

Effect of Target Material and the Neutron Spectrum on Nuclear Transmutation of ^{99}Tc and ^{129}I in Nuclear Reactors

표적물질 및 중성자 스펙트럼이 ^{99}Tc 과 ^{129}I 의 원자로 내부 핵변환에 미치는 영향

Seung-gu Kang and Hyun-chul Lee*

Pusan National University, 2, Busandaehak-ro 63beon-gil, Geumjeong-gu, Busan, Republic of Korea.

강승구, 이현철*

부산대학교, 부산광역시 금정구 부산대학로 63번길 2

(Received March 5, 2018 / Revised May 14, 2018 / Approved June 7, 2018)

As a rule, geological disposal is considered a safe method for final disposal of high-level radioactive waste. However, some long-lived fission products like ^{99}Tc and ^{129}I contained in spent nuclear fuel are highly mobile as less sorbing anionic species in the subsurface environment and can mainly cause exposure dose to the ecosystem by emission of beta rays in the hundreds of keV range. Therefore, if these two nuclides can be separated and converted with high efficiency into radioactively harmless nuclides, this would have a positive effect on disposal safety. One candidate method is to transmute these two nuclides in nuclear reactors into short-lived nuclides or into stable nuclides. For this purpose, it is necessary to evaluate which reactor type is more efficient in burning these two nuclides. In this study, the simulation results of nuclear transmutation of ^{99}Tc and ^{129}I in light water reactor (PWR), heavy water reactor (CANDU) and fast neutron reactor (SFR, MET-1000) are compared and discussed.

Keywords: Spent fuel, Long-lived fission products, ^{99}Tc , ^{129}I , Nuclear transmutation, Nuclear reactor

*Corresponding Author.

Hyun-chul Lee, Pusan National University, E-mail: hyunchul.lee@pusan.ac.kr, Tel: +82-51-510-2318

ORCID

Seung-gu Kang

<http://orcid.org/0000-0002-2851-0673>

Hyun-chul Lee

<http://orcid.org/0000-0003-3136-0810>

원칙적으로, 지층 처분은 고준위 방사성 폐기물의 최종 처분을 위한 안전한 방법으로 간주된다. 그러나 사용후핵연료에 함유된 ⁹⁹Tc 및 ¹²⁹I와 같은 일부 장수명 핵분열 생성물은 지하 환경에서 흡수성이 적은 음이온 핵종으로 이동성이 매우 크며 수백 keV 범위의 베타선 방출로 생태계에 피폭선량을 야기시킬 수 있다. 따라서 이 두 핵종을 효율적으로 분리하여 방사능으로 유해하지 않은 핵종으로 전환할 수 있다면 처분 안정성에 긍정적인 영향을 줄 수 있다. 이를 위한 하나의 방법은 이 두 가지 핵종을 원자로에서 수명이 짧은 핵종 또는 안정적인 핵종으로 변환하는 것이다. 이를 위해 두 핵종을 태우는 데 어느 원자로 유형이 더 효율적인지 평가하는 것이 필요하다. 본 연구에서는 경수로(PWR), 중수로(CANDU) 및 고속로(SFR, MET-1000)의 ⁹⁹Tc 및 ¹²⁹I의 핵 변환 시뮬레이션 결과를 비교하고 고찰하였다.

중심단어: 사용후핵연료, 장수명 핵분열 생성물, ⁹⁹Tc, ¹²⁹I, 핵변환, 원자로

1. 서론

최근, 원자력은 일상생활에 꼭 필요한 주요 전원으로 이용되고 있다. 하지만 원자력은 우리에게 필요한 전기에너지 뿐만 아니라 방사성 폐기물도 함께 발생시키고 있다. 방사성 폐기물 중 고준위 폐기물인 사용후핵연료는 장수명 핵분열 생성물들(Long-Lived Fission Products : LLFPs)을 함유하고 있어, 관리 및 처분의 부담이 발생한다.

사용후핵연료가 심층 처분 된 후 수천 ~ 수만년 시간이 지나면 처분 용기가 부식되고 결국 사용후핵연료 내에 존재하는 핵종은 지하수를 타고 생태계로 이동하게 된다. 이때 생태계에 피폭선량을 주로 야기하는 핵종들이 LLFPs이다. 이는 사용후핵연료를 재처리하여 이러한 핵종들을 분리하여 따로 관리 및 처분을 한다면 처분 효율성 및 안전성을 높일 수 있음을 의미한다.

