

Carbonization of Coal-Fly Ash Containing High CaO Compound

Jun Soo Sim, Ki Gang Lee[†], Yu Taek Kim, Seung Ku Kang

Department of Advanced Material Science and Engineering, Kyonggi University, Suwon 443-760, Korea

(Received October 17, 2012; Revised December 28, 2012; Accepted January 22, 2013)

CaO 화합물이 다량 함유된 비산재의 탄산화

심준수 · 이기강[†] · 김유택 · 강승구

경기대학교 신소재공학과

(2012년 10월 17일 접수 ; 2012년 12월 28일 수정 ; 2013년 1월 22일 채택)

ABSTRACT

This study was conducted to recycle fly ash containing an abundance of CaO generated from combustion in a circulating layer as a carbon storage medium. The study utilized XRD, TG-DTA and XRF analyses during the hydration of fly ash and identified calcium substances within fly ash that could be used in a carbonation process. Ca²⁺ ions in the calcium substances were easily converted to hydrates. A carbonation experiment was done, which used the method of CO₂ gas injection to produce suspensions by mixing fly ash with distilled water. The results were analyzed using TG-DTA, XRD, and pH meter measurements. The study was able to verify that the reaction was completed at a CO₂ flow rate of 300cc/min approximately 30 minutes after an injection into a solution with a solid-liquid ratio of 1 : 10 of fly ash and distilled water. Moreover, the stirring time of the suspensions did not influence the reaction, and the reaction time was found to diminish as the portion of the fly ash became smaller. Thus, this study produced carbon storage fly ash having a CO₂ storage rate of about 71% through the utilization of the CaO content contained within fly ash.

Key words : Coal-Fly ash, Hydration reaction, Carbonation experiment, Recycle, CCS(Carbon Capture & Storage)

1. 서 론

화력발전소에서 석탄을 이용하여 에너지를 생산하는 연소방식에는 미분탄 연소방식과 순환유동층 연소방식이 있으며, 발전부산물인 석탄재는 크게 비산재(80%)와 바닥재(20%)로 구분된다. 비산재는 탄의 미립자를 집진기에 의하여 포집한 것으로 미분탄 연소방식의 비산재는 80% 이상이 콘크리트 혼화재와 시멘트의 원료로 활발히 사용되고 있다.¹⁻³⁾ 이에 비해 순환유동층 연소방식의 비산재는 KS규격(KS L 5405)과 미국재료시험규격(ASTM C 618) 기준에 부합하지 못하여 콘크리트 혼화재와 시멘트의 원료로 사용되지 못하고 전량 매립되고 있어 재활용이 시급히 요구되고 있다.

순환유동층 연소방식은 노 내 탈황을 위해 인위적으로 석회석을 첨가하는데 이때 탈황 반응에 참여하지 못한 잉여 석회성분이 비산재 내에 잔재하여 CaO 화합물 상태로 존재하게 된다. CaO 화합물이 다량 함유된 재료를 콘

크리트 혼화재로 사용할 경우 Free-CaO 성분이 콘크리트의 이상 응결현상, 슬럼프의 손실, 지연제의 사용량 증가, 내구성 저하 등의 문제를 발생시키고, 특히 콘크리트의 팽창, 균열 등의 문제를 발생하여 물성을 저하시킨다고 알려져 있다.^{4,5)}

국내의 Byeon 등⁶⁾은 산업부산물인 제강슬래그를 이용하여 탄산화 하였고, Ahn 등⁷⁾은 폐콘크리트 미분말을 습식탄산화반응을 통해 탄산화 실험을 수행하였다. 또한 한국등록 특허(10-0538586, 10-0592870)에서 Kim 등^{8,9)}은 제강슬래그의 Free-CaO 성분을 탄산화 하여 안정화를 통한 팽창문제를 해결하고자 하였고⁸⁾, 제강슬래그를 이용한 콘크리트에 물유리를 첨가하여 콘크리트의 팽창을 해결하고자 하였다.⁹⁾ 그러나 이들 모두 탄산화에 초점을 맞춘 연구가 아니었으며, 비산재 자체를 이용하여 탄산화 실험한 사례는 크게 찾아볼 수 없는 실정이다.

비산재가 함유한 다량의 CaO 화합물 성분을 수화하여 탄산화 가능여부를 판단하고, 이를 탄산화 하여 환경적, 화학적으로 안정한 물질로 전환한다면 탄소저장 비산재를 이용하여 콘크리트 혼화재로 사용하는 등 여러 방법으로 재활용 가능하다고 생각된다.

