

Proceedings of the
Korean Radioactive Waste Society

Fall, 2003

한국방사성폐기물학회 학술논문집

- 2003년 가을 -

일자 : 2003. 11. 27 ~ 29 (목~토) 장소 : 제주대학교
주관 : 한국방사성폐기물학회, 제주대학교 방사능이용연구센터



한국방사성폐기물학회

Proceedings of the
Korean Radioactive Waste Society
Fall, 2003

한국방사성폐기물학회 학술논문집

- 2003년 가을 -

일자 : 2003. 11. 27 ~ 29 (목~토) 장소 : 제주대학교
주관 : 한국방사성폐기물학회, 제주대학교 방사능이용연구센터



한국방사성폐기물학회

빈 면

목 차

제1분과 (A) : 방사성폐기물처리 및 처분 (I) - 처리

좌장 이병식 · 양호연

09:00	막분리 공정을 이용한 SIES 전처리설비 개념 설계	15
	이상진 · 양호연 · 신상운 [한국수력원자력(주)]	
09:20	방사성고화체로 부터의 Co, Cs 침출에 대한 표준시험법의 상호비교	21
	김기홍 · 유영걸 · 정경기 · 홍권표 [한국원자력연구소]	
	이락희 · 정의영 · 고덕준 · 김 현 [NETEC]	
09:40	토양폐기물 고정화 특성실험	32
	최영조 ·곽지훈 ·강기두 · 신상운 [한국수력원자력 (주)]	
	오원진 [한국원자력연구소]	
10:00	방사성 부식생성물 제거를 위한 전자석 및 영구자석을 이용한 필터의 개념설계	38
	송민철 · 공태영 · 이진재 [한국과학기술원]	
10:40	국내원전 액체방사성폐기물 계통 설계경험	43
	이병식 · 김길정 [한국전력기술 (주)]	
11:00	AP-200L 토치를 이용한 비가연성 방사성폐기물 고온용융처리	48
	최종락 · 유병수 · 김천우 · 박종길 · 하종현 [한국수력원자력 (주)]	
11:20	방사성 폐기물 내 ^{55}Fe , ^{90}Sr 및 ^{94}Nb 의 분리 연구	54
	이창현 · 김원호 · 지광용 [한국원자력연구소]	
	정기철 [(주) ACT], 임석남 [한국수력원자력 (주)]	
11:40	방사성고화체의 물리화학적 안전성 평가	60
	유영걸 · 김기홍 · 홍권표 [한국원자력연구소]	
	정의영 · 고덕준 [한국수력원자력 (주)]	

제1분과 (A) : 방사성폐기물처리 및 처분 (I) - 처리 (Poster)

P01A01	Prediction of the Dynamic Adsorption Behaviors of Uranium and Cobalt in a Fixed Bed by Surface Modified Activated Carbon	73
	Geun IL Park, Jung Won Lee, Kee Chan Song, In Tae Kim, Kwang Wook kim and Myung Seung Yang [KAERI]	

P01A02 증기발생기 세정폐액 처리 공정 평가	78
강덕원 · 이홍주 · 최영우 · 이두호 [한국전력공사 전력연구원]	
P01A03 사용후핵연료 집합체 캐스크 감온, 감압 공정의 방사성 액체폐기물 처리에 대한 연구	83
손영준 · 전용범 · 김은가 · 엄성호 · 권형문 · 민덕기 · 양송열 · 이은표 · 이형권 · 황용하 · 서항석 · 김길수 [한국원자력연구소]	
P01A04 증수로 환형기체 계통의 방사능 inventory 평가	90
김진태 · 강덕원 · 손 욱 [한국전력공사 전력연구원]	
P01A05 조사후 시험시설에서의 방사성 오염배기체의 포집장치 및 여과효율	96
황용화 · 이형권 · 전용범 · 민덕기 · 엄성호 · 홍권표 [한국원자력연구소]	
P01A06 공기유입시스템에서의 섬유매체에 의한 방사성액체폐기물 처리에 관한 연구	101
김태국 · 이영희 · 안섬진 · 손종식 · 홍권표 [한국원자력연구소]	
P01A07 습식 제염장치의 성능시험	105
이은표 · 김은가 · 민덕기 · 전용범 · 이형권 · 서항석 · 권형문 · 홍권표 [한국원자력연구소]	
P01A08 핫셀 방사성고체폐기물 감용	109
양송열 · 서항석 · 이형권 · 이은표 · 권형문 · 민덕기 · 김길수 · 조일제 · 전용범 · 홍권표 [한국원자력연구소]	
P01A09 삼중수소취급계통의 설계 (II): 주입계통, 재생계통	117
김광신 · 김경숙 · 정은수 · 손순환 · 김위수 [한국전력공사 전력연구원]	
P01A10 봉산함유파라핀 고화체의 직경/높이 및 재하속도에 따른 압축강도 비교	124
곽경길 · 유영걸 [한국원자력연구소]	
P01A11 하나로의 고체폐기물 발생현황	130
강태진 · 황승렬 · 최호영 · 이 문 [한국원자력연구소]	
P01A12 하나로의 액체폐기물 발생현황 및 저감대책	135
강태진 · 황승렬 · 최호영 [한국원자력연구소]	
P01A13 방사성 액체폐기물 처리공정 관리 응용프로그램 구현	141
이영희 · 안섬진 · 조한석 · 손종식 [한국원자력연구소]	
P01A14 KAERI 개발 HEPA 필터폐기물 압축처리장치 특성 및 일본, 미국 압축처리장치와의 비교	149
이강무 · 안섬진 · 배상민 · 손종식 · 홍권표 [한국원자력연구소]	
김홍태 [한국원자력안전기술원]	
P01A15 고효율 방사성이산화탄소 흡착제 개발	158
지준화 · 강덕원 [한국전력공사 전력연구원]	
이재의 · 한재욱 [아주대학교]	

