



KR9900113

KAERI/TR-1229/99

기 술 보 고 서

사용후핵연료 차세대관리 공정개발

Development of Advanced Spent
Fuel Management Process

사용후핵연료 차세대관리 공정계통분석

System Analysis of Advanced Spent
Fuel Management Process

'99. 3.

한 국 원 자 력 연 구 소

30 - 46

제 출 문

한국원자력연구소장 귀하

본 보고서를 “사용후핵연료 차세대관리 공정개발(“사용후핵연료 차세대
관리 공정계통분석”의 기술보고서로 제출합니다.

1999년 3월

과 제 명 : 사용후핵연료 차세대관리
공정개발

주 저 자 : 노 성 기

공 저 자 : 강 대 승, 서 중 석, 이 호 희,
신 영 준, 박 성 원

요 약 문

I. 제 목

사용후핵연료 차세대관리 공정계통분석

II. 연구개발의 목적 및 필요성

본 연구는 미래 에너지 자원인 사용후핵연료의 효율적인 장기 안전관리를 위하여 후행핵연료주기 정책 미결정국이 취할 수 있는 핵비확산 및 평화적 이용 관점에서의 차세대관리 공정을 기존에 발표되고 있는 사용후핵연료 건식처리 연구 결과를 바탕으로 공정계통들을 비교평가하고 이로부터 후보공정을 설정하는데 그 목적이 있다.

III. 연구개발의 내용 및 범위

본 사용후핵연료 차세대관리공정 계통분석은 국내실정에 적합한 핵비확산성 차세대관리공정 개념의 설정 일환으로, 원자력 선진국에서 개발완료 혹은 개발중인 건식처리공정을 대상으로 분석하였다. 주요 분석대상 공정으로는 우선 산화물 핵연료의 부피와 일부 고방열성 물질의 선택적 제거에 의한 붕괴열 및 방사능의 감소가 가능한 용융염 이송공정, Li 공정, 미국의 IFR 공정 및 러시아의 DDP로 하였다. 본 계통분석은 선정된 각 공정들의 우라늄과 플루토늄의 상호 분리성, 제염성 관점에서 추진되었으며, 최종적으로는 국내 실정에 적합한 핵비확산성 사용후핵연료 차세대관리 공정개념을 도출하였다.

IV. 연구개발 결과

원자력 선진국에서 개발완료 혹은 개발중인 건식처리공정을 대상으로 핵비확산성 및 기술성 등을 종합 평가한 결과, 사용후핵연료 차세대관리 공정에 적용가능한 공정은 Li 공정이 가장 유리한 것으로 평가되었다.

- Li 공정은 사용후핵연료를 구성하고 있는 원소들 중 IA족 및 IIA족 그리고 부분적인 희토류 원소들을 제외한 모든 원소들이 금속으로 전환되는 공정

특성으로 인해 우라늄과 플루토늄의 분리와 고제염이 불가능하며, 핵비확산성 기준을 만족한다.

- Li 공정에 의한 사용후핵연료의 건식저장이 산화물 핵연료의 금속 전환으로 부피가 1/4로 감용되고, 붕괴열 및 방사능도 1/2로 감소시키는 공정특성으로 인해 후행핵연료주기 정책 미결정국이 취할 수 있는 가장 유력한 사용후핵연료 장기 안전관리개념으로 판단된다.

V. 연구개발 결과의 활용계획

계통분석의 결과는 핵비확산성 사용후핵연료 차세대관리공정의 flowsheet 설정의 기초자료로 활용될 것이다.

SUMMARY

I. Title

System Analysis of Advanced Spent Fuel Management Process

II. Objectives and Importance

It is important how to manage effectively spent nuclear fuels as future energy resources for a long time. This study is to find an advanced spent fuel management process for countries which have not yet decided a back-end nuclear fuel cycle policy. The process concept for these aims has been established by comparing several dry processes and their systems published already, in aspects of nuclear non-proliferation and peaceful use.

III. Scope and Contents of Project

The system analysis of an advanced spent fuel management process to establish a non-proliferation model for the long-term spent fuel management is performed by comparing the several dry processes, such as a salt transport process, a lithium process, the IFR process developed in America, and DDP developed in Russia.

In our system analysis, the non-proliferation concept is focused on the separation factor between uranium and plutonium and decontamination factors of products in each process, and the non-proliferation model for the long-term spent fuel management has finally been introduced.

IV. Result of Project

As a result of the comparative assessment of the various processes, Li-process is the most optimal process for an advanced spent fuel management process. The advantages of Li process are as follows ;

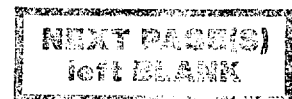
- Most of the spent fuel oxide-fuel elements except alkali and alkaline earth elements and a part of rare-earth metal elements should be converted to metal by Li process. Furthermore the lithium process has no capability of uranium and plutonium mutual separation and its decontamination factor is too low.
- On the other hand, the lithium process should achieve the volume reduction of spent fuel to one quarter and the decrease of the decay-heat and radioactivity to one half.
- Therefore it is considered that the advanced spent fuel management process based on the lithium process is one of the effective process for the long-term spent fuel management, especially in the case of country that has not yet decided a back-end nuclear fuel cycle policy.

V. Proposal for Applications

The result of the system analysis is to be utilized as a fundamental guideline for the establishment of proliferation-resistant flowsheet of advanced spent fuel management process.

CONTENTS

Chap. 1. Introduction	1
Chap. 2. Technological overview of dry treatment processes	3
1. Dimitrovgrad dry process(DDP)	3
2. Salt transport process	13
3. Li process	20
4. Electrorefining process(IFR process)	23
Chap. 3. Analysis of proliferation resistance and technology of dry treatment processes	27
1. Metallization process	27
2. Separation process using electrolysis	27
Chap. 4. Comparative assessment of dry treatment processes and proposal of flowsheet for advanced spent fuel management process	51
Chap. 5. Conclusions	57
References	59



목 차

제 1 장 서 론	1
제 2 장 건식처리공정 기술개관	3
1. Dimitrovgrad dry process	3
2. 용융염 이송공정	13
3. Li 공정	20
4. 전해정련공정	23
제 3 장 건식처리공정의 핵비확산성 및 기술성 분석	27
1. 금속전환공정	27
2. 전해반응을 이용한 분리공정	41
제 4 장 종합평가 및 최적 공정도출	51
제 5 장 결 론	57
참 고 문 헌	59

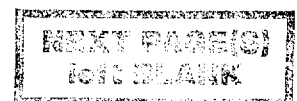


그림 목 차

Fig. 1. UO ₂ -PuO ₂ recovery method in DDP	5
Fig. 2. Flowsheet of DDP	6
Fig. 3. Flow-sheet of UO ₂ -PuO ₂ fuel granulation process with recycled products streams	11
Fig. 4. Flowsheet of salt transport process	14
Fig. 5. Schematic representation of donor-acceptor process	17
Fig. 6. Distribution of TRU elements between MgCl ₂ and Zn-Mg Alloy	19
Fig. 7. Flowsheet of Li process	21
Fig. 8. Flowsheet of electrorefining process	24
Fig. 9. Schematic representation of electrorefining process	25
Fig. 10. Mass balance of electrorefining process	42
Fig. 11. Flowsheet of alternative process	52
Fig. 12. Flowsheet of advanced spent fuel management process	55

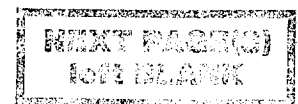


표 목 차

표 1. FP distribution on UO_2 products	8
표 2. Testing results of purification methods for NaCl-KCl	12
표 3. Solid radioactive wastes at ERC	12
표 4. Standard free energies of formation of chlorides at 1000 K	15
표 5. TRU element distribution and conversion rate in reduction step	30
표 6. Distribution coefficients of TRU elements between salt and alloy	31
표 7. TRU element distribution in donor-acceptor process	31
표 8. Mass balance before and after reduction process	34
표 9. Solubility of U and TRU metal in Cu-Mg at 800°C	35
표 10. Distribution coefficient and solubility in donor-acceptor	36
표 11. Reduction rate of Li and Ca reduction process	38
표 12. FP decontamination of electrorefining process	43
표 13. Decontamination factors on UO_2 partition electrolysis	44
표 14. PuO_2 Decontamination factors	46
표 15. FP distribution in salt and slime	47
표 16. Reaction condition of DDP and electrorefining process	48
표 17. Comparative assessment of metallization, electrorefining and DDP	54

제 1 장 서 론

원자력 선진국은 1960년대 부터 수 십년 간 꾸준히 자국의 원자력 환경에 적합한 사용후핵연료 재순환 관련 연구개발을 수행하고 있다. 특히 최근에는 핵비확산성 측면에서 사용후핵연료 재순환 기술은 물론 고준위폐기물 부피감용과 처분 전처리 대안공정으로 건식처리공정을 고려하고 있다[1~3]. 1960년대 부터 미국은 EBR II 금속핵연료의 재순환을 위한 고온 야금공정[4,5], 우라늄과 플루토늄의 분리정제를 위한 용융염 이송공정[6], ANL 연구소와 Hanford 연구소를 중심으로 용융염계에서 염화반응과 전기분해반응을 이용한 용융염 전해정련 공정등을 개발하였다[7]. 최근 ANL 연구소는 산화물 핵연료를 금속으로 전환하여 IFR 핵연료주기에 재순환하는 악티나이드 재순환 프로그램을 수행하였다. 여러 대안 공정중 반응온도와 부식성 측면에서 유리한 Li 공정과 전해정련 공정을 연계하여, 산화물 핵연료를 IFR 핵연료주기에 재순환하는 개념을 최종적으로 선정하였다[8].

러시아에서는 1964년부터 용융염계를 이용하여 핵연료물질을 분리·회수하는 Dimitrovgrad dry process(DDP)와 회수된 산화물핵연료(UO_2 , PuO_2)를 진동충전법으로 제조하는 연구를 수행하였다. 1978년에는 VVER 사용후핵연료중에 함유된 플루토늄을 FBR 원자로에 재순환하는 방침을 세우고, 1980년 중반에는 MOX 핵연료 제조를 위한 DDP의 개발을 완료하였다[9]. 1991년에는 ERC(experimental research complex)에서 진동충전법으로 BOR-60용 핵연료 집합체를 최초로 제조하였다.

우리나라는 1978년 고리 1호기의 가동 이래 현재 14기의 원자력 발전소가 가동되고 있다. 원자력 발전과 더불어 필연적으로 발생하는 사용후핵연료는 소내 습식 저장시설 혹은 콘크리트 사일로에 저장하여 관리되고 있다. 원자력발전소내 기존 저장시설의 용량은 약 5,672 톤(우라늄 기준)으로, 2006년 경에는 포화상태에 도달할 것으로 추정된다. 이에 대한 대비책으로 기존의 저장시설에 조밀저장 혹은 추가로 소내 건식저장시설을 건설하여 저장용량을 확보하고 있다. 그러나

이런 방안은 근본적인 해결책이 되지 못한다. 따라서 저장관리 측면에서 저장성 및 안전성이 향상되고, 추후 사용후핵연료 관리정책에 유연하게 대처할 수 있는 새로운 저장기술의 개발이 요구되고 있다. 현재 고려되고 있는 새로운 저장개념은 저장성 향상과 저장 안전성 요건의 완화측면에서 고방열성 물질인 Cs과 Sr을 선택적으로 제거하고, 산화물 핵연료를 금속으로 전환하여 건식 저장관리하는 사용후핵연료 차세대관리 방안을 검토하고 있다.

사용후핵연료 차세대관리공정 계통분석은 국내실정에 적합한 핵비확산성 차세대관리공정 개념의 설정 일환으로, 원자력 선진국에서 개발완료 혹은 개발중인 건식처리공정을 대상으로 분석하였다. 주요 대상공정은 우선 산화물 핵연료의 부피와 일부 고방열성 물질의 선택적 제거에 의한 붕괴열 및 방사능의 감소가 가능한 용융염 이송공정, Li 공정, 전해정련공정 및 DDP로 한정하여 분석을 수행하였다. 본 계통분석은 선정된 각 단위공정의 우라늄과 플루토늄의 분리성, 제염성 및 기술성 등을 분석하고, 우리실정에 적합한 핵비확산성 사용후핵연료 차세대관리 개념을 도출하고자 한다.

제 2 장 건식처리공정 기술개관

1. Dimitrovgrad Dry Process

가. 공정 개요

용융염계의 조건에서 산화물의 염화반응과 전해반응을 이용한 공정은 염화물 전환특성과 원소의 환원 전위차에 의해 화학적 거동이 유사한 원소의 분리공정에 적용 가능하다. 러시아의 RIAR 연구소는 1964년부터 용융염계의 염화반응과 전해반응을 이용하여 핵연료 물질을 회수하는 DDP와 회수된 산화물 핵연료(UO_2 , PuO_2)를 진동충전법으로 제조하는 연구를 수행하였다. 미국의 Hanford 연구소도 1960년 초부터 DDP와 유사한 용융염 전해정련 공정을 개발하였으나, 1970년 초에 연구를 중단하였다. 반면에 러시아의 RIAR 연구소는 사용후핵연료 중에 함유된 플루토늄을 FBR 원자로에 재순환하는 방침을 세우고, 1980년 중반 파일럿 규모(용량 : 2 kg)의 DDP를 성공적으로 실증 완료한 이래, 현재 준상용 규모(용량 : 10 kg)의 시설을 이용하여 BOR-60 핵연료를 제조하고 있다.

DDP의 주요장치는 chlorator-electrolyzer-pyrographite, 음극, 양극 및 가스공급관으로 구성된다. 상기의 장치는 모든 부품을 원격교체가 가능하도록 설계하였으며, 장치개발 및 실증이 완료된 상태이다. chlorator-electrolyzer 이외에도 양극 전착물 분쇄장치, 전착물과 잔류 용융염 분리장치, 건조기 및 등급기 등의 장치들이 포함된다. 특히 DDP는 산화물 핵연료를 직접 회수 가능하기 때문에 핵연료주기 적용성 측면에서 매우 유리하다. 그림 1의 flow sheet와 같이 LWR과 FBR 사용후핵연료를 대상으로 단위공정 및 반응조건에 따라 UO_2 , PuO_2 및 UO_2 - PuO_2 를 회수하여 LWR과 FBR 원자로에 재순환이 가능한 장점이 있다[9~12].

나. 공정 설명

DDP는 화학적 반응에 의해 산화물 핵연료를 용융염계에 용해하고, 우라늄 및 플루토늄 염화물의 전해특성을 이용하여 회수하는 공정으로 그림 2와 같이 각 단

위공정은 동일 도가니에서 수행할 수 있는 장점이 있다. DDP의 도가니는 용융염과 Cl_2 가스의 부식성 등을 고려하여 pyrographite를 최종적으로 선정하였다. pyrographite 도가니는 산화물 핵연료 용해속도를 증가시키고, 기계적 강도 및 열팽창계수가 매우 우수한 특성과 전착공정에서 직접 음극으로 사용가능한 장점이 있다. DDP는 용융염계에서 다음과 같이 우라늄과 플루토늄 산화물의 화학적 특성을 이용하여 회수 및 분리가 가능하다.

- 용융염계의 용해 혹은 음극 산화과정에서 우라늄과 플루토늄 산화물은 산소이온이 포함된 $\text{MeO}_2(n+)$ 화합물로 변환되고, 용융염계에 용해된 uranyl과 plutonyl 이온은 양극에서 산화물 형태로 다시 환원된다.
- 400 °C 이상의 고온 조건에서 우라늄과 플루토늄 산화물은 전기적 전도성을 갖기 때문에 결정형 입자의 전착이 가능하다.
- 플루토늄 염화물은 산소가 존재하는 조건에서 산화물 형태로 침전이 가능하고, 플루토늄 염화물의 산화조건에서 우라늄은 용융염계에 uranyl chloride로 존재하기 때문에 플루토늄 산화물만의 침전이 가능하다.
- uranyl과 plutonyl 이온은 핵분열생성물과의 환원전위차를 이용하여 분리가 가능하다.

(1) 용해공정

용해공정은 pyrographite 도가니와 가스공급관, 교반장치로 구성된다. 우라늄과 플루토늄의 산화물은 비중이 매우 크기 때문에 용융염계에 균일한 분산과 Cl_2 가스와 접촉효율 향상을 위해서는 적절히 교반이 되어야 한다. 용해공정에서 우라늄과 플루토늄 산화물은 Cl_2 가스와 반응하여 uranyl chloride와 plutonium chloride로 변환되고, pyrographite 도가니에서 일부 용출된 탄소에 의해 아래와 같은 부반응이 진행된다. 파일럿 규모의 용해실험에서 우라늄과 플루토늄 산화물의 완전 용해에는 과잉의 Cl_2 가스 조건에서 약 30 시간이 소요된다. 특히 용해속도는 산화물의 공급속도 및 형태, Cl_2 가스 공급방법 등의 변수에 큰 영향을 받는다. 우라늄 산화물에 따른 용해속도는 $\text{UO}_3 > \text{U}_3\text{O}_8 > \text{UO}_2 > \text{PuO}_2$ 순으로 감소한다.