국내의 경우 Lee 등¹⁰⁾이 석회석을 수화하여 탄산화 하

[†]Corresponding author : Ki Gang Lee

E-mail : gglee@kyonggi.ac.kr

Tel : +82-31-249-9762 Fax : +82-31-244-6300

였고, Hong 등¹¹⁾은 탄산나트륨을 이용하여 순환골재가 함유하고 있는 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 성분을 탄산화 하였으나, 비산재를 수화실험을 수행하여 탄산화 가능 여부를 판단하는 실험의 사례는 찾아 볼 수 없었다. 비산재내 CaO 성분이 다른 화합물 형태로 존재하게 되면 탄산화 반응을 일으키기 위한 Ca^{2+} 이온의 해리가 어렵기 때문에 탄산화에 유용하게 쓰일 수 없다. 따라서 비산재 내의 CaO 성분의 화합물 형태가 탄산화 반응 기여도를 판단하는 기준이 되며, 이는 수화 실험을 수행하여 수화물 형태로 전환되는 여부를 확인하여 판단이 가능하다. 또한 Ca^{2+} 이온을 수화물 형태로 용출시킨 뒤 탄산화 하는 방안이 반응속도 및 생성물의 분리에서 유리할 수 있다는 연구가 보고 되었다.¹²⁾

따라서 본 연구에서는 탄산화 반응의 율속단계를 확인하고, 반응에 유리한 공정조건을 설정하여 실험하고자 하였으며, 고액비, CO_2 주입량, 현탁액의 교반시간, 비산재의 입도를 변수로 실험하여 본 실험에서의 최적 공정조건을 밝히고, 탄소저장 비산재로 제조하였을 때 재활용 가능성 여부를 판단하고자 하는 것이 본 논문의 의의이다.

2. 실험 방법

2.1. 원료 분석 및 비산재의 수화¹³⁾

본 실험에서 사용된 비산재의 화학조성을 XRF(ZSX-100e, Rigaku, Japan)를 통해 분석한 결과를 Table 1에 표기하였다. 화학적 주성분으로는 CaO 성분과 SiO_2 성분이 각각 45.4%와 21.94%이었다. 괄호 안은 강열감량을 제외한 실질적인 CaO 성분의 함유량을 나타낸 것이다. CaO 성분의 함유량이 많은 것은 노 내 탈황을 위해 석회석을 첨가하였기 때문이며, SO_3 성분의 함유량은 4.25 wt%이므로 CaSO_4 로 환산할 때 소모되는 CaO의 양은 약 2.88 wt%이기 때문에 비산재 내에는 약 43 wt%의 잉여 CaO 화합물이 존재할 것으로 판단된다.

수화 실험은 비산재와 증류수를 고액비(무계비) 1:2의 비율로 혼합하여 수행하였고, 비산재가 함유한 CaO 성분의 수화를 통해 탄산화 가능여부를 판단하고자 하였다. 수화물의 확인 이후에는 수화 시간을 24시간으로 하여 실험을 수행하였다.

2.2. 현탁액의 고액비 변화에 따른 탄산화 실험

탄산화 실험은 수화된 비산재와 증류수를 혼합하여 제조한 현탁액에 CO_2 가스(순도 99%)를 주입하는 침강성 탄산

칼슘 제조방법을 이용하였으며, 상온(25°C)에서 수행되었다. 용기부피 300 ml의 비커에 비산재와 증류수의 고액비를 다르게 혼합한 현탁액을 변수로 탄산화 반응을 유도하였으며, 현탁액내 비산재를 분산시켜 주기 위하여 마그네틱 교반기를 이용하였다. 또한 현탁액 내 주입되는 CO_2 가스의 분산과 체류시간을 늘리기 위하여 비커의 상부를 파라필름으로 감싸주었으며, 고액비를 제외한 나머지 조건은 모두 동일하게 수행되었다. 탄산화 결과는 pH meter (pH-230SD, Lutron, Taiwan)를 사용하여 탄산화 반응에 따른 pH 변화를 5초 간격으로 확인하였다.

2.3. CO_2 주입량에 따른 비산재의 탄산화

현탁액 내 주입되는 CO_2 유량을 변수로 하여 본 실험에서의 적정 CO_2 가스 유량을 적용하고자 수행되었으며, CO_2 가스의 유량은 100 cc/min ~ 500 cc/min까지 100 cc/min간격으로 변화시켜가며 1시간동안 주입하였고, 반응이 종결된 현탁액은 고체 시료를 걸러내어 충분히 건조 시킨 후 XRD 결정상 분석을 하여 실험의 결과를 확인하였다.

2.4. 비산재의 입도별 탄산화

비산재는 입도분리를 위해 고속볼밀기에서 30분 동안 분쇄한 후 sieve를 이용하여 체가를 하였다. 입도는 150 μm 이상, 150 μm ~ 75 μm , 75 μm 이하 그리고 분쇄하지 않은 비산재로 나누었으며, 본 실험에서의 최적 조건의 고액비와 CO_2 유량을 적용하여 실험을 수행하였다.

