

## Reuse Technology of LiCl Salt Waste Generated from Electrolytic Reduction Process of Spent Oxide Fuel

### 전해환원공정발생 LiCl 염폐기물 재생기술

Yung-Zun Cho<sup>1)</sup>, Jin-Seok Jung, Han-Soo Lee and In-Tae Kim

Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeok-daero, Yuseong-gu, Daejeon

조용준<sup>1)</sup>, 정진석, 이한수, 김인태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

(Received December 18, 2009 / Revised March 24, 2010 / Approved March 29, 2010)

#### Abstract

Layer crystallization process was tested for the separation(or concentration) of cesium and strontium fission products in a LiCl waste salt generated from an electrolytic reduction process of a spent oxide fuel. In a crystallization process, impurities (CsCl and SrCl<sub>2</sub>) are concentrated in a small fraction of the LiCl salt by the solubility difference between the melt phase and the crystal phase. Based on the phase diagram of LiCl-CsCl-SrCl<sub>2</sub> system, the separation possibility by using crystallization was determined and the molten salt temperature profile during layer crystallization operation was predicted by using mathematical calculation. In the layer crystallization process, the crystal growth rate strongly affects the crystal structure and therefore the separation efficiency. In the conditions of about 20-25 l/min cooling air flow rate and less than 0.2 g/min/cm<sup>2</sup> crystal flux, the separation efficiency of both CsCl and SrCl<sub>2</sub> showed about 90 % by the layer crystallization process, assuming a LiCl salt reuse rate of 90 wt%.

**Key words** : pyroprocessing, LiCl salt waste, reuse, Cs/Sr separation, layer crystallization

#### 요 약

경막결정화를 이용한 산화물 사용후연료의 전해환원 공정에서 발생하는 LiCl 염폐기물 내 포함되어 있는 Cs 및 Sr을 분리(농축)에 대한 실험을 수행하였다. 결정화 공정에서 Cs 및 Sr과 같은 불순물들은 불순물들의 용융염상 및 결정상에 대한 용해도가 차리로 분리되어 최종적으로 작은 양의 LiCl 용융염내에 농축된다. 본 연구에서는 LiCl-CsCl-SrCl<sub>2</sub> 계에 대한 고체-액체 상평형도를 통해 결정화를 통한 분리가능성을 파악하였으며 열전달방정식의 계산을 통해 경막결정화 운전중 LiCl 용융염상의 온도분포를 예측할 수 있었다. 경막결정화 공정에서 결정성장 속도는 분리효율에 큰 영향을 미쳤으며 90%의 LiCl 재생율을 가정할 경우 20-25 l/min의 냉각속도 그리고 0.2 g/min · cm<sup>2</sup>보다 작은 결정성장 속도조건에서 각각의 Cs 및 Sr에 대하여 90% 정도의 분리효율을 나타내었다.

**중심단어** : 파이로공정, LiCl 염폐기물, 재생, Cs/Sr 분리, 경막결정화

1) Corresponding Author. E-mail : choyj@kaeri.re.kr

### I. 서론

산화물 사용후연료를 에너지 자원으로 재활용 하기위한 방법으로 한국원자력연구원에서는 건식기술이며 핵비확산성, 환경친화적 및 경제성이 부과된 파이로공정(pyroprocess)에 대한 연구를 수행하고 있다[1]. 산화물 사용후연료의 파이로공정은 산화물 사용후연료를 금속으로 전환하는 전해환원공정, 환원된 금속체에서 U와 TRU 및 희토류 원소를 회수하는 전해정련 및 전해제련 공정으로 구성되는데 공정중에는 여러가지 핵분열성 원소를 포함하고 있는 염폐기물이 발생한다[2]. 즉, 전해환원 공정에서는 고방열성인 I족 및 II족 핵종을 포함하고 있는 LiCl 염폐기물과 전해정련 및 제련 공정에서는 희토류 핵종을 포함하고 있는 LiCl-KCl 공용염폐기물이 발생한다. 이러한 염폐기물은 모두 안정한 형태로 고화처리 되어 최종처분 되어야 하기 때문에 염폐기물의 최소화는 전체적인 파이로공정의 환경친화성 뿐만 아니라 경제성 측면에 있어서도 매우 중요한 요소가 된다.

