

'98 추계학술발표회 논문집  
한국원자력학회

**DUPIC 핵연료제조공정 중 발생 배기체 처리장치 설계**  
**Design of an Off-gas Treatment System**  
**for DUPIC Fuel Fabrication Process**

김종호 · 박장진 · 손종식 · 양명승 · 전관식

한국원자력연구소

**요 약**

DUPIC 핵연료제조공정에서 발생하는 배기체처리장치의 설계기준, 계통도를 작성하였으며 단위포집장치 등의 크기, 포집재의 종류 및 소요량 등을 산정하였다. 배기체포집장치의 설계에 사용된 가압경수로형 사용후핵연료는 초기농축도 3.5%, 연소도 44,000 MWD/MTU, 냉각기간 5년인 것을 대상으로 하였다. 포집장치의 계통도는 단위포집장치 들의 운전온도를 일차적으로 고려하고 다음으로 처리기체에 의한 오염 및 성능저하 등의 상호관계를 고려하여 설계 하였다. 각 단위포집장치 들은 효율적인 보수·유지를 위하여 개별적으로 분리가 가능하고 포집재의 교체가 가능하도록 접속부위의 용접을 배제하고 swagelok fitting을 하였으며 manipulator의 접근가능성, 운전용이성 등을 고려하여 설계하였다.

**Abstract**

Preliminary off-gas treatment system was designed to treat the off-gas arising from the DUPIC fuel fabrication process. Design information regarding each trapping unit was determined such as unit size, unit design criteria and trapping material. Design was performed based on the spent PWR which has initial  $^{235}\text{U}$  content of 3.5%, burn-up of 35,000 MWD/MTU and cooling time of 5 years. The system arrangement was done first from the perspective of operation temperature and then from the perspective of contamination and performance of each trapping unit. Each trapping unit was connected by Swagelok union, not by welding, so that it could be easily disconnected for maintenance and replacement. Basically the piping system was arranged considering the accessibility of manipulator and easy operability.

## 1. 서론

DUPIC 핵연료제조공정은 경수로사용후핵연료의 탈피복, 산화·환원 및 소결 과정을 거치게 된다. 산화·환원과정에서는 탈피복된 사용후핵연료 분말의 소결 성을 향상시키기 위하여 산화분위기 및 환원분위기에서 각각 약 450°C 및 600°C로 처리하게 되며 산화·환원과정을 3회 반복한다. 소결과정은 제조된 압분체를 고밀화 시켜 단위체적당 가능한 많은 양의 핵분열물질이 구성되도록 하는 소결체를 제조하기 위하여 수소분위기, 1700°C하에서 수행된다.

한편 산화·환원 및 소결과정에서는 휘발성 및 준휘발성 방사성 기체폐기물들이 발생하게 되는데 각 과정에서 발생되는 방사성기체폐기물의 종류와 발생량은 서로 다르다. 따라서 각 과정의 특성에 맞는 방사성폐기물 처리공정이 설계·제작되어야 한다.

본 논문에서는 DUPIC 핵연료제조공정 중 사용후핵연료의 산화·환원 및 소결과정에서 발생하는 배기체처리계통의 설계기준, 계통도를 작성하였으며 단위포집장치 등의 크기, 포집재의 종류 및 소요량 등을 산정하였다.

## 2. DUPIC 핵연료제조공정의 산화·환원로 및 소결로

DUPIC 핵연료제조공정의 주요 열처리공정장비인 산화·환원로 와 소결로는 process 가스공급계통, 산화·환원로 및 소결로, 배기체처리계통으로 나누어져 있다.

### 2.1 process 가스공급계통

본 장치에서 사용하는 질소, 산소, 수소가스는 전부 표준용기(충전압력, 150Kg/cm<sup>2</sup>)로 반입된다. 용기에서 나온 질소, 산소, 수소가스는 라인필터, 감압밸브(2단계), 유량계를 거쳐 산화환원로 및 소결로에 공급된다. 수소가스를 사용하는 경우 안전성에 대하여 충분한 고려가 필요하다.

### 2.2 산화환원로 및 소결로

산화·환원로는 핵물질분말의 산화·환원반응이 450°C 및 600°C에서 진행될 수 있도록 반응계의 온도를 자동으로 조절해 준다. 노내의 분위기 조절도 가능하다.

소결로는 제조 압분체를 고밀화시키기 위한 소결반응이 1,700°C 하에서 진행될 수 있도록 해 주며 산화·환원로와 같이 노내의 분위기 조절이 가능하도록 되어 있다.

