

LiCl-KCl 과 삼염화우라늄 용융염의 액상 이송 및 펠렛 제조 경험

강희석, 우문식, 최세영, 김정국, 이한수
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
hsakang1@kaeri.re.kr

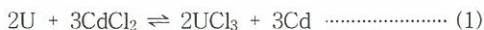
1. 서론

원자로 운전 후 사용후핵연료의 93% 정도를 차지하고 있는 다량의 U 및 TRU 금속의 회수를 위한 여러 방법 중 한국원자력연구원이 채택한 건식의 고온용융염 전해정련 조에서 사용되는 전해액은 고온에서 액상으로 유지되는 LiCl-KCl 용융염이다. 이 용융염에는 U 및 TRU 금속과 여러 불순물이 포함된 양극에서 전기화학적으로 순수한 우라늄만 선택적으로 음극에 전착 분리시키기 위하여 초기 salt 용액에 충분한 양의 우라늄 이온이 존재해 있어야 한다. 초기 salt 용액 내 우라늄 이온의 공급을 위해 한국원자력연구원에서는 고가의 CdCl₂를 대신하여 상대적으로 저렴한 Cd의 염소화반응을 거쳐 제조된 CdCl₂를 산화제로 사용하여 LiCl-KCl-UCl₃ 용융염의 제조실험을 수행하였다. 이 공정에서 제조된 LiCl-KCl-UCl₃ 용융염을 전해정련 공정에 공급하는 과정에서 LiCl-KCl-UCl₃ 용융염 제조반응기에서 반응기 하부의 Cd 층을 제외하고 수작업으로 직접 용융염을 분리시켜야하는 어려움이 있었다. 따라서 LiCl-KCl-UCl₃ 용융염의 제조반응 직후 용융온도에서 펠렛 제조 장치까지 액체 상태로 이송한 다음 펠렛 제조 장치에서 미리 크기와 모양이 정해진 몰드를 이용하여 냉각 후 펠렛 형태로 고화시킬 필요성이 있었다. 본 연구에서는 LiCl-KCl-UCl₃ 용융염 제조반응 후 용융온도에서의 용융염의 이송 및 펠렛 제조실험의 경험을 정리하였다.

2. 내용 및 결과

2.1 LiCl-KCl-UCl₃ 제조 반응

상용의 UCl₃ 또는 LiCl-KCl-UCl₃ 용융염의 확보가 곤란하므로 직접 제조해야만 하였다. 한국원자력연구원에서는 여러 가지 LiCl-KCl-UCl₃ 용융염 제조 방법 중 우라늄 금속과 CdCl₂ 산화제를 반응시켜 얻는 방법으로서



의 방법을 이용하여 LiCl-KCl-UCl₃ 용융염을 제조한 바 있고, 이 반응에 사용된 산화제 CdCl₂는 매우 가격이 높아 다량의 UCl₃ 제조 시 경제성에 문제가 있으며, UCl₃를 제조하기 위해 사용된 산화제(CdCl₂)의 반응 후 잔유물로 남는 Cd 금속은 방사능 물질에 오염된 폐기물로 남게 되는 문제점이 있기 때문에



의 반응을 이용하여 상대적으로 저렴한 Cd의 염소화반응을 거쳐 제조된 CdCl₂를 산화제로 사용하는 제조장치를 제작하여 LiCl-KCl-UCl₃ 용융염의 제조실험을 수행하였다.

2.2 용융염 이송 및 펠렛제조장치

LiCl-KCl-UCl₃ 용융염의 제조반응 직후 LiCl-KCl-UCl₃ 용융염 이송 및 펠렛 제조실험을 위해 그림 1과 같은 개념의 실험장치를 제작하였다. 장치의 구조는 그림에 보인바와 같이 크게 용융염 수직 유도관, 용융염 수평 이송관, 펠렛제조장치 연결 수직 이송관, 그리고 펠렛 제조장치의 부분으로 구성되어 있다. LiCl-KCl-UCl₃ 용융염 제조시에 사용되는 염소가스의 강한 부식성과 용융염의 수분에 대한 강한 반응성 때문에 용융염의 이송 및 펠렛 제조장치의 내부 조작용 불활성 가스(알곤) 분위기에서 이루어져야 한다. 또한 염소의 강한 부식성과 450℃ 이상의 고온에서 수행되는 점을 고려하여 장치의 내부는 모두 내부식성을 갖는 스테인레스 스틸(STS-316L) 재질을 사용하였다. 이송관의 외부는 450℃ 이상의 고온을 유지하기 위해 반응기 및 펠렛제조장치 내부로 삼입되는 부분은 튜브히터로, 외부로 노출되는 부분은 처음부터 끝부분까지 히터로 감아서 제작하였다. 용융염 펠렛 제조장치 내부는 그림 2(a)에서 나타낸 바와 같이 펠렛 제조용 몰드를 설치하였다. 몰드의 재질은 STS316, OD 90mm, T 3mm, H 250mm의 크기로 제작하였으며, 그림 2(b)에서 보인 바와 같이 몰드 내부는 펠렛의 제조 크기를 조절하

