

다단계 연속후처리를 포함하는 핵주기공정의 핵종농도  
동적분포해석 코드개발-정상평형상태 해석모델

장남복, 윤정선, 신영균, 오세기  
아주대학교

Development of a Computer Code for Analyzing  
Time-dependent Nuclides Concentrations in the Multi-stage  
Continuous HLW Processing System  
-Equilibrium Steady State Model

NamBok Jang, JungSun Yoon, YoungKyun Shin and SeKee Oh  
Ajou University

## 1. 서론

IAEA자료에 의하면 원자력 발전용 원자로는 1998년말 현재 세계 32개국에서 434기가 운전중이며, 총 출력은 3억 4889만kW인 것으로 나타났고, 이는 세계 총 발전량의 17%를 담당하는 것으로 확인되었다. 그러나 농축 우라늄 고체 핵연료를 사용하는 발전로 개념은 근본적으로 핵물질 SEU(Slightly Enriched Uranium)를 생산하기 위한  $^{235}\text{U}$  농축과 노내에서  $^{238}\text{U}$ 의 중성자 포획으로 전환·생성되는 Pu의 누적에 따른 핵확산 우려, 고준위 방사성 폐기물로 취급되는 사용후 핵연료 처리·처분에 관한 정책적·기술적 장기 전망의 불확실성, 그리고 설계기준사고인 LOCA로부터 중대사고로 이어지는 안전성 문제 등이 대두되고 있다. Th/ $^{233}\text{U}$ 용융염 핵연료주기를 이용하는 발전로 개념은 원자력 발전이 안고있는 고유문제들을 배제 또는 완화할 수 있는 방안으로 고려되고 있다. 그러나 대부분의 핵종분석 코드는 상용발전로의 우라늄/플루토늄 고체 혼합산화물 상태의 핵연료에 적합하게 만들어져서 사용후핵연료를 포함하는 HLW의 저장, 이송, 처리, 처분시설에서 일어나는 화학반응 효과를 명시적으로 취급하는데 많은 제약조건이 따른다. 따라서, 방사성물질을 생산, 저장, 처리하는 시설에서 방사능원의 시간적, 공간적 분포특성을 정확하게 예측하여 이 시설의 설계, 운전, 관리기술의 입력자료로 제공되기 위해서는 시설을 구성하는 기기, 계통의 특성 모델이 명시적으로 기술되어야 한다.

본 연구는 방사능원의 생성시설인 원자로와 주요 이동 경로인 1차 열전달계통 및 최종관리 시설로서 방사성폐기물처리계통을 포함하는 복합시설이 온라인 또는 오프라인으로 가동될 때 시설에 잔류하는 방사성물질의 농도분포와 이에 대응하는 방사선 강도의 동특성 해석을 위한 MULTISAMS 코드의 초기조건 평형상태 모델을 개발하였다.

## 2. MULTISAMS코드

방사성물질의 생성, 소멸, 변환, 분리를 포함한 연속공정 시스템은 일반적으로 내부에서 일

어나는 반응의 특성이 따라, 액체핵연료를 이용하는 원자로시스템, 사용후핵연료를 재처리하는 후핵재주기공정시스템과 방사성동위원소를 정제하는 방사화학공정시스템으로 분류할 수 있다. 그러나 혁신형 차세대 원자력에너지시스템은 원자로시설과 핵연료 재처리시설이 함께 연결되어 있는 폐쇄핵연료주기를 선호하고 있다. 따라서 두 시스템간의 성능연계성이 매우 높으며 상대적으로 짧은 냉각기간으로 인해 붕괴열원의 발열량이 크고 방사능 핵종의 성분 분포 시간종속 변화율이 큰 관계로 두 시스템을 함께 다루는 것이 편리하다.

MULTISAMS 코드는 반복계산법을 이용하여 폐쇄회로로 구성되는 반응로를 순환하는 방사성물질의 평형상태 농도를 계산한다.

MULTISAMS 코드의 반응공정 모델은 서로 연결되어 있으며 내부에 방사성물질 혼합유체가 순환하는 세 종류의 반응기에서 자연적 또는 설계에 의해 일어나는 현상을 기술한다. 즉, 반응기 간의 물질의 흐름, 각 반응기 내에서 방사성물질의 붕괴, 변환, 이동을 고려하며 특히 원자로에서는 중성자 흡수 및 핵분열반응을 추가로 고려한다.