이를 위한 방안 중에 하나로 초우라늄 원소 및 Iodine (I), Technetium (Tc) 등과 같은 LLFPs는 핵반응을 이용해서 인위적으로 핵종변환을 시킬 수 있다. 핵종변환은 LLFPs를 반감기가 짧은 핵종이나 방사능을 띠지 않은 안정적인 핵종으로 바꿀 수 있는 것으로, 이를 통해 장시간 동안 위험을 야기하는 핵종의 재고량을 감소시켜 처분 시 안전성을 크게 향상시킬 수 있다.

⁹⁹Tc와 ¹²⁹I는 반감기가 매우 길 뿐만 아니라 방사성 폐기물 처분 시 주변의 지하 환경에서 이동성이 크며 수백 keV 단위의 베타선 방출자로 사용후핵연료 처분에 있어서 생태계에 장기간 피폭을 줄 수 있는 핵종이다[1]. 그러므로 이 두 핵종을 따로 분리하여 원자로에서 소멸시킬 수 있다면 처분되는

폐기물의 독성 유지시간을 획기적으로 줄일 수 있어 처분 안전성 측면에서 긍정적인 효과를 준다.

따라서 본 연구에서는 표적물질(Iodine 또는 Technetium) 안의 ⁹⁹Tc와 ¹²⁹I를 핵종변환을 통해 처리하는 데 있어서 경수로(PWR), 중수로(CANDU) 그리고 고속로(SFR, MET-1000) 중에서 어느 원자로에서 더 효과적으로 처리할 수 있는 지에 대해서 확인해 볼 것이다.

본 연구에서 표적물질에 사용된 Iodine과 Technetium의 각 조성비는 OPR-1000에 장전된 PWR 핵연료 집합체가 55 GWD/MTU까지 연소되었을 때 생성되는 핵종비를 사용하였다. 각 원자로 집합체의 중심에 존재하는 연료봉을 표적물질봉으로 교체하여 서로 다른 평균 방출연소도까지 연소계산을 실시하여 ⁹⁹Tc와 ¹²⁹I의 핵변환량을 비교하고 그 결과를 통해 어느 원자로가 더 효율적으로 이 핵종들을 연소시킬 수 있는지를 확인하였다.

이 때 계산의 단순화를 위해 각 핵연료 집합체 또는 핵연료 다발만 모델링하여 2차원 연소계산 시행하였으며 모델링 및 연소계산은 McCARD코드를 이용하였다[2].

서울대학교에서 개발한 McCARD코드는 다양한 형태의 노심 및 핵연료, 핵연료 집합체의 중성자 분석을 위해

Table 1. Characteristics of target nuclides (⁹⁹Tc and ¹²⁹I)

Nuclide	Mode of decay	Decay energy (keV)	Half-life (year)
⁹⁹ Tc	β-	293.651	211,100
¹²⁹ I		193.777	15,700,000

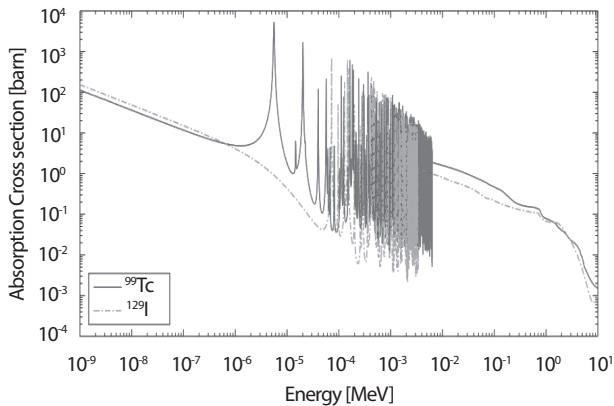


Fig. 1. Neutron absorption cross section of ^{99}Tc and ^{129}I (based on ENDF/B-VII.0).

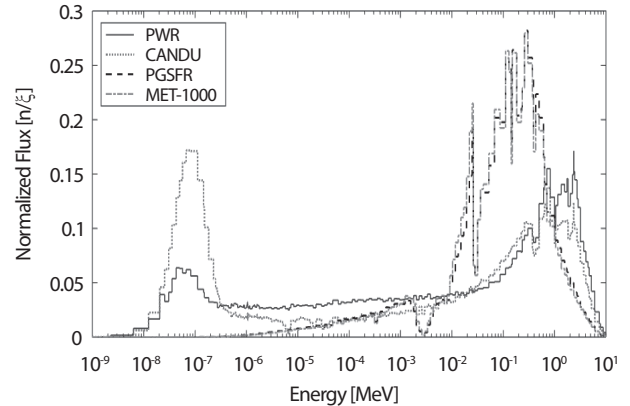


Fig. 2. Flux spectrum in center rod region of assembly or bundle.

