

토륨 핵연료의 핵적 타당성 연구

- 가압경수로용 탄소피막 핵연료 적용 -

임 재용, 김 명현

경희대학교

주 형국

원자력연구소

요 약

Th-232를 Fertile로 사용한 핵연료는 U-238을 Fertile로 사용한 핵연료보다 핵확산 저항성, 방사성 폐기물 생성면에서 유리하다. 본 연구에서는 MHTGR의 핵연료에 사용된 탄소 피막 입자 기술을 토륨 핵연료에 적용하여 새로운 가압경수로용 핵연료로 개념 설계하였다. 핵연료의 설계안을 울진 3,4호기 집합체 설계안에 적용하여 핵적 타당성을 살펴보았다.

1. 서론

MHTGR 핵연료는 UCO와 ThO₂의 조성을 가진 작은 입자들을 탄소로 3중 피막한 후 Graphite 충전체에 고집적 시킨 형태이다. 이 탄소 피막 핵연료는 PWR UO₂ 핵연료에 우수한 설계특성을 갖는다. 핵분열 생성물의 방출이 핵연료 입자를 둘러싸고 있는 탄소 피막에서 일차적으로 차단되기 때문에 핵연료봉 피복관의 건전성이 절대적이지 않아도 되며, 핵연료 입자들의 빈 공간을 메우는 Graphite의 높은 열전도도와 강도는 핵연료의 기계적 성능을 향상시켜 매우 높은 연소도를 가질 수 있고 핵연료 중심 온도가 낮아지는 장점이 있다. 김명현과 이승기¹⁾, 배강목²⁾은 이점에 착안하여 Graphite Matrix에 2중 탄소 피막된 UCO 핵연료 입자들을 채워서 Graphite를 PWR 소결체 모양으로 만든 새로운 핵연료 설계안을 연구하였고, 핵적 타당성이 있음을 보였다.

본 연구에서는 탄소 피막된 핵연료로서의 우라늄과 토륨을 사용하는 설계안에 대한 핵설계 타당성을 우선적으로 PWR 노심에 대해 적용하여 검토하였다. 따라서 PWR의 일부 핵연료를 상기 설계안의 핵연료로 교체할 수 있는 가능성을 보았다. ThO₂ Fertile 핵연료 입자의 사용은 상대적으로 UCO Fissile 핵연료 입자의 양을 줄이게 되고, 이는 동일한 연소도를 유지하기 위해 우라늄의 농축도를 올려주어야 하는 좋지 않은 결과를 유발한다. 반면 ThO₂

Fertile 핵연료의 사용은 핵확산 저항성이 매우 크고 반감기가 매우 긴 Actinide의 발생량을 줄이며 폐기물 처리시 유리한 장점이 있다.³⁾

2. 핵연료 소결체의 설계안

소결체의 크기는 울진 3,4호기 핵연료 소결체의 설계 제원을 그대로 사용하였다. 이 원주 형태의 소결체에 구 형태의 탄소 피막 입자를 채워 넣고 핵연료 입자간이나 핵연료 입자와 소결체 사이에 생기는 빈 공간에 Graphite를 채워 넣는 것이 기본 설계이다. 이 경우 몇 가지 가정을 하여 계산을 수행하였다. 우선 핵연료 입자는 완벽한 구형이며 이 입자가 Closed Packing인 HCP로서 이상적으로 집적된다고 보았다. 소결체 안에 채워지는 핵연료 입자는 UCO Fissile 핵연료 입자와 ThO₂ Fertile 핵연료 입자 두 종류이며 두 핵연료 입자 모두 같은 크기로 제작된다고 가정하였다. Fissile 핵연료 입자와 Fertile 핵연료 입자의 수는 필요에 따라 변화시켜 가며 설계안을 탐색하였으며 이를 위해 Fissile과 Fertile 핵연료 입자는 모두 균등하게 섞여 집적되었다는 가정을 하였다.

