

석탄회필터를 이용한 세슘의 고정화특성에 관한 연구

김지현, 신진명, 박장진, 송기찬

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150-1번지

jihyun9775@nate.com

1. 서론

KAERI에서 연구되고 있는 DUPIC(Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors)공정은 사용후 핵연료를 재사용하기 위한 일련의 공정으로 특히 휘발성 산화공정 중 발생하는 다양한 핵분열생성물 처리하는 기술이 요구된다. Pyroprocessing 공정에서도 장수명 핵종, 고방열핵종, 귀금속 등을 전처리 공정에서 사전 제거할 경우 후속공정의 방사능 감소, 공정효율 및 경제성 향상 등을 기대할 수 있을 것으로 보고하고 있다. 그러나 개량된 voloxidation 공정에서 방출되는 배기체를 고정화하는 연구가 기초 연구 단계에 머무르고 있는 실정이다. 또한 준휘발성 핵종의 처리기술은 물리적 처리방법으로 처리효율이 최대 98.5%까지 밖에 제거할 수 없어 미제거된 핵종을 제거하기 위한 추가적인 고용량, 고효율의 고정화시스템이 필요로 한다. 본 연구에서는 석탄회필터를 이용하여 배기체 중 방사선적 위험도가 높고 처분시 타핵종에 비하여 비교적 용출이 잘되는 세슘을 고정화하기 위한 연구를 수행하였다.

2. 실험 및 결과

세슘의 고정화재료로서 석탄회(fly ash)필터 그리고 기체상 세슘의 공급원으로 CsI(Aldrich사, 99.9%)을 사용하였다. CsI 0.6 g을 alumina crucible(50 ml)에 넣은 다음 배기체 처리장치의 voloxidizer 안에 시약을 넣은 alumina crucible을 올려놓은 후 이를 배기체 발생원으로 사용하였다. 배기체 처리시스템(Off-gas Trapping System, OTS)은 크게 voloxidizer 부분과 3 단계로 구성된 핵종 포집부분으로 나뉘어져 있다. 그러나 본 연구에서는 세슘 고정화실험을 수행하기 때문에 voloxidizer의 가열영역에서 배기체 발생원을 기화시켜 석탄회필터를 충전한 필터바스켓을 장착한 세슘포집로만을 이용하여 세슘을 포집하였다. 포집 온도조건은 승온 1 시간 후에 fly ash filter unit는 800 °C에 도달하도록 setting하였고 이때 Cs filter의 단수는 5단이었다. 세슘 포집부분이 정해진 온도에 도달한 것을 확인하고, 0.5 l/min의 산소분위기하에서 voloxidizer의 온도를 1 시간 후에 1000 °C에 도달하도록 한 후 3 시간 유지하여 Cs 포집실험을 수행하였다. 세슘의 휘발량 및 포집효율은 실험 종료 후 남아있는 시약의 무게를 측정하여 계산하였으며 포집후 필터의 색깔변화를 관찰하였다. 비방사성 핵종포집후의 결정 구조분석은 10~70° 주사범위에서 XRD(X-ray diffractometer, D-5000, siemens Co.)분석을 통하여 수행하였다.

산소분위기하 1000 °C에서 CsI에 의해 휘발되는 세슘이 석탄회필터 1단부터 5단까지 약 10% 포집되었음을 무게분석을 통해 확인하였다. Fig. 1은 산소분위기하에서 세슘포집 후 석탄회필터의 모습을 나타내었다. 그림에 나타난 것처럼 모든 필터표면의 색이 갈색에서 진갈색으로 변한 것으로 보아 세슘이 석탄회필터 5단 전체에 걸쳐 세슘이 포집되었음을 판단할 수 있었다. 5번째 석탄회필터의 표면형상 및 성분을 SEM-EDX를 이용하여 분석한 결과 Fig. 2에 제시된 것처럼 세슘농도가 47.68 wt.%인 것으로 보아 Fig. 1의 결과에서 알 수 있듯이 세슘이 5단의 석탄회필터까지 퍼져 포집되었음을 확인할 수 있었다. 또한 세슘 포집 후에 나타나는 석탄회필터의 결정구조 및 미세 구조변화를 분석하기 위해서 석탄회필터 5단을 XRD로 분석한 결과 Fig. 3에 제시된 것처럼

