

HYPER를 이용한 Tc-99과 I-129의 핵종변환

Transmutation of Tc-99 and I-129 in the HYPER System

정중성, 김창효

서울대학교

서울특별시 관악구 신림동 산 56-1

김용희, 박원석

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

장수명 핵분열생성물인 Tc-99와 I-129를 고속중성자 시스템인 HYPER 시스템에서 효과적으로 핵변환시킬 수 있는 핵분열생성물 집합체를 설계하였다. 핵분열 생성물의 효과적인 핵변환은 열중성자를 요구하며 이는 기존 노심의 국부 출력인자 상승을 유발할 수 있다. 다양한 형태에 대한 비교연구가 수행되었으며 그 결과 핵분열생성물 집합체의 장전에 따른 주변 핵연료집합체의 침투출력을 제어하기 위해서는 Tc-99를 판의 형태(두께=1.9cm)로 외곽에 장전하고 그 내부에 감속재와 I-129를 혼재하여 장전하는 방식이 적절한 것으로 평가되었다. 설계된 핵분열 생성물 집합체는 HYPER 노심에서 Tc-99에 대해서는 약 6.41%/yr의 핵변환율을 그리고 I-129에 대해서는 약 13.88%/yr의 핵변환율을 보였다. 설계된 핵분열 생성물 집합체에 대한 안전변수의 평가 결과 주변 핵연료 집합체의 최대 붕 침투출력은 1.232로서 허용 가능한 값이었고 기공계수는 기준노심보다 보다 음으로 하는 장점이 있었다. 또한 도플러계수는 약간 악화시키는 것으로 평가되었다.

Abstract

The design optimization of FP Assembly(target) is performed to maximize the transmutation of Tc-99 and I-129 in the HYPER system. The localized thermal flux is obtained by inserting some moderators such as CaH₂. Many types of assembly configurations are investigated. The configuration where Tc-99 is loaded as a plate type in the outermost

region and I-129 is loaded as rod type alternatively with moderating(CaH_2) rod in the inner region is believed to be the most optimum in terms of transmutation rate and core power peaking increment. The designed FP assembly configuration is estimated to have the transmutation rate of 6.41%/yr and 13.88 %/yr for Tc-99 and I-129, respectively. It shows the local power peaking of 1.232 which is within the acceptable range. The configuration makes the core coolant void coefficients more negative but the doppler coefficient less negative.

1. 개 요

HYPER(HYbrid Power Extraction Reactor)시스템은 가속기 미임계 시스템으로서 사용후 핵연료에 내재한 장수명의 핵종들을 소각 또는 핵변환시키는데 주목적을 가지고 있다. 특히 장수명의 핵분열생성물(FP) 중 HYPER시스템에서 핵변환시키고자 하는 핵종은 Tc-99와 I-129로서, 이들을 집합체(핵분열생성물 집합체, FP 집합체)의 형태로 노심내에 장전하계끔 설계가 되고 있다[1].

현재까지 Tc-99의 핵변환에 대한 다양한 연구가 있었다. 프랑스에서 수행된 장수명 핵분열생성물의 연소에 대한 연구에 따르면 Na를 냉각재로 사용하는 임계고속로에서는 3.53톤의 Tc-99를 장전하여 연간 약 90kg(약 2.5%)을 핵변환시킬 수 있음을 보여준다.[2] 그리고 MIT에서는 Pb-Bi를 냉각재로 사용하는 고속중성자 초우란 원소 핵변환로를 설계하였으며, Tc-99의 핵변환 능력에 대한 다양한 평가를 수행한 바 있다.[3] 또한 미국에서 개발되고 있는 가속기 구동 미임계로인 ATW는 매우 높은 Tc-99 연소율을 가진 것으로 알려져 있다.

현재 HYPER 노심에서 선정된 FP 집합체의 개념은[4], Tc-99와 I-129의 핵변환 효율을 증가시키기 위해서 핵분열생성물 집합체 내에 국부적으로 연화된 중성자 스펙트럼을 만드는 것이다. 그리고 연화된 스펙트럼이 FP집합체 주변의 핵연료집합체에 미치는 영향(침투출력)을 최소화하기 위해서 FP가 감속재(CaH_2)를 둘러싸고 있는 방식을 취하도록 개념을 정립하였다.