일반적으로 시스템의 각 구성기기에서 단위체적 당 물질수지균형은 i-핵종 및 m-기기에 대한 시간종속 핵종농도 보존방정식에 의해

$$\frac{dX_{im}}{dt} = \sum_j [ l_{ij} \lambda_j + ( f_{ij} \sigma_{Gj} + y_{ij} \sigma_{fj} ) \phi_m + \frac{A_m}{V_m} s_{ij}^m + \frac{A_{bm}}{V_m} h_{ij}^m ] X_{jm} - [ \lambda_i + \sigma_{ai} \phi_m + \frac{A_m}{V_m} S_{im} + \frac{A_{bm}}{V_m} H_{im} + P_{im} ] X_{im} + \frac{1}{V_m} \sum_n \gamma_{nm} F^n X_{in} - \frac{1}{V_m} F^m X_{im} + \frac{1}{V_m} X_{id}^m$$

와 같다.

기기 성능간의 연계성이 매우 높기 때문에 각 기기를 순환하는 방사성 핵종의 성분분포 시간변화율의 상호 종속성이 크므로, 각 구성 기기에서의 단위체적 당 물질수지균형을 기술하는 시간종속핵종 농도보존방정식을 하나의 연립미분 방정식계로 간략화 하였다. 정상상태 모델은 이 연립방정식의 시간변화율을 0로 대치하여 선형방정식계로 변환하여 Gauss-seidal 수치해법에 의해 해를 구하였다.

### 3. AMBIDEXTER 모델

검증 시뮬레이션을 위한 계통구성은 현재 개발 중인 AMBIDEXTER 원자력에너지시스템의 원자로-열교환기-화학반응기 모델을 선택하였다. [그림 3.1]에 도시된 바와 같이 AMBIDEXTER는 용융염핵연료가 원자로 용기 내에서 핵분열반응과 순환하는 일체형 원자로계통으로써 생성된 방사성물질과 열에너지는 생성원과의 최단거리에서부터 서로 독립된 경로로서 방사선/물질수송회로와 열/에너지수송회로를 통해 분리되어 플랜트의 일부로서 상호 연계되어 있는 최종변환시설들인 고온전기화학반응기와 증기터빈계통에서 소정의 형태로 변환이 이루어지는 설계개념이다.

그러므로 원자로 내에 잔류하는 방사성물질이나 열에너지의 양은 최소로 유지되는 반면, 이용시설(증기터빈, 동위원소 생산설비 등)에서 포집되는 양은 최대로 공급하는 설계로써 LOCA에서 중대사고로 이어지는 안전성문제, 사용후핵연료와 고준위 폐기물의 관리문제등

을 최소화함은 물론 핵연료자원의 안정적공급과 원자력에 대한 대중이해제고와 같은 원자력 에너지의 평화적 이용에 있어 필수적 고려사항들을 구비조건으로 하는 원자로개념이다. 또한  $^{233}\text{U}$ 의 증식효과를 최대로 얻는 목표의 과거 MSBR 설계와는 달리 전환율을 수지균형점에 고정시키므로 토륨의 중성자흡수로 재생산되는  $^{233}\text{U}$  양이 연소손실량 만을 보충하는 핵적자활성 조건을 만족하도록 설계되어 있다. 이로서 불필요한  $^{233}\text{U}$ 의 과잉생산에 따른 핵확산문제를 배제할 수 있다.

원소의 화학적 특성에 따라 분류한 핵종군 별 정화공정 시간상수는 <표 3.1>에 수록하였으며, <표 3.2>은 이를 다시 각 원소별로 상세하게 정리한 것이다. 여기서 시간상수라함은 용기의 체적 용량에 해당되는 핵연료용융염의 양에 용해되어 있는 대상 핵종이 총량을 처리, 제거하는데 소요되는 시간의 역수로서 방사성동위원소의 붕괴상수와 대응되는 물리적 의미를 갖는다.

