

2000 추계학술발표회 논문집  
한국원자력학회

## GAP이 핵종유출량에 미치는 영향 The Influence of Gap to The Mass Flux

김성기, 강철형, 황용수

한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

### 요 약

요오드나 세슘과 같이 용해도가 크고 활성인 핵종의 유출 형태중의 하나인 Gap 유출이 매우 중요하다고 알려져 있다. 사용후핵연료 처분 개념에 따르면 핵연료봉과 용기 사이에는 약간의 공간이 있게 된다. 이러한 공간을 모래나 유리 구슬 등으로 채우는 개념도 있으나 완전히 채울 수는 없으며 이러한 공간이 Gap유출의 중요한 변수가 된다. 본 논문에서는 Gap의 부피가 핵종 유출량에 미치는 영향을 분석하여 보았다. Gap 부피는 유출 초기(1년 이하)에서는 약간의 영향이 있었으나 그 후에는 큰 영향을 나타내지는 않는 것으로 나타났다. 그러나 본 연구에서 고려하지 않았던 주철 등과 같은 용기 내의 충전물질의 영향 등을 종합적으로 고려해 보아야 할 것이다.

### Abstract

It was known that the release of gap is very important for I-129, Cs, which have high solubility. According to the disposal concept of spent fuel, there is a little gap between fuel rods and a canister. There is a concept that this gap may be filled with sand or beads, but it is impossible to perfectly fill for this gap, so the gap is one of important parameter in release mechanism. In this paper, the influence of gap was carried out. Gap volume have a little influence in the early stage(within a year), but there is not to significantly affect after 1 year. We have to consider the influence of filling material in canister such as cast iron, which have not considered on this paper.

## 1. 서 론

현재 KAERI에서는 고준위 폐기물 처분기술개발과제를 수행하고 있으며 이의 일환으로 기준처분개념을 설정하고 이를 바탕으로 기준처분시스템을 개발하고자 하고 있다. 이를 위하여 일차적으로 사용후핵연료를 직접 처분하는 경우에 대하여 처분 개념을 개발하고 이에 대한 성능평가를 위한 코드개발을 수행하고 있다 [1]. 특히 사용후핵연료를 처분하는 경우는 Gap유출이 중요한 유출 기구로 알려져 있다.

Gap 유출은 사용후핵연료 처분장에서 핵종 유출시 가장 중요한 기구(mechanism)중 하나로 알려져 있다. 지하수는 유동 경로를 통하여 처분 용기 주변으로 이동하여 처분 용기를 오랜 기간에 걸쳐 부식시키고, 궁극적으로는 처분 용기 안으로 침투하게 된다. 처분 용기 안으로 들어온 지하수는 사용후핵연료 피복관내의 공간이나 핵연료 grain 경계에 있는 요오드(I)나 세슘(Cs)과 같은 휘성적(volatile)인 방사성핵종들을 용해시킨 후 용기 밖으로 유출시키게 된다 (그림 1 참조). 이러한 Gap유출은 다른 유출현상, 즉 조화유출이나 확산에 의한 유출보다 빠르게 유출되는 현상으로 요오드(I)나 세슘(Cs)과 같이 휘성적(volatile)인 방사성핵종의 유출 현상 중 가장 중요하다.

KAERI에서 개발한 사용후 핵연료 처분용기 개념은 그림 2과 같이 4개의 핵연료 집합체를 주철로 채운 구리, 티타늄이나 스테인레스 스틸과 같은 부식에 강한 물질의 용기에 넣게 되어 있다. 따라서 핵연료봉과 용기 사이에는 빈 공간이 생긴다. 이 공간을 모래나 유리 구슬로 채울 수도 있으나 어떠한 경우에도 빈 공간이 없이 완전히 채울 수는 없을 것이다. 이러한 공간은 열적 및 구조 적 안정성이나, 방사선적 안전성에 미치는 영향을 고려하여 처리하여야 할 것이다.

