

한국에너지공학회(1999년도)  
춘계 학술발표회 논문집 P107~112

## 가변 재처리 시간상수를 고려한 용융염핵연료 원자로 평형핵종농도분석 코드 개발

원성희, 조재국, 임현진, 김태규, 윤정선, 오세기  
아주대학교

### Development of Steady State Isotope Concentration Analysis Code for Molten Salt Reactor Using Variable Reprocess Time Constant

SungHee Won, JaeKook Cho, HyunJin Lim, TaeKyu Kim, JungSun Yoon, SeKee Oh  
Department of Energy Studies, Ajou University  
Suwon, Kyunggi-Do, Korea

#### I. 서론

AMBIDEXTER(Advanced Molten-salt Break-even Inherently-safe Dual-mission Experimental & Test Reactor) 핵연료계통은 Th/<sup>233</sup>U 불화용융염으로 구성되어 있으며, 핵분열생성물질의 운전중 연속재처리가 가능하여 운전상태에 따라 원자로내 연료물질의 농도분포를 정확하게 계산하는 것은 원자로 설계에 있어 주요 기술이다.

그러나 원자력에너지 이용역사와 함께 크고 작은 필요성에 따라 끊임없이 개발되어온 핵종농도분석 코드는 주로 기존 발전로 핵연료의 기본이 되는 우라늄/플루토늄 고체혼합산화물 핵연료물질을 중심으로 개발되었기 때문에 원자로의 중성자에너지 스펙트럼이 제한된 노형에만 유효하고, 연소 중에는 핵연료로부터 핵종 분리 및 주입이 불가능한 고정핵주기에 대해서만 계산이 가능하다. 이러한 이유로 AMBIDEXTER 설계개발을 위해 액체핵연료 원자로의 일차계통내 정상상태 핵종농도를 계산할 수 있는 코드개발의 필요성이 대두되었다.

개발된 SAMS(Steady State Isotope Concentration Analysis Code for Molten Salt Reactors using Variable Reprocess Time Constants)코드의 기본 핵자료는 2차원 노심격자 설계코드인 HELIOS와 핵종생성·소멸 코드인 ORIGEN2를 이용하여 표준 AMBIDEXTER의 중성자 스펙트럼을 계산하고 1군 유효단면적 라이브러리를 개편하였다.

핵종농도분포 해석을 위한 모델의 핵종별 반응유형은 핵분열, 방사천이, 중성자흡수를 비롯하여 연소중 주입·재처리와 휘발성 원소 및 금속속용기 표면 흡착 원소분리와 같이 방사화학적 특성과 시스템 내 이동특성을 동시에 취급할 수 있도록 포함하였다. 따라서 개발되는 SAMS 코드는 액체핵연료주기를 갖는 원자로 및 열교환기 설계뿐 아니라 정화공정 처리용량 최적화 계산 및 더 나아가 각 종의 방사성폐기물 처리, 처분, 저장시설을 설계 및 해석할 수 있는 다양한 목적에 사용될 수 있다.

## 2. 정상상태 핵종농도 분석모델 설정

### 1차 계통 및 정화공정내 정상상태 물질균형 모델

그림 1과 같이 정상상태 1차계통내 용융염을 균질혼합물로 가정하고 불활성기체 및 불활성 금속은 일정한 정화시간으로 1차계통으로부터 제거되는 것으로 가정하면 핵종  $i$ 의 평균농도를 구하는 다음과 같은 물질균형식을 구성할 수 있다.

$$0 = \sum_j (Ve_{ij}\lambda_j + \phi V_{cf}f_{ij}\sigma_j + \phi V_{c'}y_{ij}\sigma_{fj})c_j + F_i - (\lambda_i V + \sigma_i \phi V_c + P_i)c_i \quad (1)$$

$P_i$  : 정화공정에서 분리되는 핵종  $i$ 의 제거율, cc/sec

$c_i$  : 핵종  $i$ 의 농도, mole/cc

$F_i$  : 핵종  $i$ 의 주입율, mole/sec

$V$  : 용융염 부피, cc

$V_c$  : 노심내 용융염 부피, cc

윗 식은 정상상태에서 직접주입, 핵분열, 방사붕괴, 중성자흡수에 의한 핵종  $i$ 의 생성율은 방사붕괴, 중성자흡수, 열교환기 표면흡착, 순환기포내로의 이동, 정화처리에 의한 핵종  $i$ 의 감소율과 같아야 한다는 것을 의미한다.

