

포집온도에 따른 석탄회필터의 세습 포집특성 분석

양다솜*, 신진명, 나상호

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*dsyang@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물의 소각시설 및 용융시설 그리고 원자력 시설의 고온 열처리과정 중에 세습, 테크네튬, 셀레늄, 텔루륨 등 준휘발성 핵분열 가스가 발생된다. 이들 핵분열 가스 중 세습은 반감기가 30.2년인 고방사능, 고방열 핵종으로써 이의 독성이 인체와 환경에 미치는 영향은 매우 크다. 따라서 세습은 열적, 수화학적으로 안정한 물질 형태로 전환시켜 포집되어 방출관리의 ALARA (As Low As Reasonably Achievable)를 달성할 수 있도록 하여야 한다.

현재 석탄회필터를 이용하여 고온에서 기체상 세습을 pollucite ($CsAlSi_2O_6$) 상으로 포집하는 화학적 흡착 연구가 진행되고 있다. 향후 석탄회 필터를 원자력시설 고온 열처리공정의 배기체 처리시스템에 적용하기 위해서는 세습포집 온도별 석탄회필터의 깊이에 따른 세습포집량 분포 특성에 관한 정보가 필요하다. 또한 이러한 자료는 석탄회 포집탑 설계, 설치, 유지관리, 포집효율 및 세습 포집 후 필터의 처분 특성 연구 등에 활용될 수 있다. 따라서 본 연구에서는 2-zone furnace를 이용하여 석탄회필터의 포집온도에 따른 세습 포집실험을 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

세습 포집실험시 사용한 시약은 $CsNO_3$ (Sigma-Aldrich, 99%) 이었고 사용량은 28 g($Cs:18.905$) 이었다. 석탄회 필터의 크기는 직경 44 mm, 두께 9 mm, 밀도는 580 kg/m^3 이었다. Mercury Porosimeter (AUTOPORE II, Micromeritics Co.)로 측정된 석탄회 필터의 기공률은 30%이었다. 세습 포집 실험은 two-zone furnace 내에 내경 50 mm(외경 : 60 mm)의 알루미늄튜브를 장착하여 수행하였다. Two-zone furnace는 세습 발생 부분과 세습 포집부분으로 구성되었다.

석탄회필터를 이용하여 세습 포집온도 변화에 따른

석탄회필터의 포집량을 분석하기 위해서 two-zone furnace cell 내에 장착된 alumina tube 내부에 $44 \text{ mm}(\phi) \times 9 \text{ mm}(\text{H})$ 부터 $44 \text{ mm}(\phi) \times 162 \text{ mm}(\text{H})$ 규격의 석탄회필터를 장착하였다. $CsNO_3$ 의 휘발온도는 900°C 이고 세습의 포집온도는 $500\text{-}1000^\circ\text{C}$ 범위로 설정하여 온도에 따른 필터의 세습포집량을 분석하였다. Carrier gas는 Air, 선속도는 10 cm/sec 이었다. $CsNO_3$ 포집을 위해 10.5 시간 동안 운전하였다. 세습의 휘발량은 실험 종료 후 남아있는 $CsNO_3$ 의 무게를 측정하여 계산하였으며, 필터의 단위 질량당 세습포집량은 다음 식에 의거하여 산출하였다.

$$\text{Cesium Trapping quantity}(g - Cs/g - \text{filter}) = \frac{b - a}{a}$$

*a: 반응 전 필터무게

*b: 반응 후 필터무게

또한 포집온도에 따른 세습포집특성을 XRD (X-ray diffractometry analyzer, Simens D-5000), SEM-EDX (Energy Dispersive X-ray Spectrometer Scanning Electron Microscope, Jeol JSM-5300)로 분석하였다.

2.2 실험결과

Fig. 1은 포집온도를 500°C 부터 1000°C 까지 변화시켜 세습포집실험을 한 결과로써 포집온도가 증가함에 따라 세습포집량이 증가하였다. 그 이유는 온도가 증가함에 따라 세습의 이동도(mobility)가 증가하여 세습반응물이 생성되는 알루미늄실리케이트 반응자리(reaction site)로 이동을 용이하게 해주기 때문인 것으로 판단된다. 또한 온도 증가로 인하여 흡열반응이 진행됨에 따라 화학적 반응성이 향상되어 세습포집량도 증가되었다. 이와 같이 석탄회 필터와 세습산화물 간의 포집반응은 반응온도가 증가할수록 반응속도가 증가하여 일어나는 것으로 사료된다.

Fig에서 보는 바와 같이 필터의 세습포집량은 필터 수, 즉 필터 깊이가 증가함에 따라 감소하였다. 그리고 필터는 앞단부터 차례로 포화되어 뒷단으로

진행되는 현상을 보였다. 또한 포집온도 500-1000°C에서 필터 깊이에 따른 석탄회필터의 세습포집량은 동일 필터 깊이에서도 온도가 높을수록 세습포집량은 증가하였다. 포집 전·후 필터의 무게분석을 통해 석탄회필터의 세습포집효율을 계산한 결과 세습이 포집온도 800-1000°C에서 99% 이상 포집되었음을 확인할 수 있었다.

