

## 칼슘필터를 이용한 텔루륨의 포집특성

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

## 1. 서론

최근 파이로 공정의 전처리공정으로서 고온 휘발성 산화 공정 개발연구가 활발히 수행되고 있다. 고온 휘발성 산화 공정은 Cs, Tc, I, Ru, Mo, Te, Se, Sb, H-3, Kr, Xe 같은 고방사능, 고방열 및 장수명 핵종 등의 핵분열 생성물을 사전에 효율적으로 제거할 수 있어 후속공정인 전해 환원공정 및 염폐기물 처리공정 등에서 이들을 처리해야하는 부담을 경감시킬 수 있다[1].

고온 휘발성 산화공정 중 휘발되는 이들 핵종 중의 하나인 Te은 파이로공정 중 전해환원 공정의 전극 방해 핵종으로서 이의 선제거가 반드시 필요하다. 사용핵연료 내에서 텔루륨은 세슘과 반응하여  $Cs_2Te(s)$ ,  $Cs_2TeO_3(s)$ 로 지르코늄과 반응하여  $Zr_3Te(s)$ 로 존재한다고 알려져 있다[2-4]. 열처리시  $Cs_2Te$ 은  $Cs_2Te(g)$ 로 휘발되지 않고  $Cs(g)$  과  $Te_2(g)$  로 분해되어 휘발된다고 알려져 있다[5]. 미국 INL에서 발표한 DEOX 공정시 발생하는 텔루륨 핵종의 제거율은 500 °C부터 950 °C 범위에서 24 ~ 55% 이었다.

KAERI에서는 고온산화 공정 중 휘발이 예상되는  $MoO_3$ ,  $Tc_2O_7$ ,  $RuO_4$ ,  $Te_2$ ,  $Sb_2O_3$  등 산화물을 각각 안정한 화합물로 전환시킬 수 있는 Ca-based 필터를 개발하였다.  $CaTeO_3(1067^\circ C(m.p))$ 는 텔루륨은 순수한 텔루륨 산화물( $TeO_2 : 733^\circ C(m.p)$ )에 비하여 열적으로 안정한 화합물이다. 위의 사실에 착안하여 텔루륨 가스 처리에 적합한 지에 대한 칼슘필터의 적용성 검토가 필요하다.

이 연구의 목적은 칼슘필터와 텔루륨의 포집특성을 이해하여 칼슘 필터를 텔루륨 가스 처리에 적용하는 것이다. 따라서, 이를 위해 칼슘필터에 포집되는 텔루륨의 포집량 별 상분석 및 열적 안정성을 분석하는 기초 연구가 수행되었다. 또한 포집실험은 배기체 처리시스템에서 7.6 torr 진공하 칼슘필터를 이용하여 800°C에서 수행하였다. 그리고 이에 대한 포집 특성은 포집 전·후의 무게, XRD, SEM-EDX, ICP를 사용하여 질량변화, 미세구조의 변화 및 성분분석 등을 측정하여 평가하였다.

## 2. 본론

## 2.1 실험방법

칼슘필터에 포집되는 텔루륨의 포집량별 상분석을 분석하기 위해서 Alumina crucible(10 ml) 내에  $TeO_2$  0.125g부터 3.75g까지 시약을 넣은 후 용기내부에 칼슘필터(18mm(O.D) X 10mm(H)) 2단을 장착한 후 공기분위기하 800°C에서 2시간 및 1000°C에서 5시간 포집하였다. 텔루륨 포집 후에 나타나는 칼슘필터의 결정구조를 분석하기 위해서 0.05 부터 0.55 g-Te/g-filer까지의 필터를 X-선 회절 분석기(X-ray Diffractometer)로 분석하였다. 또한 이들의 열적안정성을 분석하기 위해서 열중량분석기(Thermo Gravimetric Analyzer, (Cahn TG -171)를 이용하여 텔루륨이 포집된 필터를 800°C, 1000°C 및 1200°C에서 각 2시간씩 유지시켜 이의 중량감소를 분석하였다.

Off-gas Trapping System(OTS)를 이용하여 진공분위기하 칼슘필터를 이용하여 텔루륨 포집 실험을 수행하였다. OTS 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. 기체상 텔루륨의 공급원은 사용후핵연료 200 g에 존재하는 Te의 양을 기준으로 하였다. 실험은 alumina crucible(50 ml) 내에  $TeO_2$  0.16g 을 넣은 후 voloxidizer 내부에 이를 장입하였다. 그런 다음 칼슘필터(18mm (O.D) X 10mm(H)) 10단을 장착한 포집 zone이 800°C에 도달되도록 한 후 6.5시간 유지시켰다. 마지막으로 포집 zone이 800°C에 도달된 것을 확인하고, voloxidizer의 온도가 1.5시간 동안 1200°C에 도달되도록 한 후 5시간 유지시켰다. 또한 voloxidizer의 온도가 50°C로 상승하는 동시에 vacuum 펌프를 가동하여 7.6 torr의 진공을 유지하였다.

