

등가연소도 최적화를 위한 AMBIDEXTER 핵연료 재생공정의 시간상수 특성화 연구
Time Constant Characterization of AMBIDEXTER Fuel Reconditioning Process to Determine
Optimum Equivalent Burnup Condition

원성희, 임현진, 조재국, 오세기
아주대학교
수원시 팔달구 원천동 산5

요약

AMBIDEXTER(Advanced Molten-Salt Break-even Inherently-Safe Dual-Mission Experiment & Test Reactor)는 토륨-우라늄 연료주기의 핵적자활성 요건을 설계하는 방법으로써 핵분열중간 생성물인 ^{233}Pa 의 시간격리, 노내 방사성물질 농도저감, 잉여반응도 및 증식률향상을 위해 핵분열 생성물질의 온라인 정화·처리·재생 개념을 채택하고 있다. 본 연구에서는 AMBIDEXTER 로심의 핵분열성물질의 연소와 온라인 정화·처리에 따른 핵연료내 원소분포 변화를 기술하기 위해 핵분열생성물질의 평형포화농도에 대응하는 등가연소도(Equivalent Burnup)를 정의하고 이를 로심의 핵적자활성 요건에 대해 최적화하는 핵연료 정화공정의 시간상수 특성을 시뮬레이션 하였다. 핵분열생성물질농도의 동특성은 ORIGEN2 코드에 내장된 연속재처리 모델을 이용하여 해석하였으며 실용화가 입증된 후보정화공정들을 고려하여 모든 핵종을 5종의 핵종군으로 분류하여 평가 하였다. 시뮬레이션 결과 유효정화주기를 0.1 [노심장전량/일]로 연속재처리 할 때 노심내 포화등가연소도는 약 650 [MWD/TeH.E.]로 대응되며 이때 동일한 핵연료량으로부터 생성된 노내 핵분열생성물질 평형농도는 최대연소도 33000MWD/TeU의 PWR 평형노심 BOC시의 대비해 약 1/10에 해당하는 양이 잔유하는 것으로 나타났다.

1. 배경

AMBIDEXTER 원자로개념의 핵심요소 중에 하나인 $\text{Th}/^{233}\text{U}$ 핵주기 연구는 1970년대 후반을 기점으로 중단되다시피 하였으나 최근 들어 '93+2'의 채택과 더불어 핵확산 방지의 제도적 장치가 IAEA를 중심으로 보다 강화되고 있으며 또한 핵무기의 분해로 누적된 농축 우라늄 및 플루토늄 처리 문제가 사용후 핵연료에 포함된 악티나이드 처분 문제와 맞물려 다시 세계 원자력 연구계의 관심을 끌기 시작하였다. 최근들어 일본과 네델란드에서 부분적으로 연구되고 있는 $\text{Th}/^{233}\text{U}$ 용융염 원자로 개념은 에너지 시스템으로서의 기능보다는 주로 악티나이드 소멸처리에 그 목적을 두고 있다. 또 인도에서는 출력평탄화를 위하여 CANDU형 발전로에 ThO_2 핵연료다발을 장전하여 성공적으로 운전하고 있으나 아직 토륨을 에너지 생산용 핵연료물질로 이용하고 있다고 보기는 어렵다.

AMBIDEXTER 원자력 보일러시스템과 유사한 시스템 연구는 1970년대 후반까지 지속하여온 미국 ORNL의 MSBR(Molten Salt Breeder Reactor)프로그램이 있었으나 원자력산업의 전반적 정체로 국가로부터 지원이 중단되면서 기본설계를 끝으로 더 이상의 연구가 진행되지 못하였다. 그러나 MSBR의 실용화 연구가 계속되었다 하더라도 에너지 수송매체로서 용융핵연료염을 강제순환

하는 대형 배관회로는 현재의 안전성 기준에서 볼 때 경수로 경우 설계기준사고인 LOCA보다 더 심각한 안전성 문제를 야기시킴으로 상용화와 인허가에 큰 어려움을 안게 되었을 것이다.

