

# 폐기물 재활용을 위한 사용후핵연료 처리기술

박 병 흥\* · 김 기 섭

한국교통대학교 화공생물공학과

## Spent Fuel Processing Technologies for Waste Recycling

Byung Heung Park\* · Ki-Sub Kim

Department of Chemical and Biological Engineering, Korea National University of Transportation, 50 Daehak-ro, Chungju-Si, Chungbuk, 380-702, Korea

(Received 2012. 03. 30. / Accepted 2012. 05. 07.)

**Abstract** : Spent fuels are discharged from nuclear reactors as a result of power generations. The spent fuels would be considered as a useful resources because the main constituent is uranium and some other actinides are included in them. In order to utilize the resources chemical processes should be developed to treat the spent fuels and obtain uranium and other actinides to be fueled in a fast reactor. The technologies are categorized into wet and dry processes. In this study, the current status of such technologies is summarized to give a insight and a deep understanding on nuclear fuel cycles.

**Key words** : Spent fuel(사용후핵연료), Recycling(재활용), Process technology(공정기술), PUREX(퓨렉스), Pyro processing(파이로공정)

### 1. 서 론

사용후핵연료는 원자력발전의 결과로 발생하는 물질로 높은 방사성과 발열 특성을 지니고 있다. 사용후핵연료는 단순한 폐기물로 간주된다면 활용되지 않고 처분되지만 사용후핵연료에 잔존하고 있는 우라늄 및 악티나이드들을 유용한 자원의 측면에서 접근한다면 고속로와 같은 고속 중성자 스펙트럼에서 연료로 활용될 수 있는 자원으로 여길 수 있다.

사용후핵연료를 자원화하기 위해서는 일련의 화학 공정으로 유용한 자원을 분리하기 위한 처리 기술이 필요하다. 이와 같은 사용후핵연료 처리 기술은 수용액의 사용 유무에 따라 습식공정과 건식공정으로 구분되며 현재 PUREX로 대표되는 습식공정만이 상용화되어 운전되고 있다.

상업적 습식공정인 PUREX는 순수한 Pu를 분리할 수 있는 특성에 의해 핵확산저항성이 낮은 기술이다.

이를 극복하기 위해 우라늄만을 추출하는 UREX 공정 등 다양한 습식공정들이 개발되고 있다. 한편, 파이로 공정으로 대표되는 수용액을 사용하지 않는 건식공정은 습식공정과 달리 Pu를 순수하게 분리하지 않을 목적으로 개발되고 있다.

본 연구에서는 사용후핵연료 재활용을 위해 개발되고 있는 습식 및 건식 공정들의 기술현황을 정리하여 각각의 기술 특성을 비교 분석하였다. 사용후핵연료 재활용 기술은 추후 도입이 예정되어 있는 고속로와 연계되어 개발되어 활용될 것으로 기대된다.

### 2. 사용후핵연료 습식처리 기술

#### 2.1 PUREX 공정

습식재처리의 대표적인 기술인 PUREX 공정은 상용화된 기술로서, 현재 경제성·핵확산저항성 등으로 인하여 재순환정책을 채택하고 있는 프랑스·영국 및 일본 등의 일부 국가에서만 제한적으로 활

\*Corresponding author, E-mail: b.h.park@ut.ac.kr

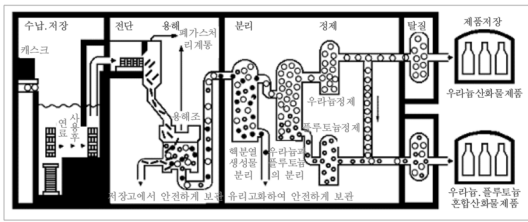


Fig. 1 PUREX 공정도

용되고 있다.

PUREX 공정은 Fig. 1에 나타난 바와 같이 사용후 핵연료는 집합체로부터 해체가 된 후 절단되고 강질 산에 용해시키고 고체-액체 분리단계를 거쳐서 우라늄 및 플루토늄의 회수를 위한 공제염(분리)공정 · 상호 분리공정 · 최종정제공정 등을 차례대로 거치게 된다.

