

재순환 토륨핵연료 특성에 대한 검토

A Review on the Nuclear Characteristics of the Recycled Thorium Fuel

주형국, 정형국, 노재만, 조진영, 손동성

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

플루토늄의 소모기능을 유지하면서, 토륨핵연료의 근본적인 장점인 핵연료자원의 이용률을 제고하는 방안으로서, 사용후 토륨핵연료를 재처리하지 않고 재가공하여 ^{233}U 을 다시 사용하는 방안
에 대한 가능성을 핵적인 측면에서 검토하였다. 사용후 토륨핵연료를 재순환할 경우 토륨핵연료
에 필요한 seed 물질로서 추가되는 플루토늄의 양을 2.5 w/o로 하여도, 7.5 w/o의 플루토늄이 필
요한 원래의 토륨핵연료와 같은 노심의 반응도를 유지하여 노심의 주기길이를 거의 같게 하였다.
따라서 사용후 토륨핵연료를 재순환하여 존재하는 ^{233}U 을 활용하는 것이 우선은 핵연료 자원의 이
용률 제고 측면에서 유리한 것으로 보이며, 이때 플루토늄의 소모특성도 그대로 유지되는 것으로
나타났다. 따라서 앞으로 수행될 본격적인 연구에는 토륨핵연료 재순환하는 과정의 여러 가지 핵
종의 처리 등에 대해 좀더 자세히 취급할 예정이며, 우라늄을 토륨핵연료의 seed 물질로 사용하는
경우에 대해서도 타당성 및 경제성 등을 분석할 예정이다.

Abstract

The recycling of thorium fuel was reviewed in the view point of maximizing the utilization of fuel
resources as well as consuming the plutonium. The recycling option of thorium fuel adopted in this
study was refabrication instead of reprocessing. The addition of 2.5w/o plutonium content to recycled
spent thorium fuel can produce the same nuclear energy as the fresh thorium fuel containing 7.5w/o of
plutonium. Therefore reuse of ^{233}U in spent thorium fuel has an advantage in the sense of utilization
fuel resources, and still has the capability of plutonium consumption. The effect of the existence of
various nuclides, including the fission products, on the neutronic characteristics will be studied further.
A new option, which employs uranium as seed material in the recycling of spent thorium fuel, will
also be studied including the cost assessment.

1. 서론

토륨핵연료 주기는 ^{232}Th 원소의 중성자 흡수변환으로 생성되는 핵분열 동위 원소인 ^{233}U 의 핵분열 에너지를 이용하는 주기 개념이다. 이때 토륨원소의 역할은, 마치 우라늄핵연료에서 fertile인 ^{238}U 원소가 fissile인 ^{239}Pu 원소로 변환되는 것과 같이, 중성자를 흡수하여 fissile 원소인 ^{233}U 로 변환되어 지속적인 핵분열 물질의 공급원 역할을 한다. 토륨연료 주기에 사용되는 핵연료에는 breeding 물질로 사용되는 토륨 외에 seed물질인 fissile 원소가 필요하다. 이는 자연계에 존재하는 유일한 토륨 핵종인 ^{232}Th 는 자체적으로는 중성자 연쇄반응을 지속시키는 능력이 없기 때문이다.

토륨핵연료는 자연에 존재하는 토륨자원이 우라늄자원 보다 풍부하고, 용융온도가 높고, 물질의 안정성, 내화성 내방사성 등이 뛰어나며, 경수로에서도 증식이 가능하다는 장점 때문에 여러나라에서 일찍부터 개발하여 왔다[1]. 그러나 토륨핵연료의 큰 장점인 증식성은 사용후 토륨핵연료를 재처리하여 fissile인 ^{233}U 을 분리하여 다시 사용하여야 가능한데 이는 핵확산금지 개념에서 벗어나기 때문에 대부분의 나라에서 토륨핵연료의 실질적인 개발이 1970년대에 중지되었다. 그러나 최근에는 장수명 핵종의 생성이 적어 보다 환경 친화적이고 분리된 플루토늄을 소모할 수 있다는 점이 부각되어 IAEA를 비롯한 몇 나라에서 토륨핵연료에 대한 연구가 다시 수행되고 있다[2].