AMBIDEXTER 원자로가 핵적 자활성 설계요건을 만족하면서 정상출력운전 되기 위해서는 노심 내에서 중성자흡수로 소실되는  $^{232}\text{Th}$ 와 연소 또는 중성자포획으로 소실되는  $^{233}\text{U}$ 의 결손량을 지속적으로 공급해주어야 하는데, 이 중에서  $^{233}\text{U}$ 은 Thorium이 ( $n, \beta$ )반응으로 생성된  $^{233}\text{Pa}$ 이 물질/방사선 수송회로의 Protactinium저장조에서 반감기 27.4일의  $\beta$ -붕괴로 변환하여 노내로 회수되므로, 외부에서 공급해주어야 하는 핵연료물질은 잠재핵분열성원소인 Thorium 결손량만 요구된다.

## 4. 결과 및 분석

### 4.1 ORIGEN2/SAMS/MULTISAMS의 비교분석

MULTISAMS코드와 같이 정상 평형상태방정식 이론과 수치해석법에 기초를 두고 개발한 SAMS 코드와 ORIGEN2의 고연소도 결과를 비교하여 동일한 단일점 원자로 모델의 평형상태와 준평형상태의 차이에서 오는 상이도를 분석하고 다시 SAMS와 MULTISAMS를 비교하여 단일점 원자로 모델과 원자로-열교환기-화학반응기의 다중기기 모델간의 차이점을 평가하는 방법을 택하였다.

[그림 4.1]-[그림 4.6]는 각 핵종군 별 핵종에 대한 ORIGEN2와 SAMS결과의 상대오차를 도시한 것이다. 그림이 나타내는 특징을 보면, 두 모델간의 핵종군을 제외하고는 일관되게 오차범위 50-60%에서 평균치 및 최빈수를 갖는데, 이는 ORIGEN2 모델이 핵연료가 원자로에만 장전된 것으로 취급하나 SAMS모델은 계통 내에 장전된 핵연료의 총량( $1.0 \times 10^7 \text{cm}^3$ )을 원자로에 장전된 양( $5.0 \times 10^6 \text{cm}^3$ )의 2배로 가정하므로 단위체적 당 핵종농도 또한 ORIGEN2 계산치의 1/2에 근사한 값을 나타낸다. 여기서 오차분포의 편차는 평형모델(SAMS)과 준평형모델(ORIGEN2)의 차이점에 기인한다고 볼 수 있다. 이와 같은 코드 간의 모델링 이론의 차이가 불활성기체나 불활성금속류와 같이 제거주기가 매우 짧은 핵종군에 대해서는 더욱 판이한 경향으로 나타나며, 이는 핵연료물질 총재고량의 원자로 장전량 비율, 핵종붕괴반응 연쇄고리의 동특성, 그리고 핵종군 제거주기 간의 복잡한 동적 상관관계 때문에 해석된다.

<표 4.1> 과 <표 4.2>에서는 다단계 연속후처리 공정의 특성을 살펴볼 수 있는 대표적 핵종군으로서 제거주기가 짧은 불활성 기체류와 불활성 금속류의 주요 핵종에 대해 각 기기별 농도를 ORIGEN2 및 SAMS 값과 함께 비교할 수 있도록 정리하였다. MULTISAMS 모델이 다른 코드와 다르게 기기 별 제거주기를 적용하고 있지만 표에 의하면 단일점 원자로 모델을 가정한 ORIGEN2나 SAMS 모델에서는 나타낼 수 없는 기기종속 핵종농도를 해석하므로 각 시설 설계 시에 반응기의 성능요건에 맞는 용량설계 및 차폐설계에 필수적인 방사선원향을 기기에 따라 명시적으로 제공하게 된다.

## 4.2 주요 핵종의 방사능강도

원자로의 운전정지와 더불어 핵연료의 순환과 재처리시설의 가동이 중단된 이후, 시간경과에 따른 기기 별 핵종농도의 변화를 정리하였다. PWR핵연료의 운전정지후 출력이력과 비교하여 1시간 경과시 약 1/3, 1일 경과시 1/100, 1년 경과시 1/100,000에 불과한 것으로 나타났다. 이는 주요한 붕괴열원 핵종들이 화학반응기에 의해 시스템으로부터 제거되어 저장탱크로 이송되었기 때문이다. 시뮬레이션 결과인 그룹별 방사능 강도는 <표4.3>-<표4.4>로 나타내었다.

