

## 사용후핵연료 차세대 관리공정 요소기술 검증시험(I)

신 영준, 조 수행, 유 길성, 김 익수, 신 희성  
이 주찬, 김 승수, 김 창규, 도 재범, 노 성기

한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

### 요 약

후행핵연료주기 정책 미결정국형 사용후핵연료 관리기술 개발을 위하여 자원으로서 가치가 있는 PWR 사용후핵연료를 대상으로 새로운 관리개념을 설정 하였으며 본 개념을 뒷받침하는 요소기술들에 대한 비방사성 검증시험을 수행하였다. 본 논문에서는 이와 관련한 사용후핵연료 차세대관리 공정개념을 소개하고 모의 PWR 사용후핵연료의 금속전환 시험결과와 금속전환체의 관리상에 필수적으로 검토되어야 할 핵임계안전성과 열안전성에 대한 예비해석 결과를 소개코자 한다.

### 1. 서 론

원자력발전소에서 발생하는 사용후핵연료는 소내저장시설 또는 소외저장시설에서 장단기적으로 그 나라의 후행핵연료주기 정책에 의거 보관관리된다. 지금까지 알려진 사용후핵연료의 저장법으로는 습식저장법과 건식저장법이 있으며 통상 전자의 경우는 소내저장시설과 재처리시설과 연계한 소외저장시설에서 볼 수 있는 관리방법이고 후자의 경우는 일정기간 소내저장시설에서 보관관리 되어오던 사용후핵연료를 소내 저장시설의 저장용량 한계로 인한 영구처분에 앞서 임시 중간 저장하는 경우에 주로 이용되는 관리방법이다.

따라서 이들 두방법은 지향하는 목적에 따라 분명한 차이점을 나타내고 있다. 즉 순환핵연료주기 정책을 국가 정책으로 채택하고 있으면서 소내저장시설에 보관관리하고 있는 사용후핵연료를 재처리하여 원자로로 재순환시키는 국가들에 있어서는 재처리시설의 부속시설로서 갖추고 있는 대규모 습식 소외저장시설에서 사용후핵연료를 저장관리함으로써 소내저장시설의 용량한계를 극복하고 있는 것에 반해, 비순환 핵연료주기 정책을 국가 정책으로 채택하고 있는 국가들에 있어서는 소내 저장시설의 용량한계를 초기 투자비가 비교적 적게되는 건식저장 시설을 통하여 영구처분에 앞선 중간 임시관리에 임하고 있다 [ 1, 2, 3 ].

그러나 후행핵연료주기 정책노선을 조기에 결정하지 못하여 그 장기관리 누적량이 대규모가 되는 국가들에 있어서는 소내저장용량의 한계를 극복하기위한 대안 설정이 용이하지만은 않다.

따라서 본 연구에서는 이러한 점에 착안하여 후행핵연료주기 정책 미결정국형 사용후핵연료 관리기술 개발을 위하여 자원으로서 가치가 있는 PWR 사용후핵연료를 대상으로 새로운 관리개념을 설정하고 본 개념을 뒷받침하고 있는 요소기술들에 대한 비방사성 검증시험을 수행하였다.

### 2. 사용후핵연료 차세대관리 공정개념

본 연구에서 고려하고 있는 사용후핵연료 차세대관리 공정개념은 그림1에 나타난 바와같이

Voloxidation에 의해 분말화된 연료소자를 LiCl용융염 내부에 넣고 리튬금속을 환원제로 한 산화 분말의 직접 환원방법에 의한 금속전환 방법과 리튬금속에 의한 환원에 앞서 산화분말을 염화반응시킨 후 LiCl용융염 내부에서 리튬금속을 이용하여 환원시킴으로써 사용후핵연료를 금속으로 전환시키는 두가지 방법이 있으며 금속으로 전환된 사용후핵연료를 금속사출성형단계에서 금속봉으로 제조한 후 관리다발로 조립하여 관리하는 단계로 구성된다.

