진공조건하 요오드화세슘(CsI)의 포집특성

김지현, 신진명, 박장진, 송기찬
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150-1번지
jihyun9775@nate.com

1. 서론

최근 사용후핵연료를 재활용하기 위해서는 사용후핵연료 물질을 피복관으로부터 분리하는 탈피복 공정, 이를 pyroprocessing 공정에 사용하기 편리하도록 하고 여러 가지 핵분열생성물을 제거하는 휘발성산화공정이 요구된다. Pyroprocessing 공정에서도 장수명 핵종, 고방열핵종, 귀금속 등을 전처리 공정에서 사전 제거할 경우 후속공정의 방사능 감소, 공정효율 및 경제성 향상 등의 이점을 기대할 수 있다. 그러나 선진국에서도 최근에 활발하게 수행하고 있는 사용후핵연료 재활용을 위한 개량된 voloxidation 공정 개발 연구에서의 주요 핵심 사항은 공정에서 방출되는 핵종을 여러 휘발성 및 준휘발성 핵종 처리에 대한 연구로 기초 연구 단계에 머무르고 있는 실정이다. 또한 준휘발성 핵종의 처리방법은 냉각법등을 이용한 물리적 처리방법으로 처리효율이 최대 98.5%까지 밖에 제거할 수 없어 미제거된 핵종을 제거하기 위한 추가적인 고용량, 고효율의 필터시스템이 필요로 한다. 최근 KAERI에서는 DUPIC(Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors)공정 중 휘발성 산화공정에서 발생하는 배기체 처리기술에 대한 연구를 수행해 오고 있다. 본 연구에서는 실험실 규모의 필터를 이용하여 배기체 중 방사선적 위험도가 높고 처분시 타 핵종에 비하여 비교적 용출이 잘되는 ^{137}Cs에 대한 포집효율 및 포집형태를 분석하기 위한 실험을 수행하였다.

2. 실험 및 결과

세슘의 고정화재료로서 석탄회(fly ash)필터 그리고 기체상 세슘의 공급원으로 1.0 g CsI(Aldrich사, 99.9%)을 사용하였다. CsI의 무게를 측정 한 후 alumina crucible(50 ml) 내에 넣었다. 그런 다음 배기체 처리장치의 voloxidizer 안에 시약을 넣은 alumina crucible을 넣은 후 이를 배기체 발생원으로 사용하였다. 배기체 처리시스템(Off-gas Trapping System, OTS)은 크게 voloxidizer 부분과 3 단계로 구성된 핵종 포집부분으로 나뉘어져 있다. 그러나 본 연구에서는 세슘 포집실험을 수행하기 때문에 voloxidizer의 가열영역에서 배기체 발생원을 기화시켜 석탄회필터를 충전한 필터바스켓을 장착한 세슘 포집로만을 이용하여 기화된 배기체를 포집하였다. 포집 온도조건은 승온 1 시간 후에 fly ash filter unit는 900 ℃에 도달하도록 setting하였다. 이때 Cs filter의 단수는 9단이었고 석탄회필터의 포집온도를 증가시키기 위해 Fig. 1에 보여진 것처럼 crucible 상단면에 석탄회필터를 장착하였다. 세슘 포집부분이 정해진 온도에 도달한 것을 확인하고, 산소분위기하(유량 : 0.5 ℓ/min)에서 voloxidizer의 온도를 1 시간 후에 500 ℃에 도달하도록 한 후 3 시간 유지시켰다. 그 다음 산소공급을 차단시키고 1100 ℃까지 100 mtorr로 진공을 유지하여 Cs 포집실험을 수행하였다. 세슘의 휘발량 및 포집효율은 실험 종료 후 남아있는 시약의 무게를 측정하여 계산하였으며 포집후 필터의 색깔변화를 관찰하였다. WD-XRF(Wavelength dispersive X-ray fluorescence)를 통하여 필터에 포집된 Cs intensity를 분석하였다. 또한 비방사성 핵종포집후의 결정 구조분석은 10~70° 주사범위에서 XRD(X-ray diffractometer, D-5000, siemens Co.)분석을 통하여 수행하였다.

