*'2000 춘계학술발표회 논문집*
*한국원자력학회*

# 경수로용 $(Th,U)O_2$ 핵연료의 연소 특성 분석

# Irradiation Characteristics of $(Th,U)O_2$ Fuel in LWR

이찬복, 김대호, 주형국, 김종채, 김영민, 양용식, 방제건

한국원자력연구소
대전시 유성구 사서함 105 호, 305-600

## 요 약

농축우라늄를 사용한 $(Th,U)O_2$ 핵연료가 경수로에서 조사될 때의 핵적 연소 특성 및 노내 거동을 평가하였다. $(Th,U)O_2$ 핵연료에서 Th-232 로부터 증식되는 U-233 은 30 MWD/kgU 이상에서 주요 핵분열핵종의 역할을 하였다. $ThO_2$ 은 $UO_2$ 보다 열전도도 및 용융 온도가 높고, $(Th,U)O_2$ 핵연료에서는 U-238 의 농도가 낮기 때문에 소결체 가장자리에서 국부적으로 연소도가 증가하는 현상이 $UO_2$ 핵연료 보다 상당히 약한 것으로 나타났다. 따라서 Rim effects 를 포함하여 고연소도에서의 전반적인 노내 성능은 $(Th,U)O_2$ 핵연료가 $UO_2$ 핵연료 보다는 좋을 것으로 예상된다.

## ABSTRACTS

Neutronic depletion characteristics and in-pile behavior of $(Th,U)O_2$ fuel mixed with U-235-enriched uranium during the irradiation in LWR were evaluated. It was found that U-233 bred from Th-232 would become a primary fissionable nuclide at the burnup higher than 30 MWD/kgU in $(Th,O)_2$ fuel. Since the thermal conductivity and melting temperature of $ThO_2$ are higher than $UO_2$, and local burnup enhancement near the periphery of the $(Th,U)O_2$ pellet is much smaller than $UO_2$ due to lower concentration of U-238, irradiation performance including Rim effects of $(Th,U)O_2$ fuel at high burnup is expected to be better than $UO_2$ fuel.

## 1. 개 요

토륨 원소를 핵연료로 사용하는 것은 원자로의 개발 초기부터 U-235 농축의 대안으로 고려되었으며, 1960 년대 농축우라늄과의 혼합물 형태로 경수로에서 조사되었다. 그 당시의 핵연료 방출연소도는 25 MWD/kgU 로써 현재 사용되고 있는 경수로핵연료의 방출연소도의 1/2 수준이었다. 그러나 토륨 원소 자체 보다는 아래와 같이 Th-232 의 중성자 흡수로 생성된 U-233 이 실제로 핵분열

을 일으키기 때문에 핵연료의 재처리가 필요한 것으로 인식되었다.

$$^{232}Th(n,\gamma)\xrightarrow[\sigma_{thermal}=7.37b]{}{}^{233}Th\xrightarrow[\beta^-(t_{1/2}=22.3\text{min})]{}{}^{233}Pa\xrightarrow[\beta^-(t_{1/2}=27\,days)]{}{}^{233}U\xrightarrow[\sigma_{thermalfission}=531b]{}fission$$

따라서 재처리가 필요 없는 보다 단순한 U-235 농축 핵연료가 그 후 현재까지 경수로의 핵연료로 주로 사용되어왔다. 그러나 그 동안 토륨의 매장량이 많은 인도와 브라질 등과 캐나다, 일본, 미국 등의 나라에서 토륨 핵연료에 대한 연구는 꾸준히 진행되어 왔으며, 인도에서는 $(Th,U)O_2$ 핵연료를 CANDU 형 중수로에 상용으로 사용하고 있다.

