

브라운가스를 이용한 염폐기물의 탈염소화

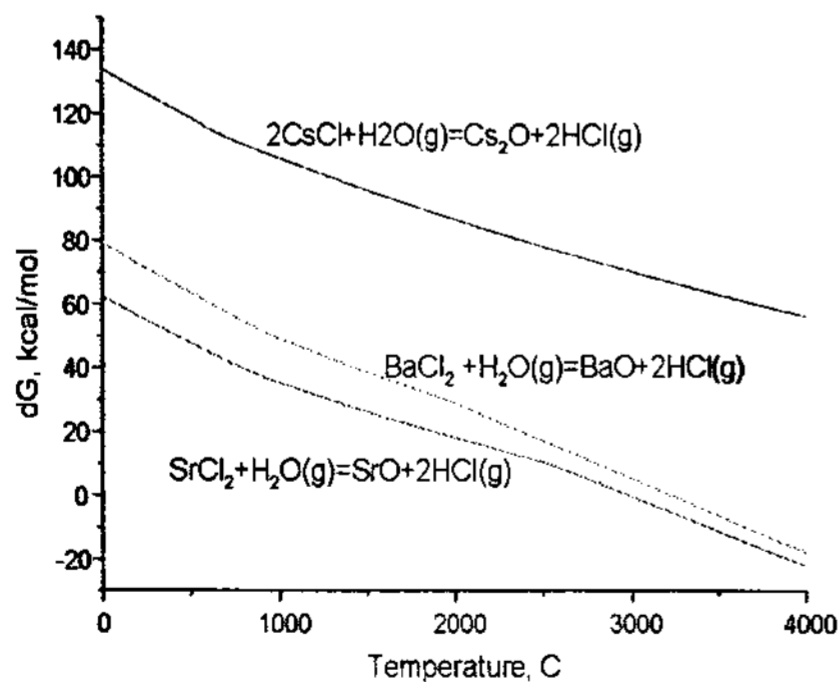
김준형, 김인태, 김환영, 박환서, 현장수*
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150
 *이앤이(주),
kimjh1@kaeri.re.kr

1 서론

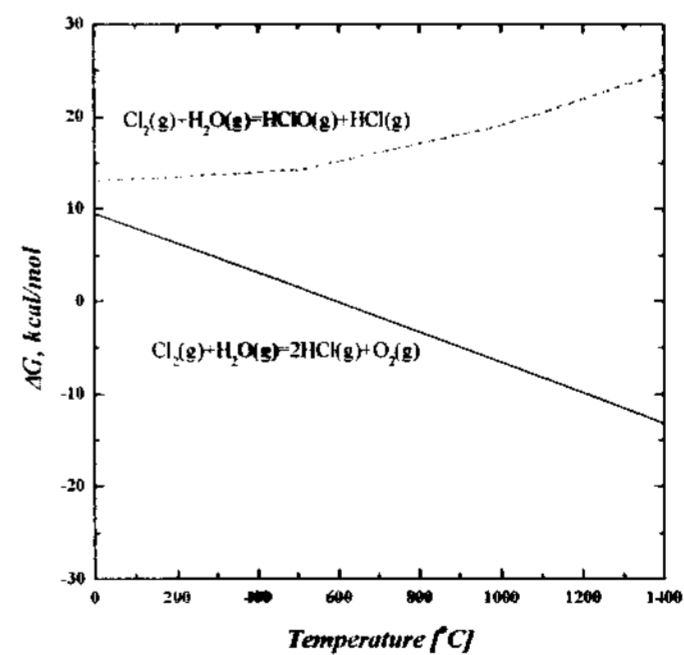
용융염 폐기물은 사용후 핵연료에서 우라늄 등을 건식으로 분리하는 과정에서 발생하며 금속 염화물이 주성분이기 때문에 처분 후에 이들이 녹아나오는 것을 방지하는 기술 개발이 필요하다. 미국 알콘 연구소에서는 탈염소 처리 없이 Glass-bonded sodalite ($\text{Na}_6\text{M}_2\text{Al}_6\text{Si}_6\text{O}_{24}\text{Cl}_2$)로 유리화하는 조건을 찾았다(1). 탈염소 방법으로서는 붕산을 이용하여 산화시키는 방법이 있으나(2) 인산염을 이용한 침전법이 실용화 가능성이 큰 것으로 조사되고 있다(3). 본 연구는 용융염 폐기물을 유리화시 염폐기물내 함유되어 있는 세슘의 탈염소화와 유리화시에 발생하는 염소가스를 염화수소로 변환시켜 배기체의 처리를 용이하게 하며 유리화 고화체의 침출특성을 향상시키는 방법에 관한 것이다.