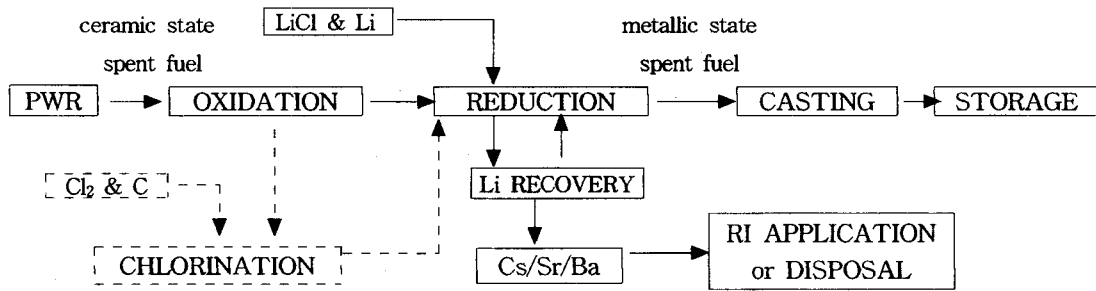


Fig.1. Conceptual flow diagram of advanced spent fuel management process.

사용후핵연료 산화분말의 금속전환 단위공정에 있어서, 직접 환원방법의 경우는 염화물제조 공정이 빠짐으로써 공정의 단순화와 장치의 부식문제에 있어 장점을 지니고 있는 반면 본 공정에서 발생하는 폐용융염 회수시 그 조성의 복잡성으로 전기분해 방법에 의한 리튬의 회수시 약간의 난제가 있을 수 있다. 한편 염화물 제조후 환원단계를 거치는 후자의 경우는 폐용융염의 회수공정에서 조성의 단순화로 리튬회수가 보다 용이할 가능성은 있지만 전반적으로 부식성이 강한 염소기체를 취급함으로써 종국적으로 핫셀운전에 임해야 할 본공정의 유지보수에 문제가 있을 수 있다. 표1은 본 공정에 의해서 초기 농축도 3.5 % U-235 연료를 43,000 MWD/MTU으로 연소시킨 후 5년간 소내저장시설에서 냉각시킨 PWR 사용후핵연료를 집합체 1개를 기준으로 처리할 때 기대되는 관리체 부피, 붕괴열, 방사능 측면에서의 효과를 나타낸 것이다.

Tabel 1. Effect of the application of an advanced spent fuel management process

ITEM	BEFORE APPLICATION	AFTER APPLICATION
· Bulk volume of PWR spent fuel assembly (L)	160	32 <sup>2)</sup>
· Decay heat (W/assembly) <sup>1)</sup>	1066	567
· Radioactivity (Bq/assembly) <sup>1)</sup>	$11.8 \times 10^{15}$	$5.8 \times 10^{15}$

<sup>1)</sup> Based on PWR spent nuclear fuel of 3.5 % U-235 initial enrichment, 43000 MWD/MTU burn-up, and 5-year cooling.

<sup>2)</sup> This volume was calculated by using the density of uranium metal.

### 3. 요소기술의 비방사성 검증시험

#### 3.1. 모의 사용후핵연료 펠릿의 건식분말화

건식분말화 실험은 muffle furnace 내에 피복관이 씌워진 UO<sub>2</sub> 펠릿을 넣고 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>분말로 산화

사키며 온도와 시간에 따른 분말화양을 측정하였다.  $UO_2$  펠렛(  $\phi 12.2 \times L15.8$  mm)을 지르칼로이 피복관 ( $\phi 12.3 \times L32$  mm)에 넣고 이를 스테인레스 스틸로 제작한 사각형 용기에 담아 일정온도에서 산화시키며, 일정한 시간이 지나면 이것을 furnace에서 꺼내어 산화된 분말을 분리회수하여 무게를 측정하였으며 입자크기 및 비표면적을 측정하였다. 산화는 공기분위기에서 하였으며 그 때의 온도범위는  $400 \sim 700$  °C이다.

