

칼슘필터를 이용한 혼합 핵종의 포집특성

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

1. 서론

최근 pyroprocess 공정의 전처리공정으로서 기존 저온 공정을 개선한 고도 휘발성 산화 공정 개발 연구가 활발히 수행되고 있다. 고도 휘발성 산화 공정 도입시 파이로 공정에 영향을 줄 수 있는 핵분열 생성물을 사전에 효율적으로 제거할 수 있는 장점이 있다. 고도 휘발성 산화 공정에서는 기존 휘발성 산화공정 채택 시 제거가 안 되는 Cs, Tc, Ru, Tc, Mo, Te, Se, Sb 등과 같은 준휘발성 핵분열 생성물이 배기체로 방출된다[1]. 휘발성 산화공정 중 휘발되는 핵종 중의 하나인 테크네튬(Tc^{99})은 반감기가 약 210,000인 장수명 핵종이고 Mo은 방사능은 없으나 발생량이 매우 큰 핵종이다. 또한 Te은 pyroprocess 전해 환원 공정의 전극 방해 핵종이고 Sb은 공기 중 산화하여 Sb_2O_4 , Sb_2O_5 , Sb_2O_6 로 존재하며 고온 공정 중에 휘발이 예상되는 핵종이다.

최근에 Ca-based 필터를 이용하여 이들 핵종들을 동시에 안전하게 화학흡착 하는 처리기술이 연구되고 있다. 향후 고도 휘발성 산화공정의 배기체 처리에 칼슘 필터를 적용하기 위해서는 다핵종으로 포집된 이들의 포집거동을 이해하는 것이 필요하다. 따라서 본 연구에서는 실제 배기체 처리 장치 운전시 칼슘필터에 포집된 다핵종의 포집특성을 고찰하기 위해서 다핵종이 포집된 칼슘필터의 첫단부터 저농도인 필터 끝단까지의 시료를 실험 대상으로 하였다. 이들의 고온 포집특성을 분석을 수행하기 위해 XRD, SEM-EDX, ICP-AES를 사용하여 미세구조의 변화 및 농도변화를 측정하였다.

2. 본론

본 실험에 사용된 OTS(Off-gas Trapping System) 장치의 설계기준은 pyroprocessing 공정의 기준 핵연료인 PWR (초기농도 : 4.5 wt.%, 연소도 : 45,000 MWd/tU, 냉각기간: 5년)로서 1 batch 기준은 200 gHM 이었다. Fig. 1에 본 실험

에 사용된 배기체 처리장치 시스템을 제시하였다. 사용후핵연료 200 gHM에 존재하는 Mo, Re, Sb, Te의 양을 기준으로 Table 1에 제시된 시약을 기체상 혼합 핵종의 공급원으로 실험에 사용하였다. 이들 시약을 잘 혼합한 후 alumina crucible(50 ml) 내에 이들 시약을 넣은 후 voloxidizer 내부에 이를 장입하였다. Tc는 인공 방사성 원소이기 때문에 surrogate로서 화학적 특성이 비슷한 Re(Aldrich Co. 99.9%)을 기체상 Tc의 공급원으로서 사용하였다.

포집실험은 승온 1시간 후에 칼슘필터(18mm (O.D) X 10mm(H)) 10단을 장착한 포집 zone이 800°C에 도달되도록 한 후 6.5시간 유지시켰다. 한편 포집 zone이 800°C에 도달한 것을 확인하고, voloxidizer의 온도를 1.5시간 동안 1200°C에 도달하도록 한 후 5시간 유지시켰다. 이때 Voloxidizer의 온도가 500°C로 상승하면 동시에 vacuum 펌프를 가동하여 7.6 torr의 진공을 유지하여 포집실험을 수행하였다. 포집실험 종료 후 혼합시약의 휘발율은 약 99.3%이었다. Fig. 2에 7.6 torr하 혼합 시약으로부터 발생된 기체상 Mo, Re, Sb, Te 포집 후 칼슘필터의 모습을 나타내었다. 그림에 나타난 것처럼 칼슘 필터 1~2단에 걸쳐 필터 표면의 색이 검회색으로 나타났고 뒷단으로 갈수록 색이 옅어졌다. Fig. 3은 혼합핵종 포집 후 칼슘필터의 무게 변화량을 나타낸 것으로 필터의 무게증가는 1단부터 4단 까지 나타났고 포집효율이 99% 이상이었다. 또한 혼합핵종의 대부분이 3단 내에 포집되었다. 포집 후 칼슘 필터의 결정구조 및 미세 구조변화를 분석하기 위해서 필터 1단을 XRD로 분석한 결과 몰리브데늄은 $Ca(MoO_4)$, 안티몬은 $MgSb_2O_6$, 텔레튬은 $CaTe_2O_5$ 형태로 포집되었음을 확인하였다. 혼합핵종 포집 후 칼슘 필터 1단부터 10단까지의 Mo, Re, Sb, Te 농도를 ICP-AES로 분석한 결과 Mo은 5단, Re은 2단, Sb은 7단, Te은 5단까지 포집되었다. 따라서 칼슘필터를 이용하여 7.6 torr의 진공하에서 Mo, Re, Sb, Te을 칼슘필터 7단내에서 동시에 포집 가능함을 확인할 수 있었다.

3. 결론

7.6 torr의 진공하 고온 휘발성산화공정에서 발생되는 Mo, Re, Sb, Te의 동시 포집을 위해 칼슘필터를 제조하여 이들의 포집특성 연구를 수행하였다. 그 결과 칼슘필터 7단 내에 기체상으로 발생되는 Mo, Re, Sb, Te 이 동시에 99%이상 포집되었다. 따라서 현재 고도 휘발성 산화공정으로부터 휘발되는 Mo, Re, Sb, Te을 동시에 포집하는 방법으로 칼슘필터의 적용가능성을 확인하였다. 향후 분위가스별 필터에 포집된 핵종의 상변화, 핵종별 포집된 필터의 열적 안정성, 그밖에 다양한 조건하에서 칼슘필터의 포집특성에 대한 연구 개발이 요구된다.

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. Lee1, J. W. Lee2 and K. C. Song, "An Advanced Voloxidation Process at KAERI", Global 2009, Paris(2009)

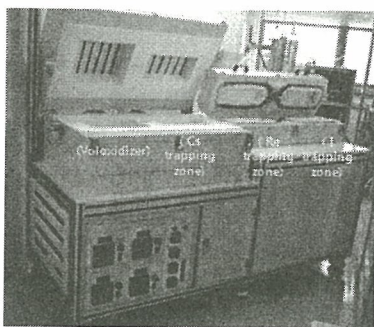


Fig. 1. Off-gas trapping system

Table 1. Source material

Reagents	Weight, g
MoO ₃	1.362
Re	0.206
Sb ₂ O ₃	0.642
TeO ₂	0.16

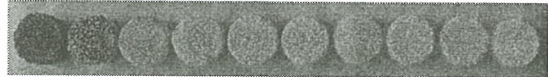


Fig. 2. Photograph of Ca-based filters after trapping Mo, Re, Sb, and Te

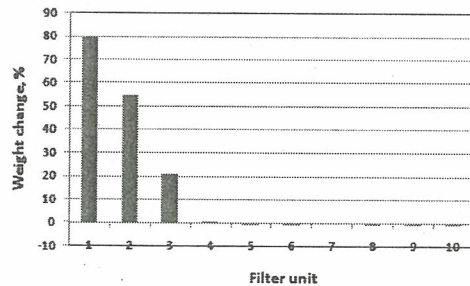


Fig. 3. Weight measurements of filter sampled for the test