

레늄 포집량별 칼슘필터의 포집특성 분석

신진명, 박장진, 양재환, 김영자, 백영희, 박근일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

jjpark@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료를 재활용하기 위해서는 사용후핵연료 물질을 피복관으로 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 제거효과가 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 테크네튬(Tc⁹⁹)은 반감기가 약 2.1×10^5 년인 장수명 핵종이다.

현재 고온 휘발성 산화공정에서 제거된 테크네튬을 안전하게 포집하는 방법으로 칼슘필터를 이용하여 이들을 고온에서 안전하게 화학흡착 하는 연구가 진행되고 있다. 향후 석탄회 필터를 고온 휘발성 산화공정의 배기체 처리에 적용하기 위해서는 열적으로 안정한 형태의 테크네튬 화합물을 형성해야 한다. 또한 배기체 처리장치 운영 및 폐필터 저장 중 발생할 수 있는 화재 등 사고시를 대비하여 반응한 테크네튬의 재휘발 등 테크네튬의 고온 안정성에 대한 검토가 필요하다.

따라서 본 연구에서는 테크네튬의 surrogate인 레늄의 발생량을 변화시켜 칼슘필터에 포집된 레늄의 포집량별로 XRD, TGA로 결정구조 및 열분해 특성 분석을 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

Tc는 인공 방사성 원소이기 때문에 surrogate로서 화학적 특성이 비슷한 Re(Aldrich Co. 99.9%)을 기체상 Tc의 공급원으로서 사용하였다. 레늄은 매우 높은 녹는점(>3180°C)을 가지며 환

원분위기에서는 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 레늄산화물을 형성한다고 알려져 있다[2]. 실험에 사용한 칼슘 필터는 직경이 약 18mm, 두께는 약 10mm, 무게는 대략 1g이었다. 필터는 총 10단을 이용하여 실험에 이용하였다. 그리고 분위기 가스는 공기이었고 포집층의 공탐속도는 10 cm/sec 이었다. 칼슘필터에 포집된 레늄의 포집량은 0.04~0.83 g-Re/g-filter 이었다. 이 중 레늄의 포집량이 0.14, 0.26, 0.51, 0.62, 0.83 g-Re/g-filter인 필터를 선택하여 각각의 필터를 잘 분쇄한 후 XRD 및 TGA로 결정구조 및 열분해 특성분석을 수행하였다.

XRD의 분석조건은 X선은 Cu K α 선이며 주사속도는 2°/min 이고 2 θ 값이 10°에서 70°범위에서 측정하였다. 또한 TGA(Cahn TG -171, Cahn Instruments, Inc.)의 분석조건은 시료를 약 1000 mg 취하여 100°C에서 15분, 150°C에서 1시간, 800°C에서 1시간, 1000°C에서 1시간, 1200°C에서 1시간 유지시켰고 공기유량은 분당 20cm³가 되도록 하였다.

2.2 실험결과

레늄 포집실험 결과 칼슘필터의 레늄 최대 포집량은 0.83(g-Re/g-filter)이었다. 칼슘필터에 포집된 레늄의 포집량 분포는 0.04 ~ 0.83 (g-Re/g-filter) 범위이었다. 레늄이 포집된 칼슘필터의 결정구조를 분석하기 위해서 칼슘 필터의 XRD 분석한 결과 Fig. 1에서 보는 바와 같이 칼슘필터에 포집된 레늄은 포집량 0.04~0.83(g-Re/g-filter)까지 calcium rhenium oxide hydrate ($Ca(ReO_4)_2 \cdot 2H_2O$)로 포집되었고 레늄 포집량이 $Ca(ReO_4)_2 \cdot 2H_2O$ peak이 발달하는 경향을 보였다.

칼슘필터의 레늄 최대 포집량인 0.83(g-Re/g-filter) 으로서 필터의 레늄 함량은 41.3% 이었다. Fig. 2에 상기 시료의 열중량 분석결과를 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 100°C에서 15

분 및 150℃에서 1시간동안 휘발된 수분의 양은 약 3.8% 이었다. 수분의 휘발량을 제외하고 80 0℃에서 1시간, 1000℃에서 1시간, 1200℃에서 1 시간동안 휘발된 레늄의 휘발량을 분석한 결과 각각 0.8%, 3.1%, 13.5% 로서 온도가 증가할수록 휘발량이 증가하였다.

이는 공기분위기하 calcium rhenium oxide hydrate (Ca(ReO₄)₂ · 2H₂O) 상이 고온에서 열적으로 불안정하기 때문에 칼슘 필터에 포집된 레늄이 휘발되는 것으로 판단된다.

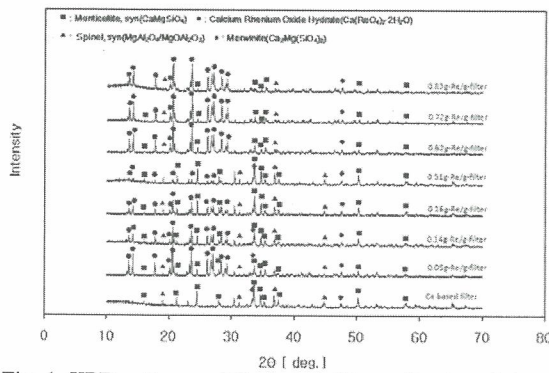


Fig. 1. XRD patterns of Ca-based filters after trapping Re at different Re trapping quantities.

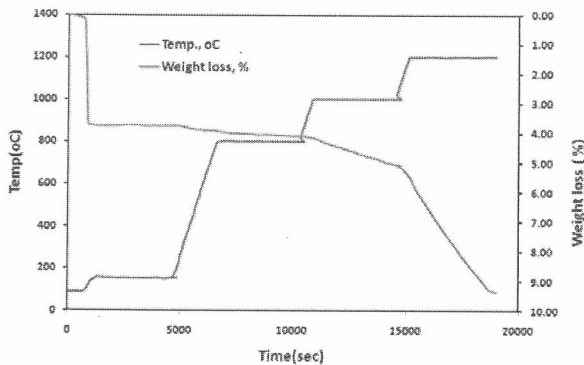


Fig. 2. TGA analysis for Ca-based filter of Re trapping quantity of 0.83g-Re/ g-filter.

3. 결론

이 실험의 결과로서 칼슘필터에 포집되는 레늄의 최대 함량은 41.3% 임을 알 수 있었다. 공기분위기하 칼슘필터에 포집된 레늄 함량 4%~41.3%에서 calcium rhenium oxide hydrate(Ca(ReO₄)₂ · 2H₂O)로 포집됨을 알 수 있었다. 공기분위기하

칼슘필터에 포집된 레늄은 고온에서 열적으로 불안정하기 때문에 레늄(테크네튬) 페필터를 고화할 경우 분위기 조절 등의 공정조건 검토가 필요한 것을 것으로 판단된다.

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).