파이로공정에서 발생하는 LiCl 및 공용염(LiCl-KCl) 폐기물의 최소화는 각각의 염폐기물내에 포함되어 있는 핵종만을 분리하여 고화처리하고 핵종이 분리된 정제된 염은 상위 공정에 다시 사용하는 기술을 통해서 가능하다. 현재 국제적으로 미국, 유럽연합 등의 원자력 선진국을 중심으로 염폐기물 처리에 대한 연구가 활발하게 이루어지고 있으며 주로 공용염을 대상으로 하고 있다. 이는 미국, 유럽연합 등에서는 사용후 금속핵연료를 이용하기 때문으로 이 경우 사용후연료를 금속으로 전환시키는 전해환원 공정이 필요가 없고 전해환원 공정만이 사용되기 때문이다. 공용염폐기물의 처리를 위해서 즉, 공용염내 존재하는 핵종분리를 위하여 탄산화물과 같은 침전제를 이용하는 침전제 첨가법[3], 제올라이트를 이용한 이온교환법[4] 그리고 산소분산을 이용하는 방법[5]등과 같은 기술개발 연구가 진행되고 있다. 그러나 LiCl 염폐기물에 존재하는 고방열성인 I족 및 II족 핵종의 분리에 대한 연구는 거의 이루어지지 않고 있는 실정이다. 특히, 고방열성인 I족 및 II족 핵종을 포함하고 있는 LiCl 염폐기물의 경우 용융온도가 610℃로 고온이어서 제올라이트에 의한 이온교환 방법을 적용할 경우 고온에 의한 제올라이트 구조붕괴에 의해 I/II족 핵종에 대한 이온교환이 불가능하며, Cs 및 Sr과 같은 I/II족 핵종은 LiCl 용융염에 불용성인 침전물로서의 반응성이 매우 낮을 뿐만 아니라 만약 침전물이 형성되더라도 그 침전물 자체가 LiCl 용융염에 용해도를 가지기 때문에 침전물 형성에 의한 침전분리도 불가능하여 공용염폐기물 처리에 이용되는 기술을 적용할 수 없기 때문에 LiCl 염폐기물 처리를 위한 대체기술 개발은 매우 시급한 실정이라 할

수 있다. 따라서 본 연구에서는 결정화(crystallization)공정의 한 종류인 경막결정화(layer crystallization) 방법을 이용하여 LiCl 염폐기물내에 존재하는 Cs 및 Sr을 분리하고자 하였다. 즉, 경막결정화를 이용하여 LiCl 염폐기물에 포함되어 있는 Cs 및 Sr을 소량의 LiCl에 농축시켜 분리하는 LiCl 염폐기물 정제에 대한 연구를 수행하였다.

### II. 실험장치 및 방법

본 연구에서 사용된 경막결정화 장치는 Fig.1에서 볼 수 있듯이 크게 결정판 외부에 결정을 생성시키는 결정화로, 결정판 외부에 형성되어 있는 결정을 용융시켜 분리하는 용융로, 결정판 및 이동장치, 냉각공기 투입장치 그리고 온도변화 출력장치로 구성되어 있다. 결정화 운전 중 수분에 의한 공정장치의 부식을 최소화하기 위하여 냉각공기 투입장치를 제외한 모든 부분은 수분이 수십ppm 미만으로 유지되는 글로브상자 내에 설치하였다. 결정화로와 용융로는 결정판을 이용한 결정생성 및 결정분리공정을 수행할 수 있으며 최대한 사각(dead zone)을 줄여 결정화에 의한 염분리 효율을 극대화하기 위하여 직사각형 구조로 제작하였고 내부식성을 증대시키기 위하여 Inconel-600 재질을 이용하여 반응기를 제작하였다. LiCl의 결정화를 위하여 3개의 판형 결정판을 사용하였으며 결정판 내부는 최대한 균일한 온도분포를 나타내도록 하기 위하여 10mm 간격으로 방해판을 설치하여 결정판내에서 냉각공기의 흐름을 유도하였다. 결정판 내부에서 냉각공기는 최하단에서 토출되는데 이 경우 결정판의 하부에서만 결정이 성장되는 현상이 발생하게 된다. 이러한 현상을 줄이기 위하여 수직으로 2곳에서 냉각공기가 토출되도록 하였다. 결정판 외부의 부식은 결정판 표면에 형성되는 결정생성을 저하시킬 수 있기 때문에 부식을 최소화하기 위하여 결정판은 Inconel-625

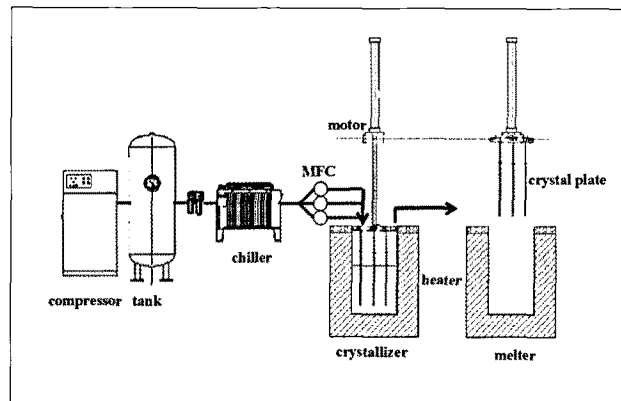


Fig. 1. Schematic diagram of experimental apparatus(layer crystallizer).