우라늄과 플루토늄이 공제염공정에서 공제염된 후 상호분리공정에서 우라늄이 플루토늄으로부터 분리된다. 여기에서 플루토늄은 수용상에 함유된 체 플루토늄 최종 제염공정으로 주입되고, 우라늄은 유기상에 함유된 체 역추출단계로 주입되어 여기에서 우라늄이 수용상으로 역추출된 후 우라늄 최종 제염공정으로 주입된다. 상호분리공정에서의 우라늄 및 플루토늄 상호분리는 철(II) 설파마이트(Ferrous Sulfamate)와 같은 환원제 혹은 전기화학적 방법에 의한 플루토늄의 환원에 의하여, 즉 Pu(IV)으로부터 Pu(III)으로 원자가를 변화시켜 Pu(III)의 유기상에 대한 추출성이 나쁜 성질을 이용하여 이루어진다.

상호분리공정을 거친 우라늄수용액은 상당히 낮은 우라늄농도를 유지하기 때문에 우라늄 최종 제염공정으로 주입하기 전 우라늄농도를 높여주기 위하여 증발농축장치에 의한 우라늄 용액 농축화가 요구되기도 한다. 농축된 우라늄용액은 최종 제염을 위

하여 염석제를 첨가하고 용매추출 · 용매세척 · 역추출공정을 다시 거치게 된다. 우라늄으로부터 분리된 Pu(III) 수용액은 폴로토늄의 최종제염을 위하여 우선 Pu(III)을 Pu(IV)로 재산화시켜야 하며 이를 위하여 과잉으로 첨가된 환원제 및 환원유지제의 파괴를 도모해야 한다. 플루토늄의 재산화를 위하여 아질산소다를 첨가하고 추출 · 세척 · 역추출 단계의 플루토늄 최종 제염공정을 통과시킨다.

현재 상용화된 대표적인 습식처리시설로는 프랑스로 하그의 1,600 톤 용량의 UP2/UP3, 영국의 1,200 톤 용량의 소프(Thorp) 시설, 일본의 800 톤 용량의 로카쇼시설, 러시아의 400 톤 용량의 RT1 등을 들 수 있다.

### 2.2 UREX 공정

우라늄추출(Uranium EXtraction: UREX)공정으로 정의되는 UREX 공정은 우라늄과 테크네튬을 각각 99.9%, 95% 이상 고순도의 분리가 가능한 공정으로, 기본적으로 PUREX 공정과 같은 용매추출기술을 활용한 기술이다. UREX 공정은 PUREX 공정과 비교하여 핵확산성저항성의 향상, 구성장치 최소화 및 최적화를 통한 기술성과 경제성을 향상시킨 기술이라고 할 수 있다. 따라서, 이 공정은 PUREX 공정의 질산을 이용한 산화물핵연료의 용해단계, 그리고 TBP와 도데케인(Dodecane)을 이용한 용매추출 및 역추출을 기본으로 한 기술이다.

일반적으로 UREX 공정은 UREX 공정부터 UREX+4 까지 6개의 공정으로 분류되는데, 이는 핵연료물질 혹은 핵분열생성물의 분리 Stream에 따라 분류된다.<sup>1)</sup> UREX+1 공정은 TRU와 FPs를 공회수하는 UREX 공정과 비교하여, TRU를 분리하는 공정이 추가된다는 점이다. 이와 같이 Pu와 Np의 분리는 AFCI 프

Table 1 UREX 공정별 최종 생산물

공정명	최종 생산물						
	1	2	3	4	5	6	7
UREX	U	I, Tc	TRU+FPs				
UREX+1	U	I, Tc	Cs, Sr	TRU+Ln	FP		
UREX+1a	U	I, Tc	Cs, Sr	TRU	All FP		
UREX+2	U	I, Tc	Cs, Sr	Pu+Np	Am+Cm+Ln	FP	
UREX+3	U	I, Tc	Cs, Sr	Pu+Np	Am+Cm	All FP	
UREX+4	U	I, Tc	Cs, Sr	Pu+Np	Am	Cm	All FP

