

## 경막 용융결정화 공정에서 온도제어변경에 의한 LiCl 염 재생을 및 핵종분리 효율특성

정진석, 조용준, 이한수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150-1

is305@kaeri.re.kr

## 1. 서론

금속 또는 산화물 사용 후 핵연료의 건식처리(pyroprocessing)를 통한 에너지 자원으로서의 이용성 또는 관리 안전성을 제고하는 연구가 전 세계적으로 활발하게 진행되고 있고, 이 과정에서 발생이 예상되는 폐기물 중 가장 문제가 되는 폐기물은 고준위 폐기물로 처리/처분 되어야하는 염 폐기물이다. 그 중 고온 전해환원공정(electrolytic reduction)은 사용 후 핵연료를 고온용융 LiCl계에서 Li<sub>2</sub>O를 이용하여 산화물 핵연료를 금속으로 전환시키게 된다. 이때 I/II족 핵종들은 염화물형태로 LiCl 염내에 존재하게 된다. 전해환원공정이 진행됨에 따라 LiCl 염내에는 고방열성 핵종인 Cs 및 Sr이 축적되어 이로 인한 발열로 더 이상 LiCl 사용이 불가능해지므로 LiCl 을 교체해야하고 고방열성 핵종을 포함하고 있는 LiCl염이 폐기물로 발생된다. LiCl 염 폐기물은 고방열성 핵종들을 포함하고 있기 때문에 모두 안정한 형태로 고화처리 되어야 하므로 최종 폐기물의 양이 크게 증가하게 된다. 따라서 I/II족 고방열성 핵종을 분리한 후 분리된 고방열성 핵종만을 고화처리하고 나머지 정제된 LiCl염은 전해환원 공정에 재사용하는 방법을 사용한다면 폐기물의 양을 획기적으로 줄일 수 있다. 따라서 본 연구에서는 경막형 용융결정화 방법을 이용하여 결정화 공정에 있어서 초기 염층 온도 설정에 있어 용융된 염층의 온도고정 방법과 히터 온도고정 방법으로 LiCl 염 폐기물 정제와 LiCl 염 폐기물 내 포함되어 있는 I/II족 핵종의 분리효율을 최적화하기 위해 연구를 수행하였다.

## 2. 실험 및 결과

본 연구에 사용한 lab-scale 경막결정화 장치를 나타내고 있다(Fig. 1). 장치는 크게 결정판 외부에 결정을 생성시키는 결정화로, 결정판 외부에 형성되어 있는 결정을 용융시켜 분리하는 용융로,

결정판 및 이동장치, 냉각공기 투입장치, 온도변화 display계, 그리고 결정화기로 구성되어 있다.

본 실험에서는 경막결정화 장치를 통해 LiCl 염 폐기물 정제와 LiCl 염 폐기물 내 포함되어 있는 Sr, Cs 분리 효율을 최적화하기 위해 초기 염층 온도 제어에 있어서 히터 온도고정 방법과 염층 온도고정 방법을 비교 실험을 하였다. 초기 염층 온도고정 제어는 히터가 염층의 온도를 제어 할 수 있는 스위치를 추가 장착 하였고, 이것으로 결정화공정 이전에 염층 온도고정을 위해 결정화기 있는 염층 온도측정계를 히터로 연결하여 일정 온도를 유지 할 수 있게 개조하였다. 이전의 히터 온도고정과 달리 결정이 생성되는 원리는 같으나, 염층 온도고정 시스템에서는 히터의 제어 속도의 오차가 생기게 되므로 히터에서 온도보정을 위해 온도가 오르고 내리고를 일정구간을 반복하여 용융점 부근에 온도를 고정하고 결정화 공정을 수행하였을 시 Fig. 3 과 같이 히터 온도고정과 다른 온도분포로 실험이 진행되었다. 이와 같이 염층 온도고정 시스템에서는 결정을 형성시킬 때 이러한 온도 변화에 따라 생성된 결정의 용융점과 결정형성을 반복하여 sweating 현상이 일어나게 된다.(Fig. 4) 염층 온도고정과 히터 온도고정 실험의 비교를 위해 각각의 조건 및 결과는 Table. 1 에 나타내었다.