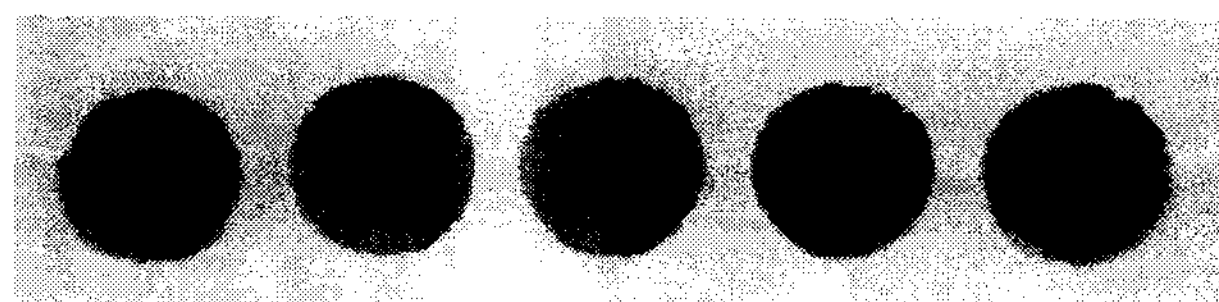


Fig. 1. Photograph of fly ash filters after trapping cesium.

세슘이 pollucite 형태로 포집되었음을 확인 할 수 있었다.

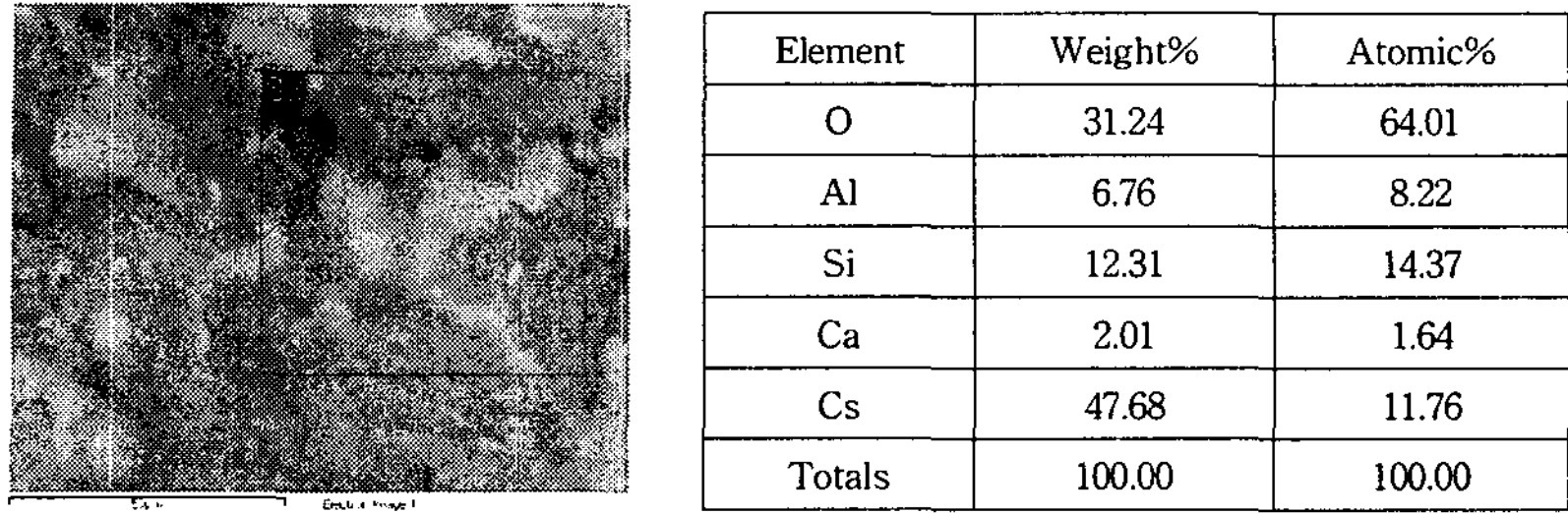


Fig. 2. SEM-EDX analysis of 5th fly ash filter after trapping cesium in oxygen atmosphere.

