 많은 부분을 차지하는 반면, 상대적으로 짧은 반감기(약 30 년)를 가진다. 그러므로 이들을 다른 핵종으로부터 분리하여 많은 어려움에도 불구하고 소멸처리를 하는 방식과 그대로 지상에 보관함으로써 자연붕괴를 통하여 독성이 감소되도록 하는 방식 중에서 어느 것을 택할 것인가에 대한 분석이 요망된다<sup>(11)</sup>. Till과 Chang<sup>(12)</sup>은 심지층 처분시 자연환경으로의 유출가능성이 높은 방사성핵종은 지상에서 보관해야 한다고 주장한다.

### 3. 원자로를 이용하는 방식

#### 3.1. 개요

원자로를 이용한 고준위 방사성핵종의 소멸처리는 재처리와 군분리에 의해서 얻어진 악티나이드를 원자로에 재순환시켜서 핵분열에 의하여 소멸처리하는 방식이다. 이러한 개념의 소멸처리방식은 사용하는 원자로에 따라서 구분될 수 있는데, 기존의 경수로나 고속로에 재순환시키는 것과 악티나이드 소멸처리를 통하는 것으로 나누어진다. 기존의 경수를 사용하는 방식은 중성자 스펙트럼이 경하지 않아 소멸처리의 효과가 거의 없는 것으로 판단되며, 고속로에 의한 방법도 많은 연구가 있었지만 만족할 만큼의 소멸처리 효과를 가져오지 못하는 것으로 보인다. 그 이유는, 고속로에서는 경수로 보다 중성자 스펙트럼이 훨씬 경하기는 하지만, 악티나이드의 핵분

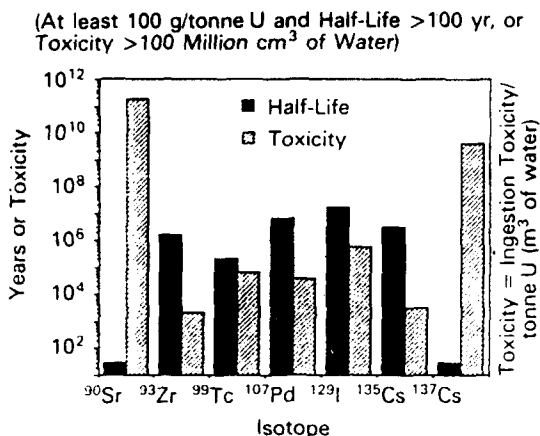


그림 4. 경수로의 주요한 핵분열 생성물

열에 의한 효과적인 소멸처리를 위하여 요구되는 700 KeV 이상의 에너지를 가지는 중성자 비율이 그다지 크지 않아서 소멸처리 과정에서 새로운 악티나이드의 생성 등을 고려할 때 충분한 소멸처리 효과가 없는 것으로 나타나기 때문이다. 한편, 악티나이드 전용 소멸처리로(Actinide Burner)는 기존의 고속로에 비해서 중성자 스펙트럼이 더 경하고, 중성자속이 보다 크도록 설계된 것으로서 MA를 주된 연료로 사용하여 이들의 소멸처리가 보다 더 효과적일도록 설계한 개념이다.

MA 소멸처리로는 MA를 주된 연료로 사용하기 때문에, MA의 양이 많아짐에 따라 연소에 따른 반응도의 이득이 커져서 연소 반응도 변화(Reactivity Swing)가 커지는 문제가 있다. 이러한 문제를 해결하기 위하여 제안되고 있는 대부분의 소멸처리로서는 Pu를 첨가하는 방식을 택하고 있다. 그렇지만 소멸처리로서의 이러한 특징은 원자로의 효과적인 제어만 가능하다면, 매우 긴 주기를 가지고 다량의 MA를 처리할 수 있는 소멸처리로의 설계를 가능하게 할 수도 있다. Doncal<sup>(13)</sup> 등은 기존의 LMR 개념에 기초하여 MA만을 연료로 하는 시스템을 제안하였는데, 그들의 결과는 이러한 가능성을 뒷받침하고 있다. 그러나 현재의 원자로 제어기술과 요구되는 안전성을 고려할 때, 원자로의 제어면에서 혁신적인 진보를 필요로 한다고 보여진다. 한편, 악티나이드를 주된 연료로 하고 Pu를 첨가하는 형식의 MA 소멸처리로는 일본의 JAERI에서 소위 전소로(Actinide Burner Reactor)라 하여 매우 광범위하고 깊이있게 연구되고 있는데, 그들의 연구결과는 전소로의 개념이 마이너 악티나이드의 소멸처리에 있어서 매우 효과적임을 보여주고 있다<sup>(14)</sup>. 이 절에서는 JAERI의 전소로에 대한 연구결과를 중심으로 원자로를 이용한 마이너 악티나이드의 소멸처리 방법과 문제점에 대하여 살펴보고자 한다.

### 3.2. JAERI의 전소로<sup>(14)</sup>

JAERI에서는 다음과 같은 설계 조건하에서 핵연료 및 열수력학적인 관점에서 전소로의 개념설계를 수행하였다.

- 마이너 악티나이드가 주된 연료가 되어야 함
- 중성자 스펙트럼이 경해야 함

(가벼운 원소는 가능한 한 포함하지 말것, 높은 MA의 금속밀도를 유지할 것)

- 중성자속이 매우 높아야 함
- 연소에 따른 반응도의 변화가 3 %  $\Delta k/k$  이내이어야 함
- 고연소도를 달성해야 함

처음의 세 가지 요건은 전소로의 목적과 MA의 핵분열단면적의 특징을 고려할 때 당연히 요구되는 전소로의 조건임을 알 수 있다. 네번째의 요건은 MA의 중성자흡수에 따른 결과로 생성되는 핵분열성 물질과 관계가 있다. 예를 들어 Np-237은 중성자를 흡수하여 결국은 Pu-239로 붕괴 하는데, 이는 반응도의 증가를 가져온다. 따라서 MA가 주된 연료가 되는 전소로에서는 연소에 따른 반응도의 변화(Reactivity Swing)가 심하게 나타날 수 있다. 이는 원자로의 안전성과 제어면에서 좋지 않은 요인으로 작용하게 된다. 따라서 연소에 의한 반응도의 변화는 너무 커서는 안된다. 마지막의 요건은 장시간 동안의 중성자조사가 악티나이드의 소멸처리에 효과적이라는 사실에 근거한다. 그렇지만 전소로에서 목표로 하는 고밀도 중성자속을 고려하면 구조물질이나 피복재에 대한 중성자조사에 의한 피해가 보다 심해질 수 있다는 것을 고려하여야 한다. 이러한 설계 요건에 입각하여 JAERI에서는 두 가지 형태의 전소로를 설계하였는데, 하나는 Na를 냉각재로 쓰는 금속연료 방식(M-ABR)이고, 다른 하나는 He 냉각 입자연료 방식(P-ABR)이다.

금속연료 방식에서는 합금연료는 U-계 합금연료를 모델로 하고 있는데, 연료를 스테인레스 steel 피복관에 넣은 것을 연료요소로 하며 duct가 없는 연료 집합체의 개념을 도입하였다. Np, Am 그리고 Cm은 고용체(Solid Solution) 상태로 얻을 수 없기 때문에 MA의 합금연료로서 Np-(Pu)-Zr과 Am-Cm-(Pu)-Y의 두 가지 형태를 채택하였다. 여기서 Zr과 Y은 마이너 악티나이드의 낮은 용점을 보완하기 위해서 사용되었다. Pu의 첨가는 두 가지 이유에서인데, 하나는 임계질량을 줄이기 위해서 이고 다른 하나는 Np-237의 Pu-239로의 변환과 Am-241의 Am-242m으로의 변환에 의한 반응도의 증가를 상쇄시키기 위함이다. 이러한 Pu은 초기에만 장전되는데, 이는 이후부터는 Np-237의 변환으로 생성된 Pu

이 그러한 역할을 할 수 있기 때문이다. 한편, JAERI의 결과에 의하면 Pu의 첨가는 합금연료의 고체성질에 큰 영향을 미치지 않는 것을 알 수 있다.

