

석탄회 필터를 이용한 세슘과 몰리브덴의 동시 포집

신진명, 박장진, 이재원, 이정원, 김성훈
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 jipark@kaeri.re.kr

1. 서론

Pyroprocess 공정의 전처리공정으로서 휘발성 산화공정을 도입하면 기존 휘발성 산화공정 채택 시 제거가 안 되는 Cs, I, Tc, Ru, Mo 등을 제거할 수 있다[1]. 휘발성 산화공정 중 휘발되는 핵종 중의 하나인 세슘은 고방열 및 고방사능 핵종이며 몰리브덴은 방사능은 없으나 발생량이 매우 큰 핵종으로서 적절히 처리하지 않을 경우 냉각시 배기체 처리설비의 관벽에 침적물을 생성한다.

현재 고도 휘발성 산화공정에서 제거된 세슘과 몰리브덴을 동시에 안전하게 포집하는 방법으로 석탄회 필터를 이용하여 이들을 고온에서 안전하게 화학흡착 하는 연구가 진행되고 있다. 향후 석탄회 필터를 고도 휘발성 산화공정의 배기체 처리에 적용하기 위해서는 이를 이용한 세슘과 몰리브덴의 동시 포집특성 자료가 필요하다.

따라서 세슘과 몰리브덴의 동시 포집제로서 화학적 조성의 변화로부터 동시 포집용 석탄회 필터를 제조하였다. 이러한 석탄회 필터를 이용하여 배기체 처리시스템에서 상압하 1000℃의 포집온도에서 세슘과 몰리브덴을 동시 포집하였으며, 이에 대한 포집 특성 평가를 위해 포집 전·후의 무게, XRD, SEM-EDX 등을 분석하였다.

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. 배기체 처리시스템은 voloxidizer와 3개의 포집 zone으로 구성되었다. 포집실험은 voloxidizer에서 CsNO₃와 MoO₃를 이용하여 세슘과 몰리브덴 배기체 발생원을 기화시키고 첫번째 포집 zone에서 세슘과 몰리브덴 포집에 필요한 석탄회 필터를 10개를

포집통에 장착하여 기화된 배기체를 포집하였다. 포집 온도 조건은 승온 1시간 후에 첫 번째 포집 zone은 1000℃, 두 번째 포집 zone은 800℃에 도달하도록 한 후 2.5시간 유지시켰다. 각각의 포집 zone이 정해진 온도에 도달한 것을 확인하고, voloxidizer의 온도를 1.5시간 후에 1200℃에 도달하도록 한 후 1시간 유지시켰다. 또한 voloxidizer 가동 시작부터 공기를 0.5 L/min 유량으로 흘려 보내며 포집실험을 수행하였다.

포집 실험 후 CsNO₃와 MoO₃의 휘발률은 총 20.72%이었다. CsNO₃와 MoO₃의 휘발률을 고려하여 무게분석을 수행한 결과, 석탄회 필터 3단 내에서 세슘과 몰리브덴이 포집되었다. CsNO₃와 MoO₃의 잔존물을 XRD로 분석한 결과 Cs₂Mo₃O₁₀, CsAl(MoO₄)_{1.5}(SiO₄)_{0.5} 등 화학종의 생성으로 인해 이들 화합물들의 포화증기압이 세슘과 몰리브덴의 각 포화증기압 보다 낮기 때문에 휘발이 잘 되지 않아 휘발량에 대한 차이가 생긴 것으로 판단된다.

세슘과 몰리브덴 포집 후 석탄회 필터의 모습을 관찰한 결과 필터 1~3단의 색이 검갈색으로 변하였다. 석탄회 필터를 관통한 세슘과 몰리브덴의 농도구배를 측정하기위해서 1단부터 4단까지 필터를 SEM-EDX로 분석하였다. Fig. 1의 SEM 결과에서 보는 바와 같이 세슘과 몰리브덴이 포집된 석탄회 필터 1단부터 3단까지의 상은 거의 등딱지 모양같이 생긴 작고 bulky한 crystal 형태의 pollucite (CsAlSi₂O₆) 형상과 거친 구형입자의 응집체 형태의 powellite(CaMoO₄)로 나타났다. 반면에 세슘과 몰리브덴이 전혀 포집되지 않은 석탄회 필터 4단의 상은 구형의 입자가 소결되어 반쯤 용융된 모습과 기공이 형성된 모습으로서 석탄회 필터 1단부터 3단까지의 상과 전혀 다른 모습을 관찰할 수 있었다. 또한 EDX를 이용하여 석탄회 필터 1단의 표면의 화학적 조성을 분석한 결과 세슘은 22.14 wt.%, 몰리브덴은 31.58 wt.%이고 2단의 경우 세슘은 10.22 wt.%, 몰리브덴은 36.70 wt.%이었다. 따라서 세슘과 몰리브덴이 필

