

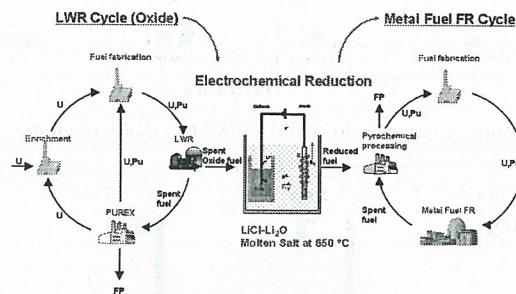
PWR 사용후핵연료 금속전환에 대한 연구

허진목, 정상문, 박병홍, 최은영, 강대승, 홍순석, 이한수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

jmhur@kaeri.re.kr

원자력은 급증하는 에너지 수요를 충족시키면서 이산화탄소 발생량을 줄일 수 있는 가장 유망한 에너지원으로서 각광을 받으며, 2009년 현재 전세계 31 개국에서 439 기의 원자력 발전소를 운전하고 있다. 한국원자력연구원에서는 PWR 사용후핵연료의 처분 부담을 경감시키는 한편, 사용후핵연료 내 가용 에너지 자원을 금속핵연료 주기에 순환시킬 수 있는 Pyroprocess를 1997년 이후 중점적으로 개발해 오고 있다. Pyroprocess는 본래 미국 Argonne National Laboratory에서 고속로의 금속연료를 재활용하기 위하여 개발하였으며, 전해정련 공정에 기반하고 있다. 이 전해정련 공정은 LiCl-KCl 공용융염 중에서 운전되며, 금속원료 중에서 악티나이드를 핵분열 생성물로부터 분리한다. 그런데 상용 PWR 원자로에서 발생하는 사용후핵연료는 산화물이다. 따라서, Pyroprocess에 금속전환 (oxide reduction) 공정을 결합시킴으로써, Pyroprocess를 현재의 상용 PWR 핵연료주기와 고속로에 기반한 금속핵연료주기 모두에 적용 할 수 있게 된다.



현재까지 개발된 대표적인 사용후핵연료 금속전환 공정으로는 Li 환원공정과 전해환원 공정이 있는데, 초기에 개발된 Li 환원공정이 최근 전해환원 공정으로 대체되고 있는 추세이다. Li 환원공정은 Li가 포화되어 있는 650 °C의 LiCl 용융염상에서 수행되며, 산화물 사용후핵연료는 Li와의 화학적 반응에 의하여 금속으로 전환되며, 이 과정에서 부산물로 Li₂O가 생성된다. 사용후핵연료 금속전환을 위한 전해환원 공정은 크게 두 가지로 분류될 수 있다. 첫 번째는 약간의 Li₂O가 녹아있는 650 °C의 LiCl 용융염상에서 수행되는 리튬계 전해환원공정이고, 두 번째는 약간의 CaO가 녹아있는 약 850 °C의 CaCl₂ 용융염상에서 수행되는 칼슘계 전해환원공정이다. 전해환원 공정에서 산화물 사용후핵연료는 환원전극 배스켓에 담기게 되며, 그 반응 메커니즘으로는 산화물 환원전극에서 산소이온이 직접 녹아나오는 경로와, 리튬계 전해환원 공정에서는 Li₂O가 전해셀 내에서 *in-situ*로 환원되어 생성된 Li, 칼슘계 전해환원 공정에서는 CaO가 전해셀 내에서 *in-situ*로 환원되어 생성된 Ca와 사용후핵연료가 화학적으로 반응하는 경로가 알려져 있다.

본 연구에서는 2011년으로 예정된 한국원자력연구원의 공학규모 전해환원 공정 Inactive Demonstration에 앞서, 금속전환 공정 전반에 대한 분석을 수행하고, 각각의 금속전환 공정을 환원 효율 측면에서 비교하였다. 특히, 금속전환 공정을 보다 넓은 온도 범위에서 조사하여, 고온 금속전환 공정 가능성을 타진하였다. 새로운 우라늄 산화물 금속전환 방법으로서 carbothermic reduction에 대한 조사도 이루어졌으나, 현재로서는 리튬계 전해환원 공정이 가장 타당한 사용후핵연료 금속전환 공정이라는 결론이 도출되었다. 실험적으로 Li₂O에 의한 U 금속의 산화가 증명되었으며, Ellingham 다이어그램을 구축하여 리튬 금속에 의한 우라늄 산화물의 환원정도를 규명하였다.