

경막용융결정화 공정을 이용한 LiCl염폐기물내 존재하는 1, 2족 핵종의 농축/분리 특성

한대석*, 조용준, 이한수, 김인태

* 과학기술연합대학교대학원, 대전광역시 유성구 과학로 113번지

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

djianghds00@kaeri.re.kr

서론

사용 후 산화물 핵연료의 전해환원(electrolytic reduction) 공정은 사용 후 핵연료를 고온용융 LiCl계에서 Li_2O 를 이용하여 산화물 핵연료를 금속으로 전환시킨다. 이때 U, TRU 및 희토류핵종들은 거의 대부분의 산화물로 전환되지만 1족 및 2족 핵종들은 염화물형태로 LiCl염내에 존재하게 된다. 따라서 전해환원 공정이 진행됨에 따라서 LiCl 염내에는 고방열성 핵종인 Cs 및 Sr이 축적되게 되며 이로 인한 발열로 인해 더 이상 LiCl의 사용이 불가능해지므로 지속적인 전해환원공정의 운영을 위해서는 새로운 LiCl염으로 교체를 해야 하고, 따라서 고방열성 핵종을 포함하고 있는 LiCl염이 폐기물로 발생하게 된다. LiCl 염 폐기물은 고방열성 핵종들을 포함하고 있기 때문에 모두 안전한 형태로 고화처리 되어야 하므로 이로 인한 최종 처분대상 폐기물의 양이 크게 증가하게 된다. 따라서 LiCl 염 폐기물 내 포함되어 있는 I, II 족 고방열성 핵종을 분리한 후 분리된 고방열성 핵종만을 고화처리하고 나머지 정제된 LiCl염은 전해환원 공정에 재사용하는 방법을 사용한다면 기존의 단순한 "throw-away" 방법에 비하여 최종 처분에 대한 폐기물의 양을 획기적으로 줄일 수 있다. 따라서 본 연구에서는 경막형 용융결정화 방법을 이용하여 LiCl 염 폐기물 내 포함되어 있는 Sr, Ba를 분리하는 LiCl 염폐기물 정제에 대한 연구를 수행하였다.

실험 및 결과

본 실험에 사용한 경막결정화 장치의 모습을 그림 1에 나타내었다. 장치는 크게 결정관 외부에 결정을 생성시키는 결정화로, 결정관 외부에 형성되어 있는 결정을 용융시켜 분리하는 용융로, 결정관 및 이동장치, 냉각공기 투입장치 그리고 온도변화 display계로 구성되어 있다. 수분에 의한 공정장치의 부식을 최소화하기 위하여 수분이 20 ppm 미만으로 유지되는 glove box내에 모든 장치를 설치하였다. 결정화와 용융로는 3개의 결정관으로 결정생성 및 결정분리공정을 수행할 수 있으며 최대한으로 dead zone을 줄여 염분리 효율을 극대화하기 위하여 직사각형 구조로 이루어져 있다. 부식을 최소화하기 위하여 인코넬 600 재질을 이용하여 반응기를 제작하였다. 결정관에 주입되는 냉각공기 온도와 배출되는 온도를 측정하기 위하여 냉각공기투입구과 3개의 결정관 출구에 각각 TC를 설치하여 온도측정이 가능토록 하였다. 결정화공정중 온도변화는 온도신호를 data acquisition system을 이용하여 on-line으로 컴퓨터로 관찰할 수 있도록 하였다. 냉각용 공기로는 수분이 제거된 압축공기를 사용하였으며 각 결정관에 유입되는 유량을 조절하여 냉각정도 즉, 결정생성 속도를 조절하였다. 실험은 제작된 장치를 가지고 90%의 결정화율이 가능한지와 결정을 통한 Cs 및 Sr의 분리효율 측정을 목적으로 하였다. 실험은 우선 일정량의 LiCl을 결정화용기에 넣은 후 가열하여 680 °C에 도달하면 결정관을 용융염층 하부에서 2 cm 높이에 위치하게 한 후 약 20분정도를 기다려 평형이 이루어지면 일정유량의 냉각공기를 주입하였다. Table 1에 실험조건을 정리하여 나타내었다.