토륨을 핵연료에 사용하는 경우 Fissile인 U-235의 장전량이 가능한 최대가 되어야 한다. 따라서 핵연료가 최대로 장전될 수 있는 입자의 크기를 찾기 위해 변수 분석을 한 결과, Buffer의 두께가 30 μ m, SiC Coating Layer의 두께가 20 μ m인 Bis-Coating의 경우 Kernel의 반지름이 605 μ m, 즉 핵연료 입자의 반지름이 655 μ m인 경우 핵연료의 장전량이 최대가 되었다. 이 핵연료 입자를 사용하였을 때 울진 3,4호기 1개의 소결체, 즉 반지름이 0.413cm, 높이가 0.991cm인 소결체에는 총 259개의 핵연료 입자가 장전될 수 있다.

3. 토륨 핵연료안의 핵주기 특성 분석

우라늄 핵연료의 일부를 토륨 핵연료로 대체하면 실제로 장전되는 U-235의 양은 줄어들게 되어 연소도는 감소하게 된다. 이것을 막기 위해서는 우라늄의 농축도를 올려 주어야 하는데 이는 정치적인 면뿐만 아니라 경제적인 면에서도 불리하다. 이런 단점에도 불구하고 토륨의 사용은 다음의 두가지 면에서 유리하다.

첫째로, 탄소 피막 토륨 핵연료를 사용하면 사용후 핵연료의 플루토늄 조성이 기존 PWR 사용후 핵연료의 플루토늄 조성보다 크게 달라진다. 표 1은 UO₂ 세라믹 핵연료와 탄소 피막 핵연료를 같은 조건에서 연소시켰을 때의 플루토늄 생성량을 HELIOS code로 계산하여 결과를 비교한 것이다. 탄소 피막 핵연료에서는 우라늄의 장전량이 적어져서 플루토늄 생성량이 적어졌으며, 토륨이 들어간 탄소 피막 핵연료에서는 Fissile인 Pu-239의 양이 크게 줄어들면서도 불구하고 Fertile인 Pu-238의 양은 늘어남을 볼 수 있다. 이 특성은 사용후 핵연료를 재처리하여 플루토늄을 추출한다고 가정할 때, 훨씬 더 많은 핵연료를 재처리해야 할 뿐만 아니라 붕괴열이 큰 Pu-238의 증가로 재처리시 냉각의 어려움이 생기고, 플루토늄의 핵적

순도가 낮아짐을 뜻한다. 즉, 이런 특성은 핵확산 저항성 면에서 UO_2 세라믹 핵연료나 탄소 피막 UCO 핵연료 입자 사용 설계안보다 토륨을 사용한 설계안이 유리하다는 것을 보여준다.

둘째로 핵연료가 연소시 핵연료가 중성자를 흡수하여 생성되는 Actinide의 변환을 살펴보면 U-238의 경우 Th-232으로부터 생기는 Actinide에 비해 반감기가 길고 독성이 강한 방사성 동위원소들, 예를 들면 Np-239, Pu-239, Pu-240, Am-241, Am-243등이 많이 생성된다. 따라서 토륨을 우라늄과 많이 대체하면 할수록 고준위 방사성 핵종의 감소를 유발하여 방사성 폐기물 처리시 경제적인 면이나 환경적인 면으로 유리해진다고 볼 수 있다.

4. 탄소 피막 토륨 핵연료의 핵설계 타당성

4.1 계산 방법

토륨이 들어간 핵연료에 대한 계산은 Library와 Decay-chain module의 부족으로 기존의 Lattice code인 CASMO-3a나 WIMS/D등을 통한 결과는 신뢰도가 떨어지게 된다. 이에 본 연구에서는 HELIOS code⁴⁾를 사용하였는데, HELIOS는 토륨이 고려된 Library와 Decay-chain을 사용하므로 토륨이 들어간 핵연료의 연소계산에도 신뢰성과 계산의 정확성을 지닌다. 또한 HELIOS는 ENDF/VI를 기본으로 한 190 Group Master Library와 190 Group Library에서 축약한 89 Group과 34 Group의 Library를 가지고 있다. 사전 연구에서 34 Group의 Library를 사용하더라도 정확성이 크게 떨어지지 않음을 확인하였으므로 본 연구에서는 계산시간의 단축을 위해 34 Group Library를 사용하였다.