위의 합금연료 방식에서는 연료의 낮은 용융점과 비교적 작은 열전도율이 합금연료 방식에 있어서 고 연소도와 높은 중성자속을 달성하는데 장애요인이 될 수 있음이 판명되었다. JAERI에서는 이러한 점을 보완하기 위하여 MA 질화물(Nitride)의 작은 입자를 용점이 높은 재료로 피복시키고 연료표면을 He으로 냉각하는 제열성능이 우수한 소위 입자연료 방식의 전소로 개념도 검토하였다. 여기서는 연료온도를 용점의 1/3 이하로 보존하는 소위 차가운 연료(Cold Fuel) 개념을 가정하고 있다. 이 결과 swelling 및 연료로부터의 가스의 방출을 최소로 억제할 수 있으며, 또한 피복층의 두께를 최소로 하는 설계가 가능하여 가벼운 원소의 양을 최소로 할 수 있어서 경화된 중성자 스펙트럼을 얻을 수 있는 것으로 보고 되고 있다.

### 3.2.1. 전소로의 제원 및 특징

표 3에는 JAERI의 합금연료 및 입자연료 전소로의 핵특성, 열수력학적 특성을 비교 정리하였고, 그림 5에는 두 가지의 전소로와 기존의 고속로인 MOX-FBR의 중성자 에너지 스펙트럼을 대비하였다. 그림 5에 따르면 매우 경한 스펙트럼이 전소로에서 가능하고, 특히 MOX-FBR보다 고에너지 중성자의 비율이 높아서 악티나이드의 핵분열에 유리함을 알 수 있다. 표 3에 의하면 M-ABR에서는 P-ABR보다 중성자속이 낮음을 볼 수 있는데, 이는 전술한 바와 같이 MA 금속의 낮은 용융점과 열전도율 때문이다. 그리고 P-ABR에서 MA의 연간 연소가 더 큰데, 이는 입자연료의 효과적인 열제거 특성 때문이다. 한편, 전소로의 Doppler 계수, 지발중성자 비율, 중성자수명이 기존의 발전로에 비하여 현저하게 작음을 알 수 있는데, 이러한 특징은 노심내에 우라늄이 없다는 것과 중성자 스펙트럼이 매우 경하기 때문이다. M-ABR의 경우 Na 기공(Void)계수가 양수임을 보는데, 이러한 특징은 노심의 안전성과 효과적인 제어를 고려할 때 개선되어야 할 점이다. 전소로와 기존의 발전로가 크게 다른 점은 연료 주기가 발전로에서는 연소에 따른 반응도의 변화에 의해서 주로 지배되는 반면 전소로에서는 중성자 fluence에

주로 의존한다는 것이다. 이러한 차이점은 전소로에서 MA의 핵분열성 물질로의 변환 때문에 얻어지는 반응도의 이익과 매우 경한 중성자 스펙트럼에 기인한다.

MA에 있어서 핵데이터의 불확정성에 대한 검토를 위하여 JAERI에서는 서로 다른 핵데이터인 JENDLE-2와 ENDF/B-V를 사용하여 설계된 전소로의 특징을 비교한 바 있는데(표 4), 이에 의하면 주요한 핵데이터가 상당히 다름에도 불구하고 MA의 연소율에 있어서는 큰 차이를 유발하지 않는 것으로 되어 있다. 그렇지만 M-ABR의 설계시 데이터의 부족 때문에 MA 합금연료의 열전도도를 U-Pu-Zr 합금의 1/2로 가정하고 계산을 수행하였는데, 만약 1/3이라면 MA의 연소율은 26% 감소되고, 또한 합금연료의 용융점이 가정된 값 900°C 보다 100°C 만큼 낮다면, 18%의 연소율 감소를 초래하게 됨을 JAERI의 연구보고서는 밝히고 있다. 이러한 사실은 MA에 대한 실측데이터의 보강이 MA 전용 소멸처리로의 정확한 설계를 위하여 필요함을 나타낸다 하겠다.

### 3.2.2. 전소로와 발전로의 소멸처리 비교

표 5는 JAERI의 전소로와 기존의 발전로에서의 소멸처리 효과를 비교한 결과이다. 일반적으로 핵변환율(Transmutation Rate)을 소멸처리효과의 지수로 사용하는데, 이의 정의는 한 주기 동안에 핵분열이나 중성자흡수에 의해서 핵변환된 MA의 양을 주

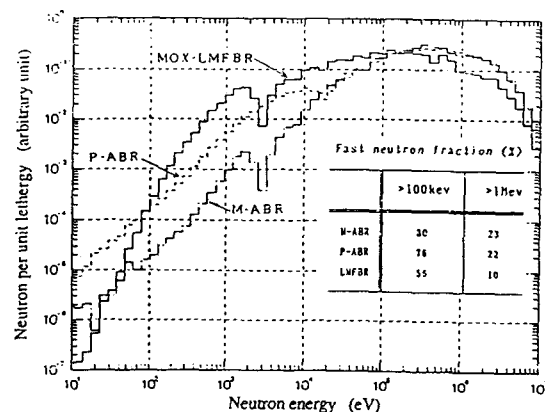


그림 5. 전소로와 MOX-FBR의 중성자 에너지 스펙트럼 비교

표 3. JAERI의 합금연료 및 입자연료 전소로의 설계변수

	M-ABR <sup>1)</sup>	P-ABR <sup>2)</sup>
Fuel concept	pin-bundle	coated particle
Material	IC <sup>3)</sup> : Np-22Pu-20Zr OC <sup>3)</sup> : AmCm-35Pu-5Y	(66NpAmCm-34Pu) <sub>1</sub> N <sub>1</sub>
MA initial loading, kg	666	2065
Np/Am, Cm/Pu	255/199/212	765/598/702
Reactor power, MWth	170	1200
Coolant material	Sodium	Helium
velocity, m/s	8	total flow: 1088kg/s inlet pressure: 10 MPa pressure drop: 13 kPa
inlet temperature, °C	300	127
outlet temperature(core average), °C	430	340
Fuel temperature <sup>4)</sup> , °C max	IC: 834 OC: 809	722
Clad temperature <sup>5)</sup> , °C max	IC: 517 OC: 484	Frit temp. max: 560
Neutron flux, 10 <sup>15</sup> n/cm <sup>2</sup> sec	IC: 4.1 OC: 3.4	8.4
Neutron fluence (E<0.1MeV), 10 <sup>23</sup> n/cm <sup>2</sup>	IC: 2.2 OC: 1.7	2.2
Core averaged neutron energy, keV	IC: 766 OC: 785	743
Reactivity(% Δk/k)		
Doppler reactivity/core(Δt=300°C)	-0.01	-0.01
Na-void reactivity/core	+2.52	
Kinetic parameters		
$\beta_{eff}$	$1.55 \times 10^{-3}$	$1.72 \times 10^{-3}$
$\ell_p$ sec	$6.84 \times 10^{-8}$	$10.8 \times 10^{-8}$
Cycle length <sup>6)</sup> , full-power days	730	300
MA transmutation, %/cycle	26.0	25.3
MA burnup, %/cycle	17.8	17.3

1) M-ABR: MA metallic fuel actinide burner reactor

2) P-ABR: MA particle fuel actinide burner reactor

3) IC: Inner core, OC: Outer core

4) Melting point of fuel (predicted): 900°C for M-ABR

Max. allowable temp. of fuel: 727°C (1/3 of melting point 3000 K) for P-ABR

5) Max. allowable temp. of cladding/frit(HT-9): 650°C

6) Fuel irradiation time

표 4. 서로 다른 핵자료에 따른 소멸처리 효과 비교

Item	JENDL-2	ENDF/B-V
One group cross section(barn)		
<sup>237</sup> Np capture	0.711	0.67
fission	0.575	0.577
<sup>241</sup> Am capture	1.04	0.960
fission	0.537	0.531
Core averaged neutron mean reaction		
energy in the inner core(kev)	790	757
k <sub>eff</sub> of BOC at 1st cycle	1.0313	1.0558
MA burnup per cycle in the inner	12.91	13.08
core at 10th cycle(%)		

기초에 장전된 MA의 양으로 나눈 값이다. 한편 MA의 중성자흡수는 Pu-238과 같이 원자로물리 관점에서 볼 때 좋지 않은 원소를 생성하기 때문에 보다 실질적인 소멸처리 효과를 나타내는 지수로서 MA의 연소율(Burnup Rate)을 사용한다. 연소율은 MA의 진정한 소멸과정으로 볼 수 있는 핵분열에 의해서 소멸된 MA의 양을 주기초의 MA의 양으로 나눈 값으로 정의 된다.