2.5. 현탁액의 교반 시간 변화에 따른 탄산화

제조된 현탁액의 교반 시간을 변수로 하여 교반시간이 탄산화 반응에 어떠한 영향을 미치는지 알아보하고자 하였다. 교반시간은 10분 ~ 60시간까지 7개의 변수로 나누어 마그네틱 교반기로 교반하여 주었다. 변수를 제외한 나머지 조건은 본 실험에서의 최적 조건으로 동일하게 수행되었고, 탄산화 결과는 pH meter와 TG-DTA 열 특성분석을 통해 확인하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 비산재의 물리 화학적 성질 및 수화 특성에 관한 고찰

비산재는 집진기로 포집한 것으로써 평균입径은 약 6 μm 이고, 비표면적은 2.33 m^2/g 으로 매우 좁은 입도분포와 미립자로 구성되어 있다.¹³⁾ 또한 비산재는 미국재료

Table 1. Chemical Compositions of Fly Ash and Hydrated Fly Ash(wt%)

	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	CaO	MgO	Na_2O	K_2O	TiO_2	P_2O_5	SO_3	Ig. loss	Total
F/A*	21.94	8.53	6.05	45.4(48.3)	6.06	0.06	0.48	0.5	0.08	4.25	6.65	100.0
H F/A**	18.70	8.80	5.33	39.46(48.81)	5.29	0.05	0.49	0.40	0.06	3.73	17.69	100.0

*F/A : Fly Ash, **H F/A : Hydrated Fly Ash, () : Except Ig.loss

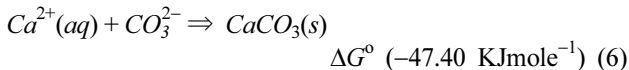
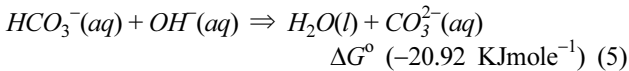
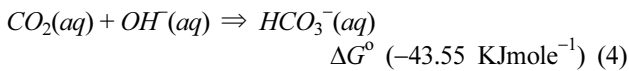
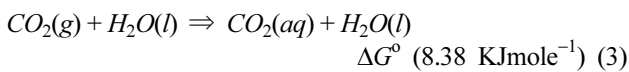
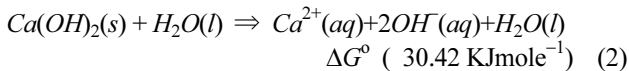
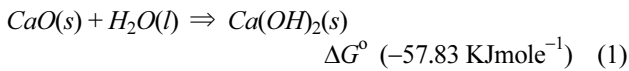
시험규격(ASTM C 618)기준 F급 비산재($\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{Fe}_2\text{O}_3 \geq 70 \text{ wt\%}$)와 C급 비산재($\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{Fe}_2\text{O}_3 \geq 50 \text{ wt\%}$) 기준에 부합하지 못하고 있으며, KS규격(KS L 5405, $\text{SiO}_2 \geq 45 \text{ wt\%}$)에도 부합되지 않음을 알 수 있다. 이는 탈황 반응에 참여하지 못한 잉여 석회성분이 비산재내 다량 잔재하여 상대적으로 SiO_2 , Al_2O_3 , Fe_2O_3 의 함량이 낮아졌기 때문이라고 사료된다.

수화 실험은 비산재가 함유한 CaO 화합물 성분의 수화물 전환 여부를 확인하기 위하여 수행되었으며, 선행 연구결과 비산재의 주결정상이었던 CaO 성분의 피크는 확인되지 않았고, 수화물인 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 의 피크가 관찰되었다.¹³⁾ 이는 비산재의 성분 중에서 CaO 형태로 존재하는 성분이 용액과 접촉하여 수화반응을 통해 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 로 전환되었다는 것을 의미하며, 이는 탄산화에 기여할 수 있는 Ca^{2+} 의 이온의 해리에 유리하므로 탄산화 가능한 원료라고 판단할 수 있다.

3.2. 탄산화 비산재

현탁액에 CO_2 가스를 주입하여 침강성 탄산칼슘을 제조하는 탄산화 반응은 기체, 액체, 및 고체의 3상을 포함하는 불균일 반응이다.¹⁴⁾

Juvekar 등¹⁵⁾은 탄산화 과정이 식 (2)~(5)와 같은 반응을 통해 진행된다고 보고하였으며, 식 우측에 나타낸 열역학적 자유에너지(ΔG)는 JANAF Table을 이용하여 계산한 값이다.



이 반응들 중에서 식 (4)~(6)는 정반응이므로 반응속도가 빠르기 때문에 반응의 율속단계는 식 (2)의 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 가 용해되는 과정과 식 (3)의 CO_2 가스가 물에 흡수되는 반응일 것이다. 이는 열역학적으로 식 (4)~(6)의 ΔG 부호는 음(-)으로 자발적 과정에 의한 정반응으로 반응을 일으키기 위한 활성화 에너지가 낮아 반응이 빠르게 진

