

Pyroprocess를 위한 휘발성 산화공정 기술개발 현황

박장진, 이재원, 신진명, 박근일, 송기찬
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진대로 1045
jjpark@kaeri.re.kr

최근, 경수로 사용후핵연료 재활용을 위한 pyroprocess에 대한 연구가 한국 KAERI, 미국 INL, 일본 CRIEPI 등에서 활발하다. Pyroprocess 공정은 산화물 경수로 사용후핵연료를 금속화하는 전해환원 공정, 잉여우라늄을 회수하고 TRU 물질을 회수하는 정해정련 공정, 염폐기물 처리 공정 등으로 구성된다. 그러나, 전해환원 공정에 사용후핵연료 물질을 사용하려면 사용후핵연료 봉으로부터 탈피복 공정을 거쳐 핵물질을 꺼내고, 이를 분말화하여 전해환원 공정에 사용하기 쉽도록 마그네시아 용기나 스테인레스 메쉬 용기에 핵물질을 장입하여야 한다.

한편, 핵물질을 산화분위기에서 열적으로 분말화하는 과정에서 자연스럽게 핵분열생성물이 휘발하게 되는데 이 공정을 휘발성산화 공정이라 한다. 초기의 휘발성산화 공정은 습식공정을 위해 개발한 것으로 사용후핵연료 중 삼중수소 제거와 용해 속도 증가를 위한 분말화가 주 목적이어서 대체로 500°C, 산화분위기에서 이루어졌다. 그러나, 초기의 기존 휘발성산화 공정은 표 1에 보는 바와 같이 삼중수소는 제거되나 Kr/Xe 핵종은 약 30% 미만 C-14, 요오드 등은 약 10% 미만 그리고 기타 Cs, Tc 등은 거의 제거 되지 않는다. 따라서, 기존 휘발성산화 공정을 pyroprocess에 적용할 경우 전해환원, 전해정련 공정의 배기체처리, 핵종분리, 공정효율 등에 부담이 된다.

이에 따라, 최근 한국의 KAERI, 미국의 INL에서는 상기의 문제를 해결하기 위하여 고온산화, 진공개념을 도입한 고도 휘발성산화공정을 개발하기로 하였다. 고도 휘발성 산화공정에서는 표1에서 보는 바와 같이 삼중수소 뿐만 아니라 고 방사능, 고방열 Cs, 장수명 I-129, Tc-99, C-14 핵종 등이 대부분 제거되며, 귀금속인 Ru, 불활성가스인 Kr/Xe도 대부분 제거 가능하다. 또한, 전처리 공정인 휘발성산화 공정에서 상기의 핵종들이 제거될 경우 방사선 준위 감소, 후속공정 필요 차폐두께 감소, 후속 공정 공정효율 향상 등 많은 잇점이 예상된다.

한편, 휘발성산화 공정에서 휘발한 핵분열 생성물을 안전하게 포집할 필요가 있다. 국내에서는 핵비확산성 건식공정 산화물 핵연료 제조를 위한 산화환원(OREOX)공정, 소결공정 중에 휘발하는 핵종을 포집하기위한 연구를 수행하였다[1]. 이 공정 중에서도 Cs, I, H-3 등이 휘발하며 이를 포집하기 위한 기술을 개발한 바 있다. 이와 같은 연구에 힘입어 미국 DOE(INL, ORNL)는 한국 KAERI에 경수로 사용후핵연료 휘발성산화공정 기술개발에 대한 공동연구를 제안하였다. 이에 따라, 2004년 6월부터 3년간 INERI 과제로 공동 연구를 수행하였으며 KAERI의 선도연구 분야는 배기체 처리 분야였다.

이 연구에서, 실제 사용후핵연료를 이용한 실험은 미국 INL HFEP 핫셀에서 수행하였다. 이 실험을 위해 배기체 처리실험 장치는 KAERI와 INL이 공동으로 설계하였으며 포집방법은 KAERI가 개발한 고온 화학반응법을 적용하였다. 그림 1에는 미국 INL과 공동으로 설계한 배기체 처리실험 장치의 핵분열생성물 포집 공정도를 나타냈다. 그림 1과 같이, 첫째 단에는 Cs, Rb, Cd 를 포집하기위한 석탄회 필터를 둘째 단에는 Tc, C-14, Ru를 포집하기위한 칼슘 필터를 셋째단에는 요오드를 포집하기위한 Ag-X 필터를 설치하였다. INL 핫셀 배기체 포집 실험결과 진공조건하에서는 상압조건과 다른 포집 특성을 보이고 있음을 확인 했으며 Cs, Rb, I 의 경우 95%이상의 우수한 포집효율을 보였다.[2]

