

## 대용량 칼슘필터를 이용한 레늄의 포집특성

김영자, 신진명, 박장진, 박근일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

imshin@kaeri.re.kr

### 1. 서론

원자로에서 조사된 핵연료 또는 사용후핵연료의 고온 건식 산화과정 시 발생하는 준휘발성 핵종 중의 하나인 테크네튬은 반감기가 약 21만년인 장수명 핵종으로 이를 안전하게 포집하는 기술이 중요하다. 이에 본 기관에서는 테크네튬의 대체물질인 레늄을 휘발시켜 각종 산화물과의 반응성을 조사하였다. 선정된 산화물 중에서 CaO가 선정되었으며 칼슘필터는 레늄과 반응하여  $\text{Ca}(\text{ReO}_4)_2$ 상을 형성하며 5.55g-Re/g-Ca의 포집능을 나타내었다[1]. 이 외에도 사용후핵연료의 고온 건식 산화과정에서 발생하는 준휘발성 핵종들의 대규모 분리포집을 위한 공학규모(50kg-SF/batch)배기체 처리장치를 개발하여 설치하였다.[2]

본 논문에서는 기 제작된 대용량 준휘발성 핵종 배기체 처리장치에 칼슘필터를 적용하여 레늄의 포집성능을 평가하고자 하였다. 대용량 배기체 처리 장치의 설계기준은 pyroprocessing 공정의 기준 핵연료인 PWR 사용후핵연료(초기농도 : 4.5 wt.%, 연소도 : 45,000 MWd/tU, 냉각기간: 5년)로서 50kg급 사용후핵연료에서 발생하는 테크네튬의 양을 1batch 기준으로 하여 설계되었으며 본 실험에서는 1batch, 3batch 용량을 기준으로 휘발된 레늄이 칼슘필터에 전량 포집되는 조건으로 설정하였다. 포집성능에 대한 평가는 여러 단의 칼슘필터를 적용하여 각 필터의 중량 변화를 확인하였다. 또한 칼슘필터에 포집된 레늄의 결정특성을 XRD 분석을 통하여 확인하였다.

### 2. 본론

#### 2.1 실험방법

대용량 실험장치는 Cs, Tc, I의 분리포집을 위해 만들어진 것으로 핵종을 휘발시키는 첫 번째 반응기 voloxidizer와 후단의 각 핵종별 포집을 위한 반응기 3기가 있다. 본 실험에서는 첫 번째와 두 번째 반응기를 이용하여 핵종 휘발과 Re 포집을 실시하였다.

칼슘필터는 직경 245mm, 높이 10mm의 크기의 다공성 형태로 휘발된 기체상의 레늄이 막힘없이 흘러갈 수 있도록 하고 칼슘필터와 기체상 레늄의 반응면적을 넓혀 반응속도를 높였다. 필터는 총 8~11단을 적층하여 휘발된 레늄의 각 필터별 중량분포를 확인하고 필터에 포집된 물질의 상을 분석하기 위해 XRD 분석을 행하였다.

Re은 Tc의 대체물질로 고용점, 고비점을 갖는 물질로 산화 분위기에서  $\text{Re}_2\text{O}_7$ 이 형성되어 비교적 낮은 온도에서도 전량 휘발시킬 수 있다. 따라서 Re의 휘발은 산소분위기에서 450℃의 온도에서 3hr 유지 시 공급 중량의 99.9%를 휘발시킬 수 있었다.

실험은 Voloxidizer에 알루미늄 용기를 사용하여 Re을 넣고 칼슘필터(245mm(O.D) X 10mm(H)) 11단을 장착한 후 공기를 2.2cm/sec으로 유지하면서 레늄 포집 반응기의 온도를 700℃로 승온 시키고 voloxidizer의 온도를 450℃에서 3hr을 유지하여 레늄 포집실험을 수행하였다.