## 5. 결론 및 논의

원자로 내에서 연소 중인 핵연료나 저장 또는 재처리 중인 사용후핵연료의 성분으로서 시설의 공정설계, 안전성분석 및 차폐설계에 중요한 입력자료가 되는 핵분열생성물질, 방사화 생성물 및 악티나이드의 핵종농도와 이에 대응하는 방사선 강도의 시간 변화율을 기기 별로 해석할 수 있는 MULTISAMS 정상상태 모델을 개발하였다.

또한 MULTISAMS 코드를 이용하여 열출력 250MW AMBIDEXTER 원자력에너지시스템의 [원자로] - [내장형 1차 열교환기] - [온라인 재처리반응기] 계통을 구성하여 시뮬레이션하였다. 재처리화학공정은 각 핵종의 화학적, 핵적 물성에 따라 불활성기체류, 불활성금속류, 반불활성금속류, 희토류, 할로겐류, 악티나이드, Pa로 군분류하여 고유한 제거율을 적용하였으며 코드의 유용성 및 신뢰성을 검증하기 위해 시뮬레이션 결과를 상용 코드 ORIGEN2의 유사 모델에 대한 계산 결과와 비교하였다.

그러나 ORIGEN2와 MULTISAMS 코드를 지배하는 이론적 배경과 제공되는 입력자료가 완전히 일치하지 않는 관계로 시뮬레이션 결과를 절대적으로 비교할 수 없기 때문에 ORIGEN2와 유사한 단일점 모델이론을 따르면서 MULTISAMS의 수치해석법을 이용하여 해를 구하는 매개코드로서 SAMS를 개발하여 ORIGEN2와 SAMS 비교, 그리고 SAMS와 MULTISAMS 비교의 2단계 검증방법을 택하였다.

정상 평형상태에서의 핵종농도를 계산한 SAMS 결과는 제거주기가 매우 긴 활성금속류를 제외하면 250FPD의 충분한 노내 연소기간으로 핵종농도가 준평형상태에 도달한 ORIGEN2 예측치와 근접하므로 MULTISAMS의 수치해석법에 대한 신뢰성을 입증하였으며, 불활성기체류나 불활성금속류처럼 매우 짧은 제거주기를 갖는 핵종에 대해 MULTISAMS의 기기 별 농도분포는 단일점 원자로 모델인 SAMS과 상당한 차이를 보이며 시스템 내 기기 배치 순서와 대응하는 정화공정의 제거주기에 크게 영향 받음을 확인하였다.

MULTISAMS는 운전 중 각 기기에 잔류하는 방사성 핵종의 총량을 산출하여 방사선원의 강도를 예측하므로 공정설계, 차폐설계, 안전성분석에 중요 입력자료를 제공한다. 결과적으로 MULTISAMS는 ORIGEN2와 동일한 목적으로 사용할 수 있으면서 ORIGEN2가 다룰 수 없는 핵주기 연속후처리공정의 정상 가동 시의 핵종 평형농도를 기기 별로 계산할 수 있다는 장점을 갖는다.

## 6. 감사문

본 연구는 1999년 기초전력공학공동연구소의 연구과제로 수행되었습니다.

## 7. 참고문헌

[1] 원성희, "SAMS : 가변재처리 시간상수를 고려한 용융염핵연료 원자로 평형핵종농도분석 코드", 공학석사 학위논문, 아주대학교, 1999

[2] 조성경, 임현진, 김태규, 윤정선, 장남복, 신영관, "ORIGEN2 코드를 이용한 노형별 핵연료주기 특성분석 연구", 아주대학교 에너지학과, 2000

[3] 오세기, 신영관, 원성희, 장남복, 윤정선, "다단계 연속후처리를 포함하는 핵주기공정의 핵종농도 동적분포 코드개발(1)-정상상태 해석모델", 기초전력공동연구소 최종보고서, 2000