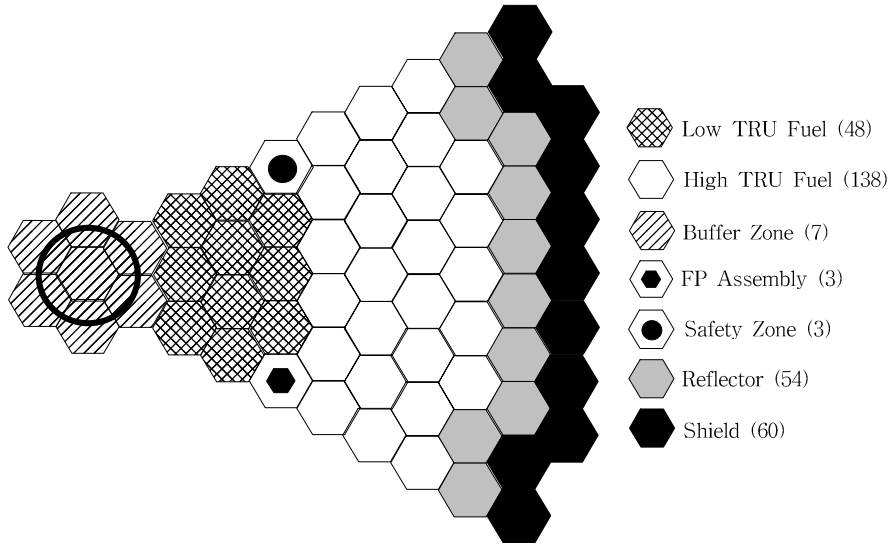
이에 본 논문에서는 앞서 연구된 FP 집합체의 개념에 기초하여 Tc-99와 I-129 핵변환을 최적화 시키는 구체적 설계를 수행하였고 이를 바탕으로 FP 집합체의 장전이 노심특성에 미치는 영향을 분석하기 위해 선정된 노심에 대한 안전변수(노심 침투출력, 기공계수,도플러계수)를 평가하였다.

2. Tc-99의 장전방식

<그림 1>은 1/6대칭에 근거한 HYPER노심을 보여준다. 출력 평탄화를 위해서는 노심은 두 개의 서로 다른 TRU무계비를 가지는 영역으로 구분되어 있다. 노심에 장전된 TRU의 무게분율은 내부영역이 22.5%, 외부영역이 26%이다. 계산시간 단축을 위해 모든 핵연료집합체는 부피비에 근거하여 균질화하였다. 그러나 FP 집합체 주변의 핵연료집합체의 경우에는 국부적인 침투출력 평

가를 위해 연료봉 단위로 모델링하였다.

계산을 위한 전산코드로서 MCNAP을 이용하였고 분석은 임계모드 계산방식을 취했으며, ENDF-B/VI에 기초한 핵자료(온도:300K 가정)를 사용하였다.



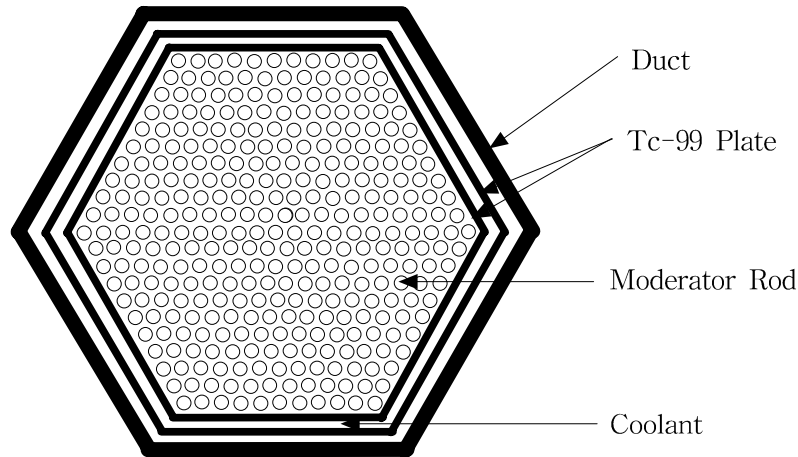
<그림 1> Pb-Bi 냉각 1/6 HYPER 노심 모델(186 핵연료집합체)