P01A16	조사제시험시설 폴물의 방사성오염에 대한 고찰	162
	송용섭 · 이종현 · 이흥기 · 홍권표 [한국원자력연구소]	
P01A17	조사제 시험시설의 핫셀 내부 고준위 고체폐기물 반출 및 처리	168
	주용선 · 송용섭 · 김도식 · 유병옥 · 정양홍 · 백승제 · 오완호 · 이은표 · 홍권표 [한국원자력연구소]	
P01A18	트리튬 처리기술 현황	172
	안도희 · 김광락 · 백승우 · 이민수 · 임성팔 · 정홍석 [한국원자력연구소]	
P01A19	건식처리에서 염폐기물 재생공정 필요성(1)-폐기물 감량 측면	180
	김정국 · 김인태 · 박근일 · 권상운 · 유재형 · 김준형 [한국원자력연구소]	
P01A20	방사성소각재 함유 고화체의 매질조성이 용출특성에 미치는 영향에 관한 연구	186
	김광중 · 이규성 · 서용철 [연세대학교]	
	정찬우 [한국원자력안전기술원]	
	김인태 · 김준형 [한국원자력연구소]	
P01A21	Evaluation of the Demineralizer Performance and ⁶⁵ Zn Activity on Spent Resin for a Zine Addition Operation	191
	KwangRag Kim, KiWoung Sung, JungWon Na and UhChul Kim [KAERI]	
P01A22	방사성금속폐기물의 전해제염 실험 비교 분석	196
	강동우 · 박광수 · 문길호 · 엄달선 [두산중공업(주)]	
P01A23	방사성폐기물 아스팔트 고화체 안정화 특성연구	202
	김태국 · 이영희 · 이강무 · 안섭진 · 손종식 [한국원자력연구소]	
P01A24	고온공정에서 은교환 제올라이트 및 TEDA 침착활성탄의 유기요오드 제거성능	207
	최병선 · 박근일 · 윤주현 · 김성훈 · 배운영 · 지성균 [한국원자력연구소]	
	양호연 [한국수력원자력(주)]	
	유승곤 [충남대학교]	
P01A25	제올라이트를 이용한 용융염폐기물 고정화	215
	김정국 · 이재희 · 김준형 [한국원자력연구소]	
P01A26	방사성폐액중의 붕소와 나트륨의 물비 변화에 따른 농축폐액건조설비 운전경험사례	220
	김영식 · 김세태 · 안교수 · 박진석 [한국수력원자력(주)]	
	박종길 [현대원자력(주)]	

제1분과 (B) : 방사성폐기물처리 및 처분(II)-처분

좌장 오전 : 황용수 · 정찬우

오후 : 최종원 · 최희주

09:00	고준위 방사성폐기물 처분장에서 초기 용기 파손 시나리오의 장기 방사선적 안전성 평가	229
	황용수 · 서은진 · 이연명 · 강철형 [한국원자력연구소]	
09:20	방사성폐기물 처분장 감시를 위한 다발형 광섬유 센서 및 Tapered 섬광체 방사선 센서에 관한 연구	233
	김계홍 · 박재우 [제주대학교]	
09:40	중 · 저준위 방사성폐기물 처분시설 환경방사선조사 계획	239
	윤철환 · 한재문 · 김경덕 [한국수력원자력(주)]	
10:00	황사비밀의 영향에 의한 방사성 폐기물 시멘트 고화체의 침출특성 분석	244
	김혜진 · 이수홍 · 황주호 [경희대학교]	
	이재민 [고려공업검사(주)]	
10:40	방사성폐기물관련 신문의 위험보도내용 분석	251
	김수근 · 안소현 · 김종순 [방사선보건연구원]	
11:00	폐기물 인증프로그램	256
	정의영 · 이락희 · 고덕준 · 김 현 · 이제창 · 임석남 [한국수력원자력 (주)]	
11:20	국내 천층처분시설 방사성폐기물 수용요건 및 이행체계 수립	261
	정찬우 · 안상면 · 이윤근 · 석태원 · 박상훈 [한국원자력안전기술원]	
11:40	처분환경조건에서 모의 방사성폐기물 붕규산 유리고화체의 장기 침출률	266
	전관식 · 김승수 · 최종원 [한국원자력연구소]	
13:30	고준위 폐기물 처분용기 주변에서의 열전달 해석	270
	최희주 · 최종원 · 이종열 [한국원자력연구소]	
	권영주 [홍익대학교]	
13:50	원전수거물 처분장 후보부지 특성 평가 방안	276
	김천수 · 배대석 · 박천수 [한국원자력연구소]	
14:10	중 · 저준위 방사성폐기물처분시설 인허가심사 방안	283
	전제근 · 정승영 · 장재권 · 이관희 · 박원재 · 박상훈 [한국원자력안전기술원]	
14:30	한국형 처분시스템에 대한 생태계 평가의 한 예시	290
	이연명 · 황용수 · 강철형 [한국원자력연구소]	
15:10	One-Step Outflow Method를 이용한 불포화 수리전도도 측정	300
	이수홍 · 황주호 [경희대학교]	
	이재민 [고려공업검사]	
	김창락 [한국수력원자력(주)]	

15:30 Artificial Rainfall Test of the Engineered Cover Barriers for Near Surface Disposal of LILW	306
Jin Beak Park, Se Moon Park and Chang Lak Kim [한국수력원자력(주)]	
15:50 심지층 처분시설 설계를 위한 처분터널 및 처분공 간격 분석	315
이종열 · 김성기 · 김진용 · 최종원 · 한필수 [한국원자력연구소]	
16:10 Quantitative Comparison of Activity Calculation Methods for the Selection of Most Reliable Radionuclide Inventory Estimation	322
Kiha Hwang, Sangchul Lee and Kun Jai Lee [KAIST]	
Chanwoo Jeong, Sangmyeon Ahn [KINS]	
Taewook Kim, Kyoungdoek Kim, Y. H. HERR [NETEC]	