본 연구에서는 빈 공간의 영향을 방사선적 안전성 입장에서 고려하여 보았다. 이를 보기 위해서도 용기의 부식 현상과 공간을 채우는 물질의 종류 등을 종합적으로 고려해 보아야 하나 본 논문에서는 일차로 빈 공간의 부피가 Gap 유출에 미치는 영향을 분석하여 보았다.

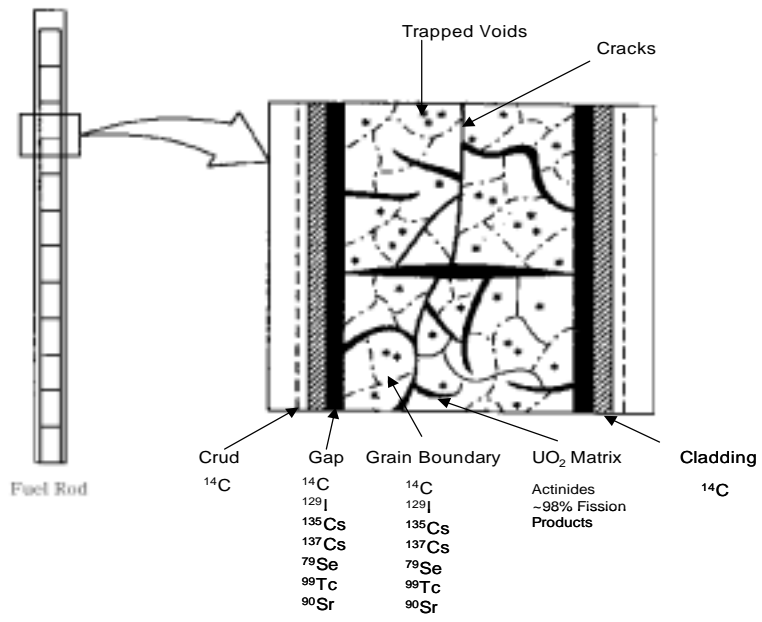


그림 1 사용후핵연료 단면의 개략도

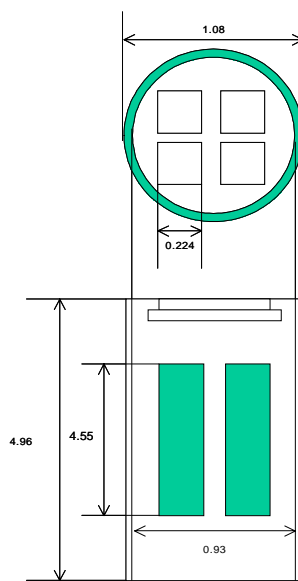


그림 2 처분용기 개념(단위 : m)

## 2. 수학적 배경

그림 1에서 보는 바와 같이 일부 핵종들은 핵연료가 원자로에서 연소되는 동안 핵연료 grain 경계나 사용후핵연료 피복관내의 공간으로 이동한다. 이러한 핵종 중 요오드(I)나 세슘(Cs)과 같이 용해도가 큰 핵종들은 지하수가 핵연료피복관을 부식시키고 피복관 내로 침투해 들어오는 즉시 용해되어 사용후핵연료 처분용기 내 공간(Gap)에 용해된 상태로 존재하며 공학적방벽을 거쳐 주변 암반으로 이동되기 시작한다.

현재 한국형 고준위 방사성폐기물 기준처분 개념에서는 벤토나이트 등을 처분 용기와 인접 암반체 사이에 충전하도록 되어있다. 공학적 방벽은 투수 계수가 인접 암반보다 일반적으로 낮기 때문에 유출된 방사성 핵종들은 이류 (advection)보다는 확산 (diffusion)에 의해 이동하게 된다. 또한 심지층에 위치한 처분장 주변의 암반의 투수계수도 균열대를 제외하고는 상당히 낮다. 따라서 지하수의 이동은 일반적으로 균열대를 통하여 일어난다. 여기서는 처분용기 주위의 암반도 투수계수가 충분히 낮다고 가정하였다. 따라서 벤토나이트 방벽 및 인접 암반 (그림 3 참조)에서의 방사성 핵종의 이동에 관한 지배 방정식들은 다음과 같이 표시된다 [2].