FP 집합체 내부에 중성자 감속영역을 도입하는 개념은 심각한 침투출력의 증가를 유발할 수 있다.[4] 따라서 본 연구에서 취한 방식은 내부 감속방식으로서 감속재를 내부에 장전하고 그 외곽을 핵분열 생성물로 감싸는 방식이다. 이 경우 핵분열 생성물은 외부에서 핵분열 생성물 집합체로 유입되는 고속중성자에 대해서는 걸림돌이 되지 않지만 내부에서 생성되어 외부로 유출되는 열중성자에 대해서는 차폐막을 형성하여 주변의 핵연료 집합체 침투출력 증가를 어느 정도 낮추어줄 수 있다. 그러나 이러한 내부 감속방식도 I-129 (NaI 화합물 형태로 장전)에 대해서는 침투출력을 설계값 이하로 낮추는 데는 문제가 있음이 발견되었다. 따라서 I-129과 Tc-99을 혼합 형태로 하되 I-129을 내부에 Tc-99을 외곽에 하는 방식이 최적임을 평가할 수 있었다.

Tc-99과 I-129의 혼합 집합체 설계에 앞서서 내부에서 생성된 열중성자 차폐 측면에서 관형 Tc-99의 차폐 특성 평가를 수행하였다. <그림 2>는 Tc-99 핵변환을 위한 개념적인 핵분열 생성물 집합체를 보여준다. 이 개념은 감속재에 의해서 FP 집합체 내부에서 생성된 열중성자가 주변의 핵연료집합체로 누설되는 것을 최소화시키기 위해 Tc-99을 관형으로 설치하였다. 내부 봉 (NAI 또는 감속재)의 격자는 장전량 극대화를 위해 육각배열을 이용하였고 P/D비율은 열생성을 매우 낮은 관계로 핵연료봉의 P/D=1.5보다 훨씬 작은 1.19를 적용하였다.

<표 1>은 Tc-99이 약 30% 연소되었다는 가정하에 Tc 판의 두께에 따른 주변의 핵연료집합체 내의 침투출력을 보여주고 있다. 여기서 Case 1은 감속재가 없이 Tc-99가 봉 형태로 FP 집합체 전 영역에 장전된 경우이고, Case 2는 0.5cm 두께의 Tc판을 외곽에 하나 장전한 경우이며, Case

3은 0.5cm 두께의 Tc판 3개를 연속적으로 외곽에 설치한 경우이다. 그리고 Case 4는 1.2cm 두께의 Tc 판 두 개를 사용한 경우이다. <표 1>에서 보여주듯이, Tc 판의 두께가 얇을 경우 주변의 국부적인 침투출력은 매우 크게 증가하고 있음을 알 수 있다. 이것은 FP 집합체에서 생성된 열중성자의 상당부분이 외부의 핵연료집합체로 누설되고 있기 때문이다. 따라서 HYPER 노심에 장전할 수 있는 FP 집합체의 형태는 Case 1(FPA-1로 명명)과 같은 Tc 봉만을 사용하는 경우와 Case 4(FPA-2로 명명)처럼 2.4cm 두께의 Tc 판을 외곽에 설치한 경우이다.



<그림 2> Tc-99를 판형으로 외곽에 장전한 내부감속 FP 집합체

<표 2>는 FPA-1과 FPA-2 집합체를 HYPER 노심에 장전했을 때의 노심 내 Tc-99의 재고량 변화 및 핵변환 성능을 나타낸다. 결과에서 Tc-99의 초기장전량은 FPA-1이 FPA-2보다 약간 많지만, 1년 동안의 핵변환율은 FPA-1의 경우 4.86%인데 비해 FPA-2의 경우는 6.09%임을 볼 수 있다. 이것은 FPA-2의 경우 감속재 장전이 Tc-99의 유효단면적을 증가시켰기 때문이다. 따라서 핵변환 성능 관점에서 FPA-2 집합체의 형태가 유리하다고 할 수 있다. 결과적으로 핵분열 생성물(Tc-99) 핵변환을 위해서는 감속재 투입이 보다 효과적이고 그 경우 최외곽에 설치된 판형 Tc-99는 노심의 침투 출력증가를 막는 데 상당히 효과적임을 알 수 있다.

