

# 단한계 감압휘발/응축회수장치에서 온도구배 변화에 따른 회토류 침전물 함유 LiCl-KCl 공용염 증류특성

은희철, 김준홍, 조용준, 최정훈, 이태교\*, 김인태, 박근일  
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111  
 \*충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 79  
 ehc2004@kaeri.re.kr

## 1. 서론

사용후핵연료 파이로프로세싱(Pyroprocessing)은 용융상의 알칼리 염화물내에서 전기화학적 방법을 이용하여 사용후핵연료로부터 재활용이 가능한 U 및 TRU 금속을 회수하는 친환경적이고 미래 지향적인 공정이다[1-6]. 그러나 이 공정에서 고준위 핵종인 회토류 염화물을 함유한 LiCl-KCl 공용염 폐기물이 상당량 배출되며[7], 고준위폐기물 발생량을 최소화하기 위해서는 공용염 폐기물로부터 회토류 핵종들을 반드시 분리하여야 한다.

이러한 문제점을 해결하기 위해 한국원자력연구원에서는 회토류 핵종 침전/분리공정과 잔류공용염 감압휘발/응축회수공정으로 구성된 공용염 재생시스템을 개발하였으며[7], 이 시스템을 통해 회토류 핵종을 고화처리가 용이한 형태로 분리할 수 있고, 발생된 공용염폐기물의 대부분을 재활용이 가능한 형태로 회수할 수 있음을 확인하였다. 특히 회토류 침전물 함유 LiCl-KCl 공용염 감압휘발/응축회수공정은 감압조건에서 온도구배를 조성하여 회토류 침전물 함유 공용염의 휘발 및 응축을 제어하는 방법으로 lab-scale 단한계 감압휘발/응축회수장치를 통해 공용염 소실없이 거의 대부분의 공용염을 회수할 수 있는 장점을 가지고 있으며[8], 장치 내부온도 분포에 따라 공정효율을 증진시킬 수 있음을 확인하였다[9], 그러나 온도구배 제어를 통해 온도분포를 변화시킴으로써 최적의 공정효율을 얻을 수 있는 운전조건을 결정하기 위한 운전자료는 부족한 실정이다.

따라서, 본 연구에서는 lab-scale 단한계 감압휘발/응축회수장치에서 장치내부 온도구배 조성에 큰 영향을 미치는 응축챔버 상부 전기히터의 운전온도변화를 통해 장치내부의 온도구배를 변화시킴으로써 온도구배 변화에 따른 회토류 침전물 함유 LiCl-KCl 공용염의 증류특성을 살펴보았으며, 이를 통해 최적의 공정효율을 얻을 수 있는

운전조건을 결정하기 위한 운전자료를 확보하고자 하였다.

## 2. 실험 및 결과

회토류 침전물 함유 LiCl-KCl 공용염 증류를 위한 Lab-scale 단한계 감압휘발/응축회수장치의 개략도는 Fig. 1과 같다. 이 장치는 휘발된 공용염의 불필요한 침적을 최소화하고 공용염의 이동경로를 단축시키기 위해 공용염의 휘발부와 응축부를 일체형의 챔버로 제작되었다. 이를 통해 장치를 효과적으로 단순화할 수 있었다. 또한 내부압력 유지에 의한 진공펌프의 연속가동으로 발생하는 공용염의 소실과 공용염 증기의 불규칙한 응축거동을 방지하고자 공용염의 휘발이 발생되지 않는 일정온도에서부터 단한계 운전이 가능하도록 하였고, 온도구배에 의해 한 곳에서만 휘발된 염이 포집될 수 있도록 하였으며, 이러한 특징으로 인해 응축부에서 회수되지 않은 공용염들이 추후 운전과정에서 다시 회수될 수 있어 휘발된 염을 거의 대부분 회수할 수 있는 장점을 보유하고 있다.

Lab-scale 단한계 감압휘발/응축회수장치의 운전방법은 다음과 같다. 먼저, 휘발부 전기히터 온도를 일정온도까지 가열/유지하면서 일정압력까지 감압하고, 장치내부 압력이 일정압력에 도달하면 장치를 단한계로 전환하며, 이와 함께 각각의 전기히터를 운전온도까지 가열/유지함으로써 회토류 침전물을 함유한 공용염을 휘발/응축시킨다.

회토류 침전물 함유 공용염 시료는 lab-scale 회토류 핵종 침전/분리장치에서 발생된 회토류 침전층으로 80 wt% 이상이 공용염으로 구성되어 있다.

