

휘발성 산화공정의 배기체 포집장치 설계개념

신진명, 박장진, 송기찬

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

jmshin@kaeri.re.kr

휘발성산화공정 기술개발에 대한 공동연구(KAERI, INL, ORNL)의 일환으로 미국 INL HFEF 핫셀에서 사용후핵연료를 이용하여 고도 휘발성산화공정(Advanced Voloxidation Process) 시험이 수행되었다. 이 시험 중에 휘발성 핵분열기체로서 H-3, C-14, I-129, Kr-85 그리고 준휘발성 핵분열생성물인 Cs, Tc, Mo 등이 발생된다. 따라서 휘발된 핵종들이 환경으로 방출되지 않도록 안전하게 포집할 배기체 처리기술이 절실히 요구된다. 이에 KAERI는 INL 핫셀에서 수행할 고도 Voloxidation 공정에 연결할 배기체 포집장치의 설계를 주도적 수행하였다. 기본 포집방법은 KAERI가 개발한 고온 화학반응법을 적용하였다.

처리대상 핵연료는 INL Voloxidation 공정 실험에서 사용할 Belgium reactor-3 사용후핵연료 100g 을 기준으로 하였다. ORIGEN-ARP(Automatic Rapid Processing) 코드를 이용하여 초기농도 8.26 wt.%, 연소도 42,000 MWd/tU, 출력을 37.5 MW/tHM, 연소주기 3주기, 냉각기간 25년 조건에서 계산한 포집대상 핵종의 총량 및 방사선량이 Table 1에 제시되었다. Voloxidation 공정은 공기분위기에서 이루어지므로 휘발핵종의 화학적 형태는 산화물로 가정하였다.

Table 1. Generation mass and radioactivity of gaseous fission products in belgium reactor-3 fuel

(Based on one batch of SF)

ISOTOPES		MASS		ACTIVITY	
		g	%	Ci	%
H-3	H ₂	2.00E-06	0.00	1.94E-02	0.25
Kr	Kr	5.29E-02	2.22	2.73E-01	3.59
Xe	Xe	6.32E-01	26.55	0.00E+00	0.00
C-14	CO ₂	7.00E-06	0.00	3.12E-05	0.00
I	I ₂	2.44E-02	1.02	3.41E-06	0.00
Mo	MoO ₃	4.82E-01	20.27	3.94E-08	0.00
Ru	RuO ₄	3.93E-01	16.53	9.47E-07	0.00
Cs	Cs ₂ O	3.23E-01	13.58	7.31E+00	96.11
Pd	PdO	1.06E-01	4.47	6.29E-06	0.00
Tc	Tc ₂ O ₇	1.62E-01	6.81	1.74E-03	0.02
Te	TeO ₂	6.63E-02	2.79	5.11E-04	0.01
Rh	Rh ₂ O ₃	6.51E-02	2.73	1.13E-06	0.00
Rb	Rb ₂ O	6.08E-02	2.56	3.31E-09	0.00
Cd	CdO	1.12E-02	0.47	1.13E-03	0.01
Total		2.38E+00	100.00	7.60E+00	100.00

배기체 포집장치의 단위포집 공정 주요 설계 원칙은 다음과 같았다. INL의 HFEF (Hot Fuel Examination Facility)에서 Voloxidation 공정 중에 발생이 예상되는 핵종 중 포집대상 핵종은 Cs, Rb, Cd, Ru, Tc, C-14 및 I의 7종을 포집대상 핵종으로 한다. 포집장치에 연결되는 모든 배기가스 이송용 배관은 각

각의 휘발핵종들이 배관 내부에 응축 및 침적되어 공정에 영향을 주지 않도록 끓는점 이상의 온도가 유지되도록 한다. Voloxidation 실험 한 batch 크기는 100g의 Belgium reactor-3 사용후핵연료로 하며, 포집제의 양도 한 batch 분량의 양으로 한다. 포집제의 양을 계산하기 위한 기준으로 포집대상핵종 전량(100%)이 공정 중 휘발되는 것으로 가정한다. Filter는 외경 1인치의 상용 튜브를 이용하며, 핫셀에서 용이하게 분리 및 제거 가능한 구조로 한다.

배기체 단위공정 포집장치에는 Fly ash filter, Calcium filter 및 Silver impregnated zeolite filter를 사용하였다. 배기체 처리실험 장치의 핵분열생성물 포집은, 첫째 단에는 Cs, Rb, Cd 를 포집하기위한 석탄회 필터를 둘째 단에는 Tc, C-14, Ru를 포집하기위한 칼슘 필터를 셋째단에는 요오드를 포집하기위한 Ag-X 필터를 설치하였다. 또한 휘발 핵종들이 포집제에 도달하기 전에 끓는점 이하로 냉각될 경우 배관내부에 응축되거나 누적되어 기체의 흐름을 방해할 우려가 있으므로, 포집대상 핵종들이 이송될 배관의 최소 유지온도는 Table 2에 제시된 온도 이상이 유지되도록 설계하였다.

배기체 단위공정 포집장치 제작에 반영한 단위공정 포집장치, 포집제, 포집대상 핵종, 단위공정 포집장치 온도 상승능력, 예상되는 최적 포집온도 및 단위 포집장치의 공정변수 등을 요약하면 Table 3과 같다.

Table 2. Minimum temperatures of the tubes during operation of the Off trapping units

Type of connection pipe	Pipe temp. (°C)
Connection pipe between DEOX outlet and Cs(Rb, Cd) trapping unit	over 650°C
Connection pipe between Cs(Rb, Cd) trapping unit and Ru(Tc, C-14) trapping unit	over 300°C
Connection pipe between Ru(Tc, C-14) trapping unit and Iodine trapping unit	over 200°C

Table 3. Specific design requirements of the off-gas trapping units

Trapping unit	Trapping media	FPS to be trapped	Design temp., °C	Operating temp., °C	Design spec.
Cs (Rb, Cd) trapping unit	Fly ash filter	Cs, Rb, Cd	~ 1,000	800	D = 2.0 cm BH = 3.6 cm SV = 10.0 cm/sec CT = 0.36 sec
Ru (Tc, C-14) trapping unit	Calcium filter	Ru, Tc, C-14	~1,000	600	D= 2.0 cm BH= 8.0 cm SV= 10.0 cm/sec CT= 0.80 sec
I trapping unit	AgX	I	~ 500	150	D = 2.0 cm BH = 5.0 cm SV = 3.8 cm/sec CT = 1.3 sec

* D: diameter, BH: bed height, SV: superficial gas velocity, CT: contact time