

유리화 공정의 분진 제거설비 특성평가

Characteristics on High Temperature Particulate Clean up in the Pilot Scale Vitrification Plant

김혜숙 · 박승철 · 하태욱 · 양경화 · 조천형 · 박병철 · 황태원 · 신상운

한국전력공사 원자력환경기술원
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

중·저준위 방사성 폐기물 유리화시 배기체로 발생하는 입자성 물질을 효율적으로 제거하기 위해 유도가열식 저온로(Cold Crucible Melter, CCM) 후단에 캔들형 세라믹 필터를 설치하였다. 세라믹 필터는 고온 및 부식성 가스에 대해 내구성이 좋으며 분진제거성능은 99% 이상으로 우수하였다. 필터차압은 여과속도에 비례하여 증가하였으며 운전시간이 경과함에 따라 필터차압과 여과속도는 평형상태에 도달하였다. 운전 초기 새 필터의 차압은 불안정하였으나 필터표면에 잔여 분진층이 형성된 후에는 안정화되었다. 또한 필터의 여과성은 운전초기에 급격히 감소하였으나 시간이 경과될수록 일정한 값을 보였다. 필터표면 분진층으로 인해 증가된 차압은 압축공기를 분사하여 회복시켰으며 세정압력이 증가할수록, 필터 내부온도가 높을수록 제거되는 분진량은 증가하였다.

Abstract

Ceramic candle filter was used to remove the particulate generated from the cold crucible melter during the vitrification process. It has resistance to attack by aggressive gases and ability to withstand high temperatures up to 900°C. Its filtration efficiency was higher than 99% in the present operation conditions. Pressure drop across filter elements was very unstable at the initial stage and stabilized gradually owing the formation of residual dust cake and also increased proportionally to the filtration velocity. The relative permeability of fresh filter element decreased rapidly during the initial time and approached to a stable point as the operating time was passed. The amount of declogging ash was increased when the more pulse pressure was injected to recover the increased pressure drop and the temperature was high in a filter housing.

Introduction

중·저준위 방사성폐기물 유리화 기술의 상용화 가능성을 입증하기 위해 한전 원자력 환경기술원에서는 유리화 실증설비를 건설하여 시험을 행하고 있다. 이 유리화 기술은 열분해나 하소 등의 전처리 공정을 거치지 않고 직접 유도가열식 저온로(Cold Crucible Melter, CCM)에 폐기물을 투입하는 기술로서 폐기물의 부피 축소 효과 뿐만 아니라 최종 고화물로 생성되는 폐기물의 침출율이 매우 낮아, 처분시 환경영향이 거의 없는 처리방법이다.

이와 같은 유리화 공정은 기존의 소각처리에서와 같이 폐기물의 열적 산화과정에 의해 유해오염가스와 입자성 물질이 발생되므로 이를 처리하기 위한 배기체 처리공정(Off Gas Treatment System, OGTS)을 설치하여 환경 배출기준 (SO_2 300ppm, NO_2 200ppm, CO 600ppm, HCl 50ppm, 분진 100mg/Nm³ 등)을 만족하도록 하였다. 특히 입자성 물질은 후단 OGTS나 배관내 침적으로 인한 방사성 오염을 막기 위해 CCM 후단에서 효율적으로 제거되어야 하며 동시에 배기팬의 마모를 줄여 내구성을 증가시킬 수 있다.

배기체로 발생하는 분진을 제거하는 장치로는 전기집진기, 싸이클론형 집진기, 백필터 등이 있으나 유리화 공정에서 발생하는 배기체는 고온이며 또한 고농도의 산성가스를 포함하고 있으므로 고온과 부식성 가스에서 견딜 수 있는 캔들형 세라믹 필터를 선택하였다. 세라믹 캔들필터는 백필터의 하나로 넓은 범위의 입자크기에 대해 적용 가능하며 분진제거효율이 99% 이상으로 다른 제거장치에 비해 우수하다.

여과속도(filtration velocity), 필터차압(pressure drop), 노출시간(exposed time), 역세정 빈도 및 강도(declogging interval and intensity), 필터와 밀폐 가스켓의 내구성 등과 같은 세라믹 필터의 운전인자들은 고온으로 배출되는 분진의 포집특성에 중요한 영향을 미친다.