2. 실험 및 결과

브라운 가스발생기는 일반적인 물의 전기분해 장치에서 극간의 간격을 좁혀서 발생하는 기체를 혼합물의 형태로 발생시킨다. 이 혼합물은 음극에서 생성된 수소와 양극에서 생성된 비극성의 가스로 비교적 안정한 $\sigma(\text{OH})_2$ 가 주성분이라고 보았다. 브라운 가스의 연소 시에는 이 $\sigma(\text{OH})_2$ 가 분해되어 2개의 수산 라디칼이 생성 이는 수소분자와 반응하여 반응성이 매우 큰 수소 라디칼이 생성되어 알칼리 금속 염화물인 CsCl과 반응하여 염화수소 가스를 발생시키며 500°C 이하에서는 반응이 일어나지 않는 염소 가스와의 반응하여 염화수소를 생성시킨다(4).

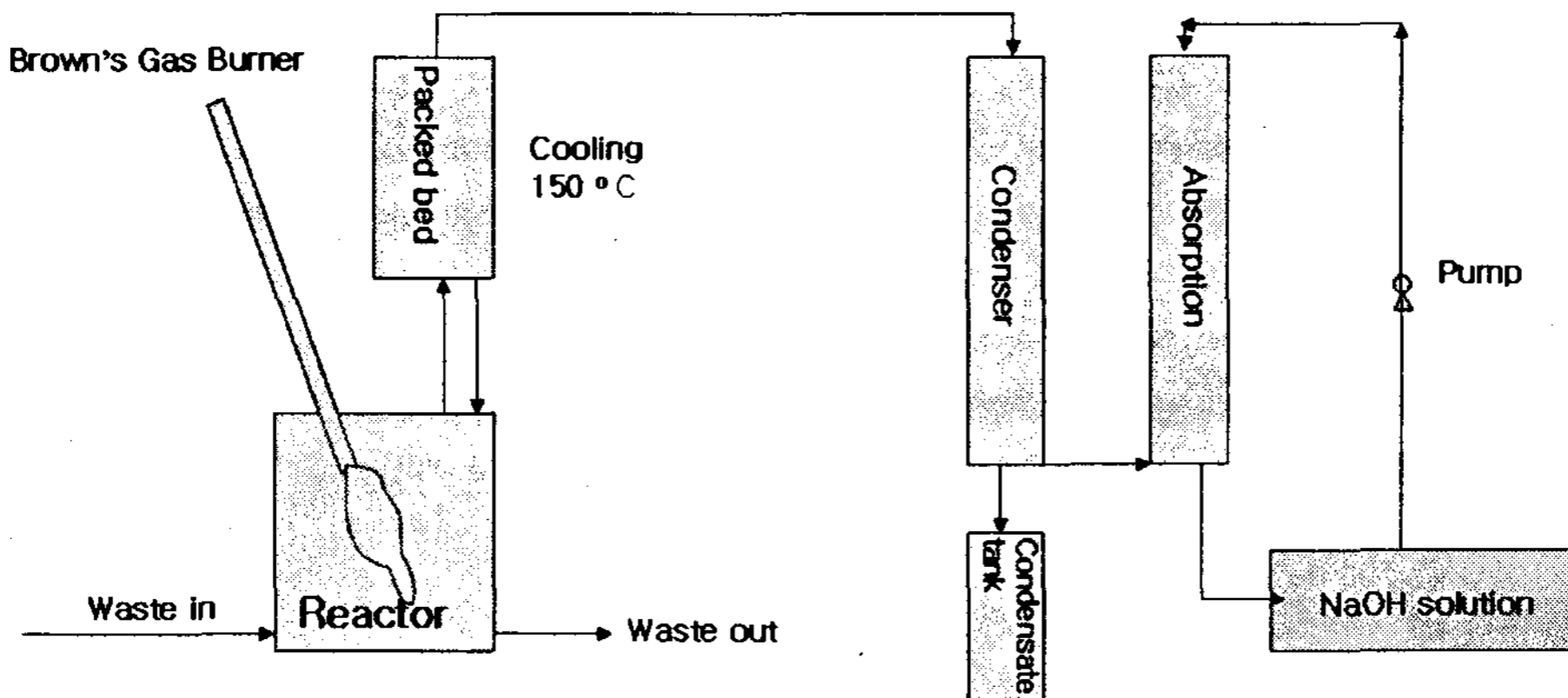


Gibb's Free Energy Change of the Reaction with H_2O



Gibb's Free Energy Change of the Chlorine and Steam Reactio

아래 그림은 간략한 장치도이다.



General Concept of a Chlorine Removal from Waste

브라운 가스로 반응기 내부온도가 630°C에 도달하였을 때 염화세슘(CsCl)을 알루미나 재질의 용기(직경 50mm, 높이 50mm)에 투입하고, 브라운 가스 버너로부터 발생하는 브라운 가스의 불꽃이 상기 용기 내부 상단에 흐르도록 하고, 발생한 가스를 냉각시켜 수분을 제거한 후 염화수소(HCl) 가스의 농도를 측정하였다. 측정결과 염화수소 가스는 160ppm으로 응축수의 pH는 1.6이다. 염화세슘은 고온의 수증기와 4000°C까지는 반응하지 아니하고 염화수소가 발생되지 않는다.

Si/Al/P의 몰비가 1/1/1이며 600°C에서 열처리하여 용매와 수분을 제거한 유리전구체와 LiCl을 섞은 모의 폐기물은 가열시 염소가스가 발생한다. 이 폐기물을 반응기내 알루미나 재질의 용기(직경 50mm, 높이 50mm)속에 넣고 브라운 가스의 불꽃이 상기 용기 내부 상단에 흐르도록 배치하고 브라운 가스와 반응시킨 바 내부 공간온도가 140°C에 도달하였을 때 염화수소의 발생이 30ppm 측정되었으며 공간온도가 221°C에서 최대 염화수소 농도 190ppm이 측정되었다. 공간온도 720°C에서 실험이 종료되었고 이 동안 염소는 측정되지 아니하였다. 응축수의 pH는 1.9였다.

