KAERI/RR-2266/2002

사용후핵연료관리의 금속전환 및 고방열핵종 제거에 따른 처분안전성 및 경제성에 미치는 영향 평가

- 최 종 보 고 서 -

Environmental and Financial Assessment on the Lithium Induced Spent Fuel Management Cycle

- Final Report -

KAERI

한 국 원 자 력 연 구 소

제 출 문

한국원자력연구소장 귀하

본 보고서를 “사용후핵연료관리의 금속전환 및 고방열 핵종 제거에 따른 처분 안전성 및 경제성에 미치는 영향 평가” 과제의 최종 보고서로 제출합니다.

2002 년 12 월 31 일

연 구 실 (팀) 명 : 고준위폐기물처분기술개발팀

사업(연구)책임자 : 황 용수
서 중석
박 정화
김 성기

요 약 문

Ⅰ. 제 목 : 사용후핵연료관리의 금속전환 및 고방열 핵종 제거에 따른 처분 안전성 및 경제성에 미치는 영향 평가

Ⅱ. 연구의 목적 및 중요성

한국원자력연구소에서는 점증하고 있는 사용후핵연료의 효율적인 관리를 위해 새로운 후행핵연료주기 개념인 금속 전환 공정을 개발하고 있다. 금속 전환 공정은 일반적인 사용후핵연료 저장이나 처분 등에 비하여 고가이나, 장기 저장으로 인한 부식 문제 등을 해결할 수 있을 뿐 아니라, 비교적 핵 확산 저항성이 높은 건식 재활용을 가능하게 한다.

현재 이 기술은 미국 알곤 국립 연구소 등 일부 기관에서 개발 중에 있는 바 100 kg/batch 규모의 비방사능 모사 물질(inactive simulated materials)을 이용한 실험이 착수 중이다. 한국원자력연구소 사용후핵연료관리기술개발팀에서는 이러한 금속전환 주기의 타당성을 검토해 보고자 방사성폐기물처분기술개발팀과 함께 연구를 수행하였다. 본 연구에서는 금속전환체의 저장과 재활용은 고려되지 않았으며, 다만 금속전환체를 직접 처분할 경우 처분장 소요 면적에 얼마나 영향을 미치며 방사선적 처분 안전성에 어떻게 기여하는가를 파악했는 바, 이와 같은 연구 결과는 향후 연구소가 핵연료주기 관련 연구에서 주도적으로 수행할 금속전환 공정의 타당성을 규명하기 위해 중요하다.

Ⅲ. 연구의 내용 및 범위

본 연구에서는 금속전환공정에서 발생하는 폐기물의 핵종별 재고량을 문헌조사 등을 통하여 파악하고 이를 이용하여 금속전환체에 거치될 방사성 물질들의 방사능 및 열적 이력을 평가하였다. Cs-137과 Sr-90을 제거했을 경우와, 모든 핵분열 생성물을 제거했을 경우에 대하여 40년 간의 냉각 기간을 고려한 열적 이력 평가 결과를 함수로 표시하고 고준위 방사성폐기물을 영구 처분할 시 처분공 간의 간격을 계산하는데 활용되었다.

또한 금속전환체를 처분할 경우 유리고화체로 고화되는 Cs, I, C-14 등 고용

해도 핵종들의 영향을 평가하여 금속전환 공정이 처분장 장기 방사선적 안전성에 미치는 영향을 평가하고자 하였다.

이와 병행하여 국내 전문가들의 의견을 수렴하여 금속전환체의 경제성/기술성/처분안전성/핵비확산성에 관해 조사하였다.

Ⅳ . 연구(운영)결과 및 활용계획

연구 결과 금속전환 공정은 사용후핵연료 처분에 비해 처분장 소요 면적을 반 정도 저감시키며 안전성도 향상시킬 수 있는 것으로 판단되었다. 특히 직접 처분의 경우 2015년까지 운영될 원전으로부터 발생할 사용후핵연료의 총량 36,000 톤을 처분하기 위해 약 6-7 평방 킬로 미터의 처분장 면적이 소요됨을 감안할 때 방사성 붕괴열이 높은 일부 핵분열 생성물을 분리하여 단기간 지상에서 보관한 후 이의 유리고화체를 처분할 경우 처분장 면적을 2 배 이상 줄일 수 있음을 정량적으로 확인하였다. 또한 직접 처분 시에 안전성에 영향을 미치는 고용해도 핵종들을 금속 전환 공정에서 따로 분리화하여 유리화하는 경우 안전성을 현저히 저감시킬 수 있음을 확인하였다.

본 연구의 결과는 미국 DOS와의 연례 기술 회의에서 활용되어 국내에서 금속전환 공정 연구를 수행할 타당성으로 제시되었고, 향후 미국 DOE와 한국원자력연구소가 공동 연구를 추진하는데 공헌하였다. 또한 미국 원자력 학회, 한일 재활용 워크샵, 환태평양 원자력 위원회 등 주요 학회에서 금속 전환 공정의 타당성을 제고하는데 널리 활용되었다.

S U M M A R Y

I. Project Title : Environmental Impact of Metallization for Disposal of HLW

II. Objects and Importance of the Study

The mass balance in the Advanced Spent Fuel Management Process is made to secure the basic information on the unit processes. Based on this mass balance, the change in decay heat and radioactivity of spent fuel due to the metallization in the high temperature molten salt system is estimated. The decay heat and the radioactivity are calculated by the ORIGEN-2 computer code. It shows that the heat and the radioactivity of the metallized spent fuel ingot reduces to 24.27 % and 24.24 %, respectively of those of spent fuel.

The impact of metallization on the volume of a repository for HLW disposal is studied. Results show that by metallization the volume of a repository is reduced by more than half. In addition, by eliminating gap inventories, the metallization process enhances radiological safety of a HLW repository. Domestic experts state that despite the burden of cost compared with the direct disposal, still the metallization might be favorable.

III. Contents and Scopes of the Study

The assessment of inventories of radionuclides in metal forms as well as molten salt are identified by literature surveys, etc. Using information on inventories, radioactivities and decay heats from metal and solid forms of molten salt are identified. Then, ufrom the information on the decay heat, the optimum layout for disposal of metal HLW is decided. Radiological safety assessment is performed to find out the additional merit of the proposed system. Experts recommend that to achieve the R&D target within the time table, more broad international joint study is needed.

IV. Results and Future Planning

Results show that the metal process reduces the repository area by more than half. Also, removal of gap nuclides enhances the safety significantly. In

the future, the systematic assessment on the financial aspect of the process base on the pilot scale design is required.

C O N T E N T S

Chapter 1. Introduction

Chapter 2. Assessment on Characteristics of Metal Forms

1. Background
2. Chemical Features of Major Nuclides in the LiCl System
3. Mass Balance of the System
4. Characteristics
5. Conclusions

Chapter 3. Decay Heat and Inventories

1. Background
2. Assessment on Decay Heat
3. Assessment on Inventories
4. Conclusions

Chapter 4. Identification on the Optimum Layout

1. Background
2. Assessment

Chapter 5. Environmental Impact Assessment

1. Background
2. Reasons for Different Dissolution
3. Discussions

Chapter 6. Expert Opinions

Chapter 7. Conclusions

목 차

제 1 장 서 론

제 2 장 금속전환체 특성 평가
제 1 절 배경
제 2 절 폐고온 LiCl 용융염계에서 사용후핵연료 내 주요 원소의 화학적 특성
제 3 절 사용후핵연료 차세대 관리 공정의 물질 수지
제 4 절 금속전환체의 특성 분석
제 5 절 결론

제 3 장 방사성 붕괴열 이력 및 선원항 평가
제 1 절 배경
제 2 절 붕괴열 평가
제 3 절 금속 전환체 선원항 평가
제 4 절 결론

제 4 장 금속전환체 처분을 위한 열 해석
제 1 절 배경
제 2 절 평가

제 5 장 금속전환체 처분에 따른 환경 영향 평가
제 1 절 배경
제 2 절 방사성핵종 유출 기구의 차이점
제 3 절 평가와 토의

제 6 장 전문가 의견 수렴

제 7 장 결론

표 목 차

표 2.1. Fuel Reduction Equilibria of AM, AEM and RE Oxides
표 2.2. Free Energy of Formation of Rare Earth and Noble Metal Oxides
표 2.3. Density and Solubility of $LiReO_2$ in LiCl at 650 ℃
표 2.4. Composition of Reference PWR Fuel by Weight
표 2.5. Mass Balance of the Advanced Spent Fuel Management Process
표 2.6. Mass, Radioactivity and Thermal Power of Elements Removed in the Advanced Spent Fuel Management Process
표 3.1. Mass, Radioactivity and Thermal Power of Elements Included in a Reduced Metal Ingot
표 4.1. 냉각기간 40년에서 Equivalent Number of Assembly 에 따른 붕괴열 발생량
표 4.2. 열 해석에 사용된 물성치
표 4.3. 열부하 및 배열의 변화에 따른 벤토나이트 최고 온도
표 6.1. 항목별 가중치 평가
표 6.2. 경제성 항목 평가
표 6.3. 환경 친화성 평가
표 6.4. 핵비확산성 평가
표 6.5. 기술성 평가
표 6.6. 에너지 안보성 평가

그 림 목 차

그림 2.1. Flow Sheet of the Advanced Spent Fuel Management Process

그림 3.1. 금속저장체와 사용후핵연료의 열 이력 비교

그림 3.2. Thermal Power of a Reduced Metal Ingot as a Function of Cooling Time

그림 3.3. Radioactivity of a Reduced Metal Ingot as a Function of Cooling Time

그림 4.1. 한국형 기준 처분장 개념도

그림 4.2. 처분장 열 계산을 위한 모델링 개념도

그림 4.3. Near Field 상세 열 계산을 위한 개념도

그림 4.4. 직접 처분 개념 개발에서 사용된 처분 용기 개념

그림 4.5. Equivalent Number of Assembly 1 개인 경우 시간에 따른 벤토나이트 온도 분포

그림 4.6. Equivalent number of assembly 1.5개인 경우 시간에 따른 벤토나이트 온도 분포

그림 4.7. Equivalent Number of Assembly 4개인 경우 시간에 따른 벤토나이트 온도 분포

그림 4.8. 처분장 각 배열에서 equivalent number of assembly 개수에 따른 벤토나이트 최고 온도 변화

그림 5.1. Gap 유출 기구 모사도

그림 5.2. 연간 개인 선량 평가

그림 5.3. 직접 처분시(좌)와 금속전환 시(우) I-129로 인한 연간 개인 선량의 변화

그림 5.4. 직접 처분시(좌)와 금속전환 시(우) Cs-135로 인한 연간 개인 선량의 변화

제 1 장. 서 론

사용후핵연료 차세대관리 공정은 LiCl 용융염계에서 산화물 핵연료를 lithium 금속으로 환원하는 금속전환 공정으로, 금속전환 과정에서 알카리, 알카리 토금속 및 일부 RE 원소를 제외한 모든 핵분열생성물과 우라늄, 플루토늄 등을 모두 금속으로 전환시킨다. 고온 LiCl 용융염계에서 산화물 핵연료의 금속전환특성과 일부 핵분열생성물의 선택적 분리성은 부피감용 이외에 방사능 및 발열량도 줄일 수 있는 부가적인 장점을 제공한다. 이와 같은 관점에서 고온 LiCl 용융염계에서 산화물 핵연료를 금속전환하여 저장 관리할 경우, 사용후핵연료 저장 시설의 저장성 향상은 물론 저장 안전성 요건의 완화 측면에서 바람직할 것으로 판단된다. 본 연구에서는 이러한 고온 용융염계에서의 화학적 특성을 이용한 고유의 핵비확산성 사용후핵연료 차세대관리개념을 제안하였고, 실험실 규모의 단위 요소기술에 대한 반응성 규명을 통해 독자적인 차세대관리공정 flow sheet를 확립하였다.

사용후핵연료 차세대관리기술의 핵심공정인 산화물 핵연료 건식 분말화 공정, 금속전환공정 및 용융염 회수공정 등, 실험실 규모의 실험을 통한 반응성 검증 실험 결과, 금속전환 실험에서 우라늄 산화물 및 NM 원소는 고온 LiCl 용융염의 Li 금속과 반응하여 97 % 이상 금속으로 전환되는 특성을 보였고, 대표적인 알카리 및 알카리 토금속인 Cs과 Sr원소는 LiCl 용융염계에서 염화물로 전환되었다.

본 연구에서는 고온 용융염계에서 산화물 핵연료의 금속전환으로 인한 발열량 및 방사능 감소량의 정량적인 평가와 더불어 각 단위 공정별 기준 요건의 기초 자료 확보를 위해 실험실 규모의 반응성 실험 결과와 발표된 문헌을 토대로 예상 물질 수지를 작성하였다. 또한 금속전환체의 발열량과 방사능을 ORIGEN-2 코드를 이용하여 계산하였다. 특히 2차년도에서는 금속전환 공정에서 Cs-137과 Sr-90만을 추출하는 공정과 모든 핵분열 생성물을 100 % 회수하는 공정을 가정하여 방사성 붕괴열 발생 이력을 분석하였다.

사용후핵연료의 금속전환체를 처분하는 경우에 금속전환체의 붕괴열에 따른 처분장 배열의 변화를 분석하기 위해 열해석을 수행하였다. 처분장은 지하 500m에 위치하고, 화강암을 모암으로 하며, 수평 터널의 바닥에 수직으로 처분공을 수직으로 굴착하여 하나의 처분 용기를 거치하도록 하는데, 열 이력 평가를 위해 벤토니아트 완충재 층과 처분 용기와의 접촉면에서의 온도가 섭씨 100 도를 넘

지 않고 또한 처분 공굴의 역학적 안정성을 고려한 결과 최적 처분 터널 간격은 40m이고, 처분공의 피치 간격은 6 m로 산정되었다. 금속전환체는 사용후핵연료 집합체에 비해 밀도가 약 9배 정도 높다. 따라서 현재 직접 처분 개념에서 사용하는 방식으로 4기의 사용후핵연료 집합체를 거치할 처분 용기 공간에 모두 금속 전환체를 거치할 수 있으면 처분 면적을 9 배 정도 줄일 수 있을 것이다. 그러나 이 경우에는 처분 용기와 벤토나이트 충전재 경계 면의 온도가 100 도를 훨씬 상회하게 되어 처분장 공학적 방벽의 주요 기능인 핵종 저지 능력을 상실하게 된다. 따라서 경계면에서의 온도가 섭씨 100 도를 넘지 않는 조건에서 처분할 수 있는 금속전환체의 부피를 계산한 결과 사용후핵연료 1 기의 부피에 불과함이 밝혀졌다. 그러나 하나의 처분공에 거치되는 금속전환체의 질량이 사용후핵연료보다 9 배 증가하므로 결과적으로 전체 처분장 면적이 2 배 이상 감소함을 알 수 있었다. 이와 같은 열 계산을 위한 입력 자료는 사용후핵연료와 금속전환체 두 경우 모두 같은 자료들을 활용하여 공정한 비교가 되도록 하였다. 또한 보다 정밀한 공정을 적용하여 모든 핵분열 생성물을 회수하더라도 방사성 붕괴열 이력에 미치는 영향은 미미함을 규명하였다. 따라서 금속전환공정의 주요 목표가 처분장 면적을 저감시키는 것이라면 구태여 모든 핵종들을 분리할 필요가 없이 Cs-137과 Sr-90만을 추출하더라도 처분장 면적 감소 효과가 클 것이다.