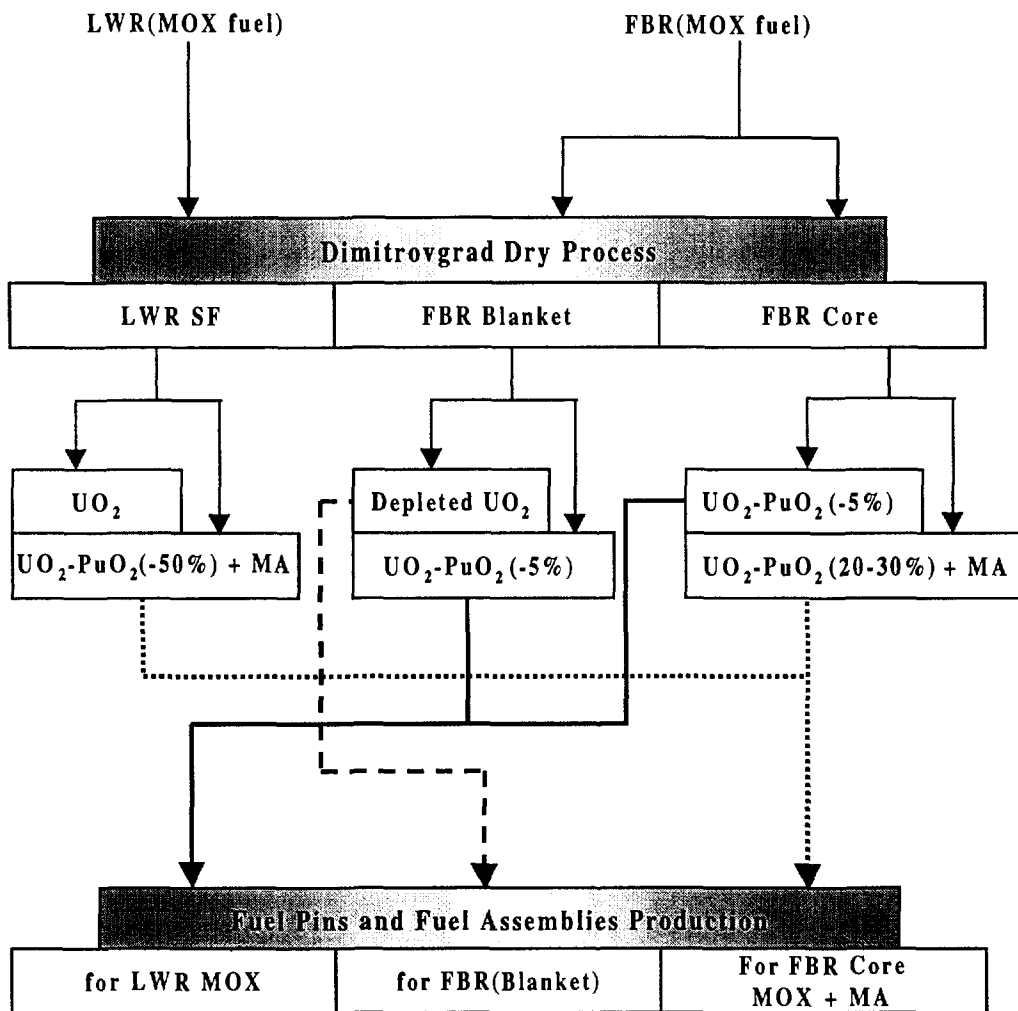


Fig. 1. UO₂-PuO₂ recovery method in DDP.

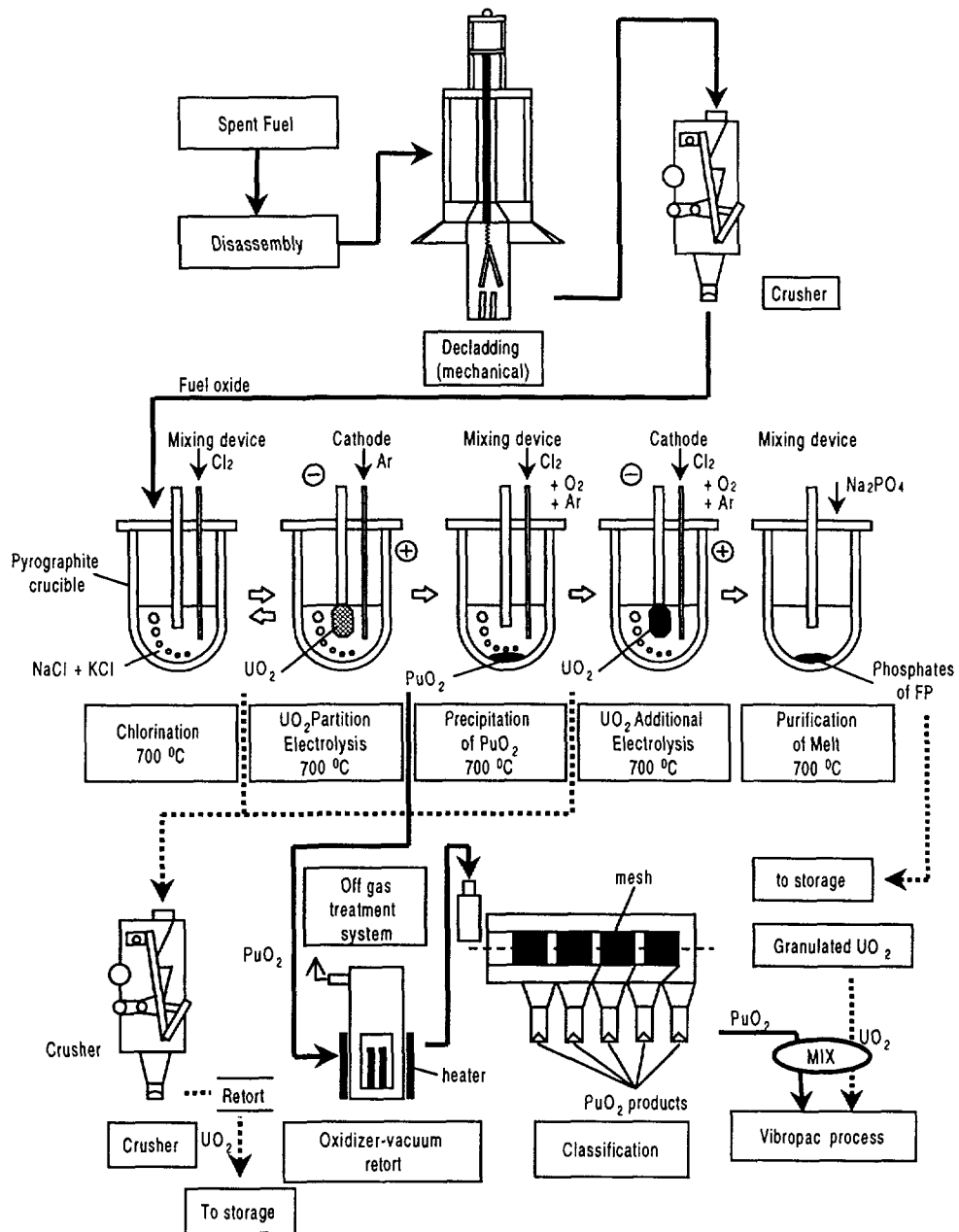
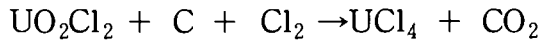
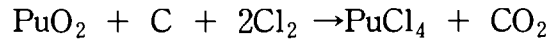
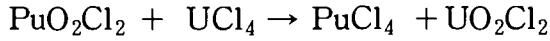
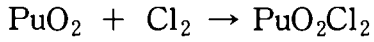
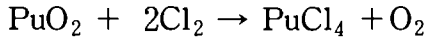
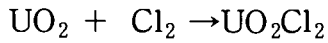


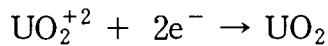
Fig. 2. Flowsheet of DDP.



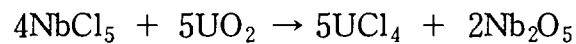
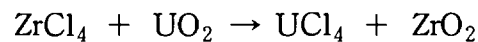
(2) UO_2 전착공정

전해반응을 이용한 UO_2 전착공정은 고순도 UO_2 회수 및 용융염과의 분리성 측면에서 매우 유리하다. UO_2 전착공정은 UO_2 회수목적 이외에 후속공정인 UO_2 - PuO_2 공전착 공정, PuO_2 침전공정을 고려하여 용융염계 uranyl 이온의 농도를 제어하는 단계로도 이용된다.

NaCl - KCl 용융염계에 존재하는 uranyl chloride는 -1 V 의 전위조건에서 다음과 같은 반쪽 반응식에 의해 양극에 전착된다.



UO_2 전착공정에서 환원전위가 유사한 일부 핵분열생성물(Ru , Rh , Pd , Ag) 등은 UO_2 와 함께 양극에 전착되고, Zr 과 Nb 등은 다음과 같은 반응에 의해 UO_2 와 함께 용융염으로 부터 분리된다.



UO_2 전착공정에서 우라늄과 플루토늄의 분리계수는 다음과 같이 정의되고, 분리계수는 약 120~140을 나타낸다.

$$\text{S.F.} = \frac{([\text{U}]/[\text{Pu}]_{\text{oxide}})}{([\text{U}]/[\text{Pu}]_{\text{melt}})}$$

UO_2 전착공정에서 환원전위는 알카리 금속의 전착을 유발하지 않는 한 전착된 UO_2 의 특성에 큰 영향을 미치지 않는다. 전착된 UO_2 결정크기 및 O/U 비는

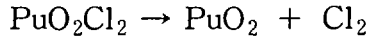
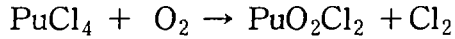
용융염계의 잔류 수분에 큰 영향을 받는다. 잔류 수분이 존재하는 경우, 전착된 우라늄 산화물 결정의 조성은 UO_2 에서 U_4O_9 를 나타내고, 대체로 침상 혹은 판상 형의 결정형태를 나타낸다. 특히 UO_2 전착공정은 전술한 바와 같이 후속공정을 고려하여 용융염계 uranyl 이온의 농도제어 및 폐용융염의 잔류 uranyl 이온의 제거를 위하여 2 단계의 전착과정을 거친다. 이 과정에서 표 1과 같이 일부 RE와 NM계열의 핵분열 생성물이 UO_2 와 함께 전착된다. UO_2 전착공정은 전해조건에 따라 99~99.5 %의 UO_2 회수가 가능하다. BOR-60 원자로의 UO_2 사용후핵연료를 대상으로 한 실험결과, DDP는 단기 냉각 사용후핵연료(냉각기간 : 6 개월)의 처리 및 99 %의 UO_2 회수가 가능하였다. 특히 후속공정인 PuO_2 침전공정과 UO_2 - PuO_2 공전착공정을 고려한 UO_2 전착공정은 반응시간 4시간의 조건에서 23 %의 UO_2 와 0.3 %의 PuO_2 가 전착됨을 확인하였다.

표 1. FP distribution on UO_2 products

Element	Electrolysis for UO_2 partitioning	UO_2 additional electrolysis
Zr, Nb	100	-
Ru, Pd	90	10
Ag	60	40
Ce, Am	traces	60~70
Eu	traces	30~40
Fe, Cr, Ni	traces	50
Cs	-	-

(3) PuO₂ 침전공정

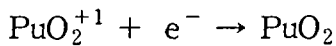
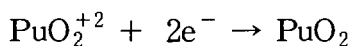
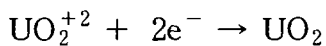
용융염계에 존재하는 플루토늄 염화물은 다음과 같은 반응에 의해 PuO₂로 침전되고, 핵분열생성물로부터 분리된다.



침전공정에 의해 회수된 PuO₂의 평균입자크기는 약 20~100 μm 이었고, 95 % 이상의 PuO₂가 회수되었다. 특히 PuO₂ 침전과정에서 핵분열생성물의 화학적 거동은 O₂와 Cl₂ 가스의 조성비 및 반응시간 등의 변수에 큰 영향을 받는다. Ce은 90 % 이상이 플루토늄과 함께 침전되고, Y, Pm과 Eu등은 약 2~20 % 미만이 침전된다.

(4) UO₂-PuO₂ 공전착 공정

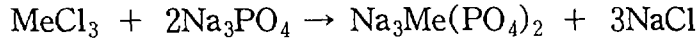
UO₂-PuO₂ 공전착 공정은 용융염계에 존재하는 plutonium chloride를 plutonyl chloride로 변환하는 반응이 선행되어야 한다. UO₂-PuO₂ 공전착 공정은 O₂-Cl₂ 혼합가스를 용융염계에 공급하는 조건에서 수행되고, 다음과 같은 반응식에 의해 UO₂와 PuO₂가 동시에 전착된다. 특히 양극에 전착된 PuO₂와 UO₂ 분율은 각각 용융염내 plutonyl 이온농도와 전류밀도에 영향을 받는다.



PuO₂는 최대 70 wt%의 공전착이 가능하였고, 회수된 UO₂-PuO₂는 결정형태와 순도가 매우 양호하였다. 러시아의 RIAR 연구소는 UO₂-PuO₂ 공전착공정을 이용한 MOX 핵연료 제조 준상용시설의 운전을 1988년부터 운전을 개시하고, BOR-60 원자로와 BN-350 원자로의 핵연료를 제조하고 있다.

(5) 핵분열생성물 침전공정

용융염에 잔류하는 핵분열생성물은 다음과 같은 반응에 의해 인산염으로 침전시켜 제거한다. 핵분열생성물 침전공정에서 대부분의 핵분열생성물은 제거되나, 고방열성 물질인 Cs과 일부 Sr는 제거되지 않고, 용융염계에 잔류한다.



(6) 폐기물 처리공정

RIAR 연구소는 80년대 초부터 DDP에서 발생하는 폐기물의 처리공정 개발과 공정의 최적화에 대한 연구를 수행중이다[13]. DDP에서 발생하는 폐기물은 상당량의 핵분열생성물을 함유하고 있고, 고온의 조건에서 취급해야 하는 제약이 있다. DDP의 각 단계에서 발생하는 폐기물과 처리공정의 flow sheet는 그림 3에 나타내었고, 각 단계에서 처리된 결과를 표 2와 3에 수록하였다. 용융염계의 핵분열생성물은 전술한 바와 같이 Na_3PO_4 에 의한 침전과정과 전기분해과정을 거쳐 정제 및 재순환된다. pyrographite 도가니는 700~800 °C 온도 조건에서 연소하는 방법에 대하여 검토하였다. 연소 후의 재는 chlorator-electrolyzer내에 도입하여 소량의 우라늄과 플루토늄을 재회수하는 방안을 제시하였다. DDP의 배기가스 처리계통은 chlorator-electrolyzer로부터 증발된 염을 포집하기 위한 세라믹 필터, 방사능 aerosol를 포집하기 위한 필터와 염소가스의 흡수탑으로 구성된다.

배기가스 처리계통은 염소가스를 재순환, 즉 냉각에 의해 염소가스를 포집하고 재순환하는 공정으로, 4 m³/h의 용량의 배기가스 처리시설이 성공적으로 실증되었다. BOR-60와 BN-350의 사용후핵연료를 대상으로 DDP의 실험결과, 공정에서 발생하는 HLW폐기물은 상기의 공정을 이용하여 처리가 가능함을 나타내었다.

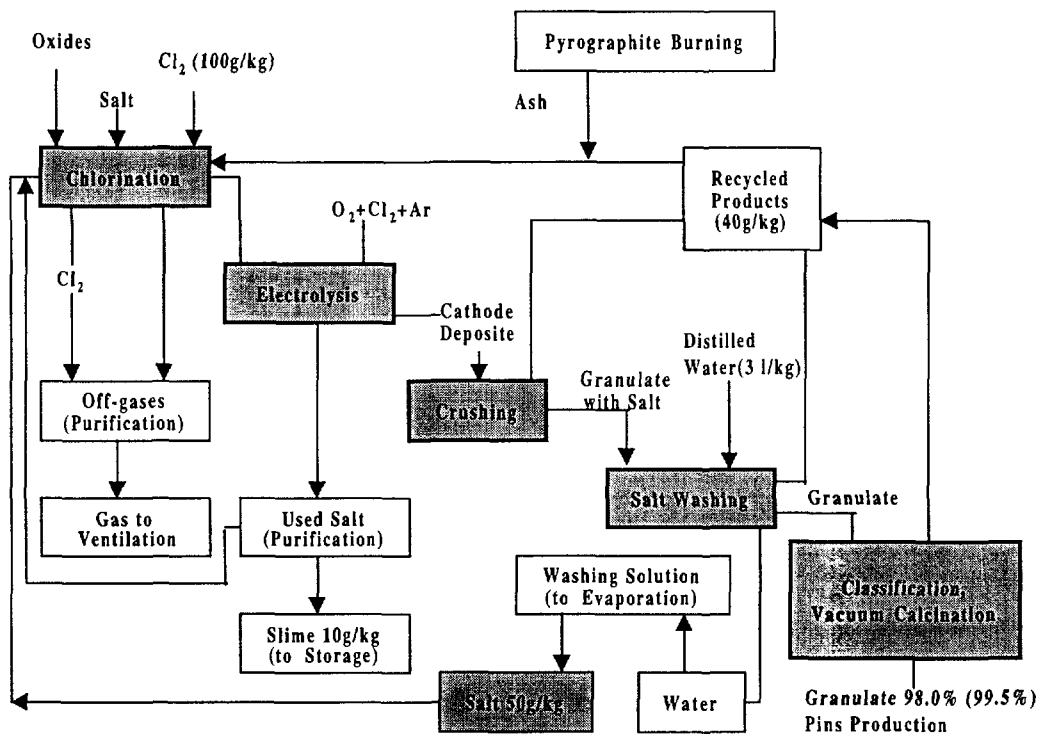


Fig. 3. Flow-sheet of UO₂-PuO₂ fuel granulation process with recycled products streams.

