

경막 용융결정화를 이용한 LiCl 염폐기물 처리공정에서의 냉각 조건에 따른 결정성장속도 및 핵종분리효율 특성

이태교, 조용준*, 은희철*, 손성모*, 김인태*, 박근일*, 황택성

충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 79

*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

tklee@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서는 사용 후 산화물 핵연료를 에너지 자원으로 재활용하기 위한 방법으로 건식기술이며 핵비확산성, 환경친화적 및 경제성이 부과된 파이로프로세싱에 대한 연구를 수행하고 있다. 파이로 프로세싱 공정중에는 여러 가지 핵분열성 핵종을 포함하고 있는 염폐기물이 발생하며 전해환원 공정에서는 고방열성인 I족 및 2족 핵종을 포함하고 있는 LiCl 염폐기물과 전해정련 및 제련 공정에서는 희토류 핵종을 포함하고 있는 LiCl-KCl 공용염폐기물이 발생한다. LiCl 염폐기물 내에는 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 연구를 수행하였으며 냉각공기의 유량 조건을 조절함으로써 전체 공정시간과 결정성장 Flux 및 결정성장속도에 따른 LiCl 염 폐기물 내 I족 및 II족 핵종의 분리 효율을 살펴보았다.

2. 본론

2.1 실험 및 결과

본 연구에서는 결정화가 일어나는 과정에서 결정성장량과 종결시간을 손쉽게 예측하기 위하여 TC의 위치를 달리하여 세군데 설치하였다. (1) 결정판의 냉각정도를 확인하기 위하여 결정판에

TC를 설치하였으며 (2)과냉각으로 인한 결정끼리의 붙음을 방지하기 위하여 결정판 사이에 TC를 설치하였다. (3)결정화 과정동안 염층의 온도변화를 관찰하기 위하여 염층에 TC를 설치하였다. LiCl 결정화 실험은 LiCl 3kg으로 수행되었으며 LiCl 내 Ba, Sr, Cs 핵종의 농도는 전해환원공정 2ton 처리 기준의 핵종농도로 실험이 이루어졌다. 모든 결정화 실험에서 Center TC의 모니터링으로 결정판사이 결정이 서로 붙지 않게 결정화공정을 종결하였다.

각 실험의 자세한 조건은 Table 1에 나타내었다. 1step 유량조건은 유량이 0L/min에서 시작하여 점차 유량이 증가하며 이러한 조건에서는 초기 낮은 유량으로 인해 시작온도에서 최초결정생성 온도까지 냉각되는데 많은 시간이 소요되며 이러한 시간은 실제 결정이 형성되어 성장하는데 걸리는 시간이 아니며 전체공정시간만 늘이는 불필요한 시간으로 최소화하여야 한다. 그리하여 본 연구에서는 냉각공기 유입 조건을 2step으로 바꾸어 두 유량 조건에 따른 핵종 분리 효율을 비교해보았다. 2step 유입조건은 초기 1min 동안 결정판과 염층의 온도를 최초결정생성온도 근처까지 낮출 수 있는 유량을 주입한 후 유량을 점차 높이며 결정화공정을 수행하는 조건이다. 유량의 증가량 또한 1step조건보다 낮게 설정하여 같은 결정화공정시간동안 더 많은 결정성장시간을 줄 수 있으며 같은 염회수량에서 더 낮은 flux와 결정성장속도 조건으로 결정성장을 시킬수 있다. Fig 2(a)에 1step과 2step 유량조건 변화에 따른 핵종 분리 효율과 실제 결정화 공정시간을 비교하였다. 유량증가 시간을 길게 줄수록 분리효율이 높았으며 1step 과 2step의 실제 공정시간을 비교해 볼 때 비슷한 공정시간 동안 핵종분리효율은 2step의 유량조건이 효율적임을 알 수 있다. Fig 2(b)는 1step과 2step 유량조건에 따른 결정성장속도와 핵종분리효율을 나타내었다. 360min→30L/min 유량과 1 min 동안은 7.5 L/min으로 이후 유량을