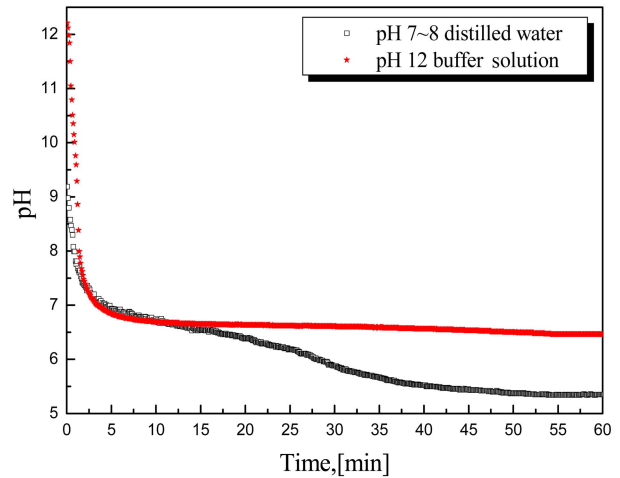


Fig. 1. Changes in pH by CO_2 injection of distilled water and pH 12 standard solution.

행된다는 것을 알 수 있다. 그러나 식 (2)~(3)의 경우의 부호는 양(+)이며, 비자발적 반응으로 정반응이 일어나기 어렵기 때문에 반응이 빠르게 진행되지 못하여 식 (2)~(3)의 반응이 전체 속도를 지배하는 율속단계임을 열역학적 특성을 통해 확인 할 수 있었다.

수화된 비산재내에 존재하는 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 는 현탁액 내에서 해리에 의해 Ca^{2+} 이온과 OH^- 로 이온화되어 용액 중으로 Ca^{2+} 를 공급함과 더불어 OH^- 이온에 의해 용액의 pH를 증가시키게 되며, 이때 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 는 물에 한정된 용해도를 갖기 때문에 온도에 따라 pH 12~13의 범위를 나타내게 된다.¹⁴⁾ CO_2 가스를 주입하면 OH^- 이온이 반응으로 소모되어 pH값은 떨어지게 되며 반응이 끝난 후 pH는 6~7의 약산성에서 중성을 나타내면서 CaCO_3 의 침전물이 생긴다.

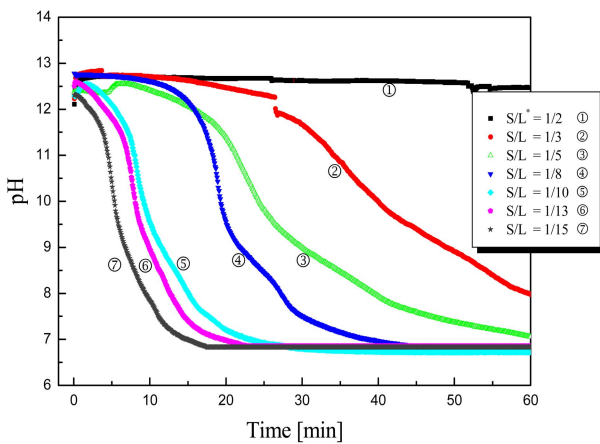
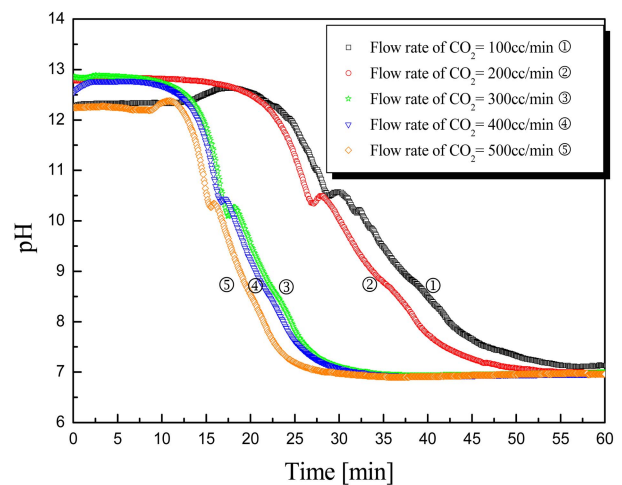
Fig. 1는 증류수(pH 7~8)와 pH 12의 표준용액에 CO_2 가스를 주입(300 cc/min, 1h)하여 CO_2 가스가 물에 흡수되는 시간과 pH 변화를 나타낸 것으로 증류수의 경우 반응 약 40분 이후 pH 5~6 사이를 나타내어 다소 많은 시간이 소요됨을 알 수 있다. pH 12의 표준용액은 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 가 물에 용해되었을 때 pH와 비슷한 조건으로 반응과 동시에 pH의 하강이 비교적 빠르게 진행되어 약 10분 이후에 pH 6.5~6.8 사이를 나타내었다. 이는 pH에 따라 Carbonate 이온들이 존재하는 형태가 다르고,¹⁶⁾ pH > 12.5인 용액에서 CO_2 는 CO_3^{2-} 이온의 형태로 존재하며,¹⁷⁾ 일종의 산-염기 반응이므로 pH가 높은 용액에서 CO_2 의 흡수 및 탄산화 반응이 유리할 것으로 판단된다. 본 실험에서는 수화된 비산재와 증류수를 혼합하여 제조한 현탁액(pH 12~13)에 CO_2 가스를 주입하는 방법으로 식 (2)와 (3)의 각각의 반응단계를 단일공정으로 조절하여 탄산화 반응이 유리하도록 하였다.