⌘ 2. Testing results of purification methods for NaCl-KCl

Purification method	Impurities content, mass. % * 10 E3							
	U	Pu	Am	Fe	Cr	Ca	Al	Pb
(Used salt)	1300	600	150	350	15	20	10	500
Electrolysis with high current density	> 1	> 1	0.4	1	1	1	1	1
Phosphate precipitation	80	60	3	10	1	1	-	10

⌘ 3. Solid radioactive wastes at ERC(estimated for 1000 kg fuel/yr)

Wastes type	Waste output, kg/kg Fuel	Waste amount kg/yr	Content of fissionable materials, g/kg wastes	
			Pu	U
Used salt (without used salt-dissolvent purification)	0.2	200	0.5	3
Impurities Concentrate(slime) (with used salt-dissolvent purification)	0.013	13	20	80
Pyrographite units of equipment	0.2	200	0.4	1.6
Equipment	0.7	700	0.2	0.8
Filters	0.13	130	0.7	1.5
Rags	0.02	20	33	40

2. 용융염 이송공정(Salt Transport Process)

가. 공정 개요

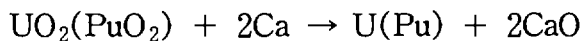
용융염 이송공정은 산화-환원반응의 화학적 특성과 용융염과 용융금속계의 분배특성을 이용하여 원소를 선택적으로 분리하는 공정으로, 용융염 이송공정은 용융염계에서 산화물 핵연료의 환원공정, 용융염과 용융금속간의 분배계수 차를 이용하는 donor-acceptor 공정과 우라늄과 플루토늄 회수공정으로 구성된다.

Donor-acceptor 공정에서 산화 및 환원반응을 이용한 방법은 처음으로 Chiotti와 Parry등이 제안하였다. 이와 같은 화학적반응을 이용한 용융염 이송공정은 60년대 우라늄 및 플루토늄의 정제 및 회수 목적으로 미국 ANL 연구소에서 처음 개발하였다[14]. 1990년대 초 ANL 연구소는 악티나이드 재순환 프로그램의 일환으로, 산화물 핵연료로부터 우라늄과 TRU를 회수하여 IFR 핵연료주기에 재순환하는 용융염 이송공정의 flowsheet를 그림 4와 같이 설정하였다[8].

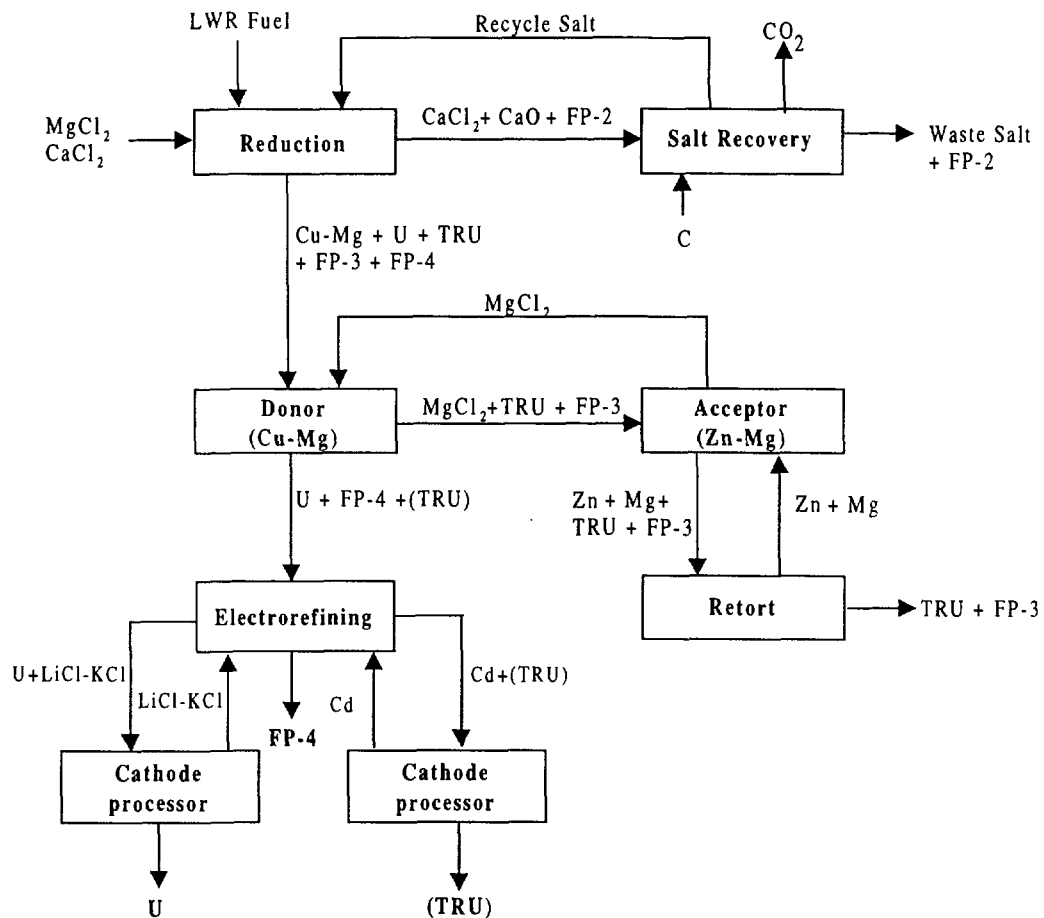
나. 공정 설명

(1) 환원공정[15~17]

산화물 핵연료는 CaCl_2 (혹은 $\text{CaCl}_2\text{-CaF}_2$)용융염과 Cu-Mg 용융금속계의 조건에서 Ca금속과 반응하여 금속으로 전환되고, 일부 핵분열생성물은 CaCl_2 용융염과의 반응에 의해 염화물로 전환된다.



핵분열생성물의 화학적 거동은 표 4의 염화물 생성 자유에너지 값을 통하여 예측이 가능하다. CaCl_2 의 자유에너지값을 기준으로 하여, 이 보다 큰 자유에너지 값을 갖는 핵분열생성물은 CaCl_2 용융염과 반응하여 염화물로 전환된다. 특히 알카리 및 알카리 토금속계열의 FP-2 핵분열생성물은 염화물로 전환되고, CaCl_2 용융염계에 존재하는 특성을 갖고 있다. 환원된 금속(우라늄, 플루토늄, FP-3, FP-4)은 침전 혹은 용해상태로 Cu-Mg 용융금속계에 존재한다. Cu-Mg 용융금속계에 대해 비교적 용해도가 낮은 우라늄 금속과 FP-4 핵분열생성물은 금속 화합물인 UCu_5 혹은 금속상태로 Cu-Mg 용융금속계에 존재한다. 산화물 핵연료중



- * FP-1 : H³, Xe, Kr
- * FP-2 : I, Br, Cs, Rb, Ra, Sr, Sm, Eu, Se, Te
- * FP-3 : Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Gd, Tb
- * FP-4 : Zr, Nb, Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In, Sn, Sb

Fig. 4. Flowsheet of salt transport process.

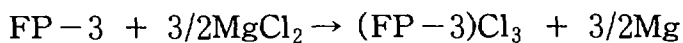
⌘ 4. Standard free energies of formation of chlorides at 1000 K

MCl _n	$-\Delta G_f^\circ$ kcal/g-equiv.Cl	MCl _n	$-\Delta G_f^\circ$ kcal/g-equiv.Cl
BaCl ₂	83.6	MgCl ₂	57.7
CsCl	82.6	UCl ₃	54.0
RbCl	82.5	MnCl ₂	42.2
LiCl	78.8	ZrCl ₂	34.2
KCl	81.6	ZnCl ₂	35.0
SrCl ₂	80.8	CrCl ₂	32.8
SmCl ₂	80.0	CdCl ₂	30.4
EuCl ₂	79.0	FeCl ₂	26.3
CaCl ₂	76.8	CuCl	22.0
NaCl	76.2	NiCl ₂	18.6
LaCl ₃	67.0	NbCl ₅	11.4
PrCl ₃	66.3	MoCl ₂	8.0
CeCl ₃	66.3	TcCl ₃	7.4
NdCl ₃	64.2	PdCl ₂	5.3
YCl ₃	61.2	RhCl	1.4
PuCl ₃	58.4	RuCl ₃	0.3

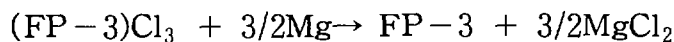
비교적 함량이 낮은 플루토늄과 FP-3의 대부분은 Cu-Mg 용융금속계에 용해된 상태로 존재하는 특성을 갖고 있다. 산화물 환원공정에서 FP-2 핵분열생성물 이외에 Cu-Mg 용융금속에 대한 용해특성을 이용하여 우라늄과 FP-4 핵분열생성물의 분리가 가능하다. 반응종료 단계에서 CaO는 용해도 제한값 이하로 존재하도록 반응조건을 설정하여야 한다. 산화물 핵연료의 환원공정에서 휘발성 가스인 FP-1원소는 탈피복 과정에 대부분 제거된다. 환원공정에서 발생하는 폐용융염은 전기분해공정의 처리과정을 거쳐 Ca금속과 용융염을 회수 및 재순환한다.

(2) FP-3원소 제거

산화물 환원공정 단계에서 플루토늄과 FP-3 핵분열생성물은 Cu-Mg 용융금속에 대한 용해특성에 의해 우라늄과 FP-4 핵분열생성물로 부터 분리된다. Cu-Mg 용융금속에 용해상태로 존재하는 TRU와 FP-3 핵분열생성물은 donor-acceptor 공정에서 분리 및 회수된다. 특히 FP-3 핵분열생성물은 플루토늄과 화학적 특성이 유사하기 때문에 분리가 매우 어렵다. 산화물 환원공정의 Cu-16 at% Mg합금은 FP-3원소 제거단계의 donor 용융금속으로 사용된다. FP-3원소는 $MgCl_2$ 용융염과 반응하여 염화물로 전환된다. 이의 반응식은 다음과 같다.



염화물로 전환된 FP-3 핵분열생성물 염화물은 $MgCl_2$ 용융염과 acceptor 용융금속계로 이송된다. acceptor 용융금속계에서 FP-3 핵분열생성물 염화물은 다음과 같은 반응에 의해 금속으로 전환되고, Zn-20 at% Mg 용융금속으로 역추출된다.



이와 같은 과정을 통하여 Cu-Mg 용융금속으로부터 선택적으로 FP-3 핵분열생성물의 제거가 가능하다. 800℃에서 Cu-16 at% Mg 용융금속과 $MgCl_2$ 용융염, Zn-20 at% Mg 용융금속과 $MgCl_2$ 용융염간의 Ce, Pu 및 U 분배계수는 각각 39.97, 0.128, 0.016와 0.07, 0.008, 0.0002이다. 상기 분배계수를 고려할 때 FP-3는 TRU 원소로부터 분리가 가능함을 나타내고 있다. 그러나 용융염 이송공정은 핵

비확산성을 고려하여 FP-3원소의 약 10%만을 제거하고, 나머지 90%의 FP-3 핵분열생성물은 TRU 원소와 같이 공존하도록 개념을 설정하였다.

(3) TRU 회수[18~22]

전술한 바와 같이 Cu-Mg 용융금속계의 TRU 원소는 산화물 환원공정 단계에서 우라늄과 FP-4 핵분열생성물로부터 분리되고, donor-acceptor 공정을 거쳐 회수된다. donor-acceptor 공정의 개념을 그림 5에 개략적으로 나타내었다. FP-3 제거의 반응메카니즘과 같이 Cu-Mg 용융금속에 존재하는 플루토늄 금속은 $MgCl_2$ 용융염과 반응하여 염화물로 전환된다. acceptor 용융금속계로 $MgCl_2$ 용융염과 동반 이송된 플루토늄 염화물은 금속으로 전환되고, acceptor 용융금속으로 역추출된다. 플루토늄의 산화반응에 의하여 donor 용융금속계에서 소비된 $MgCl_2$ 는 플루토늄 염화물의 환원반응에 의해 acceptor 용융금속계에서 다시 재생된다. 따라서 donor-acceptor공정에서 운전 초기 및 종료시점의 용융염 조성은 항상 일정하고, 용융염은 무한정으로 사용가능하다. donor 용융금속에서 acceptor 용융금속으로 이동된 1몰의 플루토늄에 대하여 Mg는 1.5몰이 역방향으

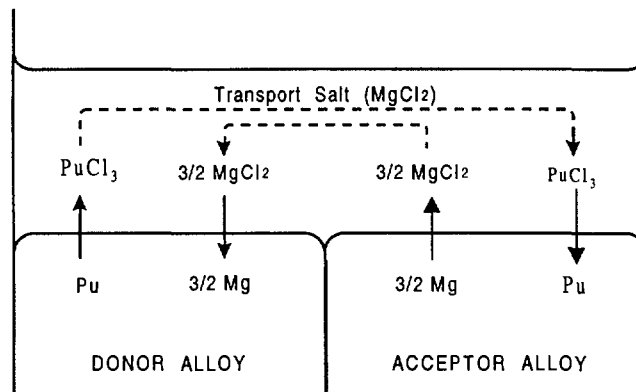


Fig. 5. Schematic representation of donor-acceptor process.

로 이동된다. 이와 같은 donor-acceptor 공정을 통하여 Cu-Mg 용융금속계에서 Zn-Mg 용융금속계로 추출된 플루토늄 금속은 용융금속 증발공정을 통하여 회수된다.

그리고 donor-acceptor 공정은 FP-3 핵분열생성물과 TRU 원소 이외에 우라늄도 분리가 가능하다. 그림 6은 800 °C 온도조건에서 Cu-Mg 용융금속, Zn-Mg 용융금속과 MgCl₂ 용융염간의 우라늄과 플루토늄의 분배계수를 나타낸 것으로, 우라늄의 분배계수는 플루토늄과 비교하여 매우 작기 때문에 용융염 이송횟수 당 분리효율이 낮지만 우라늄의 선택적 분리가 가능하다. 모든 플루토늄은 donor 용융금속에 용해상태로 존재하고, 분배계수가 우라늄보다 훨씬 크기 때문에 플루토늄이 우라늄보다 매우 빠른 속도로 이동된다. 이와 같은 이동속도의 차는 우라늄만을 추가로 분리가 가능함을 나타내고 있다.

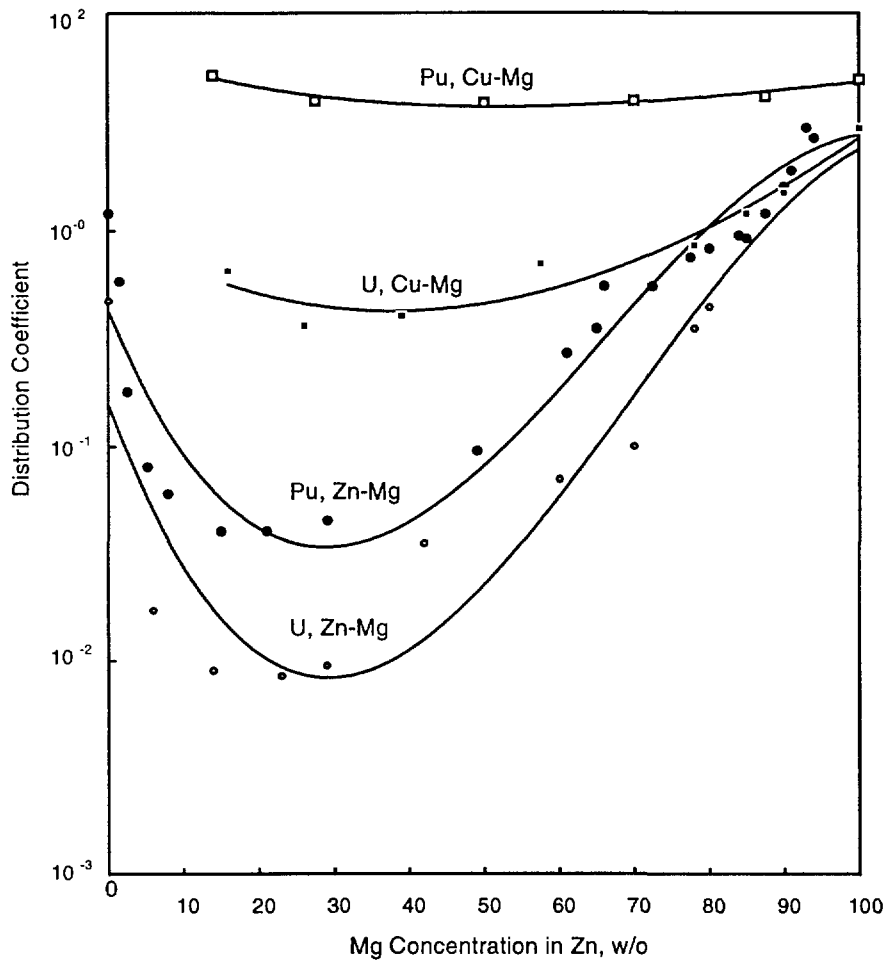


Fig. 6. Distribution of TRU elements between $MgCl_2$ and Zn-Mg alloy.