### $^{233}\text{U}$ 및 Th의 연속주입을 계산모델

원자료가 가동되어 출력을 내기 시작하면 핵분열성물질인  $^{233}\text{U}$ 와 핵원료물질인 Th는 주로 중성자흡수반응을 통하여 감소되며, 임계도 및 자활성유지를 위하여 운전중 지속적으로 공급해 주어야 한다. 초기 노심에 장전되는 Th의 농도는 정상상태에서 핵적 자활성을 만족하도록 설계된 값이므로 원자로의 운전시간과 관계없이 항상 일정하게 유지되는 것으로 가정하였다.

운전 초기에는  $^{233}\text{U}$ 만이 유일한 핵분열성물질로 장전되나 원자로 운전시간 경과에 따라 다른 핵분열성물질들이 노내에서 생성된다. Th/ $^{233}\text{U}$  핵연료주기에서는 근사적으로 정상상태에서  $^{233}\text{U}$ 과  $^{235}\text{U}$ 만을 핵분열성물질 생성분율을 갖는 핵분열성물질로 가정할 수 있다. 중성자속은 초기  $^{233}\text{U}$  장전량에 의한 값으로 정상상태에서도 유지된다고 가정하면, 초기 상태와 정상상태에서 같은 출력을 만족하는 제약조건으로부터 다음 식을 유도할 수 있다.

$$K_{23}\sigma_{23}^f X_{23} + K_{25}\sigma_{25}^f X_{25} = K_{23}\sigma_{23}^f X_{23\text{initial}} \quad (2)$$

$K_i$  :  $^{233}\text{U}$ 의 핵분열당 회수가능 에너지, MeV/fission

$X_{23\text{initial}}$  :  $^{233}\text{U}$ 의 초기 장전량, mole

### 중성자속 계산모델

정상상태 핵분열성물질의 농도는 초기 장전된 핵분열성물질의 핵분열에 의해 환산되는 출력을 일정하게 유지하도록 결정되므로, 정해진 출력에 따른 정상상태 중성자속을 다음과 같이 근사적으로 구할 수 있다.

$$\phi = \frac{P}{\sum_i X_i^f \sigma_i K_i} \quad (3)$$

### 3. SAMS 모델 적용

#### 등가연소도 계산 및 핵자료 산정

원자로의 중성자 스펙트럼을 계산하기 위하여는 대응되는 연소도가 결정되어야 하나 AMBIDEXTER는 원자로 설계개념의 특성상 핵연료의 연소도로부터 노심구성 원소별 농도 분포를 환산할 수 없다. 따라서 근사적 방법으로써 정화공정의 효율 및 용량에 따라 결정되는 평형농도분포가 기존개념의 연소도에서 계산되는 누적농도분포에 근사적으로 대응되는 등가연소도를 ORIGEN2 코드를 이용하여 계산하였다. 정화공정 시간상수가 0.1[노심잔유량/일]일 때 대응되는 등가연소도는 650[MWD/TeH.E.]으로 환산된다. 열출력 250MW<sub>th</sub> 표준 AMBIDEXTER 원자로 노심격자를 설계하고 계산된 등가연소도에서 중성자 스펙트럼 및 핵종별 일군 유효 중성자 흡수단면적을 도출하였다.

#### 핵종군별 연속제거율 가정

엔지니어링 규모의 실험을 통해 실증된 단일유동 MSBR 핵연료처리 공정들을 참조하여 핵분열생성물질을 유사한 화학적 특성을 갖는 몇 개의 그룹으로 설정, 관련계통 및 기기 내에서의 제거 시간상수를 표 1과 같이 설정하였다.

불활성기체 중에서 <sup>135</sup>Xe는 핵적 자활성 요건에 큰 영향을 미치는 독물질이므로 노내 잔유 시간 및 양을 최소화하는 설계가 필요하다. AMBIDEXTER 원자로계통의 압력조절을 위해 주입되는 헬륨기포가 Xe제거를 촉진하도록 설계되어 있어 Xe의 노내 잔유시간은 용융염핵연료의 노심 통과시간을 넘지 않을 것이다. 원자로 설계사양의 입·출구 온도차로부터 주어진 열출력을 만족하는 노내 용융염 유속은 약 6.77×10<sup>5</sup>[cc/sec]로, 노심내 용융염 체적을 고려하였을 때 노심 하단으로 유입된 연료용융염이 노심 상단으로 유출될 때까지 소요되는 시간은 7.39초로 계산된다. 노심을 떠난 연료용융염내 불활성기체 및 비용해성 기체원소들은 대부분 COVER GAS SYSTEM으로 분리될 것이므로 핵연료 용융염의 노심통과시간을 고려하여 보수적으로 정화주기를 10초로 가정하였다. 용융염과 혼합하여 이동하면서 열교환기, 배관, 정화계통등의 금속성 용기표면에 부착되어 제거되는 불활성금속군과 반불활성금속군은 각각 50초, 200일로 정화주기를 설정하였다. AMBIDEXTER의 방사선/물질 수송회로는 열교환기를 거친 용융염 용량의 약 10%를 정화공정으로 우회시킴으로 형성되는데 희토류원소군은 안정된 불화물 형태로써 진공증류공정을 거치고 할로겐군은 불화반응공정을 거치게 되며 모두 50일의 정화주기를 갖는 것으로 가정하였다.