본 논문에서는 세라믹 필터 특성과 아래 운전인자들과의 상관관계를 연구하였으며 현 설비의 성능을 평가하였다.

- 폐기물 투입량과 필터차압
- 필터 유입온도와 여과속도에 따른 필터차압
- 폐기물 종류에 따른 세라믹 필터의 분진제거성능
- 가스노출시간과 필터 여과성
- 역세정 빈도 및 강도
- 장기 운전시 필터수명

2. Specification of Ceramic Candle Filter

세라믹 필터는 일종의 백필터로 분진 제거성능이 우수하며 다른 필터에 비해 고온과 부식성 가스에 대해 내구성이 크다. 특히 세라믹 재질은 900℃의 고온에서 지속될 수 있으며 압축공기로 세정시 형태변화가 없다. 현 설비에서 사용하고 있는 세라믹 필터는 Cerafil-S 제품으로 수분함량이 많거나 고농도의 분진인 경우에도 막힘(clogging)현상이 일어나지 않으며 입경이 1 μm 이하인 분진에 대해서도 99.9%의 제거효율을 보인다. 또한 86% 공극률을 가지고 있으며 다른 필터에 비해 필터 교환주기가 길다. 이와 같은 세라믹 필터는 소각로나 석탄보일러, 유리제조공정, 금속흡공정, 석탄가스화발전공정 등 고온의 가스가 발생하는 공정에서 주로 사용되고 있다.

세라믹 필터는 44% Al_2O_3 와 50% SiO_2 그리고 6% 유기성 고착제로 구성되어 있으며 섬유형태로 소결되어 있어 백 케이스 없이 그 형태를 유지할 수 있다. Fig. 1은 단위 필터 구성

으로 길이는 1m 이고 외경과 내경은 각각 60, 40mm 이다. 단위필터는 튜브시트(tube sheet)로 고정되어 있으며 각 필터가 가지고 있는 여과면적은 0.19m² 이다. 튜브시트에 지지되고 있는 세라믹 필터는 세라믹 가스켓과 평형 고정틀로 밀봉되어 있다.

Fig. 2는 현재 설치되어 있는 세라믹 필터 시스템으로 8열×8행(64개)의 필터가 장착되어 있으며 필터를 감싸고 있는 용기부와 단위필터 고정부, 역세정부로 크게 구성되어 있다. 필터용기 하단에서 유입된 분진을 함유한 고온의 가스는 다공성 필터표면에서 분진을 제거하고 가스는 필터 안쪽을 통과하여 용기상부를 지나 후단 배기체 처리공정으로 들어간다. 필터표면에 적층된 분진은 압축공기를 필터 안에서 강하게 분출하여 제거하며 제거된 분진은 필터용기 하단 호퍼에 쌓이게 된다. 또한 시험후 수분 응축현상으로 인한 필터 재질손상 및 분진응결현상을 방지하기 위해 콘 형태의 호퍼에 열선을 설치하여 시스템 내부온도를 150~200℃로 항상 유지하도록 하였다.