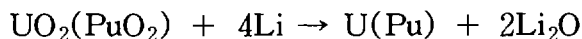
3. Li 공정

가. 공정 개요

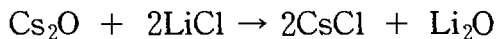
미국의 ANL 연구소는 산화물 핵연료를 금속으로 전환하여 IFR 핵연료주기에 재순환하는 프로그램을 1991년부터 수행하였다. 용융염 이송공정, Mg 추출공정 및 Li 공정을 포함한 여러 대안공정이 검토되었지만, 최종적으로 반응온도와 부식성 측면에서 유리한 Li 공정이 선정되었다. Li 공정은 그림 7과 같이 전해정련 공정과 연계하여 산화물 핵연료를 IFR 핵연료주기에 재순환하는 개념을 설정하였다. Li 공정은 모의 사용후핵연료를 대상으로 공학적 규모(용량 : 20 kg)의 실증실험까지 완료하였으나, 현재는 미국 정부의 방침에 의해 개발이 중단된 상태이다. 최근 ANL 연구소는 전해정련 공정과 Li 공정을 연계하여 산화물 핵연료를 금속으로 전환하고, 우라늄과 TRU를 분리하여 저장 혹은 처분하는 방안을 모색하고 있다[2,3].

나. 공정 설명[2,3,23,24]

Li 공정은 용융염계의 조건에서 산화물 핵연료를 Li 금속으로 환원하는 금속전환공정으로, 용융염 이송공정의 Ca 환원공정과 유사하다. Li 공정은 Ca 환원공정과 비교하여 반응온도와 부식성, 그리고 용융금속을 사용하지 않는다는 점에서 매우 유리하다. 그외 후속공정인 전해정련 공정과 동일한 염화물계의 용융염을 사용하기 때문에 폐용융염의 처리 및 용융염의 재순환 측면에서 매우 유리하다. Li 공정에서 산화물 핵연료는 환원제인 Li 금속과의 반응에 의해 금속으로 전환되며, 이의 반응식은 다음과 같다.



Li 공정에서 알카리 및 알카리 토금속 계열의 핵분열생성물은 LiCl 용융염과 반응하여 염화물로 전환되고, 용융염계에 용해되는 특성을 갖고 있다.



Eu를 제외한 RE 계열의 핵분열생성물은 환원되지 않고, 산화물 형태로 용융염계에 잔류한다. 이들은 반응 부생성물인 Li_2O 와 반응하여 LiMO_2 (M=Nd등)를

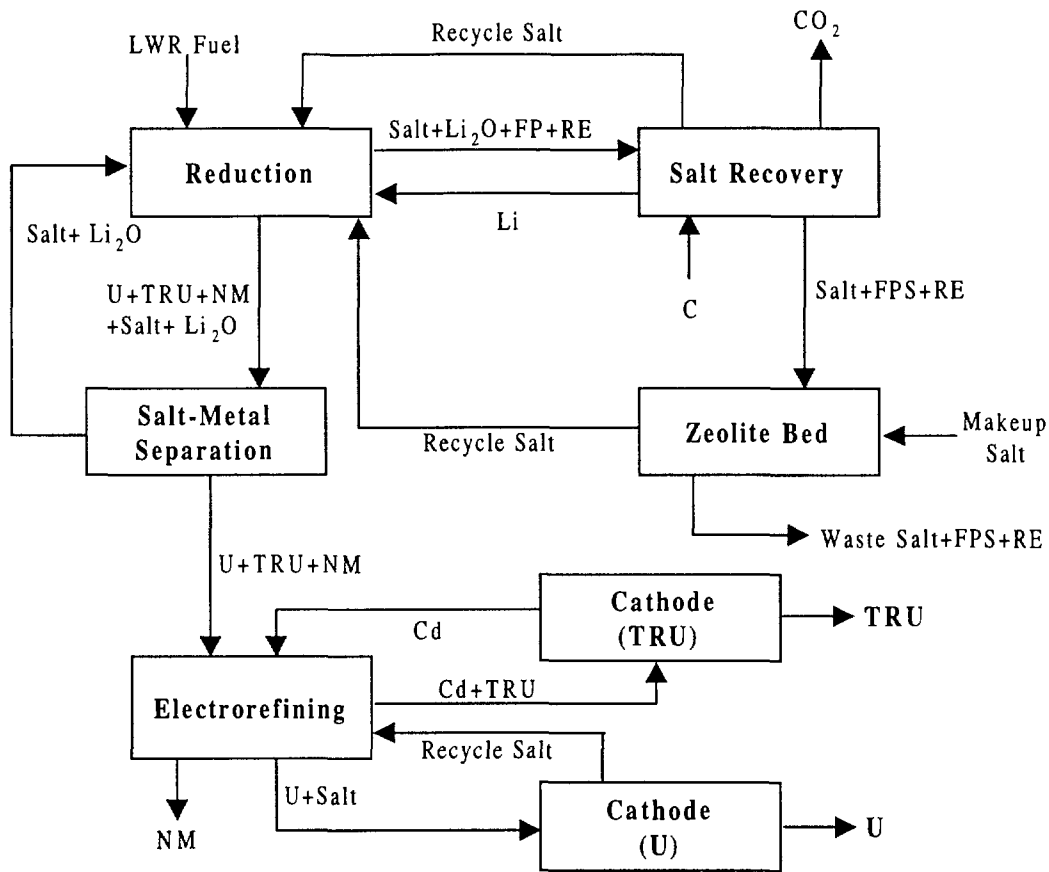
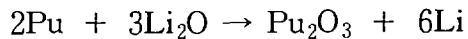


Fig. 7. Flowsheet of Li process.

생성하며, 용융염계에 소량 용해되는 특성을 갖고 있다. 그외 I, Te, Sb, Se 및 Ba 등의 핵분열생성물은 Li 금속과 반응하여 LiI, Li₂Te 등과 같은 화합물을 생성한다. 반면 NM 원소는 우라늄 및 플루토늄과 같이 금속으로 전환된다. 이와 같은 화학적 특성에 의해 Li 공정은 알카리 및 알카리 토금속 핵분열생성물을 제외한 산화물 핵연료의 대부분 원소가 금속으로 전환하며, 고방열성 물질인 Cs과 Sr만을 선택적으로 제거한다.

Li 공정에서 용융염 조성, 반응온도 및 반응 부생성물인 Li₂O 농도 등의 변수는 금속전환율에 큰 영향을 미친다. 미국의 ANL 연구소는 LiCl-KCl, LiCl-CaCl₂, LiCl-SrCl₂ 등의 여러 용융염을 대상으로 실험한 결과, Li 공정은 450 °C 이하의 온도 조건에서도 환원반응이 가능하나, Li₂O 용해도와 용융염 증발 등의 문제점으로 인해 최종적으로 LiCl 용융염을 선정하였다. Li₂O가 3.0 wt% 이상 존재하는 용융염계의 조건에서 플루토늄 금속은 다음과 같은 반응에 의해 플루토늄 산화물로 전환되며, 불완전한 환원반응을 초래할 가능성이 있다. LiCl 용융염은



Li₂O가 3.0 wt% 이상 존재하지 않도록 반응조건을 설정하여야 하는 제약이 있다.

그리고 Li 공정의 반응온도는 환원된 금속의 입자크기에 큰 영향을 미친다. 500 °C의 온도조건에서 환원된 금속 입자는 매우 미세하고, 용융염의 분리와 금속표면의 잔류염 제거가 매우 어렵다. 그러나 750 °C 온도 조건에서 환원된 금속 입자는 최대 3 mm 크기를 나타내고, 용융염과의 분리와 잔류염 제거 측면에서 매우 양호한 결과를 나타내나, 용융염이 일부 증발되는 문제점이 발생한다.

산화물 핵연료의 금속전환율은 대체로 95% 이상의 전환율을 나타내고, 일부 TRU 원소는 LiCl 용융염계에서 용해성 산염화물을 형성하기 때문에 약간 전환율이 감소한다. 반응 부생성물인 Li₂O는 전기분해하여 Li을 회수한다. Li 회수공정은 초기에 스텐인레스 스틸 봉을 양극으로 사용하고, 스텐인레스 스틸 봉에 석출된 Li 금속이 용해되어 용융염 상단에 액체 Li 금속 층이 형성이 되면 이를 양극으로 사용한다. 용융염계의 환원반응 특성상 Li 공정에서 고방열성 물질인 Cs과 Sr은 염화물로 전환되고 용융염계에 존재한다. 이들 물질은 용융염보다 환원

전위가 크기 때문에 전기분해 방법에 의해서도 제거가 불가능하며 용융염과 동반되어 재순환된다. 용융염계에 이들 물질이 한계농도 이상 존재할 경우에는 고방열성으로 인해 용융염의 일부를 제거하고 새로운 용융염을 보충해야 한다. Li 공정에서 제거된 폐용융염은 제올라이트를 이용하여 Cs 혹은 Sr을 선택적으로 흡착제거하고, 용융염을 재순환한다.

4. 전해정련 공정

가. 공정 개요

전해정련 공정은 IFR 처리공정의 핵심공정으로 전해반응의 특성을 이용하여 우라늄, 플루토늄과 핵분열생성물을 분리 및 회수하는 공정이다. 전해정련 공정은 IFR 금속핵연료 이외에 산화물 핵연료를 Li 공정과 연계 처리하여 IFR 핵연료주기에 재순환이 가능하다. 특히 전해정련 공정은 비교적 공정이 단순하고, 소형이라는 점 이외에 폐기물 발생량이 극히 적다는 장점이 있다. 또한 그림 8과 같이 전해정련 공정에서 회수된 우라늄과 플루토늄 금속은 직접 사출성형법으로 IFR 금속핵연료의 제조가 가능하다. 최근 일본의 전력중앙연구소(CRIEPI)는 전해정련 공정을 근간으로 한 건식처리공정을 적용하여, 습식 재처리공정에서 발생하는 고준위폐기물로부터 TRU 원소를 회수하고, 이를 FBR 금속핵연료주기에 재순환하는 연구를 활발하게 수행하고 있다[1].

나. 공정 설명[25~27]

전해정련공정은 금속 핵연료의 용해공정, 전해반응을 이용한 우라늄 및 TRU 금속의 분리 및 회수 공정, 용융염 및 용융금속 회수공정으로 구성된다. 금속 전환체 혹은 IFR 금속핵연료는 500 °C 온도 및 LiCl-KCl 용융염계의 조건에서 $CdCl_2$ 에 의해 염화물로 전환된다. 용해공정에서 NM 계열의 핵분열생성물을 제외한 모든 금속원소는 염화물로 전환되는 특성을 갖고 있다.

전해정련공정은 그림 9와 같이 공융조성의 LiCl-KCl 용융염과 Cd 용융금속의 전해조, 음극 바스켓, 고체 전극 및 액체 Cd전극으로 구성된다. 금속 핵연료는 1/4 in 크기로 피복관과 함께 절단되고, 음극 용해법에 의해 용융염계에 용해된

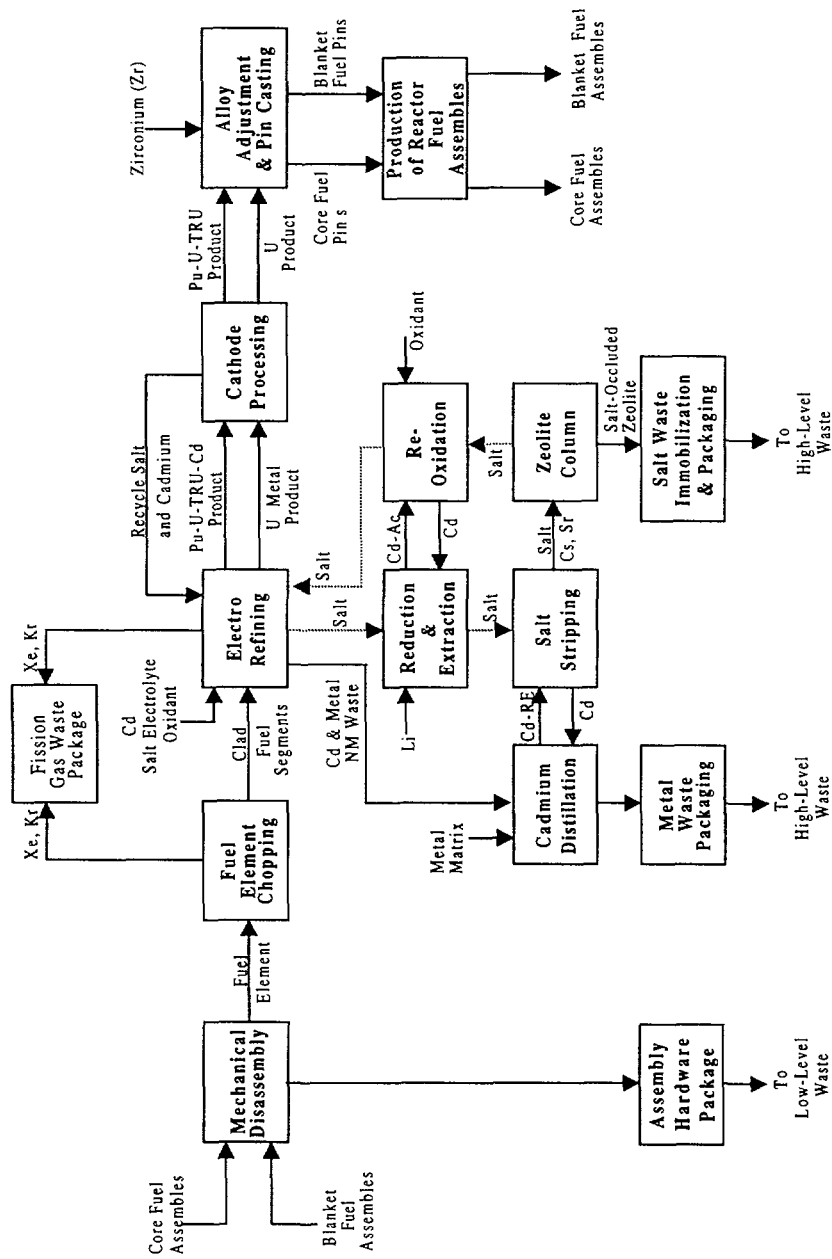


Fig. 8. Flowsheet of electrorefining process.

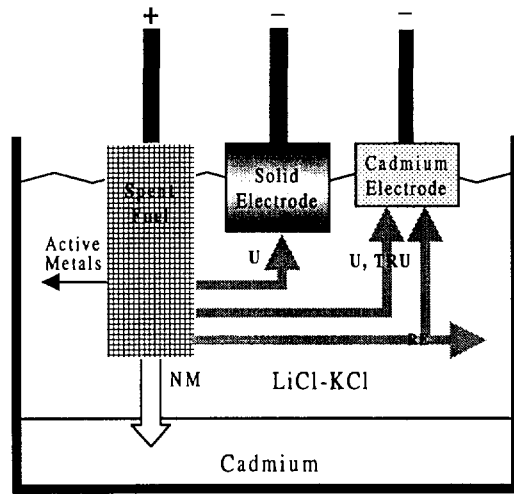
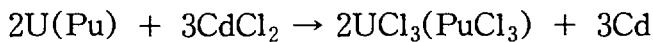
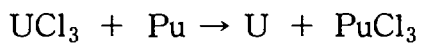


Fig. 9. Schematic representation of electrorefining process.

다. 용해공정은 바스켓을 직접 $CdCl_2$ 와 접촉하여 용해하는 방법과 용융염이 존재하는 조건에서 바스켓에 일정 전위를 공급하는 조건에서 용해하는 음극 용해법으로 구분된다. 특히 음극 용해법은 전자의 화학반응에 의한 용해법보다 용해속도가 매우 빠른 장점이 있다. 금속핵연료는 $CdCl_2$ 와의 반응에 의해 금속으로 전환되고, 반응 부생성물인 Cd 금속이 생성된다.



용융염계에 용해된 우라늄과 TRU 원소는 우선 고체전극에 전위를 공급하고, 우라늄 금속만을 회수한다. 용융염계에 존재하는 플루토늄이 일정농도에 도달하면 양극을 액체 Cd 양극으로 교체하고, 잔류 우라늄과 TRU 금속을 회수한다. 특히 전해반응에 의해 회수된 플루토늄 금속은 다음과 같은 반응에 의해 재용해되고, 우라늄 금속이 생성된다. 이를 방지하기 위해 2 종류의 양극을 사용하여 우라



늄과 TRU 금속을 분리 회수한다. 액체 Cd 양극은 플루토늄과 금속화합물을 형성하는 반면 우라늄과는 금속화합물을 형성하지 않는다. 이로 인해 액체 Cd 양극의 전해반응에서 우라늄과 플루토늄의 자유에너지 변화 값은 거의 유사하게 되고, 우라늄, 플루토늄 및 MA를 거의 동일한 전위조건에서 회수 가능하다. 고체양극과 액체 Cd 양극에서 회수된 우라늄과 플루토늄은 1300 °C의 온도조건에서 각각 용융시켜 회수하고, Cd 금속은 증발공정에 의해 분리 및 회수된다. 회수된 우라늄 금속과 TRU 금속은 성분분석 및 계량후 로심연료 및 브랑킷 연료의 조건에 적합하도록 성분조절하고, 사출성형에 의해 IFR 핵연료를 제조한다.