JAERI의 결과에 따르면 주기당의 연소율은 MOX-FBR을 제외한 모든 원자로에서 15-18%의 범위내에 있음을 알 수 있다. 하지만 MA의 소멸속도로 볼 수 있는 1년당의 연소율은 P-ABR에서 17%로서 제일 높고 다른 원자로에서는 4-7%로서 낮음을 알 수 있다. 다른 원자로에 비해서 P-ABR의 연소율이 월등히 높은 것은 매우 경한 중성자 스펙트럼과 높은 중성자속 때문이다. 위 표에서 발전로에 대한 결과는 핵연료의 연소과정에서 새로이 생성되는 MA는 고려하지 않고 얻은 것이다. 따라서 발전로에서 새로이 나타나는 MA의 양을 고려한다면 전소로의 연소율은 기존의 발전로에 비해서 훨씬 크게 될 것임을 예측할 수 있다.

위의 표의 결과는 MA 농도를 U-PWR인 경우 0.2%, 고속로(MOX-FBR, LMR)인 경우는 5%로 하여 계산된 것이다. MA의 첨가량이 이처럼 적은 이유는 발전로의 기존 핵연료에 MA의 첨가가 발전로의 최적설계요건을 변화시키지 않도록 하기 위해서이다. JAERI의 연구에 의하면 소량의 MA 연료 첨가는 여러가지 면에서 심각한 변화를 초래하게 됨을 지적하고 있다. MA를 발전로에 재순환시킬 때 핵연료 주기에 미치는 영향에 관하여 검토한 결과가 표 6에 요약되었다. 이 결과에 의하면 발전로 연료에 소량의 MA를 혼합하는 경우에도 핵연료 주기 시설에 대한 방사선 차폐, 특히 중성자 차폐의 설계를 다시 검토해야 할 필요가 있음을 알 수 있다.

한편, 전소로를 이용한 소멸처리의 경우는 발전로에서 보다 많은 양의 MA를 다루기 때문에 핵연료 주기 시설의 방사선 차폐나 붕괴열 제거의 문제가 보다 심각하다 할 수 있다. 그러나 JAERI의 결과에 따르면 사용후 MA 연료를 고온화학처리법(Pyrochemical Process)을 사용하여 재처리를 하는 경우에는 핵연료 주기에 관계된 시설이 콤팩트해질 수 있고, 따라서 전소로 근처에 이러한 시설을 위치

표 5. 전소로와 기존 발전로의 소멸처리 비교

		MA BumerReactors		Power Reactors		
		M-ABR	P-ABR	U-PWR	MOX-FBR	LMR
Output	(MWt)	170	1200	3410	2800	2832
Cycle length <sup>1)</sup>	(FPD)	730	300	650	750	900
Core averaged						
Fast neutron flux	( $\times 10^{15}$ )	3.6	8.4	0.37	3.3	5.0
Mean neutron energy	(kev)	780	750	thermal	480	490
MA loaded	(kg)	666	2065	180 <sup>2)</sup>	1450 <sup>2)</sup>	1200 <sup>2)</sup>
MA transmutation rate <sup>3)</sup>	(%/cycle)	26.0	25.3	54.1	27.6	38.7
MA burnup rate <sup>4)</sup>	(%/cycle)	17.8	17.2	15.0	9.4	16.8
	(%/year)	7.3	17.2	5.0	3.8	5.6
MA burnup/reactor	(kg/year)	49	355	9.0	55	67
MA generated/reactor <sup>5)</sup>	(kg/year)	—	—	24	35	30
Net MA burnup	(kg/year)	49	355	-14	20	37
MA burnup	(kg1GWt year)	287	296	-4.1	7.7	14

1) Fuel irradiation time

2) Concentration of MA in fuel: 0.2% for U-PWR 5% for MOX-FBR and LMR

3) MA transmutation rate = [MA(BOC) - MA(EOC)] / MA(BOC)

4) MA burnup rate = MA fissioned / MA(BOC)

5) MA generated in fuel, i.e., U and Pu



표 6. MA 연료의 첨가가 발전로의 연료주기에 미치는 영향

	Ratio of value of MA added fuel to that of normal fuel		
	Decay heat (watt/HMT)	Neutron Emission (n/sec/HMT)	Photon Intensity (Mev/sec/HMT)
<u>U-PWR (0.2wt%)*</u>			
fresh fuel (U235 : 4wt%)* <sup>b</sup>	3.6x10 <sup>3</sup> (0.1) <sup>d</sup>	8.3x10 <sup>4</sup> (1.4x10 <sup>4</sup> )	1.3x10 <sup>3</sup> (1.8x10 <sup>3</sup> )
spent fuel (45GWDt) <sup>c</sup>	1.5(1.5x10 <sup>3</sup> )	4 (5x10 <sup>8</sup> )	1 (3.2x10 <sup>15</sup> )
<u>MOX-PWR (0.5wt%)*</u>			
fresh fuel (Pu : 6.5wt%)	1.4(1.3x10 <sup>3</sup> )	4.8(6.0x10 <sup>7</sup> )	1.2(7.7x10 <sup>12</sup> )
spent fuel (45GWDt)	1.5(3.4x10 <sup>3</sup> )	1.7(5.5x10 <sup>9</sup> )	1 (3.1x10 <sup>15</sup> )
<u>MOX-FBR (5wt%)*</u>			
fresh fuel (Pu : 30wt%)	2.2(5.8x10 <sup>3</sup> )	1.0x10 <sup>2</sup> (2.8x10 <sup>8</sup> )	2.1(3.5x10 <sup>13</sup> )
spent fuel (80GWDt)	2.8(6.1x10 <sup>3</sup> )	19 (2.2x10 <sup>9</sup> )	1(5x10 <sup>15</sup> )

a : heavy metal fraction of added minor actinides in fuel

b : fuel enrichment

c : fuel burnup (cooling time is 10 years)

d : values in parentheses are those for normal fuel

시킬 수 있어서 문제가 되는 물질들을 한 곳에 국한시킬 수 있게 되므로 비용면에서 유리할 가능성이 있는 것으로 나타난다.

### 3.3. 핵데이터의 불확실성

다양하게 제안되고 연구되어온 MA 소멸처리로의 분석과 설계에 있어서 주된 문제점 중의 하나는 Pu-238과 주요한 MA 원소에 대한 정확한 핵데이터가 부족하다는 사실이다. 일반적으로 부정확한 핵데이터는 원자로의 성능을 분석하는데 있어서 심각한 오류를 가져올 수 있는데, 특히 소멸처리로에서는 더욱 심각할 수 있다. 이는 MA를 주연료로 하는 소멸처리로에서는 원자로의 안전성을 나타내는 변수가 잘 알려지지 않은 MA 원소의 데이터에 꽤 민감하기 때문이다.

Choi와 Downar<sup>(15)</sup>는 MA의 소멸처리를 위한 LMR 형식의 소멸처리로를 제안하고, ENDF/B-V 및 기존의 핵데이터와 연소섭동방법(Depletion Perturbation Method)에 근거하여 주요한 안전 변수에 대한 민감도분석을 하였다. 그들이 제안한 소멸처리로는 LMR에 기초하고 있고, MA와 Pu를 주연료로 하고 있다. 노심은 내부와 외부 두 영역으로 구분되는데, 내부는 MA가 주된 연료이고, 외부는 Pu이 주로 사용된다. Pu를 외부노심에 배치한 이유는, JAERI의 전소로에서와 같이, MA를 주된 연료로 사용할 때 문제가 될 수 있는 연소에 따른 큰 반응도의 변화를 보상하기 위해서이다. 또 다른 주요한 특징은 양의 값으로 나타나는 Na 기공계수를 줄이기 위해서 노심의 중심과 외부에 B<sub>4</sub>C 영역을 설정하고 있는 점이다. 이와 같은 MA 소멸처리용 LMR에 대

표 7. 원자로심 안전 변수의 불확실성

Parameter	Reactivity Worth*	Relative Uncertainty(%)	Absolute Uncertainty(σ)*
Burnup Swing	1.19	180	2.14
Void Worth (EOEC)	1.17	97	1.13
Doppler Coeff. (EOEC)	-0.032	46	0.015

하여 연소반응도 변화, Doppler 계수, Na 기공계수 등의 민감도 분석을 행하였는데, 그 불확실성 결과가 표 7에 나와 있다.