제2분과 (C) : 사용후 핵연료 및 핵연료 주기

좌장 지광용 · 윤지섭

09:00 사용후핵연료 차세대관리 종합공정 실증시설	331
정원명 · 구정희 · 조일제 · 국동학 · 이은표 · 백상열 · 이규일 · 유길성 · 박성원 [한국원자력연구소]	
09:20 소형 고하중 조작기를 이용한 사각지역 내 장치부품 보수공정 개발	337
이종열 · 김성현 · 송태길 · 박병석 · 윤지섭 [한국원자력연구소]	
09:40 차세대관리 종합공정장치 유지보수용 서보 매니플레이터 시제품 개발	345
박병석 · 진진현 · 안성호 · 김성현 · 홍동희 · 윤지섭 [한국원자력연구소]	
10:00 원전발생 방사성폐기물 시료 중 초우란원소의 정량	351
조기수 · 김태현 · 전영신 · 지광용 · 김원호 [한국원자력연구소]	
김태현 [(주) 액트]	
10:40 사용후핵연료의 전기화학적 금속전환을 위한 5 kg U ₃ O ₈ / Batch 규모의 Mock-up 시험	358
오승철 · 허진목 · 홍순석 · 이원경 · 서중석 · 박성원 [한국원자력연구소]	
11:00 AM, AEM 산화물들의 용융 LiCl에서의 분리 물성 측정	363
오승철 · 박병홍 · 강대승 · 서중석 · 박성원 [한국원자력연구소]	
11:20 우리늄의 건식전해정련 연구	368
강영호 · 황성찬 · 김용호 · 유재형 [한국원자력연구소]	
11:40 LiCl-Li ₂ O-O ₂ 용융염계에서 오스테나이트계 합금의 부식거동	373
오승철 · 윤기석 · 조수행 · 임종호 · 박성원 [한국원자력연구소]	

제2분과 (C) : 사용후 핵연료 및 핵연료주기 (Poster)

P02C01	경수로 사용후핵연료 폐피복관의 방사능 저감방안	381
	정인하 · 김종호 · 정양홍 · 송기찬 · 이정원 · 박장진 · 양명승 [한국원자력연구소]	
P02C02	주 입력장치를 이용한 가상 슬레이브 매니플레이터의 시각화	388
	김성현 · 송태길 · 이종열 · 윤지섭 [한국원자력연구소]	
P02C03	U-2wt%Nb, Ti, Ni 합금의 공기중 산화거동	395
	주준식 · 유길성 · 조일제 · 국동학 · 서항석 · 이은표 · 방경식 · 김호동 [한국원자력연구소]	
P02C04	The MUF of a Pilot-Scaled ACP Facility and Its Sensitivity	401
	W. I. Ko, D. Y. Song, S. Y. Lee, H. D. Kim and S. W. Park [한국원자력연구소]	
P02C05	DUPIC 시설의 지능형 핵물질 감시시스템	406
	송대용 · 이상윤 · 하장호 · 고원일 · 김호동 [한국원자력연구소]	
P02C06	차세대관리 종합공정 실증시설의 구조해석	411
	구정희 · 정원명 · 조일제 · 국동학 · 유길성 [한국원자력연구소]	
P02C07	환원추출에 의한 장수명핵종과 희토류 원소의 분리연구	421
	권상운 · 안병길 · 김응호 · 유재형 [한국원자력연구소]	
P02C08	LiF-BeF ₂ 용융염계에서 전해제련에 의한 우라늄 회수	426
	우문식 · 김응호 · 유재형 [한국원자력연구소]	
P02C09	그래픽 전산모사를 이용한 차세대관리공정 원격운반 취급 분석	431
	홍동희 · 윤지섭 · 김성현 · 송태길 · 진재현 [한국원자력연구소]	
P02C10	Remotely Operated Decontamination System for Use in DDFD	438
	Kiho Kim, Jangjin Park and Myungseung Yang [KAERI]	
P02C11	LiCl 용융염중에서 희토류 산화물과 산화리튬의 반응특성에 관한 연구	447
	오승철 · 박성빈 · 김상수 · 도재범 · 박성원 [한국원자력연구소]	

제3분과 (D) : 방사선안전 및 환경

좌장 김희근 · 정재학

13:30	월성 1호기 주기적 안전성평가기체 및 액체 방사성폐기물에 의한 환경영향	455
	김성민 · 이은미 · 김미자 · 이갑복 · 정양근 · 엄희문 [한국전력공사 전력연구원]	
13:50	KSNP의 보조건물 설계특성을 반영한 옥소 방사능 예상배출량 평가방법의 개선	463
	이관희 · 정재학 · 박원재 [한국원자력안전기술원]	

14:10 방사성폐기물 안전관리 데이터베이스 기본설계	470
손동찬 · 안경일 · 정덕진 · 조용백 [대상정보기술(주)]	
14:30 월성원전 TRF 가동에 따른 삼중수소 방출량 예측	484
송규민 · 이성진 · 이숙경 · 손순환 · 엄희문 [한국전력공사 전력연구원]	
15:10 선량환산인자를 이용한 기체유출물 RMS 경보설정 개선방안	491
박규준 · 김희근 · 하각현 · 엄희문 [한국전력공사 전력연구원]	
15:30 영광지역 특성자료를 적용한 매립 자체처분 피폭선량 평가	497
임용규 · 이지훈 · 양호연 · 신상운 [한국수력원자력(주)]	
15:50 원자력시설의 공기조화 시스템 고찰	503
백상열 · 송용섭 · 오연우 · 주용선 · 홍권표 [한국원자력연구소]	
16:10 중수로 환경방출 방사성이산화탄소 제거장치 개발	509
강덕원 · 지준화 · 엄희문 [한국전력공사 전력연구원]	