2. AMBIDEXTER 원자로 개요

AMBIDEXTER 원자로는 그림. 1에 도시된 AMBIDEXTER 원자로 단지의 원료공급원 역할을 하도록 핵연료가 원자로 용기내에서 핵분열/순환하는 일체형 무배관 원자로로써 생성된 방사성물질과 열에너지는 생성원과의 최단거리에서부터 서로 독립된 경로로서 정화계통(방사선/물질회로)와 2차 냉각계통(열/에너지회로)를 통해 분리, 수송, 변환이 이루어지는 설계개념이다. 따라서 원자로 내에 잔유하는 양은 최소로 유지되는 반면, 이용시설(증기터빈, 동위원소 생산설비 등)에서 포집되는 양은 최대로 공급하는 설계로써 LOCA에서 중대사고로 이어지는 안전성문제, 사용후핵연료와 고준위 폐기물의 관리문제등을 최소화함은 물론 핵연료자원의 안정적공급과 원자력에 대한 대중이해제고와 같은 원자력에너지의 평화적이용에 있어 필수적 고려사항들을 구비조건으로 하는 원자로개념이다.

AMBIDEXTER 원자로는 ${}^7\text{LiF}-\text{BeF}_2-\text{ThF}_4-{}^{233}\text{UF}_4$ 용융염핵연료와 흑연감속재의 육각기둥형 노심격자로 구성되었으며 냉각재 대신 액상의 핵연료가 열/에너지 수송매체 역할을 한다. 노심과 열교환기는 각각 일체형 원자로 용기의 하단중앙과 상단주변에 배치되어 노심을 통과하면서 자체 핵분열로 가열된 핵연료는 상승한 후 열교환기를 거치면서 냉각되어 하강하면서 내장된 재순환펌프에 의해 노심하단입구로 재유입되는 개념이다. 그리고 열교환기 출구로부터 냉각된 핵연료의 약 10%를 우회(Bypass)시켜 정화계통을 통과하면서 처리과정을 거친 후 재순환펌프 입구 근처에서 합류하므로 핵연료 구성물질의 노내 농도를 일정하게 유지시킨다. 표. 1에 열출력 250 MW급의 AMBIDEXTER 원자로의 개략적 설계사양을 정리하였다.

본연구는 AMBIDEXTER의 중요한 설계개념의 하나로써 용융염 핵연료물질의 노내 핵반응으로 생성된 핵분열생성물질의 핵종군별 화학적특성을 이용하는 온라인 정화계통의 시간상수를 해석하였다. 이들 핵종을 지속적으로 제거함으로 인한 원자로계통의 핵안전성 증대 및 중성자의 경제성 향상을 이룰수 있다.

3. 온라인 정화공정 모델링

본연구는 ORIGEN2 연속재처리 옵션을 이용하여 AMBIDEXTER 용융염핵연료에 포함된 연료물질인 ${}^{233}\text{U}$ 와 Th의 노내장전량을 운전이 필요한 잉여반응도가 유지되는 수준으로 일정량을 연속적으로 공급하고 정화공정을 통해 제거가능한 방사성물질을 연속적으로 제거하는 모델을 개발하였다. 이러한 두 가지 개념을 포함할 때 노내 핵종 농도의 변화량은,

$$\frac{dX_i}{dt} = \sum_{j=1}^N l_{ij}\lambda_j X_j + \phi \sum_{k=1}^N f_{ik}\sigma_k X_k - (\lambda_i + \phi\sigma_i + \nu_i)X_i + F_i, \quad i=1, 2, \dots, N, \quad (1)$$

로 표현되는데 여기서

ν_i : i 원소의 제거율,

F_i : i 원소의 공급율,

X_i : i 원소의 농도,

l_{ij} : j 원소로부터 붕괴에 의한 i 원소로의 변환분율,

λ_i : i 원소의 분리상수,

f_{ij} : j 원소로부터 중성자 흡수에 의한 i 원소로의 변환분율,

σ_i : i 원소의 미시적 흡수단면적, 그리고

ϕ : 중성자속 밀도를 나타낸다.

