

경막 용융결정화를 이용한 LiCl-KCl 공용염 내 핵종분리특성

이태교*, 최정훈, 은희철, 박환서, 안도희

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*tklee@kaeri.re.kr

1. 서론

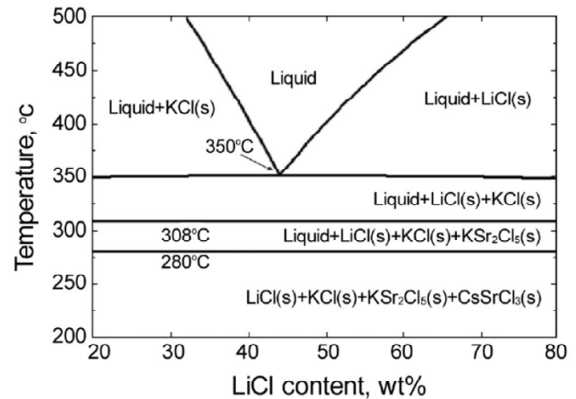
산화물 핵연료를 에너지 자원으로 재사용하기 위한 방법으로 고온의 공용염을 전해매질로 사용하는 파이로 공정은 전해환원, 전해정련 및 전해제련 공정으로 구성되어있다. 공정운전을 통해 핵종의 누적으로 인해 발생되며 전해환원에서는 LiCl이 전해정련 및 제련공정에서는 LiCl-KCl 공용염 폐기물이 발생한다. 전해환원 공정에서 발생하는 LiCl 염폐기물 내에는 고방열성 I, II 족 핵종을 포함하고 있기 때문에 모두 안전한 형태로 고화처리 되어야 하므로 이로 인한 최종 처분 대상 폐기물의 양이 크게 증가하게 된다. 따라서 LiCl 염폐기물 내 포함되어 있는 고방열성 핵종을 분리 한 후 분리된 핵종만을 고화처리 한다면 최종 처분대상 폐기물의 양을 획기적으로 줄일 수 있으며 정제된 염의 재사용을 통해 파이로 공정의 경제성 또한 증대시킬 수 있다. 이러한 목적으로 한국원자력연구원에서는 경막 용융결정화 (Layer Melt Crystallization) 방법을 이용하여 고방열성인 I/II족 핵종을 포함하는 LiCl 염폐기물의 재생에 대한 연구를 수행하고 있다[1]. 기존 연구에서 LiCl 염 폐기물 내 I, II 족 핵종이 경막결정화를 통해 효과적으로 분리/농축이 가능함을 확인하였으며 본 연구에서는 LiCl 뿐 아니라 다양한 염 내 방사성 핵종이 존재할 시 경막 결정화를 통한 핵종분리특성을 살펴보고자 하였으며 우선 LiCl-KCl 공용염 내 I, II 족 핵종이 존재할 경우 결정화를 통한 핵종의 분리/농축 특성을 살펴보았다.

2. 본론

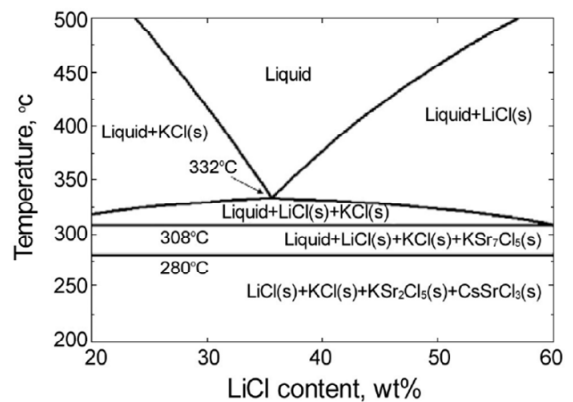
2.1 실험 및 결과

본 연구에 사용된 2 Kg/batch lab-scale 경막 결정화 장치는 두개의 결정판이 장착되어 있으며 냉각매체로 Ar을 이용하여 결정판 내부로 유입함으로써 결정판 외벽에 결정을 성장시켜 용융상태의 공용염폐기물로부터 고체상의 LiCl-KCl 공용염으로

