진공조건하 탄산세슘의 포집특성

신진명, 박장진, 김지현, 송기찬
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150
jmshin@kaeri.re.kr

1. 서론

최근 제 4세대 (Gen-IV) 원자력 시스템 개발과 관련하여 수행 중에 있는 AFCI (Advanced Fuel Cycle Initiative) 프로그램에서는, 사용후핵연료 건식 재가공시 기존에 사용한 Voloxidation 공정을 적용할 경우 핵분열기체의 방출율이 낮기 때문에 이를 개선하기 위하여 개량된 휘발성 산화공정(Advanced Voloxidation Process)을 개발하기 위한 연구를 활발히 수행하고 있다. 최근 미국, 일본 등에서는 사용후핵연료 전처리 공정으로서 기존 Voloxidation 공정조건인 공기분위기하 500℃의 산화온도에서 핵종 제거율을 증가시키기 위해 산소 및 진공분위기에서 수행되는 개량 Voloxidation 공정이 시도되고 있다. 이 공정의 주요 제거 대상 핵종으로는 휘발성 핵분열기체로서 H-3, C-14, I-129, Kr-85 그리고 준휘발성 핵분열생성물인 Cs, Tc, Mo 등을 들 수 있다. 이 공정은 사용후핵연료 재활용을 위한 습식 및 건식 공정 모두 적용이 가능하도록 각 공정 특성에 맞추어 연구 방향을 설정하고 있다. 또한 핵분열가스를 휘발시켜 제거하는 것뿐만 아니라, 휘발된 핵종들을 환경으로 방출되지 않도록 안전하게 포집하는 연구도 활발하게 이루어지고 있다. 산소 및 진공분위기에서 수행되는 개량 Voloxidation 공정에 적용할 배기체포집기술의 일환으로서 방사선적 위험도, 화학적 반응성 및 열을 발생하는 방사성 세슘을 화학적으로 안정한 형태 및 내침출성이 큰 물질로 포집하는 기술이 요구되고 있다. 따라서 본 연구에서는 실험실 규모의 포집장치를 설계 및 제작하여 산소 및 진공조건하 석탄회필터를 이용하여 비방사성 물질인 Cs_2CO_3의 포집특성을 분석하였다.

2. 실험 방법

기체상 세슘의 공급원으로 Cs_2CO_3 1.0g을 발생원으로 사용하였다. Cs_2CO_3의 무게를 측정 한 후 alumina crucible(50 ml) 내에 넣었다. 그런 다음 OTS 장치의 voloxidizer 안에 시약을 넣은 alumina crucible을 넣은 후 이를 배기체 발생원으로 사용하였다. 석탄회필터의 포집온도를 증가시키기 위해 crucible 상단변에 석탄회필터를 장착하였다. 포집온도 조건은 Fig. 1에 나타난 바와 같이 승온 1 시간 후에 Cs filter unit는 900℃에 도달하도록 setting하였다. Cs filter의 단수는 9단이었다. Cs filter unit가 정해진 온도에 도달한 것을 확인하고, 산소분위기하(유량: 0.5L/min)에서 voloxidizer의 온도를 1 시간 후에 500℃에 도달하도록 한 후 3시간 유지시켰다. 그런 다음 Voloxidation 실험조건은 산소분위기하 500℃ 까지 승온시킨 후 500℃에서 3시간 유지한 다음 산소공급을 차단시키고 1100 ℃ 까지 1torr로 진공을 유지하였다. Fig. 2에 포집실험의 진공 profile을 제시하였다.

