

7. 러시아의 건식공정 기술개발 (DDP)

7.1. 서론

구 소련에서는 1950년대 후반부터 산화물 용융 알카리 염화물계로부터 산화물 사용후핵 연료를 재처리하여 U와 Pu 산화물을 얻는 연구를 진행하였다. 이 연구는 후에 RIAR (Research Institute of Atomic Reactor)에서 수행되어 건식화학 기술 도입으로 고속로 연료 주기의 기본 난점을 해결하는 한편 다음과 같은 연료 주기의 기초 원리가 실험적으로 실증되었다.

- 조사후 핵연료의 건식화학 재처리와 폐기물 처리
- 조밀 입자 형태 재처리 연료 생산
- 입자 연료의 진동 충전(vibropacking)법에 의한 연료 핀 제작
- 연료 재처리를 위한 자동화된 원격 운전 장치의 사용과 연료 핀 및 집합체 생산

우라늄과 플루토늄의 용융 알카리 염화물에서 발생하는 물리화학적 성질은 좀 더 면밀히 연구되고 있으며 다음과 같은 U와 Pu의 물성이 중요한 것으로 인식되고 있다.

- 전기화학적 관점에서 우라늄과 플루토늄 산화물은 금속처럼 거동하여 용융염으로의 용해 또는 양극에서의 산화 과정에서 우라늄과 플루토늄 산화물들은 MeO_2^{n+} 의 이온을 형성하여 음극에 산화물로 환원된다.
- 고온 ($> 400^\circ\text{C}$) 분위기에서 UO_2 와 PuO_2 는 전기전도도를 나타내며 따라서 전기분해 과정에서 결정의 생성과 음극 전착물의 지속적인 전착이 가능하게 된다.
- 용융 알카리 염화물계에서 우라늄은 안정적으로 U(III), U(IV)과 U(VI) 이온을 형성하게 된다. 이 때, Pu의 Pu(V)와 Pu(VI)는 시스템의 산화 환원 포텐셜에서 일정 비로 안정적으로 존재하게 된다. 따라서, UO_2 와 PuO_2 의 공전착 과정에서는 PuO_2^{2+} 이온의 농도를 요구 조건에 맞추기 위하여 용융염을 염소-산소 기체로 처리해주어야 한다.
- 플루토늄의 어떠한 산화 상태에서부터도 시스템의 산화 환원 포텐셜을 변화시켜 산화물로 전환시킬 수 있으며 이 과정을 침전결정화라 한다. 산화 조건에서 우라늄은 용융염에 잔류하게 되며 따라서 핵연료로부터 플루토늄을 분리할 수 있게 된다.
- 분열 생성물의 대다수는 UO_2 와 PuO_2 환원에 비해 더 음의 전위에서 환원되므로 UO_2 와 PuO_2 의 전해전착 과정에서 불순물들은 제거된다.

7.2. DDP(Dimitrovgrad Dry Process) 주요 기술 공정

용융 알카리 염화물에서 산화물 입자 연료 생산을 위한 공정은 다음과 같은 세부 공정으로 구성되어 있다.

- 이산화우라늄의 전해전착. 이 공정은 용융 NaCl-2CsCl (또는 NaCl-KCl)계에서 산화 우라늄을 염화물로 전환한 UO_2Cl_2 시스템에서 수행된다. 이 공정은 전해 과정 동안 조밀한 UO_2 음극 전착물이 형성되며 진동충전에 의한 고밀도($>9.0 \text{ g/cm}^3$) 연료 핀 생산을

위한 전해 방법이다. UO_2 연료 생산 기술은 실험실에서 준산업 시설로 개발 되고 있다. 1970년대 BOR-60 원자로의 조사후 UO_2 를 이용한 실험의 시작으로 전식 전기화학 방법은 조사후 핵연료(7.7% 연소도, 6개월 냉각기간)를 높은 수율(99%)로 재처리하며 만족스러운 제염도($DF = 500 \sim 1000$)를 갖는 것으로 나타났다.

