

'98 춘계학술발표회 논문집

한국원자력학회

900MWe 가압경수로에 대한 토륨핵연료 및 혼합핵연료 노심 핵특성 분석

주형국, 김영진, 정형국, 노재만, 조진영

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

토륨핵연료를 이용한 플루토늄 소모에 대한 연구를 목적으로 조직된 IAEA CRP (Coordinated Research Program) 업무의 일환으로, 농축우라늄 및 플루토늄을 seed로한 토륨핵연료를 국내의 900MWe 가압경수로에 이용하였을 경우에 플루토늄을 비롯한 heavy isotope의 원소량 변화, 사용 후핵연료로부터의 방사능 준위, 노심의 반응도 특성을 분석하여 혼합핵연료 노심과 비교하였다.

(Th+Pu) O_2 는 혼합핵연료 보다 플루토늄의 소모량이 약 2.4배 많으며, fissile 플루토늄 원소의 존재비율은 10% 정도 더 감소하는 것으로 나타나 플루토늄 소모의 특성이 유리하고 핵비확산 성격이 강한 것으로 나타났다. 사용후 핵연료의 방사능은, 핵연료가 노심에서 바로 인출된 시점에서 (Th+Pu) O_2 가 가장 낮으나, 그 이후로는 (Th+Pu) O_2 와 혼합핵연료의 방사능은 비슷한 반면, (Th+U) O_2 의 방사능이 가장 낮은 것으로 나타나 장기적으로는 (Th+U) O_2 가 가장 유리하다. 대략적인 전환비는 (Th+Pu) O_2 노심이 약 0.56, (Th+U) O_2 노심은 약 0.63, 혼합핵연료 노심은 약 0.61 정도로 추정되었다. 토륨핵연료의 연소도에 따른 반응도 변화, 가돌리니아봉의 중성자 흡수 성질 및 반응도 특성 등 노심특성은 seed 물질의 특성과 함량에 따라 좌우되는 것으로 나타났다.

1. 서 론

자연계에 존재하는 유일한 토륨핵종인 ^{232}Th 는 자체적으로는 중성자 연쇄반응을 지속시키는 능력은 없다. 따라서 토륨연료 주기를 위한 핵연료에는 breeding 물질로 사용되는 토륨 외에 seed물질인 fissile 원소가 필요하다. 이때 토륨원소의 역할은, 마치 우라늄핵연료에서 fertile인 ^{238}U 원소가 fissile인 ^{239}Pu 원소로 변환되는 것과 같이, 중성자를 흡수하므로써 fissile 원소인 ^{233}U 으로 변환되어 지속적인 핵분열 물질의 공급원 역할을 한다. 즉 토륨핵연료 주기는 ^{232}Th 원소의 중성자 흡수변환으로 생성되는 핵분열 동위 원소인 ^{233}U 의 핵분열 에너지를 이용하는 주기 개념이다.

^{232}Th 는 ^{238}U 보다 긴 반감기를 가지고 있기 때문에 자연에 존재하는 토륨자원은 우라늄자원 보다 풍부하다. 실제로 인도, 캐나다, 미국, 러시아, 중국, 브라질, 터키 등에 많은 양의 토륨자원이

존재하고 있으며(인도 360,000톤, 중국 380,000톤, 터키 800,000 톤 등[1]) 우리나라에도 비교적 많은 토륨 자원이 있는 것으로 알려져 있다. 토륨핵연료의 장점은 용융온도가 높고, 물질의 안정성, 내화성 내방사성 등이 뛰어나며, Th-²³³U 핵연료 주기개념은 U-Pu 핵연료주기보다 장수명 핵종의 생성이 적어 보다 환경 친화적으로 알려져 있다. 이와같은 장점들과 우라늄자원의 고갈 방지 목적으로 여러나라에서 일찍부터 토륨핵연료를 개발하여 왔다.

우리나라에서는 1996년에 IAEA 주관의 토륨핵연료 개념에 대한 CRP (Coordinated Research Program)에 참여하여 핵연료 및 노심 분석 코드의 능력 평가 및 토륨핵연료 특성 분석에 대한 연구를 현재 수행 중에 있다. 현재 진행중인 IAEA CRP는 토륨핵연료를 이용한 플루토늄의 소모에 관해 연구중인데, 본 논문에는 이와 관련하여 플루토늄을 토륨핵연료의 seed물질로 이용하였을 경우의 노심특성 및 플루토늄을 비롯한 heavy isotope의 원소량 변화 등을 분석하여 혼합핵연료 노심과 비교하였다.