제3분과 (D) : 방사선안전 및 환경 (Poster)

P03D01 PP 재질의 물성에 미치는 방사선의 영향에 대한 이론적 고찰	517
김문수 · 강덕원 · 엄희문 [한국전력공사 전력연구원]	
P03D02 중 · 저준위 방사성폐기물 유리화 시설의 차폐해석에 관한 연구	524
이창민 · 이건재 [한국과학기술원]	
P03D03 A Study Improvement of Scaling Factor Prediction Using Artificial Neural Network	532
SangChul Lee, KiHa Hwang, SangHee Kang and Kunjai Lee [KAIST]	
P03D04 월성 삼중수소 저장시설 안전성 평가를 위한 시간에 따른 삼중수소 농도평가	539
육대식 · 이건재 [한국과학기술원]	
P03D05 바코드 라벨의 방사선 조사시험	544
배상민 · 이강무 · 손종식 · 홍권표 [한국원자력연구소]	
P03D06 방사성폐기물처분장 부지 · 환경종합관리를 위한 지리정보 시스템 구축방안	549
임용수 · 박세문 · 김창락 [한국수력원자력(주)]	
P03D07 하나로에서 기체 방사성폐기물 발생현황 분석	556
최호영 · 황승렬 · 강태진 · 이 문 [한국원자력연구소]	
P03D08 발전용원자로에서 뱃치방식으로 배출되는 액체상 방사성물질의 방사능 평가결과에 대한 불확도 해석	562
정재학 · 박원재 [한국원자력안전기술원]	

P03D09 방사성폐기물 통합관리시스템	572
송덕용 · 최성수 · 한병섭 [(주)액트]	
P03D10 방사성오염도의 내부피폭 선량평가 코드 비교계산	579
김은주 · 김희근 · 하각현 · 이형석 [한국전력공사 전력연구원]	
P03D11 핫셀시설의 방사선 안전성 평가	584
조일제 · 국동학 · 구정회 · 정원명 · 유길성 · 이은표 · 박성원 [한국원자력연구소]	
P03D12 Determination of the Neutron Effective Multiplication Factor for PWR Spent Fuel Assembly	590
HeeSung Shin, SeungGy Ro, GilSoo Kim, YoungHwa Hwang and HoDong Kim [KAERI]	
P03D13 사용후핵연료 금속전화공정시설의 방사선 환경영향 평가	596
국동학 · 정원명 · 구정회 · 조일제 · 이은표 · 유길성 [한국원자력연구소]	
P03D14 Thermal Analysis of a Spent Fuel Storage Cask under Normal and Off-Normal Conditions	601
J. C. Lee, K. S. Bang, K. S. Seo and H. D. Kim [KAERI] B. I. Choi and H. Y. Lee [KHNP]	
P03D15 ISO 12807에 따른 사용후핵연료 및 금속 전환체의 허용 누설률	609
방경식 · 이주찬 · 주준식 · 서기석 · 김호동 [한국원자력연구소]	
P03D16 고방사성 산화물핵연료의 해외수송방안 분석	614
이호희 · 박장진 · 양명승 · 서기석 [한국원자력연구소]	
P03A17 정상운전시 DFDF 시설의 환경영향평가	621
박장진 · 이호희 · 신진명 · 김종호 · 양명승 [한국원자력연구소]	
P03D18 사용후연료 건식 저장용기의 구조평가	627
서기석 · 이재한 · 강경훈 · 박성원 [한국원자력연구소] 정성환 [한국수력원자력(주)]	
P03D19 방사성폐기물 중의 ^{129}I 정량을 위한 오오드의 분리 및 회수	632
최계천 · 한선호 · 지광용 [한국원자력연구소]	
P03D20 고준위폐기물 처분 원가대상 분석	636
김성기 · 이종열 · 최종원 · 한필수 [한국원자력연구소]	

제4분과 (E) : 방사성폐기물 정책 및 시설해체

좌장 최왕규 · 박광현

13:30 KRR 1&2 제염 · 해체에서 방사성 금속 고체폐기물의 관리	645
정기정 · 이동규 · 정경환 · 이근우 · 박진호 [한국원자력연구소]	
13:50 액체 및 초임계 이산화탄소를 이용한 제염법	650
박광현 · 김홍두 · 김학원 · 고문성 · 윤청현 [경희대학교]	
14:10 연구용 원자로 2호기의 로심 집합체 제염 · 해체 경험	655
정경환 · 정기정 · 박진호 [한국원자력연구소]	
14:30 연구로 1,2호기 해체금속폐기물의 규제해제농도 기준(안) 도출을 위한 연구	660
홍상범 · 이봉재 · 정운수 [한국원자력연구소]	
15:10 열분해에 의한 고농도 질산염 폐액의 탈질	665
황두성 · 오종혁 · 최윤동 · 황성태 · 박진호 [한국원자력연구소]	
C. Latge [CEA Cadarache]	
15:30 연구로 2호기 동위원소 생산시설 해체활동 평가	671
박승국 · 천은영 · 박진호 [한국원자력연구소]	
15:50 제염용액에 의한 토양중 철 성분 용해특성	676
원희준 · 김계남 · 정중헌 · 최왕규 · 박진호 · 오원진 [한국원자력연구소]	
16:10 연구로 해체 DB User Interface 설계	681
박희성 · 정관성 · 이근우 · 백삼태 · 이규일 · 박진호 [한국원자력연구소]	