### 2.3 배기체처리계통

배기체처리계통은 DUPIC 핵연료제조공정 중 산화·환원 및 소결과정에서 발

생하는 배기체를 처리하기 위한 것이다. 발생배기체처리장치의 계통도를 그림 1에 나타내었다.

### 3. 배기체처리계통설계

#### 3.1 대상 사용후핵연료

배기체처리계통 설계를 위하여 DUPIC 핵연료제조공정 중 산화·환원 및 소결 과정에 이용될 가압경수로형 사용후핵연료는 초기농축도 3.5%, 연소도 44,000 MWD/MTU, 냉각기간 5년인 것을 대상으로 하였다.

#### 3.2 예상 발생핵종 및 발생량

DUPIC 핵연료제조공정 중 산화·환원로 또는 소결로에서 방출되는 배기체에는 소량의 미립자, 휘발성 및 준휘발성 방사성핵종 등이 포함되어 있다. DUPIC 핵연료제조에 사용될 기준 경수로사용후핵연료에 대한 각 공정중에 나타나는 주요 핵종의 예상누출율을 표 1에 종합하였으며 이를 기초로 하여 각 과정에서의 방사성 기체폐기물의 발생량을 계산하였다.

#### 3.3 배기체처리 공정도

DUPIC 핵연료제조공정 중 발생하는 핵종제거를 위한 배기체처리공정도를 그림 1에 나타내었는데 우선 방사선적위험도가 높고 처리온도가 높은 세슘과 루테늄을 석탄회 및 이트리아 세라믹필터를 이용하여 처리한다. 약 1000°C의 배기가스는 열교환기를 거쳐 약 400°C까지 냉각되어 삼중수소를 포집 가능한 형태인 삼중수로 전환하는 삼중수소전환탑을 거친다. 다음 배기가스중 요오드화합물을 음침착제올라이트를 이용하여 제거한 후 삼중수는 molecular sieve 5A를 이용하여 포집하였다.

#### 3.4 배기체처리계통의 단위포집장치

산화·환원로 또는 소결로에서 방출되는 미립자, 휘발성 및 준휘발성 방사성핵종을 포집하기 위하여 각각 필터 및 핵종별 단위포집장치를 설계하였다. 배기체처리계통의 단위포집장치 별 설계기준을 마련하였고 물질수지도를 작성한 후 이를 근거로 단위포집장치의 크기 및 포집재의 소요량을 산정하였다. 포집장치에 대한 공정흐름도는 단위포집장치들의 운전온도를 일차적으로 고려하고 다음으로 처리기체에 의한 오염 및 성능저하 등의 상호관계를 고려하여 작성하였다. 각 단위포집장치들은 효율적인 보수·유지를 위하여 개별적으로 분리가 가능하고 포집재의 교체가 가능하도록 접속부위의 용접을 배제하고 swagelok fitting을 하였으며

manipulator의 접근가능성, 운전용이성 등을 고려하여 설계하였다.

#### 가. 세슘 · 루테늄 trap

준휘발성 성분 중 특히 세슘이 방사선적 위험도가 높고 처분시 타 핵종에 비하여 비교적 용출이 잘 되기 때문에 또 루테늄은 그 거동이 불안정하고 배관 내벽면 등에 석출되며 process의 안정운전에 악영향을 미치는 경우가 있으므로 이들을 포집하여 처리하여야 한다. Cs · Ru trap은 내경 80 mm, 높이 약 250 mm의 SUS 316으로 만든 충전탑으로 탑 하부에는 포집재가 누출되지 않도록 지름 2mm의 작은 구멍이 뚫어져 있는 두께 3mm의 금속판을 설치하였다. 또 탑 하부에는 탑내의 온도를 측정할 수 있는 열전대를 설치하였다.

세슘의 포집재로는 석탄회를 이용하여 만든 세라믹기포여과체를 사용하였고 루테늄포집재로는 이트리아( $\text{Y}_2\text{O}_3$ )를 사용한다. 소결로와 세슘 · 루테늄 trap 사이에서 준휘발성 핵종인 세슘 · 루테늄의 응축을 방지하기 위하여 소결로에서 세슘 · 루테늄 trap에 이르는 배관을 500°C로 가열 가능하도록 설계하였다. 즉 소결로에서 세슘 · 루테늄 trap까지의 배관을 직경 3.2mm인 sheath heater(0.25 kW, SUS 316)로 감은 후 temperature controller에 의한 heater의 on-off 운전에 의하여 배관의 온도를 약 500°C로 유지하도록 설계하였다. Cs · Ru trap 내의 설계온도는 800°C, 설계압력은 3Kg/cm<sup>2</sup>이다.

