

## 실험실규모 휘발성배기체처리장치 공정도

박장진, 신진명, 백영희, 김영자, 양재환, 박근일  
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111  
 jipark@kaeri.re.kr

### 1. 서론

한국원자력연구원은 경수로 사용후핵연료 파이로공정에 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, 입자제도가 수행된다. 이 과정에서 Cs-137, Tc-99, I-129 등 상온에서 고체상으로 존재하는 준휘발성 핵종(경수로 사용후핵연료의 경우 I은 대부분 CsI 형태로 존재하기 때문에 편의상 준휘발성 핵종으로 분류했음)과 Kr-85, Xe, C-14, H-3 등 휘발성핵종이 방출된다[1, 2]. 본 논문에서는 휘발성핵종 각각에 대해 포집단위공정을 선정하고 각 단위공정이 효율적으로 운전되도록 배기체처리공정을 구성함에 대하여 기술하고자 한다.

### 2. 본론

#### 2.1 C-14

C-14은 반감기가 5,760년으로 긴 핵종으로 산화탈피복공정에서 CO<sub>2</sub> 형태로 방출이 예상된다. CO<sub>2</sub> 가스의 포집방법에는 흡수법, 상온 Ca(OH)<sub>2</sub> 법, 상온 흡착법 등이 있다. 본 공정에서는 파이로가 건식공정임을 고려, 건식 포집공정을 택했으며, 전처리공정중 휘발되는 Tc, Te, Se 등 핵종과 같이 포집될 수 있도록 칼슘 필터를 이용 약 500°C에서 CaCO<sub>3</sub> 형태로 포집하도록 하였다. 포집된 CaCO<sub>3</sub>는 별도의 열처리를 통해 NaOH 용액에 흡수하여 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 형태로 만들어 부피를 최소화할 예정이다.

#### 2.2 H-3

삼중수소는 반감기가 12.26년으로 사용후핵연료에서는 HT 형태로 존재하며 사용후핵연료를 산화시켜 분말화하는 voloxidation 공정을 거치면 사용후핵연료내의 삼중수소는 대부분 휘발한다. 그러나, 초기 inventory의 약 50%에 해당하는 지

르칼로이 피복판과 반응한 삼중수소는 별도의 처리과정을 거쳐야만 제거할 수 있다.

휘발한 삼중수소는 처리장치의 급속면을 촉매로 분위기가스 중의 산소와 결합하여 HTO 물분자 형태로 휘발되기도 하나 Ar 가스를 분위기가스로 사용할 경우 별도의 O<sub>2</sub> 가스를 주입하고 CuO와 같은 촉매하에 HTO 형태로 포집할 필요가 있다. 본 연구에서는 400°C에서 CuO 촉매를 이용하여 HT를 HTO 형태로 전환하도록 설계하였다. HTO 포집은 상온에서 분자체 13X를 이용 포집하도록 설계하였다.

#### 2.3 Kr

Kr-85는 반감기가 10.6년이며, 주로 베타선을 방출한다. Kr은 불활성가스로 Kr 가스형태로 방출되며, 융점은 -157°C, 비점은 -153°C이다. Kr 제거방법으로는 저온증류법, 용매흡수법, 흡착법 등이 있다. 본 연구에서는 미국 FCR&D의 기준 공정인 흡착법을 채택하였다. HZ을 이용하여 Kr을 선별 흡착하고 이를 60°C에서 탈착해서 중간저장조에 저장하고 저장된 Kr gas를 gas booster을 이용하여 고압으로 저장하는 공정으로 구성하고자 한다.

#### 2.4 Xe

Xe은 반감기가 짧은 핵종이다. Xe-133은 5.3일이며, 반감기가 긴 Xe-131m도 12일이다. 방출을 목적으로 할 경우 적정시간 저장했다가 방출한다. Xe도 Kr과 마찬가지로 Xe도 불활성가스로 Xe 형태로 배출된다. 사용후핵연료로부터 방출되는 양은 Kr의 약 10배 정도된다. 본 연구에서는 AgZ을 이용하여 60°C에서 Kr, Ar 등 가스와 선별적 포집을 하며, 포집된 Xe은 250°C에서 탈착하여 중간저장조에 저장후 Kr의 경우와 마찬가지로 고압으로 저장하는 실험을 진행할 예정이다.

