

세습포집량별 석탄회필터의 고온 안정성 분석

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

1. 서론

최근 pyroprocess 공정의 전처리공정으로서 기존 산화공정을 개선한 고도 휘발성 산화 공정 개발 연구가 활발히 수행되고 있다. 고도 휘발성 산화 공정 도입시 파이프 공정에 영향을 줄 수 있는 핵분열 생성물을 사전에 효율적으로 제거할 수 있는 장점이 있다. 고도 휘발성 산화 공정에서는 기존 휘발성 산화공정 채택 시 제거가 안 되는 Cs, Tc, Ru, Tc, Mo, Te, Se 등과 같은 준휘발성 핵분열 생성물이 배기체로 방출된다 [1]. 이들 핵종 중 Cs은 고방열, 고방사능 핵종으로서 이의 독성이 인체와 환경에 미치는 영향이 매우 크기 때문에 이를 환경으로 방출이 되지 않도록 열적, 수화학적으로 안정한 물질로 전환시켜 포집하는 방법이 요구된다. 현재 고도 휘발성 산화공정에서 제거된 세습을 안전하게 포집하는 방법으로 석탄회 필터를 이용하여 이들을 고온에서 안전하게 화학흡착 하는 연구가 진행되고 있다. 향후 석탄회 필터를 고도 휘발성 산화공정의 배기체 처리에 적용하기 위해서는 열적으로 안정한 형태의 세습화합물을 형성해야 한다. 또한 배기체 처리장치 운영 및 폐필터 저장 중 발생할 수 있는 화재 등 사고시를 대비하여 반응한 세습의 재취발 등 세습의 고온 안정성에 대한 검토가 필요하다. 따라서 본 연구에서는 실제 배기체 처리장치 운영시 세습이 포집된 농도구배를 모사하여 세습이 과포화된 석탄회필터의 앞단부터 세습이 차례로 포화된 후 저농도인 필터 끝단까지의 시료를 실험 대상으로 하였다. 이들의 고온 안정성 분석을 수행하기 위해 XRD 및 TGA를 사용하여 미세구조의 변화 및 질량변화를 측정하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

산화분위기하 석탄회필터에 포집된 세습의 고

온 안정성 분석 실험을 수행하기 위해 먼저 세습 포집 실험을 수행하였다. 기체상 세습의 공급원으로 사용한 시약은 CsNO₃ (Aldrich사, 99.9%)이었고 27.414g을 실험에 이용하였다. 실험에 사용한 석탄회 필터 1개의 크기는 직경 44mm, 두께 10mm, 무게 약 8.05~9.85g 이었고 총 8단을 사용하였다. CsNO₃의 휘발온도 및 필터의 포집온도는 모두 900℃ 이었다. 그리고 carrier gas는 공기, 포집층의 공압속도는 20 cm/sec 이었다. 실험 후 석탄회필터에 세습은 1단에서 7단까지 포집되었다. 석탄회 필터를 이용하여 포집된 세습의 포집량(세습농도구배)은 0.001~0.87 (g-Cs/g-filter) 이었다. 포집된 필터의 열적 안정성 분석을 위해 각각의 필터를 잘 분쇄한 후 이를 실험에 이용하였다. 또한 세습 포집량 변화에 따른 시료의 화학적 구조를 분석하기 위하여 X-선 회절분석을 수행하였다. 사용된 X선은 Cu K α 선이며 주사속도는 2°/min 이고 2 θ 값이 15°에서 60° 범위에서 측정하였다. 그런 다음 열 분석기(Cahn TG -171, Cahn Instruments, Inc.)에 시료를 약 1000 mg 취하여 20℃/min의 가열속도로 1200℃ 까지 가열시켰고 공기는 순도 99.999%로 공기유량은 분당 20cm³가 되도록 하였다. 1200℃까지 실험한 이유는 화재 연소시 탄소화합물에 의해 도달할 수 있는 최대 온도이기 때문이다.

