

석탄회필터와 칼슘필터를 이용한 세슘과 레늄의 포집

신진명, 박장진, 이재원, 나상호, 박근일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

ijpark@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료를 재활용하기 위해서는 사용후핵연료 물질을 피복판으로 부터 분리하는 탈피복 공정, 탈피복된 사용후핵연료를 후속공정(습식인 경우 UREX 공정, 건식인 경우 Pyroprocessing 공정)에 적합한 원료물질로 제조하는 동시에 여러 가지 핵분열생성물을 제거하는 전처리 공정이 요구된다. Pyroprocess 공정의 전처리공정으로서 고도 휘발성 산화공정을 도입하면 기존 저온 휘발성 산화공정 채택 시 제거효과는 미미한 Cs, Tc, I, Ru, Te, Mo 등을 제거할 수 있다[1]. 또한, 상기 전처리공정으로부터 휘발되는 기체상 핵분열생성물을 안전하게 포집하는 배기체 처리 기술개발이 요구된다. 고도 휘발성 산화공정 중 휘발되는 핵종 중의 하나인 세슘(Cs^{137})은 반감기가 약 30년인 고방열 및 고방사능 핵종이며, 테크네튬(Tc^{99})은 반감기가 약 210,000인 장수명 핵종이다. 고도 휘발성 산화공정 중 휘발되는 세슘과 테크네튬을 분리 포집하지 않으면 세슘포집필터가 장기간 저장 후에도 저준위폐기물(Class C)이 안 되고 또한 세슘의 발열량으로 인해 많은 처분 면적이 필요하다. 따라서 현재 고도 휘발성 산화공정으로부터 휘발되는 세슘과 테크네튬을 분리할 수 있는 성능 개선 필터의 연구가 필요하다. 필터 성능 개선에 앞서 현재 배기체 처리장치에 이용하고 있는 기존의 석탄회필터와 칼슘필터의 세슘 및 레늄(테크네튬) 포집 및 분리효과를 확인하여 향후 필터의 개선 자료로 활용하고자 한다. 따라서 배기체 처리시스템에서 상압하 석탄회필터와 칼슘필터를 이용하여 각각 1000℃ 및 800℃의 포집온도에서 세슘과 레늄을 포집하였으며, 이에 대한 포집 특성 평가를 위해 포집 전·후의 무게, XRD, SEM-EDX, ICP를 사용하여 질량변화, 미세구조의 변화 및 성분분석 등을 측정하였다.

2. 본론

본 실험에 사용된 OTS(Off-gas Trapping System) 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. Tc는 인공 방사성 원소이기 때문에 surrogate로서 화학적 특성이 비슷한 Re(Aldrich Co. 99.9%)을 기체상 Tc의 공급원으로서 사용하였다. 레늄은 매우 높은 녹는점(>3180℃)을 가지며 환원분위기에서는 안정한 특성이 있다. 반면에 레늄은 많은 refractory metals 처럼 산소와 쉽게 반응을 하여 열열학적으로 안정한 $Re_2O_7(g)$, $ReO_3(g)$ 및 $Re_2O_6(g)$ 와 같은 레늄 산화물을 형성한다고 알려져 있다[2].

세슘과 레늄의 포집 실험은 배기체 처리시스템의 voloxidizer에서 세슘과 레늄 발생원을 기화시킨다. 기체상 세슘 및 레늄의 공급원으로 $CsNO_3$ 1.025g과 Re 0.206g을 사용하였다. 각 시약의 무게를 측정 후 잘 혼합한 후 OTS 장치의 voloxidizer 안에 상기 시약을 alumina crucible 내부에 넣었다. 그런 다음 기화된 세슘과 레늄은 첫 번째 포집존에 장착한 석탄회필터(18mm(O.D) X 10mm (H)) 10단을 통과한 후 이어 두번째 포집존의 칼슘필터 (18mm(O.D) X 10mm(H)) 10단을 통과하여 제거된다. 각 필터의 포집온도는 석탄회필터의 경우 1000℃, 칼슘필터는 800℃이었다.

포집 온도 조건은 승온 1시간 후에 첫 번째 세슘포집 zone은 1000℃, 두 번째 레늄포집 zone은 800℃에 도달되도록 한 후 6시간 등은 시켰다. 각각의 포집 zone이 정해진 온도에 도달한 것을 확인한 후 voloxidizer의 온도를 1시간 동안 560℃에 도달되도록 한 후 3시간 등은 후 온도를 1시간 후에 1200℃에 도달되도록 한 후 1시간 등은 시켰다. Voloxidizer 가동 시작부터 공기를 0.5 L/min 유량으로 흘려보냈다.