사용후핵연료와 금속전환체를 심지층 처분할 경우 방사선적 안전성에 영향을 미치는 방사성 핵종의 유출 특성의 차이에 있다. 일반적으로 사용후핵연료를 직접 처분하는 경우 보수적인 평가 모델링을 사용하더라도 규제치를 충분히 만족하는 것으로 알려져 있다. 그러나 일반 대중들의 관점에서 볼 때 안전성이 어느 정도 비용을 투입하여 저감될 수 있다면 그 핵연료 주기는 타당성을 인정받을 수 있겠다. 본 보고서에서는 이러한 관점에서 금속전환체를 심층 처분할 경우 안전성을 향상시키는 요인들은 무엇이고 그 정도는 얼마인지를 간단한 모델링을 이용해 평가하였다. 평가 결과 금속 전환 공정에서 Cs-135, I-129, C-14과 같은 고용해도 핵종들을 분리하여 유리 고화한 후 방사성 붕괴열을 저감시키기 위해 단기간 지상 보관 후 금속 저장체와 함께 처분할 경우 이들 핵종들의 유출이 유리 고화체의 유출율에 의해 제어되기 때문에 처분 안전성이 크게 향상됨을 알 수 있었다.

처분장의 방사선적 영향 평가 결과 두 개념 모두 현재 한국원자력안전기술원이 제안한 기준치를 잘 만족함을 알 수 있었다. 그러나 금속전환의 경우 갭 유출 핵종들이 제거되고 기타 핵종들이 금속 전환체나 용융염 고화체 형태로 처분됨

으로서 연간 개인 선량이 저감하고 생태계로 도달하는 시간도 길어짐이 판명되어 안전성을 향상시키는 것으로 판명되었다.

금속 전환체의 타당성을 종합적으로 평가하기 위해서는 경제성 분석 및 수용성 분석이 수반되어야 한다. 현재 금속전환공정에 관한 실증 시설 개념이 도출되지 않아 경제성 분석 등에 많은 어려움 따라 이를 극복하기 위해 국내 전문가 의견을 수렴하였다. 전문가 의견 수렴 결과 대부분의 전문가들은 금속 전환 공정이 실용화되는데는 많은 연구 기간이 필요하다고 판단하였다. 경제성에 관한 의견은 양분되어 금속 전환 연구를 수행하는 전문가들의 경우 직접 처분에 비해 경제성이 향상되는 것으로, 타 분야 전문가 특히 고준위 방사성폐기물 처분 분야 전문가들은 비용이 두 배 이상 증가할 것으로 판단하였다. 따라서 경제성과 관련된 논의를 불식시키기 위해서는 보다 정밀한 개념/상세 설계 단계를 거쳐 공정당 비용이 산출되어야 할 것이다. 전문가들은 대부분 금속 전환 공정 개념이 우리나라 에너지 안보성을 제고하는데 도움이 줄 것으로 판단했으나 일부 전문가들은 금속 전환 공정은 재순환 개념이 아니기 때문에 에너지 안보성과 관계없다고 보았다.

현재 세계적으로 rough extraction 개념 등 새로운 전환 공정 개념들이 속속 도입되고 있다. 금속 전환 공정과 유사한 GEN-IV 개념 등 새로운 핵연료 주기 개념에 대해서도 발생량 저감 효과만을 앞세울 것이 아니라 구체적으로 환경에 미치는 영향을 일반적인 희석 물 부피 개념이 아닌 연간 개인 선량 개념을 이용하여 구체적으로 평가하고 발생 폐기물을 최종 처분할 경우 소요 면적 등을 산출하여 핵연료 주기 개념의 타당성을 제고하는 노력이 요구된다.

제 2 장. 금속전환체 특성 평가

제 1 절. 배경

사용후핵연료 차세대관리공정은 LiCl 용융염계에서 산화물 핵연료를 Li 금속으로 환원하는 금속전환 공정으로, 금속전환 과정에서 알카리, 알카리 토금속 및 일부 RE 원소를 제외한 모든 핵분열생성물과 우라늄, 플루토늄 등은 모두 금속으로 전환시킨다[1,2,3]. 고온 LiCl 용융염계에서 산화물 핵연료의 금속전환 특성과 일부 핵분열생성물의 선택적 분리성은 부피 감용 이외에 방사능 및 발열량도 획기적으로 줄일 수 있다. 이와 같은 관점에서 고온 LiCl 용융염계에서 산화물 핵연료를 금속전환하여 저장관리할 경우, 사용후핵연료 저장 시설의 저장성 향상은 물론 저장 안전성 요건의 완화 측면에서 바람직할 것으로 판단된다. 본 연구에서는 이러한 고온 용융염계에서의 화학적 특성을 이용한 고유의 핵비확산성 사용후핵연료 차세대 관리 개념에 따라, 실험실 규모의 단위 요소 기술에 대한 반응성을 구명하여 독자적인 차세대관리공정 flow sheet를 확립하였다.

사용후핵연료 차세대 관리 기술의 핵심 공정인 산화물 핵연료 건식 분말화 공정, 금속전환 공정 및 용융염 회수 공정 등 실험실 규모의 실험을 통한 반응성 검증 실험 결과, 금속전환 실험에서 우라늄 산화물 및 NM 원소는 고온 LiCl 용융염의 Li 금속과 반응하여 97 % 이상 금속으로 전환하였고, 대표적인 알카리 및 알카리 토금속인 Cs과 Sr원소는 LiCl 용융염계에서 염화물로 전환시켰다.

본 연구에서는 고온 용융염계에서 산화물 핵연료의 금속전환으로 인한 발열량 및 방사능 감소량의 정량적인 평가와 더불어 각 단위 공정별 기초 자료 확보를 위해 실험실 규모의 반응성 실험결과와 기 발표된 문헌을 토대로 예상 물질수지를 작성하였다. 물질 수지 예측시 산화물 핵연료의 금속전환특성은 단지 LiCl-Li-Li_2O 용융염계에서 단일성분에 대한 반응 메카니즘만을 고려하였다. 또한 LiCl-Li-Li_2O계에서 생성된 반응 생성물의 물리적 특성을 고려하여 금속전환체와 용융염에 대한 stream을 결정하였고, 이를 기준으로 금속전환체의 발열량과 방사능을 ORIGEN-2 코드를 이용하여 계산하였다.

제 2 절. 고온 LiCl 용융염계에서 사용후핵연료 내 주요 원소의 화학적 특성

1. 우라늄 및 TRU원소

우라늄 및 TRU 산화물은 650 ℃ 반응온도 조건에서 LiCl 용융염계의 Li 금속과 반응하여 금속으로 전환된다.

$$M_xO_y + 2yLi \rightarrow xM + yLi_2O$$

M = Am, Cm, Np, Pu와 U

LiCl 용융염은 650 ℃ 조건에서 Li 금속과 반응 부생성물인 Li_2O에 대하여 각각 0.5 mol %와 11.9 mol %의 용해도를 갖고 있어, 반응 속도를 향상시킨다. LiCl 용융염계에서 우라늄 및 TRU 산화물의 금속전환 반응은 LiCl 용융염계 Li_2O의 농도에 의존됨을 나타내고 있다. 특히 AmO_2는 우선 3가의 산화물로 전환한 후 금속으로 전환된다. 이와 같은 반응 메카니즘에서 3가 산화물이 금속으로 전환되기 위해서는 LiCl 용융염계의 Li_2O의 한계분율이 650 ℃의 조건에서 0.046이하로 유지되어야 한다[4]. 또한 플루토늄 산화물의 금속전환 반응 메카니즘은 복잡하여 3가, 2가의 산화물로 전환된 다음 최종적으로 금속으로 전환된다. 이들 중간 물질을 금속으로 전환하기 위해서는 LiCl 용융염계 Li_2O 한계 농도를 제어하는 것이 중요하다. 우라늄 및 TRU 산화물을 포함한 중간 물질은 다음과 같은 순서에 의해 환원 반응이 진행되고, Am_2O_3의 LiCl 용융염계 Li_2O 한계 농도 이하의 조건에서는 완전히 환원된다.

$$CmO_2 > AmO_2 > NpO_2 > Np_2O_3 > PuO_2 > UO_2 > Cm_2O_3 > Pu_2O_3 > Am_2O_3$$

모의 사용후핵연료를 대상으로 한 실험 결과와 일치하였으며, 특히 플로토늄 산화물은 LiCl 용융염계 Li_2O 용해도 이하에서는 Li_2O 농도와 무관하게 완전히 환원되나, Am_2O_3의 경우에는 LiCl 용융염계 Li_2O의 농도를 5 wt% 이하로 유지해야 완전히 환원 반응이 진행된다[5].

2. 알카리 및 알카리 토금속 계열원소, Eu, Se, Te

알카리 및 알카리 토금속 계열의 핵분열생성물은 LiCl 용융염계에서 염화물로 전환되며, 반응 매질인 LiCl 용융염에 용해된다. 특히 4 가의 산화물은 LiCl-Li계에서 염화물과 Li_2O을 생성하는 반면에, 2가의 산화물은 LiCl 용융염 자체와 반응하여 염화물로 전환된다. 특히 Eu 원소는 LiCl 용융염계에서 산염화물과 복합산화물을 생성한다고 최근에 보고되었으며[6], 이들 복합산화물은 LiCl 용융염보다 밀도(1.485 g/cm^3)가 크며, LiCl 용융염에 대한 불용특성을 고려할 때 환원된 금속 분말과 동반되어 회수될 것으로 예상된다. Se와 Te원소는 LiCl 용융염계의 Li금속과 반응하여 Li화합물을 생성하고, LiCl 용융염계에 용해된다. 표 1은 상기의 원소에 대한 화학 반응식을 요약한 것이다.

표 1. Fuel Reduction Equilibria of AM, AEM and RE Oxides

Element	Chemical Reaction
BaO_2	$BaO_2(-1) + 2Li(2) + 2LiCl(1) = BaCl_2(1) + 2Li_2O(1)$
	$BaO(-1) + 2LiCl(1) = BaCl_2(1) + Li_2O(1)$
CsO_2	$CsO_2(-1) + 3Li(2) + LiCl(1) = CsCl(1) + 2Li_2O(1)$
Eu_2O_3	$Eu_2O_3(-1) + LiCl(1) = EuOCl(1) + LiEuO_2(-1)$
Rb_2O	$Rb_2O(-1) + 2LiCl(1) = 2RbCl(1) + Li_2O(1)$
	$RbO_2(-1) + 3Li(2) + LiCl(1) = RbCl(1) + 2Li_2O(1)$
SrO	$SrO(-1) + 2LiCl(1) = SrCl_2(1) + Li_2O(1)$
SeO_2	$SeO_2(-1) + 6Li(2) = Li_2Se(1) + 2Li_2O(1)$
TeO_2	$TeO_2(-1) + 6Li(2) = Li_2Te(1) + 2Li_2O(1)$
CeO2	$2CeO_2(-1) + 3Li(2) = CeO(-1) + 1/2Ce_2O_3 + 3/2\ Li_2O(1)$
Gd_2O_3	$Gd_2O_3(-1) + Li_2O(1) = 2LiGdO_2(-1)$
La_2O_3	$La_2O_3(-1) + LiCl(1) = LaOCl(-1) + LiLaO_2(-1)$
Nd_2O_3	$Nd_2O_3(-1) + Li_2O(1) = 2LiNdO_2(-1)$
Pr_2O_3	$Pr_2O_3(-1) + Li_2O(1) = 2LiPrO_2(-1)$
Sm_2O_3	$Sm_2O_3(-1) + Li_2O(1) = 2LiSmO_2(-1)$
Y_2O_3	$Y_2O_3(-1) + Li_2O(1) = 2LiYO_2(-1)$

*phase 1 : LiCl-rich phase

*phase 2 : Li-rich phase

*phase -1 : invariant solids

3. RE계열 원소

희토류 원소는 표 2와 같이 산화물의 표준 생성자유에너지가 Li_2O 보다 작기 때문에 열역학적으로 금속전환하지 않는다. 희토류계열의 산화물은 대부분 sesqui oxide형태로 존재하는데, sesqui oxide는 LiCl 용융염계의 Li_2O와 반응성이 매우 크다. Ce 산화물은 LiCl-Li_2O-Li계에서 4가에서 3가 산화물로 변환되나, 근본적으로 금속화가 진행되지 않는다. 반면에 Nd, Sm, Gd, Y, Lu 및 Pr원소는 표 1의 화학반응식에 나타난 바와 같이 LiCl-Li_2O계에서 복합산화물로 전환되고, La원소는 복합산화물과 산염화물을 형성한다[6]. 생성된 일부 복합산화물은 표 3과 같이 LiCl 용융염계에서 낮은 용해도를 가지기 때문에 대부분 금속분말과 같이 동반 회수될 것이다.

표 2. Free Energy of Formation of Rare Earth and Noble Metal Oxides

Oxide	△G(kJ/mol-O)	Oxide	△G(kJ/mol-O)
CeO_2	-447.0	NiO	-155.9
Gd_2O_3	-520.7	CdO	-164.3
La_2O_3	-509.8	MoO_2	-209.9
Nd_2O_3	-515.1	PdO	-19.7
Pr_2O_3	-515.5	Rh_2O_3	-39.1
Sm_2O_3	-517.8	RuO_2	-74.9
Y_2O_3	-545.6	Sb_2O_3	-154.5
Eu_2O_3	-455.8	SnO_2	-194.4
Li_2O	-480.7	TcO_2	-133.4

표 3. Density and Solubility of $LiReO_2$ in LiCl at 650 ℃

Compound	Density (g/cm^3)	Solubility (ppm)	Compound	Density (g/cm^3)	Solubility (ppm)
$LiNdO_2$	5.54	3.7	$LiLaOCl_2$	4.21	-
$LiYO_2$	3.93	-	$LiPrO_2$	6.08	-
$LiGdO_2$	5.86	0.69	$LiSmO_2$	6.21	-

4. NM 계열 원소

NM 원소는 우라늄이나 TRU 원소들과 유사하게 LiCl-Li계에서 금속으로 전환된다. 표 2에서 보는 바와 같이 NM 산화물의 표준 생성 자유 에너지가 Li_2O보다 크기 때문에 열역학적으로도 금속전환 반응이 가능하다. 특히 NM 원소의 금속전환 반응은 우라늄 및 TRU 산화물과 같이 LiCl 용융염계 Li_2O의 한계 농도와 무관한다.

