칼슘필터를 이용한 기체상 레늄의 고온 흡착

신진명, 박장진, 송기찬
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150
jmshin@kaeri.re.kr

테크네튬은 주기율표 7족에 속하는 인공적으로 만들어진 최초의 합성 방사성 원소이다. 이 원소는 은회색의 전이 금속으로, 화학적 성질은 레늄과 망가니즈의 중간이다. 짧은 반감기를 갖는 동위 원소인 ^{99m}Tc은 핵의학에서 진단에 널리 쓰인다. 고준위 방사성 기체폐기물인 테크네튬은 원자로에서 조사된 핵연료 또는 사용후핵연료 고온 건식 산화공정 및 재처리시 발생되는 고준위 방사성폐액의 배소 및 유리화공정 중에 발생된다. 휘발성 테그네튬 화합물은 배기체 중에 존재할 때 온도가 하강함에 따라 응축되어 장치나 배관의 벽면에 침적되므로 배기체 처리장비의 성능에 문제를 일으킬 수 있다. 휘발성 테크네튬 화합물의 제거는 가능한 한 발생 초기 단계에서 포집하거나 분리, 저장할 수 있도록 수행되어야 한다. ^{99}Tc은 21만년의 반감기를 가지고 있어 오랜 기간에 걸쳐 방사능을 띠고 있으므로 비록 지하의 영구처분장에 처분된다 하더라도 그 방사능은 장기간 지속된다.

현재 고온의 배소 및 유리화 공정 중에서 배출되는 휘발성 테크네튬 화합물의 처리방법은 응축 등의 물리적 방법을 이용하여 기상의 테크네튬을 미세한 aerosol 입자로 생성시킨 후 고성능 필터를 이용하여 제거하는 방법이 주된 방법이다. 그러나 응축법의 경우 반응로의 부식문제, 관로의 막힘 현상 및 침적물의 2차 처리 문제 등이 발생되고 있어 그 실효성이 문제시 되고 있다. 최근 휘발성 테크네튬 포집공정에 적용할 매질 선정에 관한 기초 연구가 수행되어 CaO, BaO 그리고 Y_2O_3 등의 매질이 포집재로서의 가능성이 나타났으며 매질의 포집량, 가격, 필터로의 제조성을 비교 분석한 결과 테크네튬 포집에 적합한 매질은 CaO로 선정되었다. 또한 테크네튬 포집공정의 최적 포집매질로 선정된 CaO을 이용하여 calcium based filter를 제조하였다. 제조된 필터를 이용하여 테크네튬의 surrogate인 레늄으로 휘발시킨 기체상 레늄산화물의 포집특성을 분석하였다.

따라서 본 연구에서는 실험실 규모의 포집장치를 설계 및 제작하여 포집공정의 calcium based filter를 제조하였다. 제조된 필터를 이용하여 테크네튬의 surrogate인 레늄으로 휘발시킨 기체상 레늄산화물의 포집특성을 분석하여 이의 결과를 테크네튬 포집공정의 기초 운전조건으로 활용하고자 하였다. FIg. 1에 배기체 포집장치의 설계도를 제시하였다. 배기체 처리시스템은 크게 voloxidizer 부분, 3단계로 구성된 핵종 포집부분으로 나누어져 있다. FIg. 1에 나타난 것처럼 포집실험은 voloxidizer의 가열영역에서 Re을 기화시키고 테크네튬 포집로의 가열영역에서 칼슘필터를 충전한 필터바스켓을 장착하여 기화된 레늄을 포집하였다. 레늄 휘발량은 실험 종료 후 남아있는 레늄의 무게를 측정하여 계산하였으며, 필터의 단위 질량당 레늄의 Calcium based filter의 레늄 포집 전·후의 결정 구조분석은 XRD (X-ray diffractometer, D-5000, siemens Co.)로 분석하였다. XRD 분석조건은 사용된 X선은 Cu-Kα선, 주사 속도는 2° / min, 2Θ값은 15° 에서 60° 범위로 측정하였다. 또한 SEM-EDX (Scanning Electron Microscopy - Energy Dispersive X-ray Detection)를 이용하여 레늄 포집 전·후 필터 표면의 성분 변화를 분석하였다.