개발되어 있으며 연소분석기능도 있어서 쉽게 연소계산도 수행할 수 있다. 모든 McCARD계산에서는 ENDF/B-VII.0 단면적 라이브러리를 적용하여 수행하였다.

2. 표적물질

Table 1에서 보여주듯이 ^{99}Tc 와 ^{129}I 는 붕괴하면서 수백 keV의 베타선을 방출하며 수십만년 이상의 반감기를 가진다. 이는 사용후핵연료의 처분 안전성측면에서 부정적 효과를 준다. 따라서 사용후핵연료의 재처리를 통해 두 핵종을 분리하여 원자로에서 연소시킨다고 가정했을 때 핵변환을 살펴보고자 한다. 핵변환율은 중성자 스펙트럼과 중성자 흡수 단면적에 따라 달라진다. Fig. 1은 ^{99}Tc 와 ^{129}I 의 중성자 흡수 단면적으로 ^{99}Tc 는 1 eV ~ 7 keV 사이에서 ^{129}I 는 50 eV ~ 4 keV 부근에서 중성자 흡수 공명 피크가 존재하고 있다[3]. Fig. 2는 각 원자로의 핵연료집합체 및 핵연료 다발에서의 중성자 스펙트럼이다. CANDU원자로가 다른 원자로에 비해 더 높은 열중성자속으로 인한 표적의 흡수반응율이 상대적으로 높아지기에 더 효율적으로 핵변환시킬 것이라고 예상된다.

높은 용점과 금속 밀도를 갖는 ^{99}Tc 는 핵변환을 위해서 Technetium 금속 표적물질로 가정하는 한편, 중성자 흡수 후 β 붕괴를 거쳐 기체인 제논(Xe)으로 변환하는 ^{129}I 은 순수 Iodine 표적물질로 하기에는 핵변환과 관련되어 물리적 문제가 존재한다. 그 물리적 문제란, ^{129}I 의 녹는점과 끓는점이

Table 2. Properties of target materials

Target Material	* σ_{metal} (barn)	Number Density of Target Atom ($10^{-2}/\text{barn}\cdot\text{cm}$)	Melting point (K)
CeI_3	0.73	1.97	1033
MgI_2	0.064	1.94	1906
YI_3	1.30	1.76	1238
NaI	0.543	1.47	934
PbI_2	0.18	1.59	683
ZnI_2	1.10	1.80	719
CaI_2	0.554	1.62	1052
CuI	-	1.78	868
$\text{Ca}(\text{IO}_3)_2$	-	1.40	823
^{127}I	6.2	-	-
^{129}I	34	-	-
Tc	20	7.07	2430

* σ_{metal} (Thermal cross-section of the metal component)

노심 온도와 압력보다 낮다는 것이다. 이를 해결하기 위해서 다른 원소와 화학적 결합을 통하여 물리적, 열적 그리고 화학적 안전성을 고려한 표적물질 형태로 가정하여 계산한다. Table 2는 원자로에서 조사 가능한 표적물질들의 특성을 보여준다. 여기서 Iodide의 열적, 화학적 특성과 Iodine 수밀도를 고려하면 적정 후보인 표적물질의 화학적 형태는 CuI ,