전해정련공정은 전술한 바와 같이 FP-2,3 핵분열생성물이 포함된 용융염과 FP-4 핵분열생성물이 포함된 용융금속의 폐기물이 발생된다. 폐 용융금속은 증류에 의해 Cd를 회수하고, 불용성 잔류물은 고화처리한다. 특히 전해정련공정의 용융염은 재순환과정에서 고방열성 물질인 Cs 및 Sr의 축적으로 인해 온도제어 어려움과 회수물질의 불순물 함량 증가의 원인이된다. 재순환 용융염은 이들 물질이 한계농도 이상 존재할 경우에는 일부를 제거하고, 새로운 용융염을 보충해야 한다. 폐 용융염은 그림 8과 같은 일련의 처리과정을 거쳐 TRU 및 핵분열생성물을 분리하고, 정제된 용융금속과 용융염을 재순환한다. 폐 용융염의 처리공정은 용융염 추출공정, 용융염 역추출공정과 제올라이트 흡착공정으로 구성된다. 용융염 추출 및 역추출공정은 폐 용융염에 존재하는 RE 계열의 핵분열생성물과 TRU 염화물을 각각 우라늄과 Li-Cd 금속의 환원제를 이용하여 금속으로 전환하고, 이를 Cd 용융금속계로 추출하여 분리한다. salt extraction 공정에서 99 %의 TRU 원소와 20~30 %의 RE 원소가 분리되고, 나머지 잔류 TRU와 RE 원소는 stripping 공정에서 제거된다. 이와 같은 처리과정을 거친 용융염계에는 Cs, Sr 및 I 등의 원소만 존재하고, 이들 원소는 제올라이트를 이용하여 흡착 제거하고, 용융염은 전해정련 공정으로 재순환된다.

제 3 장 건식처리공정의 핵비확산성 및 기술성 분석

1. 금속전환공정

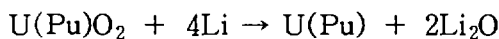
산화물 핵연료를 금속으로 전환하는 공정은 Li 공정과 Ca 환원공정으로 구분된다. Li 공정은 LiCl 용융염계에서 산화물 핵연료를 직접 Li 금속으로 환원하여 금속으로 전환한다. Ca 환원공정은 용융염 이송공정의 전처리 공정으로 CaCl₂ 용융염 및 Cu-Mg 용융금속계에서 산화물 사용후핵연료를 Ca 금속으로 환원하여 금속으로 전환한다. Ca 환원반응 조건은 Li 공정과는 달리 용융염계 이외에 Cu-Mg 용융금속이 존재하는 조건에서 진행된다. 이는 용융염과 용융금속간의 분배계수를 이용하여 원소를 분리하는 후속공정인 donor-acceptor 공정과 Ca 환원공정과의 운전연계성 측면을 고려하여 사용된다. 그리고 산화물 환원공정에서 용융금속의 존재는 용융금속에 대한 용해특성을 이용하여 우라늄과 플루토늄의 상호 분리 가능성을 제시한다.

금속전환공정의 계통분석은 Li 공정과 용융염 이송공정을 대상으로 수행한다. 특히 용융염 이송공정은 우선 용융금속이 없는 조건과 용융금속이 존재하는 조건에서 Ca 환원반응을 분석하고, 그 다음에는 후속공정인 donor-acceptor 공정을 고려한 조건에서 우라늄과 플루토늄의 분리성, 제염성 및 기술성에 대한 분석을 수행한다.

가. 우라늄과 플루토늄의 분리성

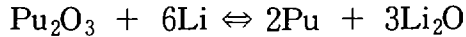
(1) Li 공정

Li 공정에서 우라늄과 플루토늄 산화물은 650~725 °C 온도의 LiCl 용융염계에서 Li 금속과 반응하여 금속으로 전환되며, 이의 반응식은 다음과 같다.



우라늄과 플루토늄의 환원반응은 자유에너지 변화($\Delta G_{725^\circ\text{C}} = -4.67 \text{ kcal/mol}$) 값이 음의 값을 나타내는 것으로 보아, 열역학적 측면에서 환원반응이 충분히 진행될 것으로 추정된다. 그러나 3가의 플루토늄 산화물의 환원반응은 자유에너지

변화값이 양의 값을 나타내고, 용융염계에서 Li_2O 의 농도가 높으면 역반응이 진



행될 것으로 추정된다. 따라서 3가의 플루토늄 산화물과 플루토늄 금속이 공존하는 불완전한 환원반응이 진행될 가능성이 있으나, 플루토늄 산화물의 불완전한 환원은 용융염계의 Li_2O 농도 제어에 의해 배제할 수 있다. 그리고 플루토늄을 포함한 TRU 원소는 다음과 같은 반응식에 의해 산염화물로 전환되고, 용융염계에 용해되는 특성을 갖고 있다. 그러나 산염화물 생성율은 극히 낮을 것으로 추정된다.

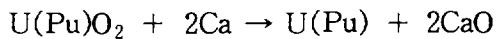


플루토늄 산화물은 용융염계에서 소량의 산염화물(1~3 %)을 생성하는 특성이 있으나, Li 환원반응에서 우라늄과 플루토늄 화학적 거동은 거의 유사하다. 환원된 우라늄 및 플루토늄 금속은 용융염계에 침전상태로 존재한다. Li 공정에서 우라늄과 플루토늄의 화학적 거동을 고려할 때, 용융염계에서 화학반응 메커니즘에 의한 우라늄과 플루토늄의 분리는 불가능하다. Li 공정에서 우라늄과 플루토늄 산화물의 금속 전환율은 대체로 99 % 이상을 나타내고 있다.

(2) Ca 환원공정

(가) CaCl_2 용융염계에서의 Ca 환원공정

용융염 이송공정의 Ca 환원공정은 일반적으로 후속공정인 donor-acceptor 공정을 고려하여 CaCl_2 용융염 및 Cu-Mg 용융금속계에서 수행된다. Ca 환원공정에서 우라늄과 플루토늄의 분리성은 우선 용융금속이 존재하지 않는 조건에서 분석하였다. Ca 환원공정에서 우라늄과 플루토늄 산화물은 Ca 금속과 반응하여 금속으로 전환되며, 이의 반응식은 다음과 같다.



Ca 환원공정에서 우라늄과 플루토늄의 화학적 거동은 Li 공정과 비교하여 거의 유사하나, 반응온도와 금속 전환율 측면에서 유리함을 나타내고 있다. 금속으로 전환된 우라늄과 플루토늄 금속은 용융염계에 침전상태로 존재하기 때문에,

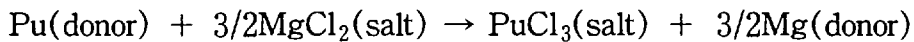
화학반응 메카니즘에 의해 우라늄과 플루토늄 분리는 불가능하다.

(나) CaCl₂ 용융염 및 Cu-Mg 용융금속계에서의 Ca 환원공정

Cu-Mg 용융금속은 Ca 환원공정의 반응속도 및 반응 메카니즘에 전혀 영향을 미치지 않는다. 그러나 Cu-Mg 용융금속은 플루토늄 금속과 RE 핵분열생성물에 대해서 비교적 큰 용해도 값을 갖고 있으나, 우라늄 금속에 대해서는 비교적 낮은 0.177 wt%의 용해도 값을 갖고 있다[28]. Cu-Mg 용융금속계의 Ca 환원공정은 상기와 같은 Cu-Mg 용융금속의 용해특성을 이용하여 우라늄과 플루토늄 금속의 분리가 가능하다. 표 5는 Cu-Mg 용융금속과 CaCl₂ 용융염계에 대한 TRU 원소의 분포를 나타낸 것으로, Np 원소를 제외한 대부분의 TRU 원소는 Cu-Mg 용융금속계에 존재함을 나타내고 있다. Li 공정과 CaCl₂ 용융염계의 Ca 환원공정과 비교하여 Cu-Mg 용융금속계의 Ca 환원공정은 우라늄과 플루토늄의 분리가 가능함을 나타내고 있다. NM 계열의 핵분열생성물도 우라늄 금속과 같이 Cu-Mg 용융금속에 대해 낮은 용해도 값을 갖고 있기 때문에 우라늄 금속과 함께 동반 침전된다. Cu-Mg 용융금속계의 Ca 환원공정에서 우라늄과 플루토늄, TRU 원소의 금속전환율은 99.8 % 이상 나타내고 있다.

(3) Donor-acceptor 공정

Ca 환원공정에서 Cu-Mg 용융금속의 용해도 차에 의해 우라늄 금속과 분리된 TRU 원소는 donor-acceptor 공정에서 회수된다. Cu-Mg 용융금속계에 용해된 플루토늄을 포함한 TRU 원소는 donor(Cu-Mg) 용융금속과 MgCl₂ 용융염, acceptor(Zn-Mg) 용융금속과 MgCl₂ 용융염간의 분배계수 차를 이용하여 분리가 가능하다. 용융금속계에 존재하는 플루토늄과 TRU 원소는 우선 donor 용융금속과 MgCl₂ 용융염계에서 다음과 같은 반응에 의해 염화물로 전환된다.

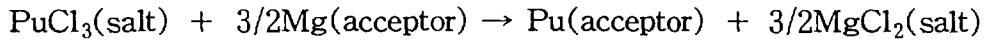


염화물로 전환된 TRU 원소는 MgCl₂ 용융염과 acceptor 용융금속으로 이송되고, 다음과 같은 반응에 의해 TRU 염화물은 acceptor 용융금속과 반응하여 다시

표 5. TRU element distribution and conversion rate in reduction step

	% of amount charged				
	Pu	Am	Np	Ce	Nd
Reduction salt	0.3	0.2	0.3	ND	ND
Uranium ingot	2.3	1.9	32.5	ND	ND
Cu-Mg ingot	97.4	97.9	67.2	100	100
Conversion(%)	100	99.9	99.8	-	-

금속으로 전환된다.



Zn-Mg 용융금속계의 TRU 금속은 증발과정을 거쳐 회수된다. 특히 용융염과 용융금속간의 TRU 원소의 분배계수의 차는 비교적 작기 때문에 높은 회수율을 얻기 위해서 수 회의 용융금속간 용융염의 이송조작이 요구된다. 표 6과 7은 TRU 원소의 분배계수와 용융금속간의 용융염 이송조작 회수에 따른 TRU 원소의 회수율을 나타낸 것으로 1 회 용융염 이송조작에 따른 회수율이 비교적 낮음을 알 수 있다.

Donor-acceptor 공정은 용융염 이송조작 횟수에 대한 분리효율이 극히 낮지만, 용융염과 Cu-Mg, Zn-Mg 용융금속간의 분배계수(용융금속의 분배계수는 Mg함량에 크게 변화)와 용해도 차를 이용하여 TRU 원소 및 우라늄의 분리가 가능함을 나타내고 있다.

⌘ 6. Distribution coefficients of TRU elements between salt and alloys

Elements	MgCl ₂ /Cu-Mg	MgCl ₂ /Zn-Mg
Pu	1.6	<0.05
Np	1.4	0.036
Am	15	0.38
Ce	0.49	0.028

⌘ 7. TRU element distribution in donor-acceptor process

	% of amount charged				
	Pu	Am	Np	Ce	Nd
Cu-Mg ingot	97.4	97.9	67.2	100	100
First salt transport cycle					
Cu-Mg	>34.1	6.5	26.9	31	23
Zn-Mg	>61.4	64.6	38.2	37	50
MgCl ₂	<1.9	26.4	67.2	32	27
Second salt transport cycle					
Cu-Mg	>12,7	1.5	9.3	<9	<12
Zn-Mg	>82.8	67.6	55.9	>57	<58
MgCl ₂	<1.9	30.3	2.0	>34	>30
Third salt transport cycle					
Cu-Mg	>4.9	1.4	6.7	<10	<10
Zn-Mg	>89.6	59.7	58.1	>66	>68
MgCl ₂	<2.9	36.2	2.4	>24	>22

나. 제염성

각 공정의 핵분열생성물 제염성은 용융염계에서 화학적 거동이 유사한 핵분열생성물을 그룹화하여 분석하였다. 핵분열생성물은 다음과 같이 4개의 그룹으로 구분할 수 있다.

- FP-1 : 휘발성 가스, H³, Xe, Kr 등
- FP-2 : 알카리 및 알카리 토금속 계열 원소, Cs, Rb, Ra, Ba, Sr, Eu, Te 등
- FP-3 : 전이금속 및 RE 계열 원소, Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Gd, Tb 등
- FP-4 : NM 계열 원소, Zr, Nb, Mo, Ru, Rh, Pd, Cd, In, Sn, Sb 등

FP-1 그룹의 핵분열생성물은 산화물 핵연료의 탈피복 단계에서 주로 가스상태로 배출된다. 각 공정의 제염성은 FP-2,3,4 의 핵분열생성물을 중심으로 분석하였다. Donor-acceptor 공정에서 회수된 우라늄과 TRU 금속에 대한 제염 가능성도 분석 하였다.

(1) Li 공정

Li 환원공정에서 핵분열생성물은 화학적 거동에 따라 다음과 같이 분류된다.

- LiCl 용융염과 반응하여 염화물로 전환 : 알카리 및 알카리 토금속, Eu
$$\text{Cs}_2\text{O} + 2\text{LiCl} \rightarrow 2\text{CsCl} + \text{Li}_2\text{O}$$
- Li₂O와 반응하여 일부 산염화물로 전환 혹은 미반응 상태로 존재 : RE
- Li 금속과 반응하여 Li 화합물로 전환 : I, Te, Sb, Se 및 Br
- Li 금속과 반응하여 금속으로 전환 : NM

염화물, 산염화물 및 Li 화합물로 전환된 핵분열생성물은 용융염계에 용해되는 특성을 갖고 있다. 알카리, 알카리 토금속 및 일부 RE 원소를 제외한 모든 핵분열생성물과 우라늄, 플루토늄은 동시에 Li 금속과 반응하여 금속으로 전환되기 때문에 핵분열생성물의 제염성이 극히 낮을 것으로 추정된다. 특히 Li 공정에서 고방열성 물질인 Cs과 Sr 원소의 선택적 분리성은 후속공정의 운전 및 취급조건을 완화시킬 수 있는 가능성을 제시한다.

(2) Ca 환원공정

(가) CaCl_2 용융염계에서의 Ca 환원공정

표 8과 같이 Ca 환원공정에서 알카리 및 알카리 토금속계열의 FP-2 핵분열생성물은 CaCl_2 용융염과 반응하여 염화물로 전환되고, 그외의 모든 핵분열생성물은 우라늄, 플루토늄과 같이 금속으로 전환된다. Ca 환원공정은 알카리 및 알카리 토금속 계열의 FP-2 핵분열생성물만 분리되기 때문에 핵분열생성물의 제염성이 극히 낮을 것으로 추정된다. Ca 환원공정도 고방열성 물질인 Cs과 Sr 원소를 선택적으로 제거되는 장점이 있다.

(나) CaCl_2 용융염 및 Cu-Mg 용융금속계에서의 Ca 환원반응

Ca 환원반응에서 Cu-Mg 용융금속은 핵분열생성물의 화학적 거동에 전혀 영향을 미치지 않는다. 전술한 바와 같이 Ca 환원공정에서 알카리 및 알카리 토금속 계열의 FP-2 핵분열생성물만 염화물로 전환된다. 그외 모든 핵분열생성물, 우라늄 및 플루토늄은 금속으로 전환되고, Cu-Mg 용융금속계에 침전 및 용해된다. 표 9와 같이 Cu-Mg 용융금속계에서 비교적 용해도가 낮은 우라늄과 FP-4 핵분열생성물은 침전상태로 존재하는 반면, TRU 및 FP-3 핵분열생성물은 Cu-Mg 용융금속계에 용해되는 특성을 갖고 있다[28].

Cu-Mg 용융금속이 존재하는 조건에서의 Ca 환원공정은 CaCl_2 용융염계의 환원공정과 비교하여 Cu-Mg 용융금속에 대한 FP-3 핵분열생성물 및 TRU 원소의 용해특성으로 인해 FP-2 핵분열생성물 이외에 FP-3 핵분열생성물이 추가로 제거된다.

(3) Donor-acceptor 공정

Ca 환원공정에서 우라늄, 플루토늄과 FP-3,4 핵분열생성물은 Cu-Mg 용융금속에 대한 용해 특성으로 인해 각각 분리된다. Cu-Mg 용융금속계에 용해된 상태로 존재하는 플루토늄과 FP-3 핵분열생성물은 donor-acceptor 공정을 이용하여 회수된다. 그리고 Cu-Mg 용융금속에 대해 용해도가 매우 낮은 우라늄과 FP-4 핵분열생성물은 Cu-Mg 용융금속계에 침전상태로 존재하기 때문에 회수가

표 8. Mass balance before and after reduction process

Component	Li reduction		Ca reduction		
	Salt	Precipitate	Oxide(wt)	Alloy(wt)	Salt(wt)
U		금속	64.464	64.464	
Pu	소량 산염화물 형성	금속	10.112	10.112	
FP-1			0	0	
FP-2	염화물		0.963		0.963
FP-3		Li화합물 형성	1.122	1.122	
FP-4		금속	1.66	1.66	
Li	과잉				
Ca				31.161 (2.833)	
Cu				277.8	
Mg				49.121	
CaCl ₂				113.941	113.941
CaO					39.636
Li ₂ O	용해도값 이내				

표 9. Solubility of U and TRU metal in Cu-Mg at 800 °C

Metal(wt%)		Solubility(wt%)				MgCl ₂ Salt (U wt%)
Mg	Cu	U	Pu	FP-3	FP-4	
19.3	79.8	0.91	high	high	low	0.122
33.7	66.1	0.177	high	high	low	0.039
46.7	53.2	0.0753	high	high	low	-

매우 용이하다. 본 공정에서는 각각 분리 회수된 용융금속계의 플루토늄을 포함한 TRU와 우라늄 금속의 제염가능성을 분석하였다.