2. 토륨핵연료 가상 노심 구성

토륨핵연료 및 혼합핵연료가 장전되는 노심의 구성은 국내의 주종인 900MWe 가압경수로를 참고로 하였다. 토륨주기에 대한 IAEA CRP의 목적이 플루토늄 소모 특성 및 사용후핵연료의 방사능 수준에 있어서의 토륨핵연료의 능력을 평가하는 것이기 때문에 노심에는 토륨핵연료 또는 혼합핵연료가 100% 장전하는 것을 가정하였으며, 이에 따라 발생하는 설계제한치나 운전기술지침서 위반사항을 해결하기 위한 발전설비의 변경사항은 고려하지 않았다. 이 가상노심은 국내의 장주기 운전전략에 따라 매주기별로 64개의 핵연료가 새로 교체되도록 하였으며, 노심의 핵연료장전 모형은 중성자 저누출 개념에 따라 설정하였다.

3. 균정수 생산 및 노심 해석 체계

토륨핵연료 및 토륨 노심의 특성을 분석하기 위한 노심해석 체계는 HELIOS/MASTER를 사용하였다. HELIOS는 토륨핵종에 대한 라이브러리 및 연소사슬이 준비되어 있어 토륨핵연료에 대한 분석이 가능하다[2]. 토륨핵연료 노심을 분석하기 위하여 노심계산 코드인 MASTER의 연소사슬을 ²³²Th, ²³³Pa, ²³³U 및 ²³⁴U를 추가하여 확장하였다[3].

토륨핵연료에서 seed물질의 함량은 4w/o로 농축된 우라늄핵연료와 주기길이를 같게하는 조건으로부터 결정하였다. 그 결과 (Th+Pu)O₂ 핵연료에서 PuO₂의 함량은 7.5 w/o, 나머지 92.5 w/o는 ThO₂인 핵연료로 하였으며, seed 물질로 농축우라늄을 이용할 경우에는 20.0 w/o로 농축된 우라늄핵연료가 23.0 w/o 그리고 나머지 77.0 w/o는 ThO₂인 토륨핵연료로 하였다. 이때 플루토늄 원소들의 조성비는 가압경수로 사용후핵연료의 전형적인 조성비인 ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu, ²⁴²Pu의 무게비가 각각 1.8, 59.0, 23.0, 12.2, 4.0로 가정하였다. 또한 일부 핵연료집합체에는 출력첨두치를 완화하기 위해서 4개 또는 8개의 가돌리니아봉을 사용하였다. 가돌리니아봉은 Gd₂O₃가 4.0 w/o

포함되어 있으며, 나머지는 ^{235}U 의 농축도가 1.8 w/o인 UO_2 로 하였다. UO_2 노심에 부분 장전되는 혼합핵연료집합체는 출력침두치를 제어하기 위하여 집합체내에서의 플루토늄의 함량을 달리하여 배치하는 개념을 사용하였는데, 본 연구에서 수행한 토륨핵연료노심 특성분석에서는 노심 전체가 $(\text{Th}+\text{Pu})\text{O}_2$ 핵연료 또는 $(\text{Th}+\text{U})\text{O}_2$ 핵연료만으로 장전되는 것을 가정하였기 때문에 집합체별로 플루토늄의 함량은 달리하지 않았다. 토륨핵연료의 특성과 비교하기 위하여 혼합핵연료 가상노심도 구성하였는데, 이에 사용한 PuO_2 가 5.62w/o인 $(\text{U}+\text{Pu})\text{O}_2$ 혼합핵연료의 균정수도 별도로 생산하였다.

4. 토륨 핵연료 및 노심 특성

가연성독물질 특성 : $(\text{Th}+\text{Pu})\text{O}_2$, $(\text{Th}+\text{U})\text{O}_2$ 그리고 혼합핵연료에서의 가돌리니아붕의 반응도 변화 효과가 그림 1에 나타나 있는데, fissile 원소로 플루토늄을 사용하는 $(\text{Th}+\text{Pu})\text{O}_2$ 와 혼합핵연료의 경우가 거의 유사하며, $(\text{Th}+\text{U})\text{O}_2$ 경우는 위의 두핵연료 보다 가돌리니아의 반응도가 주기초에서는 크지만, 연소도에 따라 급격히 감소하여 완전연소시점은 약 1/2로 짧게 나타나는 우라늄핵연료의 특성과 비슷하다.