그러나 토륨핵연료의 본질적인 장점인 핵연료자원의 이용률 제고 측면에서는 Radkowsky 토륨핵연료개발이 거의 유일하다[3]. 물론 우리나라도 전 세계적인 핵환경에서 벗어날 수 있는 입장은 아니지만 우라늄자원이 부족한 점을 고려해볼 때 핵연료자원의 이용률을 향상시키는 방안도 그 의미가 크다 하겠다. 따라서 본 논문에서는 플루토늄의 소모기능을 유지하면서, 핵연료자원의 이용률을 제고하는 방안으로서, 사용후 토륨핵연료를 재처리하지 않고 재가공하여 ^{233}U 을 다시 사용하는 방안에 대한 타당성을 핵적인 측면에서 검토하였다.

2. 재순환 토륨핵연료 조성

이전 연구에서 사용되었던 토륨핵연료에서 seed물질의 함량은 4w/o로 농축된 우라늄핵연료와 주기길이를 같게하는 조건으로부터 $(\text{Th}+\text{Pu})\text{O}_2$ 핵연료에서 PuO_2 의 함량은 7.5 w/o, 나머지 92.5 w/o는 ThO_2 인 핵연료로 결정되었다[4]. 이 토륨핵연료는 노내에서 인출될 때 평균 40 GWd/tHM (HM: heavy metal)의 연소도를 갖는 것으로 분석되었으며, 이 연소도에서 사용후 토륨핵연료에는 약 3.4 w/o의 fissile 원소가 포함되어 있는 것으로 분석되었다. 이 사용후 토륨핵연료에 새로 첨가되는 플루토늄의 함량을 달리하고 이에 대한 집합체 계산 결과 연소도에 따른 반응도 변화는 그림 1과 같다. 그림 1에서 첨가되는 플루토늄의 함량이 4.0 w/o인 경우 전 연소도에 걸쳐 재순환한 토륨핵연료의 반응도가 원래의 토륨핵연료 보다 크다는 것을 보여주고 있다. 따라서 첨가될 플루토늄의 함량을 2.5 w/o로 낮추었으며, 이 경우 반응도 변화는 원래의 토륨핵연료와 거의 유사한 것으로 나타났다. 따라서 본 연구에서 이용된 재순환 토륨핵연료에 첨가되는 플루토늄 함량은 2.5

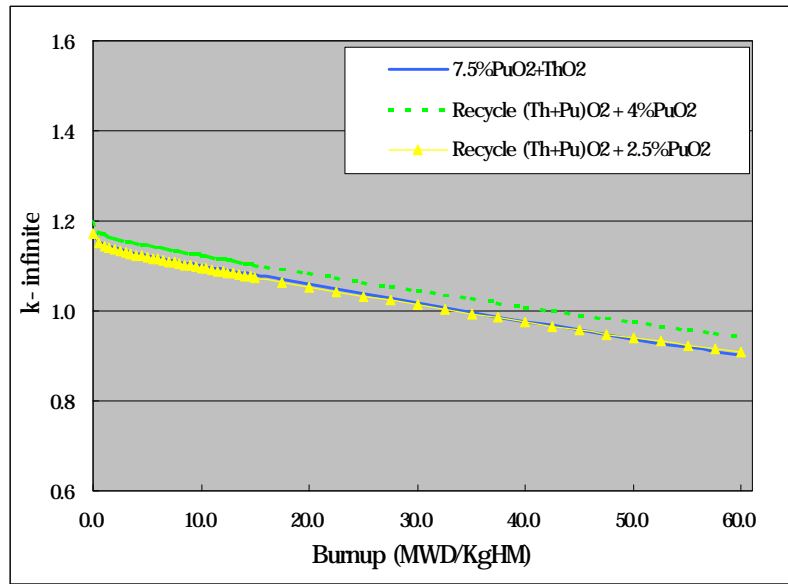


그림 1. 토륨핵연료의 연소도별 무한증배계수 변화

w/o로 결정하였으며, 이는 원래 토륨핵연료의 플루토늄 함량인 7.5 w/o 보다 1/3로 줄어든 수준이다. 재순환 토륨핵연료를 비롯한 토륨핵연료에서의 동위원소의 조성은 표1과 같다. 물론 사용 후핵연료에는 표1의 원소이외에도 핵분열 생성물 등을 비롯한 여러 가지 원소들이 존재하지만, 금번의 연구에서는 이들의 양이 적기 때문에 반응도에 미치는 영향이 적다고 판단하여 무시하였다.

