

LiCl-KCl 공용융염과 희토류 염화물의 휘발 거동

박성빈, 조동욱, 오규환, 이종현, 이운상, 황성찬, 강영호, 이한수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

sbpark@kaeri.re.kr

1. 서론

고온건식공정(Pyroprocess)는 사용후핵연료를 처리하는 대안으로 주목을 받고 있는 공정이다. 고온건식공정 중 전해정련(electrorefining)공정은 용융염을 매질로 사용하여 핵분열생성물로부터 순수한 우라늄을 전기화학적으로 회수하는 중요한 공정이다. 전해정련공정을 거치면서 우라늄이 고체전극에 전착되는데, 고체전극에 전착된 우라늄 석출물은 약 30~40 wt%의 용융염을 포함하고 있다. 이 석출물로부터 순수한 우라늄을 회수하여 금속 잉곳으로 용이하게 제조하기 위해서는 용융염을 먼저 제거하는 것이 유리하다. 전해정련공정의 우라늄 석출물에 포함된 염은 LiCl-KCl 공용융, UCl_3 및 TRU 염화물과 희토류 염화물로 구성되어 있다. 염을 구성하는 각 성분들의 증기압의 차이가 있으므로 염증류공정에서 각 성분의 휘발거동을 고찰할 필요가 있다. 이번 연구에서는 LiCl-KCl 공용융염과 희토류염화물로 이루어진 혼합염에 대한 휘발거동을 알아보려고 하였다.

2. 실험 및 결과

염증류장치는 알루미늄 증류관, 가열시스템, Ar 분위기제어시스템, 진공펌프, 휘발된 염을 포집하는 응축시스템으로 구성되어 있다. 일정량의 용융염을 염증류장치에 장입하여 가열과 진공 휘발을 통해 회분식 조업으로 염증류 과정을 수행하게 된다. 용융염의 휘발 특성은 각 성분의 증기압과 온도에 크게 의존한다. Fig.1은 LiCl, KCl, UCl_3 , $PuCl_3$ 및 희토류 염화물의 증기압을 나타낸 그림이다. $PuCl_3$ 의 경우 $SrCl_2$ 와 유사한 유사한 증기압을 나타내므로 $SrCl_2$ 를 $PuCl_3$ 의 대체물질로 생각할 수 있다. 염증류실험은 700 °C, 50 mTorr 하에서 진행되었다. 초기 염 10g을 염증류장치에 장입한 후 700 °C, 50 mTorr에서 1시간동안 증류한 후 휘발된 염을 회수하였다. 초기증류 후 도가니의 잔류염을 동일한 조업조건에서 1시간동안 증류하여 휘발된 염을 회수하였다. 그리고 다시 위와 같은 방법으로 잔류염을 1시간동안 증류하여 휘발된 염을 회수하였다. 회수된 염을 ICP 분석법을 통해 정량분석을 수행하였으며 그 결과를 Table 1에 나타내었다. 결과로부터 희토류염화물들이 LiCl-KCl 공용융염보다 증기압이 낮지만 상대적으로 양이 많은 LiCl-KCl 공용융염과 함께 공휘발됨을 확인할 수 있었다. 그리고 첫 번째 증류에서 회수된 염의 성분을 살펴보면 희토류염화물의 조성이 초기 희토류염화물의 조성보다 증가함을 알 수 있었다. 두 번째 및 세 번째 증류에서는 희토류염화물들의 조성이 1%보다 낮음을 확인할 수 있었다. 이로부터 희토류염화물들이 초기에 LiCl-KCl 공용융염과 함께 공휘발이 잘 이루어짐을 알 수 있었다. 특히 $SrCl_2$ 의 경우 다른 희토류염화물보다 증기압이 낮지만 같이 공휘발이 이루어짐을 알 수 있었다. $SrCl_2$ 의 증기압이 $PuCl_3$ 의 증기압과 유사한 특성을 보여주고 있으므로 $PuCl_3$ 도 LiCl-KCl 공용융염과 공휘발할 것이라는 것을 유추할 수 있다.

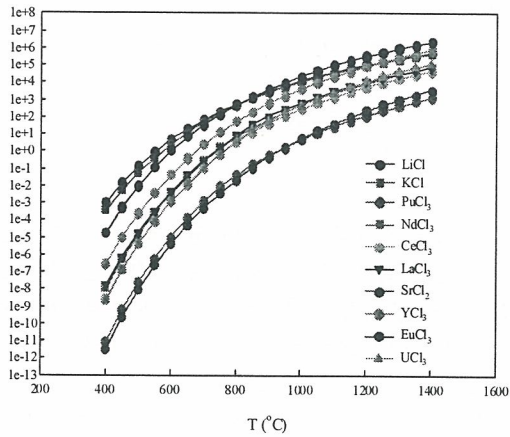


Fig.1. Vapor pressures of the elements.

Table 1. Analysis of the recovered salt after the salt evaporation at 700 °C, 50 mTorr.

Element	Initial weight percentage (%)	1st Evaporation (1 hr)	2nd Evaporation (1 hr)	3rd Evaporation (1 hr)
LiCl-KCl	96	85.7	95.5	98.1
NdCl3	1	2.3	0.7	0.4
CeCl3	1	2.3	3.0	0.6
LaCl3	1	3.3	0.5	0.7
SrCl2	1	3.4	0.3	0.2

3. 결론

본 연구에서는 LiCl-KCl 공용용염과 희토류염화물의 염증류에 대한 휘발거동을 고찰하여 보았다. 이들 혼합염들이 700 °C, 50 mTorr 조업조건에서 공휘발함을 확인할 수 있었으며 PuCl₃의 대체물질인 SrCl₂의 휘발거동을 통해 PuCl₃도 공휘발할 수 있음을 유추할 수 있었다.