로그래에서 제시된 바와 같이 회수된 이들 핵연료 물질을 MOX 핵연료로 제조하여 경수로 원자로 시스템에 재순환한다는 전략과 밀접한 관계가 있다. 그 밖의 UREX+1a, UREX+2,3,4 공정의 기본적인 차이점은 Pu, Np의 공분리 Stream 여부, 세부적으로는 Am, Cm 등의 분리 Stream에 따라 구분된다(Table 1). 습식재처리의 대표적인 기술인 PUREX 공정은 상용화된 기술로서, 현재 경제성·핵확산저항성 등으로 인하여 재순환정책을 채택하고 있는 프랑스·영국 및 일본 등의 일부 국가에서만 제한적으로 활용되고 있다.

### 2.3 NEXT 공정

일본의 원자력연구개발기구(Japan Atomic Energy Agency: JAEA)는 PUREX 공정을 기반으로 한 NEXT 공정을 제안하였다. 이 기술은 U, Pu 및 Np 공추출을 기본으로 한 공정으로서, PUREX 공정의 Column 방식 용매추출 공정을 원심형(Centrifugal type)의 용매추출 공정으로 대체하여 구성장치 크기와 수를 획기적으로 감축시킨 것을 그 특징으로 하고 있다. 고속로사이클 실용화 전략 조사연구의 Phase II 결과보고서에서 선진핵연료주기의 기준공정으로 선정된 NEXT 공정은 U, Pu 및 Np를 동시에 회수하여 핵확산 저항성의 향상, 장치의 최소화 및 최적화에 의한 공정의 단순화, 그리고 폐기물발생량의 최소화 측면에서 기술적 독창성이 있다.<sup>2)</sup>

NEXT 공정(Fig. 2)은 우라늄의 결정화, U-Pu-Np의 공추출, 그리고 MA의 회수공정으로 구성된다. NEXT 공정에서 우라늄은 TBP 유기용매에 의하여 추출되고, 급속냉각법에 의한 용해도차이를 이용하여 초산 우라닐(Uranyl Nitrate Hexahydrate: UNH) 결정으로 침전시켜 회수하는 선행과정을 거친다. 특히, NEXT 공정은 우라늄 결정화 공정을 도입하여 잉여 우라늄을 선행 회수함으로써 후속공정의 처리용량을 대폭 줄일 수 있는 장점을 가지고 있다. 이 과정에서 회수된 우라늄은 중준위 폐기물로 처리된다.

이 때 Pu은 산화수에 따라 달리 거동하여 Pu(VI)는 우라늄과 함께 결정화되어 침전되는 반면, Pu(IV)는 용액에 잔류하게 된다. U-Pu-Np 공추출단계에서는 Np의 산화수를 조절하여 Np를 U, Pu와 함께 TBP로

추출하도록 단일 사이클로 설계되었다. JAEA의 화학처리시설(Cheical Processing Facility: CPF) 핫셀에 설치된 5.5 l/h 용량의 원심접촉기(Centrifugal contactor)를 이용한 조사연료 대상실험에서 104의 제염계수를 얻었으며, 대부분의 Np (>98%)을 U과 Pu과 함께 회수할 수 있음을 실험적으로 검증하였다.<sup>3)</sup> 이 과정에서 Am과 Cm은 TBP에 의하여 추출되지 않는다. 따라서, TBP보다 친화성이 좋은 새로운 추출제를 사용하여 고준위폐기물에서 MA를 분리할 수 있다. 이와 같은 목적으로 SETFICS(Solvent Extraction for Trivalent f-elements Intra-group Separation in CMPO- complexant System) 공정이 제시되었으며, 현재 모의 HLW 대상으로 99% 이상의 Am, Cm 원소를 회수할 수 있었다.