표에서 보듯이 원자로의 안전성을 나타내는 변수의 불확실성이 매우 큼을 볼 수 있다. 위의 결과는 부족한 핵데이터에 근거하여 얻어진 것이기 때문에 각 변수에 대한 불확실성의 하한치(Lower Bound)로 간주될 수 있다. 따라서 실제의 불확실성은 보다 클 것으로 예측된다. 그러므로 MA 소멸처리용 시스템의 설계를 위하여는 보다 정확한 핵데이터를 구축해야 할 필요성이 절실함을 알 수 있다.

## 4. 가속기를 이용하는 방식

### 4.1. 개요

가속기를 이용하여 장반감기 핵종을 단반감기 핵종으로 변환시키는 개념은 핵파쇄과정(Spallation)이라는 일종의 핵반응에 기초하고 있다. 핵파쇄 반응은 어떤 문턱에너지(Threshold Energy) 이상의 고에너지 입자(Particle), 주로 양성자나 중수소, 가벼운 원소의 핵을 통과하면서 핵분열 반응과 비슷한 과정을 통하여 이차 입자로서 다량의 중성자나 메존(Meson)을 방출하는 것을 말한다. 이 때 방출되는 중성자의 수는 조사입자의 에너지에 비례하고, 표적물질에 따라서 수 십에서 수 백개에 달한다. 이러한 핵파쇄 반응을 방사성핵종의 소멸처리에 이용하는 방법으로는 다음의 세 가지를 들 수 있다. 첫째는 가속된 입자빔(Particle Beam)을 방사성물질에 직접 조사함으로써 장반감기 핵종을 직접적인 핵파쇄과정을 통하여 단반감기 핵종으로 바꾸는 것이다. 이 방법은 요구되는 빔전류가 현재의 기술로 가능한 최대값 보다 훨씬 커서 현재로서는 가능성이 매우 희박한 것으로 판명되었다. 두번째는 핵파쇄과정에서 발생하는 중성자를 이용하는 것인데, 이는 첫번째 방식 보다는 효과적이지만 여전히 경제적으로 매우 불리한 것으로 나타났다. 다른 하나는 가속기 구동(Accelerator-Driven) 원자로와 같은 미임계 시스템에 의한 소멸처리방식이다. 이 방법은 입자빔의 표적에서 생성된 파쇄중성자를 미임계 시스템에서 핵분열반응을 통하여 증배시켜서 주로 핵분열 중성자에 의해서 소멸처리가 이루어지도록 하는 개념인데, 현재 제안되고 있는 가속기를 이용한 소멸처리 방식

은 대부분이 이 방법에 근거를 두고 있다<sup>[16]</sup>. 이 방법은 앞의 두 방법에 비해서 경제적인 면이나 소멸처리 효과에서 월등히 우수할 뿐만 아니라 시스템의 안전성이나 제어면에서도 매우 유리한 장점이 있는 것으로 보여진다.

소멸처리에서 요구되는 가속기는 입자빔의 에너지와 전류가 매우 큰 대형이지만, 가속기분야 기술의 지난 수년간에 걸친 발전의 결과 현재의 대형가속기 기술의 연장선상에서 필요한 가속기의 설계가 가능한 것으로 나타나고 있다. 특히 최근에 Los Alamos 연구소에서는 1.6 GeV, 250 mA 성능의 선형가속기를 삼중수소의 생산을 목적으로 설계하였는데, 소멸처리에 필요한 것으로 생각되는 대부분의 가속기의 출력이 입자빔 에너지에서 수 GeV이고, 입자빔의 전류에서 수 십 mA인 것을 생각할 때 소멸처리에 가속기의 이용은 기술적으로 가능하리라고 생각된다. 한편, 선형가속기에 비해서 경제적으로 유리한 사이클로트론의 이용도 검토되고 있는데, 사이클로트론은 대형선형가속기에 비하여 값은 싸지만 최대전류가 10 mA 정도인 단점이 있다. 그러나 여러개의 사이클로트론을 다단계-병렬방식으로 연결하면, 비록 대형 선형가속기의 출력에는 못미치지만, 필요한 입자빔 출력을 얻을 수 있음이 BNL 연구결과에서 보고되었다.

이 절에서는 현재 가속기를 이용한 소멸처리 방법들 중에서 가장 효과적인 것으로 인식되고 있고 많은 연구가 되어온 가속기 구동 미임계 시스템을 소개하고 기술적인 정리를 하고자 한다.

### 4.2. 가속기 구동 미임계 시스템

악티나이드 전용 소멸처리로는 소멸처리의 효과면에서 볼 때 많은 장점을 가지고 있지만 원자로의 제어와 안전성에서 어려운 점이 있다. 악티나이드를 주된 연료로 사용하는 소멸처리로는, 3절에서 밝혔듯이, 지발중성자의 비율이 매우 작고 중성자수명이 짧을 뿐만 아니라, Doppler 계수가 상대적으로 작다. 또한 Na를 냉각재로 쓰는 고속로에서는 Na의 기공계수가 상당히 큰 양의 값을 가지는 특징도 있다. 이러한 원자로는 기존의 고속로보다 제어면에서 어렵고 따라서 고유의 안전성을 만족하기가 어렵다. 이와 같은 특징은 TMI 사고와 Chernobyl 사고에 의해서 보다 안전한 원자로에 대한 일반대중의 요구가

점증하는 상황을 고려할 때 개선되어야 할 점으로 지적되고 있다. 원자로는 고유안전성을 가지고 있어야 할 뿐만 아니라 “투명하게(Transparently)” 안전해야 한다는 Weinberg<sup>(17)</sup>의 말이 차세대 원자로의 안전성에 대한 요구사항을 대변한다고 하겠다.

소멸처리와 같은 시스템을 안전하게 운전할 수 있는 한 방법으로 제안된 것이 가속기로 가속한 고에너지 입자빔에 의해서 생성된 파쇄중성자(Spallation Neutron)를 외부중성자원으로 이용하는 미임계 소멸처리 시스템<sup>(2,16,18)</sup>이다. 즉, 충분히 미임계 상태에 있는 시스템에서는 상당한 양의 반응도가 삽입되어도 시스템의 출력이 위험한 상황으로 갈 수 없게 된다.

가속기 구동 소멸처리 시스템의 동특성은 일점 노심모델(Point Kinetics Model)을 사용하여 쉽게 고찰할 수 있다. 만약 지발중성자(Delayed Neutron)를 무시하고 외부중성자원이 있다고 가정하면, 중성자밀도  $n(t)$ 의 지배방정식은 다음과 같이 간단히 쓸 수 있다.

$$\frac{dn}{dt} = \frac{\rho}{\Lambda} n + S \quad (1)$$

여기서 반응도  $\rho = (k-1)/k$ ,  $\Lambda$  = 중성자수명,  $S$  = 외부중성자원이다. 초기조건으로  $n(0)=0$  이고  $S(t)=Q$  로서 일정하다면, 식 (1)의 해는 다음과 같이 구해진다. 즉,  $k=1$  이면

$$n(t) = Qt \quad (2a)$$

이고,  $k \neq 1$  이면

$$n(t) = Q\Lambda \frac{k}{k-1} \{ \exp[(k-1)t/\Lambda k] - 1 \} \quad (2b)$$

이다. 그리고 만약  $n(0)=n_0$  이고  $S=0$  라면, 식 (1)의 해는 다음과 같다.

$$n(t) = n_0 \exp[(k-1)t/\Lambda k] \quad (3)$$

위의 식 (2)와 (3)에 따르면, 가속기에 의해서 구동되는 시스템에서 외부 중성자원의 변화에 따른 시스템 중성자속의 시간에 따른 변화를 그림 6에서와 같이 나타낼 수 있다. 만약  $k < 1$  이라면, 외부 중성자원을 제거함으로써, 다시 말해서 가속기를 정지 시킴으로써, 시스템의 출력을 다른 조치 없이도 영으로 감소시킬 수 있음을 알 수 있다. 예를 들어 3\$ 미임계 상태라면, 1.1\$의 갑작스런 반응도 삽입은 (예를 들어 양의 폐환 반응도 때문에) 1초 동안에 44%