한편 최근에는 경수로용 핵연료집합체의 부품 성능의 지속적인 개선으로 인해 핵연료를 70 MWD/kgU-rod avg. 이상까지 연소가 가능한 것으로 확인됨에 따라, $(Th,U)O_2$ 핵연료를 노내에서 연소시키면서, 수명 초반에는 Th-232 원소로부터 U-233 을 증식하고 수명 후반에는 증식된 U-233 을 직접 연소시키는, 핵연료 재처리가 필요 없는 One-through 핵연료가 개발되고 있다. RTF(Radkowsky Thorium Fuel) 핵연료 주기는 출력을 내는 Seed 라고 하는 농축우라늄 핵연료와 Blanket 이라고하는 $(Th,U)O_2$ 핵연료를 동시에 노심에 장전하는 것이다[1]. RTF 핵연료 주기는 핵연료 재처리과정이 없이 토륨 원소를 증식을 통해 원자로에서 직접 연소시키는 것이다. 다른 한 예는 1999 년부터 미국에서 NERI(Nuclear Energy Research Initiative) 과제로 연구중인 핵연료로써, 고농축도의 우라늄(19.5 w/o U-235)과 토륨을 혼합한 $(Th,U)O_2$ 핵연료를 노내에서 직접 연소시키 것이다. 핵연료 수명 초기에는 U-235 의 핵분열로 출력을 내고, 핵연료 수명 후기에는 증식된 U-233 이 출력을 낸다. 예비적인 노심해석 결과, $ThO_2$-(25-35%)$UO_2$ 핵연료는 최대연소도 70 – 100 MWD/kgU, 주기길이 24-36 개월까지 연소가 가능한 것으로 보고되고 있다.[2] 이는 RTF 핵연료주기와는 달리 토륨을 Blanket 이 아닌 핵연료 자체로써 직접 연소시키는 보다 단순한 개념이다.

본 논문에서는 $(Th,U)O_2$ 핵연료의 가압 경수로에서의 연소 특성을 $UO_2$ 핵연료와 비교하여 연소도에 따른 핵분열가능 핵종의 변화를 분석하였으며, $(Th,U)O_2$ 핵연료가 고연소도까지 연소될 경우의 노내 거동을 평가하였다.

## 2. 핵연료의 핵적 연소 특성

경수로용 $(Th,U)O_2$ 핵연료는 $ThO_2$ 에 LEU(Low Enriched Uranium)의 최대치인 20 w/o U-235 이하의 고농축도의 $UO_2$ 를 20-40 % 정도 혼합하여 제조한다. 그리하여 $(Th,U)O_2$ 핵연료의 U-235 의 유효농축도는 4-8 % 정도가 된다. 그러나 $UO_2$ 핵연료와 비교하여 U-238 의 원자 밀도가 작기 때문에 Pu 동위원소의 생성량은 작다. 그림 1 및 2 는 $ThO_2$-25%$UO_2$ 핵연료의 연소도에 따른 각 핵분열가능 핵종 및 이들의 핵분열밀도의 변화를 HELIOS[3] 핵설계 코드로 계산한 결과를 보여준다. Th-232 의 증식 효과는 연소도 30 MWD/kgU 이상에서부터 나타나고 있으며, 연소도 40 MWD/kgU 이상