제 3 절. 사용후핵연료 차세대 관리 공정의 물질 수지

1. 사용후핵연료 차세대 관리 공정 Flow sheet

사용후핵연료 차세대관리 공정은 그림 1에 도시된 바와 같이 고온의 LiCl 용융염계에서 산화물 핵연료를 Li금속으로 환원하는 금속전환 공정과 건식 분말화 공정, Li 회수공정 등으로 구성된다. 일정 크기로 절단된 사용후핵연료는 건식 분말화 공정을 거쳐, 500 ℃ 과잉 공기 분위기에서 20 ~ 40 ㎛ 입자크기의 U_3O_8 산화물 형태로 분말화되며, 동시에 대부분의 휘발성 핵분열생성물이 제거된다.

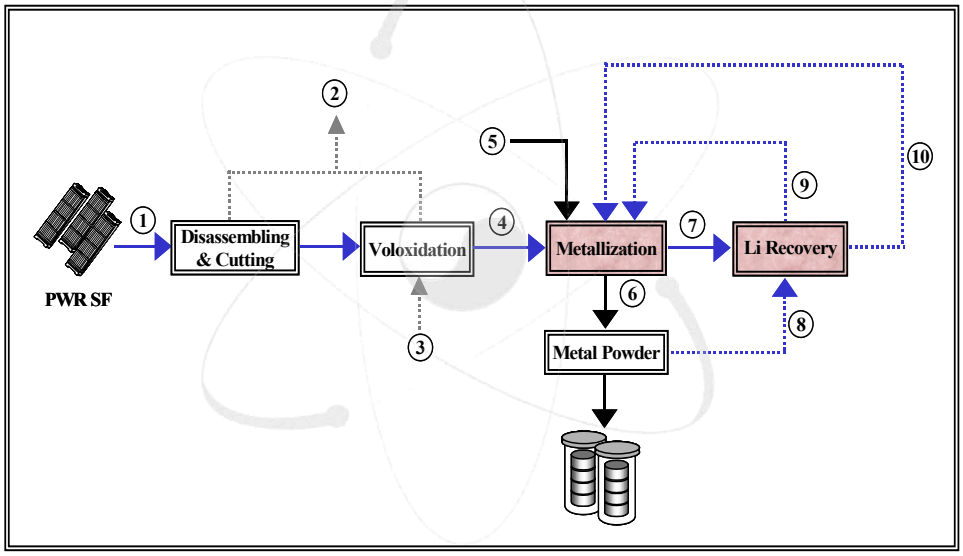

그림 1. Flow Sheet of the Advanced Spent Fuel Management Process.

금속전환 공정에서는 상기에서 설명한 바와 같이 우라늄 및 TRU 산화물의 금속전환율을 고려하여 LiCl 용융염계의 Li_2O농도를 3.2 wt%이하로 제어한다. 산화물 핵연료는 금속전환 반응기에 산화분말 형태로 도입되는데 전술한 바와 같이 LiCl-Li_2O-Li계에서 다양한 반응 메카니즘에 의해 금속, 염화물, 산염화물 혹은 복합 산화물 등으로 변환된다. LiCl 용융염보다 비교적 밀도가 큰 금속 분말과 복합 산화물은 LiCl 용융염계로부터 직접 여과 분리되고, 3.2 wt%의 Li_2O를 포함하는 LiCl 용융염은 전기분해법으로 Li를 회수한다. 회수된 Li금속과 LiCl

용융염은 금속전환공정에서 재순환된다.

2. 기준 산화물 사용후핵연료

사용후핵연료 차세대 관리 공정의 물질 수지는 초기 농축도 3.2 wt%, 연소도 33 GWd/tU, 냉각기간 10년인 사용후핵연료를 기준으로 평가되었다. 사용후핵연료 내의 우라늄, TRU 및 핵분열생성물의 조성은 ORIGEN-2 코드를 사용하여 분석되었는데, 이의 결과는 표 4에 요약 수록되었다.

표 4. Composition of Reference PWR Fuel by Weight

Group	Element (%)					
U	U	95.5				
TRU	Am	8.68×10^{-2}	Cm	4.96×10^{-3}	Np	5.36×10^{-2}
	Pu	0.847				
AM, AEM Eu, Se, Te	Ba	0.193	Cs	0.23	Eu	1.60×10^{-2}
	Rb	3.60×10^{-2}	Se	5.60×10^{-3}	Sr	7.90×10^{-2}
	Te	4.70×10^{-2}				
VFP	Br	2.20×10^{-3}	I	2.40×10^{-2}	Kr	3.50×10^{-2}
	Xe	0.544				
RE	Ce	0.245	Dy	1.00×10^{-4}	Gd	1.40×10^{-2}
	La	0.125	Nd	0.412	Pm	7.00×10^{-4}
	Pr	0.115	Sm	8.60×10^{-2}	Tb	2.00×10^{-4}
	Y	4.70×10^{-2}				
NM	Ag	5.40×10^{-3}	Cd	9.10×10^{-3}	Mo	0.345
	Nb	6.90×10^{-7}	Pd	0.147	Rh	4.20×10^{-2}
	Ru	0.219	Sb	9.00×10^{-4}	Sn	4.90×10^{-3}
	Tc	8.40×10^{-2}	Zr	0.372		

3. 단위 공정별 물질 수지 및 금속전환체의 예상 조성

사용후핵연료 차세대 관리 공정의 물질 수지는 산화물 핵연료의 LiCl 용융염계에서의 화학적 거동과 단위 요소 기술에 대한 실험실 규모의 반응성 검증 실험 결과를 토대로 설정되었다. 물질 수지를 작성하기 위한 공정의 기준 요건은 다음과 같다.

○20 kgHM의 사용후핵연료는 절단 및 slitting된 후, 건식 분말된다. 건식 분

말화 공정에서 사용후핵연료는 500 ℃의 공기 과잉 분위기 조건에서 평균입도 20 ~ 40 ㎛ 입자 크기의 분말 형태로 전환되고, 이 단계에서 휘발성 핵분열생성물은 거의 제거된다.

○금속전환 반응기 설계 용량은 20 kgHM/batch이며 Li 금속의 기준 과잉율은 15 %, 최종 LiCl 용융염계의 Li_2O 기준 농도는 3.2 wt% 이하이다. 직접 여과된 금속 분말에는 2.3 %의 LiCl 용융염이 포함되는데, 이는 금속분말의 재용융 단계에서 회수되어 Li회수 전기 분해 공정으로 재도입된다.

○Li회수 전기 분해 단계에서 95%의 Li 금속이 회수되고, 이는 LiCl와 함께 금속 전환공정으로 재도입된다.

상기의 공정 요건을 기준으로 사용후핵연료 차세대 관리 공정의 단위 공정별 예상 물질 수지를 작성하였고, 이를 기준으로 금속전환체의 조성을 추정하였다.

제 4 절. 금속전환체의 특성 분석

금속전환체 및 용융염 stream에 포함되는 핵종들의 물질 수지를 사용후핵연료 차세대 관리 공정 개념을 이용하여 추정하였다. 표 5는 물질 수지 평가 결과를 요약한 것이다. 특히 금속전환체의 열원 계산은 보수적 관점에서 용융염에 잔류하는 원소를 제외한 나머지 핵종이 모두 금속전환체에 포함된다는 가정하에 수행하였다. 사용후핵연료 차세대 관리 공정에서 금속전환체의 stream으로부터 분리되는 Cs, Sr 등의 12개 핵종에 대한 질량, 방사능 및 발열량과 산화물 사용후핵연료와의 상대비가 표 6에 요약되어 있다. 특히 이트륨은 금속전환공정 LiCl-Li-Li_2O계에서 복합산화물 형태로 변환되고, 금속전환체의 stream에 포함되지만, Y-90의 반감기가 64.1 시간으로 매우 짧기 때문에 실제 핵종 선원항 산정시 제외하였다.

제 5 절. 결　론

고온 용융염계에서 산화물 핵연료의 금속전환으로 인한 발열량 및 방사능 준위 감소량의 정량적인 평가와 함께, 각 단위공정별 기준요건의 기초자료 확보를 위해 실험실 규모의 반응성 검증 실험결과와 기 발표된 문헌을 토대로 예상 물질수지를 작성하였다. 본 장에서 예측한 핵종별 회수율들을 고려한 inventory 예측에는 불확실성이 많이 포함될 개연성이 높다. 특히 현재 실험 규모가 20kg/batch 정도에 밖에 미치지 못하기 때문에 과연 얼마만큼 정밀하게 핵분열 생성물들이 금속 전환체와 분리되는가에 대해서는 높은 불확실성이 존재한다. 따라서 실제 처분장 소요 면적 등을 평가할 때에는 이와 같은 불확실성을 알아보기 위해 우선 100% 핵종들이 분리된다고 가정하여 평가하고 최종적으로 이 결과에 대해 불확실성을 고려하여 소요 면적 등을 도출하는 방식을 택하였다.

참 고 문 헌

1. E.J. Karell, R.D. Pierce, and T.P. Mulcahey, "Treatment of Oxide Spent Nuclear Fuel Using the Lithium Reduction Process", ANL/CMT/CP-89562(1996).
2. M. Fujie, Y. Shoji, and T. Kobayashi, "Development of Lithium Process for

Reprocessing LWR Spent Fuel", Proceedings of GLOBAL'95, p. 1448 ~ 1453(1995).

3. T. Usami, M. Iizuka, and T. Koyama, "Analysis of Reduction Behavior of Oxide Fuels by Lithium Using UO_2 and Simulated Materials", Proceedings of GLOBAL'95, p. 1472 ~ 1477(1995).
4. R. Ahluwalia, and H. Geyer, "The GC Computer Code for Flow Sheet Simulation of Pyrochemical Processing of Spent Nuclear Fuels", Nuclear Technology, vol. 116, 180 ~ 195(1996).
5. T. Usami, M. Kurata, T. Inoue and J. Jenkins, "Behavior of Actinide Elements in the Lithium Reduction Process(Ⅰ)-Feasibility of the Li Reduction Process to UO_2 and PuO_2", T-99089(2000).
6. T. Usami, M. Kurata and T. Kato, "Reactions of Rare Earth Oxides in Li Reduction Process and Properties of Products", T-99088(2000).
7. G. Croff, "A User's Manual for the ORIGEN2 Computer Code", ORNL/TM-7175(1980).

표 5. Mass Balance of the Advanced Spent Fuel Management Process

구 분		핵물질, 반응물질 도입공정					금속전환공정			Li회수공정		
		①	②	③	④	⑤	⑥		⑦	⑧	⑨	⑩
LiCl						4200		96.6	4103.4	96.6		4200
Li						460		1.560	66.262	1.560	417.657	21.10
Li_2O								4.490	190.739	4.490		9.511
O_2				118								
UO_2		70.749			U_3O_8 23.583		U	70.678				
							UO_2	0.071				
TRU	AmO_2	0.066			0.066		Am	0.062				
							Am_2O_3	0.004				
	CmO_2	0.004			0.004		Cm	0.004				
	NpO_2	0.037			0.037		Np	0.036				
							Np_2O_3	0.001				
	PuO_2	0.620			0.620		Pu	0.614				
							Pu_2O_3	0.006				
AMAEM 등	BaO_2	0.248			0.248		$BaCl_2$	0.006	0.242	0.006		0.248
	CsO_2	0.276			0.276		CsCl	0.006	0.270	0.006		0.276
	Eu_2O_3	0.009			0.009		EuOCl +$LiEuO_2$	0.018				
	Rb_2O	0.037			0.037		RbCl	0.002	0.072	0.002		0.074
	SeO_2	0.013			0.013		Li_2Se	0.000	0.013	0.000		0.013
	SrO	0.159			0.159		$SrCl_2$	0.004	0.155	0.004		0.159
	TeO_2	0.065			0.065		Li_2Te	0.002	0.063	0.002		0.065
RE	CeO_2	0.285			0.285		CeO + Ce_2O_3	0.285				
	Gd_2O_3	0.008			0.008		$LiGdO_2$	0.016				
	La_2O_3	0.079			0.079		$LiLaOCl_2$	0.004	0.154	0.004		0.158
	Nd_2O_3	0.252			0.252		$LiNdO_2$	0.504				
	Pr_2O_3	0.072			0.072		$LiPrO_2$	0.144				
	Pm_2O_3	0.000			0.000		$PmCl_2$	0.000	0.000	0.000		0.000
	Sm_2O_3	0.050			0.050		$LiSmO_2$	0.100				
	TbO_2	0.000			0.000		TbO_2	0.000				
	Y_2O_3	0.047			0.047		$LiYO_2$	0.094				
VPS	Kr	0.074	0.074									
	Br	0.002	0.002									
	I_2	0.017	0.017									
	Xe	0.731	0.731									
NM	Ag_2O	0.004			0.004		Ag	0.008				
	CdO	0.014			0.014		Cd	0.014				
	MoO_2	0.634			0.634		Mo	0.634				
	PdO	0.244			0.244		Pd	0.244				
	Rh_2O_3	0.036			0.036		Rh	0.072				
	RuO_2	0.382			0.382		Ru	0.382				
	Sb_2O_3	0.001			0.001		Sb	0.002				
	SnO_2	0.007			0.007		Sn	0.007				
	TcO_2	0.150			0.150		Tc	0.150				
	ZrO_2	0.731			0.731		Zr	0.719				

표 6. Mass, Radioactivity and Thermal Power of Elements Removed in the Advanced Spent Fuel Management Process

Nuclide	Radioactivity		Thermal Power	
	Ci	%	W	%
Te	2.78E+02	9.36E-02	0.23	2.73E-02
Se	0.41	1.38E-04	1.02E-04	1.20E-05
Br	0.00	0.00	0.00	0.00
Kr	4.90E+03	1.7	7.3	0.86
Rb	2.16E-05	7.26E-09	1.80E-08	2.11E-09
Sr	5.78E+04	19.	67.	7.9
Y	5.78E+04	19.	3.21E+02	38.
I	3.16E-02	1.06E-05	1.46E-05	1.71E-06
Xe	2.91E-32	9.79E-36	5.33E-35	6.24E-36
Cs	8.84E+04	30.	1.48E+02	17.
Ba	7.83E+04	26.	3.08E+02	36.
Pm	9.36E+03	3.2	3.4	0.39
Total	2.97E+05	1.00E+02	8.54E+02	1.00E+02
Total/SF	75.7557		75.7345	

제 3 장. 방사성 붕괴열 이력 및 선원항 평가

제 1 절. 배경

금속 전환체의 처분에 따른 문제를 파악하기 위해서는 먼저 금속전환체에 포함된 방사성 핵종들의 열 붕괴 이력을 파악하여야 한다. 고준위 방사성 폐기물 처분장 설계 시에 고려되는 주요 인자는 방사성 붕괴열이다. 우리나라와 같이 결정질 심부 암반에 고준위 방사성 폐기물을 처분하는 경우 충전재로 벤토나이트를 사용하는데 벤토나이트는 온도가 약 120 도가 되면 상변화가 일어나서 방사성 핵종들에 대한 흡착 능력이 저감하게 된다. 따라서 심부 지열을 고려하여 처분공 주변 온도가 120 도, 공학적 안전 마진을 고려해서는 100 도를 넘지 않게 설계하는 일이 중요하며 이와 같은 설계에 필요한 처분공 표면에서의 열 선속(heat flux) 이력을 평가하는 일은 처분장 최적 설계를 위해 필요하다.