터표면에 잘 포집되어 있음을 확인할 수 있었다. 그리고 석탄회 필터 3단의 경우 세슘은 불검출, 몰리브덴은 39.98 wt.%로서 필터표면에 몰리브덴만 포집되어 있음을 확인할 수 있었다. 또한 석탄회 필터 4단의 경우 세슘과 몰리브덴이 검출되지 않았다. 따라서 세슘은 석탄회 필터 2단 내에 몰리브덴은 3단 내에 포집되었음을 알 수 있었다. 따라서 석탄회 필터를 이용하여 세슘과 몰리브덴이 공기분위기하 1000°C의 포집온도에서 동시 포집이 가능함을 확인할 수 있었다. 또한 세슘과 몰리브덴의 포집 후에 나타나는 석탄회 필터의 결정구조 및 미세 구조변화를 분석하기 위해서 석탄회 필터 1단을 XRD로 분석한 결과 Fig. 2에 제시된 것처럼 세슘과 몰리브덴은 석탄회 필터와 반응하여 세슘은 pollucite($CsAlSi_2O_6$)상으로 몰리브덴은 powellite($CaMoO_4$)상으로 포집되었음을 확인할 수 있었다.

3. 결론

고온 휘발성산화공정에서 발생하는 세슘과 몰리브덴의 동시 포집을 위해 석탄회 필터를 제조하여 이들의 포집특성 연구를 수행하였다. 그 결과 석탄회 필터 3단 내에 세슘과 몰리브덴의 동시 포집 가능성을 확인하였다. 세슘과 몰리브덴은 석탄회 필터와 반응하여 세슘은 pollucite($CsAlSi_2O_6$)상으로 몰리브덴은 powellite($CaMoO_4$)상으로 포집되어 향후 사용후핵연료 이용시 이들의 동시 포집 가능성이 기대 된다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.(연구과제 고유번호 : 2009-0062283)

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

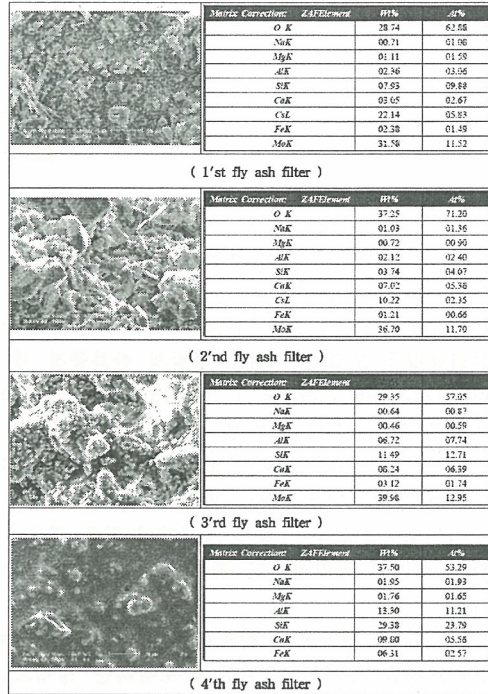


Fig. 1. SEM-EDX analysis from 1'st to 4'th fly ash filters after trapping gaseous cesium and molybdenum

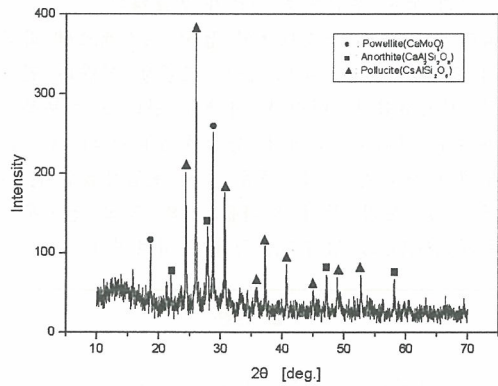


Fig. 2. XRD patterns of 1'st fly ash filter after trapping gaseous cesium and molybdenum