

LiCl 용융염 증발 회수 장치 개발

김익수, 홍순석, 신호섭, 권선길, 허진목
 한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
 niskim@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서는 사용후핵연료로부터 우라늄 등의 유효한 성분을 회수해서 차세대 원자로인 고속로의 연료로 재활용하고 고준위 방사성폐기물의 양과 독성, 발열량을 대폭 줄임으로써 원자력 발전의 안전성과 경제성을 향상시킬 수 있는 기술인 파이로 공정 (pyroprocessing)을 연구개발 중이다[1]. 파이로 공정은 전기화학적 방법을 이용하여 산화물 사용후핵연료를 금속으로 전환시키는 전해환원 공정으로부터 시작된다[2]. 전해환원 공정에서 제조된 금속 사용후핵연료는 다음 단계인 전해정련 공정의 원료로 사용되어 고순도의 우라늄만을 선택적으로 회수하게 된다. 전기화학적 공정인 이 두 공정은 전해질 매질로서 용융염을 사용하는데, 전해환원 공정은 LiCl 용융염을 기반으로 하는 반면 전해정련 공정은 LiCl-KCl 공융염을 사용하고 있다. 따라서 두 공정간의 연계성을 강화하기 위해서는 전해환원 공정에서 제조된 금속전환체에 잔존하는 LiCl 용융염을 제거하여 전해정련 공정의 전해질 공융염 조성을 벗어나지 않게 하는 것이 중요하다. 이같은 관점에서 금속전환체에 잔존하는 LiCl 용융염을 제거하기 위하여 LiCl 용융염 증발 회수장치를 개발하고자 한다. 이를 위하여 다양한 형태의 실험 장치들을 고안 제작하여 장치의 형태에 따른 LiCl 증류 거동을 살펴보았으며, 온도 및 압력 등의 조업 변수들이 LiCl 증류 속도에 미치는 영향을 조사하였다.

2. 본론

2.1 실험장치 및 방법

용융염 증발회수 실험을 위하여 그림 1과 같은 실험장치를 제작하였다. 장치는 그림에 나타나 있는 바와 같이 LiCl 용기와 가열로, 증발용융염 분말 포집기(Receiver), 배기구 미세분말 trap 등으로 이루어져 있으며, 용융염과 접촉되는 주요

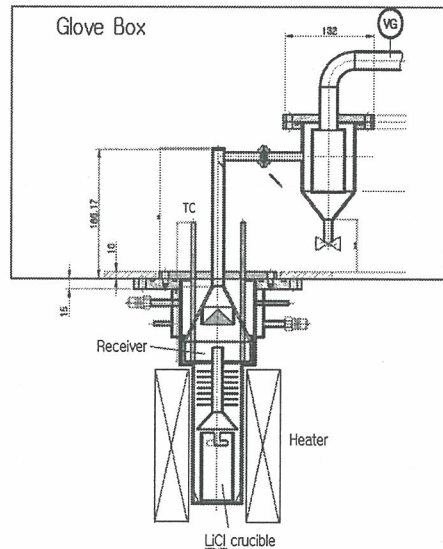


Fig. 1. Schematic of the experimental set-up.

구성품은 내식성이 강한 인코넬 재질로 제작하였고, Ar 분위기의 글로브박스 내에 설치되어 조작되므로 조립 및 해체 시의 편의성을 도모하기 위하여 가능한 간단하게 제작되었다. LiCl의 용기의 크기는 직경 5 cm, 높이 10cm이며, 이를 직경 8 cm, 높이 20 cm의 외통에 넣고 글로브박스 하단부에 조립하고 외부에 원통형의 가열로를 설치하였다. LiCl 용융염은 증발되어 증발기체 유로를 따라 냉각부로 상승하며 응축 고화되어 미세분말로 변하게 되는데 이를 포집하기 위한 receiver가 있으며, 비말동반되어 배출되는 미세분말을 포집하기 위하여 미세분말 trap을 설치하였다. 조업 온도를 측정하기 위한 열전대를 LiCl 용기와 receiver의 바닥면 두 곳에 설치했고, 진공압력계를 배기라인에 설치하여 계 내의 감압 압력을 측정할 수 있도록 하였다. 한편 LiCl 증기를 증발이 일어난 용기로부터 receiver로 운반시키기 위한 carrier gas의 공급관을 LiCl 용기 옆에 설치하고 이를 통해 Ar 가스를 공급할 수 있도록 하였다.