지르칼로이 피복관 내  $UO_2$  펠렛의 산화에 의한 탈피복거동은 소결펠렛들이 shrinking core model[4]에 근간한 축방향의 분말화에 의해 탈피복이 진행됨을 확인하였고 반경방향으로의 부피 팽창은 미미하다는 사실을 확인하였다.

그림2에서 보는 바와 같이  $400 \sim 600$  °C 의 온도범위에서는 산화온도가 높아짐에 따라 분말화속도가 빨라지고 있으나,  $700$  °C에서는 4시간이 경과하여도 전혀 분말화가 되지 않았다. 이러한 현상들은 온도에 따른  $U_3O_8$ 의 결정성장 메카니즘 변화와 소성변형으로 그 이유를 설명할 수 있으며 기발표된 논문에서도 이와 유사한 결과를 살펴 볼 수 있다[5, 6].

Table 2. Mean size and specific surface area of  $U_3O_8$  powder

Temp. (°C)	Mean particle size ( $\mu m$ )	Specific surface area ( $m^2/g$ )
400	18.03	0.7012
500	29.65	0.5073
600	42.90	0.2836

생성된  $U_3O_8$ 분말의 입자크기와 비표면적을 측정하여 표2에 나타내었는데 산화온도가 높을수록  $U_3O_8$  입자의 평균크기는 커지며 비표면적은 감소한다. 이는 다른 연구자[7]의 보고와도 일치하는 경향이며,  $U_3O_8$ 의 결정성장 메카니즘이 온도에 따라 다르다는 것을 간접적으로 입증하는 것이다.

### 3.2. $U_3O_8$ 분말의 건식 염화물 전환

$U_3O_8$ 분말의 염화물 반응 실험은 고순도 흑연으로 제작한 반응기를 이용하여 수행하였다. 반응기는 반응이 일어나는 반응부, 염화물 생성물을 회수하는 회수부, 그리고 반응부와 회수부를 분리하는 분리판으로 이루어져 있으며, 분리판에는 열십자 방향으로 삼각홈을 만들어 반응시 생성되는 용융 상태의 우라늄 염화물이 회수부로 흘러 내려갈 수 있도록 하였다. 반응기의 내경은 70 mm 이고 길이는 반응부와 회수부에 대하여 각각 160 mm, 100 mm 이며 이 반응기를 Quartz Basket에 넣고 글로브박스 내에 설치하여 아르곤 가스분위기에서 실험하였다. 실험에 사용한  $U_3O_8$ 분말시료는  $UO_2$  소결펠렛을  $600$  °C의 공기분위기에서 산화하여 만든 것을 사용하였으며 모든 실험에 대하여 주입한 시료의 무게는 60 g이었다. 환원제인 탄소는 우라늄과의 반응당량비로 1.5배가 되도록 주입하였으며, 반응설정온도를 각각  $400$  °C,  $590$  °C,  $690$  °C,  $800$  °C로 하여 설정온도에 도달하면 염소가스를  $0.2$   $dm^3/min$ 의 유량으로 공급하여 반응이 일어나도록 하였다. 실험이 진행되는 동안 배출가스를 일정시간 간격으로 채취하고 이 것을 GC를 이용하여  $CO_2$ 가스를 분석함으로써 반응진행도를 관찰하였다. 반응이 완결되면 탄소반응기의 회수부에 모아진 염화물을 증류수에 용해시켜 회수한 후 원자흡수 분광분석기와 유도결합 플라즈마 원자방출 분광분석기에 의한 분석을 행하였다.

