

## 전해환원 발생 LiCl 염폐기물의 재생 및 핵종분리를 위한 결정화 모니터링 및 결정성장조건 변화

이태교, 조용준\*, 은희철\*, 손성모\*, 김인태\*, 이한수\*, 황택성

충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 79

\*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150-1

tklee@kaeri.re.kr

### 1. 서론

사용 후 산화물 핵연료를 에너지 자원으로 재활용하기 위한 방법으로 한국원자력연구원에서는 건식기술이며 핵비확산성, 환경친화적 및 경제성이 부과된 파이로프로세싱에 대한 연구를 수행하고 있다. 파이로 프로세싱 공정중에는 여러 가지 핵분열성 핵종을 포함하고 있는 염폐기물이 발생한다. 전해환원 공정에서는 고방열성인 1족 및 2족 핵종을 포함하고 있는 LiCl 염폐기물과 전해정련 및 제련 공정에서는 희토류 핵종을 포함하고 있는 LiCl-KCl 공용 염폐기물이 발생한다. 사용 후 산화물 핵연료의 전해환원공정은 사용 후 핵연료를 고온용융 LiCl 계에서 산화물 핵연료를 금속으로 전환시킨다. 이때 U, TRU 및 희토류핵종들은 거의 대부분 산화물형태로 염내에 존재하며 전해환원공정이 진행됨에 따라 I족 및 II족 핵종의 발열로 더 이상 LiCl 사용이 불가능해지므로 교체를 해줘야 하므로 최종 폐기물의 양이 증가하게 된다. 이러한 고방열성인 핵종들만을 분리하고 정제된 LiCl 염을 전해환원 공정에 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 한국원자력연구원에서는 경막형 용융결정화 방법을 이용하여 LiCl 염 폐기물 내 포함되어 있는 핵종을 효율적으로 분리하기 위한 연구가 이루어지고 있으며 본 연구에서는 결정화 공정에서 위치가 다른 각각의 TC(thermocouple)를 이용하여 모니터링함으로써 결정화 종결시간과 결정양을 조절할 수 있으며, 냉각공기의 유량을 조절함으로써 결정성장 Flux 및 결정성장속도에 따른 LiCl 염 폐기물 내 I족 및 II족 핵종의 분리효율을 살펴보고자다.

### 2. 본론

#### 2.1 실험 및 결과

본 연구에 사용한 lab-scale 경막결정화 장치 및 결정화기를 나타내고 있다(Fig. 1). lab-scale 경막결정화 장치는 결정화 공정이 이루어지는 결정화로와 결정화 공정 종결 후 결정판에 붙은 LiCl 결정을 다시 용융시켜 회수할 수 있는 회수로 그리고 회수된 LiCl 염을 분리해낼 수 있는 고체염 분리 장치로 이루어져 있다. 결정을 생성시키며 분리효율에 영향을 미치는 결정판 내부는 최대한 균일한 온도분포를 나타낼 수 있도록 10mm 간격으로 baffle을 설치하였으며 이러한 결정판 3개를 이용하여 실험이 수행되었다. 결정화가 일어나는 과정에서 결정양과 종결시간을 손쉽게 예측하기 위하여 TC의 위치를 달리하여 세군데 설치하였다(Fig. 2). 1. 결정판의 냉각정도를 확인하기 위하여 결정판에 TC를 붙였으며 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. 냉각공기의 유량은 90min → 30L/min, 180min → 30L/min, 360min → 30L/min으로 달리하여 실험을 수행하였다.

Fig 3은 세 군데의 다른 위치의 TC를 이용하여 결정화과정을 모니터링한 결과를 나타내었다. 결정판 TC의 온도가 605°C 부근에서 결정판에 LiCl 결정이 최초 형성되었으며 이 후 salt와 middle TC의 커브는 같은 양상을 보이다가 130min에서 middle TC의 커브가 변화되었으며 이는 시간이 지남에 따라 결정이 성장되어 130min 부근에서 두 결정판에 형성된 결정이 서로 붙는다는 것을 알 수 있었다. 결정판사이에 두 결정이 붙을 경우과냉각으로 인해 핵종분리 효율

이 낮아질 수 있으므로 그 전에 결정화를 종결시켜야한다.