AMBIDEXTER에서 핵분열생성물질의 노내 농도는 정화계통특성과 밀접한 관계가 있으며 그림. 2는 엔지니어링 규모의 실험을 통해 실증된 단일유동 MSBR 핵연료처리 공정들을 참조하여 분류한 핵종군에 속하는 핵분열생성물질이 AMBIDEXTER 원자력단지의 관련계통 및 기기내에서 처리되는 과정을 도시하였다.

불활성기체 중에서 ^{135}Xe ($\sigma_a = 2.72 \times 10^6 \text{ barn}$)는 핵적 자활성 요건에 큰 영향을 미치는 독물질이므로 노내 잔유시간 및 양을 최소화하는 설계가 필요하다. AMBIDEXTER 원자로계통의 압력조절을 위해 주입되는 헬륨기포가 Xe제거를 촉진하도록 설계되어 있어 Xe의 노내 잔유시간은 최대한 용융염핵연료의 노심통과시간을 넘지않을 것이므로 제거시간상수는 보수적으로 대략 0.1 노심장전량/초의 제거율을 가정하여 모델링하였다. 용융염과 혼합하여 이동하면서 열교환기, 배관, 정화계통등의 금속성 용기표면에 부착되어 제거되는 제 2군 불활성금속 핵종은 일단 노심을 떠나면 제거된다고 가정하여 제거시간상수를 제 1군과 같게 정하였다.

AMBIDEXTER의 방사선/물질회로는 열교환기를 거친 용융염 유량의 약 10%를 정화공정으로 bypass시킴으로 형성되는데 표준정화공정은 단일유동 MSBR설계에서와 같이 세단계의 화학공정으로 진행되어 제 3군은 할로젠 또는 휘발성 불화물 형태로써 불화반응공정을, 또 제 4군은 안정된 불화물 형태로써 진공증류공정을 거치지만 ORIGEN2 모델링에서는 같은 시간상수로 제거되는 것으로 가정하였다. $^{232}\text{Th}(n, \beta)$ 반응으로 생성되어 27.4일의 반감기로 β 붕괴하는 ^{233}Pa 은 AMBIDEXTER의 유일한 핵분열생성물질인 ^{233}U 의 어미원소이지만 열중성자흡수 단면적이 43barn으로 비교적 커서 노내 잔유시 중성자를 흡수하여 ^{234}Pa 로 변환하고 다시 잠재핵분열물질인 ^{234}U 로 변환된다. 이 핵반응고리가 원자로의 핵적 특성에 미치는 영향은 Thermal Utilization Factor, f의 감소와 더불어 유효증배계수, k_{eff} 의 감소로 이어진다. 따라서 핵적 자활성 요건인 중성자 경제성과 증식율을 향상시키기 위해서는 생성된 프로타티늄을 용융염으로부터 분리하여 수 주기동안 중간 저장하므로 ^{233}U 로의 전환율을 최대한 높이는 설계가 필요하다. 그러나 결론적으로 정화계통의 고정비 및 운전비용이 연료주기비의 50%정도를 차지할 정도로 중요하므로 노내 잔유핵분열물질의 중성자 경제성 및 증식률효과 기여도에 따라 공정별 용량이 다른 정화공정네트워크설계를 통해 연료주기비 최적화 조건을 만족해야 한다.