(가) TRU의 제염성

전술한 바와 같이 TRU 금속은 Cu-Mg 용융금속계에 FP-3 핵분열생성물과 같이 용해된 상태로 존재한다. Cu-Mg 용융금속에 용해된 TRU와 FP-3 핵분열생성물 금속은 MgCl₂ 용융염과 반응하여 염화물로 전환된다. 염화물로 전환된 FP-3 핵분열생성물의 염화물은 MgCl₂ 용융염계에 존재하고, 우라늄, 플루토늄 및 FP-4 핵분열생성물의 대부분은 Cu-16 at% Mg 용융금속계에 존재한다. FP-3 핵분열생성물의 염화물을 함유한 MgCl₂ 용융염은 750 °C의 Zn-20 at% Mg 용융금속계로 이송되고, FP-3 핵분열생성물의 염화물은 금속으로 전환되고, Zn-20 at% Mg 용융금속으로 추출된다.

표 10과 같이 FP-3 핵분열생성물과 플루토늄의 분배계수는 donor 용융금속과 MgCl₂ 용융염계에서 10.7, 0.037, 그리고 acceptor 용융금속과 MgCl₂ 용융염계에서 0.0127, 1.7×10^{-4} 를 나타낸다. 상기의 분배계수를 고려할 때 FP-3 핵분열

생성물은 플루토늄으로부터 분리가 가능함을 알 수 있다. 용융염의 이송횟수에 따른 분리효율은 매우 낮지만, 용융염의 반복 순환으로 donor 용융금속으로 부터 FP-3 핵분열생성물은 높은 효율로 제거가 가능함을 나타내고 있다. 미국의 ANL 연구소는 이런 관점에서 핵비확산성의 요건을 만족하기 위하여 FP-3 핵분열생성물의 약 10 %만이 제거되고, 나머지 90 %의 FP-3 핵분열생성물은 플루토늄과 같이 공존하도록 용융염 이송공정의 개념을 설정하였다.

(나) 우라늄 금속의 제염성

FP-4 핵분열생성물이 함유된 우라늄 금속은 donor 용융금속으로 부터 회수된다. FP-4가 함유된 우라늄 금속은 교반조건에서 $MgCl_2$ 용융염 및 Cu-Mg 용융금속계에서 염화물로 전환된다. UCl_3 가 포함된 용융염은 Zn-Mg 용융금속계

표 10. Distribution coefficient and solubility in donor-acceptor

Operation	Temp (°C)	Distribution coefficient			Solubility in alloy(wt%)		
		FP-3	Pu	U	FP-3	Pu	U
FP-3 Donor	800	10.7	0.037	0.0015	high	high	4.1
FP-3 Acceptor	750	0.0127	1.7×10^{-4}	7.0×10^{-5}	12.0	12.0	5.0
U Donor	850	-	-	0.41	high	high	7.5
U Acceptor	750	-	-	0.004	high	12.0	5.0

로 이송되고, Zn-Mg 용융금속계에서 우라늄 염화물은 금속으로 전환된다. 우라늄 금속의 donor-acceptor 단계에서 RE 계열의 FP-4 핵분열생성물은 염화물로 전환되지 않고, 금속 상태로 존재하기 때문에 우라늄 금속만의 회수가 가능하다. 표 10과 같이 MgCl₂ 용융염과 Cu-Mg 용융금속간의 우라늄 분배계수는 매우 작기 때문에 용융염 이송횟수 당 우라늄의 분리효율이 매우 낮다. 우라늄은 용융염의 6 회 순환과정에서 초기 우라늄 농도의 약 50 % 만이 donor 합금에서 acceptor 합금으로 이동되고, 99 % 이상을 이동시키기 위해서는 약 26 회의 용융염 순환과정이 요구된다.

다. 기술성

(1) 공정의 운전성

환원공정에서 사용되는 용융염과 Li, Ca 금속은 흡수성과 환원성이 크기 때문에 무수분 및 무산소 분위기의 글로브 박스에서 취급해야 하는 어려움이 있다. 특히 환원공정은 용융염과 Li, Ca 금속과의 밀도차로 인해 용융염계에 적절한 분산을 위해서는 800 rpm 이상의 고속 교반이 이루어져야 한다. 특히 반응부생성물인 CaO 및 Li₂O는 환원 전환율에 큰 영향을 미치기 때문에 용융염계에 용해도 이상으로 존재하지 않도록 반응조건을 제어하여야 하는 어려움이 있다.

환원 전환율은 표 11에서 보는 바와 같이 대체로 Ca 환원공정이 Li 공정보다 약간 높게 나타내고 있으나 대체로 95 % 이상의 전환율을 나타내고 있다. 환원 반응 온도는 Ca 환원공정이 Li 공정보다 약 100~150 °C 높은 조건에서 수행된다. 특히 Ca 환원공정은 CaCl₂ 용융염의 부식성으로 인하여 재료의 선정에 제약이 있다. Ca 환원공정은 내부식성이 있는 세라믹, 탄화물 및 질화물 재질 도가니의 사용을 고려하였으나, 고순도 도가니 제작의 어려움과 고가의 제작비용, 일부 구성원소와 Ca과의 반응성 등으로 인하여 만족스런 결과를 얻지 못하였다. 이런 점에서 Li 공정은 저탄소강 혹은 스테인레스 스틸 재질의 도가니를 사용할 수 있기 때문에, Ca 환원공정에 비해 부식성 측면에서 큰 강점을 갖고 있다.

반응온도 및 부식성 이외에 공정의 구성 측면에서도 Li 공정은 Ca 환원공정과 donor-acceptor 공정으로 구성된 용융염 이송공정에 비해 공정이 단순하고,

표 11. Reduction rate of Li and Ca reduction process

Oxide reduced	Ca process	Li process
UO ₂	100.0	100.0
PuO ₂	99.8	99.0
NpO ₂	99.8	97.0
AmO ₂	99.9	93.0

공정운전이 용이하다. Ca 환원공정은 물론 용융금속이 존재하지 않는 조건에서도 환원반응이 가능하지만, 후속공정인 donor-acceptor 공정을 고려하여 용융금속계의 조건에서 수행되어야 한다. 특히 donor-acceptor 공정을 고려한 용융염 이송 공정은 환원공정이외에 Cu-Mg 용융금속과 침전물질의 분리공정과 donor-acceptor 공정이 추가로 요구된다. 특히 donor-acceptor 공정은 원소의 분배계수 차가 비교적 작기 때문에 회수율을 높이기 위해서는 수 십회의 용융염 반복순환이 요구된다. 그리고 고온조건에서 용융금속과 용융염의 이송조작이 요구되기 때문에 운전성 측면에서 매우 불리하다.

(2) 폐기물 발생량

반응이 완료된 용융염계에는 부생성물인 Li₂O와 CaO가 각각 존재한다. Li 공정과 Ca 환원공정은 용융염계의 Li₂O와 CaO를 전기분해하여 환원제인 Li과 Ca, 용융염을 회수하고, 이를 재사용하여 폐기물의 발생량을 최소화하는 장점이 있다. Ca 환원공정의 전기분해 셀은 Cu-Mg 용융금속 자체를 양극으로, 탄소를 음극으로 사용하는 조건에서 전기분해반응을 진행한다[29]. Li 공정은 초기에 스텐인레스 스틸 봉을 양극으로 사용하고, 스텐인레스 스틸 봉에 석출된 Li 금속이

용해되어 용융염 상단에 액체 Li 금속 층이 형성이 되면 이를 양극으로 사용한다. 전기분해 반응측면에서 Li 회수공정은 Ca 회수공정에 비해 용융염과 Li₂O의 분해전압 차가 크기 때문에 높은 전류밀도(Ca 회수: 170 mA/cm², Li 회수: 540 mA/cm²)의 적용이 가능하며, 전기분해속도와 전류효율(Ca 회수: 70 % , Li 회수: 91 %)이 비교적 높게 나타나고 있다.

용융염계의 환원반응 특성상 Li 공정과 Ca 환원공정에서 고방열성 물질인 Cs 과 Sr은 염화물로 전환되고 용융염계에 존재한다. 이들 물질은 용융염보다 환원 전위가 크기 때문에 전기분해 방법에 의해도 제거가 불가능하며 용융염과 동반되어 재순환된다. 용융염계에 이들 물질이 한계농도 이상 존재할 경우에는 고방열성으로 인해 용융염의 일부를 제거하고 새로운 용융염을 보충해야 한다. Li 공정에서 제거된 폐용융염은 제올라이트를 이용하여 염내포 혹은 Cs 혹은 Sr을 선택적으로 흡착제거하고, 용융염을 재순환 시킨다. Ca 환원공정에서 일부 제거되는 폐 CaCl₂ 용융염은 CaCl₂ 용융점(772 ℃)이상의 온도에서는 제올라이트의 상변화로 인해 염내포가 불가능하다. 따라서 Ca 환원공정에서 제거된 폐용융염은 재순환이 불가능하다. 폐기물 발생량 측면에서 Ca 환원공정이 약간 Li 공정보다 불리할 것으로 추정된다.

Li 공정은 전해정련공정과 동일 종류의 LiCl 혹은 LiCl-KCl 용융염을 사용한다. 그러나 용융염 이송공정은 전해정련공정과 다른 CaCl₂와 MgCl₂ 용융염의 사용으로 인해 폐용융염 처리공정이 추가로 요구되고, 공정의 연계성 측면에서 불리한 단점이 있다.

(3) 기술의 적용성

미국의 ANL 연구소에서 개발된 Li 공정과 용융염 이송공정은 전해정련공정과 연계하여 산화물 핵연료를 IFR 핵연료주기에 재순환 목적으로 개발된 공정으로, 악티나이드 재순환 프로그램에서는 최종적으로 반응온도, 부식성, 발생 폐기물 종류 및 발생량 측면에서 유리한 Li 공정을 선정하였다. Li 공정과 용융염 이송공정의 Ca 환원공정은 용융염계의 금속전환과정에서 고방열성 물질인 Cs 및 Sr 등의 일부 핵분열생성물만 제거되고, 기타 다른 핵분열생성물 등이 우라늄

및 플루토늄 금속과 같이 공존하기 때문에 금속전환공정은 핵비확산성 기준을 만족한다고 볼 수 있다.

특히 Li 공정과 용융염 이송공정은 산화물 핵연료의 재순환 목적 이외에 산화물 핵연료를 금속으로 전환하여 회수 가능한 형태로 저장 혹은 사용후핵연료 처분 전처리공정의 대안공정으로 적용 가능성을 제시한다. 특히 상기의 공정에서 고방열성 물질인 Cs 및 Sr의 선택적 제거와 금속전환은 부피와 발열량을 대폭 줄일 수 있는 장점이 있다. 이런 관점에서 금속전환체를 저장관리할 경우, 저장시설의 저장성 향상과 저장 안전성요건의 완화가 가능할 것으로 판단된다.

특히 Li 공정은 우리 나라와 같이 사용후핵연료 관리정책의 미결정국등이 현재 직면하고 있는 소내 저장용량의 포화 문제점의 해결방안으로, 산화물 핵연료를 고밀도 저장 가능한 금속 형태로 변환하고, 이를 회수 가능한 형태로 건식저장하는 신 개념인 사용후핵연료 차세대 관리방안에 적용할 만 한 가치가 있을 것으로 판단된다.

상기에서 제안한 바와 같이 양 공정은 차세대 관리개념에 적용이 가능하나, 공정이 비교적 단순하고 반응성 측면에서 Li 공정이 매우 유리할 것으로 판단된다. ANL 연구소는 Li 공정을 IFR 핵연료주기에 적용할 목적으로 20 kg의 실증 실험을 통해 금속 전환기술과 장치에 대한 검증을 완료하였다. 이러한 관점에서 Li 공정은 기술 신뢰성 측면에서도 매우 유리할 것으로 판단된다.

2. 전해반응을 이용한 분리공정

전해 반응을 이용한 분리공정은 회수된 우라늄과 플루토늄의 형태에 따라 salt cycle 공정, DDP와 전해정련 공정으로 구분된다. 이들 공정은 전기화학적 방법에 의해 우라늄과 플루토늄을 분리하기 앞서 산화물 핵연료와 금속 핵연료를 용융염계에 용해하는 공정이 선행되어야 한다. 특히 salt cycle 공정과 DDP는 산화물 핵연료와 염소가스와의 반응에 의해 생성된 uranyl chloride, plutonium chloride의 용해특성과 전해특성을 이용하여 우라늄과 플루토늄 산화물을 회수한다. 전해정련공정은 전기화학적 방법에 의해 금속핵연료를 용융염계에 용해하고, 고체양극과 액체 Cd 양극을 이용하여 각각 우라늄과 TRU 원소를 회수한다.

본 계통분석에서는 미국과 러시아에서 개발된 전해정련 공정과 DDP를 중심으로 우라늄과 플루토늄의 분리효율 및 회수된 우라늄과 플루토늄의 제염성에 대한 분석을 수행하였다.

가. 우라늄과 플루토늄의 분리성 및 제염성

(1) 전해정련공정

전해정련공정은 전술한 바와 같이 IFR 핵연료주기의 핵심공정으로, IFR 금속핵연료는 물론 Li 공정과 연계하여 산화물 사용후핵연료의 처리가 가능하다. 전해정련공정은 용해단계와 전해 반응단계에서 핵분열생성물의 분리가 가능하다. 용해단계에서 핵분열생성물은 금속핵연료 혹은 금속전환체의 음극 용해과정에서 $CdCl_2$ 용융염과의 반응성에 의해 일부 분리되고, 두 번째 단계에서는 전해반응의 환원 전위차에 의해 분리된다.

그림 10의 전해정련공정의 물질수지에서 보는 바와 같이 금속핵연료의 용해과정에서 NM원소인 FP-4 핵분열생성물은 염화물로 전환되지 않고 금속상태로 Cd 용융금속계에 존재한다. 그러나 FP-2,3 핵분열생성물의 대부분은 $CdCl_2$ 용융염과 반응에 의해 염화물로 전환되고, 용융염계에 존재하는 특성을 갖고 있다. 전해정련공정의 대표적인 핵분열생성물의 제염계수는 표 12와 같고, 금속전환공정과 비교하여 핵분열생성물의 제거 효율이 매우 높음을 알 수 있다.

전해정련공정은 회수된 플루토늄 금속과 우라늄 염화물과의 반응, 그리고 플

표 12. FP decontamination of electrorefining process

Element	Decontamination factor
TRU	4.52
Ce	250
Y	1000
Nd	1500
RE	1000
Cs, Rb, Na	1500
Ba	1500
Sr	2000
NM	1000

루토늄의 함량 제어를 위해 2 종류의 전극을 이용하여 각각 우라늄과 TRU 금속을 회수한다. IFR 금속핵연료의 경우에는, 고체전극을 이용하여 약 70 %의 우라늄 금속을 회수하고, 나머지 30 %의 우라늄 금속과 TRU 금속은 액체 Cd 전극을 이용하여 회수한다. 고체전극과 액체 Cd 전극에서의 우라늄과 플루토늄의 회수율은 각각 99.5와 99.6 %로써 분리효율이 매우 높음을 알 수 있다.

상기의 결과를 고려할 때, 전해정련공정은 $CdCl_2$ 용융염과의 반응성과 환원 전위차를 이용하여 우라늄과 플루토늄을 분리하기 때문에 다른 건식처리공정과 비교하여 우라늄, 플루토늄 및 핵분열생성물의 분리 효율이 매우 높다.

(2) Dimitrovgrad dry process

DDP는 다른 건식처리공정과 비교하여 산화물 형태로 직접 회수한다는 점에서 크게 다르다. DDP는 용융염계에서 uranyl chloride와 plutonium chloride의 용해특성, uranyl과 plutonyl 이온의 전해특성을 이용하여 우라늄 및 플루토늄 산화물을 회수한다. DDP는 단위공정 구성 및 반응조건에 따라 결정형의 UO_2 ,

UO₂-PuO₂ 및 PuO₂ 회수가 가능한 장점이 있다. 산화물 핵연료는 염소가스와의 반응에 의해 산염화물 혹은 염화물로 전환되고, 공융조성의 NaCl-KCl 용융염계에 용해되는 특성을 갖고 있다. 특히 pyrographite 도가니의 탄소조건에서 모든 산화물은 염화물로 전환되기 때문에 염화물 전환특성과 용융염계의 용해특성차에 의한 원소의 선택적 분리가 불가능하다. 핵분열생성물은 단지 환원 전위차에 의해서 분리되기 때문에 금속전환공정 및 전해정련공정과는 화학적 거동이 근본적으로 다르다.

UO₂의 단독 전착공정은 1 V의 환원전위 조건에서 수행되며, 이 과정에서 환원전위가 유사한 Ru, Rh, Pd, Ag, Mo 및 Ni 등의 원소가 동시에 전착된다. 그외 Zr과 Nb 염화물 등도 전착된 UO₂와 반응하여 산화물로 전환되고, UO₂ 전착물과 함께 회수된다. UO₂의 단독 전착공정은 전해조건에 따라 99~99.5 %의 UO₂ 회수가 가능하며, 핵분열생성물의 제염계수는 표 13과 같다.