현탁액의 제조는 비산재와 증류수의 고액비를 변수로 총 7종의 현탁액을 제조하였고(Table 2), Fig. 2는 고액비

Table 2. Mix Proportions and Condition of Carbonation Reaction Experiment

Hydration Time	Stirring Time	Flow rate of CO ₂ (cc/min,1h)	Unit weight (total 200g)		Solid/Liquid ratio (Total 200 g)
			H F/A*(g)	Water(g)	
24 h	1 h	300 cc/min,1h	66.6	133.4	1:2
			50.0	150.0	1:3
			33.3	166.7	1:5
			22.2	177.8	1:8
			18.2	181.8	1:10
			14.3	185.7	1:13
			12.5	187.5	1:15

*H F/A : Hydrated Fly Ash

**Fig. 2.** pH variation of reacted solution during each Solid:Liquid ratio with carbonation of hydrated fly ash. (*S/L : Solid(hydrated fly ash)/Liquid)**Fig. 3.** pH variation of carbonation reaction as a function of CO₂ gas flow rate.

별 탄산화 실험을 pH meter로 측정하여 나타낸 그래프이다. 탄산화 반응이 종결되는 pH 6~7 구간은 고액비가 클수록 먼저 나타났으며, 고액비 1:2와 1:3의 경우 1시간 이내에 탄산화 반응이 종결되지 않음을 알 수 있다. 이는 현탁액내 Ca(OH)₂ 양이 포화상태로 CO₂가 중화반응을 일으키기 위한 양보다 Ca²⁺이온이 과잉 존재하여 반응이 연속적으로 일어나지 못하였기 때문이라고 생각된다. 또한 고액비 1:8의 경우 반응종결 시간은 CO₂ 주입 후 약 38분에 나타났으며, 1:10, 1:13, 1:15의 경우 각각 21분, 19분, 17분 이후에 나타났다. 이는 Ca²⁺ 이온이 용출됨에 따라 물에 흡수된 CO₂ gas와 연속적으로 반응하여 pH가 떨어진 것으로 사료되며, 1:10 이상의 고액비에서는 반응시간이 크게 줄어들지 않는 것으로 보아 1:10 고액비에서 탄산화 하는 것이 적정하다고 생각된다.

3.3. CO₂ 주입량에 따른 탄산화 실험

고액비별 탄산화 수행결과 최적 조건인 1:10의 고액비를 적용한 현탁액에 CO₂ 가스를 100 cc/min~500 cc/min 까지 100 cc/min 간격으로 변화시켜가며 1시간 동안 주입

한 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 결과에서 볼 수 있듯이 CO₂ 주입량 100 cc/min와 200 cc/min는 탄산화 반응이 종결되는 pH 6~7 구간이 나타나기까지 걸린 시간이 약 55분으로 반응시간이 길게 소요됨을 알 수 있으며, 300 cc/min에서의 반응종결 시간은 약 30분 이후로 200 cc/min~300 cc/min 사이에 반응이 급속도로 일어남을 알 수 있다. 300 cc/min의 이상의 CO₂ 가스 유량에서는 탄산화 종결 시간은 점점 짧아지나 큰 효과는 없는 것으로 보아 본 실험에서의 탄산화 적정 조건은 고액비 1:10의 현탁액에 CO₂ 유량 300 cc/min 라고 판단된다.

또한 Fig. 4의 XRD 결정상 분석에서도 알 수 있듯이 CO₂ 주입량 100 cc/min~300 cc/min까지 CaCO₃ (calcite) 성분의 피크는 증가하고 있고, 그 이상의 유량에서는 CaCO₃ 성분의 피크 상대강도 값의 차이가 크게 없는 것으로 보아 본 실험 적정조건이 고액비 1:10의 현탁액과 CO₂ 유량 300 cc/min임을 증명할 수 있었다.

3.4. 비산재의 입도별 탄산화 실험

비산재의 입도가 탄산화 반응에 미치는 영향에 대해 알

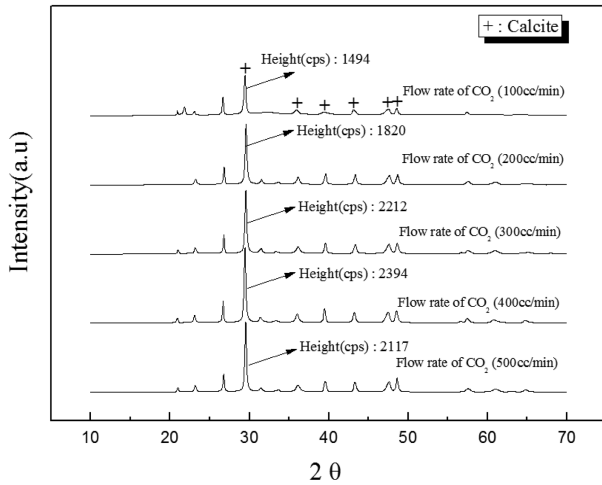


Fig. 4. XRD analysis of CO₂ reacted hydrated fly ash with the flow rate of CO₂.