Table 3. Isotope ratio of technetium and iodine after depletion calculation

Technetium		Iodine	
Nuclide	Isotope ratio	Nuclide	Isotope ratio
⁹⁸ Tc	1.72186×10 ⁻⁷	¹²⁷ I	8.49950×10 ⁻⁴
⁹⁹ Tc	1.57513×10 ⁻²	¹²⁸ I	3.51390×10 ⁻⁹
¹⁰⁰ Tc	1.16447×10 ⁻⁹	¹²⁹ I	2.58650×10 ⁻³
¹⁰¹ Tc	1.61780×10 ⁻⁷	¹³⁰ I	1.91010×10 ⁻⁷
¹⁰² Tc	9.71100×10 ⁻¹⁰	¹³¹ I	7.76450×10 ⁻⁵
¹⁰³ Tc	9.39670×10 ⁻⁹	¹³² I	1.32739×10 ⁻⁶
¹⁰⁴ Tc	1.78997×10 ⁻⁷	¹³³ I	1.63001×10 ⁻⁵
¹⁰⁵ Tc	6.76660×10 ⁻⁸	¹³⁴ I	7.57770×10 ⁻⁷
¹⁰⁶ Tc	3.94250×10 ⁻⁹	¹³⁵ I	4.94960×10 ⁻⁶
¹⁰⁷ Tc	1.97529×10 ⁻⁹	¹³⁶ I	6.74620×10 ⁻⁹
¹⁰⁸ Tc	1.60811×10 ⁻¹⁰	¹³⁷ I	2.33320×10 ⁻⁹
¹⁰⁹ Tc	7.34340×10 ⁻¹⁰	¹³⁸ I	3.36260×10 ⁻¹⁰
¹¹⁰ Tc	2.55980×10 ⁻¹²	¹³⁹ I	4.81680×10 ⁻¹¹
¹¹¹ Tc	1.23177×10 ⁻¹²	¹⁴⁰ I	4.38220×10 ⁻¹²
¹¹² Tc	1.12977×10 ⁻¹³	¹⁴¹ I	4.47680×10 ⁻¹³
¹¹³ Tc	4.20090×10 ⁻¹⁴	¹⁴² I	4.04130×10 ⁻¹⁴
¹¹⁴ Tc	4.03900×10 ⁻¹⁵	^{130m} I	1.26784×10 ⁻¹¹
¹¹⁶ Tc	5.24000×10 ⁻¹⁷	^{134m} I	5.91620×10 ⁻⁹
^{99m} Tc	3.72090×10 ⁻⁶	^{136m} I	2.33240×10 ⁻⁹
^{102m} Tc	1.55844×10 ⁻¹⁰		

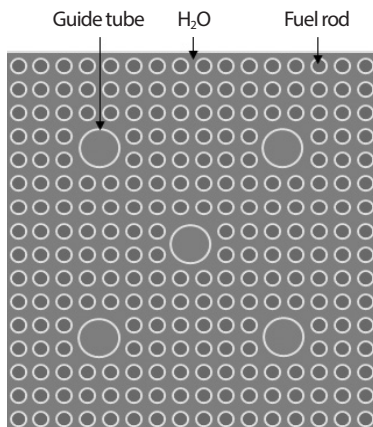


Fig. 3. Cross-sectional view of 16×16 assembly model.

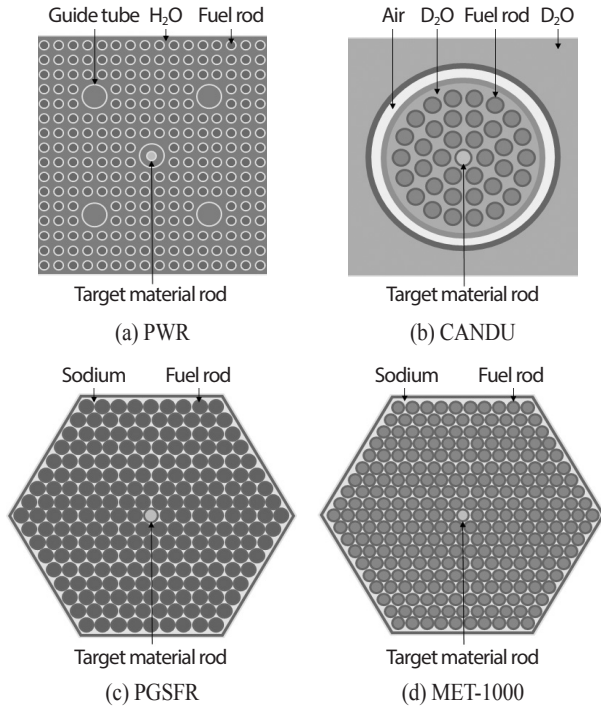


Fig. 4. Cross-sectional view of an assembly or bundle with target material rod.

CaI₂, MgI₂으로 판단된다[4]. 이에 표적물질을 Technetium 금속, CuI, CaI₂, MgI₂, 이렇게 4가지로 특정하고 시뮬레이션을 하였으며 여기서 Table 3는 전형적인 PWR의 16×16 핵연료 집합체를 평균 방출연소도(55,000 MWD/MTU)까지 연소 계산하여 나온 Technetium과 Iodine의 동위원소 비를 보여 주며 이 동위원소 비를 본 계산에서 사용하였다.

