공융염 폐기물에서 순수 공융염 회수를 위한 공융염 증류 및 응축

은희철, 양희철, 조용준, 이한수, 김인태
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150-1번지
ehc2004@kaeri.re.kr

1. 서론

기존의 사용후핵연료 처리기술에 비해 핵비확산적 측면과 환경 및 경제적 측면 등에서 많은 장점을 가지고 있는 pyrochemical process(건식처리공정)는 고온의 용융염을 이용하여 금속의 U과 TRU를 분리 및 회수하는 공정으로 현재 연구가 활발하게 진행되고 있다[1-2]. 그러나 이 건식처리공정은 고방열성 또는 고방사성 핵종의 희토류 염화물들을 함유한 공융염 (LiCl-KCl eutectic salt) 폐기물을 상당량 배출하는 단점이 있다. 이 문제를 해결하기 위해 한국원자력연구원에서는 산소분산법을 이용하여 공융염내에서 희토류 핵종을 산화침전시켜 분리하는 공정을 개발하였으며, 기존의 침전촉진제를 주입하는 방법에 비해 훨씬 더 효과적임을 확인하였다[3]. 그러나 이 공정에서 발생되는 침전층에는 희토류 침전물외 약 85-90 wt%의 공융염이 함유되어 있으며, 고준위 폐기물 발생량을 최소화하기 위해서는 반드시 추가적인 분리가 필요하다. 침전층을 구성하고 있는 공융염은 희토류 침전물보다 훨씬 높은 증기압을 가지고 있어 증기압차를 이용하여 물질을 분리하는 증류방법이 효과적이다. 본 연구에서는 침전층에서 공융염을 분리 및 회수하기 위해 희토류 침전물을 함유한 공융염의 증류 및 응축특성에 대하여 살펴보았다. 이를 위해 열중량분석이 가능한 공융염 감압증류 및 응축장치를 이용하여 감압에 따른 공융염의 휘발특성을 살펴보았고, 이 때 발생되는 공융염 증기의 응축형태를 관찰하였다.

2. 실험 및 결과

본 연구에서 사용된 공융염 감압증류 및 응축장치의 개략도를 Fig. 1에 나타내었다. 이 장치는 상부에 load cell을 장착하여 공융염 증류과정에서 열적무게감량을 측정할 수 있게 하였고 공융염의 온도를 정확히 측정하기 위해 Fig. 1에 나타낸 바와 같이 thermocouple을 시료 도가니 바로 위에 설치하였다. 이 장치에서 가장 중요한 부분은 압력조절과 내부 가스의 흐름이다. 본 실험에서는 내부 가스의 흐름은 일정량으로 고정하면서 압력을 변화시키기 위해 진공펌프 앞에 바이패스밸브를 설치하여 압력을 조절할 수 있도록 하였다.

공융염 증류실험은 등온과 비등온으로 구분하여 실시하였으며 세부 실험조건을 Table 1에 나타낸 것과 같다.

공융염을 구성하는 LiCl과 KCl의 증기압 계산결과에 따르면 LiCl의 증기압이 KCl의 증기압보다 약 2배 큰 것으로 확인되었다. Fig. 2는 비등온조건하 0.5 Torr 압력에서 LiCl과 KCl 그리고 공융염의 열적감량곡선을 나타낸 것이다. 이 그래프는 앞서 언급한 것과 유사한