반응종결시간은 반응온도에 따라서 차이는 있으나 반응온도를  $400$  °C로 설정하였을 경우를 제외하고는 2~4 시간내에 완결되었으며, 반응온도가 증가할수록 반응속도가 빠른 것으로 나타났다. 반응온도를  $400$  °C로 한 경우에는 4시간이 경과한 후에도 약 50 %의  $U_3O_8$  분말이 반응하지 않은 상태로 잔류하였다. 이에 반하여 반응온도를  $800$  °C로 하였을 때에는 반응이 2시간내에 종결되었으나 반응기의 회수부에는 염화물이 전혀 남아 있지 않고 모든 생성물들이 증발되었다. 이는  $UCl_4$ 의 비등점인  $792$  °C보다 높은 온도에서 반응이 진행되어 생성된 우라늄 염화물이 100 % 기화하

였기 때문이다. 따라서  $U_3O_8$ 분말의 염화물 전환시의 조업온도는  $UCl_4$ 의 용융점과 끓는점 사이인  $590\text{ }^\circ\text{C}$ 와  $792\text{ }^\circ\text{C}$  사이가 되어야 한다는 것을 확인할 수 있었다.

반응기 내부의 생성된 염화물의 잔류량을 분석하여 회수율을 계산한 결과를 그림3에 나타내었다. 회수율(%)은 반응기 회수부의 잔류 염화물 중의 우라늄의 무게와 반응초기에 주입한 우라늄의 무게와의 비로 계산한 것이다.  $800\text{ }^\circ\text{C}$ 에서는 모든 염화물이 증발되었고,  $590\text{ }^\circ\text{C}$ ,  $690\text{ }^\circ\text{C}$ 에서는 대략 30 %정도의 우라늄이 염화물로서 반응기 내에 잔류하였다. 이와 같이 염화반응이 잘 이루어 졌다 하더라도 대부분 증발되어 회수율이 낮게 되므로 염화반응에서 우라늄염화물의 회수율을 높이기 위한 방안이 강구되어야 하며 그 방안으로는 증발되는 염화물 기체를 포집하여 응축/회수할 수 있는 장치를 설치하는 것과 염화물 전환반응시 생성된 염화물들의 휘발성을 억제할 수 있는 압력조절문제를 고려해 볼만 하다.

### 3.3. $U_3O_8$ 분말의 리튬용융염내 금속전환

반응기는 내경이 75 mm, 길이는 80 mm이고 SUS 304 재질로 제작되었으며, 아르곤 분위기를 이루는 글로브박스 내에 설치하였다. 반응기 상부에는 최대 1200 rpm까지 교반이 가능한 교반기를 부착하고, SUS 재질로 제작한 직경 40 mm의 프로펠러형 3날개 교반기를 사용하여 교반되도록 하였다. 반응기내부의 기벽에는 두께 5 mm, 길이 60 mm의 Baffle 4개를  $90^\circ$  간격으로 설치하였다. 실험이 진행되는 동안 아르곤가스의 불활성 기체 분위기를 이루도록 반응기 상부에는 아르곤 가스 공급관과 배출관이 연결되어 있다. 또한 반응설정 온도에 도달한 후 환원제인 Li을 공급하기 위하여 직경 20 mm의 알루미늄 튜브를 사용하였다.

Li 환원반응에 의한 생성물은 금속으로 환원된 원소들을 비롯하여 Li, LiCl,  $Li_2O$ , 그리고 미전환 모의 사용후핵연료 분말 등이 서로 혼합된 혼합체로 존재한다. 실험결과와 분석을 위하여 생성물을 분쇄하여 반응기로부터 회수하고, 이들을 증류수에 넣어 Li 및 그 화합물들을 용해시켜 생성물로부터 제거하였다. 분석결과, 본 생성물들의 주 성분은 금속으로 전환된 금속분말 (2 mm)의 금속분말이었으나 부분적으로는  $UO_2$ 분말들도 일부 섞여있는 것으로 판명되기도 하였으며 반응조건에 따라 그 구성비를 달리하였다. 우라늄 금속으로의 전환율을 추산하기 위해서 TGA를 이용하였으며 증류수내에서 비중차에 의한 금속분말과 산화분말을 상호 층분리후 XRD분석에 의해 금속분말과 미환원 우라늄 산화분말의 구성을 정성적으로 확인하였다. 층분리된 분말들 중 금속성 물질로 짐작된 하층부 분말들은 TGA분석에 의한 무게증가량이 모두 17.9 %이었으며 상층분말들의 물질들은 대략 10~14 %의 무게증가량을 보였는데 이러한 결과는 XRD분석에서의 U금속과  $UO_2$ 의 판명결과와 서로 일치하고 있다. 또한 회분석 반응기에서의 환원속도를 조사한 결과, 모든 반응조건에서 batch당 3~4시간이면 평형상태에 도달하는 것으로 보였다.