표1. 토륨 핵연료집합체의 원소량 변화 (단위: Kg)

핵연료 원소	신 (Th+Pu)O ₂ 핵연료		재순환 (Th+Pu)O ₂ 핵연료
	연소전	연소후	연소전
²³² Th	399.40	390.04	396.76
²³³ U	0.00	5.74	5.83
²³⁴ U	0.00	0.50	0.51
²³⁵ U	0.00	0.07	0.07
²³⁶ U	0.00	0.02	0.02
²³⁸ Pu	0.58	0.59	0.79
²³⁹ Pu	19.14	4.52	10.97
²⁴⁰ Pu	7.49	5.64	8.22
²⁴¹ Pu	3.99	3.79	5.18
²⁴² Pu	1.32	2.20	2.67
²⁴¹ Am	0.00	0.29	0.30
²⁴² Am	0.00	0.01	0.01
²⁴³ Am	0.00	0.44	0.44
²⁴⁴ Cm	0.00	0.23	0.23

2. 토륨핵연료 가상 노심 구성 및 분석

토륨핵연료가 장전되는 가상적인 노심의 구성은 국내의 주종인 900MWe 가압경수로를 참고로 하였다. 이전에 수행한 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.

표2는 본 토륨핵연료 노심분석에서의 핵연료 관리전략의 요약을 나타내고 있다. 원래의 토륨핵연료 노심에서는 PuO_2 의 함량은 7.5 w/o, 나머지 92.5 w/o는 ThO_2 인 핵연료집합체를 매주기마다 64개씩 새로 장전하였으며, 출력침두치를 완화하기 위해서 12 및 20개의 핵연료집합체에는 4개 또는 8개의 가돌리니아봉을 사용하였다. 재순환 토륨핵연료는 연소도가 약 40 GWD/tHM인 사용후 토륨핵연료에서의 원소 조성에 무게비율로 2.5 w/o의 새로운 플루토늄이 첨가되는 것으로 하였으며, 이를 매주기마다 64개씩 새로 장전하였다. 이 재순환 토륨핵연료에는 재순환된 ^{233}U 가 약 1.35 w/o 포함되어 있으며, 플루토늄 원소는 재순환된 것과 새로 첨가된 것을 합쳐 fissile로 약 3.74 w/o 포함되어 있다. 재순환 토륨노심에서도 출력분포의 조절을 위하여 가돌리니아봉을 사용하였다. 원래의 토륨핵연료나 재순환 토륨핵연료에서 첨가되는 플루토늄 원소들의 조성비는 가압경수로 사용후핵연료의 전형적인 조성비인 ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu 의 무게비가 각각 1.8, 59.0, 23.0, 12.2, 4.0로 가정하였다. 또한 가돌리니아봉에는 Gd_2O_3 가 4.0 w/o 포함되어 있으며, 나머지는 ^{235}U 의 농축도가 1.8 w/o인 UO_2 로 하였다. 토륨핵연료 집합체내에서의 지역별로 플루토늄의 함량을 달리하는 개념은, 본 연구에서의 토륨핵연료 노심 전체가 $(\text{Th}+\text{Pu})\text{O}_2$ 핵연료만으로 장전되는 것을 가정하였기 때문에 적용하지 않았다.

표2. 평형주기 핵연료관리 요약

Core Characteristics	Fuel Cycle	(Th+Pu) O_2 Core	Recycled (Th+Pu) O_2 Core
Number of FA in a Core		157	157
Number of Feed FA			
- without Gadolinia		32	32
- with 4 Gadolinia		12	12
- with 8 Gadolinia		20	20
Pu-total Content in Fuel (w/o)		7.5	6.44
Pu-fissile Content in Fuel (w/o)		5.34	3.74
U-233 Content in Fuel (w/o)		-	1.35
Equilibrium Cycle Length (EFPD)		401	398

토륨핵연료 및 토륨 노심의 특성을 분석하기 위한 노심해석 체계는, 핵연료집합체 균정수 생산 코드로서 토륨핵종에 대한 라이브러리 및 연소사슬이 구비된 HELIOS를 사용하였으며[5], 노심 분석 코드로는 ^{232}Th , ^{233}Pa , ^{233}U 및 ^{234}U 의 연소사슬이 추가된 MASTER를 이용하였다[6].