4. 등가연소도 최적화 시뮬레이션

ORIGEN2 코드는 AMBIDEXTER의 $^7\text{LiF}-\text{BeF}_2-\text{ThF}_4-^{233}\text{UF}_4$ 용융염핵연료와 흑연감속 로심에 대한 중성자 스펙트럼과 핵자료 라이브러리를 내장하고 있지 않으므로, HELIOS 코드를 이용한 검증계산을 통해 요구하는 신뢰도 범위를 만족하는 '(Th, ^{233}U)O₂ 핵연료 사용 PWR' 경우로 대체하였으며 ORIGEN2의 연속주입율(Continuous Feed Rates)와 연속재처리율(Continuous Reprocess Rates)옵션을 결합하여 AMBIDEXTER 정화공정모델을 구현하였다. 표. 2.에 ORIGEN2 모델링에 입력데이터로 사용한 주요 파라미터를 요약, 정리하였다.

논의한 바와 같이 AMBIDEXTER는 원자로 설계개념의 특성상 핵연료의 연소도로부터 노심구성 원소별 농도분포를 환산할 수 없다. 따라서 근사적 방법으로써 정화공정의 효율 및 용량에 따라 결정되는 평형농도분포가 기존개념의 연소도에서 계산되는 누적농도분포에 근사적으로 대응할 때 등가연소도라 정의하였다. 이와 같은 등가연소도 개념을 이용하면 HELIOS와 같은 기존의 핵설계용 코드를 활용하여 AMBIDEXTER 평형노심의 개념검증 계산의 신뢰도를 유지할 수 있다.

그림. 3은 정화회로에서 1 일당 처리, 제거되는 핵분열생성물질의 총량을 [노심장전량/일] 단위로 환산하여 시뮬레이션한 것으로써 대략적으로 정화회로의 시간상수가 0.1 [노심장전량/일]인 경우, 노내 핵분열생성물질의 포화밀도는 운전시작 후 약 70일이 경과한 후에 도달되며 대응하는 등가연소도는 650 [MWD/TeH.E.]로 환산할 수 있다. 이 때 연소로 감소하는 우라늄은 초기노심값과의

차이만큼 보충하고 생성된 프로탁티늄은 1.0 [노심장전량/일] 비율로 제거한다고 가정하였다. 유사하게 정화회로의 시간상수가 0.5 [노심장전량/일]일 때 대응하는 등가연소도가 125 MWD/TeH.E.이며 시간상수가 더 짧은 경우는 핵연료 내 잔유핵분열생성물질이 장전초기의 값과 거의 대등함을 알 수 있다.

그림. 4는 유효정화주기에 대한 노내 포화 핵분열생성물질 잔유량을 시뮬레이션한 결과로써 1~4군의 핵종에 대해 그 제거율을 0.1~100 [노심장전량/일]로 증가시키면서 노내 평형상태를 이루게 되는 연소도(그림 .3 참조)에 해당하는 핵분열생성물질량을 도시하였다. 핵분열생성물질의 상대적인 비교를 위해 PWR은 33000MWD/ton의 연료주기를 갖는 3영역의 원자로로써 그 BOC(Beginning of Cycle, 11000MWD/ton), MOC(Middle of Cycle, 16500MWD/ton), EOC(End of Cycle, 22000MWD/ton)에서의 제 1~4군 해당하는 핵분열 생성물질의 총량을 계산하였으며 정화주기를 0.1 [노심장전량/일]로 할 때, 노내 잔유하는 핵분열생성물질의 양은 PWR의 BOC보다 약 1/10, 1.0 [노심장전량/일]로 할 때는 약 1/100로 나타난다.