제4분과 (E) : 방사성폐기물 정책 및 시설해체 (Poster)

P04E01 Electrochemical Decontamination of Metallic Wastes contaminated with Uranium Compounds in a Neutral Salt Electrolyte	689
W. K. Choi, Y. M. Yang, C. H. Jung, H. j. Won, W. Z. Oh and J. H. Park [KAERI]	
P04E02 동전기적방법을 이용한 방사능오염토양 내의 세슘제거	696
김계남 · 원희준 · 김민길 · 박진호 · 오원진 [한국원자력연구소]	
P04E03 Removal of Uranium Ions in Lagoon Waste by Electrosorption	701
ChongHun Jung, Huijun Won, WangKyu Choi, Wonzin Oh , Jinho Park, GyeNam Kim and SungTae Hwang [KAERI]	

P04E04 연구용 원자로 2호기 해체과정 전산모사	707
김성균 · 정관성 · 백삼태 · 이근우 · 박진호 [한국원자력연구소]	
P04E05 TRIGA 연구로 해체 시 발생하는 덩트 폐기물의 제염	720
최왕규 · 이근우 · 정경환 · 오원진 · 박진호 [한국원자력연구소]	

제1분과(A)

방사성폐기물처리 및 처분(1) - 처리

빈 면

막분리 공정을 이용한 SIES 전처리설비 개념 설계

Conceptual Design of Pretreatment Process for SIES Using Membrane Process

이상진, 양호연, 신상운
한국수력원자력(주) 원자력환경기술원

요 약

고리 2호기 선택성 이온교환시스템(SIES)은 운영 과정에서 본 설비에 유입되는 방사성 폐액에 함유된 부유물질과 기름 성분들에 의해 선택성 이온교환설비의 활성탄과 이온교환수지가 쉽게 오염되어 이온 형태의 방사성 핵종과 부식성 입자성 방사성 핵종인 Ag-110m의 제거가 불가능한 문제점이 대두되었다. 본 연구에서는 SIES로 유입되는 수질을 개선하기 위한 실험을 수행하여 설계 기초 자료를 확보하였고, SIES 전처리 설비의 정밀여과분리막과 나노분리막에 대한 각각의 모듈 설계를 수행하였다.

Abstract

During operation process of SIES(Selective ion exchange system) at Kori Unit 2, it was impossible to remove radionuclides such as ion form and Ag-110m, etc., because activated carbon and ion exchange resin of this system are fouled easily by suspended solids and oils in liquid radwaste that was flowed in this system. In this study, an experiment to improve quality of water which was flowed in SIES was performed. and design data of Scale-up pretreatment process were secured. Also, each module design for Microfiltration and Nanofiltration unit of the pretreatment process for SIES was performed.

1. 서 론

국내 원자력발전소 고리 2호기에서는 액체 방사성 폐기물 처리시스템 운전과정에서 방사성 폐액에 함유된 부유물질과 기름성분들에 의해 선택성 이온교환설비의 활성탄과 이온교환수지가 쉽게 오염이 되는 등 운영상의 제반 문제가 대두되어, 선택성 이온교환설비의 정상적인 운전이 불가능하였을 뿐만 아니라 입자성 핵종인 Ag-110m의 제거가 불가능했기 때문에 보완 및 개선 방법이 필요하게 되었다.

본 연구에서는 정밀여과분리막(MF)과 나노분리막(NF)을 조합한 실험실 규모 처리 장치와 고리 2호기 선택성 이온교환설비를 축소·모사한 소규모 선택성 이온교환장치를 제작하여 원전 운영중 발생된 방사성 폐액을 대상으로 현장실험을 수행하였다. 현장 실험을 통해 확보된 설계 입력 자료를 바탕으로 고리 2호기선택성 이온교환설비의 전처리 설비를 설계 및 제작하였다.

2. 본 론

2.1 고려 사항

본 연구에서 고려한 처리 대상 폐액은 표 1에 나타난 고리 1발 2호기에서 방사성 폐액을 수집해 놓은 WHT(Waste Holdup Tank)와 FDT(Floor Drain Tank)폐액이다. 처리 유량은 각 막 장치를 통과하여 얻고자하는 목표 유량으로 MF 장치는 2톤/hr으로, NF 장치는 1톤/hr이다.

표 1 대상 방사성 폐액의 수질

구 분	pH	탁도 (NTU)	SS (ppb)	총방사능(μCi/cc)
FDT	6.41	58.9	38,000	1.534E-03
WHT	5.98	42.6	23,100	2.499E-02

2.2 실험 및 결과[1, 2]

2.2.1 배열 결정 실험

FDT 폐액을 정밀여과분리막-나노분리막-소규모 선택성이온교환수지 공정으로 처리한 결과 탁도와 부유물질의 경우 정밀여과분리막에서 98.7%, 98.1 %, 나노분리막에서 93.5 %, 95.8%가 각각 제거되었으며, 정밀여과분리막 처리수를 나노분리막으로 처리한 결과 Ag-110m은 대부분 제거되었으며, 나노분리막 처리수를 소규모 선택성 이온교환장치로 처리한 결과 방사성 핵종을 모두 제거할 수 있어 나노분리막 처리수의 경우 선택성이온교환수지의 운전조건을 만족할 수 있었다.

정밀여과분리막-이온교환수지-나노분리막 공정으로 WHT 폐액을 처리한 경우 정밀여과분리막 처리수를 소규모 선택성 이온교환장치로 유입한 결과 처리수 0.06 m³ 이상으로부터 방사성 핵종이 검출되었으며, 0.09 m³ 이상의 처리수부터는 Ag-110m이 검출되었다. 소규모 선택성 이온교환장치 처리수내 Ag-110m은 나노분리막에서 모두 제거가 가능하였으나, Co-58 등은 제거되지 못하는 결과를 얻어 선택성이온교환수지 후단에 나노분리막을 후처리 장치로 사용하는 것은 적절치 못한 것으로 판단된다.