$$\frac{\partial N_1}{\partial t} = D_1 \frac{\partial^2 N_1}{\partial x^2} - \lambda N_1, \quad -L < x < 0, \quad t > 0 \quad (1)$$

$$\frac{\partial N_2}{\partial t} = D_2 \frac{\partial^2 N_2}{\partial x_2^2} - \lambda N_2, \quad x > 0, \quad t > 0 \quad (2)$$

여기서  $D_1 = \frac{D_A}{K_1}$  (3a)

$$D_2 = \frac{D_B}{K_2} \quad (3b)$$

$N_1(x, t)$ : 공학적 방벽에서 지하수의 방사성 핵종 농도, [g/ m<sup>3</sup>],

$N_2(x, t)$ : 암반에서의 지하수의 핵종 농도, [g/ m<sup>3</sup>],

$D_i$ : 확산 계수, [ m<sup>2</sup>/yr],

$K_1$  : 공학적 방벽에서 핵종의 이동지연계수(Retardation Coefficient),  
 $K_2$ : 인접 다공 암반에서 핵종의 이동지연계수이다.

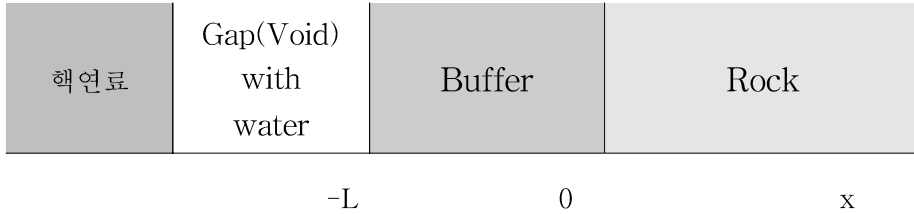


그림 3 Gap 유출모델의 Geometry

이 지배 방정식들의 부대 조건들은 다음과 같다.

$$N_1(x,0) = 0, \quad -L < x < 0 \quad (4a)$$

$$N_2(x,0) = 0, \quad x > 0 \quad (4b)$$

$$N_1(0, t) = N_2(0, t), \quad t > 0 \quad (4c)$$

$$-\epsilon_1 D_{11} \frac{\partial N_1}{\partial x} = -\epsilon_2 D_{22} \frac{\partial N_2}{\partial x} \quad \text{at } x=0, t>0 \quad (4d)$$

$$N_2(\infty, t) = 0, \quad t > 0 \quad (4e)$$

여기서  $\epsilon_1$  과  $\epsilon_2$  는 공학적 방벽과 주변 암반에서의 유효 공극률 (porosity)이다.

Gap 내에서의 질량 보존을 고려하면 다음과 같은 방정식을 얻을 수 있다.

$$-V \frac{\partial N_g(t)}{\partial t} = -D_{11} \epsilon_1 S \frac{\partial N_1(x, t)}{\partial x} \Big|_{x=-L} + \lambda V N_g(t) \quad t > 0 \quad (5)$$

여기서 S는 Gap과 공학적 방벽 경계면의 단면적을 나타낸다. 이 외에 폐기물 고화체에서 Gap으로 유출되는 양이 있으나, 이는 고화체 내부에서 확산에 의하여 고화체 표면까지 이동된 후 녹아나오거나 폐기물 Matrix와 조화유출을 하여야 한다. 그러나 고체 내에서의 확산은 매우 느리며 폐기물 Matrix의 용해도가 매우 적기 때문에 이러한 양은 거의 무시

할 정도로 작다. 따라서 본 모델에서는 이러한 유출은 없다고 가정하였다. Mo의 고용해도 핵종이 피복관 근처에 존재하고 있으며, Gap의 부피를 V라고 하면 지하수가 침투하여 이 핵종들이 용해된 후 Gap에서의 농도는,  $N_0 = \frac{M_0}{V}$  이다.  $N_g(t)$ 은 Gap에서의 방사성 핵종의 농도이며 초기 농도는 다음과 같이 표현된다.