### 4. AMBIDEXTER 시스템 해석

#### PWR과 노내 핵분열생성물질량 비교

불활성가스 및 불활성금속은 원자로 내부에서 제거되고, 온라인 정화공정에서는 핵분열생성물질을 연속적으로 정화하므로 원자로로부터 핵분열 생성물질 누설사고시 유출될 수 있는 방사성물질량은 기존 상용발전소와 비교하여 적은 양으로 유지될 것이다. 안전성 측면뿐만 아니라 핵분열생성물질의 노내 농도감소는 거시적 중성자 흡수단면적 감소로 이어지므로 중성자 경제성 향상의 효과를 얻을 수 있다. 유효정화주기에 따른 노내 핵분열생성물질량과

이에 따른 거시적 중성자 흡수단면적을 표준 AMBIDEXTER와 같은 열출력을 내며  $UO_2$  핵연료를 사용하는 PWR의 경우와 비교하였다.

상대적인 비교를 위해 PWR은 33,000MWD/ton의 연료주기를 갖는 BOC, MOC, EOC에서, AMBIDEXTER는 정화주기를 0.1~10.0[노심잔유량/일]로 변화시켜 각 정화주기에 대응하는 정상상태 핵종농도를 계산하였다. 그림 2에 정화공정의 시간상수에 따라 노내 잔유하는 핵분열생성물질량을, 그림 3에 거시적 중성자 흡수단면적을 PWR의 각 주기에서 구한 데이터와 비교하였다.

그림 3에서 정화주기를 0.1[노심잔유량/일]로 할 때, 노내 잔유하는 핵분열생성물질의 양은 PWR BOC의 약 1/56, 1.0[노심잔유량/일]로 할 때는 약 1/560로 나타난다. 계산에서 설정된 정화주기 0.1~10.0[노심잔유량/일]은 AMBIDEXTER 원자력 시스템에서 정화공정 설계옵션으로 가능한 범위로 고려되는 값으로 이 범위 안에서 노내 핵분열생성물질량은 정화주기가 증가함에 따라 선형으로 감소함을 알 수 있다.

그림 4에서 거시적 중성자 흡수단면적은 정화주기 0.1, 1.0에 대해 각각 PWR의 1/5.5, 1/12로 나타난다. 정화주기를 0.1[노심잔유량/일]에서 1.0[노심잔유량/일]까지 증가시키기에 따라 노내 거시적 중성자 흡수단면적 변화가 완만하게 나타난다. 정화공정의 시간상수는 공정용량과 효율로부터 결정되는데 정화주기 0.1~1.0 사이에서는 노내 거시적 중성자 흡수단면적 변화가 완만하므로 노내 중성자 경제성 측면 및 정화공정의 경제성 측면에서 0.1[노심잔유량/일]로 정화주기를 결정하는 것이 효율적임을 알 수 있다.

### 정상상태 주요핵종농도

AMBIDEXTER 원자력시스템의 임계도 및 전환율은 노심격자 설계를 통하여 최적화 될 수 있으나 정화공정의 시간상수에 따른 노내 핵분열생성물질의 농도는 열중성자 이용확률  $f$  값에 영향을 미치는 주요한 인자로 결국 유효중배계수에 영향을 주게 되며  $^{233}U$ 의 재생산을 위해  $^{232}Th$ 에 흡수되어야 할 잉여중성자수에 영향을 주게 된다. 그러므로 정화공정 설계는 노심격자 설계와 더불어 AMBIDEXTER의 설계요건 충족을 위한 주요 설계옵션으로 고려되어야 한다.