상기 실험결과, 선택성 이온교환장치를 이용하여 방사성 폐액을 처리할 경우, 반드시 전처리 장치가 필요한 것으로 생각되며, 또한 나노분리막은 Ag-110m은 제거하는 반면, Co-58 등 핵종을 제거하지 못하고 있어 방사성 폐액의 처리 공정은 정밀여과분리막-나노분리막-이온교환수지라고 판단된다.

2.2.2 연속운전 결과

처리공정별 실험 결과를 근거로 정밀여과분리막-나노분리막-이온교환수지 공정으로 WHT 폐액을 연속 처리하였다. 각 장치별 처리수질과 시간대별 각장치의 특성을 각각 표 2에 나타내었다.

정밀여과분리막은 24시간 후에는 약 3배의 차압이 상승하였으나, 처리유량은 약 25 %만이 감소하는 결과를 보였다. 정밀여과분리막은 대부분의 부유물질을 제거한 결과 처리수의 총유기탄소(TOC) 제거율이 75 % 이상으로 나타나 폐액의 총유기탄소는 대부분 입자성 물질에 기인하는 것으로 확인되었다. 정밀여과분리막 처리수를 나노분리막으로 공급한 결과 12 %의 회수율을 나타내었다. 실험기간 동안 처리수 중에 Ag-110m은 대부분 제거가 되었음을 확인하였다. 나노분리막 처리수를 이온교환수지 장치에 공급한 결과 대부분의 핵종의 제거가 이루어졌음을 확인하였다. 처리공정별 실험에서 FDT 폐액을 처리할 때 보다 핵종 농도가 높은 WHT 폐액을 처리하였음에도 핵종의 제거 효율은 우수하였다.

표 2 시간대별 각 장치 운전 특성

날짜 및 시간	MF 유량 (톤/시간)	MF 압력 (cmHg)	MF 총처리량(ℓ)	NF 압력 (kgf/cm ²)	NF 처리량(ℓ)	SIES 처리량(ℓ)	SIES 처리수 핵종
01.09 14:00	1	10	2,650	8	30		N/D
01.09 17:00	1	10	5,750	8	230		N/D
01.09 20:00	1	12	8,450	7.9	390		N/D
01.10 04:17	1	15	13,300	7.9	717		N/D
01.10 05:10	0.9	20	17,300	7.9	950		N/D
01.10 06:00	0.9	20	18,600	7.9	1,140	990	
01.10 09:00	0.8	22	21,000	8	1,260	1,170	
01.10 12:00	0.8	26	22,800	8	1,420	1,350	
01.10 13:15	0.7~0.8	30	23,700	가동중지	1,440	1,420	N/D 가동중지
01.10 14:00	0.7~0.8	30	23,900				

3. 개념 설계

3.1 MF 막 장치 모듈 설계

WHT 폐액을 대상으로 연속 운전 실험한 결과에 의하면 MF 모듈당 처리용량은 평균 24 m³/day이었고, 시간당 최하 처리 용량은 0.7 m³/hr이었다. 따라서 목표 MF 처리 유량이 2 m³/hr이므로 MF 모듈의 개수는 2.86[(2 m³/hr)/(0.7 m³/hr/모듈)]으로 약 3모듈로 2.1 m³/hr을 처리할 수 있는 유량이 된다. 그러나, 이러한 3 개의 모듈은 시간 가동율(가동시간)과 역세수의 소모에 의하여 목표 처리용량인 2 m³/hr를 확보할 수 없으므로 4개의 모듈(처리유량 2.8 m³/hr)을 적용하는 것이 바람직할 것으로 판단된다. 따라서, 막제조 회사에서 권고하는 표준 운전 모드에서 실제 가동 시간[55 min(0.92 hr)]을 고려한 MF 막 모듈당 처리 용량은 2.6 m³/hr(4모듈×0.7m³/hr/모듈×0.92hr/hr)이며, 표준 운전 모드에서 역세 시간에 대한 시간 당 모듈의 역세 유량은 0.0837 m³/hr(0.45 L/sec×m²/1,000L×60sec/min× 3.1 min/hr)이다[3]. 즉, 목표 처리 유량은 2 m³/hr이지만, 4 개의 MF 막모듈을 고려하면 실제 처리 유량은 2.5 m³/hr(2.6 m³/hr - 0.0837m³/hr)이 된다.

3.2 나노분리막 장치

3.2.1 나노분리막 장치 모듈 설계

나노분리막의 일반사항과 제작사에서 제공하는 표준운전 지침을 아래의 표 3에 나타내었으며, 이를 근거로 하여 나노분리막 모듈 소요개수를 처리 대상 용량 값에 대응하는 유량으로 도출하였다[4]. 막 제작사에서 제공하는 성능을 근거로 한 나노분리막 모듈 소요개수는 목표 처리 유량이 1 m³/hr이므로 표 3에 나타낸 NF 처리용량[2.6 m³/day(0.11 m³/hr)]을 기준으로 하면 약 10모듈[(1m³/hr)/(0.11 m³/hr/모듈)]로서, 나노분리막 제작사에서 제공되는 일반적 매뉴얼에 근거한 모듈 개수는 10개로 예측되었다. 이는 나노분리막 제작사에서 제공하는 매뉴얼에 의한 것으로 본 연구에서는 실제 현장 실험에서 도출된 결과인 표 2를 이용하여 분리막의 회수율 및 분리막 단위 면적당 플럭스를 구분하여 분리막의 소요개수를 도출하였다[표 4]. 표준운전지침과 실제 운전결과를 근거로 하여 예측한 분리막 소요개수는 약 1.7 배의 증가를 나타내었다. 이와 같은 결과는 표준운전과 달리 실제 실험에서 회수율이 낮게 나타난 결과이다. 설계에 반영되어질 실제실험 결과를 근거로 하여 NF 분리막 시스템의 효율적인 배치, 나노분리막 교체시 작업량 최소화, 유로의 간소화 및 처리용량의 안정성 등을 설계에 반영하고자 하였다. 따라서 나노분리막의 선정에 있어서 운영 및 성능 측면에서 동일하며, 분리막의 단위 처리능력이 큰 즉, 분리막의 면적이 높은 NF 90-4040을 선정하여 현장에 적용하고자 한다. NF 90-4040은 유효면적은 7.6 m²이며 처리용량은 6.4 m³/day인 제품이다. 또한 이 분리막으로 대상으로 실제 적용할 경우 회수율 및 플럭스의 차이를 극복할 수