4. 재순환 토륨 핵연료 및 노심 특성

노심 반응도 특성 : 재순환 토륨핵연료가 원래의 토륨핵연료와의 차이점은 플루토늄의 조성비의 차이와 ^{233}U 원소가 초기부터 존재한다는 것이다. 이들 차이에 의한 노심의 핵특성의 변화를 파악하기 위하여 가연성 독물질인 가돌리니아의 반응도가, 붕산농도, 감속재온도계수, 핵연료온도계수, 붕산가 및 제어봉가 등 노심반응도 인자 들을 계산하였다. 이들에 대한 요약이 표3에 수록되어 있는데 이 표에서 보듯이 대부분의 노심 특성이 거의 유사한 것으로 나타났다. 가돌리니아의 반응도라도 이 논문에는 수록되지 않았지만 거의 같은 것으로 나타났다.

플루토늄 동위원소 변화량 : 핵연료가 노심에서 연소되기 전후의 플루토늄 원소의 변화가 표4에 나타나 있는데, 재순환 토륨핵연료의 총 플루토늄의 소모율은 원래의 토륨핵연료의 48.8%보다 약간 낮은 45.5%로 나타났으며, 플루토늄의 소모량은 초기의 장전되는 플루토늄이 적고, 초기의 fissile 플루토늄 조성비가 이유로 원래의 토륨핵연료의 약 80% 수준인 것으로 분석되었다. 그러나 전반적으로 토륨핵연료를 재순환 하더라도 플루토늄의 소모특성은 그대로 유지하고 있다.그리고 재순환 토륨핵연료 내의 fissile 플루토늄의 존재비는 총 플루토늄의 약 40% 수준으로 핵비확산 성격이 강한 것으로 나타났다.

표3. 평형주기 노심에서의 핵특성

Core Characteristics	Fuel Cycle	(Th+Pu)O ₂ Core	Recycled (Th+Pu)O ₂ Core
Boron Concentration (ppm)			
To control at HZP, ARO, (k=1.0)		3259	3127
To control at HZP, ARI, (k=1.0)		1405	1315
To control at HFP, ARO, (k=1.0)			
0 EFPD, No Xenon		2609	2533
6 EFPD, Eq. Xenon		1992	1924
Moderator Temperature Coefficient at HFP (pcm/°C)			
BOC/ EOC		-36.2/-67.2	-28.4/-62.8
Isothermal Temperature Coefficient at HZP at BOC (pcm/°C)		-13.6	-8.5
Fuel Temperature Coefficient at HFP (pcm/°C)			
BOC/ EOC		-3.74/-3.87	-3.69/-3.84
Boron Worth at HFP (pcm/ppm)			
BOC/ EOC		-3.05/-4.18	-3.05/-4.33
Total Control Rod Worth at HFP (pcm)			
BOC/EOC		6618/7491	6424/6655
ϕ_1/ϕ_2 Ratio (Fast to Thermal Flux)			
BOC/MOC/EOC		19.6/17.1/14.5	18.7/16.1/13.5

표4. 각 핵연료별 플루토늄 원소량 변화

		(Th+Pu)O ₂ Core		Recycled (Th+Pu)O ₂ Core	
		연소전	연소후	연소전	연소후
Mass (kg)	²³⁸ Pu	36.76	31.97	49.87	54.83
	²³⁹ Pu	1210.06	285.99	688.67	150.61
	²⁴⁰ Pu	473.69	356.42	518.87	306.88
	²⁴¹ Pu	252.32	240.04	327.46	226.31
	²⁴² Pu	83.07	139.06	169.08	219.85
	total	2055.90	1053.48	1753.95	958.48
Pu소모율		48.8		45.4	
fissile 원소비율 (%)		71.2	49.9	57.9	39.3

전환특성 : 표5는 원래의 토륨핵연료 및 재순환 토륨핵연료에서의 배치별 fertile 및 fissile 원소량의 변화를 나타내고 있다. 연소전의 fissile 양들을 비교해 보면 재순환 토륨핵연료가 원래의 토륨핵연료보다 적은 양의 fissile로도 노심의 반응도를 유지하고 있다. 그 이유는 재순환 토륨핵연료에는 ²³³U의 양이 많이 존재하는데 ²³³U의 핵특성은 다른 fissile인 ²³⁵U, ²³⁹Pu, ²⁴¹Pu 보다 더 좋은 핵분열 특성을 갖고 있기 때문이다. ²³³U의 핵분열 단면적이 다른 fissile 원소들에 비해 작지만, 중성자 포획단면적도 훨씬 작기 때문에 중성자 흡수당 핵분열 비율은 오히려 다른 fissile 핵종보다 크다. 따라서 반응도에 미치는 중요한 인자 중에 하나인 fuel utilization factor(핵연료에 하나의 중성자가 흡수될 때마다 핵분열에 의해 새로이 생성되는 중성자수), η 는 0.025 eV에서 ²³³U가 2.300으로 ²³⁵U의 2.077, ²³⁹Pu의 2.109, ²⁴¹Pu의 2.151 보다 큰 값을 갖고 있기 때문이다.