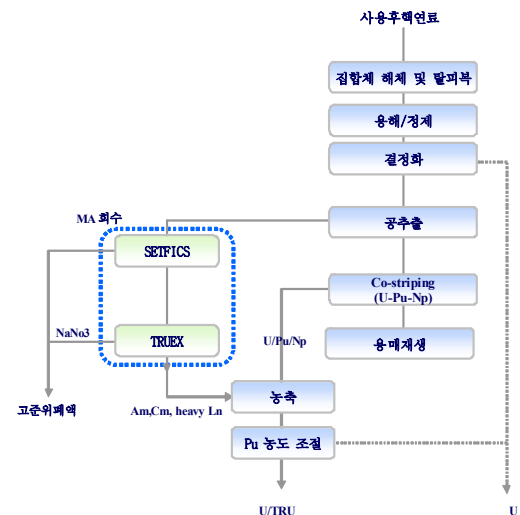


Fig. 2 NEXT 공정도

### 2.3 COEX 공정

프랑스의 선진핵연료주기 기술개발 중장기추진 전략은 PUREX 공정을 기본으로 핵확산저항성 및 유효자원의 활용성 향상, 그리고 폐기물발생을 최소화할 수 있는 혁신기술 개발에 그 주안점을 두고 있다. 프랑스의 AREVA에서 주도적으로 개발하고 있는 COEX 공정은 PUREX 공정을 기반으로 한 기술로서 우라늄과 플루토늄을 공회수하여 경수로 MOX 핵연료를 제조하는 것을 특징으로 하며, 이는

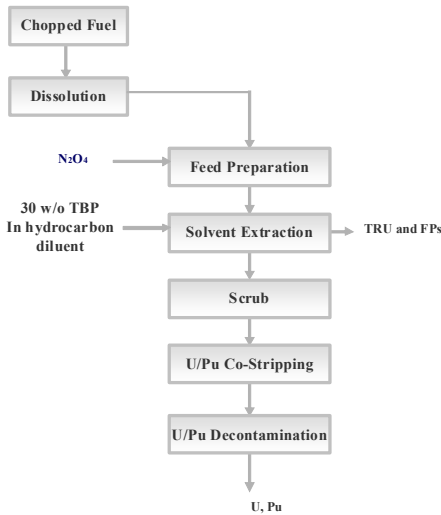


Fig. 3 COEX 공정도

2020년경에 도입예정인 GEN-III 원자로시스템에 재순환을 목적으로 하고 있다. 이 기술은 우라늄추출단계에서 일부 우라늄만을 회수하고, 후속단계에서 우라늄과 플루토늄을 공회수(50:50)하고, 이를 MOX 핵연료로 제조할 수 있는 기술적 특징이 있다.

특히, 이 기술은 고순도플루토늄의 회수공정을 배제한으로써 핵확산저항성을 향상시키고, 또한PUREX 공정과 비교하여 상대적으로 공정을 단순화시킨 점에서 기술적 장점이 있다.<sup>4)</sup> 본 공정은 아래의 Fig. 3과 같이 6개의 주요 단계로 구성되며, 대체로 이공정은 PUREX공정보다는 낮지만, 대체로  $10^3 \sim 10^6$ 의 높은 제염계수를 나타낸다.

### 3. 사용후핵연료 건식처리 기술

#### 3.1 AIROX 공정

AIROX 공정은 경수로 사용후핵연료를 재순환시키기 위한 건식처리방법이다. 이 공정은 핵연료집합체로부터 핵연료 봉을 인출하여 각 연료봉의 피복관을 2.5cm 간격으로 연료봉에 구멍을 뚫고 O<sub>2</sub>와 H<sub>2</sub> 가스로 여러 차례 고온 처리한다. 이 공정은 UO<sub>2</sub> 분말을 UO<sub>2</sub> ↔ U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 반응을 거쳐 변환시키면서 일부 핵분열생성물을 휘발시킨다. 그리고, UO<sub>2</sub> 분말은 기계적 방법으로 피복관으로부터 분리하여 10μm 이하로 분쇄시킨 후, 고농축 산화 우라늄 혹은 플루토늄과 혼합한다. 이렇게 재농축된 UO<sub>2</sub> 분말을 이

용하여 펠렛을 만들어 소결시킨 후 핵연료봉과 집합체로 재가공한다.

