

## 무기합성복합체의 조성에 따른 금속염화물의 탈염소화 특성

조인학, 박환서, 박현해, 김인태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150

join7677@naver.com

## 1. 서론

사용 후 핵연료의 부피감용과 처분 전처리 대안공정으로 개발되고 있는 건식처리(pyroprocessing)는 전기화학적 방법을 기반으로 하기 때문에 LiCl 또는 LiCl-KCl로 구성된 염화물계 방사선 폐기물이 발생된다. 이러한 염화물계 방사선 폐기물은 900°C 이하에서 대부분이 휘발되는 물리화학적 특성을 가지기 때문에, 이에 대한 고화방법이 필요하다. 미국의 ANL(Argonne National Laboratory)에서는 제올라이트의 구조의 용융염내 안정성을 이용하여 금속염화물을 sodalite( $\text{Na}_8\text{Al}_6\text{Si}_6\text{O}_{24}\text{Cl}_2$ )로 전환하는 방법을 제안하였다. 또한, 금속염화물을 고정화시키는 방법으로 붕규산 유리보다 낮은 용융점을 가지는 인산염유리를 이용하는 고화방법도 고려할 수 있는 방법이다. 제올라이트를 이용하는 경우에는 상대적으로 높은 내구성을 가지는 반면에, 최종처분부피가 크게 증가하는 단점을 가지며, 인산염 유리의 경우에는 최종처분되는 부피는 상대적으로 낮으나 낮은 수화학적 안정성과 아울러 용융장치의 부식에 대한 문제가 발생된다. 이러한 특성을 고려하여, 공용용염이 가지는 열적 화학적 불안정성을 제거하는 방법으로, 무기합성복합체를 이용하여 탈염소 후, 고화매질을 이용하여 고화하는 방법이 연구, 개발되었다. 본 연구에서는 솔젤법을 이용하여 기존에 연구, 개발된  $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$ 로 이루어진 무기합성복합체에  $\text{FeCl}_3$ 을 첨가하여 금속염화물계에 대한 탈염소화 반응특성을 평가하여 무기합성복합체에서 Al/Fe의 최적 조성비를 찾고자 하였다.

## 2. 실험 및 결과

$\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{H}_3\text{PO}_4$ ,  $\text{FeCl}_3$  및 TEOS(tetraethyl orthosilicate, Aldrich, Germany)를 원료로 하여, 표 1과 같이 상기의 원료의 몰비를 변화시켜 sol-gel법을 이용하여 무기복합체를 제조하였다.

표 1. 무기합성복합체의 조성

	SAP-1	SAP-2	SAP-3	SAP-4	SAP-5
$\text{H}_3\text{PO}_4$	1	1	1	1	1
TEOS	1	1	1	1	1
$\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	1	0.75	0.5	0.25	-
$\text{FeCl}_3$	-	0.25	0.5	0.75	1

공용용염내에 존재할 수 있는 각각의 금속염화물(LiCl, KCl)에 대한 반응특성을 확인하기 위해, 제조된 무기합성복합체와 공용용염(45wt% LiCl-55wt% KCl)과 반응무게비를 2로 해서 650°C에서 반응시켜 XRD 분석을 통하여 반응생성물을 확인하였다. 그림 1은 금속염화물에 대해 반응무게비를 2로 하여 650°C에서 24시간 반응시켰을 때 발생하는 무게감량을 나타낸 것으로 이를 통해 각 금속염화물에 대한 무기합성복합체의 탈염소화반응특성을 살펴볼 수 있다. 그림 1에서 볼 수 있듯이 무기합성복합체에서 Fe의 조성비가 증가할수록 무게감량이 효과적으로 발생되었으며 이를 통해 Fe의 조성비가 증가할수록 탈염소화 반응속도 또한 증가함을 알 수 있다. 또한, 반응이 종료되었을 때 감량된 무게는 금속염화물내 염소가 모두 제거되었을 때 나타나는 이론적인 무게감량 값에 근접하여 무기합성복합체를 이용한 금속염화물의 탈염소화가 효과적임을 알 수 있다. 그림 2는 무기합성복합체와 금속염화물과의 탈염소화반응 후 생성된 잔류물질의 XRD pattern을 나타낸 것이다. 그림 2 (a)를 보듯이, LiCl-KCl인 경우 무기합성복합체에서 Fe의 조성비가 증가할수록 반응생성물의 KCl peak가 검출되었고, peak 세기도 증가하였다. 그림 2 (b)에서 볼 수 있듯이 LiCl의 경우, 반응생성물이 결정상으로서 lithium phosphate와 lithium aluminosilicate였고, LiCl 결정 peak는 나타나지 않았다.

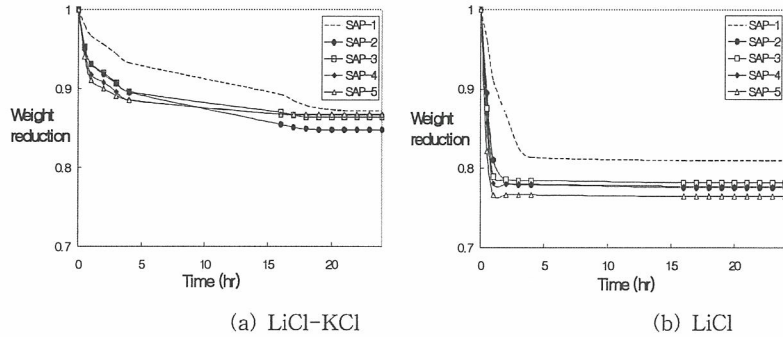


Fig. 1. 무기합성복합체(SAP)를 이용한 금속염화물(LiCl-KCl, LiCl)내 염소제거효율 (650°C, 무기합성복합체:금속염화물=2:1)

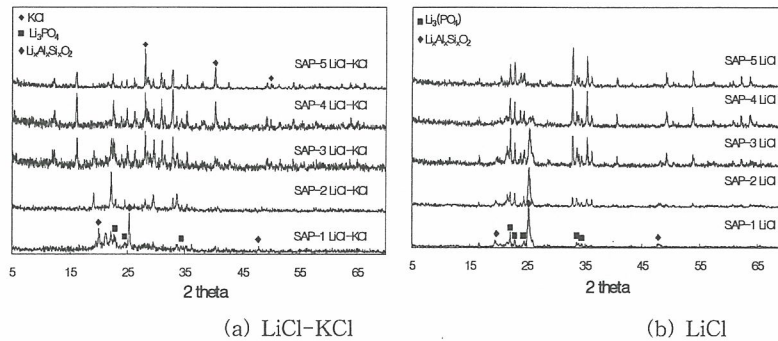


Fig. 2. 무기합성복합체를 이용한 금속염화물의 탈염소화반응 후 얻어지는 반응생성물의 XRD Pattern (650°C, 무기합성복합체:금속염화물=2:1)

### 3. 결론

이 실험의 결과로서 무기합성복합체에서 Fe의 조성비가 증가할수록 금속염화물에 대한 반응속도가 빨라짐을 알 수 있었지만, 금속염화물 LiCl-KCl의 경우 반응생성물 중 KCl이 잔류함을 확인하였다. 무기합성복합체에서 Fe의 조성비가 높아질수록 금속염화물 LiCl-KCl보다는 LiCl에 대한 무기합성복합체의 탈염소화 반응성이 높은 것을 알 수 있었다.