재질을 이용하여 제작하였다. 결정화 공정에서는 결정이 생성되는 특성을 시각적으로 관찰 할 수 없으므로 본 연구에서는 결정판으로 유입/유출되는 냉각공기의 온도변화를 통해 결정 생성 특성을 파악하고자 하였으며 이를 위하여 결정판의 입/출구에 열전대를 설치하고 데이터 획득장치(data acquisition system)를 이용하여 공정중의 온도변화를 실시간으로 관찰할 수 있도록 하였다. 냉각용 공기로는 수분이 제거된 압축공기를 사용하였다. 결정화에서는 냉각강도(cooling intensity)를 조절하는 것이 매우 중요한데 냉각공기의 온도를 변화시키는 것이 어려우므로 각 결정판에 유입되는 유량을 조절하여 냉각 정도 즉, 결정생성 속도를 조절하였다.

전해환원 공정에서 발생하는 LiCl 염폐기물내 포함되어 있는 I/II족 핵종을 모사하기 위해 CsCl 및 SrCl<sub>2</sub>를 사용하였고 CsCl 및 SrCl<sub>2</sub>의 분리효율 및 결정화율 특성에 대한 실험을 수행하였다. 실험은 우선 일정량의 LiCl을 결정화용기에 넣은 후 가열하여 680℃에 도달하면 결정판을 용융염층 하부에서 2cm 높이에 위치하게 한 후 약 20분정도를 기다려 평형이 이루어지면 일정유량의 냉각공기를 주입하였다. 결정화 운전 중 시간에 따른 냉각판 출구온도 및 용융염 온도를 실시간으로 관찰하여 공융염의 온도가 610℃이하가 되거나 냉각판 출구 온도의 변화가 더 이상 발생하지 않았을 때 냉각공기 주입을 중지하고 결정판을 용융염층에서 들어낸 후 이를 650℃로 가열되어 있는 용융로에 주입하여 결정판 외부에 형성되어 있는 결정을 용융/분리하였다. 용융/분리된 LiCl은 glove box 외부로 반출하여 냉각시킨 후 무게를 측정하고 약 2,000ml의 증류수에 전체를 용해킨 후 원자흡광분석기(Atomic Absorption Spectrometer)를 이용하여 결정내 포함되어 있는 Cs 및 Sr의 농도를 측정하였다. 이러한 조작을 수차례 반복하여 용융염층의 높이가 낮아 더 이상 결정이 불가능할 때 까지 결정화조작을 수행하였다. Table 1에 상세한 실험조건을 정리하여 나타내었다.

### III. 결과 및 고찰

결정화를 이용하는 분순물의 분리공정은 용융물에 포함되어 있는 불순물의 용융상(melt phase)과 고상(solid phase)간의 용해도차를 이용하는데 용융물의 결정화 과정

에서 용융물내에 존재하는 불순물의 용해도 차이를 이용한 다. 즉, 결정화가 진행됨에 따라서 용융상내 존재하는 불순물들은 고상이 아닌 용융상에 존재하게 되며 이를 이용하여 용융물의 정제가 가능하다. 하지만 결정과정중에 결정이 형성되는 온도와 용융물상에 포함되어 있는 불순물의 농도에 따라서 불순물들간 혹은 불순물과 용융물간의 화합물이 형성될 수 있고 용융물상과 공융(eutectic)을 형성할 수 있으므로 혼합계내에 포함되어 있는 불순물을 결정화를 이용하여 분리하기 위해서는 이러한 정보가 사전에 반드시 파악되어야 한다[11-13]. 결정속에 포함된 불순물의 종류는 열역학적인 영향에 의한 불순물과 반응속도론적 영향에 의한 불순물로 분리할 수 있다. 반응속도론적 영향에 의한 불순물은 결정화 공정중에서 운전특성에 의해 결정속에 내포되는 불순물로 결정화 과정에서 결정성장 속도, 물질전달 속도 등 kinetic 변화에 의해 제거되거나 최소화 될 수 있다[6,7]. 하지만 열역학적 불순물의 경우 적용되는 계의 고유한 고-액 상평형에 의해 결정되는 것으로 제거가 어렵기 때문에 결정화를 이용한 LiCl염 정제공정의 가능성 및 대략적인 운전조건(냉각온도조건)을 예측하기 위해서는 LiCl-CsCl-SrCl<sub>2</sub> 계의 고-액 상평형도에 정보가 반드시 필요하다. 따라서 본 연구에서는 LiCl염내 CsCl 및 SrCl<sub>2</sub>가 포함되어 있을 때 온도 및 이들 농도변화에 따른 고-액 상평형특성을 Factsage software[8]를 이용하여 파악하였다.

