

## 염소가스의 포집 및 재활용을 위한 공정기초특성평가

박환서, 조인학, 안수나, 전성훈, 은희철, 김인태  
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111  
[hspark72@kaeri.re.kr](mailto:hspark72@kaeri.re.kr)

### 1. 서론

원자력 발전을 통해 배출되는 사용후 핵연료를 재활용하는 기술로서 국내에서 개발되고 있는 pyrochemical process는 FPs를 함유하는 LiCl 또는 LiCl-KCl 방사성 폐기물을 배출할 것으로 예상된다. 금속염화물은 상대적으로 낮은 온도에서 휘발하는 특성을 가지며, 일반적인 불규산 유리와는 상용성이 낮아 상용고화처리기술로 적용하기가 쉽지않은 단점을 가진다[1]. 미국 ANL에서는 제올라이트나 tellurite glass를 이용하여 금속염화물을 고화처리하는 방법을 개발하였으나[2], 이러한 방법은 waste loading이 상대적으로 낮은 단점을 가지며, LiCl폐기물에는 적용하기가 어렵다. 이러한 단점을 극복하고자 KAERI에서는 지난 수년동안 합성부기매질을 이용한 탈염화 고화처리 방법을 개발하여 왔다[3]. 고화처리에 문제를 발생시키는 염소를 제거하고 금속만을 고화처리하는 방법은 내구성이나 처리효율이 높은 반면에 고독성의 염소가스를 발생시키는 단점을 가진다. 사용후 핵연료를 처리할수록, 전해질로 추가되어야 하는 금속염화물의 양은 지속적으로 증가하고, 미국에서 개발되어온 고화법을 적용할 경우에는 최종 처분부피가 크게 증가되며, 탈염화의 경우에는 고독성의 염소가스가 지속적으로 발생된다.

본 연구는 이러한 점을 극복하기위해 가스상 내 염소를 효과적으로 제거하여 전해질로 재사용할 수 있는 교체흡착제 및 염소재활용 공정을 개발하고자 흡착물질의 기초적인 특성과 제거성능을 확인하고자 하였다.

### 2. 본론

Pyrochemical process에서 사용되는 전해질은 LiCl또는 LiCl-KCl로서, 염소를 제거하여 얻어지는 물질은 LiCl 또는 KCl로 형성되는 것이 바람직하다. Fig. 1은 여러 가지 물질들의 염소화 반응 Gibbs free energy를 나타낸 것으로, potassium oxide, hydroxide 및 carbonate가 가장

좋은 반응성을 보이며, 고려된 물질 모두 염소와 높은 반응성을 가지고 있음을 알 수 있다.

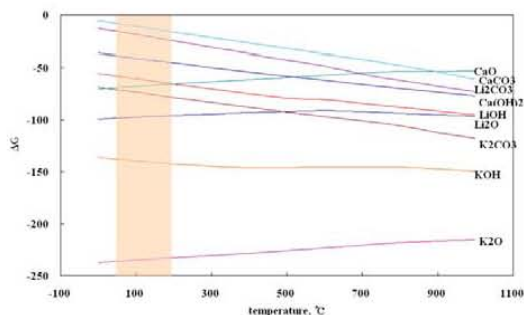


Fig. 1.  $\Delta G_{\text{reaction}}$  of inorganic compounds with  $\text{Cl}_2$ . ( $\text{M}_2\text{O}$  (or  $\text{MOH}$ ,  $\text{M}_2\text{CO}_3$ ) +  $\text{Cl}_2 \rightarrow \text{MCl} + \text{O}_2$  or  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ).

KAERI에서 개발된 SAP( $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$ )는 금속염화물과 탈염화반응시 산소를 필요로 하며, 이러한 점을 고려하면, Fig.2와 같은 closed loop reaction system을 구성할 수 있다.

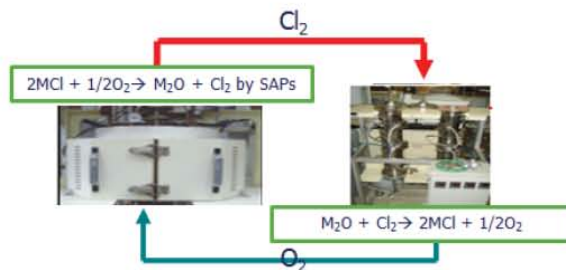


Fig. 2. Suggested process for capture & recycle of Cl by using SAP and alkali oxide.

