

파이로 전처리공정 준휘발성 핵종의 포집방안 분석

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

1. 서론

한국원자력연구원은 경수로 사용후핵연료 파이로 공정에 대하여 연구하고 있다. 파이로 공정은 크게 전처리공정, 전해환원공정, 전해정련공정, 전해제련 공정 등으로 이루어져 있다. 이 중 전처리 공정에서는 전해환원공정에 사용될 원료 입자를 제조하기 위해 경수로 사용후핵연료 집합체를 해체, 인출, 절단, 탈피복, 분말화, 입자제조가 수행된다. 이 중 입자제조는 약 1,200°C의 고온에서 수행되므로 Cs, Tc, Mo 등 상온에서 고상인 준휘발성 핵종이 방출된다[1, 2]. 이 방출되는 준휘발성 핵종을 포집하기 위해 열구배관(Thermal Gradient Tube)법, 고온 화학반응법 등이 사용된다. 본 논문에서는 두 준휘발성 핵종 포집공정의 공정 용이성, 처분 용이성 등 관점에서 두가지 포집 방법을 분석하고자 한다.

2. 본론

2.1 사용후핵연료 고온 열처리과정 및 발생 핵종

2.1.1. 사용후핵연료 열처리과정

사용후핵연료 열처리과정은 500°C 산화분위기에서 UO_2 소결체를 U_3O_8 분말 형태로 만드는 분말화 과정과 이를 후속 공정인 전해환원공정에 적합한 형태로 만들기 위해 1,200°C Ar 분위기 고온에서 응집하여 그레놀을 만들고 이를 환원하여 UO_2 형태로 만드는 환원 과정이 포함된다.

2.1.2. 준휘발성 핵종의 정의

준휘발성 핵종이라함은 핵 설비에서의 오염물질들 중 화학반응, 주변 기체의 조성과 온도 등에 따라 기체, 액체, 고체의 각 형태로 존재가 가능한 핵종을 말한다[3]. 즉, Cs, Rb, Cd, Tc, Ru, Rh, Mo 등 핵종이 포함된다. 한편, I, Br의 경우 휘발성핵종, 준휘발성 핵종의 분류는 까다롭다. I의 경우 CsI 형태는 상온에서 고상이므로 (mp 621°C, bp 1,280 °C) 준휘발성 핵종으로 볼수있고,

I_2 형태는 상온에서 고체상이나 승화 할수도 있으므로 휘발성핵종으로 분류 (mp 114°C, bp 185 °C) 할 수도 있다. 그러나, 본 논문에서는 사용후핵연료 고온 휘발성산화공정의 경우 대부분 CsI 형태로 휘발되기 때문에 본 논문에서는 준휘발성 핵종으로 분류하였다. Br의 경우 $CsBr$ 형태는 상온에서 고상이므로 (mp 636 °C, bp 1,300 °C) 준휘발성 핵종, Br_2 형태(mp -7°C, bp 59 °C)는 상온에서 액상과 기상으로 공존하므로 휘발성핵종 이라기 보다는 준휘발성 핵종으로 분리하는 것이 옳다고 판단된다.

2.1.3. 발생핵종 및 화학종

고온 휘발성산화공정과정 중 발생하는 핵종은 Cs, Tc, I, H-3, C-14, Kr, Xe 등이 발생하는데 이중 Cs, Tc, I은 상온에서 고체상이며 고온에서는 기체상이되는 준휘발성 핵종으로 분류할 수 있다. 특히, Cs은 고방사성 고발열량 핵종이며, Tc, I은 장수명핵종으로 특별한 관리가 요구된다. 이들 세 화합물의 산화, Ar, 환원 분위기에서 발생가능한 화학종 별 용융점을 Table 1에 나타내었다.

Table 1. 고온 휘발성산화공정의 발생가능한 준휘발성 핵종별 화학종, 용융점.