$$N_g(0) = N_0 \quad (6)$$

또한 Gap과 공학적 방벽 경계에서의 농도는 다음 조건을 만족한다.

$$N_g(t) = N_1(-L, t) \quad (7)$$

지배방정식 (1), (2)와 경계 및 초기조건 (4)-(7)로 표시되는 이 시스템은 라플라스 변환을 이용하여 다음과 같은 해를 구할 수 있다 [2].

$$n_1(x, s) = A(s) [\cosh(q_1[L+x]) - F(q_1)\sinh(q_1[L+x])], \quad -L < x < 0 \quad (8)$$

여기서  $n_1$ 은 공학적 방벽 내에서의 라플라스 변환된 핵종의 농도를 나타낸다.

$$F(q_1) = \frac{\delta \sinh(q_1 L) + \cosh(q_1 L)}{\sinh(q_1 L) + \delta \cosh(q_1 L)}$$

$$A(s) = \frac{N^0}{s + \lambda + \gamma q_1 F(q_1)}$$

$$\delta = \frac{\epsilon_1}{\epsilon_2} \left[ \frac{K_1}{K_2} \right]^{\frac{1}{2}}$$

$$q_1^2 = \frac{s + \lambda}{D_1}$$

$$\gamma = D_1 K_1 \epsilon_1 \frac{S}{V}$$

또한 방사성 핵종의 flux는 다음과 같이 표시된다.

$$\dot{M}(x, t) = -S \varepsilon_1 D_{f_1} \frac{\partial N_1(x, t)}{\partial x}, \quad t > 0 \quad (9)$$

식 (9)의 라플라스 변환과 식 (8)로 라플라스 변환된 공학적 방벽 내에서의 핵종의 flux는 다음과 같이 표시된다.[2]

$$\dot{m}(x, s) = \varepsilon_1 D_{f_1} S A(s) q_1 [F(q_1) \cosh(q_1(L+x)) - \sinh(q_1(L+x))] \quad -L \leq x \leq 0$$

### 3. 처분용기 내 Gap 영향 분석

Gap의 영향을 분석하기 위한 기본 자료는 표 1과 같으며 핵연료의 Grain boundary나 핵연료봉내의 공간에 존재하는 핵종의 양은 핵연료내의 핵종 재고량의 10%로 하였다. 이는 Johnson과 Tait [3]의 실험 결과를 기초로 가정하였다. 한 개의 처분용기 내의 핵종 재고량은 KOFA 45000 MWD/MTU로 가정하여 ORIGEN으로 평가하였으며 표 2와 같다. 핵연료집합체를 장전했을 때 빈 공간의 부피는 약 0.61m<sup>3</sup>이며 Gap의 부피의 영향을 보기 위하여 이 값과 50% 정도를 채울 경우, 즉 0.305m<sup>3</sup>와 비교하여 보았다. 본 논문에서는 Gap 영향 분석의 일차적인 연구로 Gap 부피이외의 영향, 즉 용기의 부식, 충전 물질의 종류 등은 고려하지 않았다.

그림 4에서 보는 바와 같이 Gap에서 Buffer로의 유출량은 유출 초기, 즉 0.1년 이하에서는 Gap의 부피가 작을수록 많다. 그러나 이 시기 이후에는 Gap 부피가 작을수록 초기 유출로 인하여 Gap 농도가 감소하고 이에 따라 유출량의 감소율이 커져 Gap 부피가 작은 쪽이 유출량이 약간 커지는 경향을 보인다. 그러나 유출 후기로 갈수록 그 영향은 적어진다. 그러나 Buffer에서 암반으로의 유출은 Gap의 부피에 거의 무관한 것으로 나타났다. 또한 후반으로 갈수록 Buffer에서 암반으로의 유출량이 Gap에서 Buffer로의 유출량보다 커지는 현상을 볼 수 있는 데 이는 Gap 내의 농도가 감소함에 따라 Gap에서 Buffer로의 유출량도 상대적으로 적어지나 Buffer에서 암반으로는 앞의 유출량과 관계없이 유출된다. 따라서 Buffer내의 농도가 점차 낮아지는 경향, 즉 wash-out의 현상이라 할 수 있다.

