

중성자 조사된 흑연 내 C-14 제거를 위한 Ca계 흡착제의 흡착 조건 선정

황호상, 강영애, 이동규, 양희철, 정종현, 이근우
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지
hshwang@kaeri.re.kr

중성자 조사된 흑연에서 발생하는 방사성 기체로는 대표적으로 ^{14}C , ^3H , ^{36}Cl 의 베타 핵종이 있다. 이 중 ^{14}C 핵종은 반감기도 5730년으로 길 뿐만 아니라 ^{14}C 는 연구로 내에서 $^{14}\text{CO}_2$ 형태로 가장 많이 존재하는 것으로 보고되고 있다. 중성자 조사된 흑연처리 시 발생하는 $^{14}\text{CO}_2$ 기체처리는 흡수, 탈착 그리고 탈착된 CO_2 기체를 흡착제에 의한 고형화하는 단위공정으로 구성된다. 이전의 연구에서 CO_2 흡수제로 amine 화합물 중에 흡수능이 우수한 AMP와 piperazine을 선택하여 혼합 흡수제의 농도 및 기체 유속 그리고 온도에 따른 흡수 성능을 비교 평가한 결과 piperazine과 AMP를 9 : 1(wt, %)로 혼합하여 상온에서 기체 유속 500 ml/min일 때 가장 좋은 CO_2 흡수 효율을 보였다.

본 연구에서는 아민계 화합물에 의해서 흡수된 CO_2 를 안전한 형태로 고형화 하기 위한 방법으로 Ca계 흡착제인 CaO 와 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 를 이용한 반응온도, 반응시간에 따른 흡착량을 측정하여 최적의 흡착조건을 선정하고자 하였다. 실험에 사용된 흡착제는 공업용으로 사용되는 생석회(CaO)와 소석회($\text{Ca}(\text{OH})_2$)를 사용하였고 이 중 흡착제 CaO 는 저온에서 공기에 노출될 때 CO_2 와 H_2O 의 경쟁반응이 존재하기 때문에 공기 중의 노출을 최소화 하였다. 반응용기는 지름 100 mm, 길이 300 mm의 stainless still 재질의 원통형 반응기를 사용하였다. 반응기 내부에 SUS망을 설치하여 도입 기체의 흐름 분산 및 흡착제가 고정되도록 하였다. 반응기내에는 충전밀도가 일정하도록 흡착제를 충전하였다. 실험은 안전을 고려하여 비 방사성 CO_2 와 N_2 를 15:85 (v%)로 조제하여 사용하였다. 흡착제의 비표면적, 기공크기 등은 BET (Autosorb-1, Quantachrome Inc.)를 이용하여 측정하였고 탄산화 등의 반응변화는 TGA(SDT 2960, TA Inc.)를 이용하여 분석하였다. 또한 파과 특성을 확인하기 위하여 흡착 컬럼에 CaO 와 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 를 충전하고 기체 유속 750 ml/min, 반응온도 200 ~ 400°C에서 흡착실험을 수행하였다. 흡착층을 통과한 CO_2 의 농도는 FTIR(Fourier Transform Infrared spectrometer, Bruker's OPUS™)을 이용하여 측정하였다.

흡착제의 비표면적 측정결과 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 11.47m²/g, CaO 3.666m²/g 정도였다. CO_2 흡착결과 400°C에 비하여 200°C에서 파과시간이 짧고 기울기가 급해져서 흡착대가 짧아짐을 보였으며 두 흡착제 모두 반응온도가 200°C에서 400°C 증가함에 따라 파과시간이 약 3~10배 정도 길어졌다. 실제 흡착 공정상에서는 흡착상의 처리 시간이 길어지고 같은 시간에서의 CO_2 회수율과 회수된 CO_2 의 순도가 낮아지기 때문에 비교적 파과시간이 길고 흡착대가 짧은 흡착제를 사용하는 것이 타당하다고 생각된다.

흡착제 CaO 와 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 의 400°C에서 CO_2 흡착량이 각각 0.502 g CO_2 /g CaO , 0.51 g CO_2 /g $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 로 최대 흡착 효율을 보였으나 그 이상의 온도에서는 흡착효율이 감소하는 경향을 보였다. 이는 Hartman과 Tranka 등의 연구와 유사한 결과를 보였는데 반응 후 각각의 흡착제에 대한 TGA 측정 결과 410°C에서 dehydration, 650°C 부근에서 decarbonation이 일어나기 때문으로 사료된다. $^{14}\text{CO}_2$ 처리를 위한 최적의 조건은 흡착제 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 에 의한 반응온도 400°C, 반응시간 11h일

때 최대 흡착량 $0.2 \text{ gCO}_2/\text{gCa(OH)}_2$ 이었다. 본 연구결과는 $^{14}\text{CO}_2$ 를 처리하기 위해 흡수, 탈착, 흡착을 연계하여 흡착성능 예측 및 공정화 설계 자료로 활용될 수 있을 것이다.

Table 1. Physical characteristics of various adsorbents use in this study

	BET(m^2/g)	Pore volume(cc/g)	Density
CaO	3.666	3.768×10^{-2}	3.34
Ca(OH) ₂	11.47	8.053×10^{-2}	2.2

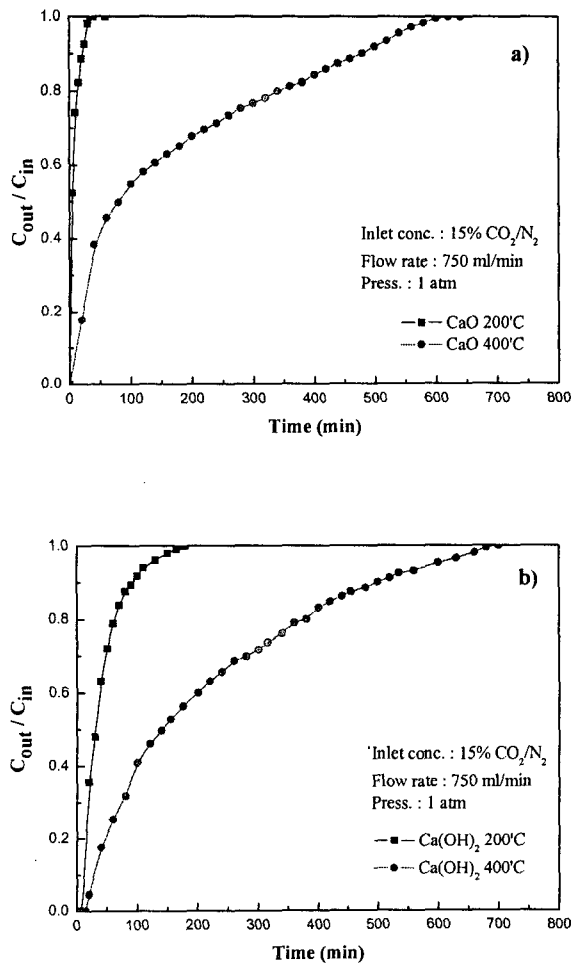


Fig. 1 Breakthrough curves of CO₂ on adsorbents; a) CaO, b) Ca(OH)₂