노심의 중성자 스펙트럼 : $(\text{Th}+\text{Pu})\text{O}_2$, $(\text{Th}+\text{U})\text{O}_2$ 그리고 혼합핵연료 노심의 열중성자속에 대한 속중성자속의 비(ϕ_1/ϕ_2)는 각각 19.68~14.60, 7.58~6.66, 17.38~14.07로 계산되었다. 즉 seed 물질의 특성에 따라 $(\text{Th}+\text{U})\text{O}_2$ 핵연료 노심의 스펙트럼이 가장 연화되었으며, 토륨핵연료라도 $(\text{Th}+\text{Pu})\text{O}_2$ 노심은 플루토늄의 함량이 혼합핵연료 노심보다 높아 스펙트럼은 더 경화된 것으로 분석되었다.

노심 반응도 특성 : 각 핵연료 노심의 붕산농도, 감속재온도계수, 핵연료온도계수, 붕산가 및 제어봉가 등 노심반응도 특성계수가 표1에 수록되어 있다. 플루토늄이 seed역할을하는 $(\text{Th}+\text{Pu})\text{O}_2$ 와 혼합핵연료 노심에서는 중성자의 스펙트럼이 경화되어 열중성자의 흡수성질인 붕산가 및 제어봉가가 현저히 감소하고 있으며, 이에 따라 주기초 임계를 유지하기 위한 붕산농도의 요구량이 크게 나타나고 있다.

플루토늄 동위원소 변화량 : 핵연료가 노심에서 연소되기 전후의 플루토늄 원소의 변화가 표 2에 나타나 있는데, 플루토늄의 소모량은 $(\text{Th}+\text{Pu})\text{O}_2$ 가 혼합핵연료 보다 2.4배 많은 975kg, fissile 플루토늄 원소의 존재비율은 혼합핵연료 보다 10% 정도 더 감소하는 것으로 나타나 플루토늄 소모 특성이 유리하고 핵비확산 성격이 강한 것으로 나타났다.

전환특성 : 표3은 각 노심별 fertile 및 fissile 원소량의 변화를 나타내고 있다. 반응도가 영인 주기말에서의 fissile 양들을 비교해보면, $(\text{Th}+\text{Pu})\text{O}_2$, $(\text{Th}+\text{U})\text{O}_2$ 그리고 혼합핵연료의 순으로 나타나고 있는데, 이는 같은 반응도를 얻기 위해서는 위의 순서대로 fissile 원소가 많이 필요하다는 것을 의미한다. 이 표에서 주기초와 주기말의 fertile 원소량의 차이 만큼 fissile로 전환되었다고 가정하고 대략적인 전환비를 구해보면 $(\text{Th}+\text{Pu})\text{O}_2$ 노심은 약 0.56, $(\text{Th}+\text{U})\text{O}_2$ 노심은 약 0.63, 혼합핵연료 노

심은 약 0.61 정도로 추정된다. 따라서 본 연구에서 가정한대로 토륨핵연료를 재순환하지 않고 once-through로 2 내지 3 주기의 짧은 기간만 이용할 때에는 전환 특성을 효과적으로 살릴 수 없는 것으로 나타났다.

사용후 핵연료의 방사성 농도 : 사용후 핵연료로부터의 방사능 준위를 노심에서 방출후 경과된 시간에 따라 분석하였다. 각 핵연료 노심별로 주기길이가 약간 다르기 때문에 총출력이 1,000 MWe-year에 해당하는 값으로 규격화하여 표4에 나타내었다. 핵연료가 연소후 노심에서 바로 인출된 시점에서는 (Th+Pu)O₂ 토륨핵연료가 가장 낮은 방사능을 내는 것으로 나타났고, 혼합핵연료가 가장 높은 방사성을 갖는 것으로 나타났다. 이는 반감기가 2.36일로 매우 짧은 ²³⁹Np의 영향이 지배적이기 때문이며, 이후로는 (Th+Pu)O₂ 토륨핵연료와 혼합핵연료가 비슷한 수준의 방사성 농도를 나타내고 있으며, (Th+U)O₂ 토륨핵연료서의 방사성 농도가 가장 낮은 것으로 분석되었다. (Th+Pu)O₂ 토륨핵연료와 혼합핵연료에는 처음부터 많은 양의 플루토늄 원소들이 포함되어 있기 때문에 원자로에서 2내지 3주기 동안의 연소를 하더라도 플루토늄 원소 및 이들의 붕괴에 의해 생겨난 higher actinide의 양이 (Th+U)O₂ 토륨핵연료에 포함된 것 보다도 많기 때문이다. 따라서 방사성 농도의 관점에서 보면 장기적으로는 (Th+U)O₂ 토륨핵연료가 유리한 것으로 나타났다.