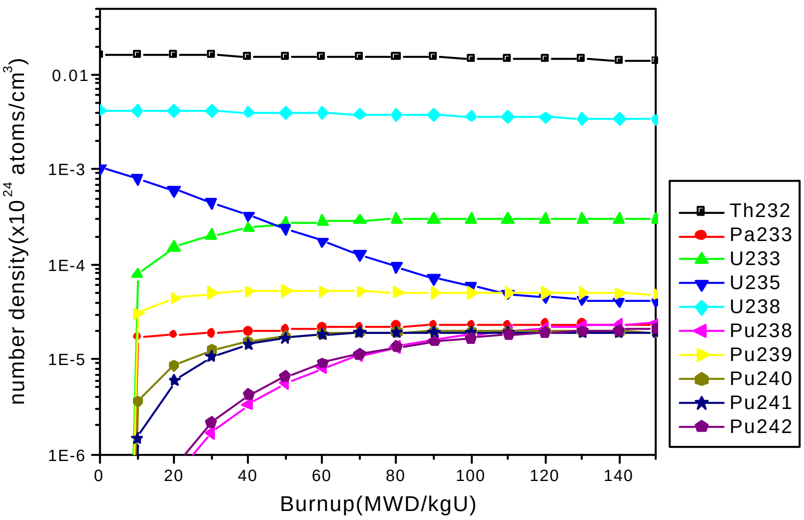


**그림 1** $ThO_2$-25% $UO_2$(19.5 w/o U-235) **핵연료의 연소도에 따른 핵종밀도 변화**

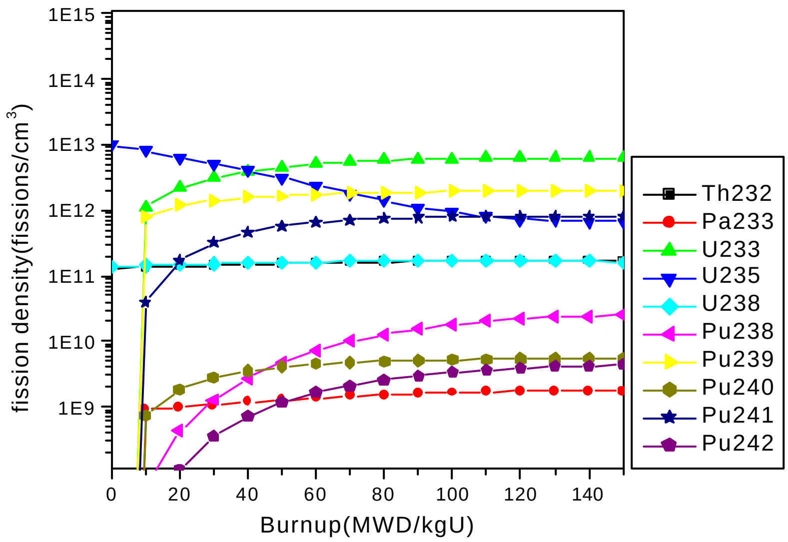


**그림 2** $ThO_2$-25% $UO_2$(19.5 w/o U-235) **핵연료의 연소도에 따른 핵분열밀도 변화**

에서는 Th-232로부터 증식된 U-233에 의한 핵분열이 U-235 보다 크게 됨을 알 수 있다. 그림 3은 $ThO_2$-25 %$UO_2$(19.5 w/o U-235) 핵연료와 이것과 유효 U-235 농도가 동일한 $UO_2$(4.875 w/o U-235) 핵연료의 핵분열가능 핵종의 변화를 비교하고 있다. $ThO_2$-25 %$UO_2$ 핵연료는 $UO_2$ 핵연료와 비교하여 Pu-239 및 Pu-241의 생성량이 휠씬 작음을 알 수 있고, U-235로부터 변환되고 방사능이 높아서 취급하기 어려운 Pu-238의 분율이 상대적으로 큼을 알 수 있다. 따라서 $ThO_2$-25%$UO_2$ 핵연료는 Pu-239의 생성량이 매우 낮고, 방사능이 높아서 취급하기가 어려운 Pu-238의 분율이 높아서 핵확산저항성이 $UO_2$ 핵연료와 비교하여 크다고 할 수 있다.