LiCl염내 존재하는 SrCl<sub>2</sub>의 농도가 2wt%일 때의 상평형도를 CsCl의 분율에 따라서 Fig.2 에 나타내었다. 예를 들어 CsCl의 농도가 5 wt%라고 할 경우 LiCl의 용융온도(610 ℃)에서 약 380℃까지의 온도범위에서 존재하는 것은 고체상태의 LiCl과 액체상태로 존재하는 나머지 핵종들이나 380℃에서 320℃의 범위에는 고체상태로 존재하는 화합물은 순수한 LiCl 및 CsSrCl<sub>3</sub>이고 이보다 낮은 온도조건에서는 액상으로 존재하는 화합물은 없고 모두 고체상태인 LiCl, LiCs<sub>2</sub>Cl<sub>3</sub> 그리고 CsSrCl<sub>3</sub>이 존재하게 된다. 따라서 만약 이러한 용융혼합물을 380-610℃의 온도조건에서 냉각시킨다면 결정화를 통해서 순수한 LiCl을 고체상태로 얻을 수 있게 되므로 결정화를 통한 Cs 및 Sr의 농축·분리가 가능하다는 것을 의미한다. Fig. 2(b)를 보면 SrCl<sub>2</sub>의 농도가 증가하면 이러한 순수한 LiCl 결정을 얻는 온도범위는 줄어들다는 것을 알 수 있다. 예를 들어 SrCl<sub>2</sub>가 10 wt%이고 CsCl이 20 wt%일 경우 결정화공정을 이용한 Cs 및 Sr의 농축·분리가 가능한 온도범위는 최소 430℃ 정도로 낮은 SrCl<sub>2</sub>의 농도에 비해 온도범위가 줄어들다는 것을 알 수 있다. Fig. 2에서 볼 수 있듯이 결정화를 이용한 핵종분리가 불가능한 Cs/Sr 농도, 즉 Cs 및 Sr과

Table 1. Detailed experimental conditions

Exp. No	LiCl [g]	initial FPs contents [wt%]		molten salt temperature [°C]	flow rate of cooling gas [l/min]
		CsCl	SrCl <sub>2</sub>		
#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

LiCl이 공융을 형성하는 농도는 SrCl<sub>2</sub>가 2wt%일 경우 CsCl의 농도가 약 74wt%인 경우이고 SrCl<sub>2</sub>가 10wt%인 경우는 CsCl의 농도가 약 65wt%인 경우로 전해환원공정에서 발생하는 LiCl 염폐기물의 처리관점으로 볼 때 전혀 영향을 받지 않는 농도범위 이므로 전해환원 공정에서 발생하는 LiCl 염폐기물 내 포함되어 있는 Cs 및 Sr을 결정화공정을 이용하여 농축·분리하는 것은 전혀 문제가 되지 않는다는 것을 알 수 있다.

냉각공기와 LiCl 용융염의 계면에서 냉각공기 온도에 따라 시간 및 거리에 따른 LiCl염의 온도분포를 예측하게 되면 결정생성 특성을 대략적으로 예측할 수 있다. 계면에서부터 용융염 쪽으로의 거리(x) 및 시간(t)에 따른 온도분포 T(x, t)는 식(1)과 같은 열전달 방정식(heat transfer equation)으로 표현할 수 있다[6].

$$\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} = \frac{1}{D} \frac{\partial T}{\partial t} \quad \dots\dots\dots (1)$$

식(1)에서 초기조건은 T(x, 0)=T<sub>i</sub> 이고 경계조건은 t > 0

에 대하여 T(0, t)=T<sub>0</sub>이다. 여기서 D는 열확산도(thermal diffusivity), T<sub>i</sub>는 초기 LiCl염 온도 그리고 T<sub>0</sub>는 냉각공기의 온도를 의미하며 LiCl 용융염의 열확산도 값으로는 1.79 × 10<sup>-7</sup> m<sup>2</sup>/s를 사용하였다[14].