기 위한 격벽(STS316)을 설치하였다. 격벽의 맨 위쪽 중앙 부분은 격벽의 전체 높이보다 약간 낮게 제작하여 이송된 용융염이 이송관에서 공급될 때 분사의 불균형으로 몰드의 격벽에 의해 나뉘어진 네 부분의 공간 중 어느 한쪽 공간이 먼저 채워지는 경우 인접한 공간으로 넘쳐 흘러들어가서 덜 채워진 부분을 순차적으로 채워질 수 있도록 유도하였다. 용융염 이송관의 내·외부 온도를 감시 및 조절하기 위해 elbow connector 내부 및 이송관 외벽에 그림 3과 같이 열전대 및 온도조절기를 설치하였다. 한국원자력연구원에서의 감압식에 의한 이전 경험[1]에 의해 ⑦번 위치의 고온 밸브는 고온의 용융염에 노출시 조작성과 내구성에 많은 문제가 발생하여 밸브가 없는 유니온으로 대체하였으며, 감압식에 비해 이송 장치가 좀더 단순한 가압식에 의한 용융염 이송을 추구하였다.

2.3 LiCl-KCl-UCl₃ 용융염 이송 및 펠렛 제조

제작된 용융염 이송 및 펠렛 제조장치를 LiCl-KCl-UCl₃ 용융염 제조장치에 연결하고 용융염의 이송 및 펠렛 제조실험을 수행하였다. 이 실험은 고온에서 용융 및 용기 내 압력 조절에 의해 액체상태의 용융염을 고온에서 이송해야 하므로 실험장치 중 이송관의 주요 부분은 그림 1과 같이 열전대를 설치하여 실험 수행 내내 이송관의 온도를 감시 및 조절하였다. 실험조건은 LiCl-KCl-UCl₃ 용융염 제조반응기 내부를 용융염 제조 온도인 600℃로 유지하고 이송관의 내부 및 외부의 온도보정 실험을 수행하였다. 펠렛 제조장치 내부는 90℃로 유지하여 용융염 이송 후 고화시 펠렛제조 몰드로부터 LiCl-KCl-UCl₃ 염의 탈착이 용이할 수 있도록 하였으며[1], UCl₃ 제조반응기에 알곤 가스를 3~5bar로 가압하여 용융염의 이송실험을 수행하였다. LiCl-KCl-UCl₃ 용융염의 이송이 확인된 후 펠렛 제조장치 내부의 온도를 상온으로 냉각시킨 다음 그림 3(a),(b)와 같은 용융염 펠렛의 제조결과를 확인할 수 있었다. 작업자의 안전을 고려한 LiCl-KCl 용융염의 이송 실험을 수행하였고, 그 경험을 바탕으로 LiCl-KCl-UCl₃ 용융염 이송실험도 수행하였다. 위 실험결과에 기초하여 펠렛제조장치에서 격벽의 형태만 변경시킨다면 원하는 모양의 원하는 크기로 이송 후 펠렛 제조가 가능함을 확인하였다. 또한 가압식에 의한 용융염 이송 경험은 이전의 한국원자

력연구원에서 감압식 이송장치로 경험한 장치의 복잡성으로 결과되는 여러 부위에서의 문제점들을 줄일 수 있었으며, 이송관을 모듈화함으로써 이송관에서의 문제 발생 시 신속한 대체가 가능하여 이송실험 중 발생하는 여러 문제들에 대하여 신속하게 대처할 수 있음을 확인하였다.

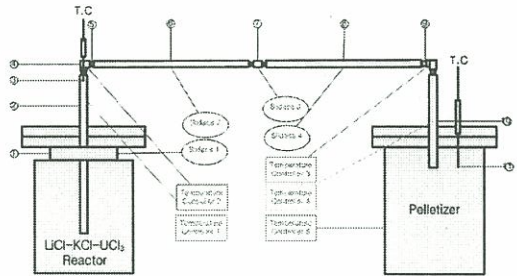


Fig. 1. Schematic diagram of LiCl-KCl-UCl₃ molten salt transfer and pelletizer

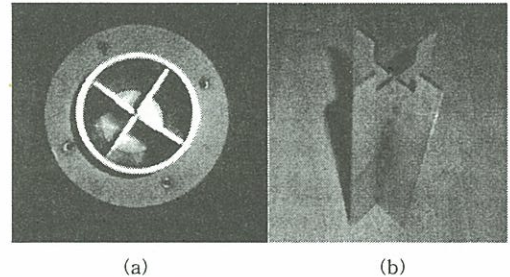


Fig. 2. LiCl-KCl-UCl₃ eutectic salt (a)pelletizing mold and (b)partition

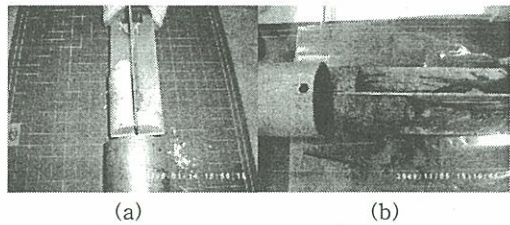


Fig. 3. Transferred pellets of (a)LiCl-KCl and (b)LiCl-KCl-UCl₃ eutectic molten salt

3. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

4. 참고문헌

[1] 서중석 외 “사용후핵연료 차세대관리공정 개발”, KAERI/RR-2773/2006 (2006)