결과적으로 이전의 히터 온도고정 시스템은 80% 이상의 핵종분리 효율과 60% 이상의 염회수율을 나타내었지만, 염층 온도고정 시스템은 99% 이상의 핵종분리 효율을 나타내었고, 염회수율에 있어서는 2회 실시하여 30% 미만의 염회수율 결과를 보였다.(Fig. 4)

## 3. 결론

본 연구에서는 경막결정화 장치를 이용한 결정화 공정에서 초기 염층 온도고정에 있어 용융된 염층의 온도 고정 방법과 히터 온도고정 방법으로 LiCl 염 폐기물 정제와 LiCl 염 폐기물 내

포함되어 있는 Sr, Cs 의 분리효율을 최적화하는 연구를 수행하였다. 온도고정 시스템은 용융점에 근접하게 설정하고 약 30℃ 의 오차범위를 갖으며 온도가 오르고 내림을 반복하며 시간이 지날수록 서서히 증가하는 것을 알 수 있다. 이것은 염층 온도고정 후 냉각 공기가 흐름에 따라 염층 온도가 낮아지면서 히터가 설정값을 보정하기 위해 과전압이 걸려 꾸준한 온도 상승이 일어난다고 볼 수 있다. 이로 인해 염 회수율은 높은 온도로 인해 낮아지게 되었고, 핵종분리효율의 경우 결정화기에 성형된 결정이 용융되고 고화되는 과정을 반복함으로써 순도 높은 결정이 형성이 되어 99% 이상의 핵종분율을 나타내었다. 이와 반대로 히터 온도고정의 시스템에서는 염층온도의 변화가 염층 온도고정시스템과 달리 서서히 떨어져 염 회수율은 높으나 염층 온도고정시스템과 같은 sweating 요소가 없기 때문에 핵종분리효율은 염층 온도고정시스템보다 떨어짐을 알 수가 있다.

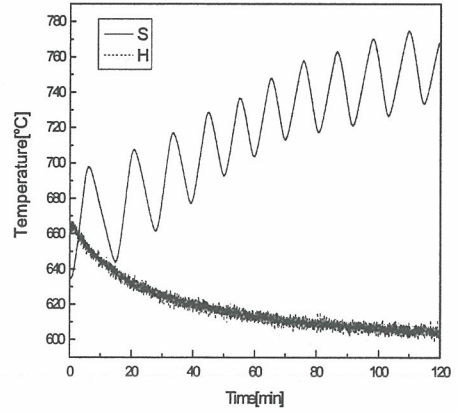


Fig. 2. Change of the molten salt temperature

Table 1. Detailed experimental conditions

	method	유량	시간
#1	히터 고정	10min--25 l/min	120min
		110min--45 l/min	
#2	고정	10min--25 l/min	180min
		170min--45 l/min	
#3	염층 고정	60min--45 l/min	60min
#4	고정	120min--45 l/min	120min



Fig. 3. The effect of the sweating factor

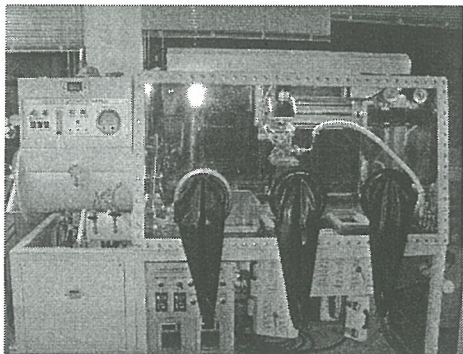


Fig. 1. Experimental apparatus(layer crystallizer)

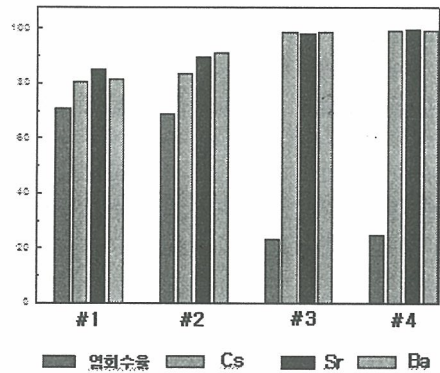


Fig. 4. Cs, Sr and Ba separation and salt recovery factor efficiency by using two method