## 3. 핵연료의 노내 거동 평가

$ThO_2$-$UO_2$ 핵연료는 70 MWD/kgU-rod avg. 이상까지 연소되기 때문에 고연소도에서의 성능 검증이 필요하다. 그림 4 및 5는 $(Th,U)O_2$ 소결체에서의 출력 및 연소도 분포를 보여준다. $(Th,U)O_2$ 핵연료에서 $UO_2$의 량이 15-35 %까지 변화해도 소결체 내부의 국부적인 출력 및 연소도 분포는 크게 변하지 않는 것으로 나타났다. 이는 $(Th,U)O_2$ 핵연료에서는 중성자 공명흡수를 통해 Pu-239로 변환되는 U-238의 농도가 $UO_2$와 비교하여 상대적으로 작아서, 소결체 가장자리에서의 국부적인 연소도 증가 현상이 매우 약하기 때문이다. 그림 6은 초기의 유효 U-235 농축도가 동일한 $ThO_2$-25%$UO_2$(19.5 w/o U-235)핵연료와 $UO_2$ (4.875 w/o U-235)핵연료의 연소도 분포를 비교하는데, $ThO_2$-$UO_2$ 핵연료는 $UO_2$ 핵연료보다 소결체 가장자리에서의 국부적인 연소도 증가 현상이 현저하게 작음을 알 수 있다. $ThO_2$-25%$UO_2$ 핵연료의 출력 및 연소도 분포는 아래의 모델식으로 나타낼 수 있는데, 그림 7 및 8은 출력($F_p$) 및 연소도($F_{BU}$) 분포에 대한 모델식의 정확성을 보여준다.

$$
\begin{aligned}
F_p(r,BU) = & -6.6837 + 0.267\,BU - 4.2542E\text{-}6\,BU^2 + (3.2032 - 0.0655\,BU + 2.8715e\text{-}4\,BU^2)\,r \\
& - (16.422 + 0.0368\,BU + 1.4236E\text{-}3\,BU^2)\,r^2 + (25.0378 + 0.073\,BU + 2.4776E\text{-}3\,BU^2)\,r^3 \\
& - (22.1305 + 0.192\,BU + 1.4009E\text{-}3\,BU^2)\,r^4 + (11.5112 + 0.2137\,BU)\exp(-3.8935(1-r)) \\
& + (6.5873 - 0.2481\,BU)\exp(0.0977(1-r)^2)
\end{aligned}
$$

$$
\begin{aligned}
F_{BU}(r,BU) = & -16.8254 + 0.6736\,BU - 9.7069E\text{-}6\,BU^2 - (2.5298 + 0.2733\,BU - 2.4955e\text{-}4\,BU^2)\,r \\
& - (30.5319 + 0.0656\,BU + 1.0935E\text{-}3\,BU^2)\,r^2 + (23.4042 - 0.0579\,BU + 1.713E\text{-}3\,BU^2)\,r^3 \\
& - (32.4645 + 0.239\,BU + 8.8522E\text{-}4\,BU^2)\,r^4 + (47.2434 + 0.6145\,BU)\exp(-2.6379(1-r)) \\
& + (12.7968 - 0.646\,BU)\exp(0.1058(1-r)^2)
\end{aligned}
$$

여기서, r = normalized radius, BU = 소결체 평균연소도(MWD/kgU).

$UO_2$ 소결체에서 저온인 소결체 가장자리에서의 국부연소도가 70 MWD/kgU 이상이 되면, $UO_2$의 결정립이 세분화되고 핵분열기체 기포가 형성되는 미세구조상의 변화가 일어나는 Rim effects 가