금속전환율에 미치는 온도의 영향을 조사하기 위하여  $630\text{ }^\circ\text{C}$ 를 최저 반응온도로 설정하고  $50\text{ }^\circ\text{C}$  간격으로  $830\text{ }^\circ\text{C}$ 까지의 온도범위에서 실험을 하였다. 그 결과 반응온도가 증가함에 따라 환원율이 약간씩 증가하는 경향을 보이고는 있으나 그 영향은 그다지 크지 않음을 확인하였다.

모의 사용후핵연료분말의 대부분을 차지하고 있는  $U_3O_8$ 의 밀도는  $7.31\text{ g/cm}^3$ 인 반면에 환원제인 Li의 용융상태에서의 밀도는  $0.5\text{ g/cm}^3$  이하로서 이들의 반응이 접도가 높은 LiCl 용융염(용융상태의 LiCl의 점도 :  $0.011\sim 0.018\text{ g/cm}^3$ )내에서 일어나기 때문에 반응물들의 혼합은 난제 중 하나이다. 이러한 상태에서 높은 환원율을 얻기 위하여는 반응당량비 이상으로 과잉의 Li이 필요할 것으로 예상되며 적절한 Li의 첨가량을 알아보기 위한 실험을 수행하였다. 따라서 Li의 양을 모의 사용후핵연료 분말중의 우라늄과의 반응양론 계수비의 1.0, 1.2, 1.4배로 첨가했을 때의 실험결과를 조사한 결과, 반응양론 계수비의 1.4배에서 최대 96 %까지의 전환율을 나타냈으나 첨가량의 효율성 측면에서는 1.2배가 바람직 하였다. 또한 LiCl의 양이 환원율에 미치는 영향을 알아보기 위하여 LiCl의 양을 변화시키며 실험을 수행하였다. 그 결과  $U_3O_8$  단위 g당 LiCl 0.75 g을 첨가하는

것이 가장 양호한 반응상태를 나타냄을 확인하였고 이 비율이하로 LiCl을 첨가하면 반응기내부의 비균질 혼합에 의한 나쁜 결과를 초래하였고 이 보다 큰 값에서는  $U_3O_8$  분말과 Li의 접촉 빈도가 떨어져 금속전환율에 나쁜 영향을 준다는 것을 확인하였다.

그림 4에는 모의 사용후핵연료 분말중의 각 핵분열생성물들의 금속으로의 전환율을 우라늄이 100 % 전환되었을 때를 기준으로 하여 상대치로서 도시하였다.

#### 4. 금속전환체 관리다발의 안정성 평가

금속전환체를 사출성형시켜 관리다발로 형성시켰을 때 핵임계 안전성과 관리다발 내부의 온도 분포를 컴퓨터 코드 MCNP 및 COBRA-SFS를 이용하여 평가하였으며 이 때 나타난 관리 다발 내부의 최고온도 분위기에서 공기침투에 의한 금속주조봉의 재산화 속도를 실험적 방법으로 관찰하였다.

