

Si/Al 몰비에 따른 Ar과 Air 분위기하 세슘 포집특성

김지현, 신진명, 박장진, 송기찬

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

jihyun9775@nate.com

1. 서론

고도 휘발성 산화공정은 파이로프로세싱의 중요한 전처리공정으로서 탈피복, 분말화, 핵종제거, 입도제어, 배기체처리 등의 기능을 갖고 있다. 이 중 주요 휘발핵종인 세슘의 휘발 및 포집조건을 수립하기 위해 다양한 분위기(Ar, 공기, 진공 등) 및 온도에서 실험을 수행하고 있다. 배기체 처리 관점에서 공정분위기, 석탄회필터 내 Si 및 Al 성분은 세슘 포집특성에 영향을 미칠 수 있다. 따라서 본 실험에서는 Ar과 Air 분위기하 Si/Al 몰비에 따른 세슘의 포집특성을 TGA 및 XRD 등을 이용하여 분석하였다.

2. 실험 방법

세슘의 고정화재료로서 SiO_2 (Aldrich사, 99.6%)와 Al_2O_3 (Aldrich사, 99.8%)를 사용하였고 기체상 세슘의 공급원으로 CsNO_3 (Aldrich사, 99%)를 사용하였다. 실험에 사용된 열중량분석기(Setaram, 92-12)는 Fig. 1에 나타낸 것으로 열중량분석을 수행하기 전 장비 내로 냉각수를 흘려보낸 다음 TGA 장치에 장착된 micro balance와 전기부품을 보호하기 위해 비활성 가스인 Ar 가스를 20 ml/min로 주입한다. 그 다음 TGA 분석용 알루미늄 도가니에 수분을 제거시킨 CsNO_3 50 mg과 $\text{SiO}_2+\text{Al}_2\text{O}_3$ 80 mg을 혼합한 시료를 넣고 도가니를 TGA 저울에 장착한다. Carrier gas를 일정하게 20 ml/min로 TGA furnace를 통과하도록 흘려보내며 995 °C까지 20 °C/min 승온속도로 가열한 후 40분 동안 등온을 유지시켜 TGA 분석을 수행하였다. TGA 온도 profile은 Fig. 2에 나타내었다. Ar과 Air 분위기에서 Si/Al 몰비에 따라 세슘과 반응하여 생성된 결정구조를 확인하기 위하여 10~70° 주사범위에서 XRD(X-ray diffractometer, D-5000, siemens Co.) 분석을 수행하였다.

2. 실험 결과 및 고찰

Fig. 3은 Ar 분위기에서 Si/Al 몰비에 따른 세슘의 화학흡착 거동 및 포집량에 대한 TGA 결과를 나타내고 있으며 Fig. 4는 공기 분위기에서의 TGA 결과를 보여주고 있다. 분위기 가스와 상관없이 같은 패턴의 세슘 포집곡선을 보여주고 있으며 Si/Al 몰비가 낮을수록 더 많은 세슘 포집량을 갖는 것을 알 수 있었다. 그리고 Ar 분위기에서 Si/Al 몰비가 1.5인 경우에 가장 많은 세슘 포집량을 갖는 것을 알 수 있었다. 세슘 포집 후 시료를 XRD 분석한 결과 Fig. 5와 Fig. 6에 제시된 것처럼 세슘은 분위기 가스에 상관없이 pollucite 형태로 포집되었음을 확인 할 수 있었다. 본 실험결과 Si/Al 몰비가 감소할수록 세슘 포집량은 증가함을 알 수 있었다.

3. 결론

Si/Al 몰비를 1.5~3.0으로 변화시키면서 포집실험한 결과 몰비가 감소할수록 세슘포집량이 증가하였으며 Ar 분위기하 Si/Al 몰비 1.5에서 0.87 g-Cs/g- $\text{SiO}_2+\text{Al}_2\text{O}_3$, Air 분위기하 0.76 g-Cs/g- $\text{SiO}_2+\text{Al}_2\text{O}_3$ 으로 나타났다. 향후, 세슘 포집 후 석탄회필터의 처분관점에서 분위기별 세슘 포집량의 변화에 따른 고온 열적 안정성, 내 침출성, 고화처리방법 등에 대한 추가 연구가 필요하다고 판단된다.

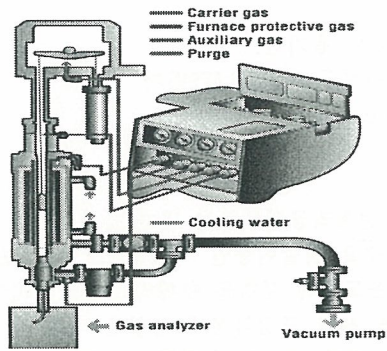


Fig. 1. Schematic diagram of thermogravimetric analyzer

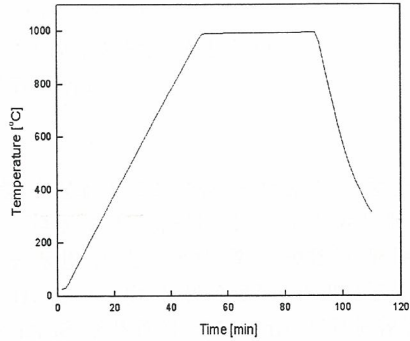


Fig. 2. Temperature profile for trapping cesium

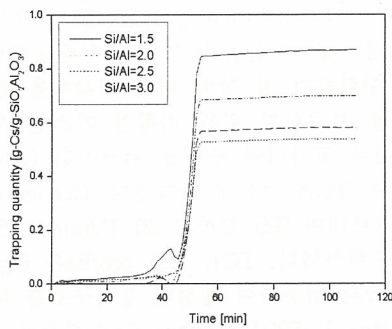


Fig. 3. TGA curves for Cs trapping quantity to time according to Si/Al mole ratio in Ar condition

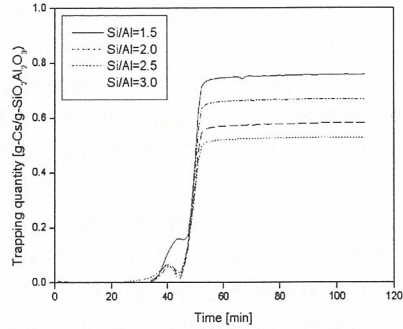


Fig. 4. TGA curves for Cs trapping quantity to time according to Si/Al mole ratio in air condition

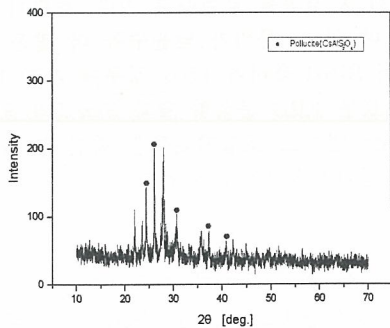


Fig.5. XRD pattern after trapping gaseous cesium in Ar condition.

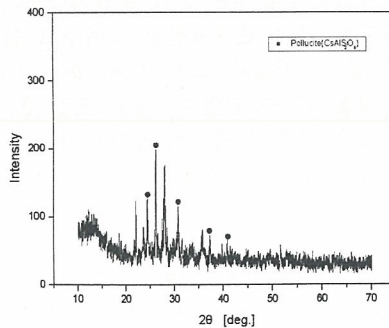


Fig.6. XRD pattern after trapping gaseous cesium in air condition.