잘 알려진대로 방사성 붕괴열은 사용후핵연료의 냉각 시간에 관계가 있다. 일반적으로 금속전환의 경우 냉각 기간이 적을수록 상대적 효용도가 높으나, 본 연구에서는 사용후핵연료직접 처분의 경우와 단순 비교하기 위하여 40 년의 냉각 기간을 사용하였다. 또한 단순히 Cs-137과 Sr-90을 분리하는 공정과 보다 정밀하게 모든 핵분열 생성물들을 100% 회수하는 공정을 비교하여 처분장 면적 감소 효과를 분석하도록 하였다.

제 2 절. 붕괴열 평가

금속전환체의 절대 발열량과 시간에 따른 발열량 변화를 ORIGEN-2 코드를 이용하여 계산하였다[1]. 분석 결과, 그림 1에 도시된 바와 같이 붕괴열이 높은 Sr-90과 Cs-137을 금속전환 공정에서 제거하면 단위 질량당 금속 전환체에서 발생하는 붕괴열은 감소한다. 그러나 그림 1에 잘 나타난 바와 같이 Sr과 Cs 외에 기타 핵분열 생성물을 모두 분리하더라도 실제 열 이력은 초기 10 여년간 약간 변화하는 것을 제외하고는 별 효과가 없음을 알 수 있었다.

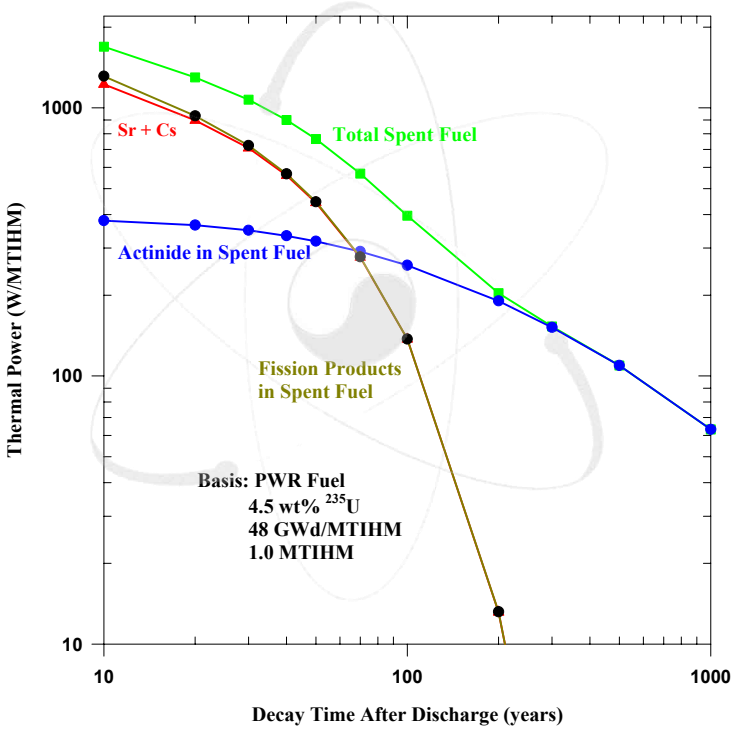

그림 1. 금속저장체와 사용후핵연료의 열 이력 비교

따라서 금속전환공정이 고준위 방사성폐기물 처분장 면적을 감소하기 위한 방안으로 활용된다면 굳이 많은 비용을 들여 모든 핵분열 생성물들을 분리하는 방식보다는 Cs과 Sr을 보다 효율적으로 회수하는 방안이 바람직할 것이다.

ORIGEN-2 코드와 PWRU.LIB 라이브러리를 사용하여 PWR 사용후핵연료에 포함된 핵종량을 계산하였다. 이 평가에서 사용된 기준 사용후핵연료에 대한

조건은 초기농축도는 3.2 wt%이고, 연소도는 33 GWd/tU이며, 냉각 기간은 40 년이다.

붕괴열은 예상한 바와 같이 지수 함수로 감소하였다. 본 분석에서는 시간에 따른 전체 발열량을 5 개의 파라미터를 갖는 지수 함수로 피팅하였는데 그 결과는 그림 2에 나타나 있다. 그림 2와 같이 금속전환체의 시간에 따른 발열량은 $y = 98.18E^{-0072x} + 144.95E^{-0.015x} + 23.18$의 함수와 잘 일치하였다.

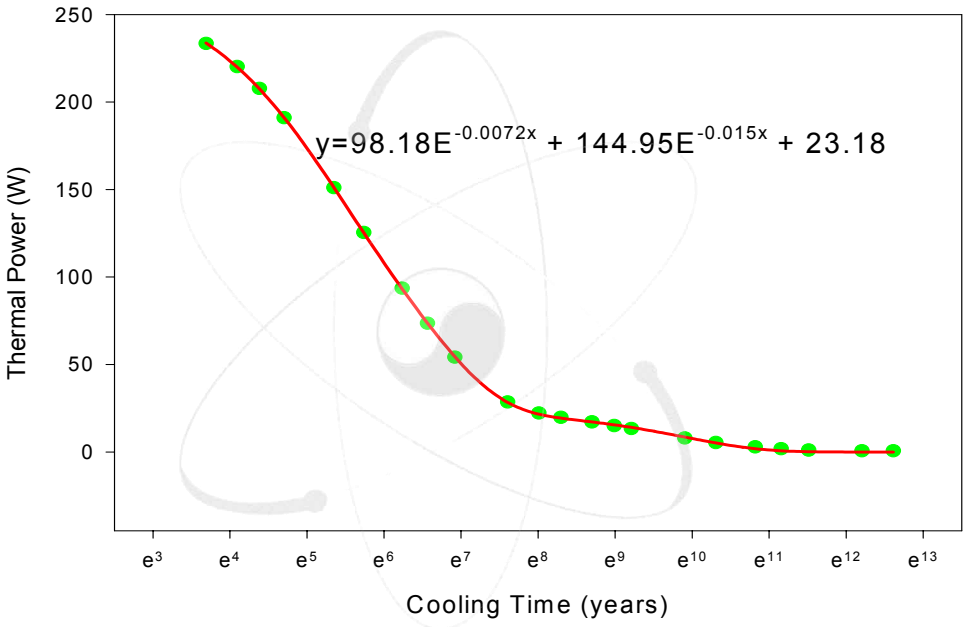

그림. 2. Thermal Power of a Reduced Metal Ingot as a Function of Cooling Time.

제 3 절. 금속 전환체 선원항 평가

금속전환체에 포함된 핵종량 추정을 위해 본 연구에서는 12 개 핵종이 SF차세대공정에서 제거되는 것으로 가정하였다. 이 12 개 핵종과 O2(산소)를 제외한 나머지 핵종은 모두 금속전환체에 포함되는 것으로 가정하였다. 이때 시간에 따른 방사능은 $y = 905.35E^{-0.0001x} + 123062E^{-0.0455x} + 6014.87E^{-0.0021x}$ 함수와 매우 잘 일치하였다. 질량, 방사능 및 발열량이 총량의 0.1 % 이하인 핵종을 제외한 금속전환체에 포함된 34개의 원소를 표 1에 요약 수록하였다. 표 1에 나타난 바와 같이 플루토늄이 전체 방사능의 대부분을 차지하고, 플루토늄, 아메리슘 및 큐륨이 발열량의 대부분을 차지하는 것으로 나타났다. 20 kgHM 산화물 사용후핵연료로부터 금속전환된 금속전환체의 질량, 방사능 및 발열량은 각각 19.76 kgHM, 1,764 Ci 및 4.7 W 이며, 이는 산화물 사용후핵연료 발열량과 방사능의 각각 24.27 %와 24.24 % 이다.

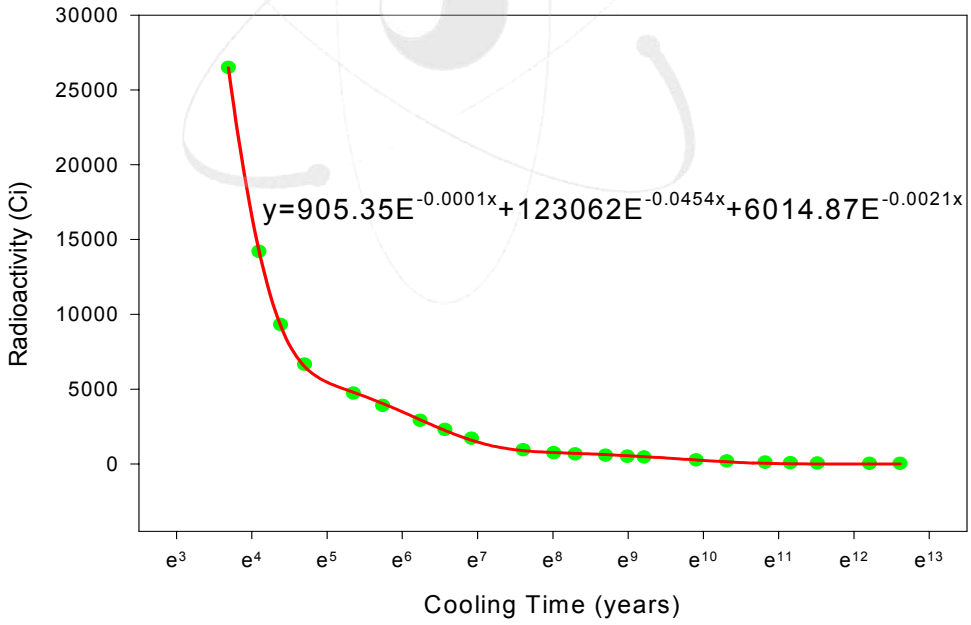

그림 3. Radioactivity of a Reduced Metal Ingot as a Function of Cooling Time.

제 4 절. 결 론

고온 용융염계에서 산화물 핵연료의 금속전환으로 인한 발열량 및 방사능 준위 감소량의 정량적인 평가와 더불어 각 단위공정별 기준 요건 정립을 위한 기초 자료 확보를 위해 실험실 규모의 반응성 검증 실험결과와 발표된 문헌을 토대로 예상 물질 수지를 작성하였고, 이를 기준으로 금속전환체의 발열량과 방사능을 ORIGEN-2 코드를 이용하여 계산한 결과, 다음과 같은 결론에 도달하였다.

○금속전환체의 시간에 따른 발열량과 방사능은 지수함수로 감소하고, 각각 $y = 98.18E^{-0072x} + 144.95E^{-0.015x} + 23.18$와 $y = 905.35E^{-0.0001x} + 123062E^{-0.0454x} + 6014.87E^{-0.0021x}$의 함수와 매우 잘 일치하는 결과를 나타내었다.

○20 kgHM 산화물 사용후핵연료로부터 금속전환된 금속전환체의 방사능 및 발열량은 1,764 Ci와 4.7 W 이고, 이는 산화물 사용후핵연료 발열량과 방사능의 각각 24.27 %와 24.24 %였다

참고 문헌

1. G. Croff, "A User's Manual for the ORIGEN2 Computer Code", ORNL/TM-7175(1980).

표 1. Mass, Radioactivity and Thermal Power of Elements Included in a Reduced Metal Ingot

Nuclide	Radioactivity		Thermal Power	
	Ci	%	W	%
H	3.12E+02	0.33	1.05E-02	3.84E-03
C	0.57	5.98E-04	1.67E-04	6.09E-05
N	0.00	0.00	0.00	0.00
F	0.00	0.00	0.00	0.00
Na	0.00	0.00	0.00	0.00
Al	0.00	0.00	0.00	0.00
Si	1.95E-08	2.05E-11	2.42E-11	8.85E-12
P	1.95E-08	2.05E-11	1.97E-10	7.21E-11
Fe	0.69	7.22E-04	2.32E-05	8.47E-06
Co	43.	4.54E-02	0.67	0.24
Ni	1.6	1.63E-03	1.56E-04	5.69E-05
Zn	0.00	0.00	0.00	0.00
Zr	1.8	1.92E-03	2.12E-04	7.74E-05
Mo	0.00	0.00	0.00	0.00
Tc	13.	1.40E-02	6.66E-03	2.43E-03
Ru	5.50E+02	0.58	3.27E-02	1.19E-02
Pd	0.11	1.18E-04	6.67E-06	2.44E-06
Ag	0.16	1.71E-04	2.69E-03	9.83E-04
Cd	34.	3.56E-02	5.70E-02	2.08E-02
Sn	0.95	1.00E-03	1.32E-03	4.82E-04
Sb	1.14E+03	1.2	3.6	1.3
Eu	5.62E+03	5.9	38.	14.
Gd	3.64E-04	3.83E-07	3.29E-07	1.20E-07
U	3.7	3.91E-03	5.30E-02	1.94E-02
Np	20.	2.06E-02	5.71E-02	2.09E-02
Pu	8.27E+04	87.	1.10E+02	40.
Am	1.80E+03	1.9	59.	21.
Cm	1.61E+03	1.7	56.	21.
Rh	5.50E+02	0.58	5.3	1.9
La	1.11E-10	1.17E-13	8.15E-13	2.98E-13
Ce	1.49E+02	0.16	9.88E-02	3.61E-02
Pr	1.51E+02	0.16	1.1	0.40
Nd	1.57E-09	1.66E-12	0.00	0.00
Sm	3.50E+02	0.37	4.10E-02	1.50E-02
Total	9.50E+04	1.00E+02	2.74E+02	1.00E+02
Ratio	24.2444		24.2655	

제 4 장. 금속전환체 처분을 위한 열 해석

제 1 절. 배경

사용후핵연료의 금속전환체를 처분하는 경우에 금속전환체의 붕괴열에 따른 처분장 배열의 변화를 분석하기 위해 열해석을 수행하였다. 처분장은 그림 1에 도시된 사용후핵연료 직접처분에 대한 개념 연구에서 처분장 배열에 대한 열해석[1]을 수행할 때 사용한 처분장 형태와 동일한 형태로 가정하였다. 따라서 처분장은 지하 500 m에 위치하고, 화강암을 모암으로 하며, 수평 터널의 바닥에 수직으로 처분공이 수직으로 굴착되어 하나의 처분 용기를 거치하도록 하는데, 사용후핵연료의 열 이력을 고려한 평가 결과 벤토니아트 완충재 층과 처분 용기와의 접촉면에서의 온도가 섭씨 100 도를 넘지 않고 또한 처분 공굴의 역학적 안정성을 고려하여 처분 터널 간격은 40 m이고, 처분공의 피치 간격은 6 m로 산정되었다[2]. 또한 처분용기도 사용후핵연료를 처분할 때 사용하는 처분용기와 같이 직경 1.08 m 및 높이 4.96 m이며, 처분용기와 처분공간의 간격에는 0.5 m 두께의 벤토나이트를 충전하는 것으로 가정하였다. 즉 처분개념의 모든 형태와 크기 및 재질은 사용후핵연료 직접 처분에 대한 개념을 설정하는데 사용한 열해석을 수행할 때 사용한 것들과 같다.

