

사용후핵연료 고도 휘발성산화공정기술의 개발 현황

박장진, 신진명, 이재원, 박근일, 이정원
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 jipark@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로 공정을 위해서는 집합체 해체, 연료봉 인출, 연료봉 절단, 탈피복, 분말화, 고도 휘발성산화 공정 등 전처리공정이 필요하다. 고도 휘발성산화공정이란 사용후핵연료 분말을 고온 열처리하여 사용후핵연료 물질로부터 휘발성 핵분열생성물(Kr/Xe, H-3, C-14, I), 준휘발성 핵분열생성물(Cs, Tc, Rb, Ru 등)을 제거하는 공정으로 기존의 약 500℃에서 산화하는 저온 혹은 표준 휘발성산화공정과 대별되는 공정이다.

한국원자력연구원은 미국 INL 연구소와 2007년부터 고도 휘발성산화공정에 대한 연구를 시작하였으며 두 기관은 이 공정을 PRESENT(Particle size control, REmoval of fission product, SElective gaseous NUclide TRapping) 공정이라고 명명[1]하고 연구를 진행 중에 있다. Table 1에는 여러 가지 휘발성산화공정에 대한 특성을 정리하였다.

본 논문에서는 PRESENT 공정 개발현황 즉 핵종휘발특성, 파이로 그래놀 원료 입자 제조, 배기체처리의 최근 기술개발 현황에 대하여 기술하였다.

2. 본론

2.1 핵종 휘발 특성

본 연구에서는 여러 가지 핵종 중 고 방사성/고방열 핵종인 Cs(Cs-137 반감기 30.2년), 장수명핵종 Tc-99(반감기 213,000년), 장수명핵종인 I-129(반감기 1.7×10^7 년)의 휘발특성에 특히 초점을 두고 있다. 약 500℃에서 열처리하는 저온 휘발성산화공정(표준 휘발성산화공정)과 약 1200℃에서 열처리하는 고온 휘발성산화공정(고도 휘발성산화공정)의 경우 Cs는 저온 휘발성산화공정의 경우 10% 미만 휘발되지만 고온 휘발성산화공정의 경우는 98%의 휘발율을 보이고 있다. 장수명핵종 Tc-99의 경우 저온 휘발성산화공정의 경우 1%

미만, 고온 휘발성산화공정의 경우는 92%를 나타내고 있다. 또다른 장수명핵종인 I-129의 경우 각각 10% 미만과 약 100%의 휘발율을 나타내고 있다. 상기 자료는 batch당 100g 정도 사용후핵연료를 이용하여 정적인상태에서 실험한 결과이다. 본 연구에서는 동적인 회전로를 이용하고 공학규모 장치의 경우 50kg/batch 용량이기 때문에 목표 핵종제거율을 Cs의 경우 95%이상, Tc의 경우 90% 이상, I의 경우 99%이상으로 설정하고자 한다.

2.2 입도 제어

500℃ 산화분말은 평균 10 μ m의 매우 미세한 분말로 전해환원 공정에서 메쉬 용기를 사용할수 없는 등 어려움이 따른다. 따라서, 본 연구에서는 파이로 전해환원공정에 적합한 원료물질을 공급하고자 핵종을 휘발시키면서 동시에 이를 그래놀로 제조하고자 하였다. Fig. 1에는 본 실험에 사용한 용량 200g/batch 용량의 회전로를 나타내고 있다. 이 장치와 500℃에서 산화하여 제조한 U₃O₈ 분말을 이용하여 1150℃ Ar 분위기와 4% 수소분위기에서 열처리하여 1mm 크기(18 mesh 상당) 이상의 분말을 79.3% 얻었다(Retsch사 AS400 sieve shaker 100rpm 15분 작동 후). UO₂ 그래놀 입자 모양은 Fig. 2와 같으며 이 그래놀의 전해환원 결과 우라늄의 금속 전환율은 99% 이상이었다.

2.3 배기체 처리

고온 휘발성산화공정 중에는 Kr/Xe, H-3, C-14, I 등 휘발성 핵분열생성물과 Cs, Rb, Tc, Ru, I 등 준 휘발성 핵종이 휘발된다. 본 연구에서는 Cs, Tc, I, H-3, Kr/Xe 등 주요핵종에 대하여 선택적으로 포집하고자 하였다[2]. 특히 Cs, Tc, I에대하여는 고온 화학적 반응방법을 채택 안정한 형태로 포집하고자 하였다. 즉, 고방열/고방사성 Cs의 경우 석탄회 필터를 이용하여 pollucite 형태로 안전하게 포집하였고, 장수명핵종 Tc의

경우는 칼슘 필터를 이용하여 칼슘테크네튬산화물 형태로 포집하며, 요오드의 경우는 은침착 제올라이트를 이용하여 AgI 형태로 포집하였다. 본 연구팀에서는 석탄회 필터와 칼슘필터를 직접 개발하여 실험에 이용하였고, 미국 INL연구소와 INERI과제를 통해 사용후핵연료를 이용하여 고온 휘발성산화공정에서 휘발하는 핵종을 포집하는 연구를 수행하고 있다.