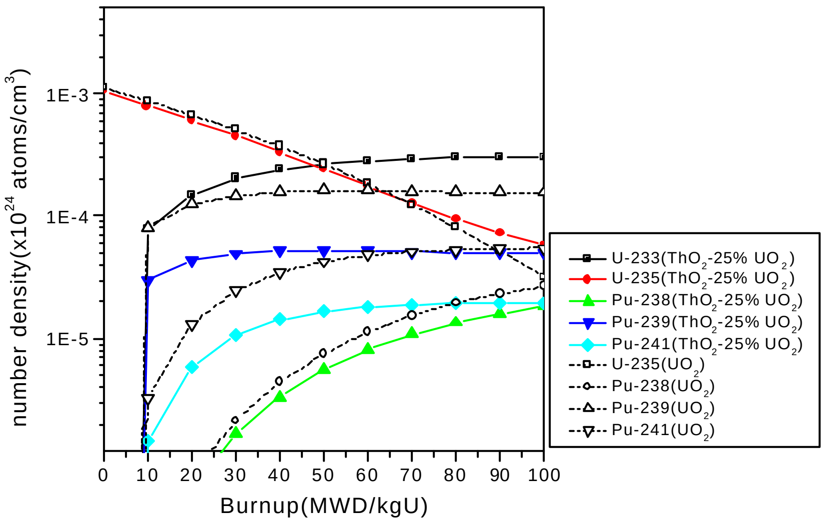


**그림 3** $ThO_2$ - 25% $UO_2$(19.5 w/o U-235) **와** $UO_2$(4.895 w/o) **핵연료의 연소도에 따른 핵종 변화**

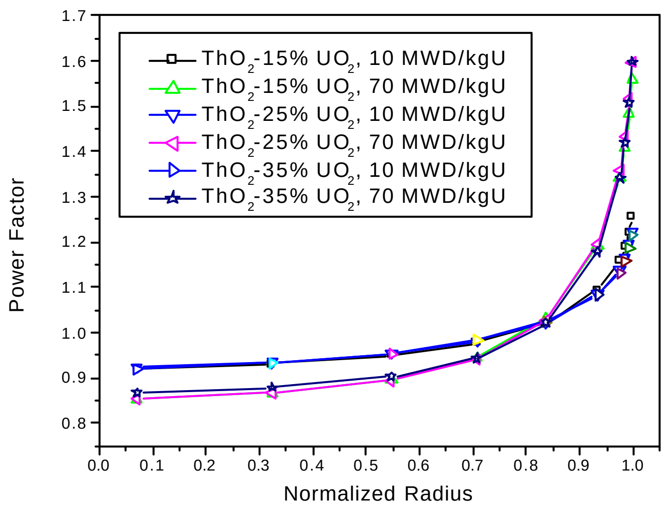


**그림 4** $ThO_2$-$UO_2$(19.5 w/o U-235) **핵연료의 출력 분포**

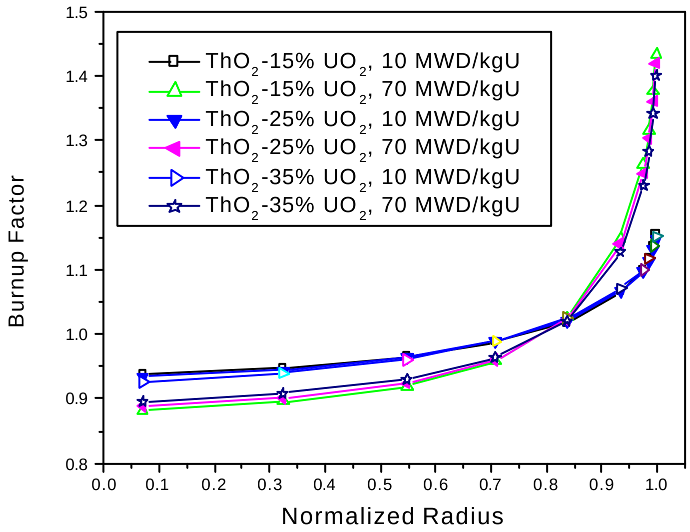


그림 5 $ThO_2$-$UO_2$(19.5 w/o U-235) 핵연료의 연소도 분포

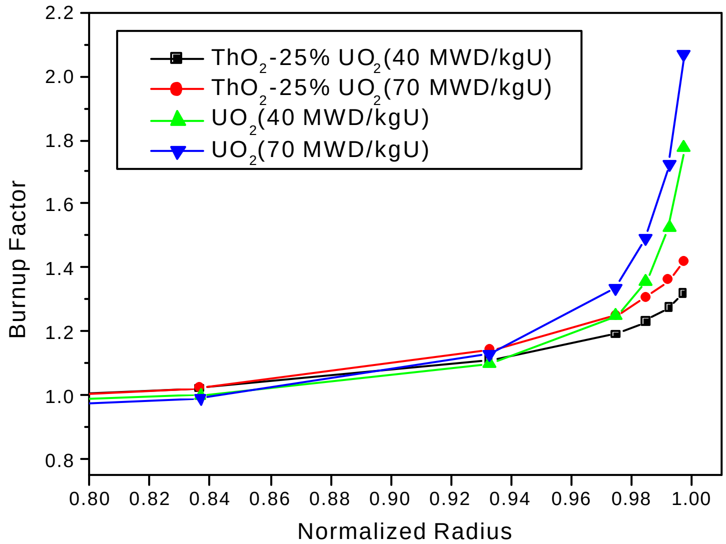


그림 6 $ThO_2$- 25% $UO_2$(19.5 w/o U-235) 와 $UO_2$(4.895 w/o U-235) 핵연료의 연소도 분포 변화