180min→20L/min 주입한 결과를 비교해 볼 때 360min→30L/min의 유량조건이 공정시간은 길게 주어지지만 2step의 유량조건이 초기 냉각이 빠르고 실제적인 결정성장시간을 길게 주어지므로 결정성장속도가 더 낮음을 알 수 있다. 2step의 유량조건에서도 유량증가율을 낮게 주어 결정성장속도를 낮추는 조건이 핵중분리효율이 더 높음을 알 수 있다. 이러한 결과로 LiCl 결정화공정에서 2step의 유량조건이 핵중분리효율이 높고 원하는 분리효율을 얻기 위해 소요되는 공정시간도 단축시킬 수 있다

3. 결론

경막형 용융결정화 방법을 이용하여 LiCl 염 폐기물 내 포함되어 있는 핵종을 효율적으로 분리하기 위하여 1step과 2step 유량조건 변화에 따른 핵중분리효율을 비교해보았다. 1step 과 2step의 실제 공정시간을 비교해 볼 때 비슷한 공정시간 동안 2step의 유량 조건에서 결정성장 시간이 길게 주어짐에 따라 결정성장 속도가 낮아지며 결정 생성 flux 또한 낮아져 LiCl 염 폐기물 내 포함되어 있는 핵종의 분리는 2step의 유량조건이 더 효율적임을 알 수 있다.

Table 1. The detailed experimental conditions for comparison effects of 1step, 2step flow rate condition on layer melt crystallization.

Exp. No	LiCl amount[g]	initial salt temperature	initial FP ₂ contents	flow rate condition	cooling intensity [L/min]
Ex-1 (1step)	3000	645 °C	CsCl ₂ : 0.77 g SrCl ₂ : 33.41g BaCl ₂ : 69.26 g	180min → 30L/min	0.174
Ex-2 (1step)				360min → 30L/min	0.085
Ex-3 (2step)				1min → 7.5L/min 180min → 20L/min	0.057
Ex-4 (2step)				1min → 7.5L/min 360min → 20L/min	0.029

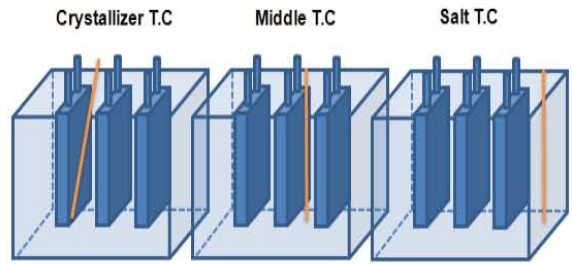
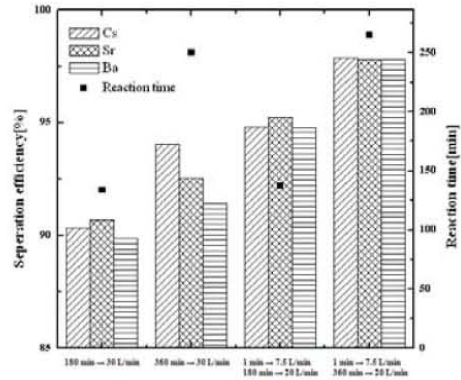
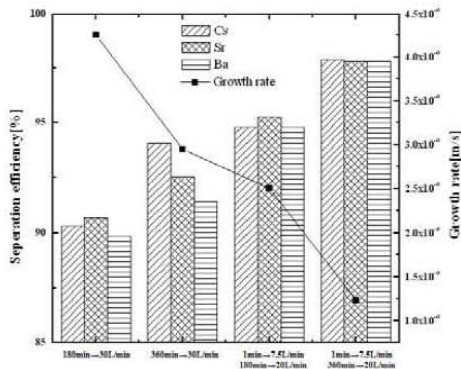


Fig. 1. Thermocouple position for crystallization monitoring.



(a) FPs separation efficiency and reaction time with flow rate different flow rate condition.



(b) FPs separation efficiency and growth rate with flow rate different flow rate condition

Fig 2. Comparison the effect of different flow rate condition.