AIROX 공정은 재순환 및 재가공된 핵연료의 집합체 내에 대부분의 핵분열생성물을 잔류시킴으로써 습식재<sub>3</sub>2 가스로 산화시킴으로써 약 30%의 부피 팽창이 발생하는 산화작용에 의하여 이루어진다. 즉, 부피팽창에 따라 피복관이 파열되고 핵연료는 분말화된다. 다시 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>은 약 600°C의 아르곤가스 분위기에서 희석된 수소가스(10~20%)를 공급함으로 UO<sub>2</sub>로 환원된다.

#### 3.2 DUPIC 공정

DUPIC 핵연료주기(Fig. 4)는 경수로 사용후핵연료를 습식재처리공정을 거치지 않고 건식공정을 통하여 중수로용 핵연료로 재활용하는 개념이다.<sup>5)</sup> AIROX 공정과 같이 원격시설에서 산화·환원공정을 거쳐 분말을 만들어 중수로용 핵연료로 가공하게 되나 AIROX 공정과는 달리 농축우라늄을 섞지 않고 경수로 사용후핵연료만 이용하여 중수로용 핵연료로 직접 재활용이 가능하다. 이를 통하여 천연우라늄을 사용한 핵연료에 비하여 약 2배의 연소도를 얻을 수 있는 것으로 알려져 있다.

DUPIC 핵연료의 장점으로는 경수로 사용후핵연료를 재활용함으로써 처분대상 경수로 사용후핵연료를 획기적으로 줄일 수 있다는 것이다. 또한, 중수로에 이용되는 DUPIC핵연료의 연소도 증가에 따라 중수로 사용후핵연료 발생량도 2분의 1 이상 줄일 수 있다. 부수적으로 DUPIC 핵연료주기를 도입하면 중수로에 쓰이는 천연우라늄자원의 절감효과도 얻을 수 있게 된다.

DUPIC 핵연료주기 기술은 중수로와 경수로를 동시에 보유하고 있는 우리나라의 실정에 적합한 기술이라 할 수 있다. 현재까지 국제적으로 핵비확산성 핵연료주기로 인정받은 유일한 핵연료주기라 할 수 있다. 그러나, 기존 중수로와의 양립성을 입증하여야 하고, DUPIC 핵연료의 성능이 입증되지 않은 상황이며, 원격가공으로 인한 핵연료 가공비의 증대, 원격가공 핵연료에 대한 품질보증, 원전내 취급이 어렵다는 점 등의 단점을 극복해야만 한다.

DUPIC 연구는 1991년 기술의 타당성 분석을 시작으로 착수되었다. 1991년 9월부터 1994년 10월까지

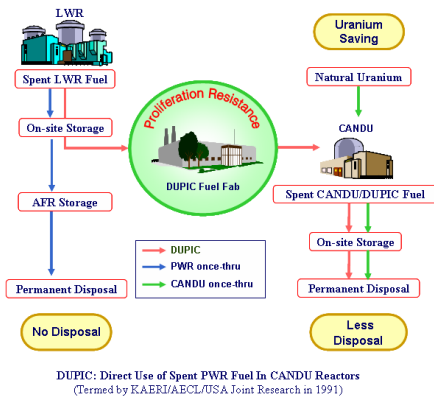


Fig. 4 DUPIC 핵연료주기 개념도

지 행한 타당성 연구에서는 DUPIC 핵연료의 제조 공정을 이론적으로 분석하여 최적의 가공공정으로 산화·환원공정(Oxidation & Reduction of Oxide Fuel : OREOX)을 선정하였다. 또한, DUPIC 공정의 핵물질 안전조치 가능성을 확인하였다.