원소	화학종	용융점, °C
Cs	Cs	28.6
	Cs_2O	490
	Cs_2O_2	594
	CsO_2	432
	CsI	621
Tc	Tc_2O_7	119
I	CsI	621
	I_2	114

2.2 열 구배관법과 고온 화학반응법 비교 분석

열구배관법으로 준휘발성핵종을 포집하는 방법은 용융점이하로 냉각시킨 표면에 기체상 핵종을 고상으로 응축시켜 포집하는 방법이다. 이 방법은 준휘발성(Cs, Rb, Cd, Tc, Ru, Mo, Te 등) 핵종을 한꺼번에 포집 가능한 장점이 있다. 그러나,

요오드의 경우는 CsI 만 포집되고 승화성 물질인 I₂ 는 포집되지만 승화된다. 이 경우 별도의 I₂ 포집장치 필요하게 된다.

고온화학법이란 준휘발성 핵종을 포집하는데 있어 고온화학반응을 이용하는 방법으로 세슘을 알루미늄노실리케이트물질을 이용 폴루사이트로 포집하며 테크네튬은 칼슘물질을 이용하여 칼슘테크네이트로 포집하고, 요오드는 AgX를 이용 AgI 형태의 안정한 물질로 포집하는 방법이다. 이 방법은 고온을 이용하는 대신 Cs, Tc, I 핵종을 선택적으로 포집할 수 있는 장점이 있다.

열 구배관법과 고온 화학반응법의 장점 단점에 대하여 Table 2에 정리하였다.

3. 결론

본 논문에서는 사용후핵연료 고도 휘발성산화 공정에서 휘발하는 준휘발성핵종을 냉각법과 고온 화학적방법을 이용하여 포집하는 두가지 경우의 장점, 단점에 대하여 비교 분석하였다. 고온 화학적방법의 경우 Cs, Tc, I을 선택적으로 분리 포집할 수 있어 GTCC 폐기물이 상당히 줄어드는 등 보다 효율적인 것으로 분석되었다.

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.
- [2] 박장진 등, "사용후핵연료 고도 휘발성 산화 공정 기술개발", KAERI/RR-3212/2009, 한국원자력연구원, 2010.
- [3] W. Goossens, et al, "Treatment of Gaseous Effluents at Nuclear Facilities", Harwood academic publishers(1991).

Table 2. 냉각법과 고온화학법의 장단점 비교.

항목	냉각법	고온 화학법
핵종 포집	-준휘발성 핵종은 한꺼번에 포집가능하나 I, H-3, Kr/Xe, C-14 포집장치 별도로 필요 -건식 핫셀에 치명적인 물 사용 -DF(1.2~420)가 일정치 않고 낮음[3] -I ₂ 처리를 위해 별도의 필터 필요 -Cs 발열로 인해 재취발 가능 -포집 완료후 처분처리 전 중간 저장시에도 계속 냉각 필요	-Cs, Tc를 선택적으로 분리 가능 -높은 DF 실현 가능 -포집 완료후 처분처리 전 중간 저장시 냉각 하지 않아도 안정(Cs 필터는 1200℃, Tc 필터는 800℃, 요오드 필터는 500℃에서도 안정)
포집 핵종 회수	-처분을 위해 질산에 녹인후 녹인 용액을 농축해야함. -용해 및 농축시 별도의 습식 배기체처리장치 필요(Ru 포집장치+요오드 포집장치+NOx 처리 장치 등으로 구성)	-필요 없음
고화체 제조	-Cs, Tc, I가 섞인 한가지 형태의 고화체만 제조 됨	-고방열 Cs, 장수명 Tc/I 핵종을 별도의 고화체로 제조.
저장 관리	-고방열 GTCC 폐기물 이됨 -처분에 부담	-Cs 고화체는 ~300년후 class C 폐기물로 분류 가능 -Cs를 분리하여 고화함으로서 GTCC 폐기물이 42% 감소됨 (파이로 MB 기준)