

## 고온 감압 증류에 의한 LiCl 용융염 분말의 분리 회수

김익수, 오승철, 홍순석, 김종국, 임현숙, 허진복  
 한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045  
[niskim@kaeri.re.kr](mailto:niskim@kaeri.re.kr)

## 1. 서론

사용후핵연료의 안전한 관리 및 환경친화적 재 활용을 위해 연구개발 중인 파이로프로세싱은 고온의 용융염계에서 전기화학적 방법을 이용하여 산화물 사용후핵연료를 금속으로 전환시키는 전해환원 공정으로부터 시작된다[1, 2]. 전해환원 공정을 거쳐 제조된 금속 사용후핵연료는 다음 단계인 전해정련 공정의 원료로 사용되어 전기화학적 방법에 의해 우라늄, 초우라늄 및 각종 핵분열 생성물을 용해시킨 후 음극에서 고순도의 우라늄만을 선택적으로 회수하게 된다. 이와 같이 전기화학적 공정인 전해환원과 전해정련의 두 공정은 전해질 매질로서 용융염을 사용하는데, 전해환원 공정은 LiCl을 기반으로 하는 용융염을 사용하는 반면에 그 후속공정인 전해정련 공정에서는 LiCl-KCl 공융염을 사용하고 있다. 따라서 전해환원 공정에서 제조된 금속전환체에 잔류하는 LiCl 용융염을 제거하여 순수한 금속전환체만을 전해정련 공정으로 이송함으로써 전해정련 공정에서 사용하는 LiCl-KCl 공융염의 조성을 변화하지 않게 하는 것이 연속되는 두 공정의 연계성 측면에서 중요한 사항 중의 하나이다. 본 연구에서는 전해환원공정에서 제조된 금속전환체에 잔류하는 LiCl 용융염을 제거하기 위한 목적으로 용융염 증발 회수 장치를 개발하고자 하였고, 고온 감압에 의한 증류 방법을 적용한 Lab-scale 규모의 실험 장치를 제작하여 LiCl의 증류 거동을 살펴보았다.

## 2. 본론

## 2.1 실험장치 및 방법

염화리튬 용융염의 1회 처리량 4 kg을 기준으로 용융염 증발 회수 장치를 제작하였다. 장치는 그림 1에 나타난 바와 같이 증발조와 가열로, 증발용융염 분말 포집기(receiver), 콘텐서 등으로 이루어져 있으며, 용융염과 접촉되는 증발조와 용융염 용기, 리시버 등의 주요구성품은 내식성이 강한

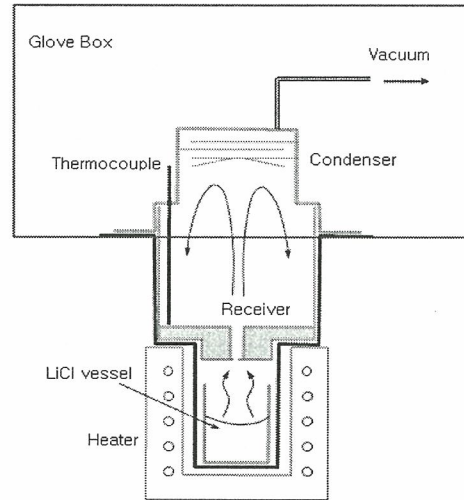


Fig. 1. Experimental equipment for molten salt distillation.

인코넬 재질로, 그 외의 구성품 들은 STS 재질로 제작하였고, 불활성분위기가 유지되는 글로브박스 내에 설치하였다. 증발조와 리시버의 사이에는 pearlite 단열층을 설치하였는데, 이 단열층이 증발조에서 상승하는 열을 차단하여 온도를 급격히 낮춤으로써 염화리튬 증기의 과포화도를 키우게 하여 염화리튬이 미세한 백색 분말로 수집될 수 있다. 리시버의 바닥면과 상판 플랜지에는 열전대를 설치하고 조업 시 온도 변화를 관찰할 수 있도록 하였다.

용융염 분말 회수장치를 이용한 용융염 증발 및 분말 회수 실험 방법은 다음과 같다. 먼저 일정량의 염화리튬 또는 혼합 용융염이 담겨진 증발용기를 증발조 안에 넣은 다음 장치를 조립하고 가열을 한다. 증발조의 온도가 상승하여 원하는 온도로 일정하게 유지되면 진공펌프를 작동하고 밸브를 열어 증발조 내에서 염화리튬이 증발되도록 한다. 리시버의 온도는 염화리튬 증기가 분말로 변할 때 발생하는 승화열에 의해 상승하게 되는데, 리시버의 온도가 상승하다가 하강하기 시작할 때가 증발이 완료된 시점이다. 증발이 완

료되면 가열로와 진공펌프의 전원을 차단하고 상온까지 냉각시킨 후 리시버에 수집된 염화리튬 분말을 회수하여 무게를 측정한다. 용융염을 취급하는 본 실험 시 글로브박스 내부의 산소 및 수분의 농도는 각각 2 ppm, 5 ppm 이하를 유지하도록 하였다.