- 이산화플루토늄의 침전결정화. 이 공정은 NaCl-KCl 용융염에서 PuO_2 또는 금속 Pu의 염화-용해과정 후에 수행된다. 염소와 산소 기체 혼합물로 용융염을 처리하는 동안 결정화된 PuO_2 가 발생하며 입자형 PuO_2 생산을 위해서는 다음의 세 가지 방법이 있다.
 - 재처리된 연료급 플루토늄으로부터 아메리슘을 제거하여 결정형 PuO_2 생산
 - 조사된 MOX 연료에서 결정형 PuO_2 의 추출. 이 공정은 BN-350과 BOR-60 원자로의 MOX 연료를 대상으로 실험이 수행되고 있음.
 - 군사용 Pu 합금의 PuO_2 로 전환

- 우라늄과 플루토늄 산화물의 전해공전착. 이 공정은 초기 산화물을 용융 NaCl-2CsCl계에서 염화물로 전환시켜 우라늄산염화물(uranylchloride)과 플루토늄 염화물을 형성하고 Pu를 플루토늄산염화물(plutonylchloride)로 전환시키는 산화 공정으로 시작한다. 전해과정은 UO_2 와 PuO_2 의 공전착을 위해 염소-산소 혼합 기체로 용융염을 처리하며 수행된다. 음극 전착물은 $(U,Pu)O_2$ 의 준균질물이며 전착물에 잔류하는 염을 제거하고 결정은 분쇄되어 진동충진 연료 핀 제작을 위한 형태로 제조된다. 이 때 회수율은 98.5 ~ 99.5%에 이르게 된다.

다양한 종류의 염화-전해반응기(chlorator-electrolyser)가 연료 처리를 위해 시험되었으며 현재 40 l 부피의 반응기로 BN-600 원자로의 연료 집합체 1개에 해당하는 30 kg의 초기 물질을 처리할 수 있도록 Figure 7.1과 같이 제작되었다. 염화-전해반응기 외에 음극 전착물 분쇄기, 잔류염 제거기와 건조기 등이 함께 제작되어 공정에 적용되었다.

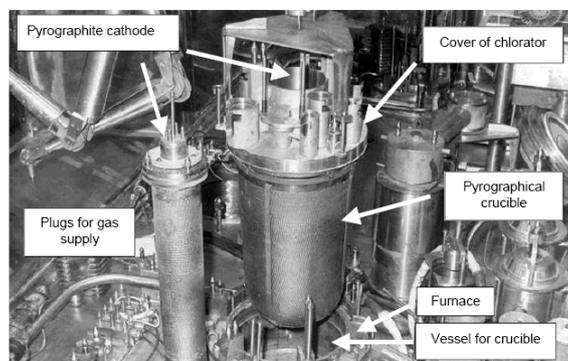


Figure 7.1 Chlorator-electrolyser in hot cell

이 공정은 BOR-60 원자로의 운전과 BN-600 및 BN-350 고속로에서의 시험을 위해 MOX 연료 제작에 사용되었으며 RIAR의 산화물 연료의 건식 생산과 재처리 현황은 Table 7.1과 같다.

Table 7.1 Pyrochemical production and reprocessing of oxide fuel in RIAR

Facility	Fuel	Weight, kg	Period	Reactor
Facility in glove boxes for uranium fuel	UO ₂	900	1976-1983	BOR-60
	UO ₂	365	1983	BN-350
Test hot cell facility for MOX fuel production	PuO ₂	100	1980-1982	BOR-60
	(UPu)O ₂	550	1983-1987	BOR-60
	(UPu)O ₂	75	1984	BN-350
	(UPu)O ₂	70	1987	BN-600
Semi-industrial Complex (OIK)	UO ₂	120	1988	BN-600
	UO ₂	535	1988-1989	RBT-10
	UO ₂	1 300	1989-2002	BOR-60
	UO ₂	374	1993	BN-350
	(U,Pu)O ₂	325	1989-1998	BOR-60
	(U,Pu)O ₂	370	1989-2000	BFS
	(U,Pu)O ₂	300	1990	BN-600
OIK – military plutonium	(U,Pu)O ₂	111	1998-1999	BOR-60
		270	1999-2002	BN-600
Experimental fuels		30		BOR-60