세습 포집 후에 나타나는 석탄회필터의 결정구조 및 미세 구조변화를 분석하기 위해서 세습포집량 0.11에서 1.16(g-Cs/g-filter)까지인 석탄회필터를 XRD로 분석하였다. 분석결과, 석탄회필터와 흡착된 세습사이에 화학 결합이 생성되어 새로운 종류의 표면 화합물인 pollucite ($\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$) 및 Cs-nepheline (CsAlSiO_4)이 형성되었다. 세습포집량 0.11(g-Cs/g-filter)인 경우 세습이 석탄회필터와 반응하여 pollucite ($\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$)상으로 포집되었다. 반면에 세습 포집량 0.27-1.16 (g-Cs /g-filter)의 경우 석탄회 필터에 포집된 세습은 pollucite ($\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$) 상뿐만 아니라 Cs-nepheline (CsAlSiO_4) 상으로 포집되었고 세습포집량이 증가함에 따라 Cs-nepheline (CsAlSiO_4) 피크가 발달하는 경향을 보였다.

SEM을 이용하여 석탄회필터와 세습포집량이 0.23(g-Cs/g-filter)인 필터의 표면을 1,000배로 확대하여 미세구조 및 형상의 변화를 관찰하였다. Fig. 2의 포집 전 석탄회필터의 형상은 1200°C에서 소결과정을 거치면서 반쯤 용융된 구형의 형상이 전체적으로 분포 되어있는 반면에 세습을 포집한 후의 석탄회 필터의 형상은 거의 등딱지 모양 같이 생긴 작고 bulky한 crystal 모양의 pollucite($\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$) 형상과 일부 침상구조의 mullite($3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$) 형상이 관찰되었다.

3. 결론

본 연구에서는 석탄회 필터를 이용하여 포집온도 500°C부터 1000°C까지 세습포집량 변화를 분석하여 석탄회 필터의 세습 포집반응은 흡열반응에 의한 화학 흡착반응인 것을 확인하였다. 본 세습처리방법은 원자력시설에서 발생하는 세습을 안전하게 처리할 수 있는 포집방법이 될 것으로 판단된다.

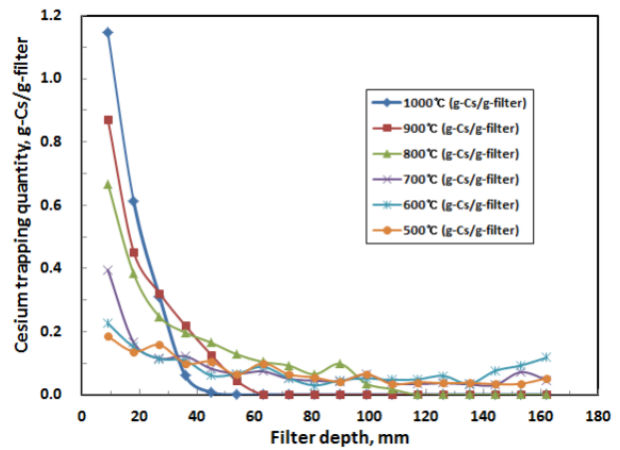
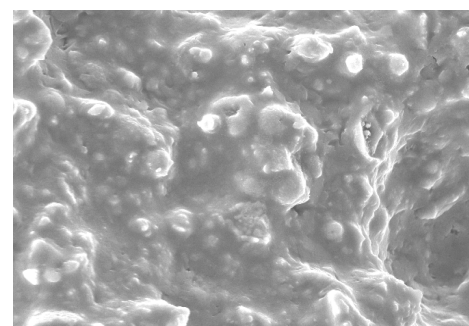
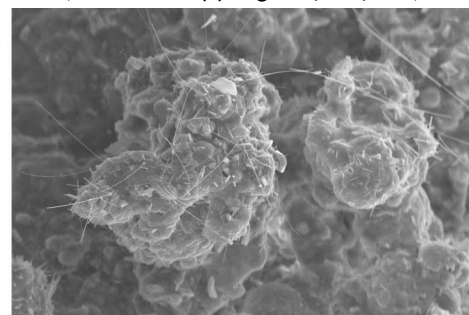


Fig. 1. The effect of temperature on the cesium trapping quantity of fly ash filter.



(before trapping Cs, x1,000)



(after trapping Cs, x1,000)

Fig. 2. SEM photographs before and after trapping Cs with fly ash filter.

4. 참고문헌

- [1] J.M. Shin, K.Y. Kim, J.J. Park, and S.W. Shin, Trapping characteristics for various cesium compounds by fly ash filter. *J. Korea Society of Waste Management*, 22(1), 27-39.