표 1. 평가를 위한 Parameter

핵종		Cs-135	Cs-137	I-129
반감기, yr		$2.3 \times 10^6$	$3 \times 10^4$	$1.59 \times 10^7$
지연계수	Buffer	200		4
	암반	27,001		136
공극율	Buffer	0.33		
	암반	0.01		
확산 계수, $m^2/yr$		0.0063		
Buffer Thickness, m		0.3		
처분용기 표면적, $m^2$		18.65		

표 2. 처분용기내 핵종재고량

핵 종	Inventory(Bq)
I-129	$2.774112E+09$
Cs-135	$3.874640E+10$
Cs-137	$3.607648E+15$

이러한 결과는 본 논문의 설정한 가정 하에서 도출된 것이며 Gap 부피이외의 영향, 즉 용기의 부식, 충전 물질의 종류 등을 종합적으로 고려하여야 할 것이다.

#### 4. 결론

사용후핵연료 처분 개념에 따르면 핵연료봉과 용기 사이에는 약간의 공간이 있게 된다. 이러한 공간이 핵종 유출량에 미치는 영향을 Gap모델로 분석하여 보았다. Gap에서 Buffer로의 유출에서는 유출 초기 (1년 이하)에서는 Gap 부피의 영향이 약간 있었으나 그 후에는 큰 영향이 없는 것으로 나타났으며 Buffer에서 암반으로의 유출은 Gap의 부피에 거의 무관한 것으로 나타났다. 추후 연구로는 본 연구에서 고려하지 않았던 주철 등과 같은 용기 내의 충전물질의 영향 등을 종합적으로 고려해 보아야 할 것이다.