표준 AMBIDEXTER 정화공정 시간상수를 고려하여 계산된 주요 핵종들을 표 2에 나타내었다. 불활성기체군으로 1군 중성자 흡수단면적이 나머지 총 핵분열생성물질 합에 약 3.7배에 달하는  $^{135}Xe$ 는 원자로에서 유출된 용융염으로부터 빠른 시간내에 분리되므로 거시적 중성자 흡수단면적으로 계산된 분율은 전체 핵분열생성물질의  $1.28 \times 10^{-3}$ 배로 감소한다. 그러므로 액체핵연료 주기에서는 Xe의 빠른 제거로 인한 중성자 경제성향상을 추구할 수 있으며 액체핵연료가 열중식로가 가능한 주요 요인이다. AMBIDEXTER 원자력 시스템에서 거시적 중성자 흡수단면적이 가장 큰 핵종은 희토류원소군인  $^{149}Sm$ 으로써 Xe과는 달리 별도의 정화공정을 통하여 제거되므로 제거 시간상수가 길게 된다.  $^{149}Sm$ 의 1차 계통내 거시적 중성자 흡수단면적은 다른 모든 핵분열생성물질에 의한 영향 이상으로 나타난다.

핵종농도가 크게 나타나는 원소들은 활성금속군으로 일정량의 용융염 폐기로만 제거되는 것으로 가정한 Sr, Ba, Cs 등의 원소가 주종을 이루게 된다. 이는 제거 시간상수가 1차 계통내 핵종 생성·소멸에 주요 인자로 작용하기 때문이다.

### 정상상태 핵종 정화농도

표면적으로 환산되어 불활성가스의 제거율을 결정하는 노내주입 헬륨가스의 양과 불활성금속과 반불활성금속의 제거율을 결정하는 침니, 열교환기, 파이프 규모는 각각 1차 계통 설계시 원자로계통의 압력조절량과 연료용융염으로부터 냉각용융염으로 핵분열에 의해 발생한 열에너지를 전달하기 위한 열교환기 규모설계에 따라 결정되는 값이다. 그러므로 이들 화학

군 핵분열생성물질의 정화율은 원자로 설계시에 이미 결정되는 값으로 정화공정을 거치지 않고 연료용융염 흐름내에서 제거되므로 연료용융염의 10%를 우회시켜 정화공정내에서 분리되는 다른 화학군과는 정화개념상의 차이점이 있다. 별도의 정화공정을 필요로 하는 희토류원소군과 할로젠군 정화공정은 대상 핵종들의 정화시간상수와 농도로부터 정화공정의 규모 및 효율이 결정될 것이다.

가정된 정화시간 하에서 근사적으로 연료용융염 흐름내에 존재하게 되는 정화군 핵종들이 1차계통으로부터 추출되는 유량을 계산하여 표 3에 나타내었다. 표준 AMBIDEXTER의 정화공정 시간상수가 50일로 같게 설정되어 있으나 희토류원소군은 일일간 처리량이 할로젠군의 500배임을 알 수 있다. SAMS 코드에서는 이러한 정화공정으로 유입되는 핵종군의 유량을 제시할 수 있으므로 설정된 제거시간상수에 따른 정화공정 설계용량을 결정할 수 있다.

## 5. 결론 및 토의

액체핵연료 원자로계통내 연료용융염의 성분이 균일하게 분포한다고 가정하고 핵종의 생성율과 소멸율이 평형상태를 이룰 때, 핵종군별 정화상수에 따른 핵종농도분포를 계산할 수 있는 코드(SAMS)를 개발하였다. AMBIDEXTER 노심에서 FP의 변화율을 계산하는데 필요한 1군 반응단면적은 HELIOS 모델로부터 계산한 중성자스펙트럼의 가중치에 대해 유효단면적을 구하여 라이브러리 화하였다. 임계도 및 전환율을 일정하게 유지시키기 위해 원자로 계통에 온라인으로 공급되는  $^{232}\text{Th}$  및  $^{233}\text{U}$ 의 주입율과 노내 중성자속 계산은 핵종농도 계산보다 선행되어야 하므로,  $^{232}\text{Th}$ 의 주입율은 원자로의 초기 장전량을, 또한  $^{233}\text{U}$  주입율은 원자로의 임계도 요건을 만족하도록 결정되며, 중성자속밀도는 출력밀도에 대응하는 HELIOS 출력 값을 이용하였다.