<표 3.2> AMBIDEXTER 정화공정의 원소별 제거주기

Atomic No	Element	Removal Time	Atomic No	Element	Removal Time
1	H	10 sec	51	Sb	200 days
2	He	10 sec	52	Te	50 sec
3	Li	3000 days	53	I	50 days
4	Be	3000 days	54	Xe	10 sec
5	B	50 days	55	Cs	3000 days
6	C	3000 days	56	Ba	3000 days
7	N	10 sec	57	La	50 days
8	O	50 days	58	Ce	50 days
9	F	3000 days	59	Pr	50 days
10	Ne	10 sec	60	Nd	50 days
11	Na	3000 days	61	Pm	50 days
12	Mg	3000 days	62	Sm	50 days
13	Al	3000 days	63	Eu	50 days
14	Si	50 days	64	Gd	50 days
15	P	50 days	65	Tb	50 days
16	S	50 days	66	Dy	50 days
17	Cl	50 days	67	Ho	50 days
18	Ar	10 sec	68	Er	50 days
19	K	3000 days	69	Tm	-
20	Ca	3000 days	70	Yb	-
21	Sc	50 days	71	Lu	-
22	Ti	50 days	72	Hf	-
23	V	50 days	73	Ta	-
24	Cr	200 days	74	W	200 days
25	Mn	200 days	75	Re	-
26	Fe	200 days	76	Os	-
27	Co	200 days	77	Ir	-
28	Ni	200 days	78	Pt	-
29	Cu	200 days	79	Au	-
30	Zn	200 days	80	Hg	-
31	Ga	200 days	81	Tl	200 days
32	Ge	200 days	82	Pb	200 days
33	As	50 sec	83	Bi	200 days
34	Se	50 sec	84	Po	50 sec
35	Br	50 days	85	At	50 days
36	Kr	10 sec	86	Rn	50 sec
37	Rb	3000 days	87	Fr	3000 days
38	Sr	3000 days	88	Ra	3000 days
39	Y	50 days	89	Ac	-
40	Zr	200 days	90	Th	3000 days
41	Nb	50 sec	91	Pa	3 days
42	Mo	50 sec	92	U	8200 days
43	Tc	50 sec	93	Np	8200 days
44	Ru	50 sec	94	Pu	8200 days
45	Rh	50 sec	95	Am	50 days
46	Pd	50 sec	96	Cm	50 days
47	Ag	50 sec	97	Bk	-
48	Cd	200 days	98	Cf	-
49	In	200 days	99	Es	-
50	Sn	200 days	100	Fm	-

<표 3.1> 화학군에 따른 제거율 설정

화학군	제거 시간상수
불활성가스군	10 초
불활성금속군	50 초
반불활성금속군	200 일
희토류원소군	50 일
할로겐군	50 일
활성금속군	3000 일

<표 4.1> 불활성 가스군의 주요 핵종농도 비교

핵종	ORIGEN2	MULTISAMS(#/cc)			SAMS
		원자로	열교환기	화학반응기	
KR-86	2.50E+11	2.47E+11	3.23E+11	5.40E+11	2.25E+11
KR-87	3.86E+11	3.54E+11	4.30E+11	7.07E+11	3.33E+11
KR-88	5.16E+11	4.68E+11	5.43E+11	7.04E+11	4.44E+11
KR-89	5.08E+11	4.46E+11	4.61E+11	4.33E+11	4.24E+11
KR-90	3.65E+11	2.98E+11	2.69E+11	1.61E+11	2.70E+11
XE135	4.17E+11	6.48E+10	7.10E+10	1.02E+11	3.85E+11
XE135M	1.41E+11	7.30E+10	7.37E+10	7.72E+10	1.26E+11
XE136	6.54E+11	6.08E+11	7.24E+11	1.16E+12	5.80E+11
XE137	5.67E+11	5.04E+11	5.50E+11	6.38E+11	4.85E+11
XE138	4.32E+11	3.86E+11	3.99E+11	4.06E+11	3.80E+11