기하학적 모델은 울진 3,4호기의 집합체를 기준으로 그림 1과 같이 3.34 w/o, 2.84 w/o의 두가지 농축도를 가진 D-type 집합체를 새로운 핵연료안과 무한 증배계수 변화를 비교하였다. 단 토륨 핵연료안에서는 설계의 복잡성에 의한 우연성을 적게 하고자 한가지의 농축도만으로 구성하였다.

4.2 핵연료 조성에 따른 민감도 분석

우라늄 핵연료의 농축도는 MHTGR용 핵연료의 농축도인 19.8 w/o에서부터 5.8 w/o로 줄여나가면서 집합체의 무한 증배계수의 변화를 살펴었고, 우라늄 핵연료 입자와 토륨 핵연료 입자의 구성비는 총입자의 개수가 259개가 되도록 유지하면서 토륨 핵연료 입자가 없는 경우에서부터 125개가 들어가는 경우까지 변수 해석을 하였다. 이 때 초기에 장전되는 Heavy Metal의 양이 크게 변화하므로 같은 열출력을 얻기 위해서는 각기 단위 출력 밀도가 달라져야 한다. 따라서 각 핵연료 집합체 설계안의 잉여 반응도 변화는 모두 연소도를 EFPD 단위로 바꾸어 비교하였다.

그림 2를 보면 토륨 핵연료 입자의 사용은 전체적으로 K-Infinite 곡선을 낮추고 기울기

가 조금 평탄해진다는 것을 알 수 있다. 토륨 핵연료 입자가 125개 들어가고, 우라늄 핵연료 입자의 농축도가 약 12.8 w/o인 경우 울진 3,4호기 집합체와 가장 유사한 K-infinite 변화곡선을 얻을 수 있었다. 이 때 집합체내 Pin Peak는 주기 초에서 1.099, 주기 말에는 1.013의 값을 가졌다.

그림 3은 우라늄 핵연료 입자의 농축도 변화와 토륨 핵연료 입자수 변화에 따른 Fissile 변환비를 보기 위해 U-238 수밀도에 대한 U-233과 Fissile 플루토늄들의 상대적인 수밀도 비율을 비교한 그림이다. Fissile 플루토늄의 생성비는 위의 조건 변화에 민감하지 않았다. 반면 U-233의 생성비를 보면 Th-232의 장전량이 적은 경우에는 우라늄 농축도의 영향을 적게 받았으나 장전량이 큰 경우에는 우라늄의 농축도가 커질수록 Th-232에서 U-233으로 전환되는 양이 커졌고, 보다 오랜 시간을 기다려야만 생성비의 포화가 이루어 졌음을 알 수 있었다. 이는 U-233으로 전환이 될 Th-232의 양이 충분한 경우 우라늄 핵연료 입자의 농축도가 높을 수록 토륨 핵연료로 공급되는 중성자 개수가 증가되어 핵변환 역시 증가하기 때문이라 추측되어진다.

5. 결론 및 향후과제

토륨 핵연료에 탄소 피막 기술을 적용하여 가압경수로에 사용할 수 있는 새로운 핵연료를 설계하여 보았다. 우라늄 핵연료 입자의 농축도와 토륨 핵연료 입자의 개수를 변화시켜 가며 이 새로운 핵연료의 핵적 특성을 조사하였고 울진 3,4호기 집합체의 무한 증배계수와 비교함으로써 핵설계 타당성이 있음을 확인하였다. 하지만 본 연구를 시작한 이유중의 하나인 Th-232의 열중성자 에너지 영역에서의 중성자 흡수단면적이 U-238에 비해 약 2.7배가 크고, 핵분열당 발생하는 중성자의 개수인 η 값도 U-235나 Pu-239, Pu-241보다 크기 때문에⁶⁾ K-Infinite 변화곡선의 기울기도 많이 평탄해질 거라는 추측은 그림 2에서 보는 바와 같이 토륨의 장전량이 많고, 우라늄의 농축도가 낮은 경우 즉, Th-232/U-235의 비가 큰 경우에만 해당된다. 즉, 우라늄의 농축도가 높은 경우에는 그림 3에서 처럼 Th-232으로부터 U-233으로의 전환이 늦어짐을 알 수 있다. 따라서 우라늄의 농축도를 상당히 올렸음에도 불구하고 주기길이의 증가는 이루어지지 않았다. 또한 토륨 핵연료의 사용으로 인해 우라늄의 농축을 12.8 w/o로 올려야 하는 점은 우라늄의 장전량의 감소에도 불구하고 경제적으로 매우 불합리하고, 일반 상용 가압경수로용 핵연료의 우라늄 농축도 제한치 5 w/o를 초과하게 된다.