3. 원자로의 핵연료 집합체 모델

Fig. 3은 PWR의 연소계산 시 이용한 16×16 핵연료 집합체 모델의 수평 단면도이고 전형적인 OPR-1000에서의 16×16 핵연료 집합체 자료를 이용하여 모델링하였다[5]. 여기서 집합체 내 핵연료들은 ²³⁵U의 농축도가 4.5wt%인 동일한 연료로 가정하였다.

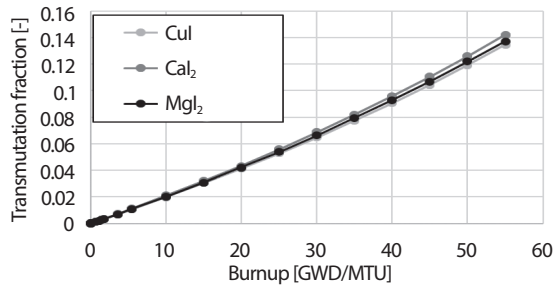
Fig. 4는 표적물질봉을 장전한 각 원자로의 핵연료 집합체 또는 다발의 횡단면도이다.

표적물질봉을 각 원자로의 핵연료봉과 같은 규격의 봉으로

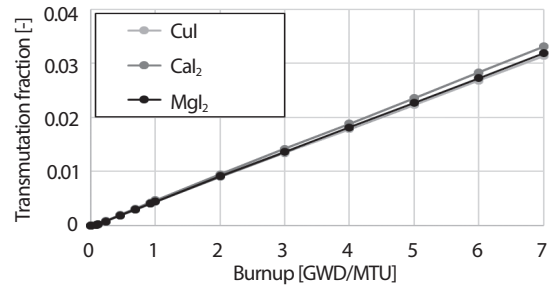
Table 4. Technical data of irradiated assembly and bundle of each reactor

Reactor type	PWR	CANDU	PGSFR	MET-1000
Moderator	H ₂ O	D ₂ O	-	-
Coolant	H ₂ O	D ₂ O	Sodium	Sodium
Average discharge burnup (MWD/MTU)	55,000	7000	66,100	93,000
Number of fuel rod	236	36	216	270
Diameter fuel pellet (mm)	8.1915	12.154	5.54	3.2360
Diameter fuel rod (mm)	9.50	12.96	7.4	3.8567
Fuel material	UO ₂	UO ₂	U-10Zr	TRU
Cladding material	ZIRLO	Zr-4	HT-9	HT-9
Fuel enrichment (wt%)	4.5	0.72	19.2	*10.15
Fuel density (g·cm ⁻³)	10.45	10.49	16	0.0323

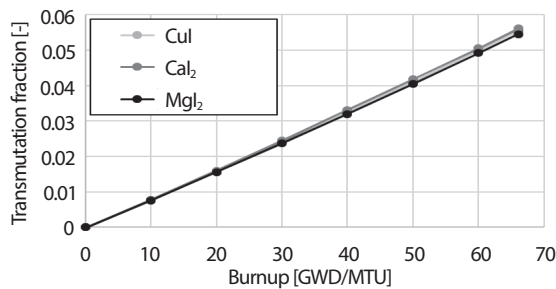
*fissile/HM : total fissile material mass / total heavy metal mass



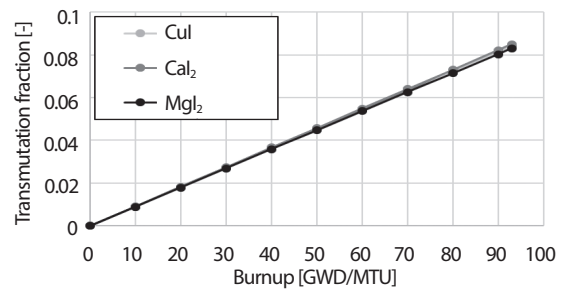
(a) PWR



(b) CANDU



(c) PGSFR



(d) MET-1000

Fig. 5. Transmutation ratio over burnup in each reactor.

만들고 핵연료 집합체 또는 다발의 중심에 있는 연료봉과 교체하여 장전하였다는 가정 하에 연소계산을 실시하였다. 단, PWR의 경우에는 중심의 안내관에 추가적으로 장전하였다고

가정하였다.