제조된 Calcium based filter를 이용하여 공기분위기하 포집온도 600 ~ 800 ℃에서 기체상 레늄을 포집한 후의 필터를 XRD로 분석한 결과 calcium rhenium oxide hydrate($Ca(ReO_4)_2 \cdot 2H_2O$)를 형성함을 확인하였다. Fig. 2에 Re 포집 전·후의 Ca-based filter 표면의 사진을 제시하였다. Fig. 2에 나타난 바와 같이 포집 전 필터의 색은 흰색인 반면에 포집 후 터의 표면의 색은 전 표면에 걸쳐 약한 노란색을 나타내었다.

공기분위기 조건에서 칼슘 필터를 이용하여 레늄금속으로부터 휘발된 레늄화합물을 900℃에서 포집한 후 칼슘 필터의 표면 성분을 SEM-EDX로 분석 결과 Re 농도는 10.436 wt.% 로서 레늄이 포집되어 있음을 확인할 수 있었다.

Calcium based filter를 이용하여 Re 사용량 0.3 g, 포집온도 600 ℃ 및 800 ℃, 포집시간 3 시간, 선속도 10 cm/sec, 필터 깊이 80 mm 에서 기체상을 레늄을 포집한 결과 99 % 이상의 포집효율을 나타냈다. 또한 필터 깊이별 레늄 포집량을 분석한 결과 필터 깊이가 증가할수록 레늄 포집량은 감소하는 경향을 나타내었다. 따라서 제조된 Calcium based filter를 이용하여 공기분위기하 600~800 ℃ 범위에서 기체상 레늄의 포집필터로서 적용할 수 있을 것으로 판단된다.

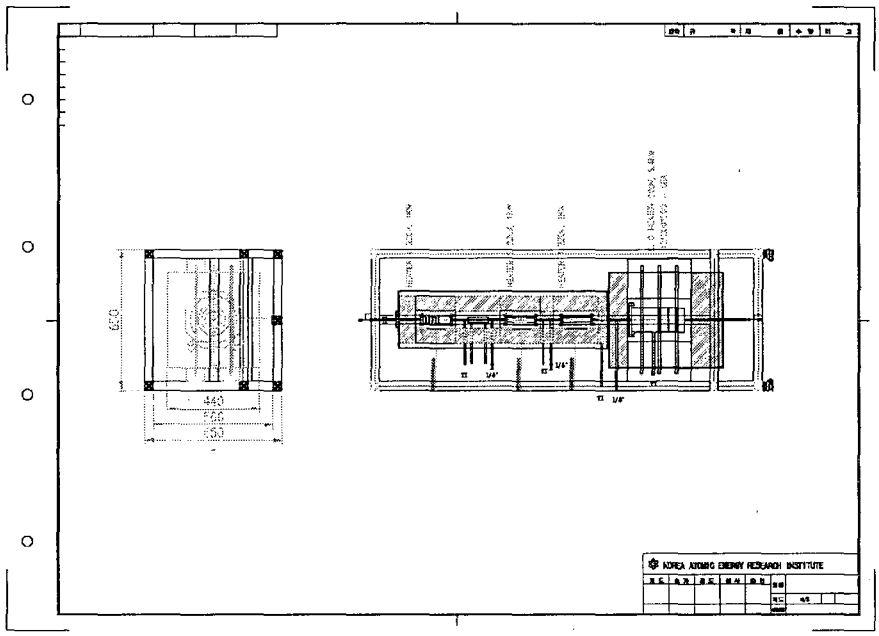

Fig. 1. Design drawing of off-gas trapping system.

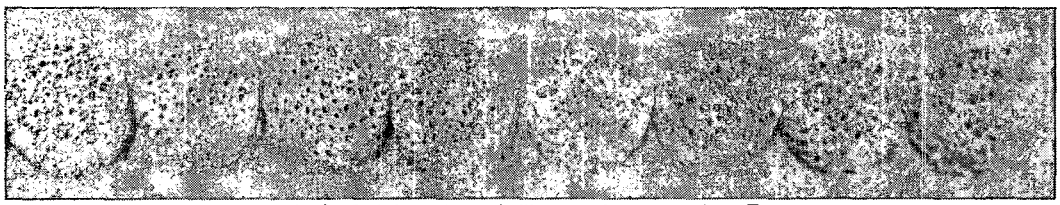

Fig.2. Calcium based filters after trapping Re.