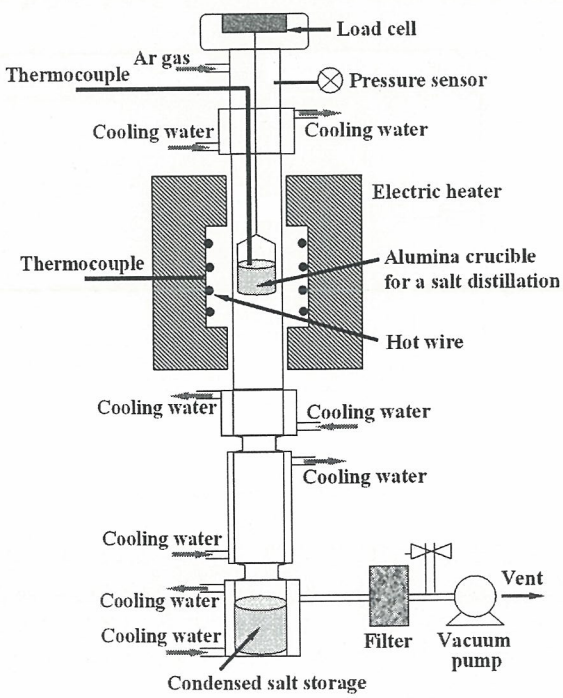

Fig. 1 열중량분석이 가능한 공융염 감압증류 및 응축장치 개략도

결과를 보임을 Table 1 Experimental conditions

	Non-isothermal	Isothermal
Temperature (°C)	500 - 1,000	
Pressure (Torr)	0.5 -10	
Heating rate (°C/min)	5	-
Sample weight (g)	20±0.5	40±0.5
Injection gas	Ar (High purity >99.999%)	

알 수 있으며 공융염은 두 염 사이에서의 감량곡선을 보이나 KCl에 근접해 있음을 알 수 있다. 공융염 증류실험에서 얻어진 열적무게감량결과를 이용하여 공융염 휘발 플럭스를 계산하였다. 먼저, 얻어진 실험값의 재현성을 확인하기 위해 등온조건과 비등온조건에서의 공융염 휘발 플럭스를 비교하였고 그 결과, 상당히 일치하였으며 얻어진 실험값들이 재현성을 가짐을 알 수 있었다. 등온조건에서 얻어진 공융염 휘발 플럭스는 감압에 의해 증류온도를 크게 감소시킬 수 있음을 확인할 수 있었으며, 0.1 g/cm^2-min의 플럭스를 얻기 위해 5 Torr에서는 950°C에서 운전해야 하나 0.5 Torr에서는 이보다 150°C 낮은 800°C에서 얻을 수 있었다.

공융염을 회수하기 위해서는 공융염 증류시 발생한 공융염 증기의 응축거동을 이해할 필요가 있다. 본 연구에서 사용된 공융염 감압증류 및 응축장치는 연속적으로 흡인하여 압력을 유지하는 장치로서 감압의 정도가 공융염 증기의 거동에 큰 영향을 미치며, 실험결과에서 그 경향을 확인할 수 있었다. 0.5Torr에서 공융염을 증류할 때는 초기에 냉각튜브 바로 위에서 응축된 염이 침적되어 있었고 이 응축염을 중심으로 thermal coagulation이 발생하여 덩어리를 형성한 후 응축염 포집용기에서 회수되었으며 일부가 필터에서 미세한 염입자 형태로 포집되었다. 이와 달리 10Torr에서 증류할 때는 장치내 유체의 흐름이 변하는 부근에서 미세한 입자의 형태로 대부분 침적하였으며 필터에 포집된 미세한 염 입자들의 양은 0.5Torr에서보다 훨씬 많은 것으로 확인되었다. 따라서 이와 같이 연속적으로 흡인하여 압력을 유지하는 장치에서는 0.5Torr 이하의 압력에서 공융염을 휘발시켜야 공융염 증기를 큰 입자의 형태로 쉽게 회수할 수 있을 것이라 판단된다.

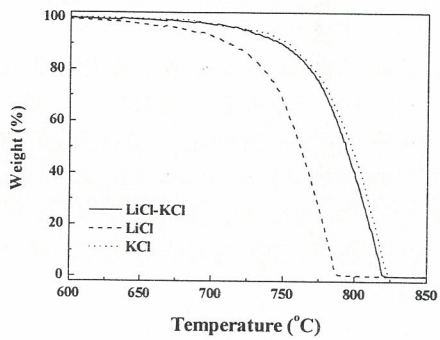

Fig. 2 Thermal weight reductions of salts (LiCl, KCl, LiCl-KCl)

3. 결론

연속적으로 진공펌프로 흡인하여 일정압력조건에서 희토류 침전물을 함유한 공융염을 감압증류 및 응축할 경우 0.5Torr 이하의 압력에서 운전함으로서 공융염의 분리는 물론 회수를 효과적으로 할 수 있을 것으로 판단된다.

참고문헌

[1] V.A. Volkovich, T.T. Griffiths, R.C. Thied, J. Nucl. Mater. 323, 49-56 (2003).

[2] M. Matsumiya, H. Matsuura, J. Eletroanal. Chem. 579, 329-336 (2005).

[3] Y. J. Cho, H. C. Yang, H. C. Eun, E. H. Kim, I. T. Kim, J. of Nucl. Sci. Tech., 43(10), 1280-1286 (2006).