계산 결과에 따르면 Xe영향은 고체핵연료 원자로에 비하면 무시할 수 있을 정도로 감소하고 노내 핵분열생성물질량 및 거시적 중성자 흡수단면적은 매우 낮은 수준으로 유지됨을 확인 할 수 있었다. 핵분열생성물질의 연속체거로 인한 노내 잔유핵분열생성물질 농도를 최대 연소도 33,000[MWD/ton]를 갖는 PWR의 BOC, MOC, EOC 경우와 비교하였으며, 비교결과 제거 시간상수를 0.1[노심잔유량/일]로 하였을 때 PWR BOC의 1/56의 핵분열생성물질이 노내 잔유하는 것으로 나타났다. 정화공정의 용량 및 효율은 효율적 처리용량을 고려한 전환율 요건 관점에서 정화 시간상수가 0.1[노심잔유량/일]이 되도록 설계하는 것이 효율적이라는 결과를 도출하였다.

향후 시간중속 모델을 보완하고 격자해석 코드와 연계하는 연구를 통해 정화공정의 동적 특성을 모사할 수 있도록 확장할 계획이다.

## 6. 감사문

본 연구는 98년도 과학기술부 원자력 기초연구사업으로 수행되고 있다.

## 7. 참고문헌

- [1] "핵적 자정·자활 능력을 갖춘 용융염 원자력 보일러 시스템의 개념 설계에 관한 연구", 과학기술부, 1997
- [2] A. G. Croff, "A User's Manual for The ORIGEN2 Computer Code", Oak Ridge National Laboratory, 1980
- [3] A. M. Perry, "Physics Program for Molten-Salt Breeder Reactors", Oak Ridge

National Laboratory, 1967

- [4] Brice Carnahan, H. A. Luther, James O. Wilkes, "Applied Numerical Methods", WILEY
- [5] C. W. Kee, L. E. McNeese "MRPP - Multiregion Processing Plant Code" , Oak Ridge National Laboratory, 1976
- [6] L. E. McNeese, "Engineering Development Studies for Molten-Salt Breeder Reactor Processing NO. 1", Oak Ridge National Laboratory, 1970
- [7] Molten-Salt Reactor Program Staff, "Conceptual Design Study of A Single-Fluid Molten-Salt Breeder Reactor", Oak Ridge National Laboratory, 1971

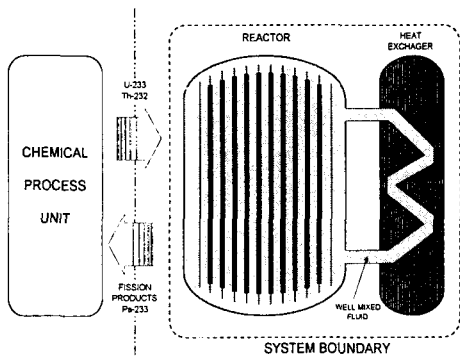


그림 1 모델 경계설정 및 핵연료 입출력 구조

화학군	제거 시간상수
불활성가스군	10 초
불활성금속군	50 초
반불활성금속군	200 일
희토류원소군	50 일
할로젠군	50 일
활성금속군	3000 일

표 1 화학군에 따른 제거율 설정

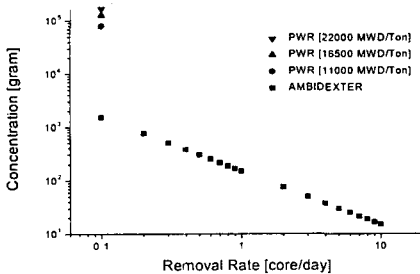


그림 2 유효정화주기에 대한 노내 포화 핵분열생성물질 잔유량

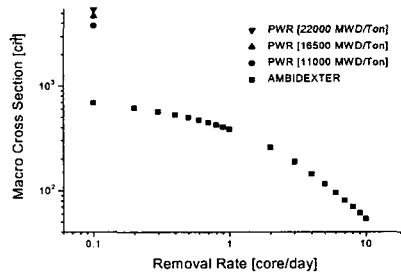


그림 3 유효정화주기에 대한 노내 포화 핵분열생성물질 거시적 중성자 흡수단면적

핵종	거시적 중성자 흡수단면적, cm <sup>1</sup>	핵종	농도, gram/cc
SM149	2.53E+02	SR 90	8.78E-04
PM147	3.23E+01	BA138	6.88E-04
⋮	⋮	CS137	3.81E-04
XE135	5.28E-01	ZR 93	1.43E-04

표 2 주요 핵종의 거시적 중성자 흡수단면적 과 농도

불활성가스군	불활성금속군	반불활성금속군
6.35E+01	9.51E+01	3.29E+01
희토류원소군	할로젠군	활성금속군
7.75E+01	1.60E-01	8.87E+00

표 3 정상상태 정화핵종 유량, gram/day