표 13. Decontamination factors on UO₂ partition electrolysis

Element	Decontamination factor
Zr, Nb	0.27
Ru	64
Cs	18,000
Ce	1,000
Pm	450
Eu	390
Pu	126
Am	690
Cm	1,570

$$* \text{ Decontamination factor} = \frac{(\text{FP}/\text{U})_{\text{initial melt}}}{(\text{FP}/\text{U})_{\text{deposited Oxide}}}$$

UO₂의 단독 전착공정은 UO₂ 회수이외에 UO₂-PuO₂ 공전착 및 PuO₂ 침전공정을 수행하기 앞서 용융염계의 우라늄 함량을 제어하는 단계로 이용되기도 한다. UO₂-PuO₂ 공전착 공정은 UO₂-PuO₂ 혼합물의 회수목적으로 수행하는 공정으로 용융염계에 존재하는 PuCl₄를 PuO₂Cl₂로 변환하는 반응이 선행되어야 한다. UO₂-PuO₂ 공전착 공정은 염소-산소의 혼합가스를 용융염계에 공급하는 조건에서 수행된다. 특히 공전착물의 UO₂ 분율은 전류밀도에 큰 영향을 받는 반면에 PuO₂의 분율은 용융염계의 plutonyl 이온농도에 영향을 받는다. 공전착물의 PuO₂ 함량은 최대 70 wt% 까지 가능함을 나타내고 있다.

PuO₂ 침전공정은 PuO₂ 회수 혹은 용융염계의 잔류 PuO₂를 제거하기 위한 공정으로, PuO₂만을 회수하기 위해서는 UO₂의 단독 전착공정에 의해 용융염계의 uranyl 이온을 우선 제거한다. 플루토늄 염화물은 산소가스와의 반응에 의해 플루토늄 산화물로 침전된다. 회수된 플루토늄 산화물의 제염계수는 표 14와 같고, 침전공정에서 약 99.5~99.9 %의 플루토늄이 회수된다.

우라늄과 플루토늄 분리 후의 용융염계에 존재하는 핵분열생성물 조성은 표 15와 같다. 용융염계에 잔류하는 핵분열생성물은 sodium phosphate를 용융염계에 가하여 침전시킨다. phosphate 염으로 침전된 핵분열생성물은 용융염에 용해되지 않고, 직접 유리와 같은 매질을 이용하여 고정화가 가능한 장점이 있다. 특히 용융염 정제공정은 표 15와 같이, sodium phosphate 처리 후에도 고방사성 물질인 Cs 원소는 제거되지 않고 용융염계에 잔류한다.

나. 기술성

(1) 공정의 운전성

전해정련공정과 DDP 공정은 전해반응을 이용한다는 점 이외에 회수물질의 형태, 용해 및 회수방법 등이 근본적으로 다르다. 전해정련공정은 공융조성의 LiCl-KCl(M.P. : 352 °C) 용융염과 Cd 용융금속계의 반응조건에서 수행되기 때문에 무수분, 무산소의 불활성 분위기를 유지해야 하는 제약조건이 있다. 그외 후속공정인 양극 전착물 처리공정과 사출성형공정도 회수된 우라늄과 플루토늄 금속의 산화성으로 인해 불활성 분위기를 유지해야 한다. 그러나 전해정련 공정은

表 14. PuO₂ Decontamination factors

Element	Decontamination factor
Zr	>400~600
Nb	>200
Mo	>380
Ru	>10 E3
Pd	>10 E3
Ag	10 E3
Ce	10~30
Nd	20~40
Sm	10~20
Eu	10 E3
Cs	>10 E4
Am	50
Fe	15~20
Cr	20
Ni	>80

* Decontamination Factor = $\frac{(FP/Pu)_{\text{initial melt}}}{(FP/Pu)_{\text{deposited Oxide}}}$

표 15. FP distribution in salt and slime

Element	Salt(wt%)	Slime(wt%)	비 고
Zr, Nb	-	-	- UO ₂ 전착공정에서 제거됨
Ru, Pd	traces	traces	"
Ag	traces	traces	"
Ce, Am	30~40	30~40	
Eu	60~70	60~70	
Fe, Cr, Ni	50	50	
Cs	100	-	- 용융염계 잔류

비교적 온도가 낮은 500 °C의 온도 조건에서 수행되며, 다른 염화물계의 용융염과 비교하여 부식성이 크지 않은 LiCl-KCl 용융염의 특성으로 인해 저 탄소강 혹은 스테인레스 스틸 재질의 도가니 사용이 가능한 장점이 있다.

DDP 공정은 단지 공융조성의 NaCl-KCl(혹은 NaCl-KCl-CsCl) 용융염계의 조건에서 수행되기 때문에 불활성 분위기를 유지해야 하는 제약이 없다. 특히 DDP 공정은 전해정련공정과 비교하여 직접 염소가스와의 염화반응에 의해 산화물 핵연료를 염화물로 전환하고, 용융염계에 용해시키는 점에서 크게 다르다. 우라늄 산화물은 대부분 uranyl chloride로 전환되고, 플루토늄을 포함한 대부분의 핵분열생성물은 염화물로 전환된다. 특히 용해과정에서 휘발성이 강한 Ru, Zr, Sn 등의 염화물은 과잉의 염소가스와 비말 동반될 가능성이 있다. 이들 가스는 가스세정기를 통해 제거되지만, 가스세정액의 방사능 오염으로 인해 폐기물의 처리에 대한 부담을 가중시킨다. DDP 공정은 용융염의 조성에 따라 반응온도가 다르지만 700 °C의 비교적 고온에서 수행되며, NaCl-KCl 용융염과 염소가스의 부식성으로 인해 재질 선정에 제약이 있다. 이러한 점을 고려하여 DDP 공정은 도가니의 재질을 기계적 강도와 내구성이 우수한 pyrographite로 선정하였으나,

용융염계의 탄소 침출로 인해 용해속도를 증가시키는 장점은 있으나, uranyl chloride가 uranium chloride로 전환되어 우라늄 회수율이 감소될 가능성이 있다.

전해정련 공정과 DDP는 각 단계의 공정이 동일 도가니에서 수행되기 때문에 공정의 운전이 비교적 용이하고, 공정이 단순하다. DDP의 PuO₂ 침전공정은 용융염계의 플루토늄 염화물을 산화하여 회수하기 때문에 침전된 PuO₂와 용융염을 고온의 조건에서 분리하여야 하는 어려움을 제외하고는 비교적 운전이 용이하다. 표 16과 같이 전해정련공정과 DDP 공정에서의 용해공정과 전해공정은 용융염계의 반응 특성상 반응속도가 매우 느린 단점이 있으나, 전해반응을 이용한 우라늄과 플루토늄의 회수율은 99 % 이상이고, 핵분열생성물의 제염계수도 비교적 높다.

표 16. Reaction condition of DDP and electrorefining process

DDP				Electrorefining		
Process	Temp (°C)	Time (h)	Recovery (%)	Process	Time (h)	Recovery (%)
Dissolution	700	30		Dissolution	27	
UO ₂ electrolysis	"	4	>94 % U 1.3 % Pu	U electrolysis	27	>70 %
PuO ₂ precipitation	"	21	>95% Pu	Pu electrolysis		>99 % *U<30%
PuO ₂ collection	"	0.3				
FP precipitation	"	12				

(2) 폐기물 발생량

전해정련공정과 DDP는 공정개발 초기단계부터 폐기물 처리공정도 병행하여 연구개발에 주력하였다. 특히 건식처리공정에서 발생하는 폐기물은 상당량

의 핵분열생성물을 함유하고 있고, 폐기물의 특성상 고온 조건과 불활성 분위기에서 취급해야 하는 제약이 있다.

전해정련공정에서 발생하는 폐기물은 용융염과 용융금속으로 구분된다. 이들 폐기물은 전술한 바와 같이 일련의 처리과정을 거쳐 최종적으로 Cs과 Sr 등을 흡착한 제올라이트와 비용해성의 NM 원소와 피복관 등의 금속을 Cu로 고정화한 금속폐기물만 발생한다. 정제된 용융염과 증발회수된 용융금속은 전해정련공정으로 재순환하여 폐기물의 발생량을 최소화한다.

그러나 DDP 공정은 공정의 특성상 과잉의 염소가스 제거를 위한 흡수장치, 전착물의 회수 및 잔류 용융염 제거과정에서 다량의 액체폐기물이 발생한다는 점 이외에 pyrographite 도가니의 내구성으로 인해 도가니 폐기물이 발생하는 단점이 있다. DDP 공정은 액체폐기물을 증발 회수하여 재순환, 도가니의 연소 등에 의해 폐기물 발생량의 최소화에 노력하였지만, 전해정련공정과 비교하여 다양한 폐기물이 발생하고, 처리공정이 복잡하다는 단점이 있다. 용융염의 핵분열생성물은 인산염으로 침전 고정화 처리되지만, 고방열성 물질인 Cs과 일부 Sr 등은 제거되지 않고 용융염에 존재한다. 그러나 수회 재순환된 용융염은 Cs과 Sr 등의 축적으로 인해 재순환 용융염 일부를 제거하고 새로운 염으로 보충해야 한다. 전해정련공정의 폐 용융염은 Cs과 Sr을 제올라이트에 흡착 처리되나, DDP의 폐용융염은 NaCl-KCl 용융염의 용융점(675 ℃)이상 온도에서 제올라이트의 상변화로 인해 염내포 혹은 흡착처리가 불가능하다. DDP 공정은 이런 점을 지적하지 않았으나, DDP 공정의 실제 폐기물 발생량은 상당히 많을 것으로 추정된다.

전해정련공정의 폐기물 처리공정은 용융금속 및 용융염으로 인해 불활성 가스 분위기에서 공정을 운전해야 한다는 단점이 있으나, DDP 공정과 비교하여 폐기물 종류 및 발생량, 처리공정의 최적화 측면에서 크게 유리할 것으로 추정된다.

(3) 기술의 적용성

전해정련 공정은 산화물 핵연료를 Li 공정에 의해 금속으로 전환된 금속 전환체 혹은 IFR 금속핵연료로부터 우라늄과 TRU 금속을 회수하여 IFR 핵연료 주기에 재순환 목적으로 개발된 공정이다. 반면에 러시아의 DDP는 산화물핵연료

를 대상으로 용융염계에서 염화반응과 전해 반응을 이용하여 직접 산화물 형태로 우라늄과 플루토늄을 회수하고, 이를 LWR 혹은 FBR 핵연료주기에 재순환 목적으로 개발되었다. 이들 공정은 회수된 우라늄과 플루토늄의 재순환 이외에 고준위폐기물 전처리 공정의 대안공정으로 적용 가능성을 제시한다. 특히 전해정련 공정은 Li 공정과 연계하여 금속전환체의 96 %를 점유하고 있는 우라늄 금속을 회수하여 저준위폐기물로 처분하고, 나머지 플루토늄을 포함한 TRU 원소 및 잔류 우라늄 금속은 저장 혹은 처분하는 방안도 최근 검토되고 있다. 상기의 공정에서 회수된 우라늄 금속은 처분이외에 회수가능한 형태로 건식저장의 가능성을 제시하고, 건식저장시설의 설계 및 안전성 요건 등을 완화시킬 수 있는 장점도 있다.

또한 러시아의 DDP 공정도 상기에서 기술한 바와 같이 UO_2 만을 회수하여 이를 저준위폐기물로 처분 혹은 회수 가능한 형태로 건식저장하고, 나머지 플루토늄을 포함한 TRU와 핵분열생성물은 산화법 혹은 인산염으로 동반 회수하여 일정기간 저장 혹은 처분하는 전처리 공정의 대안공정으로 적용할 수 있다.

그러나 전술한 바와 같이 전해반응을 이용한 이들 공정은 우라늄과 플루토늄의 분리성 및 제염효율이 높기 때문에 핵비확산성 측면에서 매우 불리하다. 또한 전해반응을 이용한 분리공정은 금속전환공정과 비교하여 우라늄과 플루토늄의 분리 및 고제염 등으로 인해 저장 안전성요건이 일부 완화될 것으로 추정된다. 그러나 전해반응을 이용한 공정을 추가하여야 한다는 점에서 핵비확산성과 경제성 등이 매우 불리할 것으로 추정된다.

제 4 장 종합평가 및 최적 공정도출

원자력 선진국에서 개발완료 혹은 개발중인 고온화학분리공정을 대상으로, 우라늄과 플루토늄의 분리성, 제염성 및 기술성 등에 대해 계통분석을 제한적으로 수행하였다. 주요 대상공정은 우선 산화물 핵연료의 부피와 일부 고방열성 물질의 선택적 제거에 의한 붕괴열 및 방사능의 감소가 가능한 용융염 이송공정, Li 공정, 전해정련공정 및 DDP로 제한하여 분석을 수행하였다. 종합평가에서는 그림 11과 같이 금속전환공정과 전해반응을 이용한 공정으로 구분하고, 설정된 6개 대안공정을 중심으로 평가하였다. 사용후핵연료 차세대관리 최적 공정을 도출하기 위해 전술한 핵비확산성과 기술성 평가 이외에 산화물 핵연료의 부피 감용률과 고방열성 핵분열생성물의 선택적 제거성의 항목을 추가하여 평가하였다. 각 공정의 종합평가는 항목별로 배점을 부여하고, 우열등급(우수 : 10점, 보통 : 6점, 열등 : 2점)에 따라 점수를 산출하여 평가하였다.

금속전환공정은 우라늄과 플루토늄, 알카리 및 알카리토금속을 제외한 핵분열 생성물 등이 모두 금속으로 전환되기 때문에 화학적으로 분리가 불가능하다. 알카리 및 알카리 토금속 계열 핵분열생성물은 용융염과의 반응에 의해 염화물로 전환된다. 상기의 특성은 금속전환공정에서 고방열성 물질인 Cs과 Sr의 선택적 분리와 산화물 핵연료의 부피를 약 1/4로 감용시킬 수 있는 장점을 제공한다. Li 공정과 Ca 환원공정은 모두 상기와 같은 화학적 특성을 갖고 있으나, Li 공정은 Ca 환원공정과 비교하여 반응온도 및 재질의 부식성 측면에서 매우 우수한 결과를 나타내고 있다.

특히 용융염 이송공정은 금속전환공정과 연속된 donor-acceptor 공정에서 용융금속의 용해특성, 용융염과 용융금속간의 분배계수 차에 의해 우라늄과 플루토늄의 분리, NM 및 RE 핵분열생성물의 추가 제염이 가능함을 나타내고 있다. 일반적으로 금속 전환공정은 Li 및 Cu 금속의 환원성, 용융염의 흡수성으로 인해 불활성 분위기를 유지해야 한다는 단점이 있지만, 공정의 단순성 및 신뢰성, 반응 전환율 측면에서 매우 유리한 장점을 갖고 있다. Li 공정은 제올라이트를 이용하

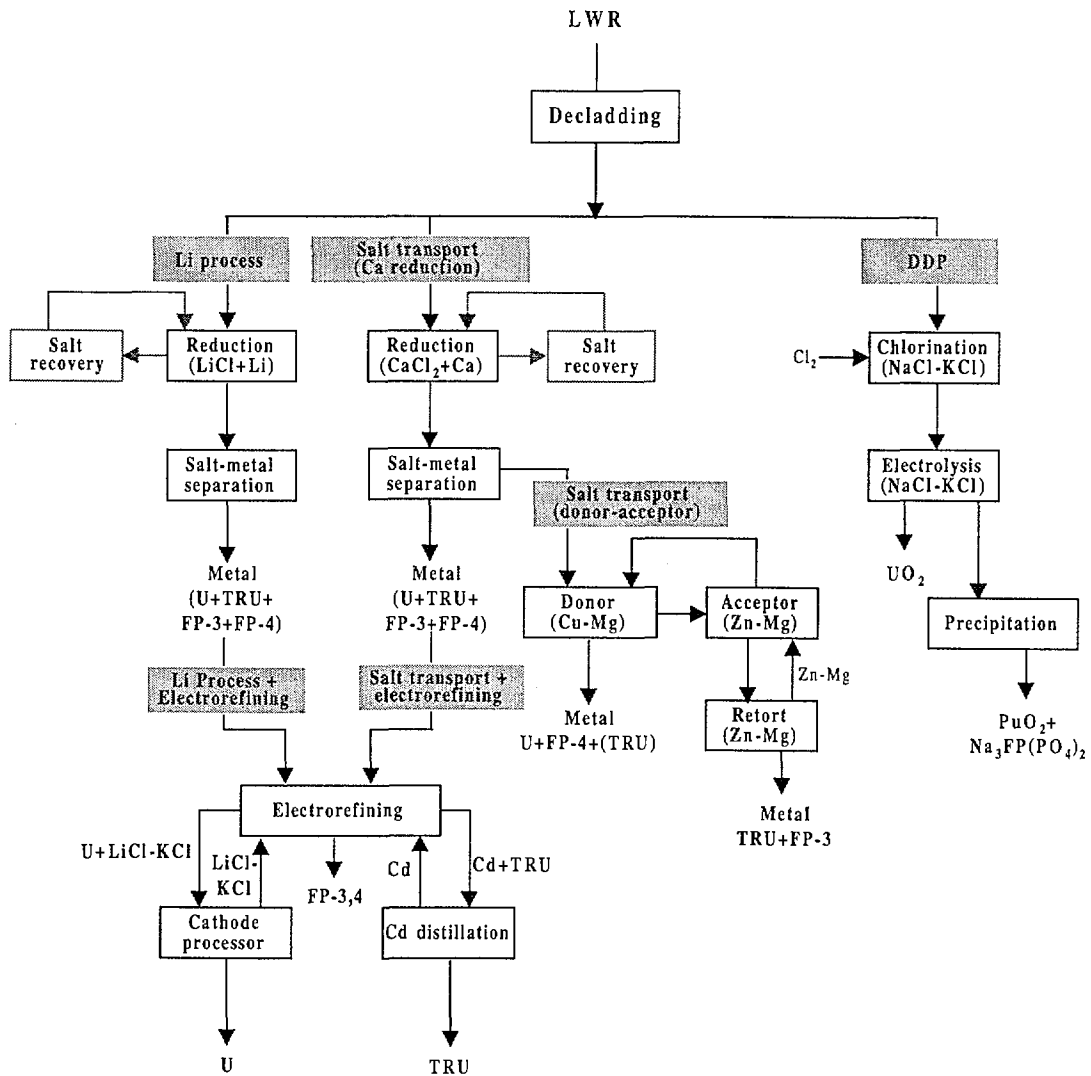


Fig. 11. Flowsheet of alternative process.