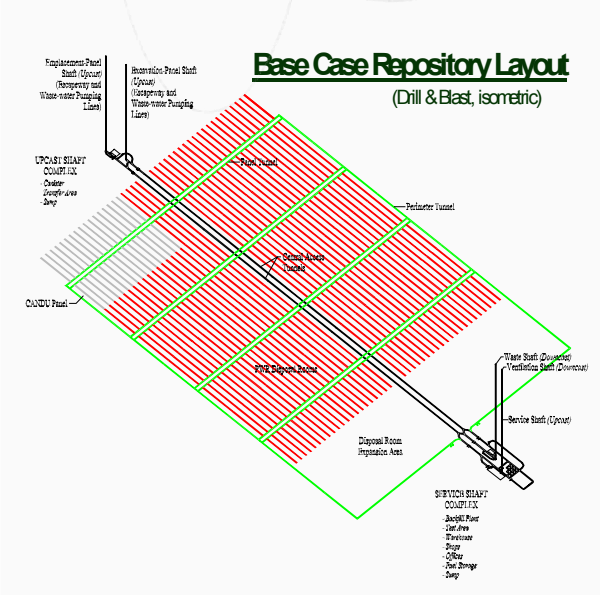

그림 1. 한국형 기준 처분장 개념도

제 2 절. 평가

처분장 배열 및 하나의 처분 용기에 넣을 고준위 방사성폐기물 처분량을 검토하기 위한 열 해석을 위한 조건으로 벤토나이트 온도 상한치를 이용하였다.

처분장은 암반, 처분용기, 사용후핵연료 및 완충재 등으로 구성되어 실제적인 열 전달 기구는 복잡하지만 현실적인 측면에서는 전도에 의한 열 전달이 지배적이라고 가정하였으며, 이와 같은 조건에서 온도 분포 계산을 위하여 처분장 기하학적 구조를 고려하여 FEM 수치 해석코드인 ABAQUS를 이용하였다. 처분장 크기와 벤토나이트의 칫수 등을 비교하고, 열 해석을 위한 물리적 경계 조건 등을 고려하여 개발된 수직 처분공형의 열해석 모델은 그림 2와 3에 도시되었다.

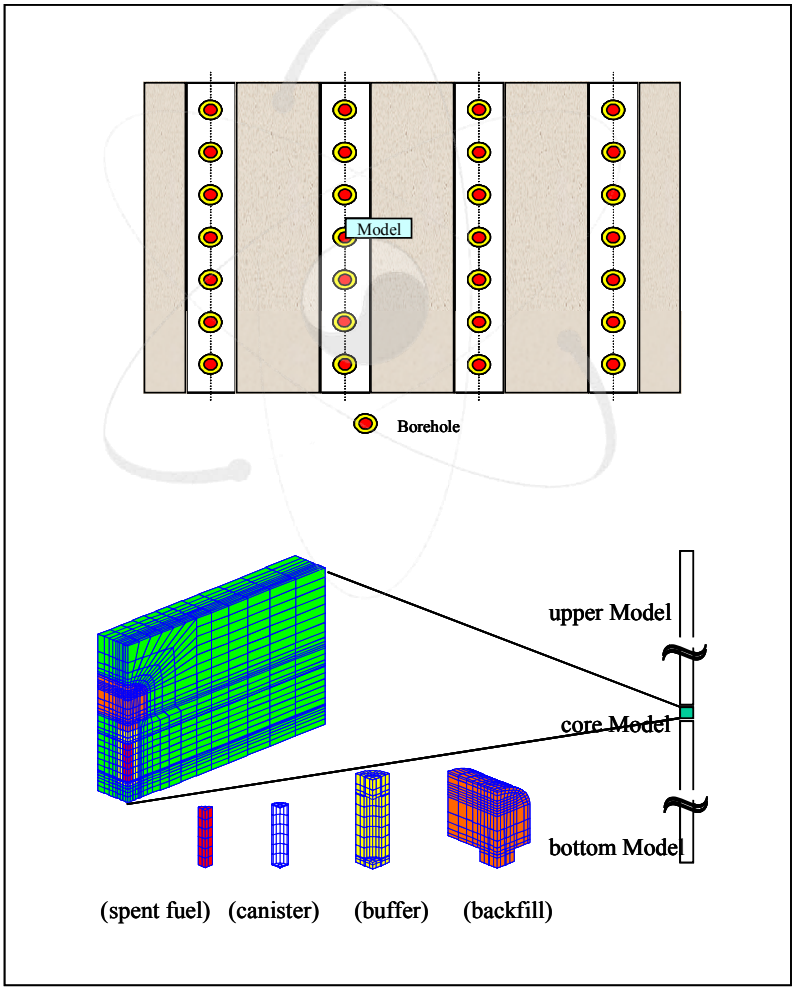

그림 2. 처분장 열 계산을 위한 모델링 개념도

그림 2는 처분장 전체에 대한 온도 분포를 평가하기 위한 모델링 방안으로, 처분장 내의 처분 동굴에서 수직으로 굴착된 처분공에 처분 용기가 500m 위치의 평면에 무한하게 배열되어 있다는 가정하에서 처분용기 한 개에 대한 대칭성을 이용한 열해석 모델이다. 또한 그림 3은 처분장 레이아웃 계산에서 중요한 벤토니아트 완충재 주변에서 방사성 붕괴열로 인한 온도 상승을 정확히 예측하기 위한 모델링 방벙으로 터널과 처분공을 자세히 평가는데 사용하였다.

처분장 배열은 처분 용기에서 발생하는 붕괴열에 영향을 많이 받는데, 벤토나이트의 열적 조건을 넘지 않게 하나의 처분 용기에 거치될 고준위 방사성 핵종량과 처분장 배열이 결정된다.

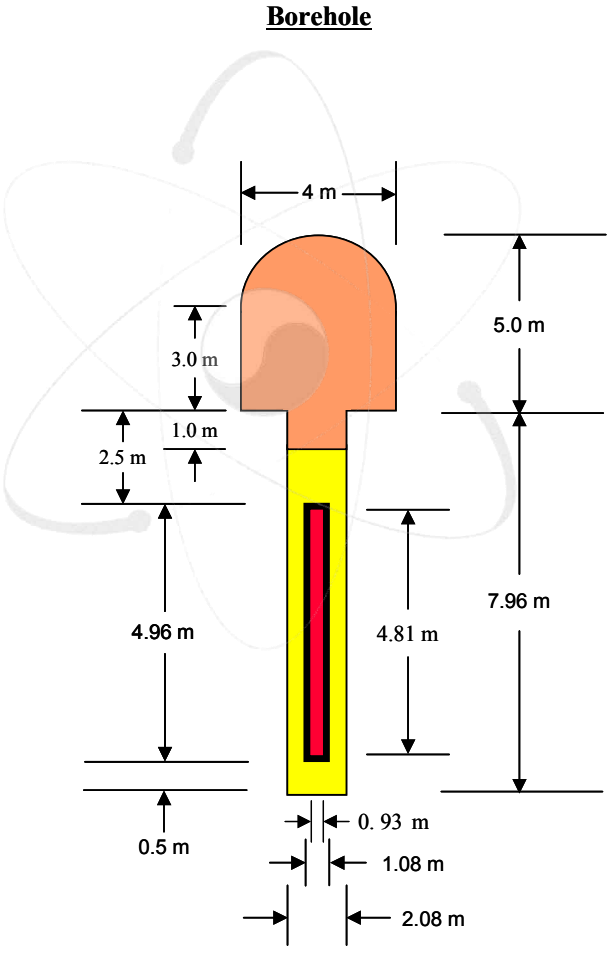

그림 3. Near Field 상세 열 계산을 위한 개념도

따라서 그림 4에 도시된 사용후핵연료 처분 용기 디자인을 근거로 사용후핵

연료 집합체 1개의 부피에 해당하는 금속 전환체의 무게를 계산하여 이를 기준으로 발열량을 계산하였다. 이때 사용된 금속전환체의 밀도는 18,000 Kg/m^3 이다. 처분 개념에서 사용하고 있는 표준 PWR 핵연료 집합체 1개의 부피는 0.2283 m^3 (0.224x0.224x4.55) 이므로 이 부피에 해당하는 금속전환체의 무게는 4109.4 kg이다. 사용후핵연료를 금속전환체로 전환한 경우에도 직접 처분과의 공정한 비교를 위해서 같은 냉각 기간을 사용하여 직접 처분에서 사용한 40 년을 냉각 기간으로 사용하였다.

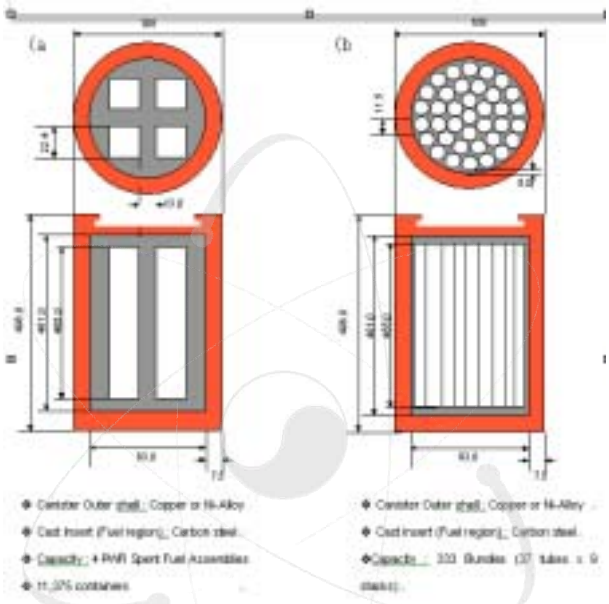

그림 4. 직접 처분 개념 개발에서 사용된 처분 용기 개념

냉각 기간은 처분장 열 분포와 그에 따른 직접 처분과 금속 전환에 따른 처분장 소요 면적 산출 결과에 영향을 미친다. 금속 전환 결과물인 금속체는 사용후핵연료와 비교하여 초기 방사성 붕괴열은 낮으나 CS-137이나 Sr-90과 같이 방사성 붕괴열을 발생하는 단밤감기 핵종이 제거되었으므로, 상대적으로 냉각 기간이 길어지더라도 붕괴열이 덜 감소하게 된다. 따라서 비교적 냉각 기간이 짧은 10년을 기준 값으로 계산을 할 경우 금속 전환으로 인한 처분장 부지 소요 면적 감소 효과는 냉각 기간이 상대적으로 긴 40 년의 경우보다 증대한다. 그러나 본 연구에서는 직접 처분과의 비교를 위하여 40 년을 기준 값으로 사용하였다.

40년 냉각된 후 금속전환체의 붕괴열은 239.78 W/tU 이다. 계산 결과 사용후핵연료 집합체 1개의 부피에 해당하는 금속전환체를 처분 용기에 거치했을 때 열부 하는 985.35 W 이다. 이러한 방법으로 금속전환체의 무게를 환산하여 붕괴

열량을 계산하였는데, 이때 equivalent number of assembly 의 무게란 핵연료집합체의 부피에 해당하는 금속전환체의 무게를 말한다. 즉 1 equivalent number of assembly 는 핵연료집합체 1 개의 부피에 해당하는 금속전환체가 발생하는 붕괴열을 갖는다는 의미가 된다. 표 1은 40년 냉각 기간을 기준으로 equivalent number of assembly와 발생되는 붕괴열을 표시한 것이다.

표 1. 냉각기간 40년에서 Equivalent Number of Assembly 에 따른 붕괴열 발생량

Eq. Ass.Num.	1	1.5	2	3	4
Heat(Watt)	958.7	1438	1917	2876	3835

표 2는 처분장 열 해석에 사용하고 있는 물성치들로 사용후핵연료 처분장 열 해석에 사용된 것들과 동일한 값을 사용하였다. 여기서 금속전환체는 대부분 우라늄으로 구성되어 있으므로 금속전환체 열 평가를 위한 대표값으로 우라늄의 열적 자료를 사용하였다.

표 2. 열 해석에 사용된 물성치

Parameter	Granite	Mixture	Bentonite	Canister	Metal
. Density (kg/m^3)	2700	2100	2100	8000	18000
. Conductivity (W/m.K)	3.2	2.0	1.2	15.2	7.0
. Specific Heat (J/kg.K)	815	800	1000	504	275

처분장 배열에 대한 열 해석에서 경계 조건은 처분 용기로부터 1,000 m의 하부에서는 온도를 지온으로 고정하고, 지표면은 자연 대류가 일어나고, 앞뒤좌우 4면은 대칭하다고 설정하였다. 초기 온도는 지하로 내려가면서 100 m당 3 ℃가 상승한다고 가정하였다. 평가 대상 시간은 처분 용기를 동시에 처분장에 모든 폐기물을 거치 하는 시간한 후 2,000 년까지이다. 처음에는 40 m 터널에 6 m 처분공 간격을 기준으로 평가하고, 민감도 분석을 위해 터널 간격을 40 m, 60 m, 80 m로 변화하면서 처분공 간격을 6 m, 10 m, 12 m로 변화시키면서 열 해석을 수행하였다.