#### 나. 요오드 trap

I<sub>2</sub> trap은 내경 100 mm, 높이 약 250 mm의 SUS 316으로 만든 충전탑으로 탑 하부에는 포집재가 누출되지 않도록 지름 2mm의 작은 구멍이 뚫어져 있는 두께 3mm의 금속판을 설치하였다. 또 탑 하부에는 탑내의 온도를 측정할 수 있는 열전대를 설치하였다. 포집재로는 은침착제올라이트를 사용한다. 충전층 내의 온도는 약 120°C이며 I<sub>2</sub> trap의 설계온도는 200°C, 설계압력은 3Kg/cm<sup>2</sup>이다.

#### 다. 삼중수소 trap

삼중수소 trap의 경우 삼중수소의 제거효율을 높이기 위하여 일단 산화동 촉매를 이용한 산화전환탑에서 삼중수로 전환시킨 후 삼중수를 처리하는 개념을 도입하였다. 삼중수소 전환탑, 삼중수 흡수탑은 모두 내경 80 mm, 높이 약 250 mm의 SUS 316으로 만든 충전탑으로 탑 하부에는 포집재가 누출되지 않도록 지름 2mm의 작은 구멍이 뚫어져 있는 두께 3mm의 금속판을 설치하였다. 삼중수소 전환탑은 포집재로서 산화동을 사용하며 삼중수흡수탑은 molecular sieve 5A를 사용하였

다. 삼중수소전환탑의 설계온도는 500°C, 설계압력은 3Kg/cm<sup>2</sup> 이다.

#### 라. 미립자제거 trap

배기체 중에 부유하고 있는 미립자의 제거에는 HEPA 필터와 balston 필터가 사용된다. HEPA 필터는 불연성의 고성능필터(여과성능: 0.3 μ 입자 99.97%)를 이용한다. 고성능필터는 크기 80(L) X 50(W) x 100mm(H)이고 입구, 출구 양단은 1/2 inch union을 이용하여 제작하였다. 압력손실은 공기유량 0.1 CMM인 경우 9.5 mmAq이다. HEPA를 거친 후에는 balston 필터를 거치게 된다.

### 3.5 단위포집장치의 설계기준

배기체처리장치 내의 단위포집장치 별 설계기준을 표 2에 나타내었다.

## 4. 결론

향후 IMEF hot cell 내에서 PWR사용후핵연료를 이용하여 진행될 DUPIC핵연료제조공정 중에는 휘발성 내지는 준휘발성 성분의 배기체가 발생 되는데 본 배기체처리장치의 설계를 통하여 발생 배기체를 배출허용기준치 이하로 처리할 수 있게 됨으로써 DUPIC핵연료제조공정의 연속적인 운전이 가능할 것으로 기대된다.

또한 발생 배기체의 핵종분석과 여러 종류의 공정실험을 통하여 PWR 사용후핵연료의 산화·환원거동, Cs·Ru등 준휘발성핵종의 휘발거동에 관한 연구가 가능할 것으로 기대된다.

## 감사

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었음.