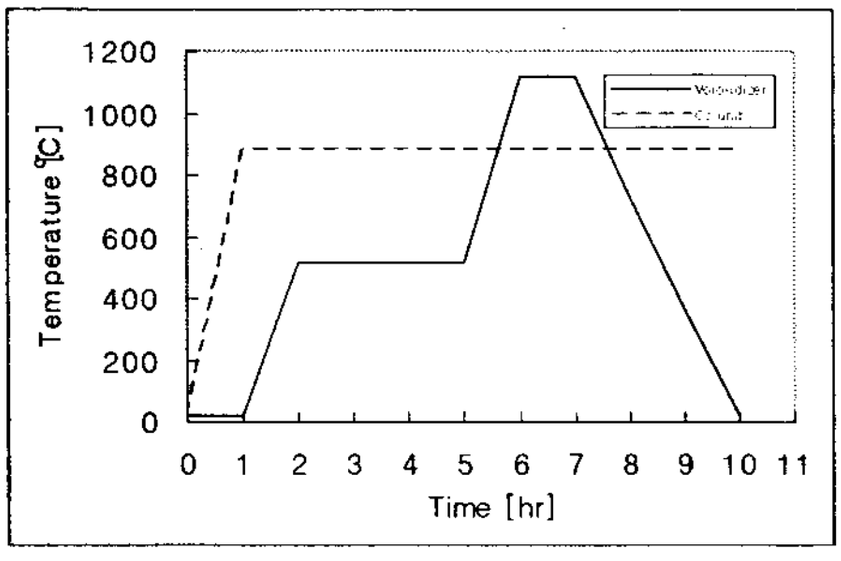

Fig. 1. Temperature profile for off-gas trapping experiment

3. 결과 및 고찰

진공조건하(0.1 torr) 알루미나 crucible에 장착한 석탄회필터의 세슘 포집효율을 무게분석으로 계산한 결과 약 99% 이었고 세슘포집량은 0.18 g-Cs/ g-filter 이었다. 또한 세슘포집필터는 1단부터 3단 까지 약 1% 포집되었음을 무게분석으로 확인하였다. 진공조건하 석탄회필터에 포집된 세슘화합물의 XRF 분석결과를 Fig. 3에 제시하였다. 그림에 나타난 것처럼 crucible 필터부터 세슘단위공정 포집필터 9단까지의 필터 단수에 따른 Cs signal(kcps)의 변화를 살펴 본 결과 crucible 필터에서 세슘이 상당량 포집되었고 세슘단위공정 포집필터 1단부터 3단까지 세슘이 점차 감소되는 경향을 보였고 4단 이후부터는 signal(kcps) 이 측정되지 않았다. 진공조건하 약 1100℃ 정도의 높은 포집온도는 석탄회필터의 세슘포집 효율을 증가시켰다. 또한 세슘 포집 후에 나타나는 crucible 필터의 결정구조를 분석하기 위해서 crucible 필터를 XRD로 분석한 결과 Fig. 4에 제시된 것처럼 세슘이 pollucite 형태로 포집되었음을 확인할 수 있었다.