3. 결론

염폐기물을 SAP를 경유한 유리화시 열원으로 브라운 가스를 사용하면 브라운 가스가 발생하는 염소와 반응하여 염화수소로 변환되므로 발생 가스의 처리가 용이해진다.

통상적으로 고온의 수증기와 반응이 불가능하며 방사성 동위원소인 CsCl이 분해되어 염소가 제거됨으로 이를 함유한 염폐기물의 유리화시 내침출특성의 향상을 기대할 수 있다.

참고문헌

1. D. Lexa, L. Leibowitz, J. Kropf, On the reactive occlusion of the (uranium trichloride + lithium chloride + potassium chloride) eutectic salt in zeolite 4A. J. Nucl. Mater. Vol. 279, pp. 57-64, 2000.
2. Y. Ikeda, Y. Takesima, Conversion reaction of metal chlorides into oxides with boric acid. J. Nucl. Sci. Tech., Vol. 32. pp. 1138-1145, 1995
3. V.A. Volkovich, T.T. Griffiths, R.C. Thied, Treatment of molten salt wastes by phosphate precipitation: removal of fission product elements after pyrochemical reprocessing of spent nuclear fuels in chloride melts. J. Nucl. Mater., Vol. 323, pp. 46-56, 2003
4. Kim, J.-H., et al, Vitrification of a waste molten salt by using a reactive heat source, 26th IT3 Conference, Phoenix, AZ, May 14-18, 2007