그림 5 - 그림 7은 각 equivalent number of assembly에 따라 터널 및 처분공 간격에 대한 벤토나이트의 온도 분포를 시간에 따라 도시한 것이다. 그림 3은 equivalent number of assembly 가 1 개, 그림 4는 1.5 개, 그림 5는 4 개인 경우이다. 이들 그림으로부터 터널 간격의 변화보다는 처분공 간격의 변화가 벤토나이트의 온도에 영향을 많이 미치므로, 온도 조절을 위해서는 처분공 간격을 변화시키는 것이 효율적이라는 것을 알 수 있다. 또 사용후핵연료를 직접 처분하는 경우와 금속전환체로 전환후 처분하는 경우에 벤토나이트가 갖는 최고 온도는 금속전환체가 훨씬 늦게 나타났는데 그 이유는 사용후핵연료의 경우 Cs-137과 Sr-90과 같은 핵분열 생성물질에 의해 초기에 최고 온도가 나타나고 이와 같은 핵분열 생성물들의 영향이 적은 금속저장체의 경우 액티나이드 원소들의 붕괴에 의해 상대적으로 늦게 최고치가 나타나게 된다.

표 3은 equivalent number of assembly 수와 처분장 배열의 변화에 따른 벤토나이트의 최고 온도와의 상관 관계를 나타낸 것이다. 이로부터 벤토나이트의 최고 온도는 equivalent number of assembly 수의 변화에 많은 영향을 받고 있음을 알 수 있다. 따라서 벤토나이트 최고 온도가 열적 제한치 이하로 유지되기 위해서는 처분장 배열의 변화와 함께 열 부하도 변화해야 한다. 일반적으로 벤토나이트는 약 120 도를 경계로 상변화를 일으켜 핵종 저지능력이 저감된다고 알려져 있다. 이와 같은 상한치 온도 120 도에다 공학적 오차 범위를 고려한 설계 목표 온도치는 처분장 내 벤토나이트 공학적 방벽에서의 온도가 100 도를 넘지 않는 것이다.

그림 6은 equivalent number of assembly 수에 따른 벤토나이트 최고 온도를 각 배열에 따라 도시한 것이다. 40x6 m의 배열에서는 equivalent number of assembly 수에 따라 온도의 증가가 높은 반면 60x10 및 60x12 m인 경우에는 온도 증가가 완만하다. 또 열적 조건을 만족시키는 배열과 equivalent number of assembly 수는 60x10 m 조건에서는 1-1.5 개 정도인 것을 알 수 있다. 정확한 숫자는 지열 분포 등에 따라 차이가 날 수 있다. 따라서 금속전환체와 사용후핵연료 집합체의 밀도비가 약 9 배이기 때문에 처분장 면적 감소비는 약 2.25-3.37 배에 달할 수 있다. 그러나 실제 전환 공정에서 100 % 방사성 붕괴열을 발생하는 Cs과 Sr을 분리할 수 없고 처분 용기의 구조도 직접 처분 용기와 금속 전환 용기가 다를 것으로 예상되기 때문에 본 연구에서는 처분장 소요 면적이 보수적으로 2 배 정도 감소한다고 판단하였다.

표 3. 열부하 및 배열의 변화에 따른 벤토나이트 최고 온도

Eq.Num.Ass.	Heat power(W)	layout(m)	Max. Temp.(℃)
1	958.7	40x6	99.26
		60x10	72.1
		60x12	69.5
1.5	1438	40x6	132.0
		60x10	90.95
		60x12	86.9
2	1917	40x6	164.8
		60x10	109.9
		60x12	104.5
		80x10	105.7
3	2876	40x6	230.5
		60x10	147.7
		60x12	139.5
4	3835	40x6	296
		60x10	185.6
		60x12	174.8
		80x10	177.1

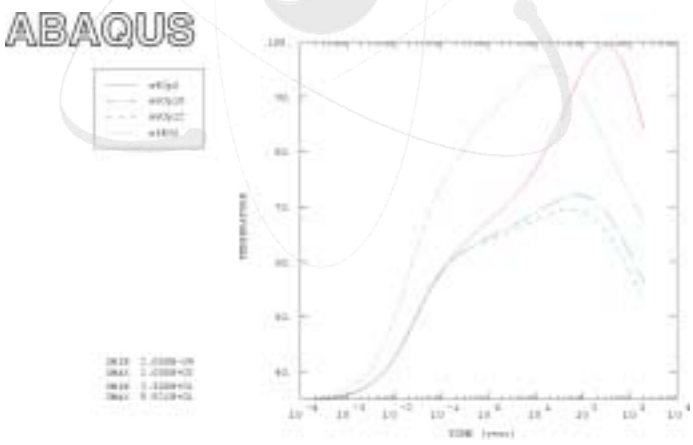

그림 5. Equivalent Number of Assembly 1 개인 경우 시간에 따른 벤토나이트 온도 분포

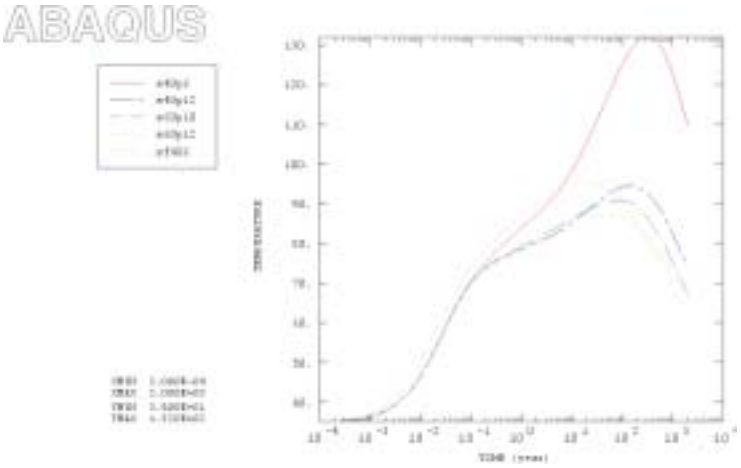

그림 6. Equivalent Number of Assembly 1.5 개인 경우
시간에 따른 벤토나이트 온도 분포

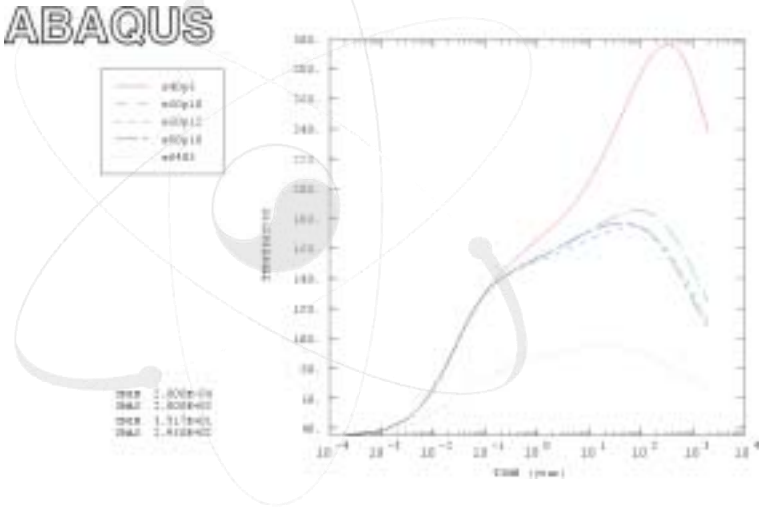

그림 7. Equivalent Number of Assembly 4 개인 경우 시간에
따른 벤토나이트 온도 분포

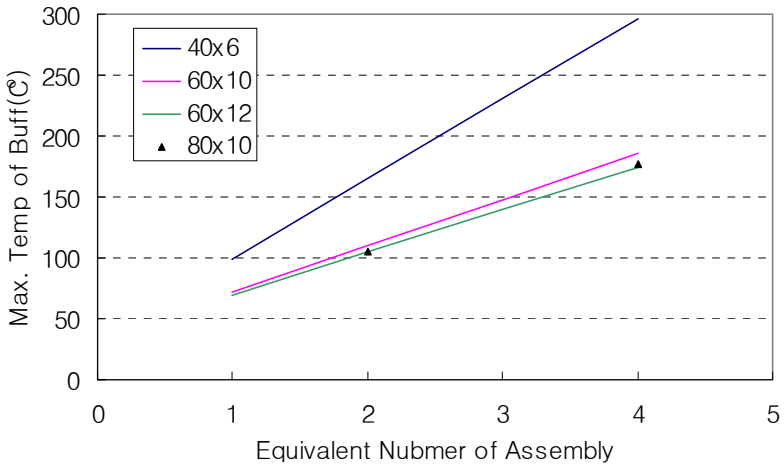

그림 8. 처분장 각 배열에서 Equivalent Number of Assembly 개수에 따른 벤토나이트 최고 온도 변화.

참고 문헌

1. J.E.Kuh et al., "Development of Thermal Analysis Method for the Near Field of HLW Repository using ABAQUS", KAERI/TR-1163/98, 1998.
2. 강철형 외, "심지층처분시스템개발", KAERI/RR-2013/99, 한국원자력연구소, 1999.

제 5 장. 금속전환체 처분에 따른 환경 영향 평가

제 1 절. 배경

사용후핵연료와 금속전환체를 심지층 처분할 경우 방사선적 안전성에 영향을 미치는 주요 요인들은 방사성 핵종의 유출 특성의 차이가 영향을 미친다. 일반적으로 사용후핵연료를 직접 처분하는 경우에 보수적인 평가 모델링을 사용하더라도 규제치를 충분히 만족하는 것으로 알려져 있다[1,2]. 그러나 일반 대중들의 관점에서 볼 때 안전성이 어느 정도 비용을 투입하여 저감될 수 있다면 그 핵연료 주기는 타당성을 인정받을 수 있겠다. 본 보고서에서는 이러한 관점에서 금속전환체를 심층 처분할 경우 안전성을 향상시키는 요인들은 무엇이고 그 정도는 얼마인지를 간단한 모델링을 이용해 평가하였다.

제 2 절. 방사성핵종 유출 기구의 차이점

사용후핵연료를 직접 처분할 경우 방사성핵종의 유출은 갭 및 조화 유출에 의해 결정된다[1]. 두 가지 유출 기구 중 연간 개인 선량의 최고치에 미치는 갭 유출의 영향이 가장 크다. 사용후핵연료에는 그림 2에 나타난 바와 같이 일부 고용해도 핵종들이 이산화 우라늄 고화체에서 유출되어 처분 시 이미 그림 1과 같이 유출이 용이한 결정 경계면(grain boundary)과 피복관과 이산화 우라늄 경계면인 갭에 존재한다. 이렇게 갭에 존재하는 핵종들은 침투 지하수에 쉽게 용해된다. 일반적으로 이산화 우라늄 고화체에 포함되어 있는 방사성 핵종들은 이산화 우라늄이 용해되어야 비로소 지하수와 접촉하여 용해된 후 외부로 유출될 수 있다. 심부 지하수는 일반적인 천부 지하수와는 달리 전기 포텐셜이 낮다. 전기 포텐셜이 낮다는 것은 지하수 내 용존해 있는 자유 산소의 량이 낮다는 것을 의미한다. 산소의 공급이 원활하지 못한 심부 조건에서는 우라늄이 U_3O_8 형태가 아닌 UO_2 형태로 존재한다.이 경우 우라늄의 최고 용해도는 매우 낮아 이로 인해 사용후핵연료 고화체의 95%를 차지하는 우라늄의 용해율이 저감하여 이로 인해 비록 최고 용해도가 상대적으로 높은 핵종들이 사용후핵연료 고화체 내에 존재한다고 하더라도 이들이 자신들의 최고 용해도만큼 침투 지하수에 용해되는 것이 아니라 이산화 우라늄의 용출 정도에 따라 용해율이 결정되는 조화 유출 현상이 발생한다.

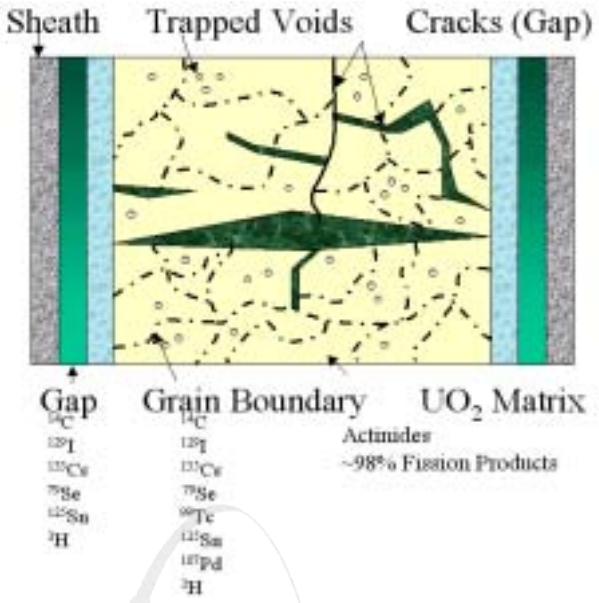

그림 1. Gap 유출 기구 모사도

이와 같이 사용후핵연료로부터의 방사성 핵종 유출 현상을 모델링하면 갭 유출이 조화 유출에 비하여 전체 처분 안전성에 미치는 영향이 크다. 또한 대부분의 갭 용해 핵종들은 벤토나이트 완충대 층이나 암반에서 흡착이 비교적 덜 되기 때문에 상대적으로 흡착의 영향을 많이 받는 초우라늄 원소 계열에 비해 상대적으로 빠른 시간에 생태계로 도달하게 된다. 생태계로의 도달 시간이 빠르게 되면 방사선 붕괴에 의해 농도 저감 효과가 감소함으로 전체적인 처분 안전성에 악 영향을 미치게 된다. 따라서 합리적인 비용을 투입하여 갭 유출 현상을 방지할 수 있다면 처분 안전성은 현재의 수준보다 향상될 수 있다.

또한 사용후핵연료 고화체보다 최고 용해도가 낮은 물질로 고준위 방사성폐기물 고화체를 제작할 경우 고화체와 조화 유출되는 핵종들의 유출량이 저감될 수 있다. 본 연구에서는 아직 고화체의 재질 등이 정확히 선정되지 않았으므로 일반적으로 널리 활용되고 있는 유리고화체를 가정하여 환원 환경의 최고 용해도 값인 0.001 g/m^3를 사용하였다.

사용후핵연료 처분 시와 금속전환체 처분 시의 방사선적 안전성을 비교하기 위하여 동일한 핵종 유출 시나리오를 적용하였다. 본 연구에서 적용한 핵종 유출 시나리오는 “우물 시나리오”로서 현재 세계 각국의 고준위 방사성폐기물 처분 안전성 평가 연구에서 가장 많이 고려되고 있는 대표적인 사례이다. 우물 시나리오에서 고려하는 핵종 유출 경로는 아래와 같다.