1994년부터 진행된 제2단계 DUPIC 핵연료 성능의 실험적 검증연구에서는 한국원자력연구원내에 실험실규모의 DUPIC 핵연료연구시설(DUPIC Fuel Development Facility: DFDF)을 확보하였고, 이 시설을 이용하여 실제 경수로 사용후핵연료로부터 DUPIC 핵연료 소결체 및 연료봉을 원격제조한 바 있다. 또한, 제조된 DUPIC 핵연료 소결체를 하나를 이용하여 성공적으로 조사시험을 수행한 바 있다. 그러나, 2001년부터는 DUPIC 핵연료의 연구가 기존의 DFDF 시설을 이용하여 후행핵연료주기의 핵심기술을 개발하는 방향으로 방향전환이 이루어져 오늘에 이르고 있다.

### 3.3 Pyroprocessing

파이로건식처리공정은 경수로 사용후핵연료를 금속전환시킨 다음, 전해정련 및 전해제련의 단계를 거쳐 잉여우라늄금속과 TRU 금속을 회수하는 기술과 금속핵연료를 처리하여 재순환하는 기술로 크게 구분할 수 있다. 미국의 파이로기술의 개념도는 한국의 그것과 유사하나, 미국은 경수로 사용후핵연료를 이용한 파이로 처리기술을 파이록스(Pyrochemical Process: PYROX)라고 명명하여 상용하고 있다. 여기에는 경수로 사용후핵연료를 탈피복하여 분

말화하는 공정, 사용후핵연료를 금속화하는 전해환원(Electrolytic Reduction) 공정, 우라늄금속을 저준위폐기물로 회수하는 전해정련(Electro-refining) 공정, TRU의 회수공정 등을 포함하고 있다. 여기서 전해환원기술은 1980년대에 개발된 미국 아르곤국립연구소(Argonne National Laboratory: ANL)의 원천기술인 리튬환원기술의 기술적 문제점을 해결하기 위하여, 2003년도에 한국원자력연구원과 미국 INL 연구소가 공동으로 개발한 신개념이다.

전해환원단계에서 회수된 금속전환체(U, TRU & NM)는 전해정련공정으로 도입되고, 95% 이상을 차지하고 있는 잉여우라늄금속을 회수하는 과정을 거친다. 전해정련공정인 금속핵연료의 용해 및 전해반응을 이용한 우라늄회수 및 음극처리공정으로 구성된다. 양극 바스켓에 도입된 금속전환체는 양극에서 금속전환체의 양극용해(Anode Dissolution) 반응과 음극에서의 U 이온의 환원반응이 동시에 진행되는 메커니즘에 의하여 잉여우라늄금속을 회수한다.<sup>6,7)</sup>

정해정련은 아래 Fig. 5에 나타낸 바와 같이 500°C의 공용 조성 LiCl-KCl-UCl<sub>3</sub> 용융염계에서 UCl<sub>3</sub>의 전해반응, 즉 양극에서는 염소이온의 산화반응에 의하여 염소가 생성됨과 동시에 우라늄, TRU 및 RE 금속과 반응하여 이들을 염화물로 전환시키고, 이들 염화물은 용융염계로 용해되는 과정을 이용한다. 동시에 음극에서는 일정 전위조건에서 용융염계의 우라늄이온은 환원반응이 진행되고, 고체전극에 수지상결정(Dendrite) 결정형태의 우라늄 금속이 전착된다. 전해정련단계에서 TRU와 RE 원소는 염화물로 전환되지만, 우라늄 이온의 환원 전위조건에서 조업되기 때문에 제염계수가 낮지만 우라늄금속만의 선택적 회수가 가능하다. 따라서 TRU와 RE 원소는 공용 조성의 용융염계에 염화물상태로 존재하고, NM 원소는 양극용해(Anode Dissolution) 과정에서 미반응상태인 금속으로 존재한다. 결론적으로, 전해정련공정에서는 비록 제염계수가 낮지만 단지 우라늄금속만을 회수하는 공정이라고 할 수 있다.