진공조건하(100 mtorr) 산소분위기에서 CsI로부터 휘발되는 세슘을 토가니 상단 면에 장착된 석탄회필터 및 세슘포집장치 내 석탄회필터를 이용하여 포집 실험한 결과 도가니 장착 필터에 17% 세슘이 포집되었고 세슘포집장치 필터의 1~9단에 퍼져 29% 세슘 포집효율을 얻었다. Fig. 2에 100 mtorr 진공조건하 세슘포집 후 crucible에 장착한 석탄회필터와 Cs 포집로의 석탄회필터 9단의 모습을 나타내었다. 그림에 나타난 것처럼 석탄회필터 9단까지 필터표면의 색이 갈색에서 진갈

색으로 변한 것으로 보아 세슘이 석탄회필터 9단 전체에 퍼져 포집되었음을 확인할 수 있었다. 이는 100 mtorr의 진공조건하에서 포집실험을 수행하여 공간속도가 상압에 비해 매우 크기 때문에 발생된 결과로 판단된다. Fig. 3에 제시한 XRF 분석결과 crucible 필터 및 세슘단위공정 포집필터 1~9단까지 반응하였음을 확인하였다. 또한 세슘 포집 후에 나타나는 석탄회 필터의 결정구조를 분석하기 위해서 crucible 석탄회 필터를 XRD로 분석한 결과 Fig. 4에 제시된 것처럼 세슘이 pollucite 형태로 잘 포집되었음을 확인할 수 있었다.

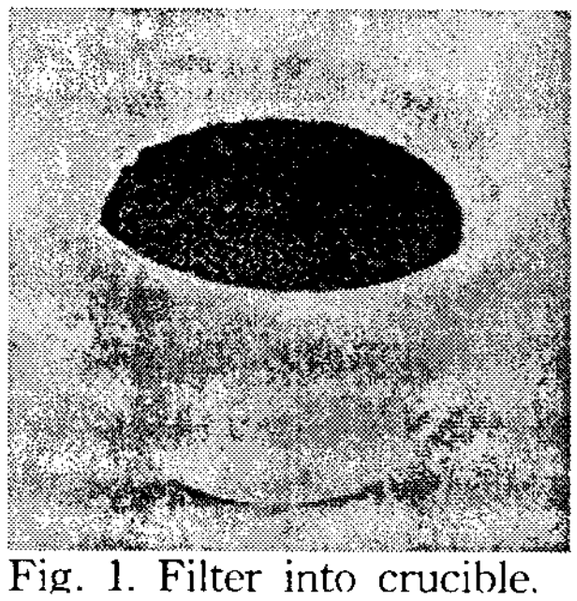

Fig. 1. Filter into crucible.

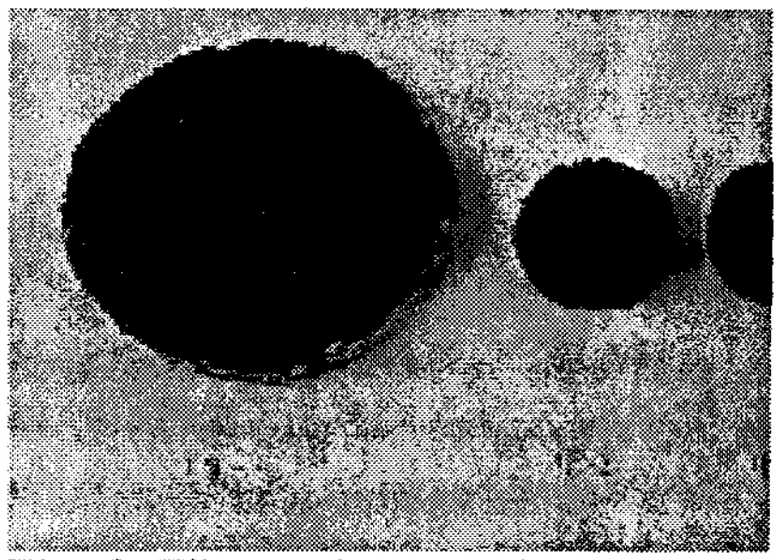

Fig. 2. Filters after trapping cesium.