있는 모의 테스트를 실시하였으며, 9 %의 회수율과 23.68 LMH($l/m^2/hr$)의 플럭스를 나타내었다. 표 4, 5에서 NF-90-2540 및 NF 90-4040의 적용수량을 예측하기 위한 계산 결과를 도시하였다. 또한 처리의 안정성을 확보하기 위하여 예측된 설계수량에 약 30%의 안전율을 적용하여 최종 나노분리막(NF 90-4040) 모듈의 소요개수는 8 모듈로 선정하였다.

표. 3 나노분리막의 사양 및 표준운전지침

Nano-filtration 일반사양	표준 운전 지침(설계지침/제조사 제공)
<ul style="list-style-type: none"> ○ 모델 명 : NF 90 - 2540 ○ 형 태 : Spiral-Wound ○ 운전형태 : 가압식 ○ Effective Area : 2.1 m^2 ○ 처리용량 : 2.6 m^3/day ○ 운전압력 : 15 kg_f/cm^2 ○ Dimension : 1,016 L(mm) × ϕ 6.1(mm) ○ Material : Polyamide Composite ○ Bonding : Urethane & Epoxy resin 	<ul style="list-style-type: none"> ○ 운전압력 : 15 kg_f/cm^2 이하 ○ 최대 허용 공급수 용량 : 1.2 m^3/hr ○ 허용 탁도 범위 : 1 NTU 이하 ○ 투과수 대 농축수 비율 : 5 대 1 ○ 회수율 범위 : 15 % 이하 (평균 10 % 이내)

3.2.2 나노분리막 배열 설계

분리막의 배열(Array)은 공급펌프, 투과수량 및 농축수 등을 고려하여 선정해야 하며, 설계에 근거하여 목표하는 회수율을 확보할 수 있는 배열을 선정해야 한다.

목표하는 투과수량 즉 회수율과 농축율을 최대화 하면서 안정된 수량을 확보할 수 있는 방안 그리고 공급펌프의 동력을 최소화 할 수 있는 배열을 선정함이 적절할 것이다. 따라서 본 설계에서는 안정된 회수율을 확보할 수 있는 병렬식과 농축율을 최대화하며 공급펌프의 동력을 절감 할 수 있는 직렬식을 조합하여 직·병렬식으로 선정하였다. 선정된 배열은 아래 그림 1과 같으며, 설계계산에서 선정되어진 8 개의 분리막을 4단 직렬과 2단 병렬로 하여 설계하였다. 본 배열에서 예상할 수 있는 것은 직렬배열에 따라 단수가 후단으로 갈수록 고농도의 농축수가 유입되어지므로 회수율은 감소하며 농축수량은 증가될 것으로 예상된다. 또한 처리수가 배출됨에 따라 공급펌프에서 보상하므로 극복할 수 있으며, 처리수 대 농축수의 비율을 회수율 범위 내에서 결정될 것이다.

