



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2015년04월20일
(11) 등록번호 10-1513173
(24) 등록일자 2015년04월13일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
G21F 9/10 (2006.01) G21F 9/06 (2006.01)
(21) 출원번호 10-2013-0128356
(22) 출원일자 2013년10월28일
심사청구일자 2013년10월28일
(56) 선행기술조사문헌
KR100969587 B1
KR101003955 B1

(73) 특허권자
한국원자력연구원
대전광역시 유성구 대덕대로989번길 111(덕진동)
(72) 발명자
조용준
대전 서구 청사로 65, 115동 602호 (월평동, 황실
타운)
이태교
경북 포항시 북구 중흥로267번길 31-16, (죽도
동)
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
특허법인 플러스

전체 청구항 수 : 총 12 항

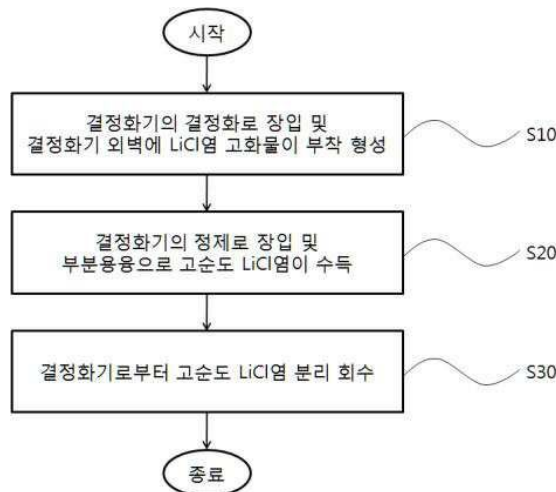
심사관 : 오규환

(54) 발명의 명칭 방사성 염폐기물 재활용 방법 및 장치

(57) 요약

본 발명은 방사성 핵종을 포함하는 LiCl 염폐기물의 재활용 방법 및 장치에 관한 것으로, 본 발명에 따른 방사성 염폐기물의 재활용 방법은 a) 내부 수용공간이 형성된 함체 및 상기 내부 수용공간에 구비되는 냉각수단을 포함하는 결정화기가 방사성 핵종을 포함하는 LiCl 염폐기물이 수용된 결정화로에 장입되고, 상기 냉각수단에 의해 냉각식 결정화에 의하여 상기 함체의 외벽에 접촉하는 LiCl 염폐기물에 함유된 LiCl염이 고화되어 상기 함체의 외벽에 LiCl염 고화물이 부착 형성되는 단계; b) 상기 LiCl염 고화물이 부착 형성된 상기 결정화기가 상기 결정화로로부터 이송되어 정제로에 장입되고, 상기 LiCl염 고화물 표면의 방사성 핵종 편석층이 부분용융에 의해 제거되어 고순도 LiCl염이 수득되는 단계; 및 c) 상기 고순도 LiCl염이 가열 및 용융되어, 상기 결정화기로부터 상기 고순도 LiCl염이 분리 회수되는 단계;를 포함한다.

대표도 - 도1



(72) 발명자

박환서

대전광역시 유성구 배울2로 78 (관평동, 운암네오
미아) 604-1704

박근일

대전 유성구 노은서로 126-5, (노은동)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	2012M2A8A5025801
부처명	미래창조과학부
연구관리전문기관	한국연구재단
연구사업명	원자력기술개발사업
연구과제명	염폐기물 처리기술 개발
기 여 율	1/1
주관기관	한국원자력연구원
연구기간	2013.03.01 ~ 2014.02.28

명세서

청구범위

청구항 1

a) 내부 수용공간이 형성된 합체 및 상기 내부 수용공간에 구비되는 냉각수단을 포함하는 결정화기가 방사성 핵종을 포함하는 LiCl 염폐기물이 수용된 결정화로에 장입되고, 상기 냉각수단에 의해 냉각식 결정화에 의하여 상기 합체의 외벽에 접촉하는 LiCl 염폐기물에 함유된 LiCl염이 고화되어 상기 합체의 외벽에 LiCl염 고화물이 부착 형성되는 단계;

b) 상기 LiCl염 고화물이 부착 형성된 상기 결정화기가 상기 결정화로로부터 이송되어 정제로에 장입되고, 상기 LiCl염 고화물 표면의 방사성 핵종 편석층이 부분용융에 의해 제거되어 고순도 LiCl염이 수득되는 단계; 및

c) 상기 고순도 LiCl염이 가열 및 용융되어, 상기 결정화기로부터 상기 고순도 LiCl염이 분리 회수되는 단계;

를 포함하며, 상기 b) 단계는 상기 편석층의 제거를 위하여 하기 관계식1을 만족하도록 상기 정제로 내부 온도를 제어하는 단계;

를 더 포함하는 방사성 염폐기물의 재활용 방법.

관계식1

$$T_0 \times 0.9 \leq T_1$$

T₀: 순수한 LiCl염의 녹는점(℃)

T₁: 정제로 내부 온도(℃)

청구항 2

삭제

청구항 3

제1항에 있어서,

상기 부분용융은 결정화기에 부착된 LiCl염 고화물의 무게감소율이 0.3~11.7 중량%가 되도록 수행되는 방사성 염폐기물 재활용 방법.

청구항 4

제1항에 있어서,

상기 부분용융은 30 내지 180 분 동안 수행되는 방사성 염폐기물의 재활용 방법.

청구항 5

제1항에 있어서,

상기 c) 단계는,

상기 부분용융으로 용융 제거된 상기 편석층을 상기 정제로 외부로 배출시키는 단계;를 더 포함하는 방사성 염폐기물의 재활용 방법.

청구항 6

제1항에 있어서,

상기 고순도 LiCl염은 하기 관계식3을 만족하는 방사성 염폐기물의 재활용 방법.

관계식3

$$A_1 \leq A_0 \times (0.9)$$

A₀: 부분용융 전 결정화기에 부착 된 LiCl염 고화물에 포함된 방사성 핵종의 농도(ppm)

A₁: LiCl염 고화물의 부분용융이 완료된 고순도 LiCl염에 포함된 방사성 핵종의 농도(ppm)

청구항 7

방사성 핵종을 포함하는 LiCl 염폐기물의 재활용 장치로,

방사성 핵종을 포함하는 LiCl 염폐기물이 수용 및 용융되는 결정화로;

내부 수용공간이 형성된 함체 및 상기 함체의 내부 수용공간에 구비되는 냉각수단을 포함하며, 상기 결정화로에 수용된 LiCl 염폐기물에 장입되고 냉각식 결정화에 의하여 LiCl염이 고화되어 상기 함체의 외벽에 LiCl염 고화물이 부착되는 결정화기;

상기 LiCl염 고화물이 부착된 결정화기가 수용되며, 상기 LiCl염 고화물 표면의 방사성 핵종 편석층이 부분용융되어 제거되는 정제로; 및

상기 편석층이 제거된 고순도 LiCl염이 가열 및 용융되어 상기 결정화기로부터 분리 회수되는 용융로(600);

를 포함하며, 상기 편석층의 제거를 위하여 하기 관계식4를 만족하도록 상기 정제로 내부 온도를 제어하는 방사성 염폐기물의 재활용 장치.

관계식4

$$T_0 \times 0.9 \leq T_1$$

T₀: 순수한 LiCl염의 녹는점(℃)

T₁: 정제로 내부 온도(℃)

청구항 8

제7항에 있어서,

상기 정제로는, 상기 정제로의 내부 수용공간에 배치되며, 상기 LiCl염 고화물로부터 용융 제거된 상기 편석층을 수집하는 불순물 회수용기;를 더 포함하는 방사성 염폐기물의 재활용 장치.

청구항 9

제8항에 있어서,

상기 불순물 회수용기는 이동가능하며 상기 정제로로부터 탈리되는 방사성 염폐기물의 재활용 장치.

청구항 10

제7항에 있어서,

상기 재활용 장치는,

상기 정제로 내부 수용 공간에 상기 LiCl염 고화물과 이격 배치된 열전대;와 상기 열전대의 온도 측정 결과를 입력받아, 상기 정제로의 가열온도 및 가열 유지시간을 제어하는 제어부;를 더 포함하는 방사성 염폐기물의 재활용 장치.