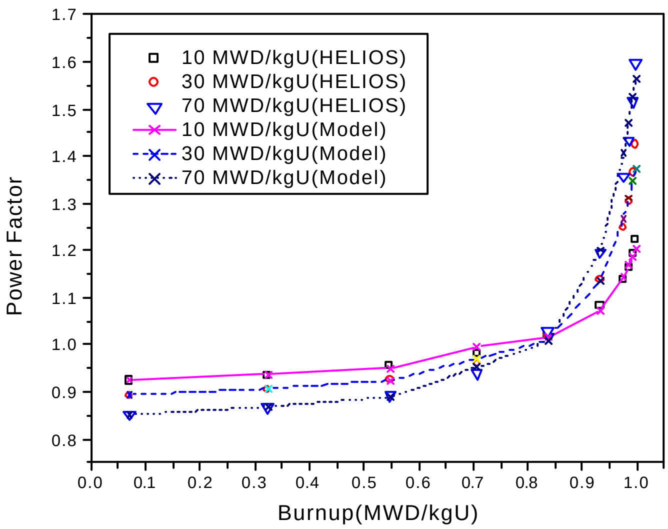


**그림 7** $ThO_2$ - 25% $UO_2$(19.5 w/o U-235) **핵연료 출력분포 모델 평가**

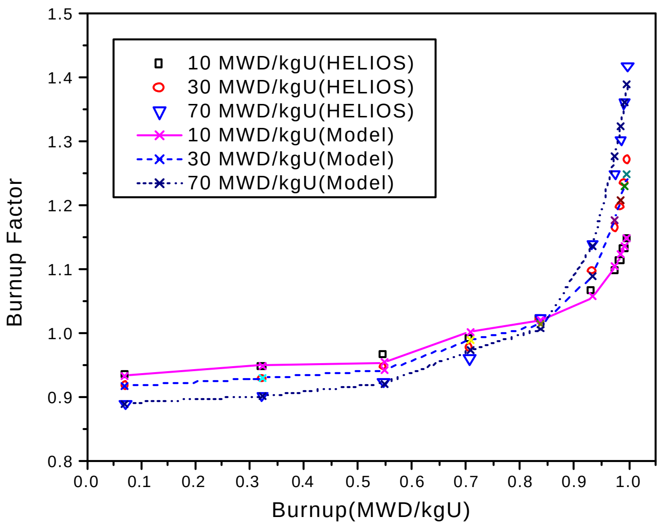


**그림 8** $ThO_2$ - 25% $UO_2$(19.5 w/o U-235) **핵연료 연소도분포 모델 평가**

발생한다. 따라서 소결체 가장자리에서의 국부적인 연소도 증가 현상이 $UO_2$ 핵연료 보다 현저하게 약한 $(Th,U)O_2$ 핵연료에서 Rim effects 가 발생하는 핵연료의 평균연소도는 $UO_2$ 보다 높을 것이다.