5. 결론

IAEA 주관의 토륨주기에 대한 CRP (Coordinated Research Program)에서는 현재 토륨핵연료 노심의 플루토늄 소모 특성에 대한 연구를 수행 중에 있다. 이와 관련하여 농축우라늄 및 플루토늄을 seed물질로한 토륨핵연료를 국내의 900MWe 가압경수로에 이용하였을 경우, 노심의 반응도 특성, 플루토늄을 비롯한 heavy isotope의 원소량 변화 등을 분석하여 혼합핵연료 노심과 비교하였다.

(Th+Pu)O₂ 핵연료는 혼합핵연료 보다 플루토늄을 2.4배 정도 많이 소모하고 있으며, fissile 플루토늄 원소의 존재비율도 약 10정도 더 감소하는 것으로 보여 플루토늄 소모 특성이 유리하고 핵비확산 성격이 강한 것으로 나타났다. 사용후 핵연료로부터의 방사능은, 핵연료가 노심에서 바로 인출된 시점에서는 (Th+Pu)O₂가 가장 낮은 것으로 나타났고, 혼합핵연료의 경우가 가장 높은 것으로 나타났다. 그 이후로는 (Th+Pu)O₂와 혼합핵연료가 비슷한 수준의 방사능을 나타내고 있으며, (Th+U)O₂의 방사능이 가장 낮은 것으로 나타남에 따라 사용후핵연료의 방사능 관점에서 장기적으로는 우라늄-토륨핵연료가 가장 유리한 것으로 보인다. 전환비는 플루토늄-토륨핵연료 노심은 약 0.56, 우라늄-토륨핵연료 노심은 약 0.63, 혼합핵연료 노심은 약 0.61 정도로 추정되어, 본 연구에서 가정한대로 토륨핵연료를 재순환하지 않고 once-through로 2 내지 3 주기의 짧은 기간만 이용할 때에는 전환 특성을 효과적으로 살릴 수 없는 것으로 나타났다. 토륨핵연료 노심의 중성자 스펙트럼은 seed물질에 따라 좌우되어, 이에 따라 가돌리니아봉의 중성자 흡수 성질, 봉산가 및 제어봉가 등은 플루토늄이 seed로 사용되는 (Th+Pu)O₂와 혼합핵연료 노심에서 유사하게 나타났다.

참고 문헌

1. M.Lung, **A Present Review of The Thorium Nuclear Fuel Cycles**, Nuclear Science and Technology, European Commission, 1997.
2. R.Stammler et al., "User's Manual for HELIOS," Scandpower, 1994.
3. C.H.Lee et al., "Verification of Extended Nuclide Chain of MASTER with CASMO-3 and HELIOS," KAERI/TR-947/98, January 1998.