청구항 11

삭제

청구항 12

제10항에 있어서,

상기 제어부는 부분용융에 의한 결정화기에 부착 된 LiCl염 고화물의 무게감소율이 0.3~11.7 중량%가 되도록 제

어하는 방사성 염폐기물 재활용 장치.

청구항 13

제10항에 있어서,

상기 제어부는 30 내지 180 분 동안 부분용융이 수행되도록 제어하는 방사성 염폐기물의 재활용 장치.

청구항 14

제7항에 있어서,

상기 방사성 핵종은 세슘, 바륨, 및 스트론튬 중 적어도 하나를 포함하는 방사성 염폐기물의 재활용 장치.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 방사성 핵종을 포함하는 LiCl 염폐기물의 재활용 방법 및 장치에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 핵연료의 전해환원(electro-reduction) 공정에서는 1족 및 2족의 방사성 핵종을 포함하고 있는 LiCl 염폐기물이 발생한다. 이러한 1족 및 2족 핵종은 모두 고발열성 핵종이기 때문에 전해환원 공정에서 발생하는 LiCl 염폐기물들은 모두 최종처분을 위하여 안전한 고화체로 제조된 후 영구처분 되어야 한다.

[0003] 염폐기물내 존재하는 핵종들을 염과 분리한 후 염을 재사용하는 기술은 염의 재사용이라는 경제적 측면 뿐만 아니라, 고준위 폐기물 감용 측면에서 매우 중요한 기술이다. 본 출원인은 대한민국등록특허 제10-1003955호와 같이, 경막결정화법을 이용하여 LiCl 염폐기물 내 포함되어 있는 1족 및 2족 핵종이 분리한 후 LiCl 염폐기물을 회수하는 재활용 방법 및 장치를 제안한 바 있으며, 이러한 경막결정화법을 이용한 염폐기물의 재활용 기술에 대한 연구를 심화한 결과, 처리 효율을 보다 상승시키면서도 보다 높은 핵종 분리 및 보다 우수한 LiCl염 재생 효율을 가질 수 있는 본 발명을 출원하기에 이르렀다.

선행기술문헌

특허문헌

[0004] (특허문헌 0001) 대한민국등록특허 제10-1003955호

발명의 내용

해결하려는 과제

[0005] 본 발명의 목적은 방사성 핵종을 함유하는 염폐기물의 재활용 시, 결정화 처리 공정시간을 단축시키면서도 방사성 핵종의 분리 효율이 우수한 염을 수득할 수 있는 염폐기물의 재활용 방법 및 장치를 제공하는 것이다.

과제의 해결 수단

[0006] 본 발명에 따른 방사성 염폐기물의 재활용 방법은, a) 내부 수용공간이 형성된 함체 및 상기 내부 수용공간에 구비되는 냉각수단을 포함하는 결정화기가 방사성 핵종을 포함하는 LiCl 염폐기물이 수용된 결정화로에 장입되고, 상기 냉각수단에 의해 냉각식 결정화에 의하여 상기 함체의 외벽에 접촉하는 LiCl 염폐기물에 함유된 LiCl 염이 고화되어 상기 함체의 외벽에 LiCl염 고화물이 부착 형성되는 단계; b) 상기 LiCl염 고화물이 부착 형성된 상기 결정화기가 상기 결정화로로부터 이송되어 정제로에 장입되고, 상기 LiCl염 고화물 표면의 방사성 핵종 편석층이 부분용융에 의해 제거되어 고순도 LiCl염이 수득되는 단계; 및 c) 상기 고순도 LiCl염이 가열 및 용융되어, 상기 결정화기로부터 상기 고순도 LiCl염이 분리 회수되는 단계;를 포함한다.

[0007] 본 발명에 따른 재활용 방법에 있어서, 상기 c) 단계는 상기 편석층의 제거를 위하여 하기 관계식1을 만족하도록 상기 정제로 내부 온도를 제어하는 단계;를 더 포함할 수 있다.

- [0008] 관계식1
- [0009] $T_0 \times 0.9 \leq T_1$
- [0010] 여기서, T_0 는 순수한 LiCl염의 녹는점(°C)이며, T_1 는 정제로 내부 온도(°C)일 수 있다.
- [0011] 본 발명에 따른 재활용 방법에 있어서, 상기 부분용융은 결정화기에 부착 된 LiCl염 고화물의 무게감소율이 0.3~11.7 중량%가 되도록 수행될 수 있다.
- [0012] 삭제
- [0013] 삭제
- [0014] 삭제
- [0015] 본 발명에 따른 재활용 방법에 있어서, 상기 부분용융은 30 내지 180 분 동안 수행될 수 있다.
- [0016] 본 발명에 따른 재활용 방법에 있어서, 상기 c) 단계는 상기 부분용융으로 용융 제거 된 상기 편석층을 상기 정제로 외부로 배출시키는 단계;를 더 포함할 수 있다.
- [0017] 본 발명에 따른 재활용 방법에 있어서, 상기 고순도 LiCl염은 하기 관계식3을 만족할 수 있다.
- [0018] 관계식3
- [0019] $A_1 \leq A_0 \times (0.9)$
- [0020] 여기서, A_0 는 부분용융 전 결정화기에 부착 된 LiCl염 고화물에 포함된 방사성 핵종의 농도(ppm)이고, A_1 는 LiCl염 고화물의 부분용융이 완료된 고순도 LiCl염에 포함된 방사성 핵종의 농도(ppm)일 수 있다.
- [0021] 본 발명에 따른 방사성 염폐기물의 재활용 장치는, 방사성 핵종을 포함하는 LiCl 염폐기물의 재활용 장치로, 방사성 핵종을 포함하는 LiCl 염폐기물이 수용 및 용융되는 결정화로; 내부 수용공간이 형성된 합체 및 상기 합체의 내부 수용공간에 구비되는 냉각수단을 포함하며, 상기 결정화로에 수용된 LiCl 염폐기물에 장입되고 냉각식 결정화에 의하여 LiCl염이 고화되어 상기 합체의 외벽에 LiCl염 고화물이 부착되는 결정화기; 상기 LiCl염 고화물이 부착된 결정화기가 수용되며, 상기 LiCl염 고화물 표면의 방사성 핵종 편석층이 부분용융되어 제거되는 정제로; 및 상기 편석층이 제거된 고순도 LiCl염이 가열 및 용융되어 상기 결정화기로부터 분리 회수되는 용융로;를 포함한다.
- [0022] 본 발명에 따른 재활용 장치에 있어서, 상기 정제로는 상기 정제로의 내부 수용공간에 배치되며, 상기 LiCl염 고화물로부터 용융 제거된 상기 편석층을 수집하는 불순물 회수용기;를 더 포함할 수 있다.
- [0023] 본 발명에 따른 재활용 장치에 있어서, 상기 불순물 회수용기는 이동가능하며 상기 정제로로부터 탈리될 수 있다.
- [0024] 본 발명에 따른 재활용 장치에 있어서, 상기 재활용 장치는 상기 정제로 내부 수용 공간에 상기 LiCl염 고화물과 이격 배치된 열전대;와 상기 열전대의 온도 측정 결과를 입력받아, 상기 제어부의 가열온도 및 가열 유지시간을 제어하는 제어부;를 더 포함할 수 있다.
- [0025] 본 발명에 따른 재활용 장치에 있어서, 상기 제어부는 편석층의 제거를 위하여 하기 관계식4를 만족하도록 상기 정제로 내부 온도를 제어할 수 있다.
- [0026] 관계식4
- [0027] $T_0 \times 0.9 \leq T_1$
- [0028] 여기서, T_0 는 순수한 LiCl염의 녹는점(°C)이고, T_1 는 정제로 내부 온도(°C)일 수 있다.
- [0029] 본 발명에 따른 재활용 장치에 있어서, 상기 제어부는 부분용융에 의한 결정화기에 부착 된 LiCl염 고화물의 무

계감소율이 0.3~11.7 중량%가 되도록 제어할 수 있다.