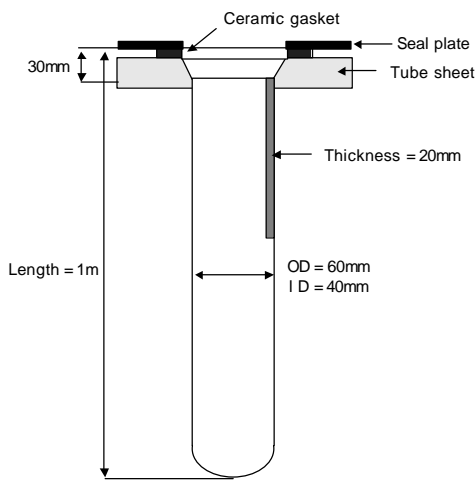


Fig. 1 The Ceramic Filter Element

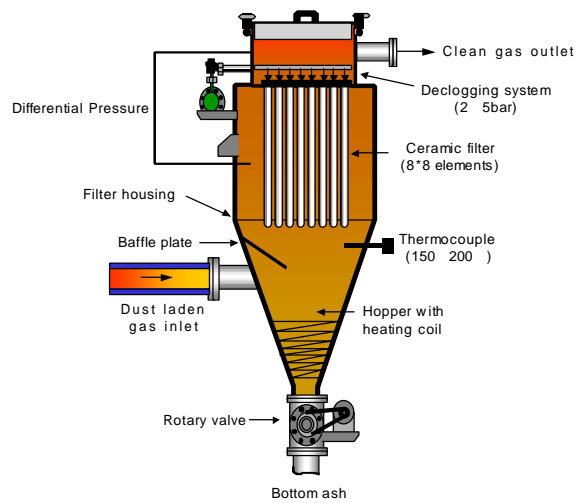


Fig. 2 Schematic Diagram of Dust Removal System for Vitrification Plant

3. Experimental Research and the Operating Factor

3.1 The Gas Filtration Velocity at the Filter

가스의 여과속도는 필요로 하는 필터 갯수와 여과설비의 크기를 결정하는 중요한 인자로 사용된다. 여과속도는 실제 가스유량을 필터 표면적으로 나눈 값으로 소각특성이나 필터 재질 등에 따라 상용범위가 있으며 산소로의 경우 1.8~2.4 m/min, 석탄보일러 0.9~1.5 m/min, 도시폐기물 소각로 0.7~1.2 m/min을 사용하고 있다. 그러나 최근 분진제거설비의 성능에 대한 요구가 커짐에 따라 여과속도가 작아지는 경향이 있으며 중·저준위 방사성폐기물을 처리하는 현 설비에서는 비교적 낮은 속도인 0.52m/min을 사용하여 후단 배기체 처리공정의 방사성 오염을 최소화하도록 하였다.

아래 식(1)은 Carman-Kozeny 경험식으로 필터차압과 여과속도는 비례관계에 있으므로 여과속도가 증가할수록 필터차압이 증가되고 이로써 역세정 주기가 빨라지게 된다. 또한 속도가 빠를 경우 필터공극을 침투하는 분진량을 증가시켜 포집효율을 감소시키고 필터차압을 증가시킬 수 있다.

$$\Delta P = \bar{V} \cdot \mu \cdot R \quad \dots\dots\dots (1)$$

여기서 \bar{V} : 여과속도, m/sec
 μ : 유체점도, kg/m · sec
 R : 여과저항, 1/m

위 식(1)의 여과속도와 유체점도는 온도의 함수로 필터유입 온도 또한 필터차압에 영향을 준다.

최근 수행한 이온교환수지 유리화 시험에서는 32개의 필터를 장착하여 사용하였고 연속적으로 역세정을 행하였으며 이때 폐기물 투입량 증가에 따른 유량증가와 이에 따른 여과속도와 차압과의 관계를 연구하였다.

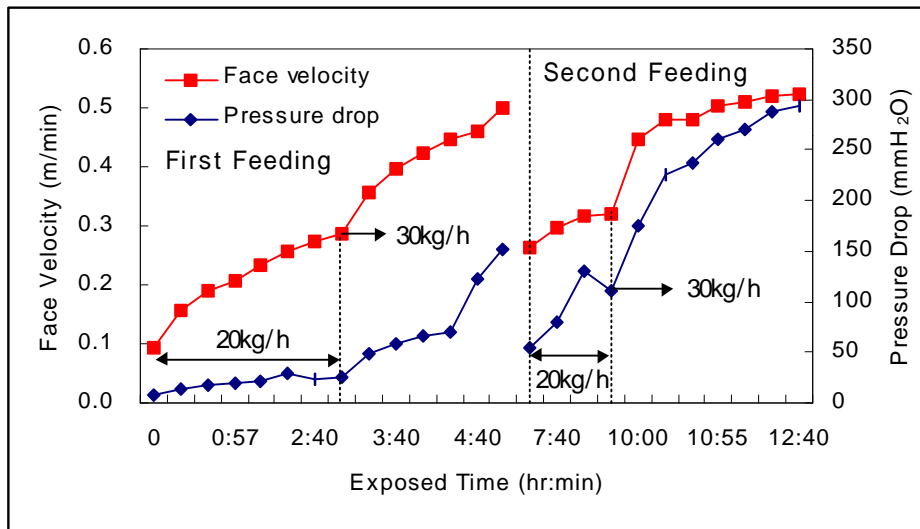


Fig. 3 Correlation between Pressure Drop and Filtration Velocity on the Increased amount of Introduced Wastes

Fig. 3 에서 알 수 있듯이 여과속도와 압력은 가스 누출시간에 따라 동일한 증가 추세를 보였으며 폐기물 투입량이 20kg/h에서 30kg/h로 변화된 지점에서 여과속도와 차압의 증가폭이 컸다. 이는 CCM 으로 투입된 폐기물 증가에 따른 분진농도와 여과속도 증가에 기인하나 CCM 후단에서 분진농도 측정결과, 이 실험에서는 후자의 영향이 컸다.