<표 1> Tc 판 두께에 따른 주위 핵연료집합체 침투출력 변화

	Tc 판 두께 (질량)	감속재 환 개수	최대 침투출력*
Case 1	547개 Tc 봉 (573.8 kg)	0 (P/D=1.19)	1.158
Case 2	0.5 cm (93.21 kg)	13 (P/D=1.19)	3.763
Case 3	1.5 cm (254.5 kg)	11 (P/D=1.19)	1.685
Case 4	2.4 cm (386.0 kg)	10 (P/D=1.19)	1.193

(*: Case 2~4의 Tc-99는 30% 연소를 가정했음)

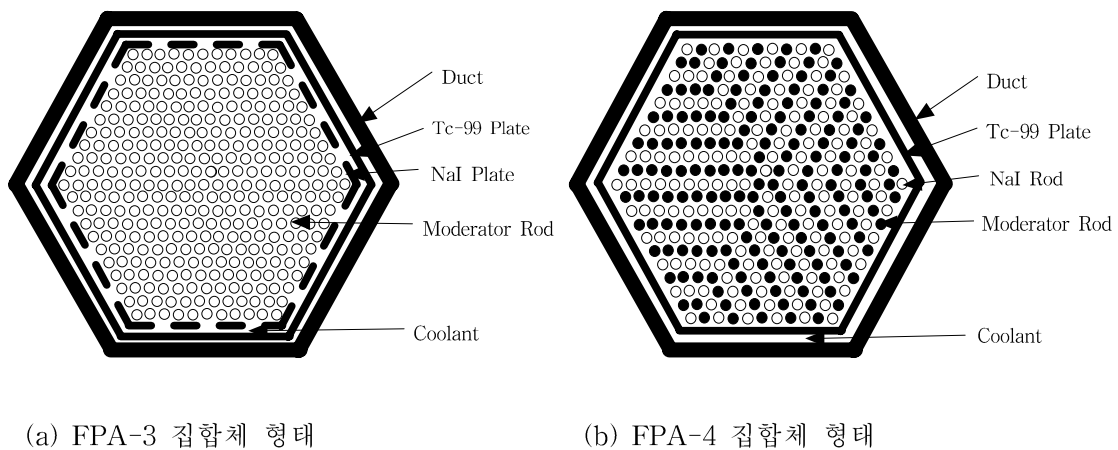
<표 2> FPA-1과 FPA-2 집합체를 장전한 HYPER 노심의 Tc-99 핵변환 성능

FP 집합체 형태	초기 Tc-99 장전량(kg)	1년후 Tc-99 잔존량(kg)	평균 핵변환율 [%/yr(kg)]
FPA-1	573.818	545.944	4.86(27.87)
FPA-2	543.688	510.604	6.09(33.08)

3. 핵분열 생성물 집합체 설계 특성

3.1 핵변환 특성

Tc-99와 I-129를 동시에 장전하는 경우는 2가지 방식을 취하였다. 즉 FPA-3은 Tc-99를 FPA-2에서처럼 FP 집합체의 외곽에 장전하고, 그 내부에 NaI 판을 장전하는 형태이고, FPA-4는 NaI를 감속재 봉과 혼재하여 위치시키는 개념이다.(<그림 3> 참조) FPA-3 집합체의 형태는 I-129의 포획단면적을 증가시키면서 동시에 장전량을 극대화하기 위함이고, FPA-4 집합체 형태는 NaI를 판의 형태로 장전함에 따라 발생하는 자체차폐 현상을 최소화하고자 하는 의도이다.