식(1)의 해는 식(2)와 같으며 식(2)에서 Gauss의 오차함수(error function)은 식(3)으로 정의된다[9].

$$\frac{T(x, t) - T_0}{T_i - T_0} = \text{erf} \frac{x}{2\sqrt{Dt}} \quad \dots\dots\dots (2)$$

$$\text{erf} \frac{x}{2\sqrt{Dt}} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{x/2\sqrt{Dt}} e^{-v^2} dv \quad \dots\dots\dots (3)$$

Fig. 3에 식(1)을 이용하여 계산한 LiCl 용융염의 온도분포 결과를 냉각공기와 LiCl 용융염의 온도차(ΔT) 및 냉각공기-LiCl용융염간의 계면에서부터 용융염으로의 거리(x)에 따라 나타내었다. Fig. 3(a)는 50분 후, 즉 냉각시간이 50분 경과하였을 경우의 온도분포를 나타내었는데 ΔT가 40℃이 하일 경우에는 모든 거리에서 용융염의 온도가 LiCl 용융점

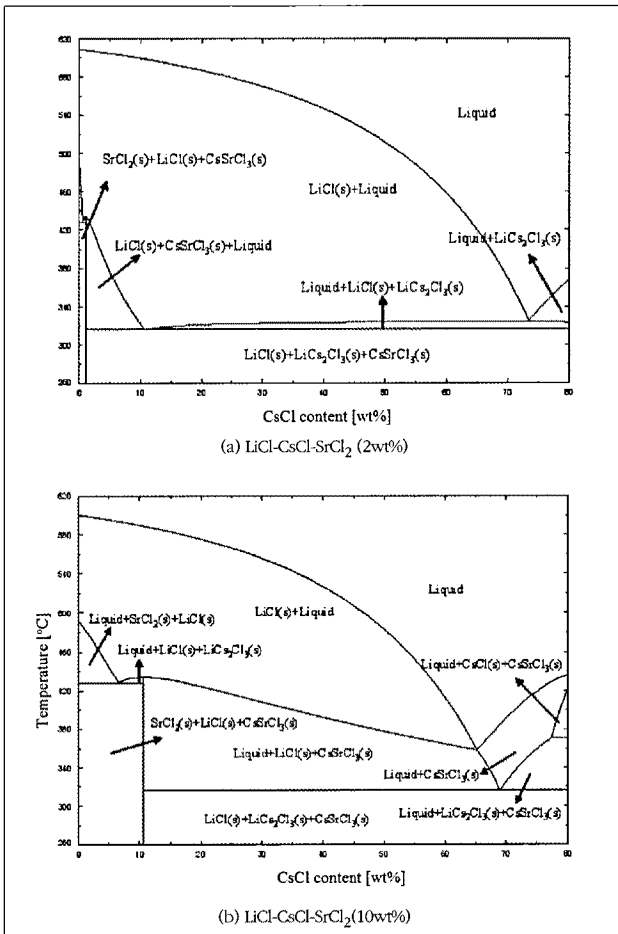


Fig. 2. Solid-liquid phase diagram of the LiCl-CsCl-SrCl<sub>2</sub> system.

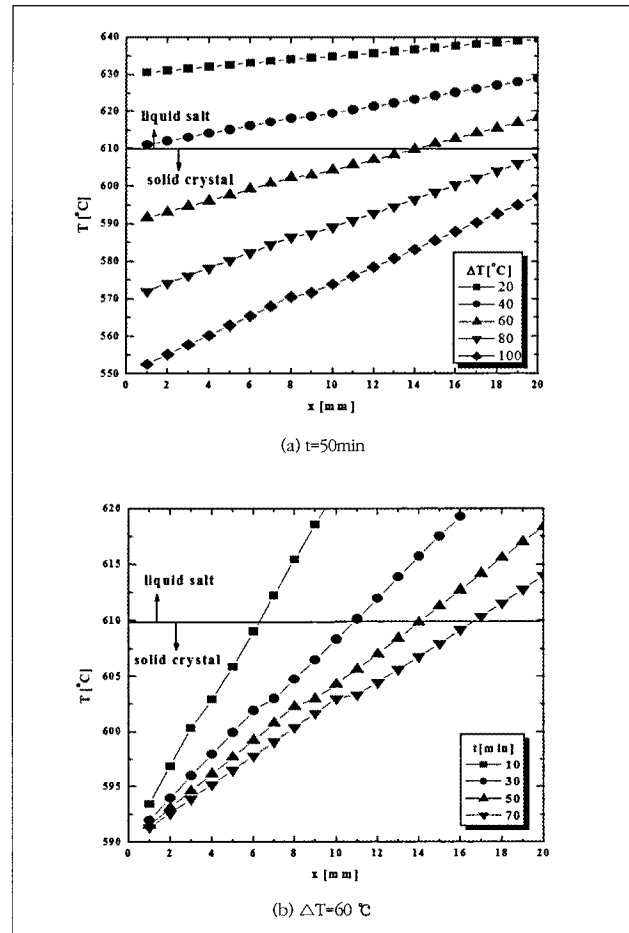


Fig. 3. Calculation results of temperature profile of LiCl molten salt with distance from interphase and time.