총전환비를 (핵연료 연소중 fertile 원소의 중성자 흡수에 의해 생겨난 fissile의 총원소량)/(핵연료 연소기간 동안 소모된 fissile의 총원소량) 으로 정의하고 이를 계산해보면 재순환 토륨핵연료가

표5. 각 핵연료별 fertile 및 fissile 원소량 변화 (batch size = 64FA)

Isotope		Mass(kg)	(Th+Pu)O ₂ Core		Recycled (Th+Pu)O ₂ Core	
			연소전	연소후	연소전	연소후
fissile	²³³ U	0.00	362.55	367.22	511.69	
	²³⁵ U	5.90	9.12	10.72	24.81	
	²³⁹ Pu	1210.06	285.99	688.67	150.61	
	²⁴¹ Pu	252.32	240.04	327.46	226.31	
	sum	1468.28	919.10	1394.07	913.42	
fertile	²³² Th	25259.06	24668.28	25095.04	24515.47	
	²³⁸ U	321.55	312.74	321.49	312.91	
	²⁴⁰ Pu	473.69	356.42	518.87	306.88	
	²³⁹ Pu → ²⁴⁰ Pu	(+323.42)	(+188.32)			
sum		26377.72	25337.44	26123.72	25135.26	
Integral Conversion Ratio			0.65		0.67	

0.67로 원래의 토륨핵연료의 0.65 보다 약간 큰 것으로 나타났다. 여기서 핵연료가 연소되는 중에 fertile 원소의 중성자 흡수에 의해 생겨난 fissile의 총원소량은 초기의 fertile 원소의 양과 연소후의 fertile 원소의 차이에, ^{239}Pu 의 소모량 중 35%가 ^{240}Pu 로 전환되는 것을 더하여 계산하였으며, 핵연료 연소 동안 소모된 총 fissile 원소량은 초기의 fissile 원소량과 연소후의 양의 차이에 핵연료가 연소중에 fertile로부터 생성된 fissile 모두가 소모된 것으로 보고 이를 더하여 계산하였다.

^{233}U 존재량 : 초기의 토륨핵연료에는 비록 ^{233}U 가 포함되어 있지 않더라도 핵연료가 연소되면서 ^{232}Th 원소의 중성자 흡수에 의해 ^{233}U 가 생겨나게 된다. 원래의 토륨핵연료와 재순환 토륨핵연료에서의 연소도에 따른 ^{233}U 원소의 존재량이 그림 2에 나타나있다. 이 그림에서 초기의 점선은 원래의 토륨핵연료에서의 ^{233}U 원소의 존재량인데 노심에서 연소후 인출되는 평균 연소도인 40 GWD/tHM 까지도 그 값이 계속 증가하는 것을 보여주고 있다. 연소도 40 GWD/tHM 이후의 실선은 재순환 토륨핵연료의 경우인데 연소도의 시작점이 0GWD/tHM이 아닌 40 GWD/tHM로 한 것은 재순환을 고려하여 원래 토륨핵연료의 연소도와 연속성을 유지하기 위함이다. 이 그림에서 보듯이 원래의 토륨핵연료에서는 계속 증가하던 ^{233}U 이 토륨핵연료를 재순환한 1세대 내지는 2세대에 이르러서야 포화 상태에 이르는 것을 나타내고 있는데, ^{233}U 을 최대한으로 이용하려는 토륨핵연료의 전환 특성은 결국은 연소도를 증가시켜 노내에서 연소기간을 늘리거나, ^{233}U 을 재순환하여 이용해야 함을 시사하고 있다.

