

LiCl 염 재생을 및 핵종분리의 고효율을 위한 결정화기 모델링

정진석, 조용준, 김인태, 이한수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150-1

jins305@kaeri.re.kr

1. 서론

금속 또는 산화물 사용 후 핵연료의 pyro-processing을 통한 에너지 자원으로서의 이용성 또는 관리 안전성을 제고하는 연구가 전 세계적으로 활발하게 진행되고 있다. 우리나라가 개발하고 있는 산화물 사용 후 핵연료의 pyroprocessing 공정에서 발생이 예상되는 폐기물중 가장 문제가 되는 폐기물은 고준위 폐기물로 처리/처분 되어야 하는 염 폐기물이다. 사용 후 산화물 핵연료의 전해환원공정은 사용 후 핵연료를 고온용융 LiCl 계에서 산화물 핵연료를 금속으로 전환시킨다. 이때 U, TRU 및 희토류핵종들은 거의 대부분 산화물로 전환되지만 I족 및 II족 핵종들은 염화물형태로 염내에 존재하며 전해환원공정이 진행됨에 따라 I족 및 II족 핵종의 발열로 더 이상 LiCl 사용이 불가능해지므로 교체를 해주어야 하므로 최종 폐기물의 양이 증가하게 된다. 이러한 고방열성인 핵종들만을 분리하고 정제된 LiCl 염을 전해환원공정에 재사용하는 기술을 개발한다면 최종 처분되는 고준위 고화체의 양을 최소화 할 수 있을 뿐 아니라 염의 재생으로 인한 전해환원 공정의 경제성을 증대시킬 수 있다. 이를 위해 본 연구에서는 경막형 용융결정화 방법을 이용하여 LiCl 염 폐기물 내 포함되어 있는 핵종을 효율적으로 분리하기 위한 중요 요소인 냉각공기의 유량에 따른 결정화기의 온도의 변화를 유체유동 전산모사 프로그램인 CFX 를 이용하여 내부온도를 모사하였다.

2. 본론

2.1 실험 및 결과

본 연구에 사용한 lab-scale 경막결정화 장치의 결정화기를 나타내고 있다(Fig. 1). 결정을 생성시키며 분리효율에 영향을 미치는 결정판 내부는 최대한 균일한 온도분포를 나타낼 수 있도록 10mm 간격으로 baffle을 설치하였다.

또한 결정판 표면에서 내부 냉각공기와 결정판 외부에 생성된 결정과 액상으로 존재하는 계면을 Fig. 2 에 도식화하였고, 1차식의 heat transfer (1)(2) 와 mass transfer (3) 통해 결정판에 생성된 결정의 두께와 그에 따른 온도변화와 결정생성속도를 나타내었다.

$$\rho_l C_p \frac{\partial T_l}{\partial t} = k_l \frac{\partial^2 T_l}{\partial Z^2}, (z \geq Lt) \quad (1)$$

$$\rho_s C_{ps} \frac{\partial T_s}{\partial t} = k_s \frac{\partial^2 T_s}{\partial Z^2}, (0 \leq z \leq Lt) \quad (2)$$

$$\frac{\partial C_l}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C_l}{\partial Z^2} + v(t) \frac{\rho_s}{\rho_l} \frac{\partial C_l}{\partial Z}, (z \geq Lt) \quad (3)$$

I.C. : $T_l(Z,0)=T_s(Z,0)=T_w, Lt=0, C_l(Z,0)=C_s(Z,0)=C_0$ B.C. : when $t>0, T=T_w$ (at $Z=0$), $T=T_m$ (at $z \rightarrow \infty$)for interface of solid and melt ($Z=Lt$);

$$T_{li}(Lt,t)=T_{si}(Lt,t),$$

$$\rho_s \lambda_s \frac{\partial L_l}{\partial t} = k_s \left[\frac{\partial T_s}{\partial Z} \right] - k_l \left[\frac{\partial T_l}{\partial Z} \right], \frac{\partial L_l}{\partial t} = v(t) \quad (4)$$

위 1차식에 따라 결정화기의 표면으로부터 일정 거리에 대한 결정판 냉각시간에 따른 온도변화를 알아보았고 그에 따른 결정생성 여부를 알아보았다. 또한 시간에 따른 결정생성 두께와 결정생성속도와 결정판 온도가 500°C/550°C 일 때 시간에 따른 solid 계면의 온도변화와 냉각공기를 통한 온도변화량을 알아보았고, 그리고 냉각시간과 결정두께에 따른 LiCl의 순도 측정해 하였으며, 냉각공기의 유량에 따른 결정화기의 온도변화를 알아보기 위해 유체유동 전산모사 프로그램인 CFX 를 이용하여 내부온도를 모사하였다.