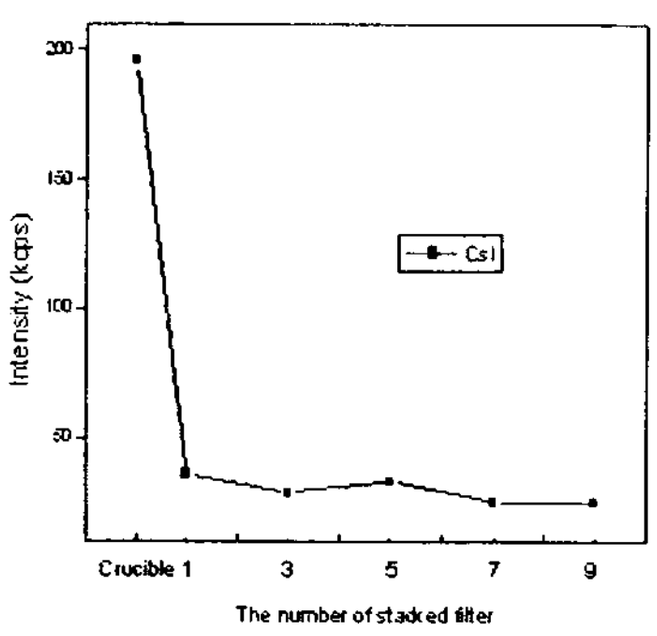

Fig. 3. Cs intensity as a function of the number of stacked filter.

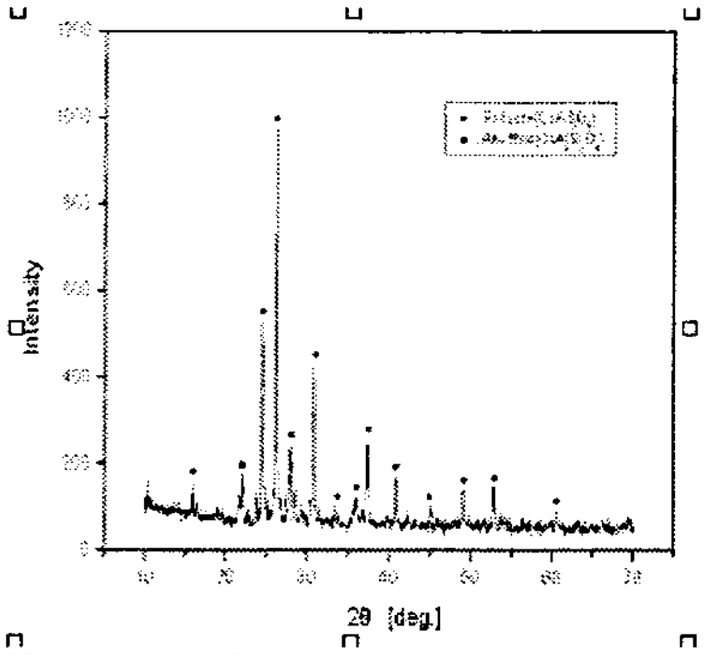

Fig. 4. XRD pattern of filter into crucible after trapping cesium in vaccum.

3. 결론

핵분열생성물 중 방사선적 위험도가 높고 처분시 타핵종에 비하여 비교적 용출이 잘되는 세슘의 고정화 재료로서 가장 주목받고 있는 것은 aluminosilicates인데 이의 대용매질로 사용한 석탄회필터는 세슘과 반응하여 pollucite($CsAlSi_2O_6$)를 형성하였다. pollucite는 내침출성 및 열안정성을 갖기 때문에 폐기물처분에 용이할 것으로 판단되며 발전소폐기물인 석탄회의 포집원료매질로의 사용은 폐기물의 재활용측면에서도 큰 의미가 있다고 볼 수 있다.

4. 참고문헌

1) J. Mukerji and P. B. Kayal, Reaction of $CsNO_3$ and $RbNO_3$ with natural aluminosilicates, Materials Research Bulletin, Vol. 10(10), 1975.
2) S. A. Gallagher and G. J. McCarthy, High tempeature thermal stability of $CsAlSiO_4$ and $CsAlSi_2O_6$, Materials Research Bulletin, Vol. 17(1), 1982.
3) 이후근 외, 핵연료주기 폐기물 재활용기술개발, KAERI/RR-1832/97, 원자력연구소(1998).
4) 박장진 외, 경수로 사용후핵연료 휘발성산화공정 기술개발, KAERI/RR-2840/2006, 원자력연구소(2007).