위의 두 가지 이유로 인해 탄소 피막 토륨 핵연료는 앞에서 설명한 바와 같이 여러 장점을 가지고 있고 핵적으로도 타당성을 가지고 있음에도 불구하고 가압경수로로의 적용은 이득이 크지 않으리라 추측된다. 즉, 탄소 피막 토륨 핵연료의 장점을 살려가며 이를 사용하기 위해서는 토륨의 전환율을 높이는 방법, 예를 들어 집합체의 격자 형태나 크기를 바꾸고, 감

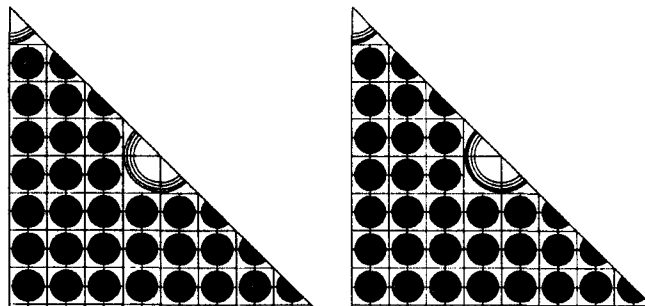
속재를 D₂O로 하여 중성자를 Over-moderation 시키는 방법이나 또는 Fissile 핵연료와 Fertile 핵연료를 별도로 배치하는 비균질 노심에 대한 연구가 필요하다.

참고 문헌

1. M.H.Kim, S.G.Lee, Y.J.Kim, "Nuclear Feasibility of Carbon-Coated Particle Fuels in PWRs," *Trans.Am.Nucl.Soc.* 75, 362, (1996)
2. M.H.Kim, K.M.Bae, Y.J.Kim, "The Use of Carbon-Coated Particle Fuels in PWR Assemblies," *Trans.Am.Nucl.Soc.* 77, to be published, (1997)
3. Alex Galperin, Ben-Gurion University of Negev, Private Communication, Sep. (1997)
4. SCANDPOWER A/S, *HELIOS Method*, HELIOS Documentation Rev. No 2 (1995)
5. Hak-Chae Yi, Seminar Presentation Materials, General Atomic, (1994)
6. Y. Ronen, "High Converting Water Reactors," CRC Press, (1990)

표 1. 사용후 핵연료의 Pu Isotope별 생성 잔존량(g/cc)과 조성비(w/o)

Pu Isotope	울진 3,4호기 UO ₂ Fuel	Carbon Coated Particle Fuel (Enrichment : 12.8 w/o)	
		# of Particles Uranium : 259 Thorium : 0	# of Particles Uranium : 134 Thorium : 125
Pu-238	0.0191 (1.39)	0.0144 (1.85)	0.0249 (5.54)
Pu-239	0.6957 (50.66)	0.4529 (58.23)	0.1836 (40.85)
Pu-240	0.3652 (26.59)	0.1645 (21.15)	0.1139 (25.34)
Pu-241	0.1961 (14.28)	0.1128 (14.50)	0.0665 (14.79)
Pu-242	0.0973 (7.08)	0.0331 (4.26)	0.0605 (13.46)



울진 3,4호기 D-type

새로운 집합체 설계안

그림 1. HELIOS 기하학적 모델 (1/8 집합체)