염소제거용 물질로 알칼리 산화물을 이용할 경우 알칼리 금속염화물로 염소를 회수함과 동시에 탈염화반응에 필요한 산소를 얻을 수 있다. 흡착결럼과 같은 One-through의 방법으로 구성될 경우에는 흡착제의 반응효율이 낮으며, 회수된 흡착물질은 미반응물에 의해 전해공정의 전해질로 사용이 어려운 반면에, closed loop로 구성된 경우에는 흡착제가 금속염화물로 완전히 전환될때까

지 염소와 접촉할 수 있으며, 외부로 염소의 누출이 완전히 차단되는 장점을 가진다. Fig. 3은 100g의 LiOH가 충전된 흡착필립과 탈염화 반응장치를 이용하여 수행한 흡착제의 염소흡착전후의 실험결과를 나타낸 것이다. 흡착실험후 LiOH는 XRD결과 LiCl로 전환되는 것을 확인할 수 있었으며, TGA 실험결과 전환율은 약 96.5%임을 확인할 수 있었다.

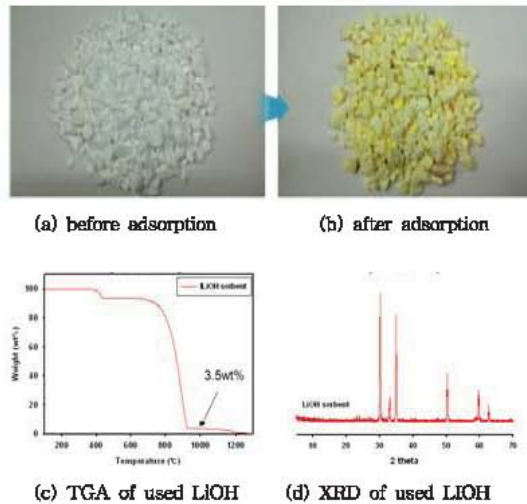


Fig. 3. Experimental results of Cl adsorption.

상기의 실험결과는 알칼리 산화물이 반응성이 높다는 점과 반응율을 95%이상 얻을 수 있는 증거로서, LiCl로 전해공정의 전해질로 사용할 수 있는 가능성을 보여주는 결과이다. 100%의 전환율을 얻기 위해서는 알칼리 다공성 흡착제가 가지는 구조적 한계성과 반응을 제어하는 변수들에 대한 평가를 통하여 새로운 형태의 다공성 흡착제를 확보하는 바람직하다.

### 3. 결론

본 연구에서는 pyrochemical process에서 배출되는 금속염화물계 방사성 폐기물 고화처리과정에서 발생되는 염소가스를 제거하고 회수할 수 있는 방법을 제안하였으며, 기초적인 실험들을 통하여 가능성을 확인하였다. 다공성 알칼리 산화물을 이용한 염소의 회수 및 금속염화물의 전해질로의 재활용은 pyrochemical process에서 추가되는 Cl의 양을 제어하여 전체 폐기물의 양을 최소화 할 수 있을 것으로 판단된다.

### 4. 참고문헌

[1] B. L. Metcalfe, I. W. Donald, "Candidate wasteforms for the immobilization of chloride-containing radioactive waste", *J. Non-Cryst. Solids.*, 348, 225(2004)

[2] M. Lambregts, S. M. Frank, "Characterization of cesium containing glass-bonded ceramic waste forms", *Microporous. Mesoporous. Mater.*, 64, 1 (2003).

[3] H. S. Park, I. T. Kim, Y. J. Cho, H. C. Eun, J. H. Kim, Stabilization/solidification of radioactive salt waste by using  $x\text{SiO}_2\text{-yAl}_2\text{O}_3\text{-zP}_2\text{O}_5$  (SAP) material at molten salt state, *Environ. Sci. Tech.*, 42, 9357-9362 (2008).