핵분열생성물질의 노내 잔유량이 원자로의 핵적 자활성에 미치는 영향은 결국 거시적 중성자흡수단면적으로 나타난다. 그림. 5와 그림. 6은 각각 핵종군별로 연소도에 따른 거시적 중성자흡수단면적 변화를 계산함에 있어 정화공정을 고려하지 않은 경우와 정화공정을 군별로 구별하여 고려한 경우를 비교하기 위해 수록하였다. 여기서 제 1군 및 제 2군은 AMBIDEXTER 설계개념상 가능할 것으로 예상되는 제거시간상수, 0.1 [노심장전량/초]로 모사하였으며, 그림에 의하면 제 4군의 제거시간상수는 1.0 [노심장전량/일], 제 3군은 0.08 [노심장전량/일]로 공정의 규모를 달리할 때 두 군의 중성자 흡수 단면적이 대등한 수준으로 유지됨을 알 수 있다. 공정의 제거시간상수는 곧 정화설비의 용량 및 성능을 나타내며, 그 선택은 경제적측면과 직접 연관되는 바, 중성자의 효율적이용 관점에서 제 3군 제거설비는 제 4군의 경우에 비해 0.1배 정도의 성능을 낼 수 있도록 건설하는 것이 효율적이라는 것을 알 수 있다.

5. 결론

Th/²³³U 용융염핵주기를 이용하는 AMBIDEXTER 원자로에서 정화공정을 통해 노내 핵분열생성물질의 평형농도를 감소시키므로 안전성 및 중성자의 경제성향상을 추구할 수 있다. 본 연구에서는 핵분열생성물질을 화학적특성별로 4군으로 분류하고 정화공정의 시간상수에 따른 등가연소도를 결정하였고 이 개념을 이용하여 기존의 연소도개념을 이용하는 핵설계코드인 AMBIDEXTER 평형노심에 대한 계산을 수행할 수 있다. 정화회로 시간상수가 0.1 [노심장전량/일]인 경우 약 70일에서 노내 핵분열생성물질이 평형포화상태에 도달, 등가연소도는 650 [MWD/TeH.E.]로 환산되며 이 때의 핵분열생성물질의 농도는 PWR의 BOC의 약 1/10수준으로 나타난다. 또한 이러한 온라인 정화공정설계시에 고려해야할 공정별 용량산정을 위해 핵종군별 정화의 핵적자활성 요건에 미치는 영향을 잔유핵분열생성물질의 거시적흡수단면적으로 평가하였는데 제 3군의 거시적 중성자흡수단면적은 제 4군에 비해 약 1/10수준으로 나타났으며 이는 제 3군 정화설비는 제 4군에 비해 1/10수준이 되어야함을 나타낸다.

6. 참고문헌

- 1) A. G. Croff, "A User's Manual for The ORIGEN2 Computer Code", Oak Ridge National Laboratory, 1980
- 2) L. E. McNeese, "Engineering Development Studies for Molten-Salt Breeder Reactor Processing NO. 1", Oak Ridge National Laboratory, 1970

- 3) A. M. Perry, "Physics Program for Molten-Salt Breeder Reactors", Oak Ridge National Laboratory, 1967
- 4) Molten-Salt Reactor Program Staff, "Conceptual Design Study of A Single-Fluid Molten-Salt Breeder Reactor", Oak Ridge National Laboratory, 1971

파라메터	값
- 열출력	250 [MWth]
- 원자로 형상	원주형
- 노심 유효직경	270 [cm]
- 노심 유효길이	250 [cm]
- 노심격자 형상	정육각주(면대면 거리, 14 cm)
- 감속재 재료	흑연(Graphite)
- 격자내 용융염 체적율	0.30±0.10
- 핵연료용융염성분비(Mole %)	
LiF	71.70±0.05
BeF ₂	16.0
ThF ₄	12.0
UF ₄	0.30±0.05
- 핵연료용융염 밀도	3.3093 [g/cc]
- 핵연료용융염 열용량	1.34 [W · sec/g · °C]
- 노심입구 용융염 온도	621 [°C]
- 노심출구 용융염 온도	704 [°C]
- 노심내 용융염 유량	6.525E+5 [cc/sec]
- 용융염 침투출력밀도	500 [W/cc]