<표 4.2> 불활성 금속군의 주요 핵종비교

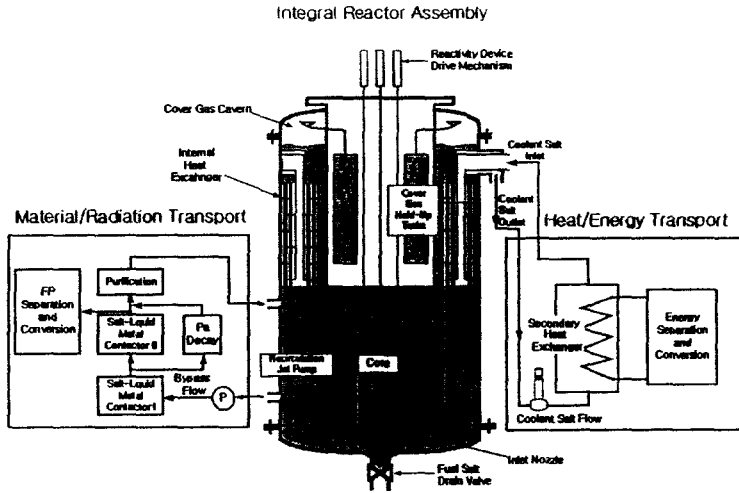
핵종	ORIGEN2	MULTISAMS(#/cc)			SAMS
		원자로	열교환기	화학반응기	
SE-80	8.22E+10	2.14E+11	1.96E+11	2.20E+11	8.44E+10
SE-81	7.60E+10	2.10E+11	1.92E+11	2.12E+11	8.24E+10
SE-84	6.50E+11	9.56E+11	8.39E+11	7.63E+11	1.68E+12
NB-95	1.39E+12	8.11E+08	7.38E+08	8.49E+08	2.17E+12
NB-97M	1.54E+12	3.45E+10	3.11E+10	3.34E+10	1.01E+12
MO-98	2.25E+12	4.78E+12	4.37E+12	4.86E+12	2.09E+12
MO-99	1.62E+12	4.20E+12	3.84E+12	4.13E+12	1.72E+12
MO-100	2.01E+12	4.31E+12	3.92E+12	4.05E+12	1.90E+12
TE131	1.11E+12	1.26E+12	1.14E+12	1.29E+12	9.69E+11
TE131M	5.61E+11	1.10E+12	9.80E+11	9.92E+11	4.86E+11
TE132	2.18E+12	4.45E+12	3.99E+12	4.19E+12	1.93E+12
TE133	7.54E+11	1.36E+12	1.21E+12	1.24E+12	6.66E+11
TE133M	1.44E+12	2.94E+12	2.60E+12	2.59E+12	1.28E+12
TE134	1.49E+12	2.92E+12	2.59E+12	2.57E+12	1.36E+12

<표 4.3> 정상상태에서 그룹별 방사능강도

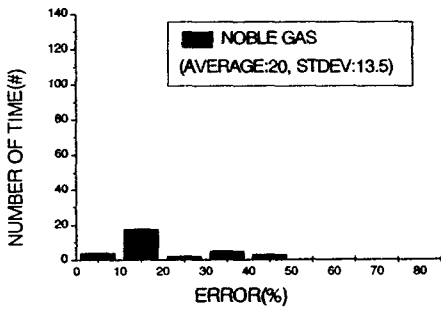
그룹	정상 상태 방사능강도(Mev/cc · sec)		
	원자로	열교환기	재처리시설
1	4.0403E+09	3.2956E+09	2.3288E+09
2	2.5136E+09	2.0660E+09	1.4758E+09
3	2.9873E+09	2.5468E+09	1.9475E+09
4	5.4913E+09	4.4792E+09	3.1647E+09
5	5.3620E+09	4.3605E+09	3.0755E+09
6	6.2983E+09	5.0117E+09	3.4794E+09
7	3.0828E+10	2.5756E+10	1.9695E+10
8	3.0175E+10	2.6339E+10	2.0921E+10
9	4.6793E+10	3.9848E+10	3.0511E+10
10	1.2440E+11	1.1076E+11	9.3740E+10
11	1.0876E+11	1.0052E+11	8.5702E+10
12	3.2068E+10	2.8290E+10	2.2537E+10
13	2.3162E+10	2.1426E+10	1.8327E+10
14	2.0584E+10	1.8398E+10	1.4562E+10
15	2.5213E+10	2.2364E+10	1.7046E+10
16	2.8931E+10	2.4009E+10	1.5504E+10
17	5.4037E+08	2.8452E+08	4.9941E+07
18	9.5789E+04	3.6303E+04	3.9286E+03
total	4.9814E+11	4.3976E+11	3.5407E+11