출력의 증가를 가져오지만, 1초 후에 가속기를 정지 시킨다면 시스템의 출력을 즉각 20%선으로 감소시킬 수 있다. 또한 이 경우 가속기를 정지시키지 않더라도 시스템의 증배계수는 여전히  $k < 1$  이므로 출력이 폭발적으로 증가하는 현상은 나타나지 않고, 반응도의 삽입후 출력은 증가하지만 어느 정도 시간이 지나면 일정한 값으로 수렴하게 된다. 이러한 현상을 그림 6에서 점선으로 나타내었다. 이 그림은 외부 중성자원은 계속 존재하고 시간  $t_1$ 에서 양의 반응도가 삽입된다고 가정했을 때 나타나는 시스템 출력의 변화를 정성적으로 보여주고 있다. 제어봉을 사용하지 않고도 시스템을 정지시킬 수 있는 가속기 구동 미임계 시스템의 이러한 특징은 설계나 제어, 안전성 등에서 매우 유리하기 때문에 소멸처리로 뿐만 아니라 일반 상용 원자로에서도 이와 같은 가속기를 이용하는 제안도 나오고 있다<sup>(18)</sup>.

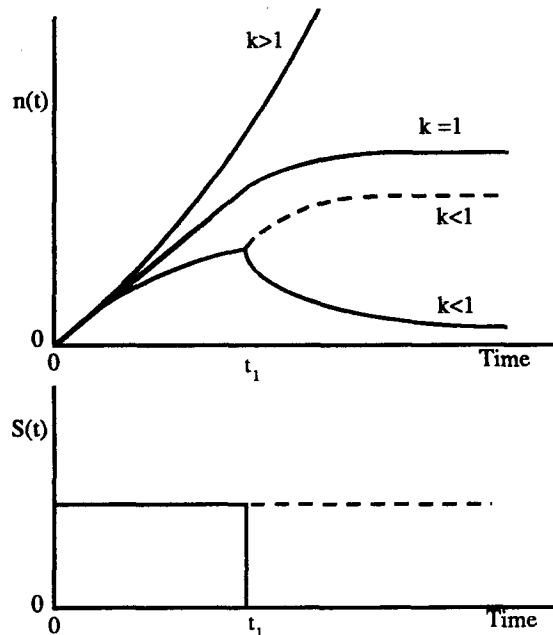


그림 6. 외부중성자원에 따른 시스템 중성자밀도 변화

가속기 구동 미임계 시스템은 냉각재 시스템을 갖추고, 핵분열성 물질을 양성자빔 표적물질 둘레에 배치시킴으로써 이루어진다. 이와 같은 시스템의 설계에서 표적물질로서 순환하는 Pb-Bi가 제안되고 있는데, 이는 표적물질에서 나오는 높은 열을 제거하기 위함이다.

파쇄중성자를 외부중성자원으로 하는 미임계 시스템에서 생산되는 열출력 ( $P_{fi}$ )은 다음과 같은 식으로 정량화 할 수 있다.

$$P_{fi} = n_{sp} \frac{ak}{\nu(1-k)} \frac{i}{C} E_f \quad (4)$$

여기서  $k$ =미임계 시스템의 증배계수

$a$ =표적위치와 표적중성자에너지 분포의 중요도

(일반적으로 중심에 위치한 표적에 대하여  $a>1$ )

$\nu$ =핵분열당 방출되는 중성자의 평균 갯수

$E_f$ =핵분열당의 출력 ( $3.1 \times 10^{-10}$  W)

$n_{sp}$ =양성자당 생성되는 파쇄중성자

$i$ =양성자 전류

$C$ =양성자 전하량 ( $1.6 \times 10^{-19}$  A sec)

그림 7에는 양성자빔의 출력이 1.5 GeV, 1 mA이고, 표적은 Pb-Bi, 그리고  $a=1$ 인 경우 시스템의 출력을 미임계도( $1-k$ )에 대하여 나타내었다. 이 경우 양성자당 발생하는 파쇄중성자의 수는 50이다.  $k=1$  근처에서 상당히 높은 핵분열에너지가 생성됨을 볼 수 있고,  $k=0.97$ 이라면, 100 MW 이상의 출력이 얻어짐을 알 수 있다.

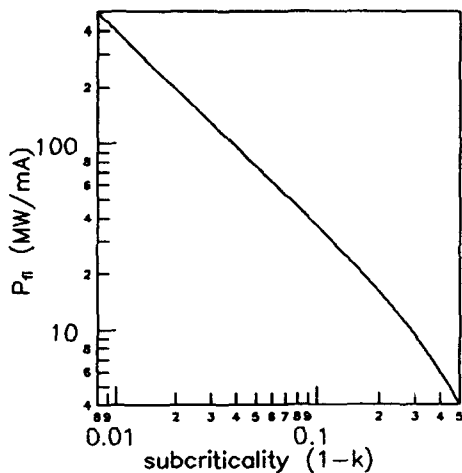


그림 7. 미임계도( $1-k$ )에 따른 시스템의 열출력(1mA, 1.5GeV 양성자빔, 양성자 하나당 50개의 파쇄중성자)

이러한 시스템의 경제성을 따질 때 시스템에서 생성되는 에너지로써 시스템구동에 필요한 에너지를 얻을 수 있는지의 여부가 중요하다. 식 (5)는 생성된 모든 중성자를 소멸처리에 이용할 수 있다는 가정하에서 핵분열 생성물질 중  $q_{fp}$  비율 만큼을 소멸처리 하는데 요구되는 에너지를 나타낸다. 여기서  $E_{fp}$ 가 양이면 전체 시스템에서 에너지의 생산이 있음을 나타내고,  $E_{fp}$ 가 음수이면 외부에서 에너지를 가해주어야 함을 의미한다.  $E_{fp}$ 의  $k$ 에 따른 변화를 그림 8에 표시하였다.

$$E_{fp} = \frac{n_{sp} \frac{k}{\nu(1-k)} E_f - \frac{P_b}{\eta_b \eta_T}}{n_{sp} \left[ \left(1 - \frac{k}{\nu}\right) \eta_{fp} + \frac{k}{1-k} \left( \left(1 - \frac{k}{\nu}\right) \eta_{fp} - \frac{q_{fp}}{\nu} \right) \right]} \quad [MW]$$

여기서

$$\eta_{fp} = \frac{\Sigma_a(FP)}{\Sigma_a(FP + FUEL + Struct. Mat.)} \quad (5)$$

이다. 그리고  $P_b$ 는 양성자빔 에너지이며  $\eta_b$ 는 전기를 양성자빔 에너지로 전환시킬 때의 효율을 나타내고,  $\eta_T$ 는 시스템에서 발생하는 열에너지를 전기에

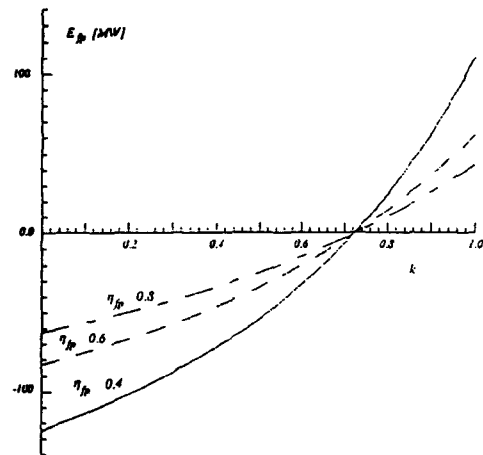


그림 8. 핵분열 생성물(Tc-99, I-129, Cs-137, Sr-90, Zr-93) 28.5%를 핵변환시키는데 필요한 에너지 ( $P_b=1000$  MeV,  $n_{sp}=34.3$ ,  $\eta_b=0.5$ ,  $\eta_t=0.33$ ,  $q_{fp}=0.285$ )

너지로 전환할 때의 열효율이다. 식 (5)에서  $E_{fp}$ 가 양수가 되는 조건(Break-Even Condition)을 찾으면 다음과 같다.

$$k \geq \frac{1}{1 + \frac{n_{sp} E_f \eta_b \eta_T}{P_b \nu}} \quad (6)$$

식 (6)에서 Break-Even 조건은 빔의 전류와 관계가 없음을 알 수 있고, 시스템의 특징에도 크게 의존하지 않음을 보여주고 있다. 만약 양성자빔이 1-2 GeV이라면, 위의 조건에 의하여  $k$ 가 약 0.75 보다 커야 하고, 그렇다면 소멸처리 시스템에서는 소멸처리 뿐만 아니라 전력도 생산할 수 있다는 것을 의미한다. 그러나 처리가능한 방사성핵종의 양은 시스템의 출력에 의존하기 때문에 식 (4)에서 보듯이 양성자빔의 전류에 따라 달라진다. 지금까지의 분석에서 보듯이 가속기 구동 방식의 미임계 시스템은, 비록 매우 단순한 분석에 의한 것이기는 하지만, 경제적인 소멸처리를 할 수 있는 것으로 판단된다.