공용 조성의 용융염계에 플루토늄이온이 일정농도에 도달하면 고체음극을 액체 Cd 음극으로 교체하고, 잔류 U, TRU 및 일부 RE 원소를 회수하는 전해제련단계를 수행한다. 특히, 이 단계에서 우라늄·플루토늄 및 희토류금속의 공회수, 즉 SFR 원자로

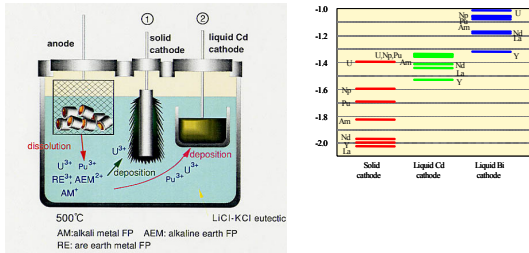


Fig. 5 전해정련 및 전해제련 공정 개략도

시스템 금속핵연료의 조성을 일차적으로 조절하는 단계라고 할 수 있다. 전해제련단계에서는 고체전극 대신에 우라늄 및 TRU의 공회수 특성이 매우 양호한 액체 Cd 전극을 이용한다. 액체 Cd 음극은 플루토늄, 희토류 금속과 금속화합물을 형성하는 반면에 우라늄과는 금속화합물을 형성하지 않는 특성이 있다. 이로 인하여 액체 Cd 음극의 전착반응단계에서 우라늄·플루토늄 및 희토류금속이온의 자유에너지 변화값은 거의 유사하게 되고, 우라늄·플루토늄 및 희토류원소를 거의 동일한 전위조건에서 공회수가 가능하다.

#### 4. 결론

사용후핵연료 재활용을 위한 공정은 현재 세계 각국에서 연구 중에 있다. 상용화 되어 상업적으로 활용되고 있는 PUREX 공정과 이를 바탕으로 하고 있는 습식공정 및 1990년대부터 재조명 받으며 연구 되고 있는 건식공정은 사용후핵연료를 자원화하기 위해 개발되고 있다.

본 연구에서는 이와 같은 사용후핵연료 재활용 기술을 개괄적으로 정리 설명하여 사용후핵연료에 처리 기술에 대한 이해를 높이고자 하였다.

향후 개발 예정되어 있는 고속로와 함께 미래 원자력 기술로 사용후핵연료 처리 기술은 앞으로 지속적으로 개발되어 실용화 될 것으로 예상된다. 따라서, 이에 대한 기술적 이해는 폐기물 활용과 미래 에너지 구성에 대한 시각을 제시할 것으로 기대된다.

#### References

- 1) J. J. Laidler, "Advanced Spent Fuel Processing Technologies for the Global Nuclear Partnership", 9th IEM on Actinide and Fission Products Partitioning and Transmutation, Nimes, France, 2006.
- 2) T. Namba, H. Funasaka, and Y. Nagaoki, "Prospects and Progress Status of the Advanced Fuel Cycle System", Atalante 2004 International Conference - Science for the Future Nuclear Fuel Cycles, Nimes, France, 2004.
- 3) T. Koyama and Y. Sano, "Present Status of Advanced Aqueous Separation Process Technology Development", Proceeding of International Symposium NUCEF, 2005.
- 4) O. H. Zabunoglu and L. Ozdemir, "Purex Co-processing of Spent LWR Fuels: Flow Sheet", Annals of Nuclear Energy, Vol. 32, p.151, 2005.
- 5) M. S. Yang, "Conceptual Study on the DUPIC Fuel Manufacturing Technology," Proc. Int. Conf. and Technology Exhibition on Future Nuclear System, GLOBAL'93, Seattle, 1993.
- 6) J. L. Willit, "Electrorefining Process Update", ANL-E Technical Information Exchange, Argonne, IL, 2002.
- 7) G. Angelis, E. Baicchi, "A New Electrolyzer for Pyrochemical Process Studies", Global 2005, Tsukuba, Japan, 2005.