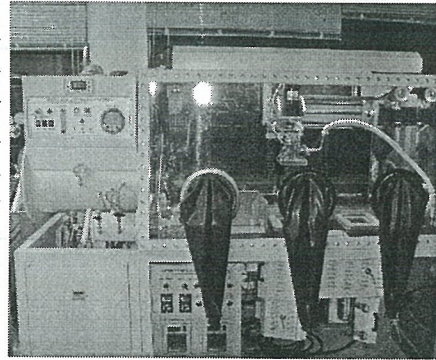


그림 1. 경막결정화 장치 사진

표 1. 경막결정화 장치를 이용한 1/2족 핵종 농축/분리 실험조건

Exp. No	LiCl [g]	초기 핵종농도 [wt%]		용융염온도 [°C]	냉각공기 유량 [L/min]
		CsCl	SrCl ₂		
#E-1	2,500	0.7	0.7	680	20~35
#E-2	3,000	1	1		30
#E-3	2,000	0.5	0.5		25

그림 2에 실험으로 얻어진 결정 flux [g/min.cm²]에 따라서 결정내 존재하는 Cs 및 Sr의 무게분율(=Kd)의 변화양상을 나타내었다. 그림에서 볼 수 있듯이 결정 flux가 약 0.2 까지는 Kd값에 큰 변화가 없었으나 0.2 이상이 되면 크게 증가하는 것을 볼 수 있다. Kd값이 증가한다는 것은 결정화로 분리해낸 LiCl 결정중에 Cs 및 Sr의 농도가 높아 낮은 분리효율을 나타낸다는 것을 의미하므로 본 장치를 이용하여 높은 핵종분리 효율을 얻기 위해서는 0.2 이하의 결정 flux 조건에서 운전이 이루어져야 한다는 것을 알 수 있다. 또한 그림 2를 보면 냉각공기 유량이 25 L/min일 경우에는 0.1 이하의 결정 flux값을 나타내었으나 30 L/min일 경우, 공용염의 높이가 높았을 때 낮은 결정 flux값을 보였고 공용염층의 높이가 낮아질수록 높은 결정 flux값을 나타내어 핵종분리효율을 감소시키는 결과를 초래한다는 것을 알 수 있다. 낮은 결정 flux로 운전을 수행할 경우 높은 핵종분리 효율을 얻을 수 있으나 1번의 결정화 조작으로 얻는 결정의 양이 작아 90% 정도의 결정화수율을 얻기 위해서는 여러 번의 결정화 조작을 하여야 하기 때문에 운전시간이 길어진다는 단점이 발생하게 된다. 따라서 경막결정화를 이용한 핵종분리공정에서 높은 핵종분리효율 및 가능한 짧은 운전소요시간을 동시에 얻기 위해서는 공용염의 높이에 따라서 즉, 공용염양에 따라서 냉각공기 유량을 변화시키는 것이 필요하다는 것을 알 수 있다. 본 실험에서 총괄적으로 얻어진 결정수율 및 그때의 핵종분리효율을 그림 3에 나타내었는데 경막결정화 I/II족 핵종분리 장치를 이용하여 90% 정도의 결정화 수율이 가능하다는 것을 알 수 있었고 높은 핵종분리 효율이 가능하다는 것을 알 수 있다.

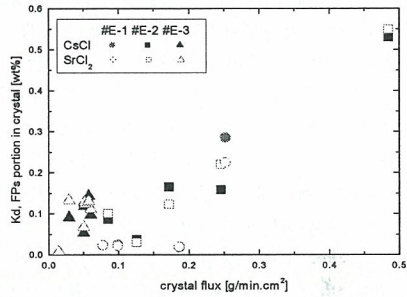
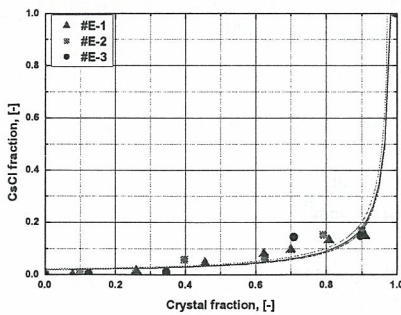
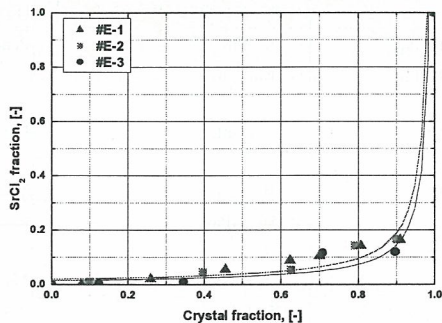


그림 2. 결정 flux에 따른 생성된 결정내 존재하는 핵종의 무게분율



(a) CsCl case



(b) SrCl₂ case

그림 3. 경막결정화 I/II족 핵종분리장치를 이용한 결정량에 따른 핵종분리 특성