최근에 가속기 구동 미임계 시스템 개념에 근거한 매우 다양한 소멸처리 시스템들이 제안되었는데, 이들은 소멸처리에 주로 사용하는 중성자의 에너지에 따라 속중성자 시스템과 열중성자 시스템으로 구분될 수 있다.

#### 4.2.1. 속중성자 시스템<sup>[2, 16, 19]</sup>

가속기 구동방식의 시스템은, 속중성자를 이용하는 소멸처리 원자로방식에서와 같이, 악티나이드의 속중성자에 대해서 핵분열단면적은 증가하고 흡수단면적은 감소한다는 사실에 근거한다. 따라서 속중성자 시스템은 주로 악티나이드의 핵분열에 의한 소멸처리에 이용될 수 있다. 그러나 감속재 역할을 하는 중성자 반사체 영역에서는 열중성자에 의해서 핵분열생성물도 핵종변환이 가능하다.

속중성자 시스템의 일반적인 특징은 미임계 assembly의 증배계수에 주로 의존한다는 것이며, 따라서 많은 양의 악티나이드 연료를 필요로 한다. 그러나 다량의 악티나이드는 강력한 외부중성자원을 필요로 하지 않기 때문에 결과적으로 요구되는 양성자빔 전류의 크기가 작아도 된다는 특징이 있다.

미임계 assembly와 가속기를 결합하는 형식의 악티나이드 소멸처리 시스템의 최초의 개념적인 설계

는 BNL-JRC<sup>[19]</sup>에 의한 것이다. 이 시스템은 사이클로트론을 다단계-병렬연결하는 방식의 양성자빔 가속기를 이용하는 것으로서 그림 9에 개괄적인 구성을 나타내었다.

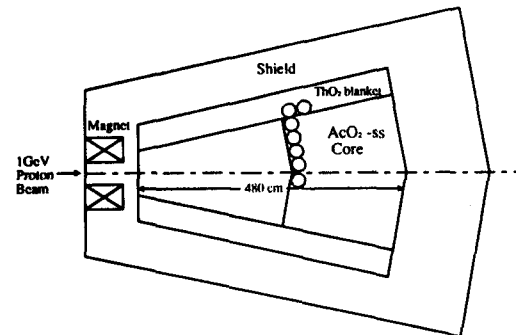


그림 9. BNL-JRC에서 제안한 미임계 시스템의 개념도

가속된 빔은 시스템 출력의 평탄화를 위하여 빔확산 영역의 입구에서 자석에 의하여 분산된다. 이 시스템은, 그림에서 보듯이, 양성자빔이 충돌하는 표면으로부터 중성자의 누수가 크다는 단점이 있는데, 누수된 중성자를 효과적으로 이용하기 위하여 빔확산영역 주위에 핵분열성 물질로의 변환이 가능한 물질의 blanket을 설치하여 핵분열성 물질을 생성할 수 있도록 하는 방식이 도입되었다. 한편, 속중성자 시스템이라는 특징 때문에 핵분열생성물의 핵종변환이 어렵지만 금속수소화합물(Metal Hydride) 혹은 금속중수소화합물(Metal Detouride)로 이루어진 반사체 영역에서 열의 중성자속을 이용하여 이들을 처리하는 방법이 연구되었다.

Na 냉각방식과 He 냉각방식 시스템에 대한 결과를 표 8<sup>[16]</sup>에 정리하였다. 소멸처리효과는, 빔의 에너지와 전류에 따라 다르지만, 10개의 1000 MWe 발전소의 악티나이드를 He 냉각 시스템에서 처리하는데 요구되는 빔전류는 5-15 mA로서 꽤 작은 값임을 알 수 있다. 한편, 이 시스템은 부산물로서 U이나 Th blanket에서 핵분열성 물질을 연간 100 kg 생산할 수 있고, 가속기를 구동하는데 요구되는 전력 40-70 MW 보다 큰 230-260 MW의 전력을 생산할 수 있는 것으로 주장되었다.

위의 시스템 외에도 JAERI에서 OMEGA 계획의 일환으로서 가속기 구동 미임계 시스템에 대한 연구

표 8. Na 및 He 냉각 시스템의 성능 비교

Coolant	$k_{\text{eff}}$	Proton Beam Power	Beam Current mA			Reactor Power	$^{233}\text{U}$ Production
		MW	1GeV	2GeV	3GeV	MW <sub>t</sub>	kg
Na	0.90	27.9	27.9	14.0	9.3	900	85
He	0.95	13.	13.0	6.5	4.3	900	103

도 심도있게 수행하였는데, 그 결과로서 비균질 및 균질 미임계 시스템의 개념을 제시하였다. 또한 BNL에서는 PHOENIX<sup>(2)</sup>라는 시스템을 제안하였다.

#### 4.2.2. 열중성자 시스템<sup>(11,16,20)</sup>

악티나이드와는 달리 핵분열생성물(Cs, I, Tc, Sr)은 속중성자에 대해서 흡수단면적이 매우 적은 반면, 열중성자에 대해서는 상대적으로 크다. 그림 10에는 Tc(반감기= $2 \times 10^5$  yr)와 I(반감기= $1.6 \times 10^7$  yr)의 열중성자속과 속중성자속에서의 반감기의 변화를 보여준다. 이 그림은 Tc의 흡수단면적은 열 및 속중성자에 대해서 20 b와 0.2 b으로, I의 경우에는 31 b와 0.2 b으로 가정하여 얻어진 결과이다. 그림에서 알 수 있듯이 핵분열생성물을 효과적으로 소멸처리하기 위해서는 고밀도의 열중성자속이 필요하다.

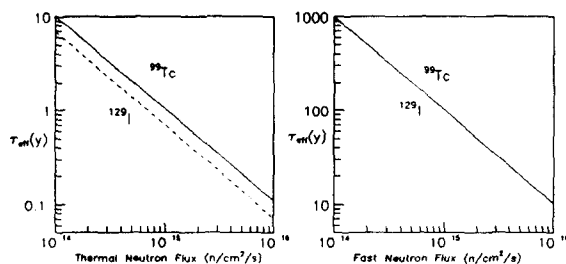


그림 10. 열 및 속중성자속에 대한 Tc-99와 I-129의 반감기 변화

한편, 핵분열생성물 중 Cs-137과 Sr-90은 열중성자에 대해서도 흡수단면적이 매우 적어서 (Cs : 0.1 b, Sr : 1 b) 열중성자 시스템에서도 단반감기 핵종으로 변환시키기가 쉽지 않다. Cs-137의 경우 붕괴율을 자연적인 붕괴율 보다 10배로 증가시키기 위해서

는  $10^{17}$  n/cm<sup>2</sup>sec의 열중성자속이 요구된다. 열중성자속을 이용하여 핵분열생성물만을 핵변환시키는 시스템으로서 Takahashi<sup>(20)</sup>가 제안한 것이 있다. 이 시스템에서는 표적에서 발생한 파쇄중성자를 표적을 둘러싸고 있는 Cs-137과 Sr-90과 D<sub>2</sub>O와 Sr-90과 D<sub>2</sub>O 영역에서 감속시켜 열중성자로 만든다. 그의 결과에 의하면 Cs-137과 Sr-90은 중성자 포획단면적이 매우 적어서 효과적인 소멸처리를 위해서는 다량의 핵분열 생성물을 장전해야 할 필요성이 있다. 그러나 다량의 핵분열 생성물을 장전하는 것은 안전성 관점에서 볼 때 바람직스럽지 않은 것으로 판단된다.