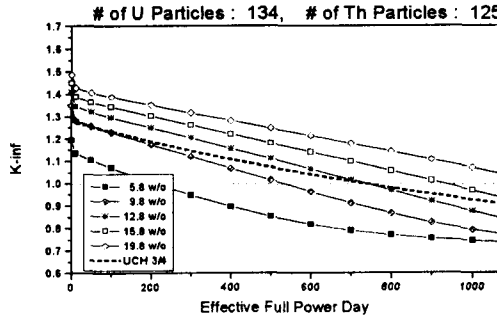
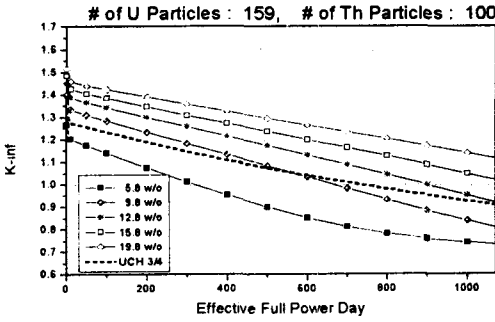
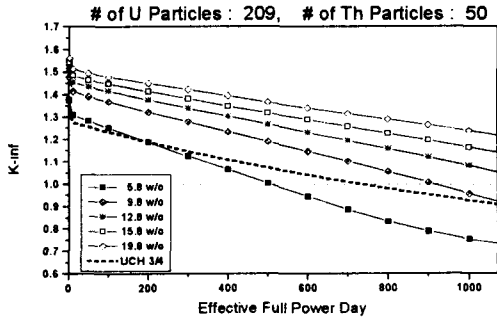
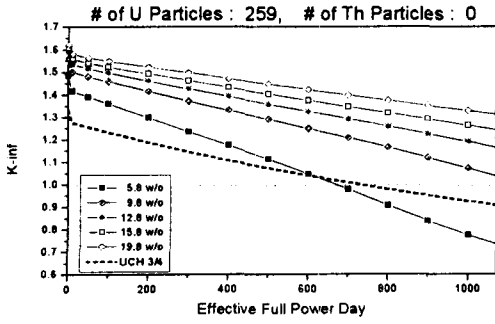


그림 2. 우라늄 핵연료 입자의 농축도 변화와 토륨 핵연료 입자수 변화에 따른 임계도 변화

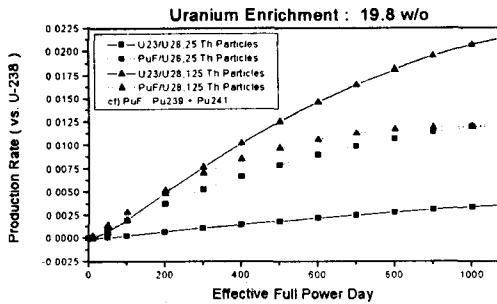
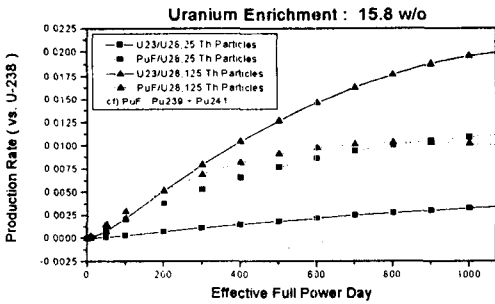
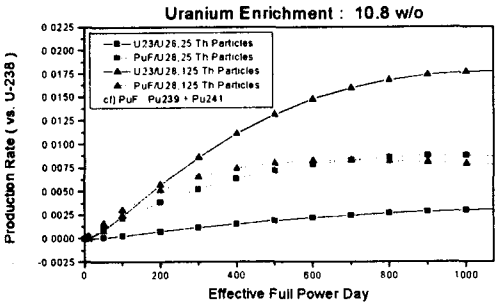
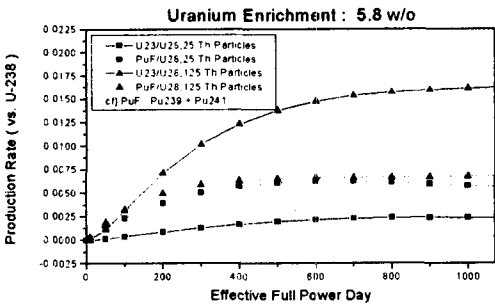


그림 3. 우라늄 핵연료 입자의 농축도 변화와 토륨 핵연료 입자수 변화에 따른

U-233과 (Pu-239, Pu-241)의 U-238에 대한 상대 생성율