아보고자 수행되었으며, 각 입도와 실험조건을 Table 3에 표기하였다. 비산재의 탄산화 반응실험 결과를 통해 최적 조건인 고액비 1 : 10과 CO₂ 주입량 300 cc/min을 적용하였다.

Fig. 5는 각 입도별 탄산화 수행 결과를 pH meter를 통해 분석한 결과이다. 분쇄하지 않은 비산재의 경우 탄산화 반응 종결시간은 CO₂ 주입 후 약 24분에 나타났으며, 150 이상, 150~75, 75 이하의 경우 반응시간은 각각 28분, 23분, 22분으로 나타났다. 이는 입도가 작아질수록 비표면적의 증가로 반응 가능한 면적이 넓어졌기 때문에 반응에 걸리는 시간이 줄어든 것이라 사료된다. 그러나 본 실험에 사용된 비산재는 미립자로 구성되어 있어 입도별 탄산화가 반응시간에 미치는 영향은 크지 않은 것으로 판단된다.

3.5. 현탁액의 교반시간에 따른 탄산화 실험

본 실험의 탄산화 최적조건을 적용하고(고액비 1 : 10, CO₂ 유량 300 cc/min), 교반시간을 변수로 하여 교반시간이 탄산화 반응에 미치는 영향에 대해 알아보려고 하였다. 결과는 Fig. 6와 Table 4에 나타내었다. 결과에서 볼 수 있듯이 교반시간이 탄산화 반응에 미치는 영향은 없는 것으로 사료된다. 이는 Ca(OH)₂가 물에 대한 한정된 용해도(Ca(OH)₂/Water = 0.159 g/100 g, at 25°C)를 갖고 있기 때문에¹⁴⁾ 교반시간에 관계없이 용해되지 못한 Ca(OH)₂가 여전히 현탁액 내에 잔재하고 있기 때문이다. Table 4

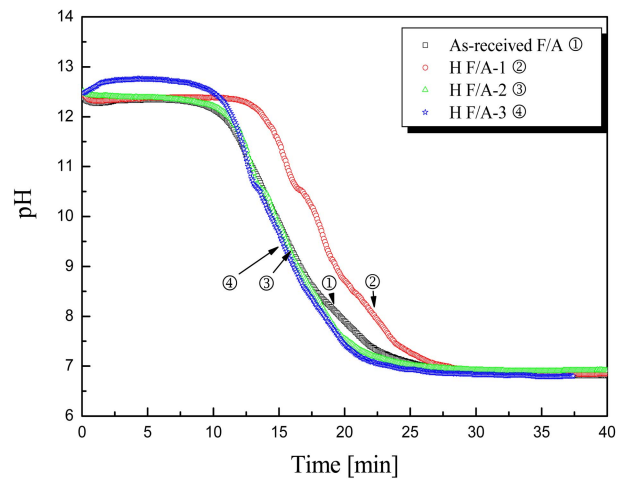


Fig. 5. Changes in pH by carbonation reaction with particle size(Sample names are the same as in Table 3).

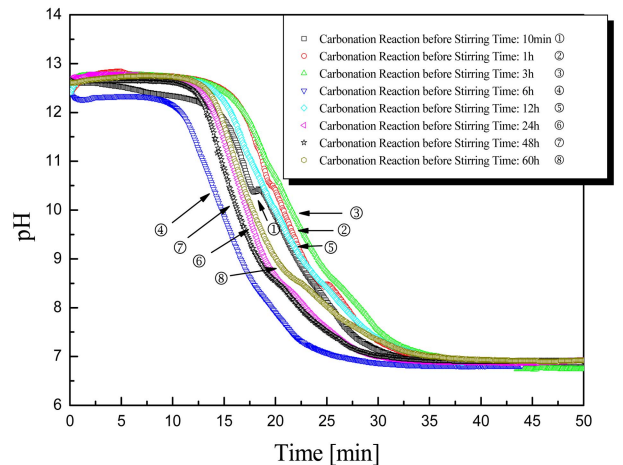


Fig. 6. Changes in pH by carbonation reaction with stirring time.

에서 탄산화 반응이 종결되는 pH 6~7 구간은 CO₂ 가스 주입 후 26분 ~35분 사이를 나타내는 것은 비산재가 갖고 있는 불균일한 조성으로 인하여 생기는 오차범위라고 생각된다.