(1) 금속 저장체와 사용후핵연료 각 경우 모두 용기 수명이 1,000 년으로 예측되는 처분 용기에 거치되어 처분공 내 매립된다.
(2) 처분공과 주변 암반 사이의 빈 공간은 38 cm 두께의 벤토나이트 물질로 충전된다.
(3) 보수적인 관점에서 처분 시점과 동시에 처분장 주변의 심부 암반의 지화학적 조건은 운영 기간 동안 유입된 산소의 영향은 무시되고 보다 안정적인 환원 환경으로 환원된다.
(4) 또한 보수적인 관점에서 굴착으로 처분공 주변에 발생한 불포화대는 모두 침투 지하수에 의해 평가 시점에서 포화 상태로 환원되고 처분 용기 표면에서는 침투 지하수 내에 용해된 불순물들에 의해 처분 용기의 부식이 시작된다.
(5) 극히 보수적인 관점에서 모든 처분 용기가 1,000 년의 시간이 경과하면 완전 부식되어 더 이상 핵종 이동을 저지하는 물리적 장벽으로서의 기능을 상실한다.
(6) 고화체로부터 유출된 핵종들은 벤토나이트 완충대를 거쳐 화강암반과 같은 단열 암반으로 이동한다.
(7) 단열 암반을 통해 이동하던 핵종들은 대수대로 유입되어 희석되고 음용수를 필요로 하는 지역 주민에 의해 지표면으로 배출된다.
(8) 지역 주민은 소요 음용수를 모두 본 연구에서 고려한 우물로부터 얻는다.

위와 같은 주요 공정에서 살펴 본 바와 같이 사용후핵연료를 처분하느냐 혹은 금속전환체를 처분하느냐는 핵종 유출에만 영향을 주고 기타 지중 매질에서의 핵종 이동에는 영향을 주지 못한다. 그러나 핵종 유출의 차이가 결과적으로 전체 방사선적 처분 안전성에 큰 영향을 미칠 수 있다.

제 3 절. 평가와 토의

전 절에서 제시된 시나리오 평가를 위해서 부록에 기술된 핵종 이동 평가 자료들이 사용되었다. 본 보고서에서는 이 계산에 활용된 데이터들에 대한 자세한 논의를 생략하는바, 이들 데이터들에 대한 논의는 참고 문헌[3]에 자세히 수록되어 있다. 그림 2에서 도시된 바와 같이 사용후핵연료 처분 시에는 크게 두 가지로 다른 핵종 그룹에 의해 연간 개인 선량이 결정되었다. 먼저 그림 1에서 비교적 이른 시간에 보이는 최고치들은 갭 유출로 인한 영향이다. 이러한 갭 유출에 크게 영향을 미치는 핵종들로는 I-129와 Cl-36 등이 있다. 한편 일정 시간이 경과한 후 TRU 등과 이들의 붕괴로 인한 자 핵종들이 우물로 유입되게 된다. 사용후핵연료를 직접 처분하는 경우도 보수적인 우물 시나리오의 경우에도 현재 한국원자력안전기술원이 제시한 기준치인 $2x10^{-5}$ Sv/yr를 잘 만족한다.

금속전환체의 경우에는 연간 개인 선량은 사용후핵연료의 선량 그래프에서 갭 유출로 인한 초기 핵종 영향을 제외한 것이다. 따라서 그림 2에 나타난 바와 같이 사용후핵연료 직접 처분 시보다 우물로 유입되기까지 경과 시간이 매우 길어지고 그 최고치도 낮아짐을 알 수 있다.

그림 2에 나타난 바와 같이 금속 전환 공정은 고준위 방사성폐기물을 최종 처분할 경우 방사선적 안전성을 안정시키는 것으로 나타났다. 하지만 직접 처분의 경우에도 현재 기준치를 충분히 만족하며 현재 국내 기준치로 사용되는 2mRem/yr가 외국의 기준치들에 비해 낮으며 현실적으로도 국내 기준치가 연간 자연 방사능 량의 1/00에도 미치지 못한다는 점을 감안해야 할 것이다.

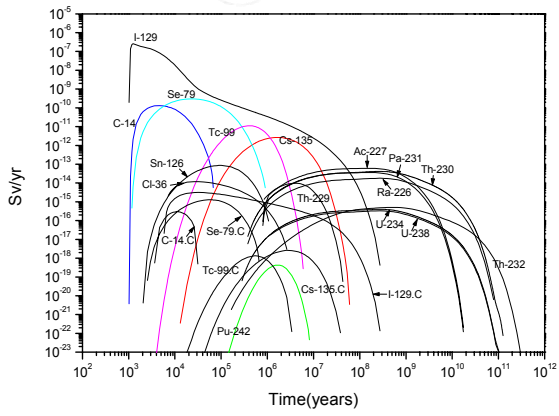

그림 2. 직접처분과 금속저장체 처분에 따른 연간 개인 선량 변화
(높은 수치가 직접 처분/ 낮은 수치가 금속 전환)

이와 같은 평가 결과를 보다 자세히 규명하기 위해 그림 3,4에서는 직접 처분 시 연간 개인 선량에 가장 높은 영향을 주는 I-129와 Cs-135의 직접 처분 시와 금속전환체 처분 시의 연간 개인 선량을 평가하여 도시하였다. 그림 3에 도시된 바와 같이 직접 처분 시 연간 개인 선량에 가장 많은 영향을 미치던 I-129의 경우 금속 공정에 따라 IFR가 없어짐으로서 I-129의 유출률이 유리고화체의 용해율에 의해 결정되게 된다. 따라서 IRF 형태의 고유출 현상이 사라지고 상대적으로 매우 낮은 량만 주변 환경으로 유출된다. 그림 4에서 나타난 바와 같이 Cs-135의 경우에도 같은 현상이 발생한다.

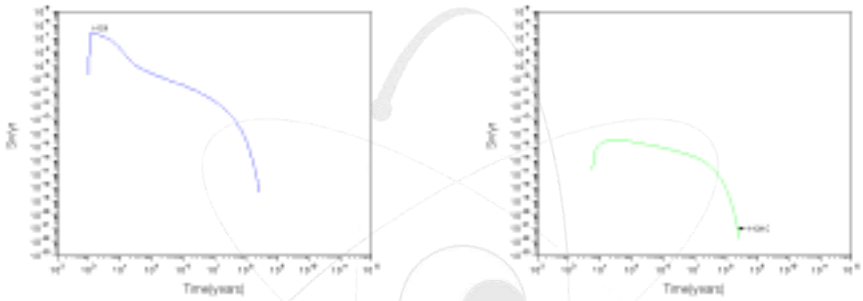

그림 3. 직접 처분시(좌)와 금속전환 시(우) I-129로 인한 연간 개인 선량의 변화

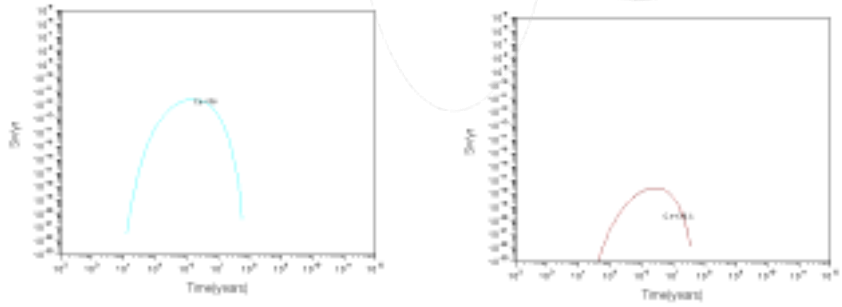

그림 4. 직접 처분시(좌)와 금속전환 시(우) Cs-135로 인한 연간개인선량의 변화

참고 문헌

1. 황용수 외, “Effect of EDZ on a Potential HLW Repository in Korea ”,

accepted for ISRM Conference, July 2002, Seoul, 2002.
2. 황용수 외, “Progress of R&D on Total System Performance Assessment of a Potential High Level Radioactive Waste Repository in Korea”, Journal of Progress in Nuclear Energy, in printing, 2002.
3. 황용수 외, “Influence of EDZ on Safety of a Potential HLW Repository”, Annals of Nuclear Energy, accepted, 2002.

부록 MASCOT-K 계산에서 사용된 주요 인자 및 입력 자료 리스트

```
Title 'MASCOT-K 2001 Problem'
# Modified on 06 Dec 01 by Y S Hwang
#########
#
# +--+    +----------+        +----+     +------+               +-----+    +----+    +----+
# |c1| ->  |candu_gap   | ----> | dis t| ->  |buffer  | ------------> |dist1  | -> |rock | -> |well  |
# +--+    +----------+    /   +----+     +------+             /   +-----+    +----+    +----+
#                         /                                  /
# +--+    +----------+  /                                   /
# |c2| ->  | pwr_gap   |-/                                  /
# +--+    +----------+                                    /
# +--+    +----------+                                   /
# |c3| -> |candu_cong| ---------------------------------/
# +--+    +----------+                                  /
# +--+    +----------+                                /
# |c4| ->  | pwr_cong  | ------------------------- --/
# +--+    +----------+
<INCLUDE> nuclides
#########
submodels
#########
c1 containment;
candu_gap backfill with gap;
c2 containment;
candu_cong congruent ;
c3 containment;
pwr_gap backfill with gap;
c4 containment;
pwr_cong congruent ;
dist DISTRIBUTOR
      INLETS candu_gap pwr_gap
      OUTLETS TObuffer;
buffer POROUS GEOSPHERE;
#       INLETS TObuffer
#       OUTLETS TOdist1;
dist1 DISTRIBUTOR
       INLETS  candu_cong pwr_cong buffer
       OUTLETS TOrock;
rock  FRACTURED GEOSPHERE
       INLETS dist1.TOrock
```

```
        OUTLETS TOwell;
well   DOSES
        INLETS rock.TOwell;
end
#######
options
#######
 number of cases 1;
 maximum talbot points 256;
 minimum talbot points 32;
 small 1e-6 ; invert tolerance 1.0e-6 ;
 printing consequences 1;
 complexity 22;
end options;
##########
parameters
##########
<INCLUDE> inventory
##
<INCLUDE> chem
##
in candu_gap
    set backfill_thickness=0.38;
#   set position_to_outlet = backfill_thickness;
    set position_to_outlet = 0.0;
    set gap_volume=0.4537;
    set cross_sectional_area_bg=16.83;
    set porosity_1_bg=0.3;
    set porosity_2_bg=0.002;
    set diffusion_coefficient_1=0.00126;
    DECLARE rho;
    set retardation_coefficient_1(*)=1 + (1800 * kd(*))/porosity_1_bg;
    set retardation_coefficient_2(*)=1 + (2700 * rock_kd(*))/porosity_2_bg;
    set coef_total_flux=1.0;
##
in candu_cong
  DECLARE backfill_thickness;
  set backfill_thickness=0.38;
  set outlet_position = 0.4+backfill_thickness;
  set pore_velocity=0;
```

```
   set porosity=0.3;
   set cross_sectional_area=16.83;
   set initial_matrix=2.63e4;
   set diffusion_coefficient=0.00126;
   set retardation_matrix=1+(1800 * 5e-2)/porosity;
   set retardation_nuclide(*)=1 + ( 1800 * kd(*))/porosity;
   set solubility_of_matrix=3.7e-5;
   set radius_of_waste_form=0.4;
   set concentration_coef=0.0;
   set flux_coef=1.0;
##
in pwr_gap
    set backfill_thickness=0.38;
#   set position_to_outlet =backfill_thickness;
    set position_to_outlet = 0.0;
    set gap_volume=0.6107;
    set cross_sectional_area_bg=16.83;
    set porosity_1_bg=0.3;
    set porosity_2_bg=0.002;
    set diffusion_coefficient_1= 0.00126;
    set retardation_coefficient_1(*)=1+(1800*candu_gap.kd(*))/porosity_1_bg;
    set retardation_coefficient_2(*)=1+(2700*candu_gap.rock_kd(*))/porosity_2_bg;
    set coef_total_flux=1.0;
##
in pwr_cong
  DECLARE backfill_thickness;
   set backfill_thickness=0.38;
   set outlet_position = 0.4+backfill_thickness;
   set pore_velocity=0;
   set porosity=0.3;
   set cross_sectional_area=16.83;
   set initial_matrix=6.96e3;
   set diffusion_coefficient=0.00126;
   set retardation_nuclide(*)=1 + ( 1800 * candu_cong.kd(*))/porosity;
   set retardation_matrix=1+(1800 * 5e-2)/porosity;
   set solubility_of_matrix=3.7e-5;
   set radius_of_waste_form=0.4;
   set concentration_coef=0.0;
   set flux_coef=1.0;
########
```

```
in dist
########
  set fraction(from candu_gap to TObuffer) = 1.0*2529;
  set fraction(from pwr_gap to TObuffer) = 1.0*11375;
#########
in buffer
#########
  set PATH_LENGTH=0.38;
  set FLOW_VELOCITY=0.0001;
  DECLARE poro;
  set poro=0.3;
  set DISPERSION_COEFFICIENT=0.00126;
  DECLARE rho;
  set rho=1800.0;
  set RETARDATION(*)=1+rho*candu_gap.kd(*)/poro;
########
in dist1
########
  set fraction(from candu_cong to TOrock) = 1.0*2529;
  set fraction(from pwr_cong to TOrock) = 1.0*11375;
  set fraction(from buffer to Torock)=1.0;
#######
in rock
#######
  set path_length = 100;
  set flow_velocity = 0.7;
  set dispersion_coefficient = 35;
  DECLARE poro;
  set poro =0.002;
  set retardation(*) = 1;
  set fracture_aperture = 0.0001;
  set matrix_diffusion_distance = 0.5;
  set matrix_diffusion_constant(*) = 3.15e-7;
  set matrix_capacity_factor(*) = poro + (2700 * kd(*));
  set kinetic_sorption_rate(*) = 0;
  set kinetic_desorption_rate(*) = 0;
##
#####
in well
<INCLUDE> bio
```

```
#####
END
#####
output times
( 1e0 1.25e0 1.4e0 1.5e0 1.6e0 1.7e0 2e0 2.5e0 2.8e0 3.5e0 4e0 4.8e0
  5e0 6.4e0 8e0 )
  times 9 until 1e12;
end
```

제 6 장. 전문가 의견 평가

현재 국내에서 수행 중인 대부분의 후행핵연료 주기 기술들은 기초 기술 개발 단계로 실증 규모의 시설 개념이 정립되지 않아 정확한 비용 산정이 어려운 형편이다. 그중 직접 처분의 경우 외국의 유사 사례가 비교적 많이 알려져 있고 개념이 일부 정립되어 비용 산정이 어느 정도 가능하나 금속 저장체의 경우 현재까지 어느 연구 기관도 20 kg 이상 실제 시설을 설계해 본 경험이 없기 때문에 정량적인 경제성 평가는 실질적으로 불가능하다. 이러한 제약 조건 하에서라도 현재 주어진 자료를 토대로 국내 전문가들의 의견을 수렴해 보는 것은 나름대로 의의가 있다 하겠다. 본 연구에서는 후행핵연료주기 개념 평가에 사용되는 일반적인 방식에 의거하여 경제성, 환경친화성, 핵비확산성, 기술성, 에너지 안보성에 관한 국내 전문가들의 금속전환 개념에 대한 설문 조사를 수행하였다. 먼저 각 항목의 가중치를 알아보기 위하여 전문가들의 의견을 종합하였다. 국내 전문가들은 표 1에 도시된 바와 같이 항목별 가중치를 설정하였다.