Table 4는 연소계산 시에 사용한 각 원자로의 사양이다[5-11]. CANDU는 전형적인 중수로 EC6의 핵연료 다발

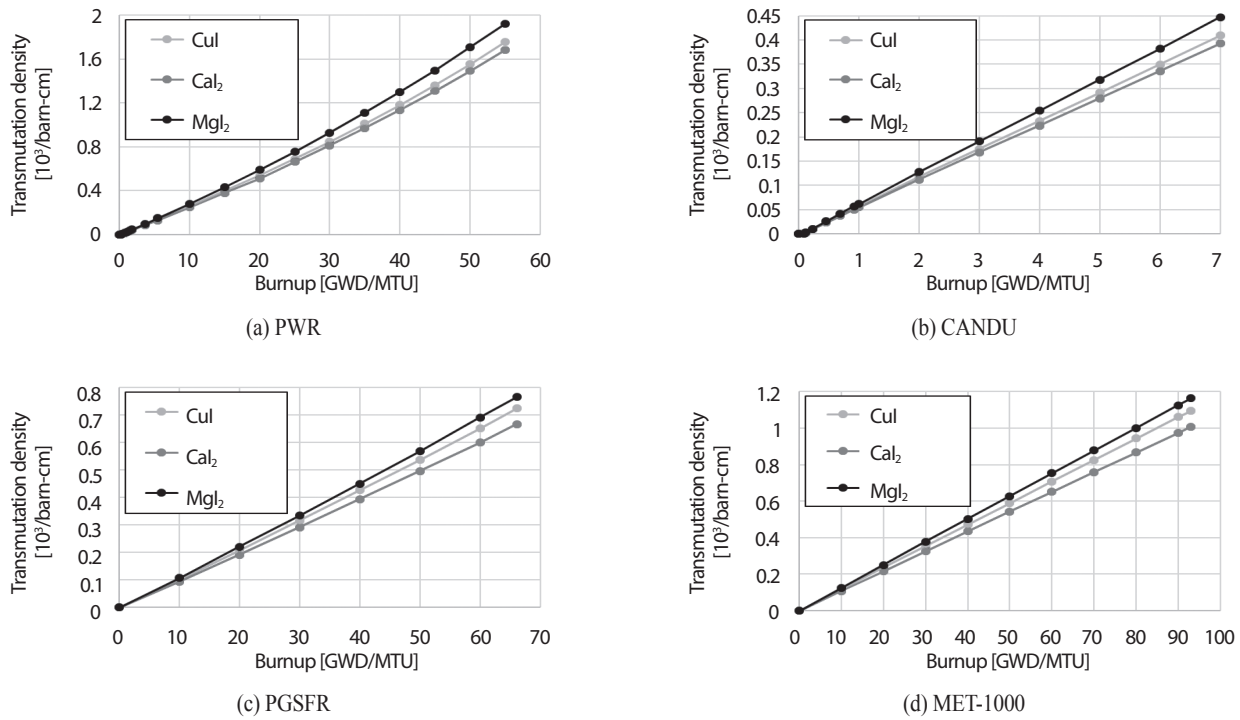


Fig. 6. Transmutation density over burnup in each reactor.