결정관에 유입되는 냉각공기의 유량을 달리함으로써 결정성장 Flux 및 결정성장속도를 조절할 수 있으며 냉각공기의 유량을 90min→30L/min, 180min→30L/min, 360min→30L/min 달리하여 실험을 수행해 본 결과 Flux는 각각 0.032, 0.017, 0.011 g/min·cm<sup>2</sup> 이었으며 결정성장속도는 3.58E-06, 1.90E-06, 1.29E-06 이었다.

### 3. 결론

경막형 용융결정화 방법을 이용하여 LiCl 염 폐기물 내 포함되어 있는 핵종을 효율적으로 분리하기 위하여 세 군데의 TC 커브 변화를 관찰하였다. 결정화 과정동안 TC 커브 변화를 통하여 손쉽게 결정판사이에 두 결정이 붙는 시점과 과냉각 시점을 알 수 있으며 결정생성 양 또한 조절할 수 있다. 결정화 시간과 결정생성 양을 조절함으로써 결정성장 속도를 조절하여 핵종분리효율을 높일 수 있다.

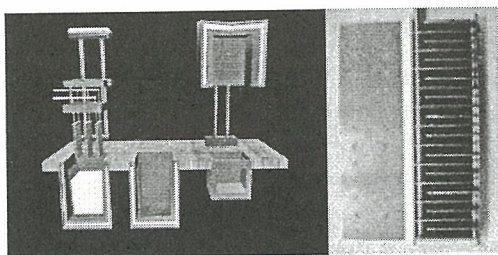


Fig. 1. LiCl crystallization apparatus and Optimum crystallizer design.

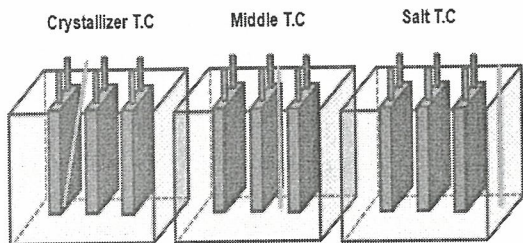


Fig. 2. Thermocouple position for crystallization monitoring.

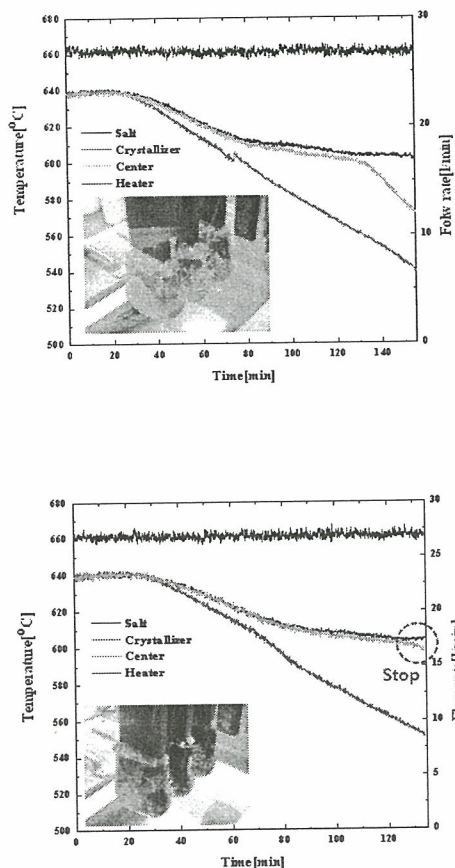


Fig. 3. Thermocouple curve changes during the crystallization process.(Flow rate:180min→30L/min)