#### 2.2 실험결과

포집실험 종료 후 레늄의 휘발율은 약 99.9%로 거의 전량이 휘발되었으며 휘발된 레늄은 산화물( $\text{Re}_2\text{O}_7$ )의 형태로 적층된 칼슘필터에 순차적으로 포집되었음을 Fig. 1을 통해 알 수 있다. 칼슘필터에 포집된 레늄의 양은 1단부터 5단에 걸쳐 0.26, 0.13, 0.06, 0.02, 0.001g- $\text{Re}_2\text{O}_7$ /g-filter의 레늄이 포집되었고 6번째 칼슘필터부터 11번째 칼슘필터까지는 레늄이 포집되지 않은 것을 확인할 수 있다. 이는 Fig.2에서의 XRD 패턴을 통해서도 확인할 수 있다. 첫 번째 칼슘필터에는  $\text{Ca}(\text{ReO}_4)_2$ 상과  $\text{Ca}(\text{ReO}_4)_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 상이 Re 포집 후 형성되었음을 알 수 있다. 위의 두 상을 나타내는 XRD peak은 네 번째 칼슘필터까지 나타나며 미량이 함유된 다섯 번째 칼슘필터와 나머지 여섯 개의 칼슘필터에는 나타나지 않고 칼슘필터 고유의 결정구조를 나타내고 있다.

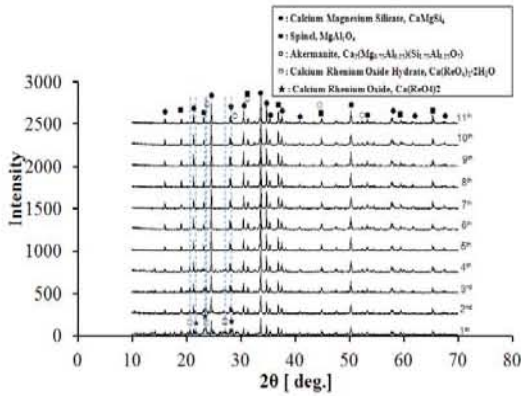


Fig. 1. XRD patterns of Calcium-based filters at different Rhenium trapping quantities.

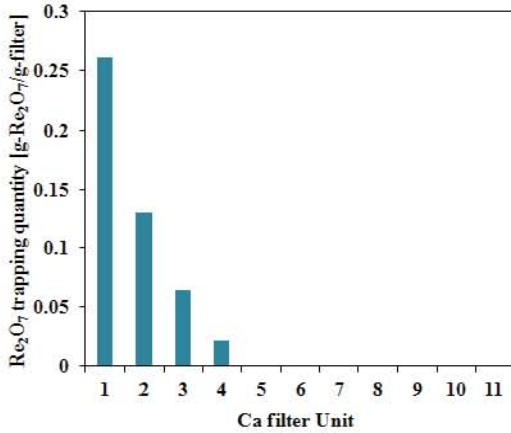


Fig. 2. Rhenium trapping quantity on filter units.

### 3. 결론

50kg SF에서 휘발되는 Re량을 1batch 기준으로 하는 공학규모의 폐기체 처리시스템에서 본 연구원에서 개발한 대용량 칼슘필터를 적용하여 3batch에 해당하는 Re을 포집할 수 있었다. Re이 포집된 칼슘필터의 상변화 및 중량변화를 통해 휘발된 Re이 외부유출 없이 칼슘필터에 포집되었으며 포집된 Re은 Ca(ReO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>상과 Ca(ReO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>·2H<sub>2</sub>O상을 형성하여 존재함을 확인하였다.

### 4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

### 5. 참고문헌

- [1] J. M. Shin, J. J. Park, J. W. Lee, S. H. Na, Y. J. Kim, and G. I. Park, "Design of an Engineering Scale Off-Gas Trapping System at KAERI", Global 2011, Japan, 2011.
- [2] 박장진, 신진명, 김지현, 송기찬, "포집매질별 Re 포집 특성", 한국열물성학회지, Vol. 2, No. 1, 2008, p.47-52.