Irradiated fuel reprocessing				
Fuel	Burn-up	Weight, kg	Time for test	Reactor
UO ₂	1%	3.3	1968-1969	VK-50
UO ₂	7.7%	2.5	1972-1973	BOR-60
UPuO ₂	4.7%	4.1	1991	BN-350
UPuO ₂	21-24%	3.5	1995	BOR-60
UO ₂	10%	5	2000	BOR-60
UPuO ₂	10%	12	2000-2001	BOR-60

7.3. DDP 공정을 이용한 MOX 연료 재처리

현재 RIAR에서는 핵연료 재처리를 위해 다음과 같은 세 가지 방안이 고려되고 있다.

- 우라늄 재순환을 위한 재처리와 UO₂ 생산
- 플루토늄 재순환을 위한 MOX 연료 재처리 (Figure 7.2)
- MOX 연료 생산을 위한 MOX 재처리 (Figure 7.3)

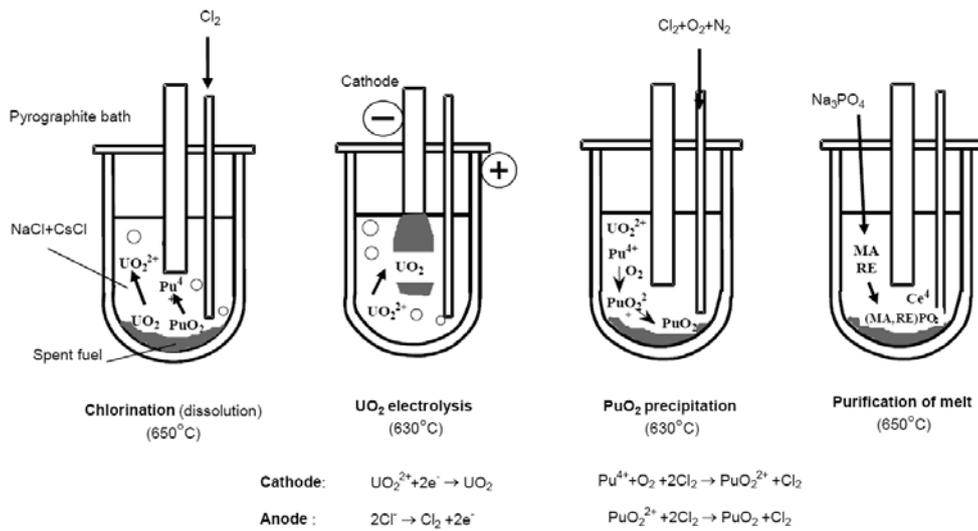


Figure 7.2 Sequence of pyrochemical reprocessing of spent fuel in UO₂ and PuO₂

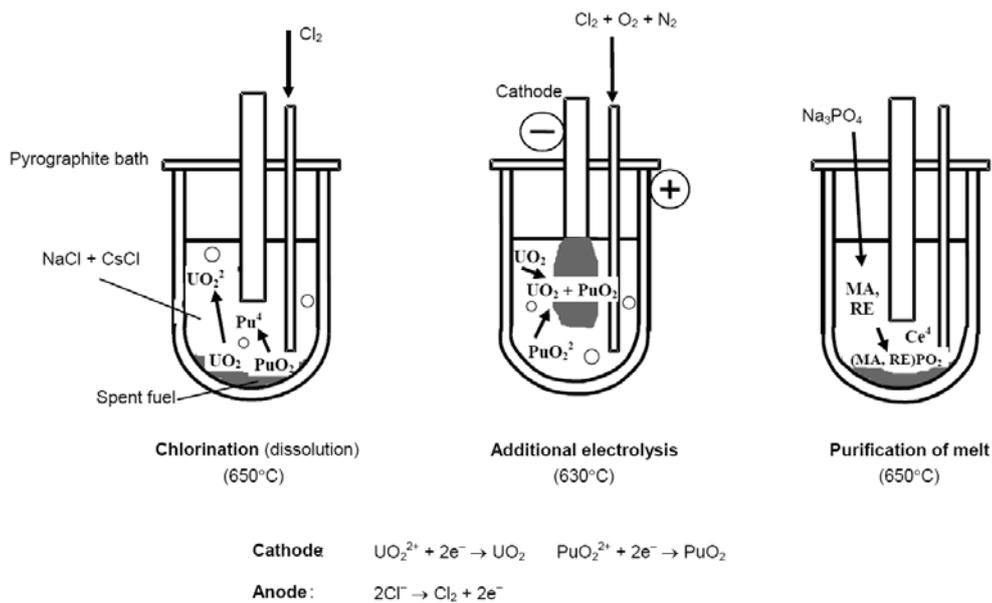


Figure 7.3 Sequence of pyrochemical reprocessing of spent fuel in MOX

코어 사용후핵연료에서 PuO₂를 건식전기화학 방법으로 추출하는 공정은 BOR-60 원자로 연료 주기의 실증을 위해 개발되었으며 열적 또는 기계적 탈피복 공정을 첫 단계로 다음과 같은 공정을 거치게 된다.

- 용융 NaCl-KCl 또는 LiCl-NaCl-KCl-CsCl계 연료 염화물 전환. 이 단계에서는 연료 구성물들의 완전한 용해가 발생한다.
- Pu가 포함되지 않는 일부 UO₂의 전해 제거. UO₂에는 일부 분열 생성물(Zr, Nb, Rb, Rh, Pd, Ag)이 포함되어 U/Pu 분리 계수는 120~140에 이르게 된다.
- 분열 생성물이 제거된 PuO₂의 침전결정화. 결정 PuO₂는 99.5~99.9% 회수되며 진동 중

전에 적합한 결정 형태이다.