폐기물 투입이 멈춘 2시간 동안 필터차압은 50mmH₂O 까지 회복되었으나 2차 폐기물 투입 시 기존에 형성된 잔여 분진층(residual dust cake)의 영향으로 차압이 급격히 증가하였다. 차압과 여과속도 추세선의 폭 변화는 새필터 표면에 형성된 분진층의 여과저항이 커짐에 따라 점점 좁아지며 운전 초기보다는 후반부로 갈수록 임시 분진층(temporary dust cake)과 잔여 분진층의 안정적 형성으로 여과저항을 받게 된다. 결국 가스 누출시간이 어느 정도 이상 되면 분진층이 안정적으로 형성되고 차압과 여과속도가 일정해지며 미립자에 대한 분진제거효율 또한 증가되게 된다.

3.2 Cleaning Efficiency

분진제거효율은 필터 시스템 전·후단에서 측정된 분진농도로부터 결정되며 식(2)와 같이 계산한다.

$$\text{Cleaning Efficiency (\%)} = \frac{C_{in} - C_{out}}{C_{in}} \times 100 \quad \dots\dots\dots(2)$$

여기서 C_{in} = 고온필터에 유입되는 분진농도 (g/Nm^3)

C_{out} = 고온필터를 나가는 분진농도 (g/Nm^3)

CCM에 투입되는 폐기물 종류에 따라 세라믹 필터의 성능을 시험하였으며 필터 후단 분진 농도는 대략 $20\text{mg}/\text{Nm}^3$ 이하로 낮았다. Fig.4는 각 시험에서 측정된 필터성능으로 99% 이상의 제거효율을 보였으나 분진 발생량이 낮은 봉산폐기물 시험에서는 98%로 효율이 약간 낮아졌다.

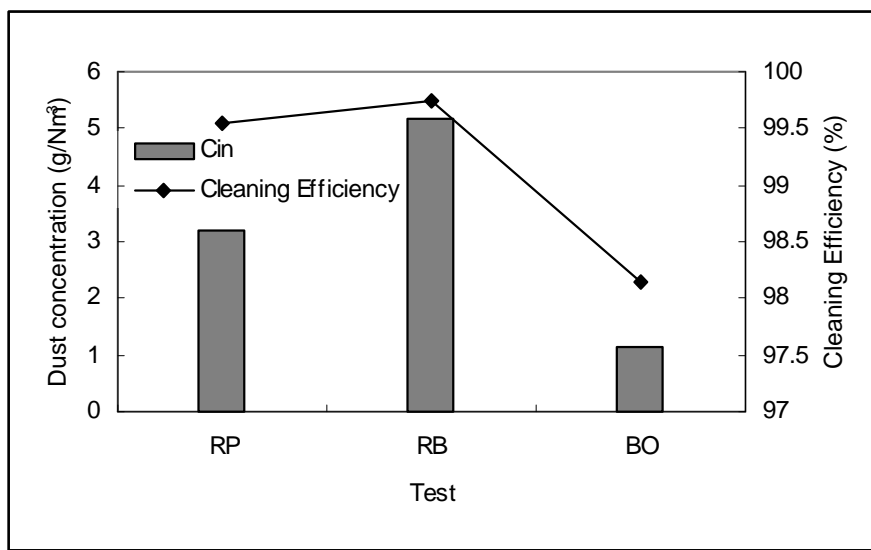


Fig. 4 Cleaning Efficiency of Ceramic Candle Filter

3.3 Filter Permeability and Pressure Drop

시험 동안 미세한 분진들은 필터 공극을 침투하며 역세정에 의해 제거되지 않아 가스저항을 증가시킨다. 결국 차압은 분진 침투율과 배기체와 함께 필터를 통과하여 나가는 분진 비율이 일정해질 때까지 증가하게 되며, 세라믹 캔들 필터는 차압이 안정화되기까지 비교적 오랜 시간이 걸린다. 유입가스내 분진농도가 높을수록, 필터표면 침적율이 빨라지며 필터는 자주 세정되어야 한다. 분진의 입경분포는 분진층(dust cake)의 점착성(adhesivity)과 공극율(porosity), 차압 및 필터나 가스켓내 분진 침투정도와 평형차압 도달시간에 영향을 준다.