열중성자 시스템의 대표적인 예는 LASL<sup>(11)</sup>에서 제안한 것을 들 수 있는데, 이는 납을 표적으로 하는 양성자빔 선형가속기를 사용하는 것으로서, 전체 시스템의 구성도를 그림 11에서 볼 수 있다. 이 시스템에서는 양성자빔의 표적으로서 노심을 통하여 흐르는 납을 사용하는데, 이는 냉각재로 냉각을 시키는 고정된 표적인 경우 문제가 될 수 있는 열전달의 한계를 극복하기 위함이다. LASL 미임계 시스템의 노심은 세 영역으로 나누어 지는데, 내부영역은 감속재인 중수로 되어있다. 이 영역에서는 중수의 감속효과 때문에 열외에너지 영역의 중성자속이 많아 지므로, Cs와 Sr은 열외 중성자에 대해서 흡수공명을 일으킬을 고려할 때 이들의 소멸처리에 효과적인 영역이다. 중간영역은 마이너 악티나이드의 소멸처리를 위한 것이며, 용융소금으로 되어 있으며 소멸처리할 악티나이드는 용융소금에 용해시킨 상태로 되어 있다. 바깥영역은 역시 중수로 되어 있으며 반사체로 작용하거나 천연 U이나 Th으로 부터 핵분열성 물질을 생산하는데 이용될 수도 있다.

이 시스템의 주된 특징 중의 하나는 열중성자를 이용한 악티나이드의 소멸처리 방법이다. 악티나이드의 중성자 흡수는 새로운 악티나이드를 만드므로 이

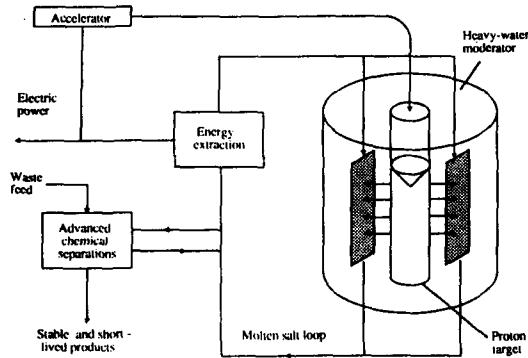


그림 11. LASL 미임계 시스템의 개념도

들의 소멸을 위해서는 핵분열과정을 이용해야 한다. 그러나 열중성자에 대한 악티나이드의 핵분열단면적보다 훨씬 큰 흡수단면적은 열중성자를 이용한 악티나이드의 소멸처리를 비효과적하게 하는 것으로 보인다. 그러나  $Np-237$ ,  $Am-241$ 과 같은 악티나이드가 중성자를 흡수하여 만들어지는 새로운 악티나이드의 성질을 이용하면 악티나이드의 열중성자속에서의 소멸처리가 가능하다. LASL에서 고려하는 악티나이드의 핵분열과정은 소위 2단계 흡수과정이라 불리며,  $Np-238$ 의 핵분열 단면적이 열중성자속에서는  $2038 \text{ b}$ 으로서 매우 크다는 사실에 근거한다.  $Np-237$ 의 중성자흡수는  $Np-238$ 을 생성하는데,  $Np-238$ 은 열중성자속이  $1 \times 10^{16} \text{ n/cm}^2\text{sec}$  정도이면  $1/\lambda \approx 0.5 \text{ [days]}$ 의 연소주기를 가져온다. 한편  $Np-238$ 은  $2.1 \text{ [days]}$ 의 반감기로  $Pu-238$ 로 붕괴하는데, 고밀도 열중성자속에서는  $Np-238$ 은  $Pu-238$ 로 붕괴하기 보다는 대부분의 경우 또 다른 중성자를 흡수함으로써 핵분열을 일으키게 된다.  $Np-238$ 의 핵분열시 2.9개의 중성자가 방출되므로 흡수된 두 개의 중성자를 고려할 때  $Np-237$ 은 고밀도 열중성자속에서는 핵연료로 쓰일 수 있으며, 따라서 핵분열을 통하여 효과적으로 소멸처리가 가능함을 알 수 있다. 그러나 만약 중성자속이 낮다면,  $Np-238$ 은  $Pu-238$ 로 붕괴하고,  $Pu-238$ 은 중성자를 흡수함으로써  $Pu-239$ 로 되어 2.9개의 중성자를 방출하는 핵분열을 하게 된다. 그렇지만  $Np-237$ 에서  $Pu-239$ 로 되는 과정에서 흡수된 중성자의 수와 방출되는 중성자의 수를 비교할 때,  $Np-237$ 은 낮은 열중성자속에서는 연료로 사용될 수 없음을 알 수 있다. 또 다른

주요한 악티나이드인  $Am-241$ 도 이와 비슷한 과정을 통하여 고밀도 열중성자속에서는 연료로 쓰일 수 있음을 알 수 있고, 따라서 열중성자 시스템에서 소멸처리가 가능함을 LASL 보고서는 보여주고 있다.

LASL에서는 위의 시스템을 이용하여 악티나이드와 핵분열생성물의 소멸처리 뿐만 아니라, 재처리를 위한 비용을 상쇄하기 위해서 전력을 생산하는 경우도 고려하고 있는데, 이 때는 중성자의 경제성을 높이기 위해서 악티나이드 연료에  $Pu$ 를 첨가해야 한다. LASL의 계산에 따르면,  $k=0.81$ 이라면 제안된 시스템은 충분한 안전여유도를 가지고 운전될 수 있음을 보여주고 있고, 만약 가속기의 출력이  $1.6 \text{ GeV}$ 와  $13 \text{ mA}$ 이라면, 하나의  $3 \text{ GW}_t$  원자로에서 나오는 악티나이드와 핵분열생성물을 처리할 수 있을 뿐만 아니라  $1060 \text{ MW}_t$ 의 열출력을 생산할 수 있는 것으로 보고하고 있다. LASL에서 연구한 소멸처리 시스템은 열중성자를 이용하기 때문에, 비슷한 정도의 소멸처리 능력을 가지는 속중성자 시스템과 비교할 때, 약  $1/100-1/1000$  정도의 악티나이드 만을 필요로 하는 것으로 나타난다.

그러나 이러한 고밀도 열중성자 시스템의 경우 중성자조사에 의한 구조물질의 피해나 방사화 등에서 심각한 문제를 초래할 수 있는 것으로 지적되고 있다. 또한 LASL 시스템과 같이 용융소금에 용해된 악티나이드 연료가 미임계 시스템을 판통하여 흐르는 방식은, 비록 소멸처리 시스템 자체에서 폐기물의 화학적인 재처리와 주입등을 할 수 있다는 장점이 있지만, 화학적인 재처리에 관계되는 방사화분석에서 매우 세심한 주의를 요한다. 한편, 악티나이드 연료가 노심을 통하여 흐르는 방식이기 때문에 악티나이드 연료가 항상 노심내부에 있지 않게 된다. 이와 같은 특징은 속중성자 시스템에서는 소멸처리효율을 감소시키는 요인이 될 수 있는데, 고밀도의 열중성자 시스템에서는 악티나이드의 수명이 매우 짧아 별 문제가 되지 않는 것으로 나타나고 있다. 오히려 악티나이드 연료를 필요시 적절하게 주입할 수 있는 장점이 될 수 있음을 LASL 연구 보고서는 보여주고 있다.

## 5. 요약 및 결어

원자력 발전소에서 나오는 MA와 핵분열생성물로

이루어진 고준위 방사성핵종의 소멸처리 기술의 두 주류인 원자로를 이용하는 방법과 가속기 구동 미임계 시스템을 이용하는 방법을 소개하고 기술적인 문제점을 고찰하였다. 소멸처리기술의 주요한 현안을 요약하여 정리하면 다음과 같다.