- 우라늄 제거를 위한 추가적인 전해 과정. 대부분의 분열 생성물이 UO_2 와 동시에 전착된다.
- 용융염 정제. 이 공정은 나트륨 인산염(sodium phosphate)을 첨가하여 불순물들은 인산염 형태로 침전시키는 공정이며 Cs, Rb와 일부 Sr은 염에 잔류하게 된다.

1991-1992년에 RIAR에서 MOX 연료의 재처리 실험이 수행되었으며 Table 7.2와 같은 제염도를 갖는 약 520g 정도의 PuO_2 를 얻었다.

Table 7.2 PuO_2, UO_2 and MOX decontamination factors(DF) from main fission products.

Test/FP	Ru-Rh	Ce-Pr	Cs	Eu	Sb
DF for BN-350 test (PuO_2 , 1991)	50	220	> 3 000	40	200
DF for BOR-60 test (PuO_2 , 1995)	33	40 ÷ 50	4 000	40 ÷ 50	120
DF for BOR-60 test (UO_2 , 2000)	> 30	~	> 4 000	> 200	~
DF for BOR-60 test (MOX, 2001)	20 ÷ 30	25	~ 10 000	> 100	~

7.4. 결론

러시아는 고밀도 입자를 이용한 진동충전(vibro-packing) 연료 제조 공정을 개발한 상태이기 때문에 산화물 핵연료를 입자 형태로 얻는 방법에 연구를 기울여 왔다. 그 결과 DDP 공정과 같이 우라늄 및 플루토늄을 산화물 형태로 얻는 건식 전기화학 방법을 완성하였으며 많은 실증 실험을 통해 현재 가장 상용화에 근접해있는 것으로 판단된다. 그러나 이러한 기술은 PuO_2 의 침전결정화에 의해 핵확산 저항성이 낮아 핵 재처리 정책이 확고한 국가 이외에서는 개발하기 어려운 기술이다. 러시아는 이 기술의 적용 대상을 UO_2 와 MOX 및 고속로 연료로 확장하고 있으며 DOVITA(Dry processing, Oxide fuel, Vibropac, Integral, Transmutation of Actinides) 프로그램으로 이어져 악티나이드 소멸을 위한 공정으로 발전시키고 있다.