#### 2.5 공정도의 구성

CO<sub>2</sub>, Kr, Xe, 수소가 포함된 모의 휘발성 배기체 가스를 출발물질로 이용하였다. 실제 전처리공

정이 고온에서 운전되므로 여기서 나오는 배기체도 고온이다. 따라서, 에너지 흐름의 효율성을 고려 우선, 500°C 정도의 고온에서 CO<sub>2</sub>를 포집하도록 설계하였다. 다음, 400°C에서 HT를 HTO로 전환시키기위하여 CuO 전환탑을 배치하였고, 상온에서 HTO를 포집하였다. 이는 수분을 미리 제거하여 다음의 Xe, Kr 분리포집에 영향을 최소화하기 위함이다. 60°C에서 AgZ을 이용한 Xe의 분리 포집하도록 하였고, -80°C에서 Kr을 분리 포집하도록 하였다. 분리 포집된 Xe과 Kr은 각각 250°C, 60°C정도에서 탈착이 되도록 설계하였다. 탈착시킨 Xe, Kr은 중간저장조에 모았다가 이를 gas booster를 이용 고압용기에 저장하도록 설계하였다. Fig. 1에 실험실규모 배기체처리장치 공정도를 표시하였다. Table 1에는 각 단위공정에 적용된 방법 및 운전조건을 정리하여 나타내었다.

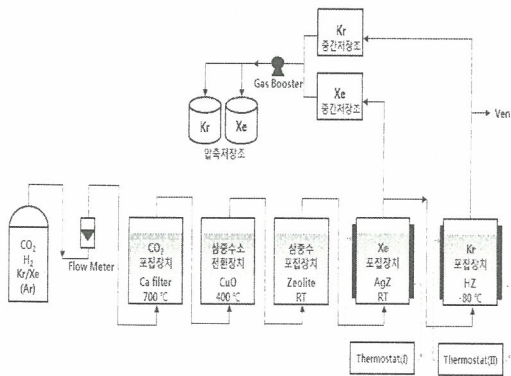


Fig. 1. 실험실규모 휘발성 배기체처리장치의 공정도.

Table 1. 단위공정별 적용방법 및 운전조건.

단위공정	방출 화학종	적용 방법	운전 조건	비고
C-14 포집	CO <sub>2</sub>	CaO흡착제	500°C	-건식공정 -Te, Se 과 동시 포집
H-3 전환	HT	CuO 촉매	400°C	-CuO촉매는 고온에서도 안전 -SDBC 촉매는상온에서 화재위험
H-3 포집	HTO	Molecular sieve 13X	상온	
Xe 포집	Xe	AgZ	60°C	-FCR&D 기준공정
Kr 포집	Kr	HZ	-80°C	-FCR&D 기준공정

### 3. 결론

본 논문에서는 사용후핵연료 파이로 전처리공정에서 휘발하는 C-14, H-3, Kr, Xe 의 포집특성을 실험할 수 있는 장치의 공정도를 구성하였다. C-14은 칼슘 필터를 이용해서 CaCO<sub>3</sub>형태로 H-3은 삼중수소를 CuO 촉매를 이용 삼중수로 전환시킨 후 삼중수를 포집하도록하고, Xe은 AgZ을 이용하여 Kr은 HZ을 이용하여 포집하도록 단위공정을 선택하였으며, 단위공정 배치는 에너지 효율, 핵종 포집시 단위공정간 간섭이 최소화 되도록 단위공정을 구성하였다.

### 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 산화공정 기술개발", KAERI/RR-3212/2009, 한국원자력연구원, 2010.