그림 5에서 보는 바와 같이 관리다발 형태를 육각기둥형태로 하고 PWR 집합체 4다발을 금속전환시켜 형성시킨 관리다발에 대한 핵임계 안전조건을 95 % 신뢰도 구간에서 조사한 결과, 스테인레스 스틸재질의 케니스터 두께를 8 mm이상으로 하고 케니스터와 케니스터의 간격을 7.5 cm 이상을 유지만 한다면 어떠한 습윤분위기에서도  $K_{eff} < 0.936$ 를 만족시키는 결과를 얻었다.

한편 육각기둥형의 관리다발 내부의 금속주조봉 온도분포를 COBRA-SFS코드를 이용하여 추산한 결과 그림6과 같은 결과를 얻었으며 그 때의 금속주조봉의 최고 온도는 183 °C 나타났으며 여기에서 나타난 최고온도를 기준으로 사고조건하에서의 공기침투에 의한 금속주조봉의 재산화속도를 측정된 결과 그림 7과 같이 나타났다.

#### 5. 결 론

사용후핵연료 차세대관리 공정에 대한 비방사성 예비검증 시험에서 리튬용융염 기술에 의한 PWR 사용후핵연료의 금속전환기술은 적어도 각 단계별 실험실적 반응성 측면에서는 어떠한 문제점도 발견되고 있지 않지만 공학적 측면에서의 공정/장치 운전성 시험은 Mock-up시험을 통하여 확인하고 문제점이 발견되면 이의 개선을 위한 연구가 이루어져야 할 것으로 판단한다.

한편 안전성 측면에서의 해석을 통하여 차세대 관리공정에 대한 핵임계 안전조건을 확보하였으며 열적 해석을 통한 사고조건하에서의 금속주조봉의 재산화와 관련한 관리조건을 지속적으로 조사 할 필요성이 있음을 파악하였다.

#### 참 고 문 헌

- [1] K. J. Schneider et al. PNL-SA-19967, 1992.
- [2] M. E. Cunnungham et al. PNL-6364, 1987.
- [3] K. J. Schneider and S. J. Mitchell, PNL-8072, 1992.
- [4] O. Levenspiel, "Chemical Reaction Engineering", 3rd Ed. McGraw-Hill, New York, 1972.
- [5] K. A. Peakall and J. E. Antil, J. Nucl. Mater., 2, 194(1960).
- [6] K. W. Song and M. S. Yang, J. Nucl. Mater., 209, 270(1994).
- [7] K. Majumdar et al. DOE/ID-10423, 1992.

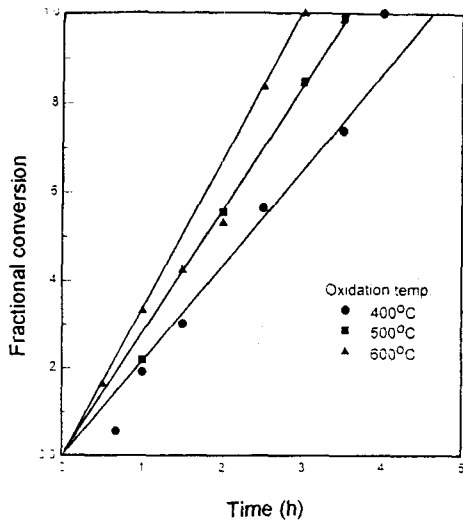


Fig. 2. Time for conversion of  $UO_2$  pellet into  $U_3O_8$  powder.

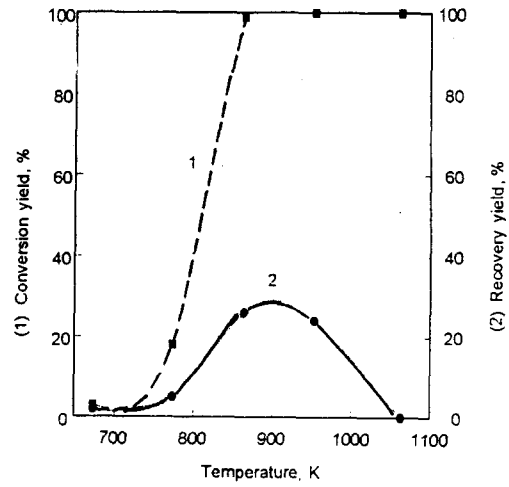


Fig. 3. Chlorination and recovery yields as a function of temperature.