## 2.2 결과

그림 2는 염화리튬 1 kg을 주입하고 증발조의 온도를 1000 °C로 했을 때 증발 과정에서 나타나는 가열로와 리시버, 그리고 글로브박스 하단부와 접촉되는 플랜지의 온도변화를 도시한 그림이다. 리시버의 온도는 증발 초기에는 급격히 상승하다가 점차 남아있는 용융염의 양이 줄어들면서 온도 상승 속도는 서서히 감소하게 되고, 온도가 상승하다가 하강하기 시작하는 변곡점이 용융염의 증발 완료 시점이다. 증발조의 온도는 증발 중에는 설정온도인 1000 °C에서 약간의 편차를 보이며 계속해서 변화하는 것을 볼 수 있다.

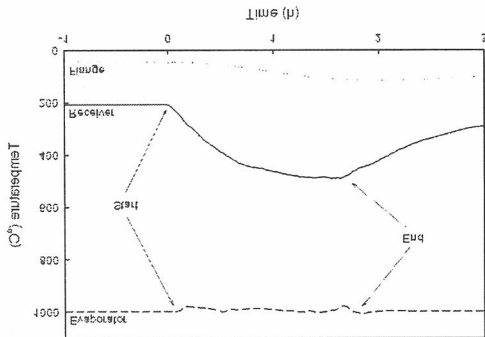


Fig. 2. Temperature Profiles.

그림 3은 실험 후 염화리튬 분말을 회수한 모습을 나타낸 사진이다. 증발된 용융염은 콘덴서에 소량이 결정형태로 도포되어 있지만, 콘덴서 상부에 약간의 충격 또는 진동을 가하면 쉽게 부스러지며 아래로 떨어져 리시버에 포집이 가능하다. 증발 시험 후 장치를 해체하여 용융염을 주입했던 용기를 꺼내어 육안으로 확인한 결과, 용기에는 용융염이 전혀 남아 있지 않았다. 즉, 용융염의 증발률은 100 %였으며, 반면에 리시버에서 회수한 용융염의 양은 주입량 대비 94 %였다. 이 무게를 그림 2의 온도곡선에 나타난 증발 시작과

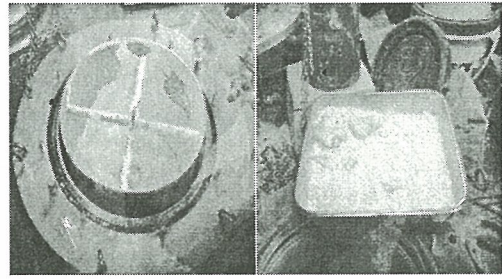


Fig. 3. LiCl powder recovered.

종료에 소요된 시간을 이용하여 용융염의 증발 속도로 환산하면 약 1 kg/hr 이다.

가열 온도 변화에 따른 LiCl 용융염의 증발 특성 비교를 위하여, 증발조의 가열온도를 800~1000 °C까지 50 °C 간격으로 변화하며 LiCl 1 kg의 증발실험을 하였다. 증발조의 가열온도 800 °C와 850 °C에서는 3시간이 경과하여도 리시버의 온도가 감소하지 않으며 증발이 완료되지 않았다. 반면에 900 °C 이상에서는 증발 초기에 리시버의 온도가 급속히 증가하고 최고점을 보인 이후에 온도가 감소한다. 또한 900 °C 이상의 온도에서는 가열 온도의 증가에 따라 리시버의 최대 온도에도달하는 시간이 급격히 빨라진다. 증발조의 온도 900, 950, 1000 °C에서 리시버의 최대 온도는 증발 시작 후 각각 2시간 20분, 1시간 10분, 1시간에서 나타나고 있는데, 증발속도가 증발조의 가열 온도 상승에 따라 기하급수적으로 빨라짐을 알 수 있다. 이와 같은 증발조의 가열 온도 상승에 따른 급속한 증발속도의 증가는 LiCl 용융염의 증기압으로부터 예견할 수 있는 결과이다.

## 3. 감사의글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

## 4. 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.