장치내부 온도구배 변화에 따른 회토류 침전물 함유 LiCl-KCl 공용염 증류특성을 살펴보기에 앞서 시료가 없는 조건(blank condition)에서 Heater-1과 2 운전온도를 960℃로 고정된 상태에서

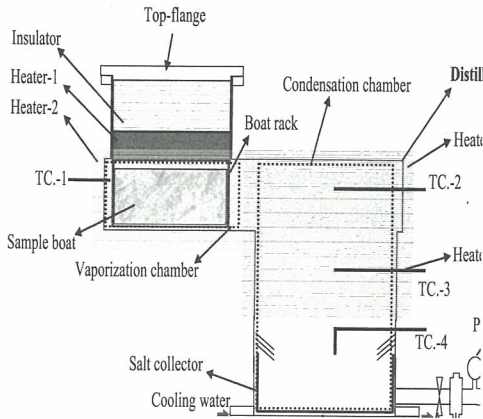


Fig. 1. A schematic diagram of the closed chamber salt distillation equipment.

Table 1. Temperature distributions in the closed distillation chamber at the termination point.

Heater-3 (°C)	TC.-1 (°C)	TC.-2 (°C)	TC.-3 (°C)	TC.-4 (°C)
800	930	733	671	610
775	930	714	656	587
750	928	694	639	570
725	928	675	622	555
700	927	655	605	539
675	926	637	590	525
650	925	618	575	511

응축챔버 상부 Heater-3(Fig.1 참조)의 운전온도 변화(650-800°C)에 따른 운전종료시점에서의 장치 내부 온도분포를 살펴보았으며, 그 결과를 Table 1에 나타내었다. Table 1에 따르면 Heater-3의 운전온도가 감소할수록 응축챔버 내부온도(TC.-2~TC.4, Fig.1 참조) 감소하였고, 온도구배는 점차적으로 증가하였다. 특히 휘발챔버와 응축챔버 상부 사이의 온도구배를 의미하는 TC.-1(Fig. 2 참조)과 TC.-2의 온도차이가 두드러지게 증가하는 것을 알 수 있었다. 이러한 온도구배의 증가는 공용염 증기의 이동속도와 응축속도를 증가시켜 공용염 증기로 인한 챔버내부 압력증가를 감쇄시킴으로써 공용염의 휘발 및 응축속도를 크게 증가시킬 수 있을 것으로 판단되었으며, Heater-3의 운전온도를 800°C와 700°C로 설정하여 희토류 침전물을 함유한 공용염을 휘발/응축한 결과, 운전온도에서의 운전시간을 약 2시간 감소시킬 수 있음을 알 수 있었다.

### 3. 결론

Lab-scale 단한계 감압휘발/응축회수장치의 특성상 온도구배를 변화시킴에 따라 운전시간을 크게 감소시킬 수 있음을 확인하였으며, 이러한 운전자료를 활용하여 고온의 운전조건에서 운전시간을 크게 단축시킬 수 있는 공정효율을 크게 증진시킬 수 있는 운전조건을 도출할 수 있을 것으로 판단된다.

희토류 침전물내 잔류공용염의 분리 및 회수를 위한 Lab-scale 단한계 감압휘발/응축회수장치에서 잔류공용염의 분리 및 회수를 효과적이고 안정적으로 수행하기 위해서는 장치 내부압력이 일정압력(10 Torr) 이하로 조성될 수 있도록 유지하는 것이 필요하였다. 이를 위해 응축부 설정온도 변화를 통해 장치내 온도분포 제어하며 희토류 침전물내 잔류공용염의 휘발/응축시험을 실시하였으며, 그 결과 잔류공용염의 높은 분리 및 회수효율(>99%)을 안정적으로 얻을 수 있었고, 휘발된 잔류공용염의 응축시간을 단축시킬 수 있음을 확인하였다.

### 4. 참고문헌

- [1] T. R. Griffiths, V. A. Volkovich, S. M. Yakimov, I. May, C. A. Sharrad, J. M. Charnock, J. Alloy and compound, 418, 116-121, 2006.
- [2] V. A. Volkovich, T.R. Griffiths, R.C. Thied, J. Nucl. Mater., 323, 49-56, 2003.
- [3] M. Matsumiya, H. Matsuura, J. Electroanal. Chem., 579, 329-336, 2005.
- [4] O. Shirai, M. Iizuka, T. Iwai and Y. Arai, Anal. Sci., 17, 51-57, 2001.
- [5] J. P. Ackerman, Ind. Eng. Chem. Res., 30, 141, 1991.
- [6] T. Kato, T. Inoue, T. Iwai, Y. Arai, J. Nucl. Mater., 357, 105-114, 2006.
- [7] H. C. Eun, Y. Z. Cho, H. S. Park, T. K. Lee, I. T. Kim, K. I. Park, H. S. Lee, J. Nucl. Mater., 408, 110-115, 2011.
- [8] H. C. Eun, H. C. Yang, Y. Z. Cho, H. S. Park, H. S. Lee, I. T. Kim, J. Radioanal. Nucl. Chem., 280(3), 643-649, 2009.
- [9] H. C. Eun, Y. Z. Cho, T. K. Lee, I. T. Kim, K. I. Park, H. S. Lee, J. Radioanal. Nucl. Chem., Online available (05. 24), 2012.