MA와 핵분열생성물의 핵특성이 다르기 때문에 이들의 소멸처리를 위해서는 먼저 군분리가 이루어져야 하며, 분리효율을 현재의 값보다 향상시켜야 함이 요구되고 있다. 또한, 고준위 방사성물질인 이들의 분리공정에서는 기존의 차폐시설보다 더 강력한 차폐설비가 필요하고, 도중에 이들 물질의 누수가 없도록 세심한 주의가 있어야 할 것이다.

원자로를 이용하는 소멸처리 방법은 지금까지 제안된 대부분의 시스템이 MA의 처리를 주목적으로 하고 있으며, MA 원소의 직접 핵분열에 의한 소멸 과정에 기초하기 때문에 매우 강한 중성자 스펙트럼과 고밀도의 중성자속을 가져야 함이 일차적인 특징이다. 이러한 특성 때문에 기존의 발전로에 MA를 소량 재순환시키는 방식으로는 소멸처리 효과가 없는 것으로 판단되며, MA 전용 소멸처리로가 가장 타당성과 경제성이 있는 것으로 나타나고 있다. 그러나 이러한 소멸처리 전용 원자로에서는 MA 만을 연료로 하는 경우 문제가 되는 연소에 따른 반응도의 큰 변화와 기존의 원자로에 비하여 매우 작은 Doppler 계수와 중성자수명, 그리고 Na을 냉각재로 사용할 경우 양의 Na 기공계수가 나타나는 것이 원자로 핵특성의 주된 문제점이다. 그렇지만 현재의 고속로 기술을 감안할 때, 소멸처리로의 실현을 위한 기술상의 문제는 해결이 가능할 것으로 보인다. 한편, 원자로를 이용하는 소멸처리 방법에서는 핵분열 생성물의 처리방법에 대하여는 연구가 별로 없는데, 이들 원소의 유출에 의한 환경파괴 가능성이 MA보다 크다는 점을 생각할 때, MA 뿐만 아니라 핵분열 생성물의 소멸처리에 대한 연구도 동시에 이루어져야 한다고 본다.

가속기에 의하여 구동되는 미임계 시스템인 경우는, 노심 자체가 미임계이고, 노심의 제어가 입자빔 전류를 제어함에 의해서 가능하기 때문에, 원자로를 이용할 때 심각한 노심의 안전성과 제어면에서의 문제점이 해결될 수 있다는 큰 장점이 있다. 또한 노심에서 생성되는 에너지에 의해서 가속기를 구동할 수

있으며, 여분의 에너지로 전력을 생성할 수도 있을 것으로 판단된다. 이 방법에 있어서의 주된 문제는 고에너지 입자빔과 큰 빔전류가 요구되며, 이러한 개념의 원자로에 대한 경험이 전무하다는 것이 가장 큰 문제점으로 보인다. 그렇지만 소멸처리에 요구되는 가속기는 현재의 가속기 기술을 고려하면 기술상의 문제는 해결될 수 있을 것으로 보이며, 또한 이용 방법에 따라서 적은 전류의 가속기로도 소멸처리가 가능할 것으로 생각된다. 비록 가속기를 이용하는 방법이 실현되기 위해서는 현재로서는 막대한 투자와 장시간의 연구가 필요하겠지만, 보다 안전한 원자로에 대한 비등하는 여론과 가속기 구동 미임계 시스템의 기술적인 타당성을 고려할 때, 가속기 구동 방식의 소멸처리 시스템에 대한 보다 심도있는 연구가 진행되어야 할 것이다. 뿐만 아니라 이와 같은 개념을 고준위 방사성핵종의 소멸처리에서 만이 아니라 일반 발전로에도 적용하는 것에 대한 기술적인 타당성 검토도 충분히 가치가 있을 것이다.

고준위 방사성핵종의 소멸처리에 대한 연구에서 기본적인 문제 중의 하나는 MA 원소와 핵분열생성물에 대한 핵자료(Nuclear Data)의 부족과 불확실성으로 보인다. 연구결과와 신뢰성과 설계의 정확성을 위해서는 이들 원소에 대한 정확한 핵자료의 구축이 급선무인 것으로 생각된다.

많은 연구자들에 의해서 제안되고 있는 다양한 개념의 소멸처리로들은 여러가지 면에서 서로 다르게 나타나는데, 특히 가속기를 이용하는 경우에는 매우 다른 특징을 가지는 방식들이 많다. 현재로서는 이들 각 방법들은 하나의 국부적인 최적설계로 간주될 수 있겠지만, 이들을 종합하여 시스템의 안전성, 현실성, 경제성 그리고 소멸처리 효율성 등 전체적인 면에서 최적설계를 찾고자 하는 노력이 필요할 것이다.

## 참고문헌

1. S. E. Binney et al., "CURE : Clean Use of Reactor Energy," Westinghouse Hanford Report, WHCEP-0268, 1990.
2. G. J. Van Tuyle et al., "Accelerator-Driven



- Subcritical Target Concept for Transmutation of Nuclear Wastes," Nuclear Technology, 101, 1, 1993.
3. J. O. Blomeke and A. G. Croff, "Nuclear Waste Partitioning and Transmutation," Nuclear Technology, 56, 361, 1981.
  4. T. Inoue et al., "Development of Partitioning and Transmutation Technology for Long-Lived Nuclides," Nuclear Technology, 93, 206, 1991.
  5. G. J. Van Tuyle et al., "The PHOENIX Concept: Proposed Transmutation of Long-Lived Radioactive Wastes to Produce Electric Power," BNL 52279, Brookhaven National Laboratory, 1991.
  6. L. Burris et al., "A Proposed Pyrometallurgical Process for Rapid Recycle of Discharged Fuel Materials from the Integral Fast Reactor," Proc. Int. Topl. Mtg. Fuel Reprocessing and Waste Management, Jackson Hole, Wyoming, August 26-29, Vol. 2, 1984.
  7. 向山武彦, "原子炉による消滅処理とし燃料サイクル," 新型炉燃料サイクル, p. 127, 1992.
  8. 이명찬 외, "방사성 폐기물 소멸처리 기술의 현황과 전망," Journal of the Korean Nuclear Society, 24, 329, 1992.
  9. 向山武彦, "核廃棄物の消滅処理の現状と展望," Isotope News, 5 月号, 1990.
  10. T. H. Pigford, "Reprocessing Incentives for Waste Disposal," Trans. Am. Nucl. Soc., 62, 97, 1990.
  11. C. D. Bowman et al., "Nuclear Energy Generation and Waste Transmutation Using an Accelerator-Driven Intense Thermal Neutron Source," Nuclear Inst. and Methods in Physics Research A320, p. 336, 1992.
  12. C. Till and Y. Chang, "Actinide Recycle," MIT International Conference on the Next Generation of Nuclear Power Technology, October 1990.
  13. R. A. Doncal et al., "Transmutation of Nuclear Waste," Proceedings of the 3rd International Topical Meeting on Nuclear Power Plant Thermal Hydraulics and Operations, Vol 2, p. B3-44, November 1988, Seoul, Korea.
  14. T. Mukaiyama et al., "Minor Actinide Transmutation Using Minor Actinide Burner Reactors," International Conference on Fast Reactor and Related Fuel Cycles, October 28-November 1, 1991, Kyoto, Japan.
  15. H. B. Choi and T. Downar, "The Neutronics Design and Analysis of a Liquid Metal Reactor for Burning Minor Actinides," Topical Meeting on Advances on Reactor Physics, Vol. I, p. 339, March 8-11, 1992, Charleston, S.C.
  16. H. Takahashi and H. Rief, "Concepts of Accelerator Based Transmutation Systems," The Specialist Meeting on Accelerator-Based Transmutation, Switzerland, March 23-26, 1992.
  17. A. M. Weinberg, "Future of Nuclear Energy," Physics Today, 34(3):48-56, 1981.
  18. Yu. V. Petrov, "Technical Note: A New Approach to Fission Reactor Safety," Nuclear Safety, 33, 1, 1992.
  19. P. Bonnaure et al., "Actinide Transmutation by Spallation in the Light of Recent Cyclotron Development," The 4th International Conference on Emerging Nuclear Energy Systems, Madrid, 1986, and NEACRP-A-910, 1987.
  20. H. Takahashi et al., "Use of the Linear Accelerator for Incinerating the Fission Product of Cs-137 and Sr-90," International Conference on Nuclear Waste Transmutation, The University of Texas (Austin), July 22-24, 1980.