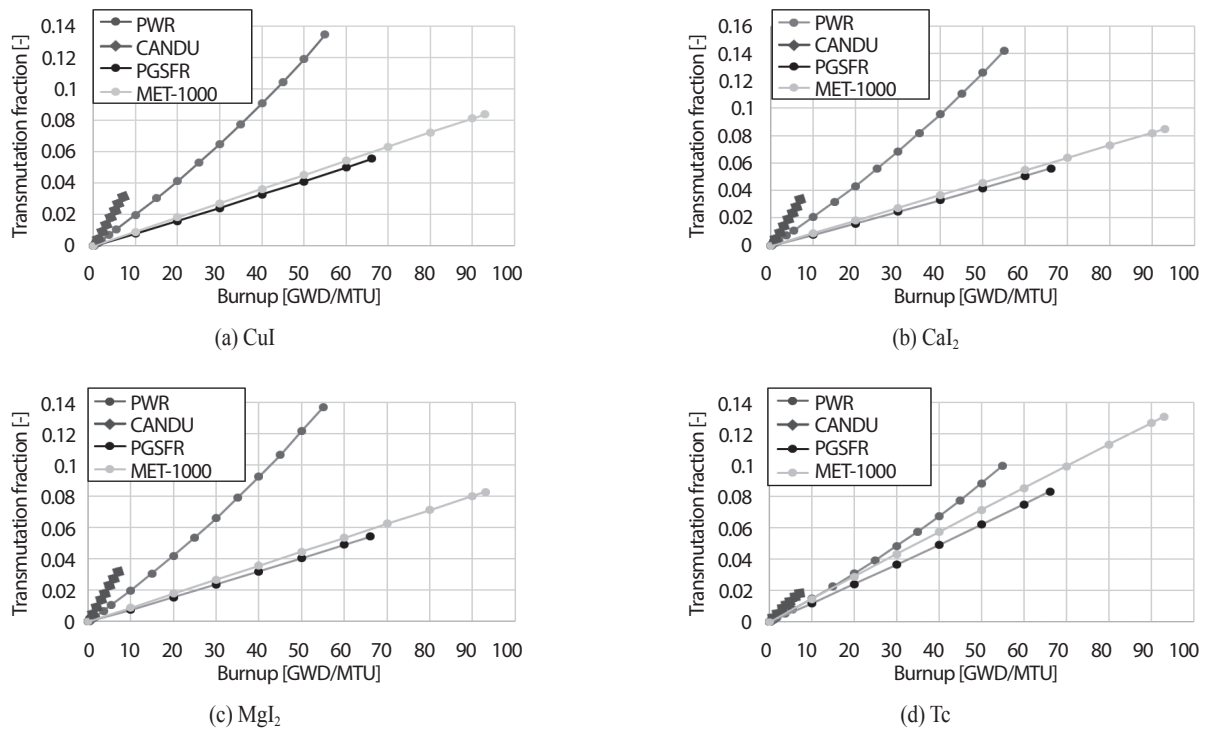


Fig. 7. Transmutation ratio of each target material over burnup.

자료를 바탕으로 모델링하였다[6-7]. 더하여 PGSFR과 MET-1000은 고속로이며 둘의 차이는 PGSFR은 고농축 U를 MET-1000은 TRU를 연료로 사용한다는 점이다[8-11]. 각 원자로의 평균 방출연소도까지 연소시킨 후 표적물질봉 내의 ^{99}Tc 와 ^{129}I 가 연소 전에 비해서 어느 정도 핵변환 되는 지를 알아 보기 위하여 시뮬레이션을 실시하였다.

4. 시뮬레이션 결과 비교

McCARD코드를 이용하여 3절에서 설명한 핵연료 집합체 및 핵연료 다발을 모델링하고 2차원 연소계산을 통해 얻어진 물질 정보 파일에서 ^{99}Tc 과 ^{129}I 의 수밀도 변화량을 확인하고 핵변환 비율을 원자로 유형 및 표적물질 별로 비교하여 보았다.

McCARD의 계산조건으로 10000 history per cycle, 20 inactive cycle, 100 active cycle를 주었으며 표준편차가 50 pcm이하가 되게 계산하였다. 추가적으로 depletion step 간격을 초기에는 1~10일 간격으로 1 GWD/MTU부터는 1 GWD/MTU 간격으로 설정하여 계산하였다.

4.1 표적물질에 따른 ^{129}I 핵변환에 대한 계산 결과 비교

Fig. 5는 각 원자로에서 Iodide 표적물질(CuI , CaI , MgI_2)을 장전했을 때 연소도에 따른 ^{129}I 의 핵변환비를 보여주며 각 Iodide 표적물질의 핵변환비는 동일한 원자로에서 거의 같은 결과를 가진다는 것을 알 수 있다.

Fig. 6은 연소도에 따라 변하는 ^{129}I 의 수밀도와 초기 ^{129}I 의 수밀도 차이인 핵변환밀도를 나타낸다. 이는 Table 2에서 제시된 각 표적물질의 Iodine 수밀도를 고려한 결과로 핵변환되는 ^{129}I 의 양은 MgI_2 , CuI , CaI_2 순으로 많다는 것을 보여준다.

4.2 원자로 유형별 핵변환에 대한 계산 결과 비교

Fig. 7은 표적물질을 각 원자로에서 연소시킬 때 연소도에 따른 ^{129}I 및 ^{99}Tc 의 핵변환비를 보여준다. 각 원자로의 평균 방출연소도와 총 핵변환비를 고려한다면 다른 원자로에 비해

PWR에서 가장 많이 핵변환되었다. 반면에 ^{129}I 및 ^{99}Tc 의 핵변환율을 고려하면 짧은 기간 안에 중수로에서 ^{129}I 과 ^{99}Tc 을 빠르게 핵변환시킬 수 있는 것을 볼 수 있다.