위 식(1)에서 차압은 필터매질과 표면 분진층에 의해 영향을 받으며, 여과저항은 공극율 ϵ , 비표면적 A , 그리고 매질두께 T 로 표현되며 식(3)과 같다.

$$R \cong \frac{(1-\epsilon)^2 A^2 \cdot T}{\epsilon^3} \quad \dots\dots\dots(3)$$

연소가스의 열역학적 특성을 고려해 볼 때 투과성은 식(4)와 같이 정의된다.

$$K = \frac{1}{R} = \frac{\bar{V} \cdot \mu}{\Delta P} \quad \dots\dots\dots(4)$$

$$K_d = \frac{K}{K_0} = \frac{\bar{V} / \Delta P}{V_0 / \Delta P_0} \cdot \frac{\mu}{\mu_0} \dots\dots\dots(5)$$

여기서 K_d : Dimensionless permeability
 K_0 : Permeability at initial condition

식(5)에 의해 표현된 무차원 투과성은 필터의 여과 성능평가에 사용되며 하첨자 0은 초기에 측정된 값을 의미한다. 일반적으로 무차원 투과성은 시간에 따라 분진층이 두꺼워지고 입자가 필터공극을 막음에 따라 점점 감소한다.

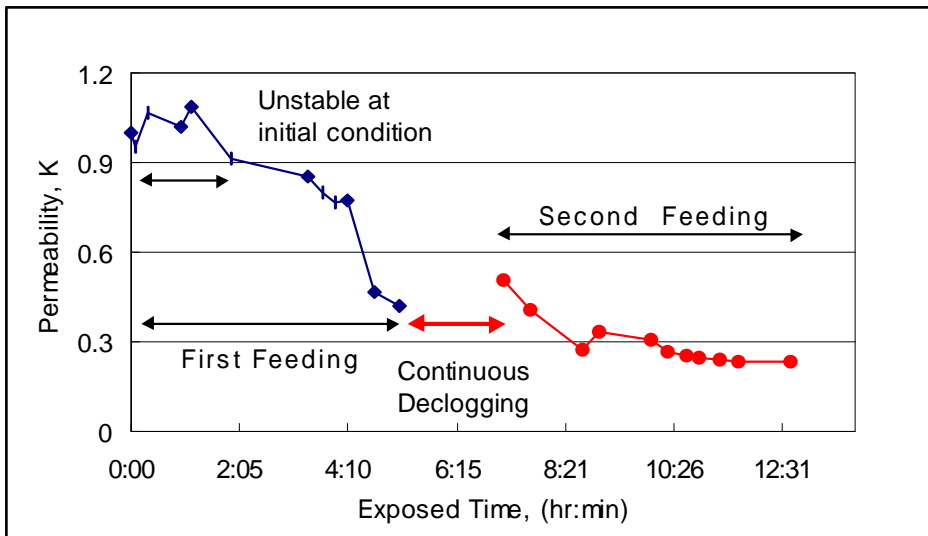


Fig. 5 Permeability vs. the time of filter exposed in off gas

Fig. 5는 이온교환수지 유리화시 가스 누출시간과 필터 투과성의 관계로 운전초기에는 새로운 필터표면에 분진층 형성으로 불안정한 값을 보였다. 필터 투과성은 초기 폐기물 투입시 급격히 감소하다가 후반부로 갈수록 일정한 값을 나타내는데 이는 역세정에 의해 떨어지는 입시 분진층과 잔여 분진층이 평형상태에 도달했음을 의미한다. 또한 초기 투과성은 대략 3.5×10^{-9} 으로 이미 보고된 세라믹 필터의 투과성과 유사한 값을 나타냈다.

3.4 The Pulse - Jet Cleaning System

분진은 필터매질을 토대로 하여 표면에 형성된 분진층에서 대부분이 제거된다. 분진층이 제거된 경우 미립자들이 필터공극에 침투되기 쉬우며 이것이 필터의 포집성능을 낮출 수 있으며 평형차압을 증가시킬 수 있다. 일반적으로 세정에 사용되는 압축공기의 압력은 필터의 운전압력보다 높아야 하며 Table 1은 역세정 시스템의 운전조건을 나타낸다.

