

휘발성 산화공정 조건변화에 따른 석탄회필터의 포집특성

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

1. 서론

경수로 사용후핵연료 재활용을 위한 pyroprocess 공정 중 핵물질을 산화분위기에서 열적으로 분말화 하는 휘발성산화 공정 중에는 핵분열생성물이 휘발하게 된다. 초기 이 공정은 습식공정을 위해 개발한 것으로 사용후핵연료 중 삼중수소 제거와 용해 속도 증가를 위한 분말화가 목적이었기 때문에 산화분위기하 약 500℃에서 수행되었다. 그러나 기존 휘발성산화 공정은 삼중수소는 제거되나 Kr/Xe 핵종은 약 30% 미만 C-14, 요오드 등은 약 10% 미만 그리고 기타 Cs, Tc 등은 거의 제거 되지 않는다. 따라서 기존 휘발성산화 공정을 pyroprocess에 적용할 경우 전해환원, 전해정련 공정의 배기체처리, 핵종분리, 공정효율 등에 부담이 된다.

이에 따라, 최근의 연구경향은 상기의 문제를 해결하기 위하여 고온산화, 진공개념을 도입한 고도 휘발성산화공정 연구가 대두되고 있다. 고도 휘발성 산화공정에서는 ^3H 뿐만 아니라 고 방사능, 고방열 Cs, 장수명 ^{129}I , ^{99}Tc , ^{14}C 핵종 등이 대부분 제거되며, 귀금속인 Ru, 불활성가스인 Kr/Xe도 대부분 제거 가능하다. 따라서 고도 휘발성산화공정에서 필연적으로 배출되는 휘발성 및 준휘발성 핵분열 생성물에 대한 적절한 처리 기술이 확립되어야 한다. 이에 따라 고방사능 및 고방열 핵종인 Cs을 포집하기 위해 휘발성 산화공정 조건변화에 따른 석탄회필터의 포집특성을 분석하였다.

2. 실험재료 및 방법

배기체 처리실험은 핵종을 휘발시키는 voloxidizer 부분과 3 단계로 구성된 핵종 포집부분 중 첫단계에 Cs을 포집하기 위하여 석탄회 필터를 설치하였다. 기체상 세습 및 요오드의 공급원으로 CsI를 사용하였다. 처리대상 핵연료는 Belgium reactor-3(초기농도 : 3.5 wt.%, 연소도 : 45,000 MWd/tU, 냉각기간 : 25년) 이었다. 준휘발성 핵종의 총량은 ORIGEN-ARP(Automatic Rapid Processing)를 이용하여 계산하였다. 사용후핵연료 100g에서 휘발되는 배기체를 모사하기 위해 ORIGEN-ARP로 계산한 Cs의 양을 기준으로 동일한 양의 시약을 사용하였다. 시약의 무게를 측정 후 alumina crucible(50 ml) 내에 넣었다. 그런 다음 배기체 처리장치의 voloxidizer 안에 alumina crucible을 넣은 후 이를 배기체 발생원으로 사용하였다.

포집 온도조건은 승온 1 시간 후에 fly ash filter unit 이 800 ℃에 도달하도록 설정하였다. filter unit이 정해진 온도에 도달한 것을 확인하고, Table 1에 제시된 조건으로 실험을 수행하였다.

3. 결과 및 고찰

1차 실험의 경우 공기분위기하 CsI에서 휘발되는 세습을 석탄회필터 1단 및 2단 내에서 100% 포집되었음을 무게분석을 통해 확인하였다. 또한 세습 포집 후 석탄회필터의 결정구조 및 미세 구조변화를 분석하기 위해서 XRD로 분석한 결과 세습이 pollucite ($\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$) 형태로 포집되었음을 확인할 수 있었다. 2차 실험의 경우 산소분위기하 CsI에서 휘발되는 세습이 석탄회필터 1단부터 5단 까지 약 10% 포집되었음을 무게분석을 통해 확인하였다. 석탄회필터를 이용하여 산소분위기하 CsI에서 휘발되는 세습을 포집할 경우 1차 실험의 공기 분위기에 비하여 효율이 급격히 떨어짐을 확인할 수 있었다. 1 torr 진공조건에서 수행된 3차 실험은 CsI에서 휘발되는 세습이 석탄회필터 1 단부터 5단까지 약 0% 포집되었음을 무게분석을 통해 확인하였다. 석탄회필터를 이용하여 진공 분위기하 CsI에서 휘발되는 세습을 포집할 경우 1차 실험의 공기 분위기 및 2차 실험의 산소분위기에 비하여 효율이 급격히 떨어짐을 확인할 수 있었다. 4차 실험의 경우 아르곤 분위기하 CsI에서 휘발되는 세습이 석탄회필터 1단부터 9단 까지 약 50% 포집되었음을 무게분석을 통해 확인하

였다. 석탄회필터를 이용하여 아르곤 분위기하 CsI에서 휘발되는 세슘을 포집할 경우 2차 실험의 산소분위기에 비하여 효율이 증가되었음을 확인할 수 있었다.

4. 결론

석탄회필터를 이용하여 Cs를 포집하기 위해 분위기 가스별 CsI에서 휘발되는 세슘의 포집특성을 분석하였다. 분위가스별 석탄회필터를 이용한 CsI로 부터 휘발되는 세슘의 포집효율은 Air > Ar > O₂ > vacuum 순으로 감소하였다. 석탄회필터를 이용하여 O₂ 조건하에서 CsI로부터 휘발되는 Cs의 포집효율은 공기 분위기와 비교하여 약 1/10배 감소하였다. 진공조건하 석탄회필터의 세슘포집효율을 증가시키기 위해서는 1000℃ 이상의 포집온도가 필요할 것으로 판단된다.

Table 1. Experimental conditions

Test #	Reagent and # of fly-ash filter units	Volatile cond. at furnace	Trapping temp. at fly-ash filter	Trapping efficiency	Remarks
1	CsI 5 units	Air, 1L/min (1000℃, 3hrs)	800℃	100 %	
2	CsI 5 units	O ₂ , 0.5L/min (1100℃, 3hrs)	800℃	10 %	1/10 comparing to air condition
3	CsI 5 units	O ₂ , 0.5L/min (500℃, 3hrs) → Vacuum (1 torr, 1200℃)	800℃	0 %	Low efficiency at vacuum
4	CsI 9 units	O ₂ , 0.5L/min (500℃, 3hrs) → Ar, 0.5L/min (1000℃, 1hr)	800℃	49 ~ 52% (9 units)	