<그림 3> Tc-99와 I-129를 동시에 장전한 FP 집합체 형태

Tc-99 판의 두께는 앞에서 Tc-99만을 장전했을 때 약 2.4cm 두께의 Tc 판이 필요함을 확인하였는데, 이 경우에는 외곽의 Tc 뿐만 아니라 내부의 NaI 판(FPA-3 집합체의 경우) 또한 열중성

자 차폐제의 역할을 하기 때문에 약간 얇은 Tc 판을 장전하더라도 핵연료집합체의 침투출력을 제어할 수 있을 것을 예상할 수 있다. 특히 FPA-4의 경우 내부 감속제의 양이 많이 줄었기 때문에 외곽의 Tc 판의 두께는 2.4cm보다 작아도 될 것이다.

주위 핵연료집합체의 침투출력을 평가하기 위해서 몇가지 Tc 판 및 NaI 판 두께에 대한 평가를 수행한 결과 외곽 Tc 판의 두께는 1.9cm로 하고 내부 NaI 판(FPA-3)의 두께는 1.3cm로 결정하였고, 이에 대한 핵변환 성능을 평가하였다.

<표 3> Tc와 I를 동시에 장전한 경우의 핵변환 성능

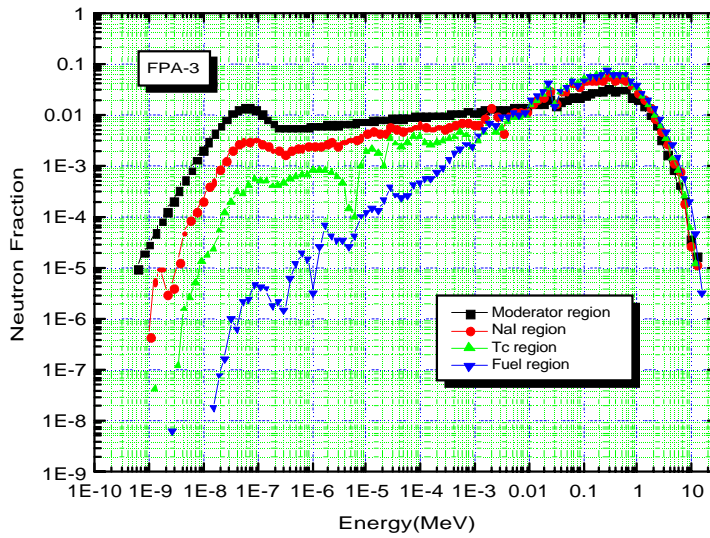
FP 집합체 형태		침투출력*	초기 장전량 (kg)	1년후 잔존량 (kg)	평균 핵변환율 [%/yr(kg)]
FPA-3	Tc-99	1.211	450.910	423.800	6.01(27.11)
	I-129		64.860	58.317	10.09(6.54)
FPA-4	Tc-99	1.232	450.910	421.993	6.41(28.92)
	I-129		46.883	40.376	13.88(6.51)

(*: Tc-99는 30%, I-129는 45% 연소를 가정했음)

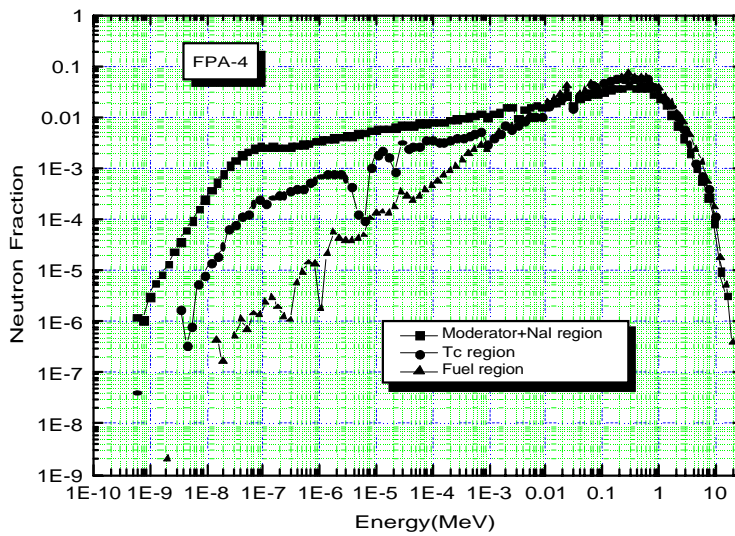
<표 3>는 FPA-3 과 FPA-4 의 집합체 형태에 대한 핵변환 성능을 보여주고 있다. <표 3>에 따르면 FPA-4가 FPA-3보다 좋은 결과를 제공하고 있다. 이는 FPA-4 방식의 경우 FP자체가 가지는 self-shielding이 감소하기 때문인 것으로 판단된다. 결론적으로 Tc-99와 I-129를 동시에 장전하는 경우 FPA-4에서처럼 NaI 봉과 감속재 봉을 혼재시키는 방식이 매우 유리하다고 할 수 있다.