[0030] 삭제

[0031] 삭제

[0032] 삭제

[0033] 본 발명에 따른 재활용 장치에 있어서, 상기 제어부는 30 내지 180 분 동안 부분용융이 수행되도록 제어할 수 있다.

[0034] 본 발명에 따른 재활용 장치에 있어서, 상기 방사성 핵종은 세슘, 바륨, 및 스트론튬 중 적어도 하나를 포함할 수 있다.

발명의 효과

[0035] 본 발명에 따른 방사성 폐기물 재활용 방법 및 장치는 경막결정화 공정 후에 부분용융으로 LiCl염의 비평형적 방사성 핵종 편석(segregation)을 제거하는 정제공정을 실시하여, 결정화 처리 공정시간을 단축시키면서도 경막 결정화 공정에서 생성된 LiCl염의 순도를 향상시킬 수 있으며, 이에 따라 방사성 핵종의 분리 효율을 향상시킴으로써 방사성 핵종을 함유하지 않거나 극히 저농도로 함유하는 LiCl염의 회수 및 재활용이 가능한 장점이 있으며, 이로써 폐기물의 재생율을 향상시킬 수 있는 장점이 있다.

도면의 간단한 설명

[0036] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 방사성 폐기물 재활용 방법을 도시한 일 공정 순서도이며,
 도 2는 본 발명의 일 실시예에 따른 부분용융 공정 실시 전후의 LiCl염이 고화된 결정화기를 관찰한 광학 사진이다.
 도 3은 본 발명의 일 실시예에 따른 방사성 폐기물 재활용 방법과 장치의 구성을 동시에 보여주기 위한 개념도이며,
 도 4는 본 발명의 다른 실시예에 따른 방사성 폐기물 재활용 장치의 구성을 보여주기 위한 개략도이며,
 도 5는 본 발명의 또 다른 실시예에 따른 방사성 폐기물 재활용 장치의 구성을 보여주기 위한 개략도이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0037] 이하 첨부한 도면들을 참조하여 본 발명의 방사성 폐기물 재활용 방법 및 장치를 상세히 설명한다. 다음에 소개되는 도면들은 당업자에게 본 발명의 사상이 충분히 전달될 수 있도록 하기 위해 예로서 제공되는 것이다. 따라서, 본 발명은 이하 제시되는 도면들에 한정되지 않고 다른 형태로 구체화될 수도 있으며, 이하 제시되는 도면들은 본 발명의 사상을 명확히 하기 위해 과장되어 도시될 수 있다. 이때, 사용되는 기술 용어 및 과학 용어에 있어서 다른 정의가 없다면, 이 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자가 통상적으로 이해하고 있는 의미를 가지며, 하기의 설명 및 첨부 도면에서 본 발명의 요지를 불필요하게 흐릴 수 있는 공지 기능 및 구성에 대한 설명은 생략한다.

[0038] 본 발명의 방사성 폐기물 재활용 방법 및 장치를 상술함에 있어, 방사성 폐기물은 방사성 핵종을 함유하는 LiCl 염폐기물을 포함할 수 있으며, 염폐기물에 함유되는 방사성 핵종은 1족 및 2족 핵종에서 하나 또는 둘 이상 선택되는 핵종을 포함할 수 있으며, 구체적으로 Cs(1족), Sr(2족) 및 Ba(2족)에서 하나 또는 둘 이상 선택되는 핵종을 포함할 수 있다.

[0039] 도 1은 본 발명에 따른 방사성 폐기물 재활용 방법을 도시한 일 공정 순서도이다. 도 1을 참조하면, 본 발명에 따른 방사성 폐기물 재활용 방법은 a) 경막결정화에 의하여 LiCl염 고화물이 형성되는 단계, b) 부분용융으로 고순도 LiCl염을 수득하는 단계, 및 c) 고순도 LiCl염을 분리 및 회수하는 단계를 포함한다.

[0040] 상세하게, a) 단계는, 경막결정화에 의하여 LiCl염 고화물이 형성되는 단계로서, 내부 수용공간이 형성된 합체

및 상기 내부 수용공간에 구비되는 냉각수단을 포함하는 결정화기(300)가 방사성 핵종을 포함하는 LiCl 염폐기물이 수용된 결정화로(100)에 장입되고, 상기 냉각수단에 의해 냉각식 결정화에 의하여 상기 합체의 외벽에 접촉하는 LiCl 염폐기물에 함유된 LiCl염이 고화되어 상기 합체의 외벽에 LiCl염 고화물이 부착 형성될 수 있다.

[0041] 더욱 상세하게는, 우선 결정화로(100)에 수용된 LiCl 염폐기물은 가열 용융되어 완전한 액상의 형태로 준비된다. 구체적인 일례로, 염폐기물이 Cs(1족), Sr(2족) 및 Ba(2족)에서 하나 또는 둘 이상 선택되는 핵종을 함유하는 경우, 610℃를 초과하는 온도로 가열될 수 있으며, 더욱 구체적으로 방사성 핵종을 포함하는 LiCl 염폐기물의 초기 온도는 610℃ 내지 710℃일 수 있으며, 보다 바람직하게는 640℃ 내지 660℃일 수 있다. 이러한 온도는 염폐기물로부터 LiCl염을 고화시키는 과정에서, 염폐기물을 용융시키면서도, 공기와 접촉하는 결정화로(100) 상부에서의 원치 않는 고화를 방지할 수 있으며, 결정화기(300)의 냉각에 의한 염의 고화 시작 시간을 단축할 수 있으며, 염의 휘발을 방지할 수 있는 온도 조건이다.

[0042] 그리고, 내부 수용공간이 형성된 합체 및 상기 내부 수용공간에 구비되는 냉각수단이 구비된 상기 결정화기(300)가 용융된 액상의 LiCl염 폐기물(X)에 장입된다. 이후, 냉각수단에 의하여 합체가 냉각되면서 합체의 외벽에 접촉하는 LiCl 염폐기물에 함유된 LiCl염이 고화되어 상기 합체의 외벽에 LiCl염 고화물이 부착 형성된다. 이때, 합체의 온도가 LiCl 염폐기물의 고상과 액상이 공존하는 2상(two phase)영역의 온도로 냉각되어, 합체와 접촉하는 LiCl 염폐기물(X)에 함유된 LiCl염이 합체 외벽에 선택적으로 고화될 수 있다.

[0043] 이때, 염폐기물에 함유되는 방사성 핵종의 종류에 따라, LiCl과 방사성 핵종간의 상태를 고려하여, LiCl염의 고체(s) 및 방사성 핵종을 함유하는 액상(L)이 공존하는 2상 영역의 온도가 적절히 설계될 수 있다. 구체적인 일례로, 염폐기물이 Cs, Sr 및 Ba 핵종을 함유하는 경우, 합체는 610℃ 이하로 냉각될 수 있다. 또한, BaCl₂와 같은 핵종의 고체상이 형성되지 않도록 510℃ 이상의 온도로 냉각될 수 있다.

[0044] 합체의 냉각 온도는 결정화기(300)에 의한 고화속도에 영향을 미칠 수 있는데, 고화속도가 너무 느린 경우 염폐기물의 처리 효율이 감소하며 고화속도가 너무 빠른 경우 합체를 핵생성 자리로 하여 합체 외벽에 고화된 LiCl염 고화물과 상기 LiCl염 고화물과 접하는 액상 LiCl염 간의 열역학적 평형(조성상의 평형)이 담보되지 않아, 고 농도의 방사성 핵종을 함유하는 LiCl염이 고화될 위험이 있다.

[0045] 이를 방지하기 위해, 냉각 수단에 의한 합체의 냉각 온도는 510 내지 610℃일 수 있으며, 결정화기(300)에 의해 고화되는 LiCl염의 결정성장속도(고화속도)는 2~ 6g/min일 수 있다. 상술한 바와 같이, 이러한 결정성장속도는 고화된 염의 고상과 염폐기물의 액상과의 경계면을 편평하게 유지함과 동시에 고상변태가 진행됨에 따라 액상으로 배출되는 핵종이 액상 유체의 흐름에 의해 액상 내에 균일하게 재분포되고, 동적 효과(kinetic effect)에 의해 고상 내에 방사성 핵종이 트랩(trap)되는 것을 방지할 수 있는 속도이다.