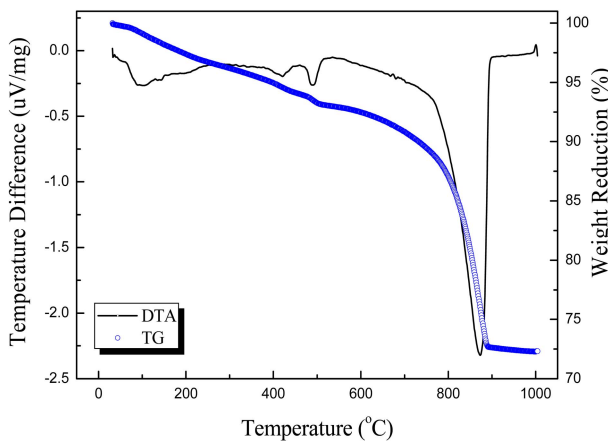
Fig. 7은 탄산화 반응이 종결된 비산재의 TG-DTA 열 특성을 분석한 것으로 800°C 부근에서 강한 흡열반응과 무게감량을 나타내고 있다. 800°C 부근의 흡열반응과 무게감량은 CaCO₃에서 CO₂의 탈착에 의한 감량으로 약

Table 3. Particle size of F/A and Condition of Carbonation Reaction Experiment

Sample name	Particle size(μm)	Hydration Time	Stirring Time	Flow rate of CO ₂ (cc/min, 1h)	Solid/Liquid
As-received (F/A)	-				
H F/A-1	Over 150	24h	1h	300cc/min, 1h	1:10
H F/A-2	75~150				
H F/A-3	Under 75				

Table 4. Carbonation Reaction Time with Stirring

Stirring time	pH	Carbonation Reaction time (min)		
	pH 12~14	pH 7~12	pH 6~7	
10min	14	17	After 31	
1h	17	17	After 34	
3h	17	18	After 35	
6h	11	15	After 26	
12h	15	19	After 34	
24h	14	17	After 31	
48h	13	18	After 31	
60h	15	20	After 35	

**Fig. 7.** TG-DTA Analysis of fly ash after carbonation reaction.

20.45%의 감량을 나타내고 있다. 이는 비산재가 실질적으로 함유한 CaO 성분의 함량(45.4 wt%, 잉여 CaO 성분 약 42 wt%)을 고려했을 때 약 71%의 높은 탄산화율로 Huijgen 등¹⁸⁾의 결과에서도 석탄재의 경우 복잡한 실험조건하에 최대 84%의 탄산화를 이루었다고 보고한 것으로 보아 본 실험에서 사용된 비산재는 탄산화에 적합한 재료임을 알 수 있다. 또한 탄산화 되었다는 것은 열역학적으로 안정하기 때문에 대기 중으로 CO₂가 다시 누출될 염려가 없어 환경적·화학적 문제가 발생하지 않는다. 이를 통해 탄소저장 비산재는 콘크리트 혼화재로 사용했을 때 발생할 수 있는 팽창, 수화 등의 문제 해결이 가능하다고 판단되며, 여러 방면에서 재활용 가능한 원료로 사용 가능하다고 생각된다.

4. 결 론

1) 수화 실험은 Ca²⁺의 이온의 해리가 유리한 수화물 (Ca(OH)₂)로 전환하고자 수행하였으며, 그 결과 비산재 내 Ca(OH)₂로 전환될 수 있는 CaO 성분이 수화물로 전환되는 것으로 보아 수화된 비산재는 탄산화 가능한 원료이다.

2) 침강성 탄산칼슘 반응의 율속단계는 Ca(OH)₂가 물에 용해되는 과정과 CO₂가 물에 흡수되는 반응이다. 이는 열역학적으로 계산한 값을 통해 확인 할 수 있었고, 이 두 단계의 공정을 단일공정으로 하여 율속반응을 조절할 수 있었다.

3) 고액비별 탄산화 실험은 고액비가 클수록 반응시간이 줄어들었고, 고액비가 1:10 이상의 현탁액에서는 탄산화 효율이 크게 증가하지 않는 것으로 보아 본 실험에서의 적정 조건은 고액비가 1:10인 현탁액이다.

4) 본 실험에서의 최적 고액비(1:10)를 적용한 현탁액에 CO₂ 유량을 변수로 하여 탄산화 실험한 결과 CO₂ 유량이 증가할수록 반응시간은 짧아졌으며, 300 cc/min의 유량에서 약 30분에 반응이 종결됨을 확인하였다. 또한 300 cc/min 이상의 유량은 탄산화 반응시간에 미치는 영향이 크지 않으므로 300 cc/min의 유량이 적정 조건이며, 비산재 내 CaO 성분대비 약 71%의 CO₂ 저장이 가능하였다.

5) 비산재의 입도가 작아질수록 비표면적의 증가로 탄산화 반응 시간이 줄어들었다. 그러나 비산재 자체가 미립자로 구성되어 있어 입도별 실험이 반응시간에 미치는 영향은 크지 않은 것으로 사료된다.

6) 교반시간을 변수로 하여 탄산화 반응을 유도한 결과 Ca(OH)₂ 성분은 물에 대한 한정된 용해도를 갖기 때문에 교반시간이 탄산화 반응 시간에 미치는 영향은 없었다.