3.2 안전변수 평가

전술한 바와 같이 핵분열 생성물을 효과적으로 핵변환시키기 위해 생성된 국부적 열중성자는 주변 핵연료 집합체의 침투출력 증가를 유발할 수 있다. FPA-3, 4 집합체의 중성자 스펙트럼을 그림 4, 5에 나타내었다. 그림은 FP 집합체 내부 및 반경 방향으로 외곽에서 먼 쪽에서 인접한 핵연료집합체의 평균적인 스펙트럼이다. FPA-3의 경우 내부에는 감속재 봉만이 장전되기 때문에 FPA-4에 비하여 열중성자 분율이 보다 큼을 확인할 수 있다. 그러나 FPA-4 집합체에서는 내부에 감속재와 NaI 봉이 동시에 장전되기 때문에 FPA-3에서와 같은 열중성자 영역에서의 스펙트럼이 완만하게 감소하는 특징이 있다. 두 가지 경우 모두 Tc-99 영역에서는 열외중성자 구간에서의 Tc-99의 공명흡수에 따른 스펙트럼의 갑작스런 변화를 관찰 할 수 있다. 한편 FP 집합체에 가장 가까운 핵연료봉의 중성자 스펙트럼은 상당히 연화되었음을 볼 수 있고, 이는 국부 침투출력을 증가시키는 요인이 된다. FP 집합체에서 먼 핵연료봉에서는 중성자 스펙트럼의 영향은 매우 적다. 계산결과 FPA-3은 최대 침투출력 1.211을 보였고 FPA-4는 이보다 약간 증가한 1.232를 나타내었다. 그러나 모든 경우 설계 허용 가능한 값으로 판단되었다.



<그림 4> FPA-3 집합체 중성자 스펙트럼



<그림 5> FPA-4 집합체 중성자 스펙트럼

<표 4>는 FP 집합체를 장전한 경우의 기공계수 및 도플러계수를 보여주고 있다. 감속재를 포함한 FP 집합체의 장전은 노심의 기공계수를 기준노심(FP 집합체가 없는 노심)보다 음으로 하는 장점이 있음을 볼 수가 있다. 이것은 속중성자를 이용하는 노심의 일반적인 특징의 하나로서 관찰되는 사실이다. 즉 감속재의 균일한 밀도감소는 중성자 스펙트럼의 경화를 유발하여 중성자의 누설이 증가함에 의해서 반응도가 감소하기 때문이다. 여기에 감속재를 포함한 FP 집합체를 장전하면 냉각재의 밀도가 감소하더라도 여전히 노심에 감속재가 존재하기 때문에 기공계수를 보다 음으로 하는 특성이 있다고 할 수 있다. 그러나 시스템의 도플러계수는 악화된다. 이것은 핵연료 온도의 상승에 따른 도플러 효과의 발생이 FP 집합체 내부에서의 중성자 흡수를 감소하는 요인으

로 작용하기 때문인 것으로 보인다.