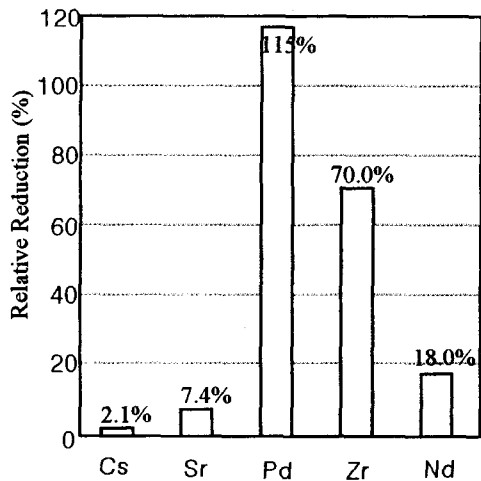


Fig. 4. Relative reduction yield of FPs. to U.

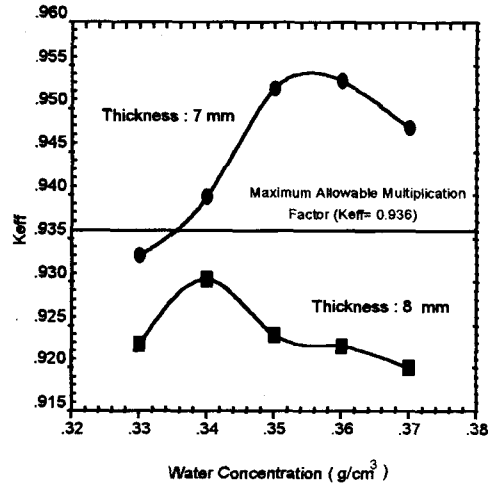


Fig. 5.  $H_2O$  concentration vs.  $K_{eff}$ .

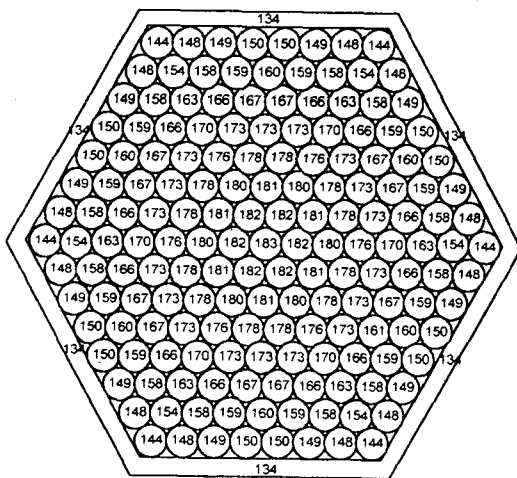


Fig. 6. Temperature profile inside canister.

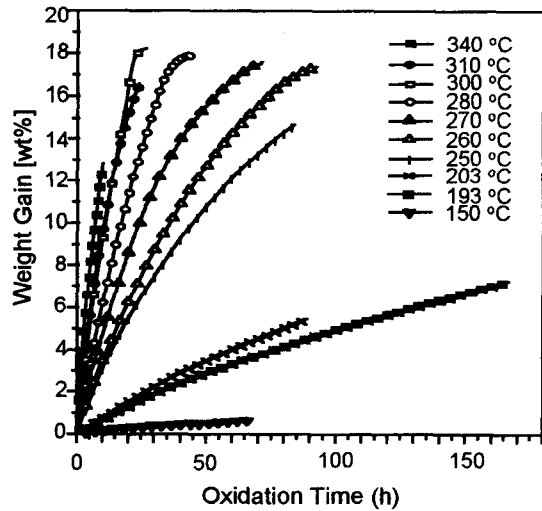


Fig. 7. Oxidation time vs. weight gain.