고온 휘발성산화공정에서 휘발하는 각 핵종을 선택적으로 분리하여 포집하면 고준위폐기물 발생량을 줄일 수 있다. 즉, Cs 폐필터의 경우 일정 기간 저장하면 중저준위 폐기물화가 가능하며, Tc-99, I-129 폐필터는 이 핵종들의 소멸처리 기술이 개발되면 자연적으로 심지층 처분해야하는 GTCC 폐기물로부터 제외되리라 생각된다.

3. 결론

본 논문에서는 핵종 휘발, 원료입자 제조, 선택적 배기체포집을 주된 내용으로 하는 고온 휘발성산화공정 기술개발 현황에 대하여 기술하였다. 주요 핵종인 Cs, Tc, I의 경우 각각 95%, 90%, 99% 이상 제거되리라 예상되며, 핵종휘발과 동시에 제조되는 다공성 그래놀 입자의 전해환원효율은 99% 이상이었다. 휘발된 주요 핵종인 Cs, Tc, I의 공학규모 선택적 포집 장치가 현재 설계 중이다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

5. 참고문헌

- [1] J.J. Park, J.M. Shin, G.I. Park, J.W. Leel, J.W. Lee2 and K.C. Song, "An Advanced Voloxidation Process at KAERI", Global 2009, Paris, 2009.
- [2] 박장진, 신진명, 이재원, 박근일, 이정원, "파이로 전처리공정의 배기체처리기술", 한국방사성 폐기물학회, 2010년 춘계 학술발표회 논문요약집, pp. 73-74, 2010.

Table 1. Various voloxidation process

| Process | Development company | Function | Operation condition | Characteristics | Remarks |
|---|----------------------------------|--|--|---|-------------------|
| Standard voloxidation process | -ORNL -JAEA -KAERI -etc | -Deccladding -Pulverization -H-3 removal | -Air -500°C | -Not considering removal of semi-volatile nuclides | -for Wet Process |
| PULDOX (Pulverization and Deccladding technology of the spent UO ₂ fuel by the dry pyrochemical process) | -NDC & MHI (Japan) | -Deccladding -Pulverization -Fission product removal | -Air, vacuum -Heating up to 1000°C | -Cutting claddings axially -Vibratory screen | |
| KRI (Khopin Radium Institute) process | -KRI (Russia) | -Pulverization -Fission product removal | -Air, O ₂ , N ₂ , Inert gas -Heating up to 1000°C | | |
| PRESENT process | -MIL & KAERI | -Deccladding -Pulverization -Fission product removal -Particle property control -Selective off-gas treatment | -O ₂ , vacuum, Inert gas, 4% H ₂ -Heating up to 1200°C -Multi-step heating | -Particle size control concept -Multi-step heating -Rotary kiln | -for Pyro-process |

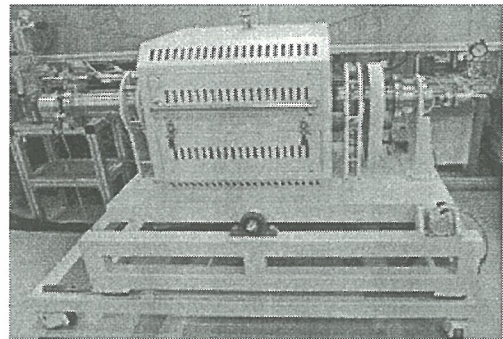


Fig. 1. Rotary voloxidizer

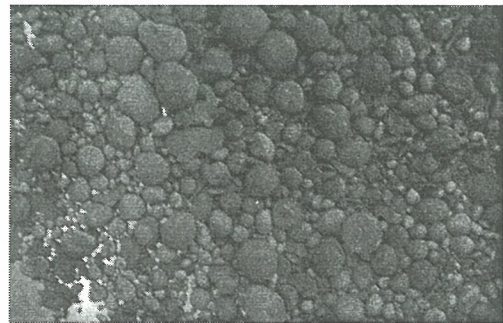


Fig. 2. Particles after thermal treatment