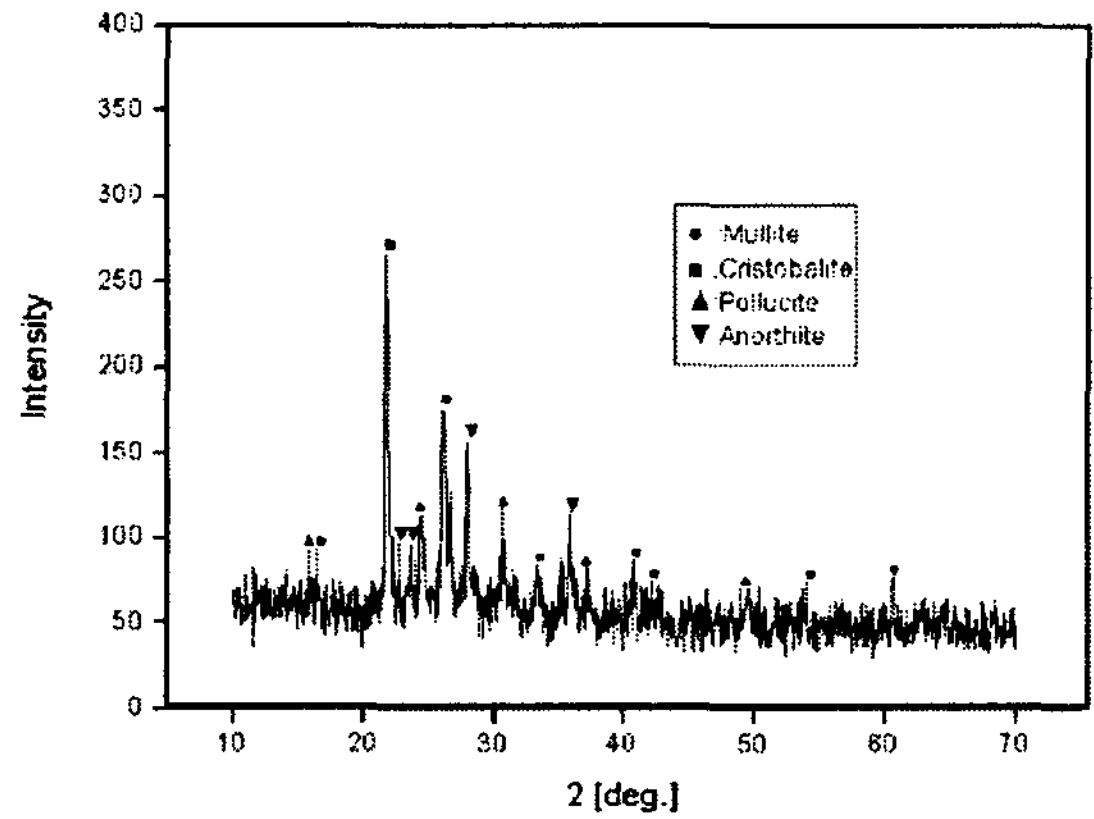


Fig.4. XRD patterns of 5th fly ash filter after trapping gaseous cesium in oxygen atmosphere.

3. 결론

Aluminosilicates 대응물질로 사용한 석탄회필터는 세슘고정화재료로서 적합한 물질임을 확인하였으며 세슘과 반응한 석탄회필터는 pollucite($CsAlSi_2O_6$)를 형성하는 것을 알 수 있었다. Pollucite는 내침출성 및 열안정성을 갖기 때문에 폐기물처분에 용이할 것으로 판단되며 발전소폐기물인 석탄회의 포집원료매질로의 사용은 폐기물의 재활용측면에서도 큰 의미가 있다고 볼 수 있다. 그리고 석탄회필터를 이용하여 산소분위기하 CsI에서 휘발되는 세슘을 포집할 경우 공기분위기에 비하여 효율이 급격히 떨어짐을 확인할 수 있었다.

4. 참고문헌

- 1) J. Mukerji and P. B. Kayal, Reaction of $CsNO_3$ and $RbNO_3$ with natural aluminosilicates, Materials Research Bulletin, Vol. 10(10), 1975.
- 2) S. A. Gallagher and G. J. McCarthy, High temperature thermal stability of $CsAlSiO_4$ and $CsAlSi_2O_6$, Materials Research Bulletin, Vol. 17(1), 1982.
- 3) 서용칠 외, 방사성폐기물 처분을 위한 고화체 특성평가 방법에 관한 연구, KINS/HR-591/2004, 한국원자력안전기술원(2004).
- 4) 박장진 외, 경수로 사용후핵연료 휘발성산화공정 기술개발, KAERI/RR-2840/2006, 원자력연구소(2007).