3. 결론

염층온도 680°C 일 때 결정판 온도 600°C / 400°C

에서 결정화기로부터 결정생성 길이에 대한 냉각 공기 유입 시간 변화에 따른 온도 변화를 나타내었다(Fig. 3). Fig. 3 과 같이 결정화기의 온도제어가 600°C 일 때는 낮은 냉각강도에 따라 결정이 형성되지 않았으며, 400°C 일 때 너무 낮은 냉각 온도로 결정의 순도가 떨어지는걸 알 수 있다.

결정판 온도가 500°C/550°C 일 때 냉각시간에 따른 결정생성 두께와 생성속도에서는 500°C에서 20mm 와 550°C에서는 14mm 의 두께로 결정두께는 500°C에서 더 높은 회수율을 나타내었고, 결정 생성속도 또한 500°C에서 더 빠른 결과를 나타내었으며(Fig. 4), 시간에 따른 solid 계면의 온도변화와 냉각공기를 통한 온도변화량은 $80 < \Delta T < 180$ 범위 내에서 이루어지는 것을 알 수 있었다(Fig. 5). 생성된 결정의 두께에 따른 LiCl 분리 효율을 보면, 염층온도 680°C, 결정판 온도 580°C의 조건에서 10 min에서 0.97의 순도를 나타내었고, 60 min에서 가장 높은 순도를 나타내었다(Fig. 6). 그리고 유체유동 전산모사 프로그램인 CFX 를 이용하여 냉각공기(10,20,30,40 l/min) 조건으로 내부 온도 모사를 Fig. 7 에 나타내었다.

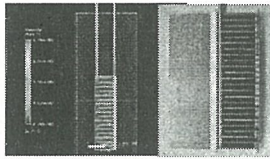


Fig. 1. Optimum crystallizer design and surface temperature with flowrate

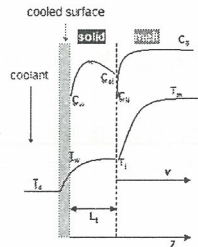


Fig. 2. Diagram of crystal generated on the crystallizer by cooling air

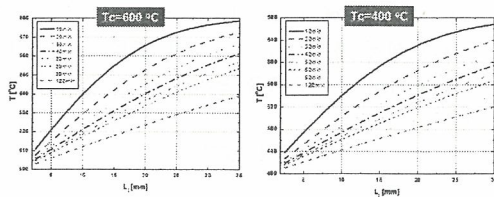


Fig. 3. Melt side temperature

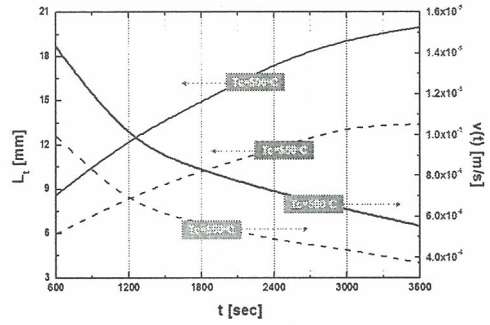


Fig. 4. Layer thickness(Lt) and crystal growth rate(v(t))

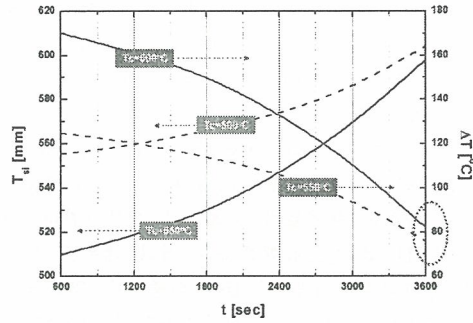


Fig. 5. Solid interface temperature(Tic) and supercooling(ΔT)

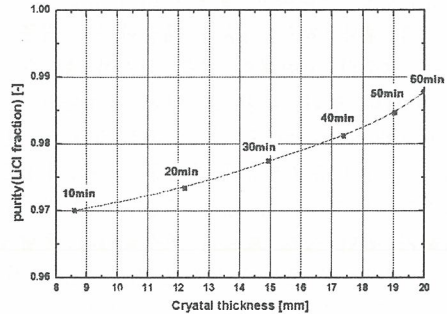


Fig. 6. Purity of LiCl crystal

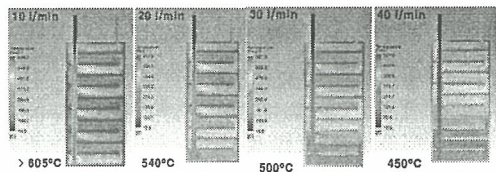


Fig. 7. Actual surface temperature with cooling air flowrate($T_{air}=25^{\circ}C, T_m=680^{\circ}C$)