

## 진공하 칼슘필터를 이용한 폴리브데늄의 포집

신진명, 박장진, 이제원, 이정원, 김성훈  
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045  
 imshin@kaeri.re.kr

### 1. 서론

최근에 Pyroprocess 공정의 전처리공정으로서 연구 중인 고도 휘발성 산화공정은 사용후핵연료 물질을 고온, 감압, 산화제 등을 이용하여 준휘발성 가스인 Cs, Tc, Ru, Mo, Te 및 휘발성 가스인 C-14, H-3, Kr, Xe, I 등 핵종을 제거한다. 따라서 Pyroprocess 공정에 휘발성 산화공정을 도입하면 전해환원, 전해정련, 폐기물처리공정 등에 영향을 주는 핵분열생성물을 미리 제거함으로써 이들 후속 공정의 방사선 부하를 감소시킬 수 있다. 휘발성 산화공정 중 휘발되는 핵종 중의 하나인 폴리브데늄은 공기 중 상온에서는 안정하나 400 °C 이상의 고온에서는 MoO<sub>3</sub>로 존재하며 이는 기화가 잘 되며 평형증기압은 온도가 증가할수록 커지는 것으로 알려져 있다. 또한 이 핵종은 방사능은 없으나 발생량이 매우 큰 핵종으로서 적절히 처리하지 않을 경우 냉각시 배기체 처리설비의 관벽에 침적물을 생성하여 부분적인 배관의 막힘을 초래한다. 현재 고도 휘발성 산화공정에서 제거된 폴리브데늄을 안전하게 포집하는 방법으로 칼슘필터를 이용한 고온 흡착법 연구가 진행되고 있다. 향후 칼슘필터를 고도 휘발성 산화공정의 배기체 처리에 적용하기 위해서는 진공조건하 칼슘필터를 이용한 폴리브데늄의 포집특성 자료가 필요하다. 따라서 본 연구에서는 칼슘필터를 이용하여 진공조건하 폴리브데늄 포집특성 실험을 수행하였다.

### 2. 실험재료 및 방법

비방사능 물질 배기체 포집용 OTS(Off-gas Trapping System)장치의 설계기준은 pyroprocessing 공정의 기준 핵연료인 PWR(초기농도 : 4.5wt.%, 연소도: 45,000 MWd/tU, 냉각기간: 5년) 로서 1 batch 기준은 200 gHM 이었다. 실험에 사용된 배기체 처리시스템은 4개의 독립된 가열 존으로 구성된 수평형, split tube 이었다. 포집실험은 voloxidizer의 가열영역에서 배기체 발생원을 기화시키고 포집 zone에서 폴리브데늄 포집에 필요한 칼슘필터를 10개를 포집통에 장착하여 기화된 배기체를 포집하였다. 또한 분위기 가스를 조절할 수 있는 가스공급 시스템과 100 mtorr 용량 이하의 진공펌프를 OTS에 구성하여 실험에 이용하였다.

한국형 pyroprocessing 배기체 처리시스템의 설계기준인 PWR 사용후핵연료 200 g에 존재하는 Mo의 양을 기체상 폴리브데늄의 공급원으로 이용하였다. MoO<sub>3</sub> 1.362g을 alumina crucible(50 ml) 내에 넣은 후 voloxidizer 내부에 이를 장입하였다. 포집 zone이 정해진 온도에 도달한 것을 확인하고, voloxidizer의 온도를 1시간 동안 500°C에 도달하도록 한 후 3시간 유지, 그런 다음 1시간 동안 1200°C에 도달하도록 한 후 1시간 유지시켰다. 이때 voloxidizer의 온도가 500°C로 상승하면 동시에 vacuum 펌프를 가동하여 7.6 torr의 진공을 유지하여 포집실험을 800°C에서 수행하였다.

### 3. 결과 및 고찰

실험 후 폴리브데늄의 휘발률은 99.9%이었다. Fig. 1에 7.6 torr 진공하 폴리브데늄 포집 후 칼슘 필터의 모습을 나타내었다. 그림에 나타난 것처럼 칼슘 필터 1~2단에 걸쳐 색변화가 관찰되었다. Fig. 2는 폴리브데늄 포집 후 칼슘 필터의 무게 변화량을 나타낸 것으로 필터의 무게증가는 1단부터 5단 까지 나타났다. 1단 및 2단의 필터의 폴리브데늄 포집량은 각각 0.73 g-Mo/g-filter 및 0.11 g-Mo/g-filter 로서 필터 1~2단에 폴리브데늄이 상당량 포집되었다. 또한 폴리브데늄 포집 후에 나타나는 칼슘 필터의 결정구조 및 미세 구조변화를 분석하기 위해서 필터 1단을 XRD로 분석한 결과 Fig. 3에 나타난 것처럼 폴리브데늄이 CaMoO<sub>4</sub> 형태로 포집되었음을 확인하였다.

### 사 사

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.



Fig. 1. Photograph of calcium filters after trapping Mo

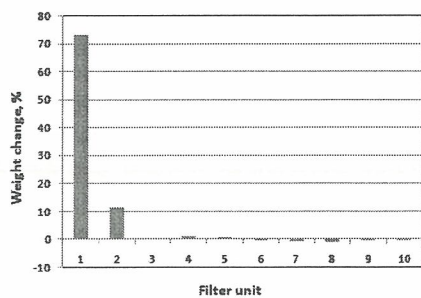


Fig. 2 Weight measurements of filter sampled

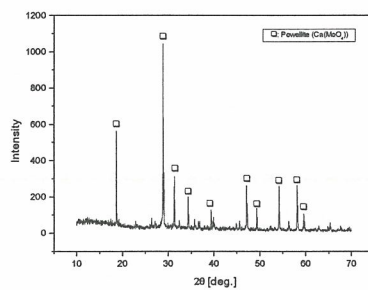


Fig. 3 XRD patterns of first calcium filter after trapping gaseous Mo