(610℃) 이상을 나타내는 것을 볼 수 있으며 이는 결정이 형성되기 않는다는 것을 의미한다. 따라서 냉각에 의한 LiCl 결정을 얻기 위해서는  $\Delta T$ 는 40℃ 이상이 되어야 함을 알 수 있다. Fig. 3(b)에는  $\Delta T$ 가 60℃일 경우 냉각시간에 따른 LiCl 용융염의 온도분포를 나타내었는데 시간이 증가할 수록 LiCl 용융온도 이하의 온도를 가지는 거리는 증가하는 것을 볼 수 있는데 이는 시간이 증가할 수록 형성되는 LiCl 결정의 두께가 증가한다는 것을 의미하며 이는 또한 결정화에 의한 LiCl의 회수율이 증가한다는 것을 의미한다. Fig. 3(b)의 결과를 보면  $\Delta T$ 가 60℃일 경우 70분 경과 후 약 17mm 두께의 LiCl 결정이 형성된다는 것을 알 수 있는데 이는  $4 \times 10^{-6}$  m/sec의 결정성장속도를 의미한다. 경막결정화 공정에서 결정성장 속도가 적을수록 결정 내에 존재하는 불순물의 함량이 적어지지만 경제적인 생산성을 위하여 통상  $10^{-6}$  m/sec 이상의 결정성장 속도에서 조업이 이루어지는 것을 감안할 때  $4 \times 10^{-6}$  m/sec의 결정성장 속도는 적정하다 할 수 있다[10]. 따라서 본 연구에서는 냉각공기와 LiCl 염의 온도차가 60-100℃ 정도를 유지하는 조건에서 Cs 및 Sr의 분리공정을 수행하였다.

경막결정화 공정에서 결정판 외부에 형성되는 결정특성은 핵종분리효율에 큰 영향을 주며 1cm 미만의 결정이 가장 좋은 핵종분리 특성을 나타내었다. 본 실험에서는 90% 정도의 결정회수를 얻기 위해 여러번의 결정화 조작을 수행하였는데 결정화 조작의 횟수가 증가할수록 LiCl 용융염층의 높이가 낮아지게 되어 동일한 냉각공기 유량 조건에서 결정성장속도가 커졌으며 이는 핵종분리 효율을 낮추는 결과를 초래하였다. Fig. 4에 적정하게 형성된 결정모습과 높은 결정성장 속도를 가진 상태에서 형성된 결정형상을 나타내었는데 빠른 결정성장 속도의 경우 결정판 간에 결정이 형성되어 서로 붙어있는 형태를 나타내었으며 이 경우 핵종분리 효율은 낮은 값을 나타내었다.

본 연구에서는 결정성장 속도를 결정이 생성된 3개 결정판의 면적을 고려하여 결정 flux로 나타내었다. Fig. 5에 결정 flux [g/min.cm<sup>2</sup>]에 따른 결정 내 존재하는 Cs 및 Sr의 무



Fig. 4. Crystal formation characteristics at the surface of the crystallizer in the layer crystallization process.

계분율의 변화양상을 나타내었는데 결정 flux 약 0.2까지는 무계분율에 큰 변화가 없었으나 0.2 이상이 되면 크게 증가하는 것을 볼 수 있다. 결정내 존재하는 Cs 및 Sr의 무계분율이 증가한다는 것은 결정화로 분리해낸 LiCl 결정중에 Cs 및 Sr의 농도가 높아 낮은 분리효율을 나타낸다는 것을 의미하므로 본 연구에서 사용한 경막결정화 장치를 이용하여 높은 핵종분리 효율을 얻기 위해서는 0.2 이하의 결정 flux 조건에서 운전이 이루어져야 한다는 것을 알 수 있다. 또한 Fig. 5를 보면 냉각공기 유량이 20-25 l/min일 경우에는 0.1 이하의 결정 flux값을 나타내었으나 30 l/min의 경우 용융염의 높이가 높은 경우는 낮은 결정 flux값을 보였으나 용융염층의 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 1회의 결정화 조작으로 얻는 결정의 양이 작아 90% 정도의 결정회수율을 얻기 위해서는 여러번의 결정화 조작을 하여야 하기 때문에 운전시간이 길어진다는 단점이 발생하게 된다. 따라서 경막결정화를 이용한 핵종분리공정에서 높은 핵종분리효율 및 가능한 짧은 운전소요시간을 동시에 얻기 위해서는 용융염의 높이에 따라서 즉, 용융염량의 양의 따라서 냉각공기 유량을 변화시키는 것이 필요하다는 것을 알 수 있다.