<표 4.4> 운전정지 1시간 후 그룹별 방사능강도

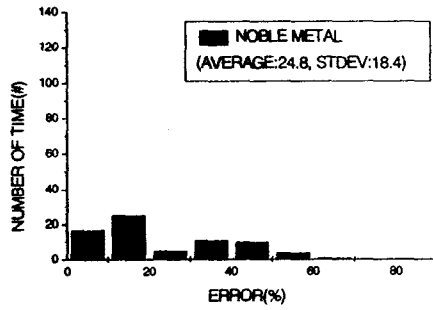
그룹	운전정지 1시간 후 방사능강도(Mev/cc · sec)		
	원자로	열교환기	재처리시설
1	1.1239E+08	1.1216E+08	1.1318E+08
2	6.3877E+07	6.3503E+07	6.4048E+07
3	7.9800E+07	7.9699E+07	8.0226E+07
4	1.3244E+08	1.3237E+08	1.3356E+08
5	1.3788E+08	1.3694E+08	1.3790E+08
6	1.6654E+08	1.6542E+08	1.6784E+08
7	1.0707E+09	1.0623E+09	1.0629E+09
8	1.1249E+09	1.1173E+09	1.1216E+09
9	3.1682E+09	3.1506E+09	3.1710E+09
10	8.6278E+09	8.5642E+09	8.5666E+09
11	9.3470E+09	9.3424E+09	9.3435E+09
12	3.0702E+09	3.0646E+09	3.0874E+09
13	2.8508E+09	2.8578E+09	2.9108E+09
14	1.7416E+09	1.7497E+09	1.7882E+09
15	8.4169E+08	8.4476E+08	8.6125E+08
16	6.4589E+06	6.4645E+06	6.4822E+06
17	3.8746E-04	3.8746E-04	3.8746E-04
18	3.3365E-05	3.3365E-05	3.3365E-05
total	3.2542E+10	3.2450E+10	3.2617E+10



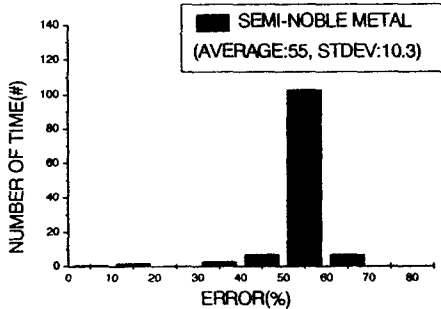
[그림 3.1] AMBIDEXTER 원자력 시스템 계통도



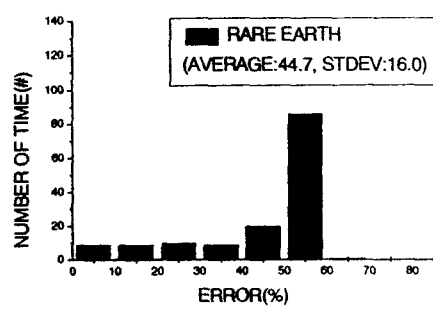
[그림 4.1] 불활성 가스군의 상대오차



[그림 4.2] 불활성 금속군의 상대오차

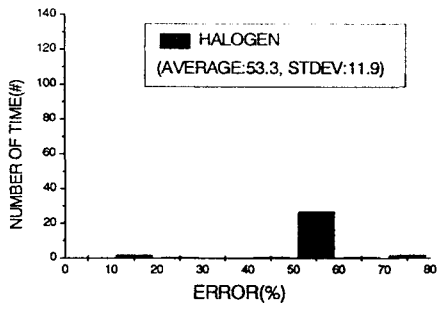


[그림 4.3] 반불활성 금속군의 상대오차

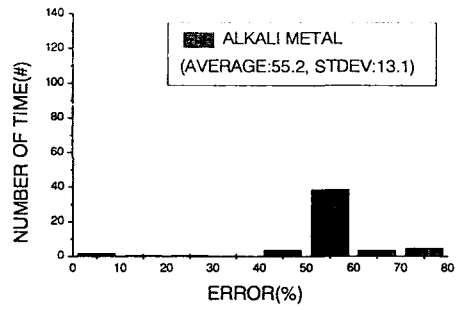


[그림 4.4] 희토류 원소군의 상대오차





[그림 4.5] 할로젠군의 상대오차



[그림 4.6] 활성금속군의 상대오차