2.2 실험결과

세습 포집 후에 나타나는 석탄회 필터의 결정 구조 및 미세 구조변화를 분석하기 위해서 세습 포집량 0.001~0.87(g-Cs/g-filter)에 대한 석탄회 필터의 XRD 분석결과를 Table 1에 제시하였다. 표에서 보는 바와 같이 세습 포집량 0.127(g-Cs/g-filter)인 경우 세습이 석탄회 필터와 반응하여 pollucite (CsAlSi₂O₆)상으로 포집되었다. 반면에 세습 포집량 0.219 ~ 0.452(g-Cs/g-filter)의 경우 석탄회 필터에 포집된 세습은 pollucite (CsAlSi₂O₆) 상뿐만 아니라 Cs-nepheline (CsAlSiO₄) 상으로 포집되었고 세습 포집량이 증가함에 따라 Cs-

nepheline ($CsAlSiO_4$) peak가 발달하는 경향을 보였다. 세슘 포집량 $0.871(g-Cs/g-filter)$ 의 경우 세슘은 Cs-nepheline ($CsAlSiO_4$) 상으로 포집되었다. TGA 분석결과를 근거로, 세슘 포집량에 따른 세슘취발에 의한 필터의 무게 감소를 Fig. 1에 나타내었다. 세슘 포집량이 $0.322(g-Cs/g-filter)$ 까지는 세슘취발에 의한 무게 감소는 없었고 $0.452(g-Cs/g-filter)$ 에서는 0.9%, $0.871(g-Cs/g-filter)$ 에서는 3.8% 로 증가하는 경향을 나타내었다. 일반적으로 세슘 포집량이 증가할수록 세슘취발에 의한 무게 감소가 선형적으로 증가하리라 생각할 수 있으나, Fig. 1에 나타난 바와 같이 세슘포집량 약 $0.452(g-Cs/g-filter)$ 이상에서만 세슘 포집량이 증가할수록 무게 감소가 증가하였다. 이는 pollucite ($CsAlSi_2O_6$), Cs-nepheline($CsAlSiO_4$) 상이 안정하기 때문에 무게 감소에 거의 영향을 미치지 않고 cesium silicate glass가 주로 무게 감소에 영향을 미치기 때문이라 사료된다. 산화분위기하 $900^\circ C$ 에서 세슘 $18.7g(연소도 55 Gwd/tU(냉각기간 10년), 사용후핵연료 4.6kg 상당)$ 이 포집된 석탄회필터는 $1200^\circ C$ 고온(화재 사고 가정시)에서 평균 포집량 $0.25(g-Cs/g-filter)$ 를 기준으로 볼 때 세슘취발로 인한 평균 필터무게 감소는 약 0.03 wt.% 이었다. 따라서 석탄회필터에 포집된 세슘은 $1200^\circ C$ 의 온도에서도 열적 안정성을 유지함을 확인할 수 있었다.

3. 결론

산화분위기하 $900^\circ C$ 에서 기체상 세슘 $18.7g$ 이 포집된 석탄회필터의 열적 안정성을 확인하기 위해 $1200^\circ C$ 까지 열중량 분석을 수행하였다. 그 결과 석탄회필터는 $1200^\circ C$ 까지 가열하여도 평균 필터무게 감소가 약 0.03 wt.% 으로 배기체 처리 장치 운영 중 혹은 폐필터 저장 중 화재 등으로 인한 비상시에도 열적으로 안정함을 예상할 수 있다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

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.

Table 1. XRD patterns of fly ash filters after trapping cesium at different cesium trapping quantities in air atmosphere

Cesium trapping quantity (g-Cs/g-filter)	XRD results
0.001	Quartz, Mullite, cristobalite
0.044	Quartz, Mullite, cristobalite
0.127	$CsAlSi_2O_6$.
0.219	$CsAlSi_2O_6$, $CsAlSiO_4$
0.322	$CsAlSi_2O_6$, $CsAlSiO_4$
0.452	$CsAlSi_2O_6$, $CsAlSiO_4$
0.871	$CsAlSiO_4$

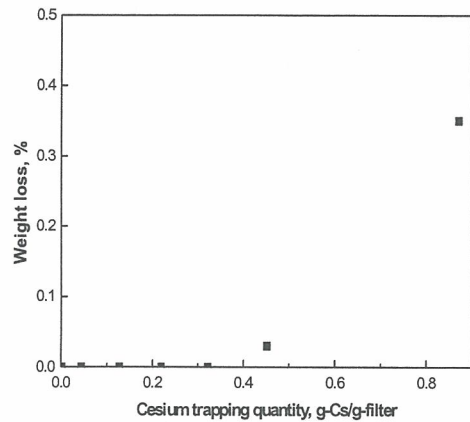


Fig. 1. Effect of the amount of cesium trapping quantity of fly ash filter on weight loss up to $1200^\circ C$