분리하는 장치이다. 공용염 결정화 실험에 앞서 LiCl-KCl 공용염내 I, II 족 핵종이 존재할 시 결정화 공정이 가능한 온도영역의 확인을 위하여 Factsage를 이용하였으며 상평형도를 Fig. 1에 나타내었다. Fig. 1(a)에 보이는 바와 같이 공용염내 Cs과 Sr이 염화물로 각 1wt% 존재할 경우 308-350°C의 온도영역에서 LiCl-KCl 공용염을 결정화를 통해 분리가 가능함을 알 수 있으며 공용염 결정의 형성으로 인해 결정화 공정 중 공용염 내 핵종의 농도가 높아지더라도 Fig. 1(b)와 같이 308-332°C의 결정화 가능 온도영역이 존재함을 알 수 있다.



(a) Eutectic(LiCl-KCl) salt(98wt%)-CsCl(1wt%)-SrCl₂(1wt%)



(b) Eutectic(LiCl-KCl) salt(80wt%)-CsCl(10wt%)-SrCl₂(10wt%)

Fig. 1. Phase diagram of LiCl-KCl-CsCl-SrCl₂ system.

결정화 공정에서 결정성장속도에 따라 생성되는 결정은 결정 내 핵종 불순물의 분포가 달라지며 이러한 결과로 성장속도에 따른 분리효율의 차이 및 회수된 결정의 순도차이를 보이게 된다. 이러한 결정성장 속도에 따른 공용염 결정화의 분리 특성을 살펴보고자 LiCl-KCl 공용염(45.2:54.8) 2Kg을 이용하여 결정화 공정을 수행하였으며 투입된 핵종은 BaCl₂, SrCl₂, CsCl 각 1wt%씩 투입되었다. 냉각매체로 이용한 Ar의 유량증가율을 0.1, 0.05, 0.025L/min으로 달리하여 결정화 공정을 수행하였으며 자세한 실험조건과 결정생성량, 결정성장속도를 Table 1에 나타내었다. 각 공정마다 생성되는 결정생성량을 비슷한 수준으로 유지하기 위하여 결정판 사이에 설치된 thermocouple을 모니터링하여 결정화 공정을 종결하였다. 유량증가율이 낮을수록 전체 공정시간 및 결정성장시간이 길게 주어지며 이로 인해 결정성장속도는 점차 낮아지게 된다. 이러한 결정성장속도 차이는 핵종분리효율의 차이를 발생시키며 결정성장속도가 낮을수록 더 높은 핵종분리효율을 보였다.

을 확인하였다. 세부적인 공정조건 도출을 통해 고순도의 공용염 회수 및 안정적인 핵종 분리 기술을 확보할 수 있을 것이라 판단된다.

4. 참고문헌

- [1] Y. Z. cho, J. S. Jung, H. S. Lee, I. T. Kim, "Reuse technology of LiCl salt waste generated from electrolytic reduction process of spent oxide fuel", J. Kor. Rad. Waste Soc., Vol. 8(1), 71-77, 2010.

Table 1. Crystal growth condition of layer-melt crystallization for LiCl-KCl eutectic salt purification

Cooling condition	Operation #	Time [min]	Growth time [min]	Recovery Amount [g]	Growth rate [g/min]
1 min → 5 L/min	1 st	128	58	356.68	6.15
300 min → 35L/min					
Cooling intensity :					
0.1 L/min	2 nd	140	63	379.23	6.02
1 min → 5 L/min	1 st	205	87	377.46	4.34
300 min → 20L/min					
Cooling intensity :					
0.05 L/min	2 nd	211	91	354.12	3.89
1 min → 5 L/min	1 st	343	141	314.73	2.23
600 min → 20L/min					
Cooling intensity :					
0.025 L/min	2 nd	359	148	329.30	2.23

3. 결론

경막 용융 결정화를 이용한 LiCl-KCl 공용염 결정화 공정을 통해 기존의 LiCl 뿐 아니라 LiCl-KCl 공용염 내 I, II 족 핵종이 포함된 염폐기물 조건에서도 핵종 농축 및 정제된 공용염의 회수가 가능함