LiCl의 증발실험은 다음과 같은 방법으로 수행

하였다. 20~50 g의 LiCl을 용기에 넣고 장치를 조립한 후 가열을 한다. 정해진 온도에 도달하면 진공펌프를 가동하고 Ar 가스를 일정한 유량으로 공급하며 계 내를 진공상태로 유지하면서 주어진 시간동안 LiCl의 증발이 일어나도록 한다. 실험이 끝나면 장치를 해체하고 receiver와 trap에서 LiCl의 미세분말을 회수하여 무게를 측정하였다.

2.2 결과

온도 700~900℃, 압력 0.1 torr에서 LiCl의 증발실험을 수행한 결과, Ar 가스를 공급하지 않은 경우에는 receiver에 수집되는 LiCl이 전혀 없었다. 가열온도를 높혀가며 수행한 수차례의 실험에서도 receiver에 수집되는 LiCl은 없었고, 850℃ 이상의 고온에서만 receiver 하부의 가열부 내부에 LiCl의 melted crystal이 생성된 것이 관찰되었다. 이와 같은 이유는 증발된 LiCl을 회수하는 receiver의 온도가 가열부의 온도보다 훨씬 낮아서 LiCl의 용융점(615℃) 이하가 되기 때문에, 증발된 LiCl 증기가 유로를 따라 receiver로 상승하는 과정에서 응축되어 receiver로 상승하지 못하고 가열부로 하강하는 것으로 판단되었다. 증발된 LiCl 증기가 응축되지 않고 receiver로 상승하기 위해서는 유로를 통과할 때까지는 온도가 용융점 이상이 되어야 하므로 이와 같은 조건을 만족할 수 있도록 실험장치의 가열부와 receiver의 구조를 수정하였고, 수정된 장치를 이용한 실험에서는 온도 850℃ 이상에서 LiCl을 증발시켜 receiver와 trap에서 LiCl 분말을 회수할 수 있었다. 본 장치는 실험실 장치의 규모와 구조에 따른 제약이 있어 가열로를 1대만 사용하여 용융염 용기와 receiver의 온도를 서로 독립적으로 조절할 수 없었기 때문에 receiver에서 LiCl의 증기가 응축되지 않는 고온에서만 용융염 분말을 회수할 수 있었으나, 2개의 가열로를 사용하여 용기와 receiver 부분의 온도를 독립적으로 조절하게 되면 700~800℃의 온도 범위에서도 LiCl의 증발회수가 가능할 것으로 사료된다.

Carrier gas인 Ar 가스의 유량이 적을 경우에는 증발된 LiCl을 receiver에서 회수할 수 없는 반면, Ar 가스의 공급 유량이 클 경우에는 유량의 증가에 따라 LiCl 분말의 회수량도 증가하였다. 그렇지만 주어진 온도와 압력 조건에서 용융염의 증발속도는 한정되어 그 이상은 증발 회수할 수 없으므로 장치와 조건에 따라 Ar 가스의 적절한 공

급량을 선정할 필요가 있을 것으로 생각한다. Receiver와 trap에서 회수하는 LiCl 분말의 양의 비는 Ar 가스의 공급량에 따라서 약간의 차이를 보이고는 있으나 대략 7 : 3으로 나타났다.

3. 결론

파이로 공정의 전해환원 공정에서 생산되는 금속전환체에 잔존하는 LiCl 용융염의 제거를 위하여 LiCl을 증류하여 분말형태로 회수할 수 있는 적합한 장치의 구조 및 조업 조건 등을 실험을 통해 구하였다.

진공압력 0.3 torr, 온도 900℃, Ar 가스 공급유량 500 cc/min의 조건에서 LiCl의 증류속도는 0.2~0.5 g/cm² hr였으며, 이는 아래의 Hertz-Langmuir 식과 비교하면 증발계수 alpha의 값이 0.04~0.1에 해당한다.

$$M = \frac{\alpha P_i}{\sqrt{2\pi m R T}} \quad (1)$$

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] H. Lee et al., "Overview of KAERI research activities on pyroprocessing", IPRC, 2008
- [2] B. H. Park et al., "Development of an electrochemical reduction process in ACPF", IPRC, 2008.