[0046] 그러나, 이와 같이 온도 및 결정성장속도를 조절하여 결정화를 실시한다고 하더라도 초기 결정핵이 형성되는 과정이나, 결정이 성장하는 과정에서 포함되는 불순물을 완전히 배제할 수 없으며, 특히 결정성장의 마지막 단계 또는 결정성장 으로 형성된 LiCl염 고화물을 액상의 LiCl 염폐기물로부터 분리하는 과정 중에 상당한 양의 불순물이 LiCl염 고화물 표면에 잔류하게 되어 경막결정화에 의하여 형성된 LiCl염의 순도를 저하시키는 원인이 된다.

[0047] 게다가, LiCl염의 온도 및 결정화기(300) 냉각에 사용되고 배출되는 공기의 온도를 이용하여 고화를 제어하고자 하는 경우, 냉각공기의 특성(열전달특성, 초기온도 및 유량)에 의해 유출되는 냉각공기의 온도변화 심하여 공정 조건에 대한 제어가 쉽지 않을 뿐만 아니라, 정밀한 고화정도의 제어가 어려우며, 재현성이 떨어질 수 있으며, 고화의 엄밀한 제어가 어려움에 따라 회수한 염내 불순물 함량을 낮추는데 한계가 있다.

[0048] 또한, 염폐기물의 처리효율(시간당 고화 처리 재활용 되는 LiCl염의 양)을 향상시키기 위하여, 경막결정화 시 결정화로(100) 내 결정화기(300)를 다수개 장입하여 동시에 결정화를 실시하는 경우에도, 고상 내 핵종의 편식을 방지하기 위해서 결정화기(300)에 의한 결정성장 속도를 제한해야 할 필요가 있다. 게다가, 이와 같이 결정화기(300)에 의한 결정성장 속도를 제한한다고 하더라도, 다수개의 결정화기(300)에서 동시다발적으로 LiCl염의 핵생성 및 성장이 발생함에 따라 각 결정화기(300)에서 성장하는 LiCl염(s)들이 과냉각되어 서로 접촉하여 계면을 형성시키기도 하며, 이러한 접촉은 부분적으로 고 농도의 방사성 핵종을 함유하는 LiCl염 고화물을 생성시킴으로 재활용되는 LiCl염에서 방사성 핵종을 분리시키기 위해 반드시 피해야 할 문제점으로 작용할 수 있다. 서로 인접하는 두 결정화기(300)를 제1결정화기(300) 및 제2결정화기(300)로 하여 이러한 접촉에 의해 야기되는 문제점을 보다 상세히 설명한다.

[0049] 결정화기(300)에 의한 고화가 진행됨에 따라, 제1결정화기(300)에 의해 고화된 LiCl염(s)-제1결정화기(300)와

제2결정화기(300) 사이의 액상 막-제2결정화기(300)에 의해 고화된 LiCl염(s)의 고상-액상-고상의 상계면이 제1결정화기(300)와 제2결정화기(300) 사이에 형성될 수 있다. 이때, 순수 내지 극히 저농도의 방사성 핵종을 함유하는 LiCl염(s)이 고화됨에 따라, 고화가 진행되며 액상 쪽으로 방사성 핵종이 확산되게 된다. 고화가 계속해서 진행됨에 따라, LiCl염(s) 고상과 핵종을 함유하는 액상의 염(1)간 계면이 편평하지 않은 경우, 제1결정화기(300) 및 제2결정화기(300)의 두 LiCl염(s)은 서로 불균일하게 고상-고상 계면을 형성하며, 고상-고상 계면 사이에 방사성 핵종이 농축된 액상 트랩될 수 있다. 이렇게 고상 계면에 트랩된 액상은 비평형적으로 고화되어 두 LiCl염(s)간 계면에서 방사성 핵종의 농도를 크게 상승시킬 수 있다. 또한 LiCl염(s) 고상과 핵종을 함유하는 액상의 염(1)간 계면이 편평하다 하더라도, 고화가 진행될수록 제1결정화기(300)와 제2결정화기(300) 사이의 액상은 고화되는 염에서 배출되는 방사성 핵종에 의해 핵종의 농도가 상승하며 점점 얇은 막의 형태를 갖게 된다. 이러한 얇은 막 형태의 액상은 고/액 계면의 면방향 확산 경로만으로 핵종의 확산이 가능함에 따라, 액상의 막이 얇아질수록 액상 내 핵종의 농도는 급격히 상승하게 된다. 이러한 상황에서, 제1결정화기(300)와 제2결정화기(300)의 두 고상이 서로 접촉하여 고상 계면을 이룰 정도로 고화가 진행되는 경우, 액상 내 핵종은 확산의 어려움에 의해 그대로 고상 계면 내에 편석되어 두 LiCl염(s)간 계면에서 방사성 핵종의 농도를 크게 상승시킬 수 있다.

[0050] 즉, 온도 및 결정성장속도를 조절하여 결정화를 실시하거나 염폐기물의 처리효율을 향상시키기 위하여 결정화기(300)를 다수개 장입하여 동시에 결정화를 실시하는 경우에도, LiCl 고화물의 표면 및 LiCl 고화물 간 계면의 고농도의 방사성 핵종이 부분적으로 고화되는 것을 제어하기에는 어려움이 있을 수 있다. 또한, 이와 같이 형성된 LiCl염 고화물을 그대로 용융시키는 경우 용융된 LiCl염 내 포함된 방사성 핵종 농도가 재활용하기에 부적합한 수준으로 높을 수도 있다.

[0051] 따라서, 본 발명의 b) 단계에서는 a) 단계에서 형성된 LiCl염 고화물을 부분용융하여 고순도 LiCl염을 수득하는 단계를 실시한다.

[0052] 구체적으로 b) 단계에서는 먼저, 상기 LiCl염 고화물이 부착 형성된 상기 결정화기(300)가 상기 결정화로(100)로부터 이송되어 정제로(200)에 장입된다. 이어, 상기 LiCl염 고화물 표면의 방사성 핵종 편석층이 부분용융에 의해 제거되어 고순도 LiCl염이 수득된다.

[0053] 이러한 b) 단계는 상기 편석층의 제거를 위하여 하기 관계식1을 만족하도록 정제로(200) 내부 온도를 제어하는 단계를 더 포함할 수 있다.

[0054] 관계식1

[0055] $T_0 \times 0.9 \leq T_1$

[0056] 여기서, T_0 는 순수한 LiCl염의 녹는점(°C)이며, T_1 는 정제로 내부 온도(°C)일 수 있다. 구체적으로, 정제로(200) 내부 온도를 LiCl염(s)의 녹는점보다 다소 낮은 수준으로 조절하여, LiCl염은 고화된 상태로 유지하면서 불순물을 부분적으로 용융시켜 LiCl염으로부터 제거하게 되는 것이다. 여기서, 정제로(200) 내부 온도가 상기 관계식1과 같이 조절되는 것은 LiCl염 고화물은 결정화기(300) 표면에 고화물 상태로 부착되도록 유지하면서도 불순물 및 편석층을 용융제거하는 측면에서 현저한 효과를 나타내기 위하여 정제로(200) 내부 온도(°C)가 적어도 순수한 LiCl염의 녹는점(°C)의 0.9배에 해당되는 온도 이상으로 조절 유지 될 필요가 있기 때문이다. 이때, 일반적으로 LiCl염(s)의 녹는점이 610°C 내외 인 것을 감안하여, 정제로(200) 내 온도는 적어도 549°C 이상, 바람직하게는 550°C 이상인 것이 좋다. 그리고, 정제로(200) 내의 부분용융 효율을 높여 고순도 정제를 실시하게 위하여 정제로(200) 내 온도는 600°C 이상인 것이 더욱 바람직할 수 있으며, 부분용융 시 정제로(200) 내의 온도가 LiCl염의 녹는점에 근접할 수 록 정제 효율이 향상될 수 있다.