## 참고문헌

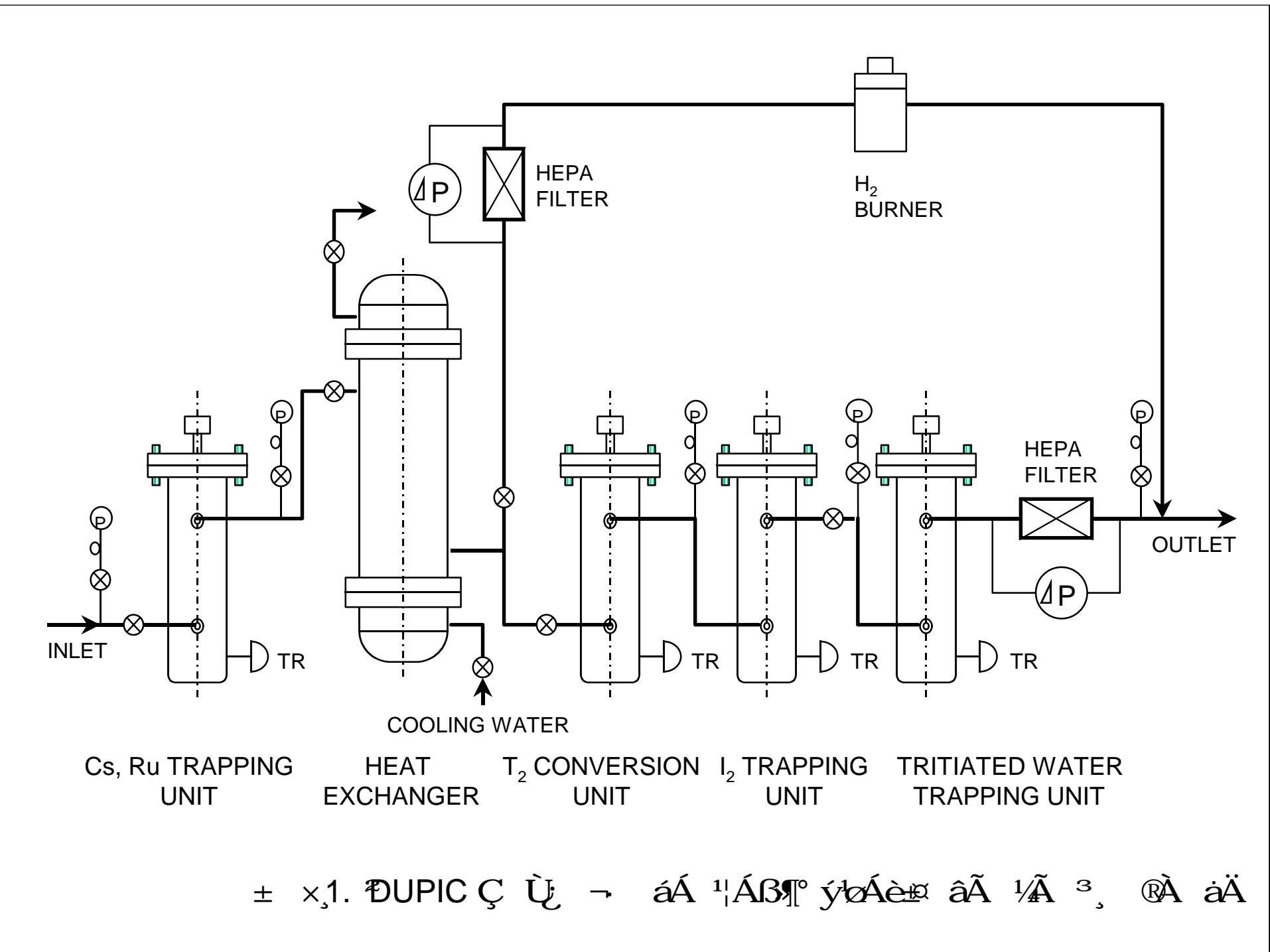
1. Gunzo UCHIYAMA, Seishi TORIKAI, et.al., Outline of an Experimental Apparatus for the Study on the Advaced Voloxidation Process, JAERI-M 90-016, 1990
2. 전관식 등, 연계핵연료주기 방사성폐기물관리기술개발, KAERI/RR-1718/96, 한국원자력연구소, 1997
3. 양명승 등, 핵연료제조 및 품질관리기술개발, KAERI/RR-1744/96, 한국원자력연구소, 1997
4. Gunzo UCHIYAMA, Seishi TORIKAI, et.al., Development of Voloxidation Process for tritium control in reprocessing, JAERI-M 91-199, 1991
5. W.J. Maeck, and D.T. Pence, Application of Metal Zeolites to Radioiodine Air Cleaning Problems, Proceedings of 11th AEC Air Cleaning Conference, CONF-700816, Vol. 2, 1970

핵종	산화 · 환원공정, %	소결공정, %	비고
H	100	-	약50%는 피복관과 결합되어있음
He	100	-	
Br	100	-	
Kr	10	10	
I	10	10	
Xe	5	10	
Ru	1	1	
Cs	4	95	
Tc	0	25	
Te	5	5	
C	100	-	

표 1. 기체방사성핵종의 종류 및 누출율

단위포집장치	포집재	설계기준				비고
		포집능	선속도, cm/s	온도, °C	제염계수	
Cs, Ru 포집장치	석탄회	-	< 10	~1000	100	
	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 필터	-	< 12	~1000	100	
I <sub>2</sub> 포집장치	은침착 제오라이트	50 mg/g-bed	< 20	~150	100	
삼중수소 전환장치	CuO		< 10	300 ~ 500	> 1 sec	포집층높이 : 10 cm
삼중수 흡수장치	Molecular sieve 5A	200 mg/g-bed.	< 5	실온	1000	
HEPA필터	Glass Fiber	-	3	실온	1000	0.3 μm, 포집효율 99.97% 이상

표 2. 배기체처리장치의 설계기준



± x,1. DUPIC Ç Ü → áÁ ¹|Áßº ý, Áè, áÁ ¹|Á ³, ®À áÁ i° èÁ