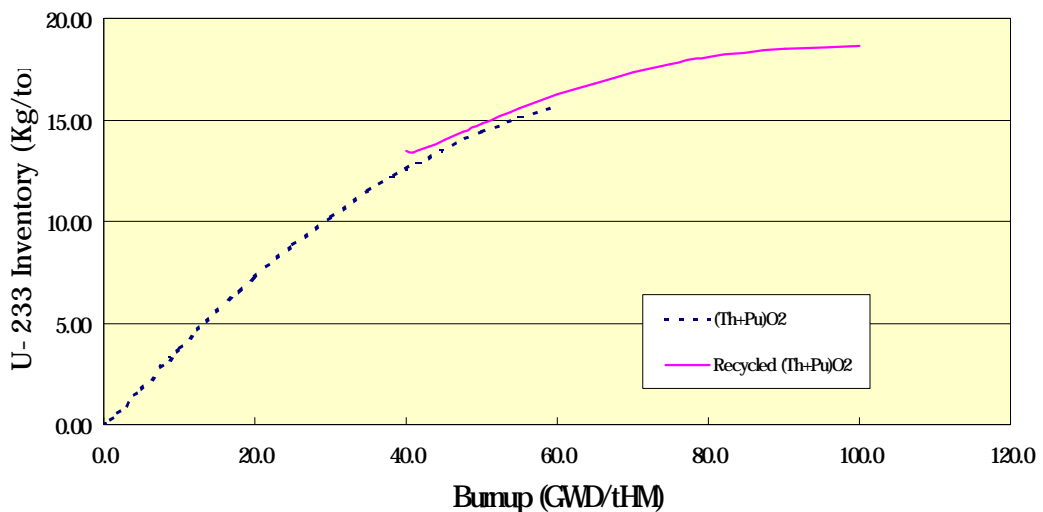


그림 2. 토륨핵연료에서의 연소도별 ^{233}U 의 존재량 변화

5. 결론

플루토늄의 소모기능을 유지하면서, 핵연료자원의 이용률용 제고하는 방안으로서, 사용후 토륨 핵연료를 재처리하지 않고 재가공하여 ^{233}U 을 다시 사용하는 방안에 대한 가능성을 핵적인 측면에서 검토하였다.

사용후 토륨핵연료를 재순환할 경우 토륨핵연료에 필요한 seed 물질로서 추가되는 플루토늄의 양을 2.5 w/o로 하여도, 7.5 w/o의 플루토늄이 필요한 원래의 토륨핵연료와 같은 노심의 반응도를 유지하여 노심의 주기길이를 거의 같게 하였다. 따라서 사용후 토륨핵연료를 재순환하여 존재하는 ^{233}U 을 활용하는 것이 우선은 핵연료 자원의 이용률 제고 측면에서 유리한 것으로 보이며, 이때 플루토늄의 소모특성도 그대로 유지되는 것으로 나타났다.

본 논문은 사용후 토륨핵연료를 재순환하는 연구에 대한 사전 작업으로서 토륨핵연료 재순환하는 과정의 여러 가지 핵종의 처리 등을 심도있게 취급하지 않았지만, 앞으로 수행될 본격적인 연구에는 이들에 대해 경우에 좀더 자세히 취급할 예정이며, 우라늄을 토륨핵연료의 seed 물질로 사용하는 경우에 대해서도 타당성 및 경제성 등을 분석할 예정이다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 사업의 일환으로 수행되었음.

참고 문헌

1. M.Lung, **A Present Review of The Thorium Nuclear Fuel Cycles**, Nuclear Science and Technology, European Commission, 1997.
2. V.Arkipov, H.J.Rutten, and A. Galperin, "Progress Summary of the IAEA Coordinated Research Program on the Potential of Thorium-based Fuel Cycles to Constrain Pu and to Reduce Long-lived Waste Toxicity," ICENES'98, The 9th International Conference on Emerging Nuclear Energy Systems, Tel-Aviv, Israel, June 28 - July 2, 1998.
3. A.Galperin, A.Radkowsky and M.Todosow, "A Competitive Thorium Fuel Cycle for Pressurized Water Reactors," ICENES'98, The 9th International Conference on Emerging Nuclear Energy Systems, Tel-Aviv, Israel, June 28 - July 2, 1998.
4. 주형국 외, "900MWe 가압경수로에 대한 토륨핵연료 및 혼합핵연료 노심 핵특성 분석," '98춘계학술발표회논문집, 한국원자력학회, 1998.
5. R.Stammler et al., "User's Manual for HELIOS," Scandpower, 1994.
6. C.H.Lee et al., "Verification of Extended Nuclide Chain of MASTER with CASMO-3 and HELIOS," KAERI/TR-947/98, January 1998.