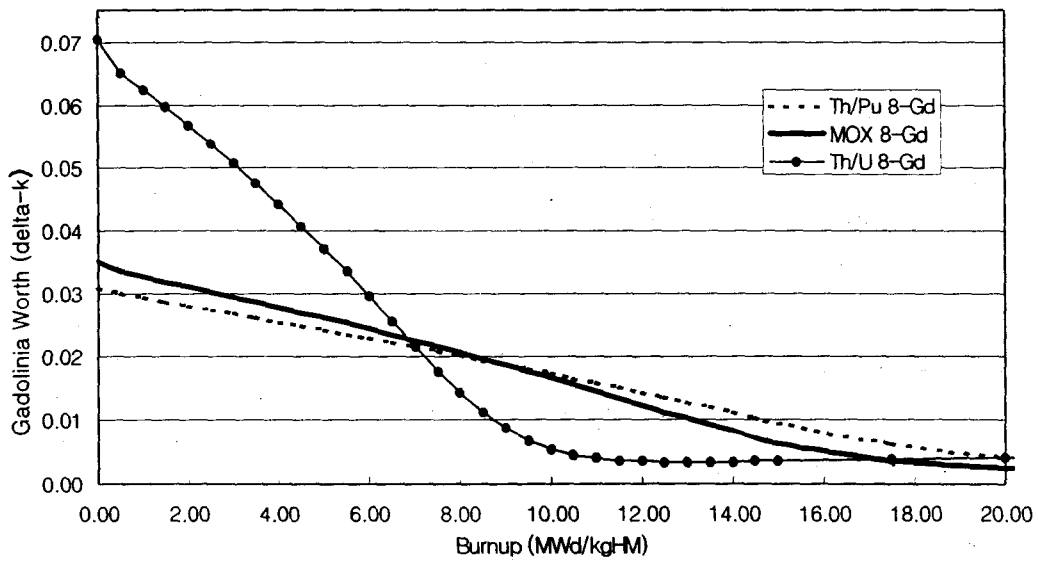


그림1. $(Th+Pu)O_2$, $(Th+Pu)O_2$ 및 혼합핵연료에서의 가돌리니아봉가

표1. 평형주기 노심에서의 핵특성

Core Characteristics	Fuel Cycle	(Th+Pu)O ₂ Core	(Th+U)O ₂ Core	MOX Core
Boron Concentration (ppm)				
To control at HZP, ARO, (k=1.0)		3265	1802	2854
To control at HZP, ARI, (k=1.0)		1583	810	1348
To control at HFP, ARO, (k=1.0)				
0 EFPD, No Xenon		2606	1517	2314
6 EFPD, Eq. Xenon		1981	1085	1713
Moderator Temperature Coefficient at HFP (pcm/°C)				
BOC/ EOC		-36.4/-67.4	-29.7/-63.6	-44.4/-80.0
Isothermal Temperature Coefficient at HZP at BOC (pcm/°C)		-14.5	-7.5	-19.6
Fuel Temperature Coefficient at HFP (pcm/°C)				
BOC/ EOC		-3.72/-3.87	-4.08/-4.25	-3.03/-3.08
Boron Worth at HFP (pcm/ppm)				
BOC/ EOC		-3.04/-4.14	-6.81/-8.05	-3.50/-4.47
Total Control Rod Worth at HFP (pcm)				
BOC/EOC		6080/5800	8478/6990	6350/5580

표2. 각 핵연료별 플루토늄 원소량 변화

		(Th+Pu)O ₂ Core		(Th+U)O ₂ Core		MOX Core	
		연소전	연소후	연소전	연소후	연소전	연소후
Mass (kg)	²³⁸ Pu	36.76	34.48	0.00	3.38	28.34	27.16
	²³⁹ Pu	1210.06	307.39	0.00	55.05	932.98	492.63
	²⁴⁰ Pu	473.69	359.58	0.00	17.86	365.24	334.08
	²⁴¹ Pu	252.32	241.42	0.00	14.85	194.55	213.05
	²⁴² Pu	83.07	137.44	0.00	5.17	64.05	115.44
	total	2055.90	1080.31	0.00	96.31	1585.16	1182.36
fissile 원소비율 (%)		71.2	50.7	-	72.6	71.2	59.7

표3. 평형노심에서의 fertile 및 fissile 원소량 변화

Mass(kg)		(Th+Pu)O ₂ Core		(Th+U)O ₂ Core		MOX Core	
Isotope		주기초	주기말	주기초	주기말	주기초	주기말
fissile	²³³ U	0.00	355.47	0.00	302.94	0.00	0.00
	²³⁵ U	5.90	9.02	1265.44	427.98	65.75	33.65
	²³⁹ Pu	1210.06	307.39	0.00	55.05	932.98	492.63
	²⁴¹ Pu	252.32	241.42	0.00	14.85	194.55	213.05
	sum	1468.28	913.31	1265.44	800.82	1193.28	739.33
fertile	²³² Th	25259.06	24682.54	21026.44	20451.32	0.00	0.00
	²³⁸ U	321.55	312.95	5359.95	5128.36	26865.12	26165.60
	²⁴⁰ Pu	473.69	359.58	0.00	17.86	365.24	334.08
	sum	26054.30	25355.07	26386.39	25597.54	27230.36	26499.68

표4. 사용후 핵연료의 방사능 준위 (단위; Ci)

	연소후	10 year 후	10 ² year 후	10 ³ year 후	10 ⁴ year 후	10 ⁵ year 후	10 ⁶ year 후
(Th+Pu)O ₂	4.4719×10 ⁷	1.5206×10 ⁷	1.2336×10 ⁶	2.5267×10 ⁵	4.3047×10 ⁴	3.4361×10 ³	1.2648×10 ²
(Th+U)O ₂	2.5539×10 ⁸	9.9226×10 ⁵	9.1133×10 ⁴	2.0396×10 ⁴	7.0427×10 ³	2.3535×10 ³	7.1949×10 ¹
MOX	6.9506×10 ⁸	1.3643×10 ⁷	1.0946×10 ⁶	2.3854×10 ⁵	4.6426×10 ⁴	1.9183×10 ³	7.4034×10 ¹