이를 통해 다량의 CaO 성분이 함유된 비산재를 수화시키고, 탄산화 하여 본 실험에서의 적정 실험조건을 설정할 수 있었고, 탄소저장 비산재를 제조할 수 있었다.

Acknowledgment

본 연구는 한국남부발전(주)의 지원에 의하여 기초전력연구원(과제관리번호 11108) 주관으로 수행된 과제이며, 이에 감사드립니다.

REFERENCES

1. B. S. Chun and Y. H. Yeoh, "A Study on the Recycling of Coal Ash as Structural Backfill Materials," *J. Kor. Soc. Ocean Eng.*, **14** [1] 74-79 (2000).
2. S. J. Choi and M. H. Kim, "A Study on the Durabilities of High Volume Coal Ash Concrete by the Kinds of Coal Ash," *J. Kor. Insti. Build. Const.*, **9** [3] 73-8 (2009).
3. Y. W. Yoon, K. S. Chae, and K. H. Song, "Evaluation of Static and Dynamic Characteristic of Coal Ashes," *J. Kor. Geo-Environ. Soc.*, **10** [3] 5-12 (2009).
4. N. S. Ahn, J. H. Lee, and Y. H. Lee, "Sulfate Attack According to the Quantity of Composition of Cement and Mineral Admixtures," *J. Kor. Insti. Build. Const.*, **11** [6] 547-56 (2011).
5. K. H. Kim, J. Y. Lim, D. H. Ryu, and S. W. Choi, "The

- Present Situation of Production and Its Utilization of Electronic arc Furnace Oxidizing Slag in Korea and Other Countries," *J. Kor. Conc. Insti.*, **19** [6] 51-57 (2007).
6. T. B. Byeon, J. Y. Lee, D. Y. Kim, H. H. Lee, and H. S. Kim., "Carbonation Treatment Technology of Steel Making Slag," *RIST. J. R&D.*, **19** [1] 32-39 (2005).
 7. H. S. Ahn, J. S. Kim, and H. S. Lee, "A Study on the Fixed Amount of CO₂ and the Estimation of Production of CaCO₃ on Waste Concrete Powder by Wet Carbonation," *J. Kor. Concr. Insti.*, **27** [7] 133-40 (2011).
 8. H. S. Kim, K. H. Han, and W. H. Bae, "Method for Stabilizing Steel-Making Slag by Adding Iron-Containing Material with High T-Fe Content," Republic of Korea Patent, Patent No. 10-0538586 (2005).
 9. H. S. Kim, K. H. Han, and W. H. Bae, "Method for Producing Concrete Using Steel Slag Aggregate that Quickly Blocks Expansion of Steel Slag Aggregate by Adding Water Glass," Republic of Korea Patent, Patent No. 10-0592870 (2006).
 10. J. J. Lee and J. L. Park, "Manufacture of Precipitated Calcium Carbonate from Pungchon Limestone," *J. Ind. Tech. Kangwon Nat'l Univ.*, **21** [A] 253-59 (2001).
 11. S. R. Hong, H. S. Kim, E. G. Kwak, S. G. Park, and J. M. Kim, "Characteristics of Recycled Fine Aggregate by Sodium Carbonated Water," *J. Kor. Recy. Const. Res. Insti.*, **6** [2] 97-102 (2011).
 12. K. S. Lackner, D. P. Butt, and C. H. Wendt, "Progress on Binding CO₂ in Mineral Substrates," *Energy Convers. Mgmt.*, **38**(supplement 1), 259-264 (1997).
 13. J. S. Sim, K. G. Lee, Y. T. Kim, and S. K. Kang, "Hydration Characteristics of Coal-Fly Ash Containing High CaO Compound," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **49** [2] 185-90 (2012).
 14. J. W. Hwang, Y. Lee, and D. H. Lee, "Morphological Change of Precipitated Calcium Carbonate by Reaction Rate in Bubble Column Reactor," *Kor. J. Chem. Eng. Res.*, **47** [6] 727-33 (2009).
 15. V. A. Juvekar and M. M. Sharma, "Absorption of CO₂ in a Suspension of Lime," *Chem. Eng. Sci.*, **28** [3] 825-97 (1973).
 16. J. K. Lee, J. S. Kim, S. H. Chung, N. J. Kim, and S. H. Kim, "A Study on the Reactivity of NaOH and Carbon Dioxide in Flue Gas," *Kor. J. Chem. Eng.*, **6** [2] 4377 (2000).
 17. J. K. Lee, J. S. Kim, S. H. Chung, N. J. Kim, M. C. Kang and S. H. Kim, "A Study on the Reactivity of NaOH and Carbon Dioxide in Flue Gas(2)," *Kor. J. Chem. Eng.*, **7** [1] 1621 (2001).
 18. W. J. J. Huijgen and R. N. J. Comans, "Mineral CO₂ Sequestration by Carbonation of Industrial Residues; Literature Overview and Selection of Residue," Energy Research Centre of The Netherlands., ECN-C-05-074 (2005).