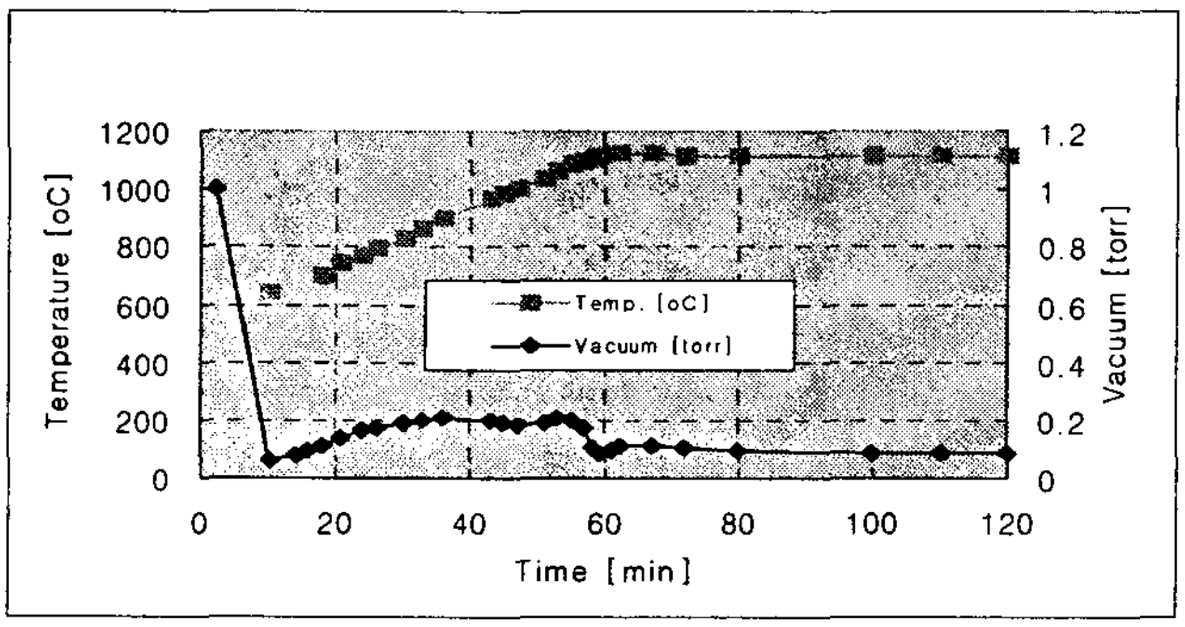

Fig. 2. Vacuum profile for off-gas trapping experiment

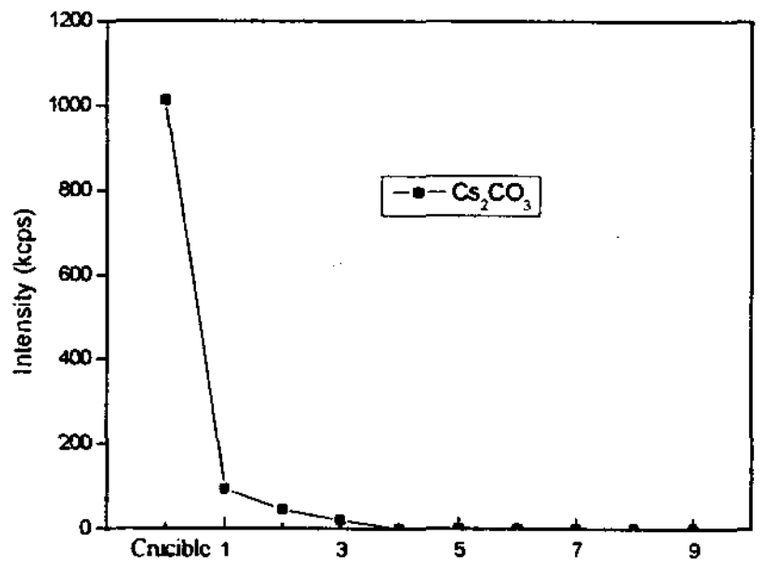

Fig. 3. Cs intensity as a function of the number of stacked filter

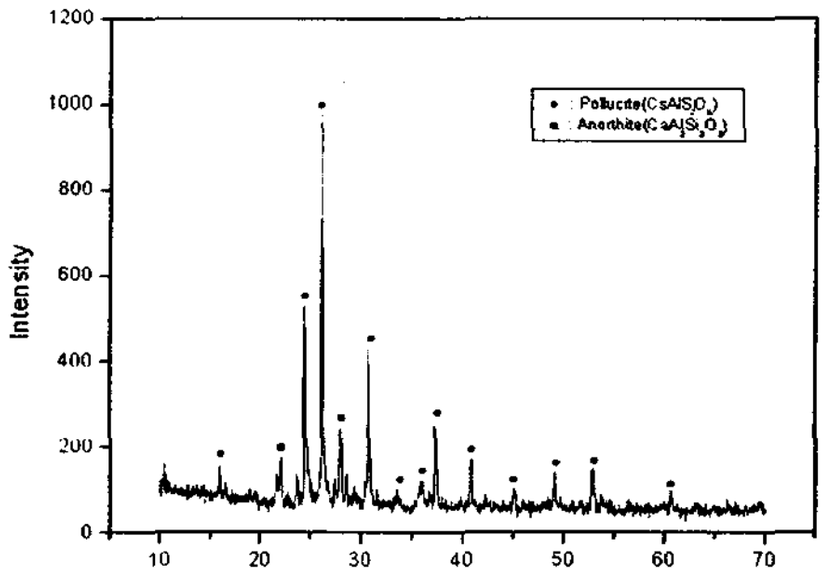

Fig. 4. XRD patterns of crucible fly ash filter after trapping gaseous cesium in vacuum condition