이러한 Rim effects 의 생성 및 진행 과정을 분석해본 결과, 소결체 내부의 고온에서는 핵분열기체의 방출로 인해 Rim 미세구조의 생성이 저지될 수 있는 것으로 밝혀졌다[4]. 따라서 $ThO_2$-$UO_2$ 핵연료의 70 MWD/kgU 이상의 고연소도에서의 Rim 미세구조의 생성은 소결체 외곽의 제한된 영역에서만 형성될 것으로 예상된다. 또한 Rim 영역에서 핵분열기체는 대부분 외부로 방출되지 않고 기포상태로 소결체 내에 존재하는 것으로 밝혀졌으며[5,6], Rim 영역에서 핵분열기체 기포의 생성으로 인한 열전도도 감소 효과는 Rim 영역에서의 $UO_2$ Matrix 로부터의 핵분열기체 불순물의 방출로 인한 열전도도 증가 효과에 의해 상당히 보상되는 것으로 나타났다[7,8]. 따라서 고연소도에서 Rim 영역의 생성으로 인해 핵분열기체의 방출이 증가하고 및 열전도도가 감소하는 정도는 기존의 예상 보다 작을 것으로 판단된다.

$ThO_2$ 핵연료의 열전도도는 그림 9 와 같이 $UO_2$ 핵연료 보다 크며, $ThO_2$ 와 $UO_2$ 가 혼합된 $(Th,U)O_2$ 핵연료의 열전도도, K( w/mK)는 아래의 식과 같이 나타낼 수 있다[9].

$$K = 1/(A + BT),$$
$$A = 1/(A_0+A_1M),$$
$$B = B_0 + B_1M + B_2M_2.$$

여기서, $A_0$ = 46.947, $B_0$ = 1.597E-4, $A_1$ = -112.072, $B_1$ = 6.736E-4, $B_2$ = -2.156E-3, M = Mole fraction of $UO_2$., T = 온도(K).

1000 K 에서 $ThO_2$ 의 열전도도는 5.52 w/mK 로써 $UO_2$ 의 3.85 w/mK 보다 43 % 정도 크며, 여기서 고려되고 있는 $ThO_2$-25%$UO_2$ 의 열전도도는 4.06 w/mK 로써 $UO_2$ 보다 5 % 정도 큰 것으로 예측된다. 핵연료 소결체의 열전도도가 5 % 정도 증가하면 경수로의 대표적인 핵연료봉 출력이력 조건에서 핵연료의 중심 온도는 약 3% 감소하고, 핵분열기체의 방출은 핵분열기체의 확산계수가 온도에 지수함수에 비례하기 때문에 10 % 이상 감소하는 것으로 나타났다. 또한 비조사된 $ThO_2$ 의 용융 온도는 3367 °C 로써, $UO_2$ 의 2847 °C 보다 높다[9]. 따라서 $ThO_2$ 핵연료는 열전도도 및 용융 온도가 $UO_2$ 보다 높기 때문에, $(Th,U)O_2$ 핵연료의 노내에서의 연소 성능은 $UO_2$ 보다 좋을 것으로 예상된다. 한편, $UO_2$ 핵연료는 연소가 진행됨에 따라 U-235 의 감소로 인해 출력이 자연적으로 감소하는 반면에, $(Th,U)O_2$ 핵연료는 수명 후반에도 U-233 의 증식으로 인해 출력의 감소율이 낮을 것으로 예상되기 때문에 피복관의 부식 성능 관점에서는 우호적인 출력이력이 아니다. 그러나 피복관의 내부식성이 지속적으로 향상되고 있는 것을 고려하면, $(Th,U)O_2$ 핵연료는 70 – 100 MWD/kgU 의 연소도까지 연소될 수 있을 것으로 예상된다.