표 1. 항목별 가중치 평가

전문가	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	평균
경제성	30	30	20	30	40	20	20	10	50	50	30.0
환경친화성	20	20	20	20	5	10	20	15	10	20	16.0
핵비확산성	10	10	20	20	20	10	20	30	10	10	16.0
기술성	30	30	20	20	30	10	30	30	20	5	22.5
에너지 안보성	10	10	20	10	5	50	10	15	10	15	15.5

표 2는 금속전환체의 경제성과 관련된 전문가 의견 수렴 결과이다. 흥미로운 것은 금속 전환 공정 연구에 참여하는 전문가들(*로 표시)은 금속 전환 공정의 경제성이 매우 높다고 대답한 반면 직접 처분에 종사하는 전문가들(#로 표시)는 경제성이 낮다고 응답하였다. 평균적으로 국내 전문가들은 금속전환체를 도입할 경우 전체 핵연료주기 비율이 직접 처분에 비해 약 100-200 % 정도 상승할 것으로 예상하였다.

질문 : 귀하께서는 금속핵연료 주기가 사용후핵연료 직접 처분 옵션에 비해 경제성이 어떨 것으로 예상하십니까

표 2. 경제성 항목 평가

전문가	A	B#	C	D*	E#	F	G*	H*	I*	J*
200%이상비용 증가					O				O	O
100-200% 비용 증가		O	O					O		
50-100%로 비용 감소				O			O			
50% 이하로 감소										
잘모르겠다	O					O				

세 번째 질문은 금속 전환 공정의 환경 영향에 관한 것으로 직접 처분과 비교하여 얼마나 환경 친화적인가를 규명하는 것이다. 이에 대해 대부분의 전문가들은 우호적이거나 중립적인 의견을 제시하였다.

표 3. 환경 친화성 평가

	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
환경 친화적이다	O			O		O	O			
비환경 친화적이다									O	
별 차이가 없다		O	O		O			O		O
잘 모르겠다										

네 번째 질문은 금속 전환 공정이 핵비확산성에 대한 것이다.

표 4. 핵비확산성 평가

전문가	A	B	B	D	E	F	G	H	I	J
핵확산 문제가 있음					o				o	
다소 있지만 평화적 재활용으로 간주할 수 있음	o	o	o	o			o	o		o
아무런 문제가 없음										
잘 모르겠다						o				

대부분의 전문가들은 약간의 마찰은 있겠으나 금속 저장 개념은 TRU들이 밀폐된 순환 공정에서 핵종별로 분리되지 않으므로 핵비확산성에 저촉되지 않는 개념으로 간주하였다. 다만 소수 의견으로 금속 저장 개념은 재활용과는 무관하므로 핵비확산성과는 전혀 무관하다는 의견도 개진되었다.

다섯 번 째 질문은 금속 전환 공정이 과연 목표대로 2,010 년까지 상용화될 수 있을 것인가에 대한 것인데 이에 대해서는 전문가들의 의견이 다양하였다. 특히 금속 전환 공정 개발 연구에 참여하고 있는 전문가들은 자체 기술로도 2,010 년까지 실증이 가능하다고 응답한 반면 외부 전문가들은 활발한 국제 협력이 추가되어야 할 것이라고 권고하고 있다.

표 5. 기술성 평가

전문가	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
국내기술로도 2010년까지 실증에 문제없음				O			O			
활발한 국제협력을 통해 2010년까지 목표 달성에 문제없음	O	O	O			O				O
2010년보다 상당한 시일이 필요함								O	O	
원천적으로 실현 불가능함										
잘 모르겠음					O					

여섯 번째 질문은 금속 전환 공정이 과연 에너지 안보에 얼마만큼 기여할 것으로 예상하는 것이다. 대부분의 응답자들은 금속 전환 공정이 에너지 안보에 어느 정도 공헌할 것이라고 우호적인 답변을 했으나 일부 전문가들의 경우 금속 저장체는 재활용을 전제로 하지 않은 개념이므로 에너지 안보성과는 무관하다고 하였다.

표 6. 에너지 안보성

전문가	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
크게 공헌				O			O			
비교적 공헌		O	O		O				O	
무관함	O					O				O
잘 모르겠음								O		

전문가 조사에 참여한 연구진들은 모두 금속 전환 공정 핵심 연구 인력이거나 연구소내 후행핵연료 주기 전문가 혹은 KISTEP 방사성폐기물 분야 핵심 기획을 담당하는 전문가들이다. 대부분 전문가들의 의견은 금속 전환 공정에 대해 우호적이나 경제성과 관련해서는 비관적인 시각이 존재하는 것도 사실이다. 또한 금속 전환 공정에 정통한 일부 전문가들이 금속 전환 공정은 평화적 재활용과는 무관하다는 응답한 바, 이는 아직 금속 전환 공정과 평화적 재활용을 위한 연구개발 프로젝트와의 연관성이 잘 정립되지 않은 결과로 판단되므로 이에 관해서는 연구소 차원에서 이해와 조정이 요구된다. 또한 대부분의 전문가들이 현재의 기술 개발 속도로는 2,010 년까지 실증 연구를 완료할 수 없다고 판단하였는데 이를 극복하기 위해서는 활발한 국제 협력을 통한 연구 분업화로 빠른 시간 내에 연구 목표 달성을 위한 체제를 구축해야 할 것이며, TRM(Technical Road Map)을 보다 정밀하게 작성하여 정해진 연구 시간표에 따라 연구가 진행되고 있음을 소내외 전문가들에게 공지하여 연구 진행에 대한 공신력을 제고해야 할 것이다.

제 7 장. 결 론

본 연구에서는 금속전 환체의 처분에 따른 영향 평가 중 방사선적 안전성과 처분장 면적 관련 현안들을 정량적으로 분석하였다. 이를 위해 먼저 대략적으로 금속 전화체와 용융염 고화체에 포함된 방사성 핵종들의 량을 20 kg batch를 기준으로 평가하였고 이를 근거로 금속 전환체의 방사성 붕과열 이력을 ORIGEN 코드를 이용하여 평가하여 이를 커브 피팅을 통하여 지수 함수 형태로 도출하고, 최적 처분장 레이 아웃 도출을 위한 처분장 열 분포 해석에 적용하였다. 주어진 열 선원항 이력과 벤토나이트 완충재의 최고 허용 온도를 고려한 결과 금속 전환체를 처분할 경우 사용후핵연료 직접 처분의 경우와 같이 처분 터널의 간격은 40 m, 처분공 간의 간격은 6 m의 경우가 최적 레이아웃으로 도출되었다. 그러나 하나의 처분공에 거치되는 금속 전환체의 질량이 사용후핵연료보다 2 배 이상 증가하므로 보수적인 관점에서 전체 처분장 면적이 약 2 배 감소한다고 평가하였다. 이와 같은 열 계산을 위한 입력 자료는 사용후핵연료와 금속 전환체 두 경우 모두 같은 자료들을 활용하여 공정한 비교가 되도록 하였으며 Cs-135와 Sr-90만 분리하고 기타 핵분열생성물을 분리하지 않더라고 동일한 효과를 얻을 수 있음을 확인하였다. 처분장의 방사선적 영향 평가 결과 두 개념 모두 현재 한국원자력안전기술원이 제안한 기준치를 잘 만족하였다. 그러나 금속전환의 경우 갭 유출 핵종들이 모두 공정에서 제거되어 용융염 고화체 형태로 처분됨으로서 연간 개인 선량이 저감하고 생태계로 도달하는 시간도 길어짐이 판명되어 안전성을 향상시키는 것으로 판명되었다.

금속 전환체의 타당성을 종합적으로 평가하기 위해서는 경제성 분석 및 수용성 분석이 수반되어야 한다. 현재 금속전환공정에 관한 실증 시설 개념이 도출되지 않아 경제성 분석 등에 많은 어려움 따라 이를 극복하기 위해 국내 전문가 의견을 수렴하였다. 전문가 의견 수렴 결과 대부분의 전문가들은 금속 전환 공정이 실용화되는데는 많은 연구 기간이 필요하다고 판단하였다. 경제성에 관한 의견은 양분되어 금속 전환 연구를 수행하는 전문가들의 경우 직접 처분에 비해 경제성이 두 배 이상 향상되는 것으로, 타 분야 전문가 특히 고준위 방사성폐기물 처분 분야 전문가들은 비용이 두 배 이상 증가할 것으로 판단하였다. 따라서 경제성과 관련된 논의를 불식시키기 위해서는 보다 정밀한 개념/상세 설계 단계를 거쳐 공정 당 비용이 산출되어야 할 것이다. 전문가들은 대부분 금속 전환 공정 개념이 우리나라 에너지 안보성을 제고하는데 도움이 줄 것으로 판단했으나 일부 전문가들은 금속 전환 공정은 재순환 개념이 아니기 때문에 에너지 안보성과 관계없다고 보았다. 금속전환체 및 향후 개발에 착수될 것으로 예상되는 첨단

사용후핵연료 관리 관련 연구를 체계적으로 수행하기 위해서는 본 전문가 의견 수렴법에서 도출된 여러 가지 문제점들을 해결하는 노력이 선행되어야 할 것이다.

먼저 체계적인 TRM이 작성되고 도출된 핵심 개발 기술 항목들을 국내외 공동 연구를 통해 언제 어떻게 개발되는가를 미리 제시하고 연구 중간 결과들을 투명하게 공개함으로서 연구 타당성 및 결과물과 연구진에 대한 신뢰성을 제고해야 할 것이다. 또한 일부 전문가들이 비공개적으로 지적한 대과제 내 각 세부과제들간의 연구 협력성을 증진하기 위한 노력과 생산된 데이터들에 대한 품질보증 체계도 조속한 시일 내에 완비해야 할 것이다. 이와 병행하여 현재 연구소 내에서 병렬적으로 진행되고 있는 평화적 재활용 기술 및 직접 처분 연구 과제들과의 연관성을 전반적으로 검토하는 작업이 요구된다.

현재 세계적으로 rough extraction 개념 등 새로운 전환 공정 개념들이 속속 도입되고 있다. 금속 전환 공정과 유사한 GEN-IV 개념 등 새로운 핵연료 주기 개념에 대해서도 발생량 저감 효과만을 앞세울 것이 아니라 구체적으로 환경에 미치는 영향을 일반적인 희석 물 부피 개념이 아닌 연간 개인 선량 개념을 이용하여 구체적으로 평가하고 발생 폐기물을 최종 처분할 경우 소요 면적 등을 산출하여 핵연료 개념의 타당성을 제고하는 노력이 요구된다.

서 지 정 보 양 식					
수행기관보고서번호		위탁기관 보고서번호	표준 보고서번호		INIS주제 코드
KAERI/RR- /2002					
제목/부제					
	사용후핵연료관리의 금속전환 및 고방열핵종 제거에 따른 처분안전성 및 경제성에 미치는 영향평가				
연구책임자 및 부서명	황 용수, 방사성폐기물처분기술개발팀				
연 구 자 및 부서명	서 중석, 사용후핵연료관리기술개발팀				
	김성기, 방사성폐기물처분기술개발팀				
	박 정화, 방사성폐기물처분기술개발팀				
발행지	대전	발행기관	한국원자력연구소	발 행 일	2002.12.31.
페이지	49 P.			크 기	Cm
참고		도표	유(O), 무( )		
비밀 여부	공개(O),대외비( ),_ _급비밀			보고서 종류	RR
연구위탁 기관				계약번호	
초록(300단어내외)	사용후핵연료의 효율적인 관리 및 재활용을 위한 금속전환공정에서 발생하는 금속폐기물과 용융염 고화체를 심지층 처분하는 경우에 대한 영향을 평가하였다. 우선 각 방사성 핵종별 선원항을 예측하였고 이를 기반으로 금속저장체에서 발생하는 방사성 붕괴열 이력을 두 가지의 경우 평가하였다. 계산된 붕괴열 이력을 이용하여 금속전환체를 처분하는 경우 최적 처분장 레이아웃을 도출하였으며 처분에 따른 장기 방사선적 안전성을 평가하였다. 연구 결과 금속전환공정은 처분장 면적을 반으로 감소시키며 안전성을 향상시키는 것으로 나타났다. 그러나 이의 타당성 검토를 위해서는 파일롯 규모의 시설 개념이 제시되어 보다 자세한 경제성 분석이 수반되어야 하겠다.				
주제명 키워드(10단어 내외)	금속전환체, 사용후핵연료관리, 고준위방사성폐기물, 방사성폐기물처분, 방사성붕괴열, 리튬, 경제성				

BIBLIOGRAPHIC INFORMATION SHEET						
Performing Org. Report No.		Sponsoring org. Report No.		Standard Report No.		INIS Subject Code
KAERI/RR- /2002						
Title/Subtitle	Environmental and Economical Impact of the Spent Fuel Management Technology					
Project Manager and Dept.	Y S Hwang, Radwaste Disposal Team					
Researcher and Dept.	J S Seo, Spent Fuel Management Team S G Kim, Radwaste Disposal Team J H Park, Radwaste Disposal Team					
Pub.Place	Taejon	Pub.Org.	KAERI		Pub.Date	
Page	49 P.	Ill.and Tab.	Yes( ),No( )		Size	Cm
Note						
Classified	Open(O),Outside( ),_ _Class			Report Type	Annual Research	
Sponsoring Org.				Contract No.		
Abstract(About 300 words)	Technology development on lithium induced matallization process is the key to safely manage spent fuel. To understand its impotance on the nuclear fuel cycle, its impact on the radwaste disposal has been studied. Firstly, the inventories of major nuclides have been assessed for both metal forms and solid waste forms from molten salt processes. Then specific decay heat per mass was calculated and summation of exponential functions was created to fit the change of decay heat as a function of time. The decay heat information was used to determine the optimum layout of a repository whose pitch distance is determined by the temperature constraint of a buffer layer. Also post closure radioactive safety was assessed. Results showed that the Li induced metallization process can save the area for disposal by half and enhance the safety of the repository system. However, the pilot scale design concept is needed to understand cost of the process in the future.						
Subject Keywords(About 10 words)	Metallization, Spent nuclear fuel management, HLW, Lithium, Radioactive waste disposal, Cost					