<표 4> FP 집합체를 장전한 경우의 기공계수 및 도플러계수

노심 형태	정상상태	10% 기공 ¹⁾	기공계수 (pcm/%void)	연료온도 =300K	연료온도 =1100K	도플러계수 (pcm/ °K)
	k-effective (std ²⁾)	k-effective (std)		k-effective (std)	k-effective (std)	
기준노심	0.96897 (0.00050)	0.95619 (0.00048)	-138	0.96897 (0.00050)	0.96628 (0.00049)	-0.36
FPA-3 장전 노심	0.96075 (0.00049)	0.94707 (0.00051)	-150	0.96075 (0.00049)	0.95929 (0.00051)	-0.14
FPA-4 장전 노심	0.96355 (0.00047)	0.95015 (0.00051)	-146	0.96355 (0.00047)	0.96157 (0.00044)	-0.26

1) 활성노심 전체에서 냉각재 밀도의 10% 감소를 가정

2) standard deviation, 1σ

4. 결론 및 제언

Tc-99, I-129을 Pb-Bi를 냉각재로 사용하는 HYPER와 같은 고속로심에서 효과적으로 핵변환시키기 위해서는 감속재를 사용하여 중성자 스펙트럼을 연화시킬 필요가 있다. 그러나 감속재를 포함한 FP 집합체의 장전은 주위 핵연료집합체의 침투출력을 크게 증가시킬 수 있다. 이의 방지를 위해서 본 연구에서는 Tc-99를 판 형태로 FP 집합체의 외곽에 장전하고 내부에 감속재와 NaI 붕을 혼합 배치하는 형식의 FP 집합체를 연구하였으며, 이러한 방식의 FP 집합체가 국부 침투출력의 증가를 억제하면서 FP 원소의 핵변환율을 극대화할 수 있음을 확인하였다.

또한 HYPER노심에 FP 집합체를 장전하는 것이 노심특성에 미치는 영향을 분석한 결과 노심의 기공계수를 보다 음으로 하는 장점이 있음을 알 수 있었고, 도플러계수는 약간 악화시키는 것으로 평가되었다. 그러나 도플러계수의 악화는 매우 적은 양으로 시스템의 전체 안전성에는 크게 문제가 되지 않을 것으로 판단된다.

HYPER는 1000MWth 출력으로 운전되는 경우 연간 약 370kg의 TRU를 연소시킬 수 있다. 이 양은 같은 출력의 가압경수로 약 5기에서 발생하는 TRU양에 해당된다. 즉 TRU 핵변환 관점에서 HYPER의 Supporting Ratio(SR)는 약 5이다. 따라서 FP 관점에서의 SR 또한 5가 되도록 설계할 필요가 있다. 가압경수로에서 연간 발생하는 Tc-99는 약 8.826kg, I-129는 2.721kg임[5]을 감안한다면 현재의 HYPER노심의 경우 Tc-99의 SR은 2.39, I-129는 1.55 정도가 된다. 향후 Tc-99, I-129의 SR을 증가시킬 수 있는 방안이 연구되어야 할 것이다. 또한 본 연구에서는 FP 설계 및 성능 평가를 위해 임계모드 계산을 수행하였다. 그러나 정확한 분석을 위해서는 미임계 계산이 수행되어야 할 것이다.

감사의 글

본 논문은 과학기술부에서 수행하고 있는 중장기 연구사업의 일환으로 수행된 것입니다.

참고문헌

- [1] 박원석 외 4인, "HYPER 시스템 설계연구", KAERI/TR-1316/99.
- [2] H. Golfier et al., "Parametrical Analysis of ^{99}Tc and ^{129}I Transmutation in Reactor", Proc. Int. Conference on Future Nuclear Systems GLOBAL '99, Wyoming USA, 1999.
- [3] Hejzlar et al., "Conceptual Reactor Physics Design of a Lead-Bismuth Cooled Critical Actinide Burner," MIT-AHP-TR-069 (2000)
- [4] 정종성 외 3인, "미임계 핵변환 시스템 HYPER의 핵분열생성물 집합체 개념", 2000 춘계학술 발표회 논문집, 한국원자력학회, 고리원자력연수원, 2000.
- [5] Kuzentsov V. V and Sekimoto H., "Radiative Nuclide Transmutation and Safety Potentials of the Lead Cooled Fast Reactor in the Equilibrium States," J. of Nuclear Science and Technology, 32, P.507 (1995)