[0057] 한편, 경우에 따라서 더욱 효과적으로 고순도 정제를 실시하기 위하여 의도적으로 부분용융 시 정제로(200) 내의 온도를 과열(super-heating) 상태로 유도할 수도 있으며, 이때 정제로(200) 내의 온도는 LiCl염(s)의 녹는점보다 높은 온도일 수도 있다.

[0058] 구체적으로 LiCl염 고화물을 상기된 온도범위의 정제로(200) 내에서 일정시간 유지시키는 동안, LiCl염 고화물의 표면 및 LiCl염 고화물 간의 경계에 형성된 편석층 및 편석층 내 불순물은 부분적으로 용융되어 LiCl염 고화물로부터 분리될 수 있다. 뿐만 아니라, LiCl염 고화물 내부에 존재하는 불순물 또한 정제로(200) 내부 온도에 직접적으로 영향을 받는 LiCl염 고화물 표면의 편석층 온도와 LiCl염 고화물 내 결정화기(300)의 온도차이에 의한 온도구배에 의하여 보다 온도가 높은 LiCl염 고화물 표면의 편석층 측으로 이동하게 된다. 이에 따라 LiCl염

고화물 내부의 방사성 핵종을 포함하는 불순물 또한 편석층과 함께 분리될 수 있게 되는 것이다.

- [0059] 이는 도 2에서 보는 바와 같이, 부분용융이 실시되지 않은 LiCl염 고화물의 경우 매우 매끈한 표면을 보이고 있으나 부분용융이 실시된 이후의 LiCl염 고화물이 매우 거친 표면을 보이고 있는 것으로 확인할 수 있다. 상세하게는 부분용융이 실시된 이후 LiCl염 고화물의 표면이 거칠어진 것으로 LiCl염 고화물 내부에 포함된 불순물 및 표면부의 편석층이 부분용융으로 분리 제거되었음을 알 수 있다.
- [0060] 이와 같은 부분용융은 결정화기에 부착 된 LiCl염 고화물의 무게감소율이 0.3~11.7 중량%가 되도록 수행될 수 있다.
- [0061] 삭제
- [0062] 삭제
- [0063] 삭제
- [0064] LiCl염 고화물은 부분용융 시 LiCl염 고화물에 포함되었던 불순물 및 편석층이 제거되면서 점점 무게가 감소되는데, 이는 LiCl염 고화물의 무게가 감소된 정도는 LiCl염 고화물 내 불순물 및 편석층이 제거된 정도로 이해할 수 있을 것이다.
- [0065] 따라서 상기 범위 내로 무게가 감소됨에 따라 LiCl염 고화물 내 불순물 및 편석층이 일정량 이상 제거되어, LiCl염 고화물 내 핵종 농도를 재활용 가능한 수준으로 낮춤으로써 고순도 LiCl염을 형성시킬 수 있음을 알 수 있다. 여기서, 고순도 LiCl염은 절대적인 의미에서 순도가 우수함을 의미하는 것은 아니며, 이전 상태인 LiCl염 고화물에 비하여 LiCl염 고화물 내 핵종 농도를 재활용 가능한 수준으로 저하시켜 LiCl염의 순도가 향상되었음을 의미한다.
- [0066] 이와 같이 재활용 가능한 수준으로 불순물을 제거하기 위하여 부분용융은 30 내지 180 분 동안 수행될 수 있다. 이때, 부분용융이 30 분 미만으로 수행되면 온도구배에 따른 LiCl염 고화물 내 불순물의 이동을 기대하기 어려울 뿐만 아니라, LiCl염 고화물 표면의 편석층 제거도 완전히 이루어지지 않아 부분용융이 완료된 LiCl염 고화물의 방사성 핵종 농도가 재활용이 가능한 수준으로 조절되기 어려울 수 있다. 그리고, 부분용융이 180 분을 초과하여 수행되면 LiCl염 고화물 표면의 편석층 제거 효율이 더 이상 증가되지 않아 불필요한 에너지 낭비를 초래할 수 있다. 이와 같은 부분용융은 공정 초기 시점으로부터 60분 이내의 시간동안 LiCl염 고화물 표면의 편석층 제거 효율이 가장 높으므로, 에너지를 절감하고 전체 공정 시간을 보다 단축시키는 측면에서 이러한 부분용융이 30분 내지 60분 동안 수행되는 것이 더욱 바람직할 수 있다. 단, 이와 같은 부분용융 시간의 제한은 부분용융에 의한 핵종분리효율이 가장 유리하도록 조절하는 측면에서 제한되는 것이며, 모든 경우를 한정하는 것은 아니다.
- [0067] 전술된 바와 같이 부분용융 온도 및 시간을 제어함으로써, 분리 용융으로 LiCl염 고화물의 불순물 및 편석층이 제거되면서 결정화기(300) 표면에 고화물 상태로 여전히 남아있는 LiCl염의 순도가 향상되어 고순도의 LiCl염이 형성될 수 있다.
- [0068] 이와 같은 고순도의 LiCl염은 전술된 바와 같이, 절대적인 의미에서 순도가 우수함을 의미하는 것은 아니며, 이전 상태인 LiCl염 고화물에 비하여 LiCl염 고화물 내 핵종 농도를 재활용 가능한 수준으로 저하되어 LiCl염의 순도가 향상되었음을 의미한다.
- [0069] 이러한 고순도 LiCl염은 하기 관계식3을 만족하는 범위로 형성될 수 있다.
- [0070] 관계식3
- [0071] $A_1 \leq A_0 \times (0.9)$
- [0072] 여기서, A_0 는 부분용융 전 결정화기(300)에 부착 된 LiCl염 고화물에 포함된 방사성 핵종의 농도(ppm)이고, A_1 는 LiCl염 고화물의 부분용융이 완료된 고순도 LiCl염에 포함된 방사성 핵종의 농도(ppm)일 수 있다.
- [0073] 즉, 본 발명의 방사성 염폐기물 재활용 방법에 따라 형성된 고순도 LiCl염은 방사성 염폐기물을 재활용하기에

적합한 수준인 상기 관계식3을 만족하는 범위로 방사성 핵종을 포함하게 되는 것이다.

