

# 희토류 침전물내 잔류공용염(LiCl-KCl) 분리 및 회수를 위한 Lab-scale 감압휘발/응축회수장치 공정해석 및 운전방안

은희철, 조용준, 이태교\*, 김인태, 박근일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

\*충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 79

[ehc2004@kaeri.re.kr](mailto:ehc2004@kaeri.re.kr)

## 1. 서론

사용후핵연료 상용처리공정인 PUREX에 비해 공정의 단순성, 핵비확산성, 2차 폐기물 발생 등의 측면에서 많은 장점을 보유하고 있는 사용후핵연료 건식처리공정, pyroprocess는 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 희토류 염화물을 함유한 LiCl-KCl 공용염 폐기물이 상당량 배출되며[7], 이러한 고준위폐기물 발생량을 최소화하기 위해서는 공용염 폐기물로부터 희토류 핵종들을 반드시 분리하여야 한다.

이러한 문제점을 해결하기 위해 한국원자력연구원에서는 희토류 침전/분리공정과 잔류공용염 감압휘발/응축회수공정으로 구성된 공용염 재생시스템을 개발하였으며[7], 이 시스템을 통해 희토류 핵종을 고화처리가 용이한 형태로 분리할 수 있고, 발생된 공용염폐기물의 대부분을 재활용이 가능한 형태로 회수할 수 있음을 확인하였다. 특히 잔류공용염 감압휘발/응축회수공정은 감압조건에서 온도구배를 조성하여 공용염의 휘발 및 응축을 제어하는 방법으로 lab-scale 단단계 감압휘발/응축회수장치를 통해 공용염 소실없이 거의 대부분의 공용염을 회수할 수 있는 장점을 가지고 있다[8]. 그러나 내부온도 및 압력조건에 따라 잔류공용염 분리 및 회수효율이 크게 달라질 수 있어 적절한 운전조건을 도출하기 위한 개선연구가 필요하다.

본 연구에서는 lab-scale 단단계 잔류공용염 감압휘발/응축회수장치에서 희토류 침전물내 잔류하는 공용염의 분리 및 회수를 위한 적절한 운전조건을 도출하고자 높은 분리 및 회수효율을 얻었던 공정조건을 분석하고 이 조건을 조성하기 위한 운전조건을 도출하였으며, 도출된 운전조건을 바탕으로 희토류 침전물내 잔류공용염 감압-

휘발/응축회수 시험을 실시하여 적절한 운전조건을 결정하고자 하였다.

## 2. 실험 및 결과

희토류 침전물 함유 LiCl-KCl 공용염 재생을 위한 Lab-scale 단단계 감압휘발/응축회수장치의 개략도는 Fig. 1에 나타내었다. 이 장치는 휘발된 공용염의 불필요한 침적을 최소화하고 공용염의 이동경로를 단축시키기 위해 공용염의 휘발부와 응축부를 일체형의 챔버로 제작하였다. 이를 통해 장치를 효과적으로 단순화할 수 있었다. 또한 내부 압력 유지에 의한 진공펌프의 연속가동으로 발생하는 공용염의 소실과 공용염 증기의 불규칙한 응축거동을 방지하고자 공용염의 휘발이 발생되지 않는 일정온도에서부터 단단계 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. 이전의 연구결과에 따르면, 공용염의 휘발은 각각의 염화물로 휘발되어 응축되기 때문에 거의 대부분이 회수되지 않는다면 회수된 염의 조성이 변화될 수 있어 재활용에 문제가 될 수 있다[8]. 그러나 본 장치에서는 내부의 냉각영역이 응축염을 회수하는 용기 바닥에만 존재하여 휘발된 염을 한 위치에서 거의 대부분 회수할 수 있기 때문에 상기의 문제를 해결할 수 있다.

본 장치에서 희토류 침전물내 잔류 공용염의 효과적인 분리 및 회수에 대해 내부압력과 온도구배가 가장 큰 영향을 미친다. 이전의 연구에서 공용염 휘발 및 응축/회수를 위한 운전과정에서 온도와 압력을 모니터링 하였으며, 휘발부의 온도 변화와 장치내 압력변화가 장치내 공용염의 휘발 및 응축현황을 파악할 수 있는 지표임을 확인하였다[9]. 이러한 온도 및 압력에 대한 모니터링 결

과에 따르며, 잔류공용염이 휘발할 때 휘발부의 온도가 약 900 °C에서 유지되었고, 잔류공용염의 휘발 및 응축과정에서 장치 내부압력은 1에서 6 Torr까지 변화되었으며, 이는 Fig. 2에서 확인할 수 있다. 이상의 공정조건에서 내부온도는 전기히터 제어를 통해 쉽게 조성이 가능하다. 따라서, 효과적인 분리 및 회수를 위해 필요한 공정조건은 내부압력을 일정압력(10 Torr) 이내로 유지하는 것이다. 장치 내부압력에 영향을 미치는 것은 잔류공용염의 휘발로 인해 발생하는 증기압이다. 따라서 이 증기압이 가능한 빨리 사라질 수 있도록 내부조건을 조성하여야 하며, 이를 위해서는 휘발된 잔류공용염이 빨리 응축될 수 있도록 제어하는 것이 필요하다. Lab-scale 단단계 잔류공용염 감압휘발/응축회수장치의 특성상 잔류공용염의 휘발 및 응축거동은 온도분포에 따라 제어가 가능하다. 따라서 온도설정조건에 따른 장치내부 온도분포 모델링을 실시하여 설정온도조건을 도출하였고, 이 결과를 바탕으로 Lab-scale 단단계 감압휘발/응축회수장치를 이용한 희토류 침전물내 잔류공용염 휘발 및 응축시험을 실시하였으며, 그 결과 99% 이상의 분리 및 회수효율을 안정적으로 얻을 수 있음은 물론 운전시간을 단축시킬 수 있는 운전조건을 도출할 수 있었다.

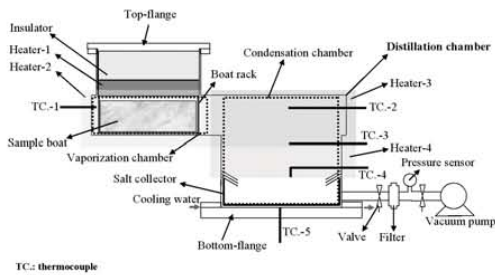


Fig. 1. A schematic diagram of the closed chamber salt distillation apparatus.

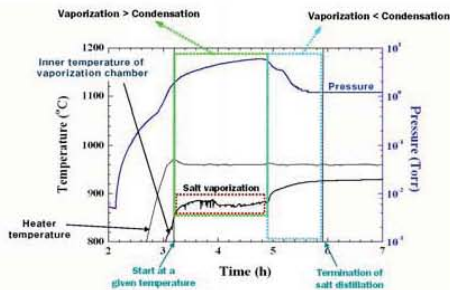


Fig. 2. Monitoring results of the temperature and pressure in the closed chamber salt distillation apparatus at an experimental condition [9].

### 3. 결론

희토류 침전물내 잔류공용염의 분리 및 회수를 위한 Lab-scale 단단계 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, S. M. Son, T. K. Lee, H. C. Yang, I. T. Kim, H. S. Lee, J. Nucl. Mater., 420, 548-553, 2012.