참고문헌

1. 박장진 등, “경수로사용후핵연료 휘발성산화공정기술개발”, KAERI/RR-2840/2006, 한국원자력연구원 (2007).
2. 박장진 등, “건식공정 고방사성 핵물질 처리기술개발”, KAERI/RR-2760/2006, 한국원자력연구원 (2007).

표 1. 기존 휘발성산화공정과 고도 휘발성산화공정의 핵종 휘발율 비교

핵종	기존 휘발성 산화공정	고도 휘발성 산화공정	비 고
Kr/Xe	<30%	~100%	
H-3	~100%	~100%	
I-129	<10%	~100%	장수명 핵종
Tc-99	<1%	~100%	장수명 핵종
C-14	<10%	~100%	장수명 핵종
Cs	<1%	~100%	고 방사성, 고 방열 핵종
Ru	<1%	~100%	Noble metal
Mo	<1%	~90%	Noble metal
Rh	<1%	~80%	Noble metal

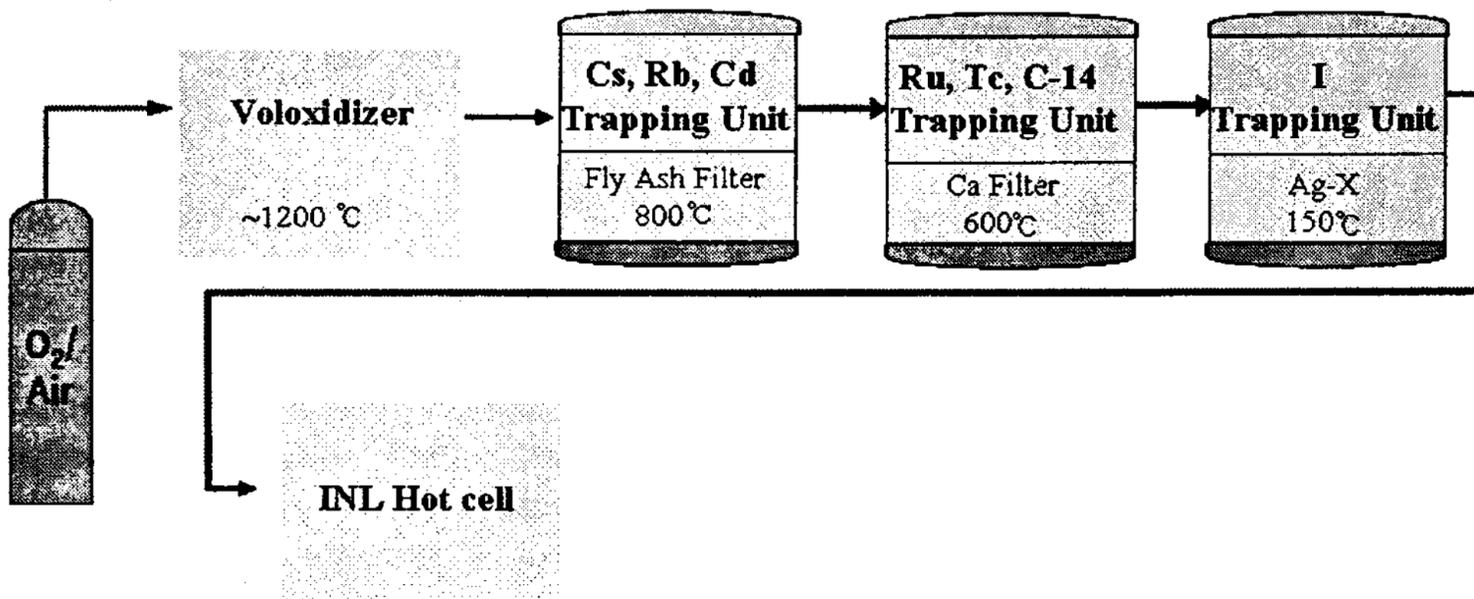


그림 1. INL 핫셀의 배기체처리 공정 흐름도.