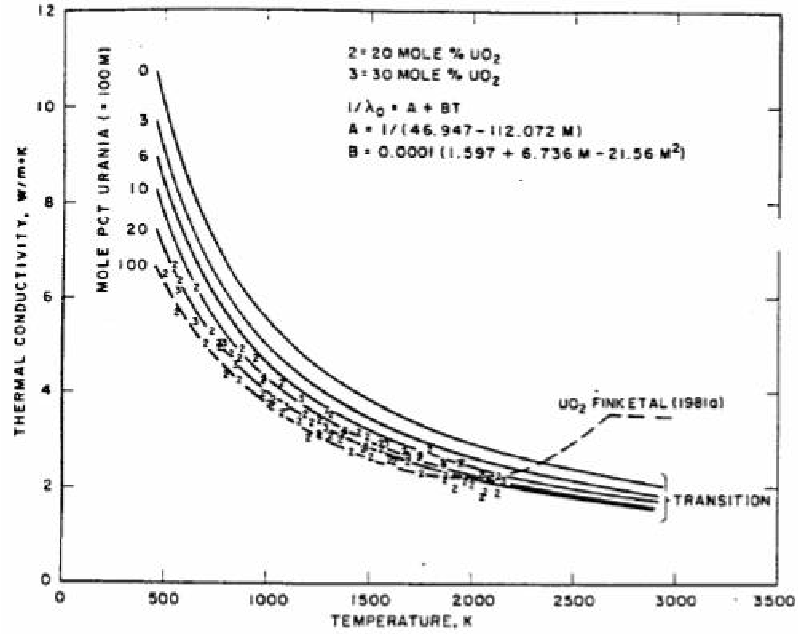


**그림** 9 $ThO_2$-(10-30%)$UO_2$ **핵연료의 열전도도**[9]

## 4. 결 론

**농축우라늄과 토륨을 혼합한** $(Th,U)O_2$ **핵연료가 경수로에서 연소될 때의 우라늄 및 토륨 동위원소들의 핵분열가능 핵종들의 변화를** $UO_2$ **핵연료와의 비교를 통해 분석하였으며**, Th-232 **로부터 증식되는** U-233 **가 연소도** 30 MWD/kgU **이상에서 주요 핵분열핵종의 역할을 하는 것을 확인하였다**. $ThO_2$ **은** $UO_2$ **보다 열전도도 및 용융 온도가 높아서**, $(Th,U)O_2$ **핵연료는** $UO_2$ **핵연료 보다 우수한 노내 성능을 보이며**, $(Th,U)O_2$ **핵연료에서는** U-238 **의 농도가 낮기 때문에 소결체 가장자리에서 국부적으로 연소도가 증가하는 현상이** $UO_2$ **핵연료 보다 상당히 약한 것으로 나타났다**. **따라서** Rim effects **를 포함하여 고연소도에서의 전반적인 노내 성능은** $(Th,U)O_2$ **핵연료가** $UO_2$ **핵연료 보다 좋을 것으로 예상된다**.

## 후 기

**본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발 사업의 일환으로 수행되었습니다**.

## 참고문헌

(1) A. Galperin and A. Radkowsky, A Competitive Thorium Fuel Cycle for Pressurized Water Reactors”, Proc.

of the Ninth Intnl. Conf. On Emerg. Nuc. Ener. Systems(ECENES 198), Israel, 1998.

(2) J.S. Herring and P.E. MacDonald, "Mixed Thorium-Uranium Dioxide Fuel for High Burnup in Light Water Reactors", Proc. of Future Nuclear System Global-99, Wyoming, 1999.

(3) "HELIOS Program Description", Scanpower, 1994.

(4) C.B. Lee and Y.H Jung, "An Attempt to Explain the high burnup structure formation mechanism in $UO_2$ fuel", J. of Nucl. Mater. 279, p.207, 2000.

(5) J. Spino, et al., "Detailed characterization of the rim microstructure in PWR fuels in the burnup range 40-67 GWd/tM", J. Nucl. Mater. 231(1996)179.

(6) R. Manzel and C.T. Walker, "High burnup fuel microstructure and its effect on fuel performance", Intnl. Top. Meeting on LWR Fuel Performance, Utah, April, 2000.

(7) C.B. Lee, et al., "Development of Irradiated $UO_2$ Thermal Conductivity Model", IAEA TCM on Nuclear Fuel Behavior Modeling at High Burnup and its Experimental Support, Windermere, UK, June, 2000.

(8) M. Kinoshita, et al., "High burnup rim project (II) irradiation and examination to investigate rim structured fuel", Intnl. Top. Meeting on LWR Fuel Performance, Utah, April, 2000.

(9) J. Belle and R.M. Berman, Thorium Dioxide : Properties and Nuclear Applications, DOE/NE-0060, USDOE, 1984.