5. 결론

Technetium금속 표적물질과 열적, 화학적 안전성을 고려한 Iodide 표적물질을 장전한 PWR, CANDU, PGSFR 그리고 MET-1000의 핵연료 집합체 및 다발을 McCARD코드로 모델링 및 연소계산을 실시하였다.

Iodide 표적물질별 ^{129}I 의 핵변환에 대하여 비교 결과, 3가지 표적물질(CuI , CaI_2 , MgI_2)에서는 연소도에 따른 핵변환비는 거의 동일하며 핵변환량 측면에서는 MgI_2 가 더 좋다.

원자로별 ^{99}Tc 과 ^{129}I 의 핵변환비를 비교한 결과, CANDU에서의 핵변환율이 가장 좋으나 짧은 평균 방출연소도로 인해 총 핵변환비는 크지 않았다.

반면에, PWR에서는 핵변환율은 CANDU에 비해 적으나 다른 고속로보다는 컸으며 평균 방출연소도를 고려한 총 핵변환비는 다른 원자로에 비해 가장 많았다.

이는 원자로를 동일 연소도로 운전하였다고 가정하였을 때 2 절에서 예상한 대로 CANDU에서 연소시키는 경우가 다른 원자로에 비해 표적물질의 핵변환에 대해서 더 효율적이라는 것을 보여주지만, 장전하여 방출할 때까지 연소시킨다고 가정한다면 방출연소도가 긴 PWR에서 연소시키는 경우가 다른 원자로에 비해 표적물질의 핵변환량이 가장 크다는 것을 알 수 있었다.

REFERENCES

- [1] K. Liu, H. Wu, L. Cao, Y. Zheng, and C. Wang, "A code development for LLFP transmutation analysis based on the whole pin-wise calculation in PWRs", Nuclear Engineering and Design, 256, 56-66 (2013).
- [2] H.J. Shim, B.S. Han, J.S. Jung, H.J. Park, and C.H. Kim, "McCARD: monte carlo code for advanced reactor design and analysis", Nuclear Engineering and Technology, 44(2), 161-176 (2012).

- [3] M.B. Chadwick, P. Obložinský, M. Herman, N.M. Greene, R.D. McKnight, et al., “ENDF/B-VII.0: Next Generation Evaluated Nuclear Data Library for Nuclear Science and Technology”, Nuclear Data Sheets, 107(12), 2931-3060 (2006).
- [4] K. Liu, H. Wu, L. Cao, and Y. Zheng, “Studies on LLFP transmutation in a pressurized water reactor”, Journal of Nuclear Science and Technology, 50, 581-598 (2013).
- [5] Korea Hydro & Nuclear Power Co. LTD., April 11 2011. “Status Report 103 – Advanced Power Reactor (APR 1000)” Advanced Reactor Information System Database (International Atomic Energy Agency). Accessed Dec. 30 2017. Available from: <https://aris.iaea.org/PDF/APR1000.pdf>.
- [6] Korea Hydro & Nuclear Power Co. LTD., Design Manual, CANDU 6 Generating Station Physics Design Manual, Wolsong NPP 1, 59RF-03310-DM-000 Revision 0 (2009).
- [7] Candu Energy Inc., Enhanced CANDU 6 Technical Summary, Candu Energy Inc. Press, Mississauga (2012).
- [8] W. Bernnat, D. Blanchet, E. Brun, L. Buiron, E. Fridman, et al., Benchmark for Neutronic Analysis of Sodium-cooled Fast Reactor Cores with Various Fuel Types and Core Sizes, Nuclear Energy Agency Technical Report, NEA/NSC/R (2015)9 (2016).
- [9] T.K. KIM, W.S. Yang, C. Grandy, and R.N. Hill, “Core Design Studies for a 1000 MWth Advanced Burner Reactor”, Annals of Nuclear Energy, 36(3), 331-336 (2009).
- [10] K.H. Yoon, H.S. Lee, H.K. Kim, and J.S. Cheon, “Mechanical Design Evaluation of Fuel Assembly for PGSFR”, Proc. of Int. Conf. on Fast Reactors and Related Fuel Cycles: Next Generation Nuclear Systems for Sustainable Development(FR17), IAEA-CN 245-017, IAEA, Vienna (2017).
- [11] J. Yoo, J. Chang, J.Y. Lim, J.S. Cheon, T.H. Lee, S.K. Kim, K.L. Lee, and H.K. Joo, “Overall System Description and Safety Characteristics of Prototype Gen IV Sodium Cooled Fast Reactor in Korea”, Nuclear Engineering and Technology, 48, 1059-1070 (2016).