- [0074] 마지막으로, c) 단계에서는 상기 고순도 LiCl염이 가열 및 용융되어 상기 결정화기(300)로부터 분리 회수된다.
- [0075] 이때, 상기 고순도 LiCl염이 분리 회수되면서 부분용융으로 LiCl염 고화물로부터 제거되어 배출된 불순물 및 편석물질들과 다시 혼재되지 않도록 하기 위하여 상기 고순도 LiCl염의 가열은 고순도 LiCl염이 부착된 상태의 결정화기(300)를 별도의 용융로(600)로 이송하여 실시할 수 있다. 또는, 상기 정제로(200)에서 바로 실시할 수도 있는데, 이러한 경우에는 전단계의 부분용융 공정 시 LiCl염 고화물로부터 제거되어 배출된 불순물 및 편석물질들을 상기 정제로(200)로부터 외부로 배출시킨 이후에 실시하여 고순도 LiCl염이 결정화기(300)로부터 분리된 이후에 혼재되는 것을 방지하는 것이 바람직하다.
- [0076] 본 발명의 일 실시예에 따른 방사성 염폐기물 재활용 방법은, 결정화기(300)의 장입에 의한 LiCl염의 고화(a), 부분용융에 의한 고순도 LiCl염 수득(b), LiCl염과 결정화기(300)의 분리(c)를 일 단위 공정으로 하여, 상기 단위 공정이 반복 수행될 수 있다. 이러한 단위 공정의 반복 시, 용융로(600)에서 LiCl염이 분리된 결정화기(300)가 다시 결정화로(100)에 장입될 수 있다. 이러한 단위 공정의 반복 횟수는 단위 공정별, 각 핵종의 분리효율을 고려하여, 분리 회수되는 LiCl염의 재사용 가능 한계 내에서 반복될 수 있다.
- [0077] 구체적으로, 핵종의 분리효율은 고화 후 염폐기물(액상)에 잔류하는 핵종 질량(W_2);과 결정화기(300)에 의한 고화가 이루어지기 직전 결정화로(100) 내 염폐기물(액상)에 함유된 핵종의 질량(W_1);의 비($(W_2/W_1)*100$)이며, 단위 공정은 각 핵종의 누적된 분리효율 90% 이상인 범위 내에서 반복 수행될 수 있다. 실질적인 일례로, 매 단위 공정의 분리 효율이 95%인 경우, 단위 공정은 2회 반복 수행될 수 있다.
- [0078] 이하, 본 발명에 따른 방사성 염폐기물 재활용 장치에 대해 상술한다. 본 발명의 일 실시예에 따른 방사성 염폐기물 재활용 장치는 방사성 핵종을 포함하는 LiCl 염폐기물이 수용 및 용융되는 결정화로(100); LiCl염폐기물에 함유된 LiCl염이 고화되는 결정화기(300); 상기 LiCl염 고화물 표면의 방사성 핵종 편석층이 부분용융되어 제거되는 정제로(200); 및 상기 방사성 핵종 편석층이 제거된 LiCl염이 고화된 결정화기(300)가 수용되어 고화된 LiCl염을 가열 용융하는 용융로(600);를 포함할 수 있다.
- [0079] 상세하게, 결정화로(100)에는 결정화로(100) 내부에 수용되는 LiCl염폐기물을 용융시키는 히터(110)가 구비될 수 있으며, 이러한 히터(110)는 전기 저항을 통해 줄열을 발생하는 통상의 히팅 엘리먼트 및 히팅 엘리먼트에 흐르는 전류량을 제어하여 가열 온도를 제어할 수 있는 통상의 온도 제어부(미도시됨)를 포함할 수 있다.
- [0080] 상기 히터(110)는 상기 결정화로(100) 외벽에 구비될 수 있으며, 상기 결정화로(100)에 수용되는 LiCl 염폐기물이 균일한 온도로 가온될 수 있도록 배치될 수 있다. 비 한정적인 일례로, 히터(110)는 결정화로(100) 외벽을 감싸는 구조일 수 있다.
- [0081] 상기 결정화로(100)에 수용된 LiCl 염폐기물은 상기 히터(110)에 의해 액상(전 액상)의 염폐기물이 형성되는 온도로 가열될 수 있으며, 구체적인 일례로, 염폐기물이 Cs(1족), Sr(2족) 및 Ba(2족)에서 하나 또는 둘 이상 선택되는 핵종을 함유하는 경우, 610℃를 초과하는 온도로 가열될 수 있으며, 구체적으로 방사성 핵종을 포함하는 LiCl염폐기물의 초기 온도는 610℃ 내지 710℃일 수 있으며, 보다 구체적으로 640℃ 내지 660℃일 수 있다. 이러한 온도는 염폐기물로부터 LiCl염을 고화시키는 과정에서, 염폐기물을 용융시키면서도, 공기와 접촉하는 결정화로(100) 상부에서의 원치 않는 고화를 방지할 수 있으며, 결정화기(300)의 냉각에 의한 염의 고화 시작 시간을 단축할 수 있으며, 염의 휘발을 방지할 수 있는 온도 조건이다.
- [0082] 상기 결정화기(300)는 내부수용공간이 형성된 합체를 포함할 수 있으며, 상기 내부수용공간에 냉각수단이 구비되어, 상기 냉각수단에 의한 상기 합체의 냉각에 의해 상기 합체의 외벽에 접촉하는 LiCl염폐기물에 함유된 LiCl염이 고화될 수 있다.
- [0083] 상기 냉각수단은 보다 효과적인 결정화기(300) 온도 제어 측면에서 공랭식 냉각수단일 수 있으며, 도 3 내지 도 5의 실시예들은 결정화기(300)가 공랭식 냉각수단을 포함하는 실시예들을 도시한 것이다.
- [0084] 상세하게, 상기 공랭식 냉각수단이 구비된 결정화기(300)는 상기 합체의 내부 수용공간으로 냉각공기가 유입되도록 하는 유입구와 상기 합체 내부에 구비되어 유입된 냉각공기를 확산시켜 상기 합체 내부로 유입된 냉각공기에 의해 일정범위의 온도를 유지하도록 하는 배플과, 상기 내부의 수용공간으로 유입된 냉각공기를 배출하는 유출구를 포함하는 냉각수단이 구비될 수 있다.
- [0085] 상기 배플의 배열 및 간격은 합체의 외 표면이 유입되는 냉각 공기에 의해 일정한 온도로 균일하게 냉각되는 배

열 및 간격이면 족하다. 비 한정적인 일례로, 상기 배플은 횡축방향으로 10mm간격으로 교번되게 구비되도록 하여 지그재그(jig-jag)로 된 냉각공기 유로를 형성하는 것일 수 있다. 또한, 비 한정적인 일례로, 상기 결정화기(300)는 상기 유입구 및/또는 상기 유출구로 유입 및/또는 배출되는 공기의 유량을 조절하는 유량 조절기를 더 포함할 수 있다.

[0086] 상기 결정화기(300)는 상기 결정화로(100)의 용융된 염폐기물(X)에 장입되고, 냉각수단에 의한 합체의 냉각에 의해, 합체 표면에 LiCl염이 선택적으로 고화되도록 할 수 있다. 상세하게, 냉각수단에 의해 합체가 염폐기물의 고상과 액상이 공존하는 2상(two phase)영역의 온도로 냉각되어, 합체와 접촉하는 LiCl 염폐기물에 함유된 LiCl염이 합체 외벽에 고화될 수 있다.

[0087] 이때, 염폐기물에 함유되는 방사성 핵종의 종류에 따라, LiCl과 방사성 핵종간의 상태를 고려하여, LiCl염의 고체(s) 및 방사성 핵종을 함유하는 액상(L)이 공존하는 2상 영역의 온도가 적절히 설계될 수 있다. 구체적인 일례로, 염폐기물이 Cs, Sr 및 Ba 핵종을 함유하는 경우, 합체는 610℃ 이하로 냉각될 수 있다. 또한, BaCl₂와 같은 핵종의 고체상이 형성되지 않도록 510℃ 이상의 온도로 냉각될 수 있다.

[0088] 합체의 냉각 온도는 결정화기(300)에 의한 고화속도에 영향을 미칠 수 있는데, 고화속도가 너무 느린 경우 염폐기물의 처리 효율이 감소하며 고화속도가 너무 빠른 경우 합체를 핵생성 자리로 하여 합체 외벽에 고화된 LiCl 염(s)과 고화된 LiCl염과 접하는 액상 간의 열역학적 평형(조성상의 평형)이 담보되지 않아, 고 농도의 방사성 핵종을 함유하는 LiCl염이 고화될 위험이 있다.

[0089] 이를 방지하기 위해, 냉각 수단에 의한 합체의 냉각 온도는 510 내지 610℃일 수 있으며, 결정화기(300)에 의해 고화되는 LiCl염의 결정성장속도(고화속도)는 2~ 6g/min일 수 있다. 상술한 바와 같이, 이러한 결정성장속도는 고화된 염의 고상과 염폐기물의 액상과의 경계면을 편평하게 유지함과 동시에 고상변태가 진행됨에 따라 액상으로 배출되는 핵종이 액상 유체의 흐름에 의해 액상 내에 균일하게 재분포되고, 동적 효과(kinetic effect)에 의해 고상 내에 방사성 핵종이 트랩(trap)되는 것을 방지할 수 있는 속도이다.

[0090] 도 3에 도시한 바와 같이, 상기 결정화로(100)는 하나의 결정화기(300)를 장입하여 LiCl염 고화물을 형성할 수 있으나, 염폐기물 처리 효율의 측면에서 도 4와 같이 둘 이상의 상기 결정화기(300)가 서로 이격 배열되어 장입되는 것이 바람직할 수 있다. 왜냐하면, 방사성 폐용융염을 용융시킨 후, 염과 핵종간의 평형 상태에 따라, LiCl염의 고상과 핵종을 함유하는 액상의 염이 공존하는 온도 영역으로 결정화기(300)의 온도를 제어하여, 결정화기(300)로부터 액상 쪽으로 LiCl염을 고화시키는 경우, 염폐기물의 처리효율(시간당 고화 처리 재활용되는 LiCl염의 양)을 향상시키기 위해서는 가능한 많은 결정화기(300)를 동시에 사용하는 것이 가장 효과적이기 때문이다.