본 실험에서 총괄적으로 얻어진 결정수율 및 그때의 핵종분리효율을 Fig. 6에 나타내었는데 CsCl 및 SrCl<sub>2</sub> 모두 90%의 결정회율에서 핵종분리효율은 80%이상을 나타내었으며 특히 #E-3 실험의 경우 25 l/min의 낮은 유속에서 실험을 수행하여 모두 작은 결정 flux값을 나타낸 경우인데 이 경우 90%의 결정회율에서 90% 정도의 핵종분리효율을 나타낸다는 것을 알 수 있다. 모든 경우 90% 이상의 핵종분리 효율

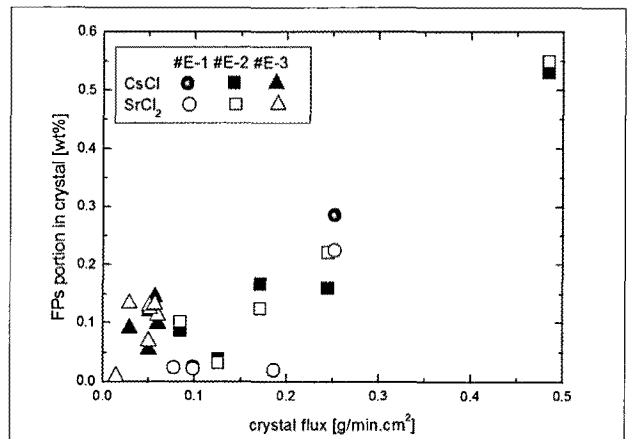


Fig. 5. Effect of crystal flux the separation efficiency in the layer crystallization process.

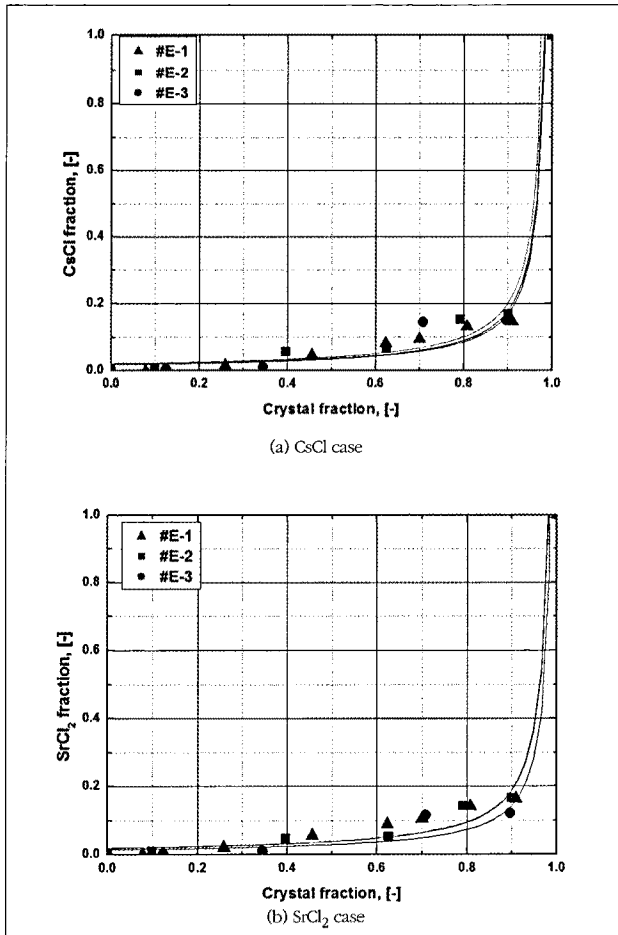


Fig. 6. Cs and Sr separation efficiency by using layer crystallization process

은 80%의 결정화수율에서 얻을 수 있었다.