표. 1 250MWth급 AMBIDEXTER 원자로의 개략사양

파라메터	값
- 핵연료용융염성분	
²³² Th	975507 [g/TeH.E]
²³³ U	24493 [g/TeH.E]
¹⁹ F	1017991 [g/TeH.E]
⁷ Li	175876 [g/TeH.E]
⁹ Be	50462 [g/TeH.E]
- 증원소비출력	92.9 [MW/TeH.E]
- 프로타티늄 제거율	1.0 [노심장전량/일]
- ²³³ U 주입율	104 [g/TeH.E]
- 정화공정 시간상수	0.1~100 [노심장전량/일]

표. 2 주요 ORIGEN2 입력데이터

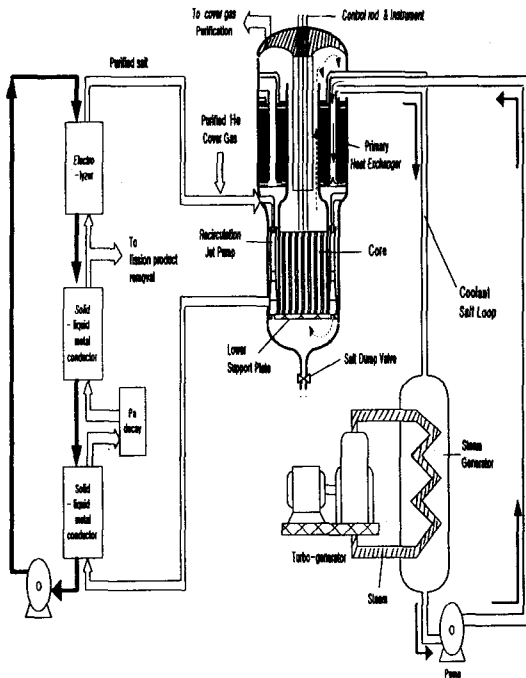


그림. 1 원자로 계통도

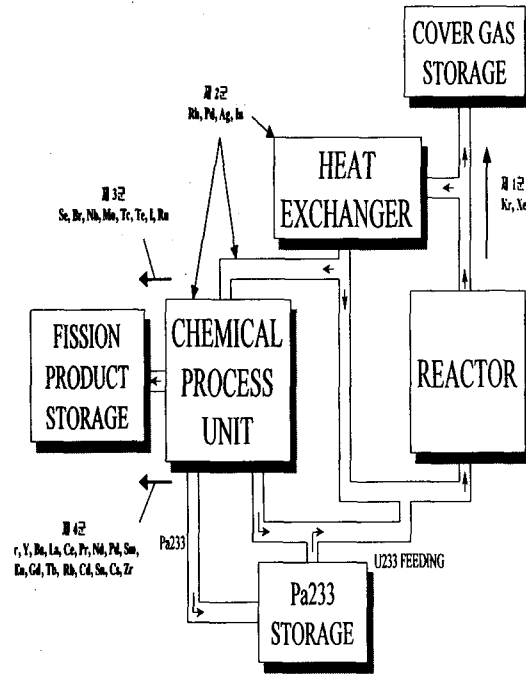


그림. 2 정화공정 개념도

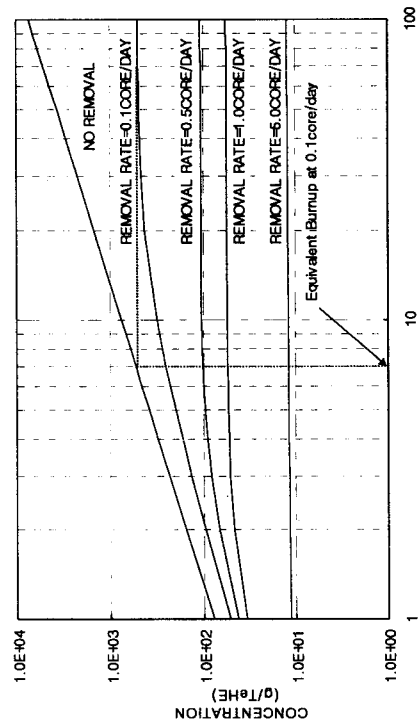


그림. 3 포화 핵분열생성물질량에 대응하는 등가연소도

BURNUP(dsv, *92.9MWD/TeHE)