[0091] 그러나, 둘 이상의 결정화기(300)가 배열되는 경우 전술된 바와 같이 결정화기(300)에 부착 형성된 LiCl염 고화물이 서로 접촉하여 계면을 이루는 문제점이 발생될 수 있다. 또한 이와 같은 계면은 부분 핵종 농도가 과도하게 높아질 수 있는 위험이 있어 이를 제어하기 위한 별도의 공정조건들이 요구되면서 공정시간이 길어질 수 있다. 따라서 이를 방지하기 위하여, 둘 이상의 결정화기(300)를 배열하는 경우 각 결정화기(300) 사이 및 결정화기(300)와 결정화로(100)의 내벽 사이에 충분한 간격을 두고 배열하는 것이 바람직할 수 있다. 그리고, 이와 같이 둘 이상의 결정화기(300)를 배열하는 경우 복수개의 결정화기(300)의 간격을 유지한 채로 이송시키기 위한 별도의 고정 부재가 더 구비될 수 있음은 물론이다.

[0092] 상기 결정화로(100)에서 LiCl염 고화물의 고화가 종료된 결정화기(300)는 정제로(200)로 이송되어 부분용융이 실시된다. 구체적으로, 정제로(200)에서는 LiCl염 고화물이 부착된 결정화기(300)가 수용되며, 상기 LiCl염 고화물 표면의 방사성 핵종 편석층이 부분용융으로 제거된다.

[0093] 이때, 정제로(200)는 내부 수용 공간에 상기 LiCl염 고화물과 이격 배치된 열전대(410);와 상기 정제로(200) 외벽에 상기 정제로(200)를 승온시키는 히터(210);가 구비되며, 상기 재활용장치에는 상기 열전대(410)의 온도 측정 결과를 입력받아, 상기 정제로(200)에서의 가열온도 및 가열 유지시간을 제어하는 제어부(500);가 더 포함될 수 있다.

[0094] 여기서, 열전대(410)는 정제로(200) 내부의 수용 공간 중에 배치되며 상기 결정화기(300)가 장입되는 위치에서 정제로(200) 내벽측으로 이격되도록 위치하여, 결정화기(300) 및 LiCl염 고화물의 장입 시 상기 LiCl염 고화물과 정제로(200) 내벽 사이에 배치되도록 할 수 있다. 이와 같이 열전대(410)가 정제로(200) 또는 결정화기(300)로부터 이격 배치되는 것은 상기 LiCl염 고화물 주변부에 위치하여 상기 LiCl염 고화물의 온도를 민감하게 측

정하기 위함이다.

[0095] 본 발명의 재활용 장치에 있어, 제어부(500)는 상기 열전대(410)의 온도 측정 결과에 따라 하기 관계식4를 만족하도록 상기 정제로(200) 내부의 온도를 제어하여 LiCl염 고화물 내 불순물 및 편석층의 제거를 위한 부분용융을 실시할 수 있다.

[0096] 관계식4

[0097] $T_0 \times 0.9 \leq T_1$

[0098] 여기서, T_0 는 순수한 LiCl염의 녹는점(°C)이며, T_1 는 정제로(200) 내부 온도(°C)일 수 있다. 구체적으로, 정제로(200) 내부 온도를 LiCl염(s)의 녹는점보다 다소 낮은 수준으로 조절하여, LiCl염은 고화된 상태로 유지하면서 불순물을 부분적으로 용융시켜 LiCl염으로부터 제거하게 되는 것이다. 여기서, 정제로(200) 내부 온도가 상기 관계식1과 같이 조절되는 것은 LiCl염 고화물은 결정화기(300) 표면에 고화물 상태로 부착되도록 유지하면서도 불순물 및 편석층을 용융제거하는 측면에서 현저한 효과를 나타내기 위하여 정제로(200) 내부 온도(°C)가 적어도 순수한 LiCl염의 녹는점(°C)의 0.9배에 해당되는 온도 이상으로 조절 유지 될 필요가 있기 때문이다. 이때, 일반적으로 LiCl염(s)의 녹는점이 610°C 내외 인 것을 감안하여, 정제로(200) 내 온도는 적어도 549°C이상, 바람직하게는 550°C이상인 것이 좋다. 그리고, 정제로(200) 내의 부분용융 효율을 높여 고순도 정제를 실시하게 위하여 정제로(200) 내 온도는 600°C이상인 것이 더욱 바람직할 수 있으며, 부분용융 시 정제로(200) 내의 온도가 LiCl염의 녹는점에 근접할 수 록 정제 효율이 향상될 수 있다.

[0099] 또한, 본 발명에 따른 재활용 장치에 있어서, 상기 제어부(500)는 부분용융에 의한 결정화기에 부착 된 LiCl염 고화물의 무게감소율이 0.3~11.7 중량%가 되도록 제어할 수 있다.

이는 재활용 방법에서 전술된 바와 마찬가지로, LiCl염 고화물은 부분용융 시 LiCl염 고화물에 포함되었던 불순물 및 편석층이 제거되면서 점점 무게가 감소되는데, 이는 LiCl염 고화물의 무게가 감소된 정도는 LiCl염 고화물 내 불순물 및 편석층이 제거된 정도로 이해할 수 있을 것이다.

[0100] 삭제

[0101] 삭제

[0102] 삭제

[0103] 따라서 상기 범위 내로 무게가 감소됨에 따라 LiCl염 고화물 내 불순물 및 편석층이 일정량 이상 제거되어, LiCl염 고화물 내 핵종 농도를 재활용 가능한 수준으로 낮춤으로써 고순도 LiCl염을 형성시킬 수 있음을 알 수 있다. 여기서, 고순도 LiCl염은 절대적인 의미에서 순도가 우수함을 의미하는 것은 아니며, 이전 상태인 LiCl염 고화물에 비하여 LiCl염 고화물 내 핵종 농도를 재활용 가능한 수준으로 저하되어 LiCl염의 순도가 향상되었음을 의미한다.

[0104] 이와 같이 재활용 가능한 수준으로 불순물을 제거하기 위하여 부분용융은 30 내지 180 분 동안 수행될 수 있다. 이때, 부분용융이 30 분 미만으로 수행되면 온도구배에 따른 LiCl염 고화물 내 불순물의 이동을 기대하기 어려울 뿐만 아니라, LiCl염 고화물 표면의 편석층 제거도 완전히 이루어지지 않아 부분용융이 완료된 LiCl염 고화물의 방사성 핵종 농도가 재활용이 가능한 수준으로 조절되기 어려울 수 있다. 그리고, 부분용융이 180 분을 초과하여 수행되면 LiCl염 고화물 표면의 편석층 제거 효율이 더 이상 증가되지 않아 불필요한 에너지 낭비를 초래할 수 있다. 이와 같은 부분용융은 공정 초기 시점으로부터 60분 이내의 시간동안 LiCl염 고화물 표면의 편석층 제거 효율이 가장 높으므로, 에너지를 절감하고 전체 공정 시간을 보다 단축시키는 측면에서 이러한 부분용융이 30분 내지 60분 동안 수행되는 것이 더욱 바람직할 수 있다. 단, 이와 같은 부분용융 시간의 제한은 부분용융에 의한 핵종분리효율이 가장 유리하도록 조절하는 측면에서 제한되는 것이며, 모든 경우를 한정하는 것은 아니다.

[0105] 전술된 바와 같이 부분용융 온도 및 시간을 제어함으로써, 분리 용융으로 LiCl염 고화물의 불순물 및 편석층이 제거되고, 결정화기(300) 표면에 고화물 상태로 여전히 남아있는 LiCl염은 순도가 향상되어 고순도의 LiCl염이

형성될 수 있다.

[0106] 이후, 전 공정에서 수득된 고순도 LiCl염을 분리 회수하기 위하여 상기 고순도 LiCl염을 가열하게 되는 데, 이는 도 3 및 도 4에 도시된 바와 같이 별도의 용융로(600)로 상기 결정화기(300)를 이송시켜 실시할 수 있다. 이와 같이 별도로 배치된 용융로(600)로 상기 결정화기(300)를 이송시킨 이후에 고순도 LiCl염을 분리 회수하는 것은 부분용융으로 제거되어 배출된 불순물 및 편석층 물질이 고순도 LiCl염과 다시 혼재되는 것을 방지하기 위함이다.