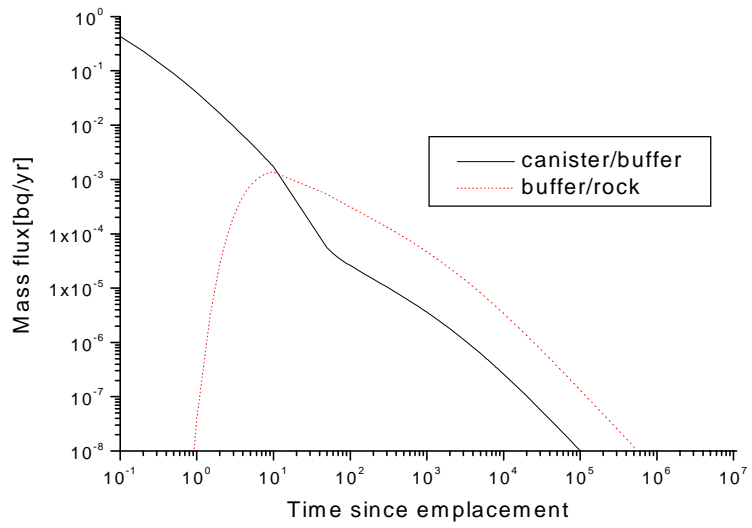


그림 4a. Gap=0.61m<sup>3</sup> 때 I-129의 유출량

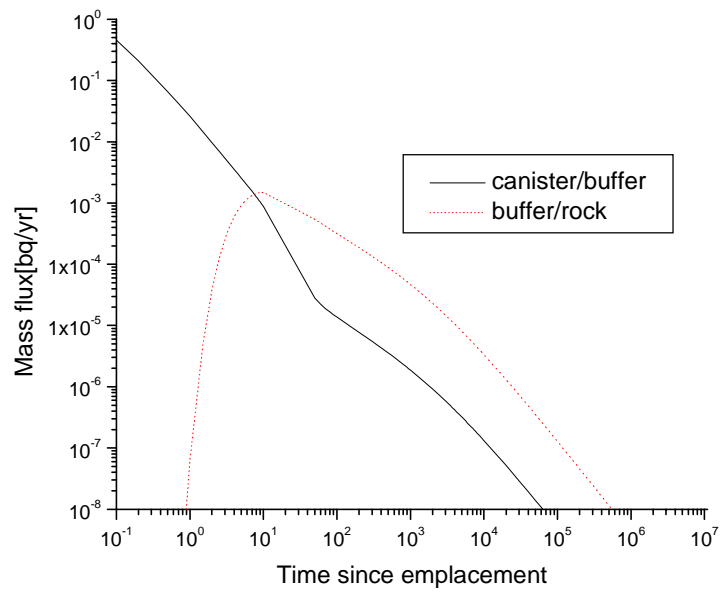


그림 4b. Gap=0.305m<sup>3</sup> 때 I-129의 유출량

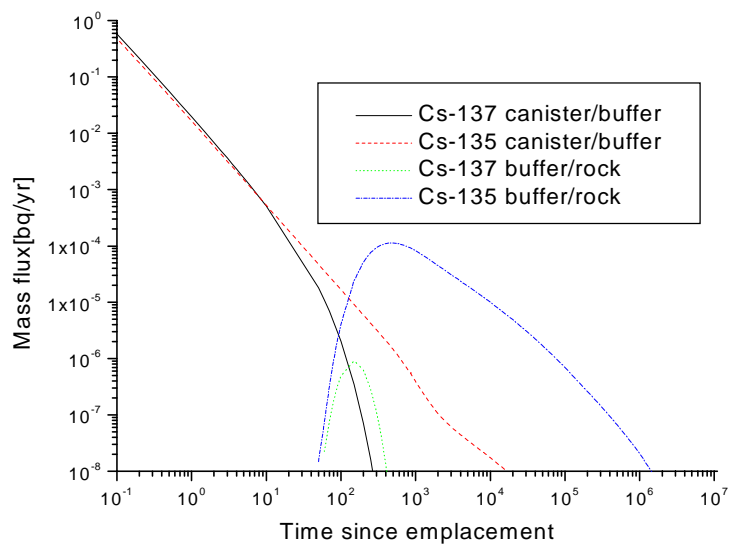


그림 4c. Gap=0.61m<sup>3</sup> 때 Cs의 유출량

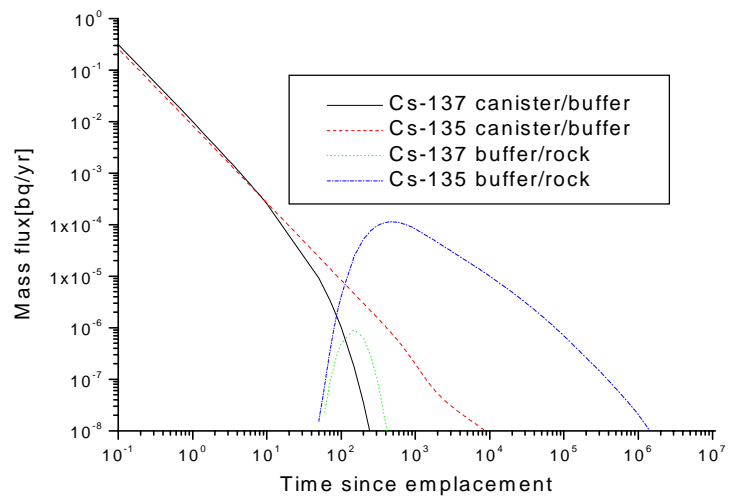


그림 4d. Gap=0.305m<sup>3</sup> 때 Cs의 유출량

## 참고문헌

1. 강철형외, “고준위 폐기물 처분기술개발 -심지층시스템 개발-“, KAERI/RR-2013, 1996.
2. 강철형외, “종합안전성평가코드(MASCOT-K)의 GAP Module 개발“,KAERI/TR-1057, 1996.
3. Johnson L H, Tait J C, “Released of segregated nuclides from spent fuel”, SKB TR 97-18, 1997.