여 Cs과 Sr을 선택적으로 제거한 폐용융염을 재순환할 수 있다는 점 이외에 다른 공정에 비해 Li 금속의 회수 측면에서도 양호한 결과를 나타내고 있다.

금속전환공정과 연계된 전해정련공정은 용융염계에서 각 원소의 환원 전위차에 의해 선택적 분리가 가능함을 나타내고 있다. 고방열성 물질 이외에 핵분열생성물의 추가 제염과 우라늄, 플루토늄의 분리 등은 사용후핵연료 저장부피 감소와 저장 안전성요건 완화 측면에서 큰 잇점이 없고, 핵비확산성 측면에서도 바람직 하지 못한 것으로 판단된다.

용융염계의 염화반응과 전해특성을 이용한 DDP도 우라늄과 플루토늄의 분리성, 제염성 측면에서 매우 불리하다. 특히 DDP는 우라늄과 플루토늄을 산화물형태로 회수하기 때문에 부피 감용률 측면에서 6 개의 대안공정중 가장 불리한 결과를 나타내었다.

종합평가 결과는 표 17에 수록하였다. 금속전환공정은 전해반응을 이용한 분리공정에 비해 우라늄과 플루토늄의 분리성, 제염성 측면에서 크게 우수하였다. 핵비확산성 기준을 만족하기 위해서는 전해반응을 이용한 분리공정을 배제하는 것이 바람직 할 것으로 판단된다. 금속전환공정은 대체로 모든 평가항목에 대해 우수하였고, 특히 Li 공정이 부식성 및 반응온도 측면에서 Ca 환원공정에 비해 양호한 결과를 나타내었다.

종합평가 결과, Li 공정은 산화물 사용후핵연료의 금속 전환으로 부피 감용 이외에 붕괴열 및 방사능도 1/2로 감소되는 부가적인 효과를 나타내고, 핵비확산성 기준에 가장 부합된 공정으로 평가되었다. 사용후핵연료의 저장성 향상과 저장 안전성요건의 완화측면에서 Li 공정과 사출주조에 의해 제조된 금속 붕을 회수 가능한 형태로 건식저장하는 사용후핵연료 차세대 관리공정개념이 핵비확산성, 기술개발 가능성 및 적용성 측면에서 가장 유리할 것으로 판단된다. Li 공정을 근간으로 하는 사용후핵연료 차세대관리 공정의 flowsheet를 그림 12와 같이 제안하였다. 특히 상기의 flowsheet는 기존의 Li 공정에 voloxidation과 제올라이트 흡착단계를 추가하여 환원반응속도를 향상시키고, 폐기물의 발생량을 최소화 하는 독자성을 기하였다.

표 17. Comparative assessment of metallization, electrorefining and DDP

항목(가중치)	Li 공정	salt transport 공정		Li 공정+ 전해정련공정	salt transport 공정+전해 정련공정	DDP
		Ca 환원공정	Ca 환원공정+ Donor-Acceptor공정			
○ 핵비확산성(40) -우라늄과 플루토늄의 분리성(20) -체염성(20)	40 (20) (20)	40 (20) (20)	16 (4) (12)	8 (4) (4)	8 (4) (4)	8 (4) (4)
○ 기술성(30) -공정의 운전성(6) • 반응속도(2) • 반응분위기 제어성(2) • 부식성(2) -공정의 적용성(6) -폐기물 발생량(8) -공정의 단순성(5) -기술 신뢰성(5)	29.2 (5.2) (2) (1.2) (2) (6) (8) (5) (5)	22.8 (4.0) (2) (1.2) (0.8) (6) (4.8) (5) (3)	14.4 (3.2) (1.2) (1.2) (0.8) (3.6) (1.6) (3) (3)	19.6 (3.2) (0.8) (1.2) (1.2) (3.6) (4.8) (3) (5)	7.6 (2.8) (0.8) (1.2) (0.8) (1.2) (1.6) (1) (1)	12.8 (3.6) (0.8) (2) (0.8) (3.6) (1.6) (1) (3)
○ 부피 감용률(20)	20	20	20	20	20	4
○ 고방열성물질 선택적 제거성(10)	10	10	6	6	6	10
종합 평점	99.2	92.8	56.4	53.6	41.6	34.8

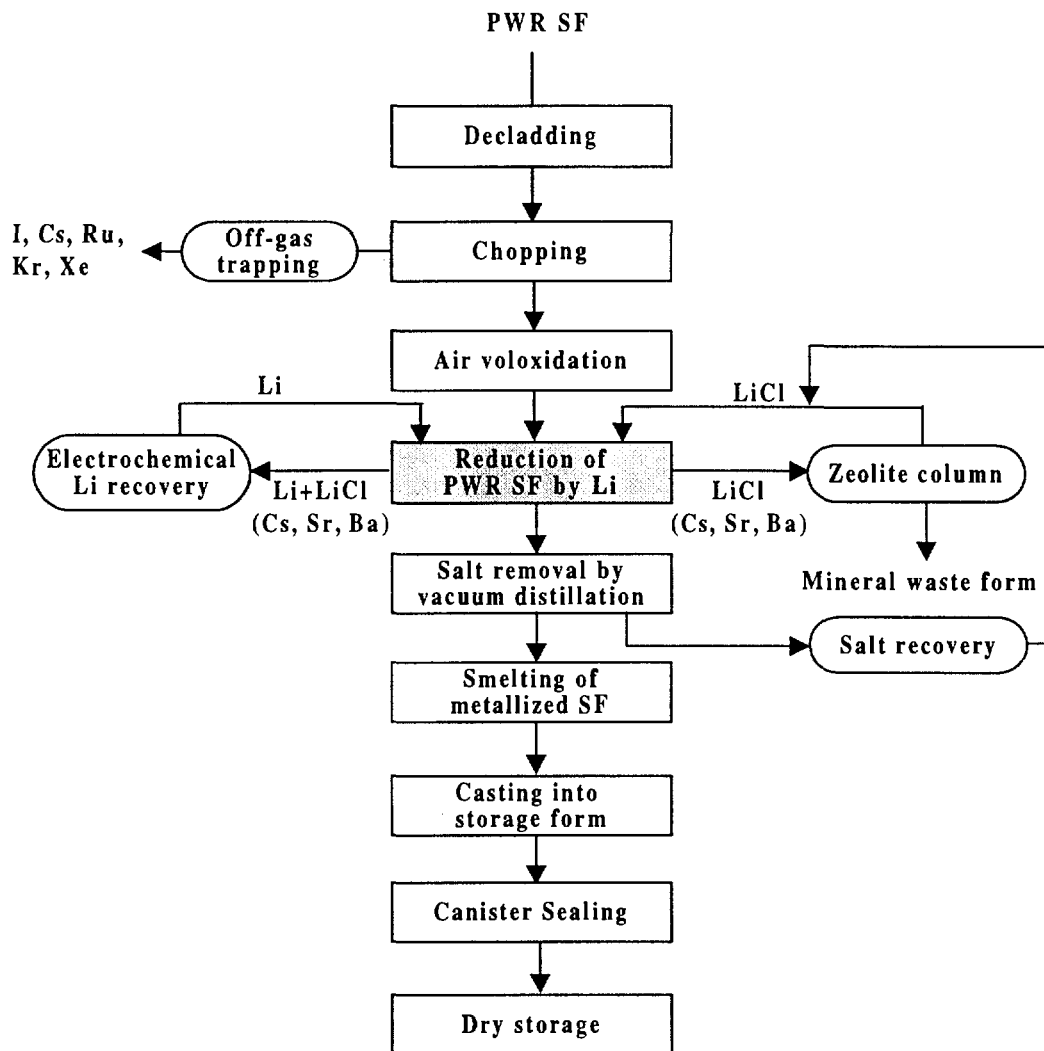


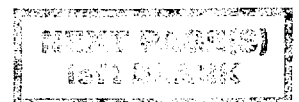
Fig. 12. Flow sheet of advanced spent fuel management process.

NUXT PACIFIC
 10/11/2000

제 5 장 결 론

원자력 선진국에서 개발완료 혹은 개발중인 건식처리공정을 대상으로 핵비확산성 및 기술성 등을 종합 평가한 결과, 사용후핵연료 차세대관리 공정에 적용가능한 공정은 Li 공정이 가장 유리한 것으로 평가되었다.

- Li 공정은 우라늄과 플루토늄, 알카리 및 알카리 토금속을 제외한 핵분열 생성물등이 모두 금속으로 전환되는 공정 특성으로 인해 우라늄과 플루토늄의 분리와 고제염이 불가능하며, 핵비확산성 기준을 만족한다.
- Li 공정에서 산화물 사용후핵연료는 금속 전환으로 부피가 1/4로 감용되고, 붕괴열 및 방사능도 1/2로 감소되는 부가적인 효과가 있다.
- 사용후핵연료 차세대관리공정은 사용후핵연료의 저장성 향상과 저장 안전성요건의 완화측면에서 Li 공정과 사출구조에 의해 제조된 금속 봉을 회수 가능한 형태로 건식저장하는 관리개념이 가장 유리할 것으로 판단된다.



참고 문헌

1. T. Inoue, M. Sakata, and H. Miyashiro, Development of partitioning and transmutation technology for long-lived nuclides, Nucl. Technol., Vol. 93, p. 206-220(1991).
2. C.C. Mcpheeters, R.D. Pierce, and T.P. Mulcahey, Pyroprocessing oxide spent nuclear fuels for efficient disposal, ANL/CMT/CP-84354(1994).
3. E.J. Karell, R.D. Pierce, and T.P. Mulcahey, Treatment of oxide spent nuclear fuel using the lithium reduction process, ANL/CMT/CP-89562(1996).
4. L. Burris, I.G. Dillon, The EBR-II skull reclamation process, ANL-6818(1964).
5. J.C. Hesson, M.J. Feldman, Description and proposed operation of the fuel cycle facility for EBR-II, ANL-6605(1963).
6. P.A. Nelson, J. Fisher, Pyrochemical processing of fuel materials and scrap containing plutonium-238, ANL-7709(1970).
7. G.E. Benedict, R.A. Nixon, Hanford Salt Cycle Process I (Plutonium Chemistry), HW-SA-3622(1964).
8. G.K. Johnson, R.D. Pierce, Pyrochemical recovery of actinide elements from spent light water reactor fuel, ANL/CMT/CP-80020(1994).
9. A.V. Bychkov, S.K. Vavilov, Pyroelectrochemical reprocessing of irradiated uranium-plutonium oxide fuel for fast reactor, Proceedings of GLOVAL'93, p. 1351~1356(1993).
10. 神山弘章, 러시아의 고온전기화학적 재처리기술, 原子力工業, 40, 10(1994).
11. O.V. Skiva, Yu.P. Savochkin, Technology of pyroelectrochemical reprocessing and production of nuclear fuel, Proceedings of GLOVAL'93, p. 1344~1350(1993).
12. O.V. Skiva, A.A. Mayorshin, Nuclear fuel cycle based on dry methods for fuel reprocessing and fuel elements manufacture automated processes,

- Proceedings of GLOVAL'93, p. 934~942(1993).
13. A.P. Kirillovich, Yu.G. Lavinovich, Radioactive wastes of fast reactor fuel cycle on the base of dry technology, properties, handling and reprocessing, Proceedings of GLOVAL'93, p. 1357~1362(1993).
 14. L. Burris, Recent Advances in Pyrometallurgical processes, Trans. Amer. Nucl. Soc., Vol. 4(2), p. 192~198(1961).
 15. D.A. Wenz, R.D. Wolson, Reduction of uranium dioxide in molten salt-metal system, ANL-7463(1968).
 16. A.V. Haribarn, J.B. Knighton, Preparation of metals by Mg-Zn reduction, ANL-7058(1965).
 17. J.B. Knighton, R.K. Steunenberg, Preparation of metals by Mg-Zn reduction, ANL-7059(1965).
 18. I. Johnson, The thermodynamics of pyrochemical processes for liquid metal reactor fuel cycles, CONF-8706258-2(1988).
 19. J.B. Knighton, I. Johnson, Uranium purification by the process of salt transport, ANL-7524(1969).
 20. I. Johnson, I.G. Dillon, The solubilities of metals in liquid zinc, ANL-7083(1965).
 21. G.K. Johnson, R.D. Pierce, and C.C. Mcpheeters, Pyrochemical recovery of actinide elements from spent light water reactor fuel, CONF-94024-4(1994).
 22. T.P. Mulcahey, G.K. Johnson, Recycle of LWR to an IFR, CONF-910413-1(1991).
 23. M. Fujie, Y. Shoji, and T. Kobayashi, Development of lithium process for reprocessing LWR spent fuel, Proceedings of GLOVAL'95, p. 1448~1453(1995).
 24. T. Usami, M. Iizuka, and T. Koyama, Analysis of reduction behavior of oxide fuels by lithium using UO_2 and simulated materials, Proceedings of GLOVAL'95, p. 1472~1477(1995).

25. M.J. Lineberry, R.D. Phipps, Fuel cycle and waste management demonstration in the program, ANL/CP-76370(1992).
26. J.P. Ackerman, T.R. Johnson, and J.J. Laidler, Waste removal in pyrochemical fuel processing for the integral fast reactor, ANL/CMT/CP-80021(1994).
27. J.E. Battles, J.J. Laidler, Pyrometallurgical processes for recovery of actinide elements, ANL/CMT/CP-81050(1994).
28. J.B. Knighton, C. Baldwin, Fuel cycle programs quarterly progress report(uranium-plutonium salt transport process), ANL-79-29(1978).
29. B. Mishra, D.L. Olson, Application of molten salts in pyrochemical processing of reactive metals, CONF-930219-1(1993)

서 지 정 보 양 식							
수행기관 보고서번호		위탁기관 보고서번호		표준보고서번호		INIS 주제코드	
KAERI/TR-1229/99							
제목/부제		사용후핵연료 차세대관리 공정개발/사용후핵연료 차세대관리 공정계통분석					
연구책임자 및 부서명		노성기(사용후핵연료 기술개발팀)					
연구자 및 부서명		강대승, 서중석, 이호희, 신영준, 박성원					
출판지	대전	발행기관	한국원자력연구소		발행년	1999. 3.	
페이지	61 p.	도표	있음(O), 없음()		크기	26 cm.	
참고사항							
비밀여부	공개(O), 대외비(), _ 급비밀		보고서종류		기술보고서		
연구위탁기관				계약 번호			
초록 (15-20줄내외)		<p>본 사용후핵연료 차세대관리공정 계통분석은 국내실정에 적합한 핵비확산성 차세대관리공정 개념의 설정 일환으로, 원자력 선진국에서 개발완료 혹은 개발 중인 건식처리공정을 대상으로 분석하였다. 주요 분석대상 공정으로는 우선 산화물 핵연료의 부피와 일부 고방열성 물질의 선택적 제거에 의한 붕괴열 및 방사능의 감소가 가능한 용융염 이송공정, Li 공정, 미국의 IFR 공정 및 러시아의 DDP로 하였다. 본 계통분석은 선정된 각 공정들의 우라늄과 플루토늄의 상호 분리성, 제염성 관점에서 추진되었으며, 최종적으로는 국내 실정에 적합한 핵비확산성 사용후핵연료 차세대관리 공정개념을 도출하였다.</p>					
주제명 키워드 (10단어 내외)	Dry treatment process, DDP, Li process, Salt transport process, Electrorefining process, Advanced spent fuel management process, Metallization process, Separation process using electrolysis, Decontamination, Characteristics of uranium-plutonium separation.						

BIBLIOGRAPHIC INFORMATION SHEET

Performing Org. Report No.	Sponsoring Org. Report No.	Standard Report No.	INIS Subject Code
KAERI/TR-1229/99			
Title/Subtitle	Development of advanced spent fuel management process/ process system analysis of advanced spent fuel management process		
Project Manager and Department	S. G. Ro (Spent fuel management technology research team)		
Researcher and Department	D. S. Kang, C. S. Seo, H. H. Lee, Y. J. Shin, S. W. Park		
Publication Place	Publisher	KAERI	Publication Date
			1999. 3.
Page	61 p.	Ill. & Tab.	Yes(O), No()
			Size
			26 cm.
Note			
Classified	Open(O), Restricted(), Class Document	Report Type	TR
Sponsoring Org.		Contract No.	
Abstract(15-20 Lines)			
<p>The system analysis of an advanced spent fuel management process to establish a non-proliferation model for the long-term spent fuel management is performed by comparing the several dry processes, such as a salt transport process, a lithium process, the IFR process developed in America, and DDP developed in Russia. In our system analysis, the non-proliferation concept is focused on the separation factor between uranium and plutonium and decontamination factors of products in each process, and the non-proliferation model for the long-term spent fuel management has finally been introduced.</p>			
Subject Keywords (About 10 words)	<p>Dry treatment process, DDP, Li process, Salt transport process, Electrorefining process, Advanced spent fuel management process, Metallization process, Separation process using electrolysis, Decontamination, Characteristics of uranium-plutonium separation.</p>		