[0107] 또는, 도 5에 도시된 바와 같이 상기 결정화기(300)를 별도의 용융로(600)로 이송시키지 않고 정제로(200) 내에서 그대로 용융시켜 고순도 LiCl염을 분리 회수할 수도 있다. 이때, 정제로(200)는 내부 수용공간에 배치되며, 상기 LiCl염 고화물로부터 용융 제거된 편석층 및 불순물을 수집하는 불순물 회수용기(700)를 더 포함할 수 있으며, 이때 불순물 회수용기(700)는 이동 가능하여 정제로(200)에서의 부분용융이 완료된 이후 상기 정제로(200)로부터 탈리되어, 수집된 편석층 물질 및 불순물을 정제로(200)로부터 배출시키게 된다. 이로써, 결정화기(300)가 용융로(600)로 이송하는 과정이 생략가능하게 되며 보다 신속한 염폐기물의 재활용 공정이 실시될 수 있게 된다.

[0108] 이하, 도 3과 유사한 장치를 이용하여 Cs, Sr 및 Ba 핵종을 함유하는 LiCl염 폐기물에서 LiCl염을 분리 회수하는 구체적인 일 예를 제공한다. 그러나, 이러한 구체적인 예는 본 발명의 우수함을 실험적으로 입증하기 위해 제시된 것이며, 본 발명이 이러한 실험적 일 예에 의해 한정되어 해석될 수 없음은 물론이다.

[0109] (실시예)

[0110] CsCl 0.09중량%, SrCl₂ 3.33중량% 및 BaCl₂ 6.93중량%를 함유하는 3000g의 LiCl염을 밀면이 185 × 115mm이고 높이가 300mm인 Ni-Co-Cr 합금 재질(Haynes 263)의 결정화로(100) 내 용기에 투입하였다. LiCl 염폐기물이 과냉각되지 않고 액상으로 유지하게 하기 위하여 히터(110)를 사용하여 결정화로(100)의 초기온도가 640℃가 되도록 하였다.

[0111] 밀면이 60 × 15mm이고 높이가 200mm인 결정화기(300)를 결정화로(100)에 투입하였다. 이후, 초기 온도가 25℃인 냉각공기를 각 결정화기(300)에 공급하였으며, 고화가 진행됨에 따라 10L/min에서 25 L/min로 점진적으로 냉각 공기의 유량을 증가시켰다.

[0112] 이로써 결정화기(300)에 부착된 LiCl염 고화물 얻게 되었으며, 이를 정제로(200)에 이송시켜 595℃에서 60분 간 유지하였다. 도 2는 정제로(200)에서의 부분용융 실시 전후의 결정화기(300)에 부착된 LiCl염 고화물의 비교사진이며, 부분용융 실시 후 LiCl염 고화물 표면이 녹아내려 다수의 미세한 모세관이 형성된 것으로서 불순물 및 편석층이 용융 분리되었음을 확인할 수 있다.

[0113] (실시예1~실시예4)

[0114] 상기 (실시예)와 같은 방법으로 하고 부분용융 시간을 30분으로 실시하되, 각각의 부분용융 온도를 달리하여 실시하였으며, 이로써 생성된 LiCl염의 무게감소율과 핵종 분리효율 증가율을 하기 표1에 나타내었다.

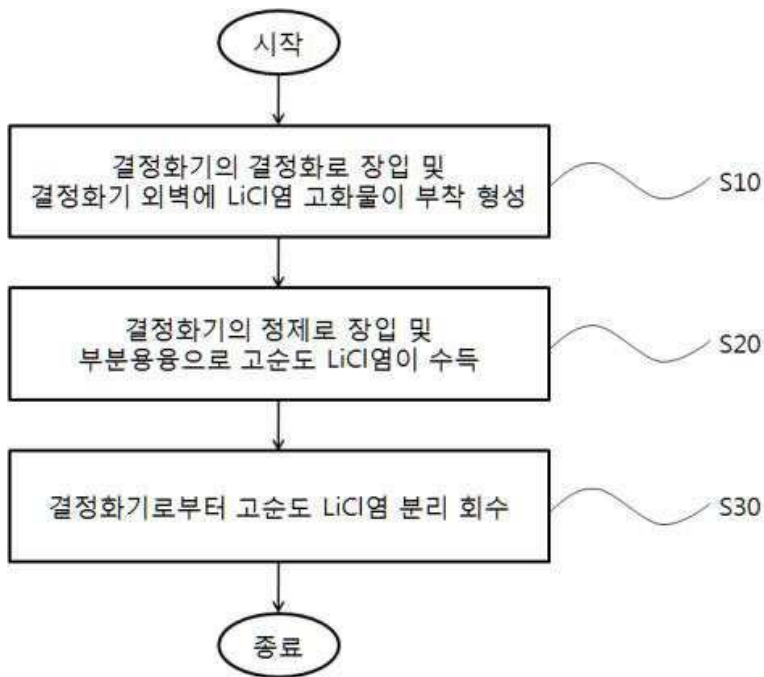
표 1

구분	부분용융온도	부분용융시간[min]	무게감소율[wt%]	핵종분리효율 증가율[%]
실시예1	570	30	0.3	0.1
실시예2	585	30	3.4	1.9
실시예3	595	30	6.4	4.9
실시예4	605	30	11.7	6.9

[0116] 본 표 1을 참조하면, 무게감소율과 핵종분리효율 증가율을 동시에 고려하였을 경우 595℃에서 가장 최적의 부분용융 조건을 갖음을 확인할 수 있다.

도면

도면1



도면2

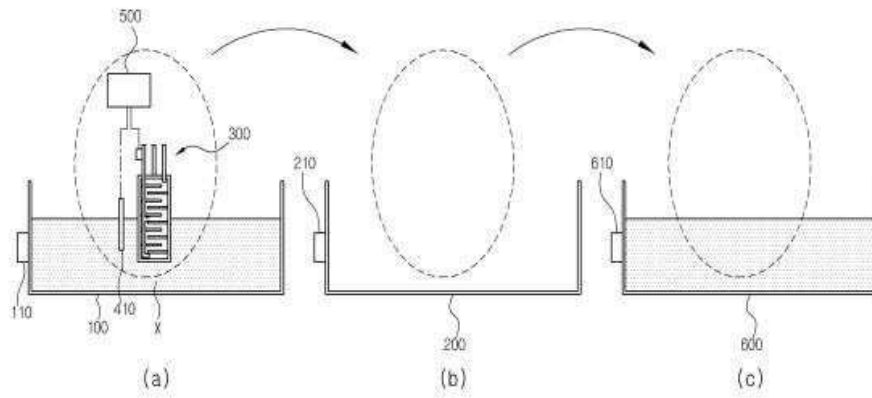
[부분용융 실시 전]



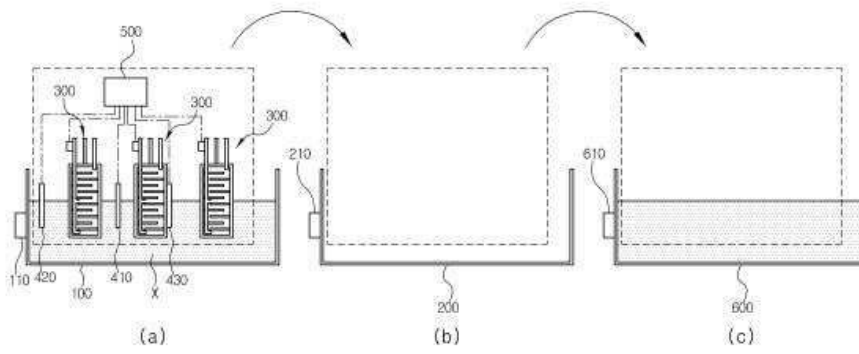
[부분용융 실시 후]



도면3



도면4



도면5