Fig. 1에 세슘 및 레늄 포집 후의 석탄회필터와 칼슘필터의 모습을 나타내었다. 그림에 나타난 것처럼 석탄회필터 1~3단의 표면이 검갈 색으로

변하였다. 석탄회필터 1단, 3단 및 4단의 표면을 SEM으로 모양을 확인하고 EDX로 성분을 분석한 결과 필터 1단 및 3단의 경우 세슘이 44.3, 40.8wt.%로 나타났고 4단은 세슘이 검출되지 않았다. 또한 ICP로 필터 4단을 원소 분석한 결과 세슘이 검출되지 않았다. 따라서 석탄회필터 1~3단 내에서 기체상 세슘이 포집되었음을 알 수 있었다. 세슘 포집 후 석탄회필터 1단을 XRD로 분석한 결과 세슘은 pollucite ($CsAlSi_2O_6$) 형태로 포집되었음을 확인할 수 있었다. 반면에 필터 1단부터 10단 까지 석탄회필터에 레늄이 0.09부터 3.13wt.% 범위로 분석되었다. 이는 석탄회필터의 칼슘성분이 레늄과 반응한 것으로 판단된다.

Fig. 1에 레늄 포집 후 칼슘필터의 모습을 나타내었다. 그림에 나타난 것처럼 칼슘필터 1단의 표면이 검갈 색으로 변하였다. 무게분석을 통해 칼슘 필터 1단 내에 레늄이 전량 포집되었음을 확인할 수 있었다. 칼슘필터 1단 및 2단의 표면을 SEM으로 형상을 확인한 후 EDX로 화학적 성분을 분석한 결과 1단의 경우 레늄은 30.21 wt.%로 나타났고 2단은 레늄이 검출되지 않았다. 또한 ICP로 필터 2단을 원소 분석한 결과 레늄이 검출되지 않았다. 또한 레늄 포집 후 칼슘필터를 XRD로 분석한 결과 레늄은 calcium rhenium oxide hydrate ($Ca(ReO_4)_2 \cdot 2H_2O$) 상으로 포집되었다.

3. 결론

고온 휘발성산화공정에서 발생하는 세슘과 레늄(테크네튬)의 분리 포집을 위해 석탄회필터와 칼슘필터를 제조하여 이들의 포집특성 연구를 수행하였다. 그 결과 석탄회필터 3단 내에 세슘이 전량 포집된 반면에 아주 적은 양의 레늄이 10단에 걸쳐 포집되었다. 반면에 칼슘필터는 대부분의 레늄이 필터 1단에 포집되었다. 따라서 현재 고도 휘발성 산화공정으로부터 휘발되는 세슘과 테크네튬을 분리하여 포집하는 방법으로 기존의 석탄회필터와 칼슘필터의 분리성능을 향상시킨 개선필터의 연구개발이 요구된다.

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] N .S. Jacobson, D. L. Myers, D. Zhu, and D. L. Humphery, "Rhenium/Oxygen interactions at elevated temperatures", Oxidation of Metals, 55, 471 (2001).

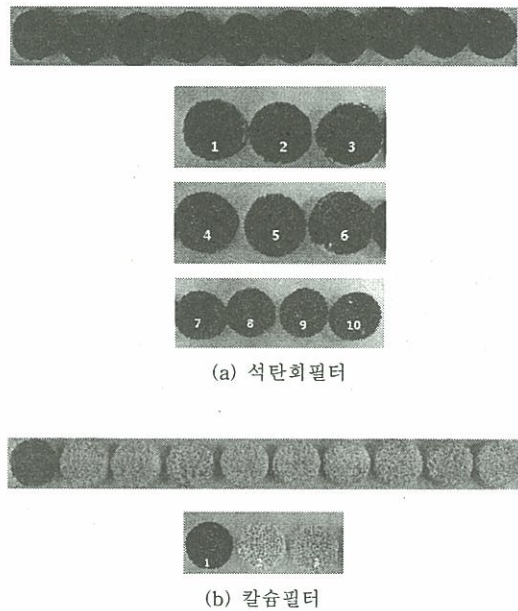


Fig. 1. 기체상 세슘과 레늄 포집 후 석탄회필터 및 칼슘필터의 외관