Table 1. Operating Condition of Pulse-Jet Cleaning System

항 목	운전범위	운전조건
Compressed Air Temperature	5~150F	상온
Pulse Intensity	1~5 bar	2, 4, 5 bar
Pulse Duration	0.05~5sec	0.2sec
Pulse Interval	0~180sec	22sec
Pulse Cycle Duration	1~60min	3min

Table 2는 역세정압력을 2, 4, 5bar로 증가시켰을 경우 필터 하단으로 떨어지는 분진의 양을 투입된 폐기물 양으로 환산하여 나타낸 값으로 역세정 압력이 증가할수록 제거된 분진량이 증가하였다. 또한 동일한 역세정 압력에서도 필터 내부 온도가 높은 RP3과 RP4에서 많은 양의 분진이 제거되었는데, 이는 필터표면에 형성된 분진층은 온도가 높을수록 공극율이 증가하여 역세정에 의해 쉽게 제거되기 때문이다.

Table 2 Dust Removal Amount according to the Pulse Intensity and Inside Temperature

시험명	RP1	RP2	RP3	RP4	RP5
세정압력 (bar)	2	4	4	4	5
필터 내부온도 (°C)	230~250	200→295	240~350	330	220~300
역세정 분진량 (g dust /kg resin)	2.04	4.68	9.32	6.17	10.71

3.5 Durability of the Filter Elements

필터 내구성은 공정의 효율성과 운전비용에 영향을 준다. 필터가 고온에서 장시간 운전될 경우 약해지는 경향이 있으며 결국엔 파손이 일어날 수 있다. 최근 알려진 필터의 장기 운전기간은 25~30일 정도이며, 세정시 상온의 압축공기와 고온의 배기체 사이의 열충격에 의해 필터재질이 손상을 받을 수 있다. 본 시설에서는 25시간 동안 이온교환수지 용융시험을 행하였으나 필터 내구성에 영향을 미치는 특이한 사항은 없었다. 추후 100시간 운전에 따른 필터의 내구성을 평가할 것이며 역세정으로 인한 열충격시 나타날 수 있는 필터와 필터 사이의 검고 단단한 구조물 생성 여부를 관찰할 예정이다.

4. Conclusions

- (1) 중·저준위 방사성 폐기물 유리화 공정에서 발생하는 고온·고부식성 가스내 분진을 제거하기 위해 세라믹 캔들 필터를 사용하였다. 분진제거효율은 99% 이상으로 우수하였으며 필터 후단 분진농도는 $20\text{mg}/\text{Nm}^3$ 이하였다.
- (2) 필터차압은 여과속도에 비례하여 증가하였으며 운전시간이 경과함에 따라 필터차압과 여과속도는 평형상태에 도달하였다.
- (3) 여과속도 및 필터내부 온도는 분진층 형성에 영향을 준다.
- (4) 운전 초기 새 필터의 차압은 불안정하였으나 필터 표면에 분진층이 형성된 후에는 차압이 안정화되었다. 또한 필터 투과성은 운전 초기에 급격히 감소하였다.

- (5) 운전시간이 경과됨에 따라 차압은 잔여분진층의 여과저항에 영향을 받았다.
- (6) 역세정 압력이 증가함에 따라 제거되는 분진량은 증가하였다.
- (7) 25시간 운전시 필터 내구성에 영향을 미치는 특이한 사항은 없었다.

5. Refernece

- [1] S.S.Xu, A study of correlation between the candle ceramic filter and operating factors for hot gas cleanup, 3rd international symposium in coal combustion science and technology, 1996
- [2] Joo-Hong Choi and Gyung-Won Park, Performance of a group candle filter in a hot bench unit, Energy Engg. J., Vol. 8, No. 1, pp 143~149, 1999
- [3] Stefan Berbner and Torsten Pilz, Characterization of filtration and regeneration behavior of rigid ceramic filters at high temperatures, Powder Technology.J., Vol.86, pp.103~111,1996
- [4] S.Ito, T.Tanaka, S.Kawamura, Change in pressure loss and face velocity of ceramic filters caused by reverse cleaning in hot coal gas filtration,Powder Technology.J Vol.100, pp.32~40, 1998