#### IV. 결론

원전에서 발생하는 사용후연료의 파이로공정에서 발생하는 염폐기물 중 전해환원 공정에서 발생하며 고방열성인 I/II족 핵종을 포함하고 있는 LiCl 염폐기물의 처리에 대한 연구를 수행하였다. 본 연구에서는 경막결정화 방법을 이용하여 LiCl 염폐기물내에 포함되어 있는 Cs 및 Sr을 소량의 LiCl 용융염에 분리/농축하고자 하였다. 온도에 따른 LiCl-CsCl-SrCl<sub>2</sub>계의 상평형도를 통해 결정화를 통한 Cs 및 Sr의 농축/분리가 가능함을 알 수 있었으며 수학적 계산을 통해 계산한 결정화 공정중 LiCl 용융염의 온도분포를 예측하여 대략적인 운전조건(온도차 및 냉각공기유량등)에 대한 정보를 얻을 수 있었다. 실험결과 경막결정화를 이용하여 LiCl 염폐기물을 처리하였을 경우 90%의 염회수율일 경우 80%

의 핵종분리효율을 80%의 염회수율일 경우는 90% 이상의 높은 핵종분리효율을 실험적으로 얻을 수 있었으며 추후 계속적인 연구를 통해 최적의 조건(용융염층에 따른 냉각공기 유량변화등)을 도출하여 운전을 수행한다면 높은 LiCl염 재생율과 고방열성 I/II족 핵종제거 효율을 얻을 수 있을 것으로 판단된다.

#### 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발기금으로 수행되었습니다.

#### 참고문헌

- [1] J. H. Yoo, K. P. Hong and H. S. Lee, "A Conceptual Design Study for a Spent Fuel Pyroprocessing Facility of a Demonstration Scale", J. Korean Radioactive Waste Society, 6(3), pp. 233-244 (2008).
- [2] J. K. Kim, K. R. Kim, I. T. Kim, D. H. Ahn and H. S. Lee, "Thermal Release of LiCl Waste Salt from Pyroprocessing", J. Korean Radioactive waste Society, 7(2), pp. 73-78 (2009).
- [3] Y. Katayama, R. Hagiwara, and Y. Ito, "Precipitation of Rare Earth Compounds in LiCl-KCl Eutectic," J. Electrochem. Soc., 142(7), pp. 2174-2178 (1995).
- [4] M. F. Simpson, T. S. Yoo, R. W. Benedict, S. Phongikaroon, S. Frank, P. Sachdev and K. Hartman, "Strategic Minimization of High Level Waste From Pyroprocessing of Spent Nuclear Fuel," Proc. GLOBAL2007, pp. 1394-1397 (2007).
- [5] H. C. Eun, H. C. Yang, H. S. Lee and I. T. Kim, "Thermal Behavior of PrCl<sub>3</sub> in an Oxidizing Condition", J. Korean Radioactive Waste Society, 7(4), pp. 207-212 (2009).
- [6] K. J. Kim and J. Ulrich, "Impurity Distribution in a Solid-Liquid Interface During Static Layer Crystallization", J. Colloid and Interface Science, 252, pp. 161-168 (2002).
- [7] S. R. Kang, J. Y. Koh, C. U. Kim and S. J. Park, "Effects of Cooling and Crystallizer Type on the

- Separation of Naphthalene Mixture by Layer Melt Crystallization", *Clean Technology*, 13(1), pp. 72–78 (2007).
- [8] C. W. Bale, P. Chartrand, S. A. Degterov, G. Eriksson, K. Hack, R. Ben Mahfoud, J. Melancon, A. D. Pelton and S. Petersen, "Factsage Thermochemical Software and Database", *Calphad*, 26(2), pp. 189–228 (2002).
- [9] J. P. Holmann, *Heat Transfer*, 7th ed., pp. 115–118, McGRAW–HILL, New York (1992).
- [10] K. J. Kim, K. M. Kim, H. Y. Lee and J. K. Kim, "Purification of Caprolactam Crystals by Sweating Operation in Layer Melt Crystallization", *J. Korean Ind. Eng. Chem.*, 13(5), pp. 428–433 (2002).
- [11] A. Konig and A. Schreier, "Purification Potential of Melt Crystallization", *Powder Technol.*, 121, pp. 88–92 (2001).
- [12] A. Chianese and N. Santilli, "Modelling of the Solid Layer Growth from Melt Crystallization—the Integral Formulation Approach", *Chem. Eng. Sci.*, 53(1), pp. 107–111 (1998).
- [13] R. Scholz, K. Wangnick and J. Ulrich, "On the Distribution and Movement of Impurities in Crystalline Layers in Melt Crystallization Process", *J. Phys.*, 26, pp. B156–B161 (1993).
- [14] G. J. Janz, C. B. Allen, N. P. Bansal, R. M. Murphy and R.P.T. Tomkins. *Physical Properties Data Compilations Relevant to Energy Storage*, National Standard Reference Data System, NSRDS–NBS–61 (1979).