## 2.2 실험결과

텔루륨 포집량 0.05부터 0.55 g-Te/g-filer까지의 필터를 X-선 회절 분석한 결과는 Fig. 1에 나

타난 바와 같이 포집량 0.06 g-Te/g-filer의 경우는  $Mg_3TeO_6$  상으로, 그리고 0.11 g-Te/g-filer의 경우는  $CaTeO_3$  상 및  $Mg_3TeO_6$  상으로 나타났다. 포집량이 0.24 g-Te/g-filer의 경우는  $CaTeO_3$  상 및  $Ca_2TeO_5$  상으로 나타났고 포집량이 증가할수록  $CaTeO_3$  상보다  $Ca_2TeO_5$  상이 발달되는 경향을 보였다. 포집량 0.11 g-Te/g-filer를 1000℃에서 2시간 열중량 분석한 결과 필터의 무게 감소는 없었고 1200℃에서 2시간 열중량 분석한 결과 필터의 무게 감소는 약 4.3 wt.% 이었다. 따라서 칼슘필터에 포집된 텔루륨은 1000℃의 온도에서도 열적 안정성을 유지함을 확인할 수 있었다.

포집실험 종료 후 텔루륨의 휘발율은 약 99.9% 이었다. 7.6 torr하 텔루륨 포집 후 칼슘필터 1단 및 2단의 표면의 색은 연녹색으로 나타났다. Fig. 2는 텔루륨 포집 후 칼슘 필터의 무게 변화량을 나타낸 것으로 필터의 무게증가는 5단까지 나타났다. 무게분석 결과 텔루륨의 포집효율은 99.9% 이었다. 또한 필터 1단을 XRD 분석한 결과 텔루륨은  $CaTeO_3$  및  $Mg_3TeO_6$  상으로 포집되었다.

### 3. 결론

칼슘필터를 이용하여 포집량별 상변화, 열적안정성 및 7.6 torr의 진공하 텔루륨의 포집 실험이 수행되었다. 그 결과 텔루륨 포집량이 증가할수록  $CaTeO_3$  상보다  $Ca_2TeO_5$  상이 발달되는 경향을 보였다. 포집량 0.11 g-Te/g-filer를 1000℃에서 2시간 열중량 분석한 결과 열적 안정성을 유지하였다. 진공조건하 칼슘필터를 이용하여 텔루륨이 필터 5단 내에서 99.9%이상 포집되었다. 따라서 현재 고도 휘발성 산화공정으로부터 휘발되는 텔루륨을 포집하는 방법으로 칼슘필터의 적용가능성을 확인하였다.

### 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] H. KLEYKAMP, "The Chemical State of the Fission Products in Oxide Fuels at Different Stages of the Nuclear Fuel Cycle", Nucl. Tech., 80, p.412-422, 1988.  
 [3] E. H. P. Cordfunke and R. J. M. Konings, "Chemical Interactions in Water-Cooled Nuclear Fuel: A Thermodynamic Approach", J. Nucl. Mat., 152, p.301-309, 1988.  
 [4] J. Mcfarlane and J. C. Leblanc, "Fission-Product Tellurium and Cesium Telluride Chemistry Revisited", AECL-11333, 1996.

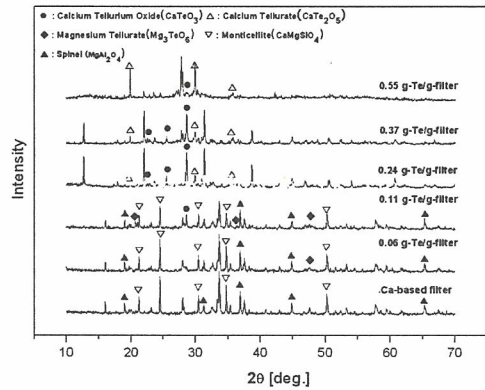


Fig. 1. XRD patterns of calcium-based filters at different cesium trapping quantities.

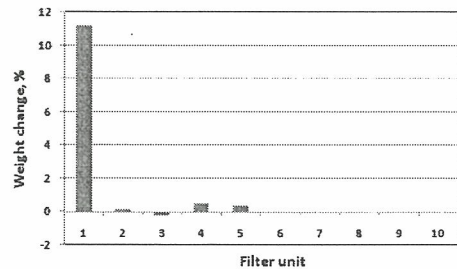


Fig. 2. Weight measurements of filter sampled for the test.