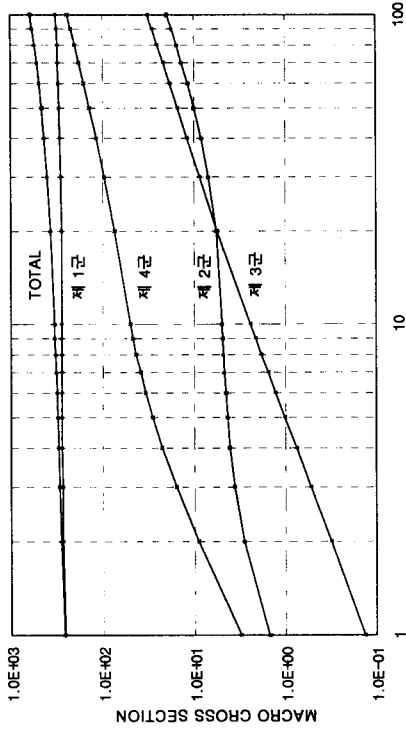


그림. 5 정화공정이 없는 경우 연소도에 따른 각 군의 중성자 흡수단면적

BURNUP(dsv, *92.9MWD/TeHE)

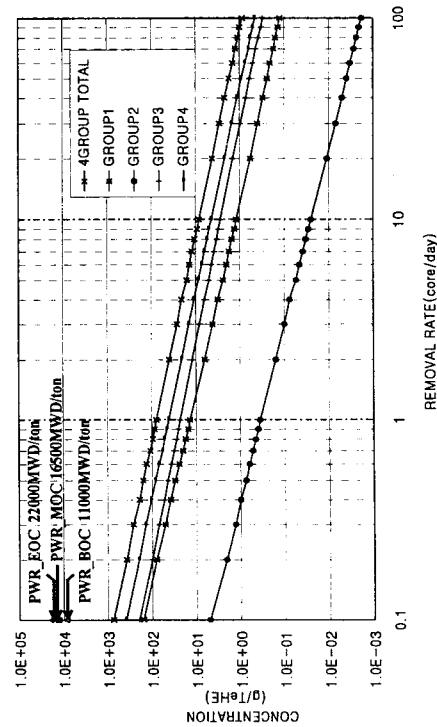


그림. 4 유효정화주기에 대한 노내 포화 핵분열생성물질 잔유량

REMOVAL RATE(core/day)

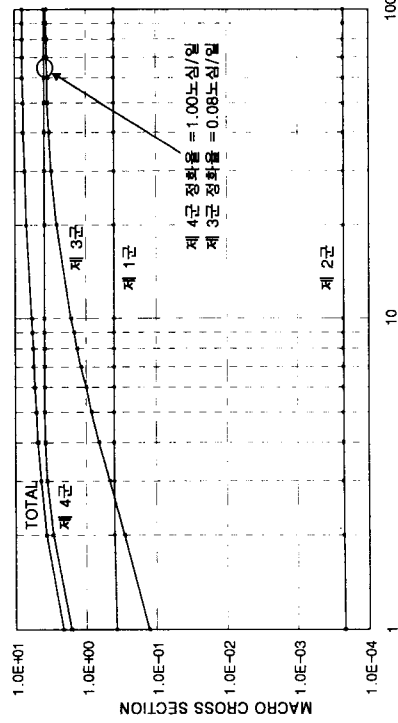


그림. 6 정화공정이 있는 경우 연소도에 따른 각 군의 중성자 흡수단면적

BURNUP(dsv, *92.9MWD/TeHE)