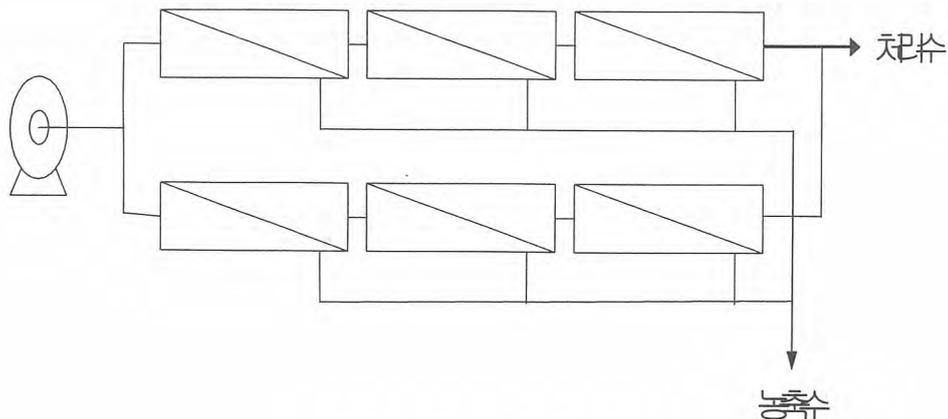


그림 1. NF 90-4040 배열

표 4. 회수율 및 플럭스에 따른 나노분리막(NF 90-2540) 모듈 소요개수

실험결과	<ul style="list-style-type: none"> - 공급유량(m³/hr) : 0.5 - 투과유량(m³/hr) : 0.06 - 회수율(%) : $(0.06/0.5) \times 100 = 12$
회수율에 따른 NF 모듈 개수	<ul style="list-style-type: none"> - 처리용량 : 1 m³/hr - 공급수 유량 : 1.2 m³/hr - 회수율 : 12 % - NF 모듈 처리용량 : 0.06 m³/hr $NF \text{ 모듈개수} = \frac{1 \text{ m}^3/hr}{0.06 \text{ m}^3/hr} = 16.67 \text{ 모듈} \approx 17 \text{ 모듈}$
플럭스에 의한 NF 모듈 개수	<ul style="list-style-type: none"> - 처리용량 : 1 m³/hr = 1,000 L/hr - 투과유량 : 0.06 m³/hr - 분리막 면적 : 2.1 m² - 플럭스 = $\frac{0.06 \text{ m}^3/hr}{2.1 \text{ m}^2} = 28.57 \text{ LMH}$ $\text{요구분리막면적} = \frac{1,000 \text{ L/hr}}{28.57 \text{ L/m}^2/hr} = 35 \text{ m}^2$ $NF\text{분리막개수} = \frac{35 \text{ m}^2}{2.1 \text{ m}^2/\text{모듈}} = 16.67 \text{ 모듈} = 17 \text{ 모듈}$

표 5. 회수율 및 플럭스에 따른 나노분리막(NF 90-4040) 모듈 소요개수

회수율에 따른 NF 모듈 개수	<ul style="list-style-type: none"> - 처리용량 : 1 m³/hr - 공급수 유량 : 3 m³/hr - 회수율 : 9 % - NF 모듈 처리용량 : 0.18 m³/hr $NF \text{ 모듈개수} = \frac{1 \text{ m}^3/hr}{0.18 \text{ m}^3/hr} = 5.56 \text{ 모듈} \approx 6 \text{ 모듈}$
플럭스에 의한 NF 모듈 개수	<ul style="list-style-type: none"> - 처리용량 : 1 m³/hr = 1,000 L/hr - 투과유량 : 0.18 m³/hr - 분리막 면적 : 7.6 m² - 플럭스 = $\frac{0.18 \text{ m}^3/hr}{7.6 \text{ m}^2} = 23.68 \text{ LMH}$ $\text{요구분리막면적} = \frac{1,000 \text{ L/hr}}{23.68 \text{ L/m}^2/hr} = 42 \text{ m}^2$ $NF\text{분리막개수} = \frac{42 \text{ m}^2}{7.6 \text{ m}^2/\text{모듈}} = 5.53 \text{ 모듈} \approx 6 \text{ 모듈}$

4. 결 론

고리 1발 2호기에서 발생된 방사성 폐액에 정밀여과분리막과 나노여과막을 조합한 공정을 적용한 실험을 수행한 결과, 선택성 이온교환설비에 여과막을 적용할 경우 공정 배열은 정밀여과분리막-나노분리막-선택성이온교환설비의 순서가 가장 최적 배열임을 확인하였다.

연속 운전 실험을 통해 얻어진 데이터를 이용하여 정밀여과분리막과 나노분리막의 모듈에 대한 개념 설계를 수행하여 각각 정밀여과분리막은 4개 모듈, 나노분리막은 8개의 모듈을 도출하였다. 이러한 결과는 막분리 공정을 이용한 SIES 전처리 설비 설계 및 제작에 활용될 것이다.

5. 참 고 문 헌

- [1] 신상운외, 액체방사성폐기물 처리계통 선택성 이온교환설비(SIES) 개선, 한국수력원자력(주), 원자력환경기술원, 기술보고서, 2003-환경-단15(2003).
- [2] 이상진외, 이온교환 보완 공정으로서의 막분리 공정의 적용, 2003년 춘계 대한방사선 방어학회 논문집, pp. 149-153, 2003.04.25. 원자력의학원.
- [3] (주) 이엔이 SuperMak 고인장강도 침지형 중공사 분리막.
- [4] <http://www.dow.com/liquidseps/pc/jump/filmtec/nf904040.htm>

방사성고화체로 부터의 Co, Cs침출에 대한 표준시험법의 상호비교

Comparative Evaluation of Various Standard Methods in Leaching Test of Radioactive Waste Form

김기홍, 유영걸, 정경기, 홍권표
한국원자력연구소
이락희, 정의영, 고덕준, 김현
한국수력원자력(주) 원자력환경기술원

요 약

IAEA, FT-04-020, ANS 16.1의 침출시험법을 각각 수행하여 얻은 시험결과를 이용하여 상호비교 평가하였다. 봉산을 함유한 파라핀 및 시멘트 고화체에서의 Co-60과 Cs-137의 침출지수는 6 이상이었으나 고화매질과 탈염수의 종류에 따라 상반되는 침출거동을 보였다. 침출수로 합성해수와 탈염수를 사용하였을 경우 Co는 시멘트 고화체에서는 합성해수, 파라핀 고화체에서는 탈염수에서 침출이 높았다. 반면에 Cs의 침출정도는 시멘트에서는 탈염수, 파라핀에서는 합성해수에서 높았다. Co의 침출분율은 시멘트 고화체에서 IAEA > ANS > FT의 순으로 높았으며, 반대로 파라핀 고화체에서는 이의 역순이었다.

Abstract

IAEA, FT-04-020, and ANS 16.1, standard leaching test methods, were evaluated comparatively with their test results. Leaching index of Co-60 and Cs-137 for all waste forms were above 6.0. Their leaching behavior were contrary according to the type of matrix and leachant. Leachability of Co in cement waste form was higher in simulated seawater than demi. water, and higher in demi. water in paraffin waste form. Leachability of Cs was contrary to Cs. Cumulative fraction leached of Co was higher such as IAEA > ANS > FT in cement waste form.

1. 서 론

방사성폐기물 고화체내에는 방사성핵종이 함유되어 있어 이로부터의 침출특성 규명은 고화체의 개발과 그의 특성규명, 폐기물관리시스템 선택을 위한 안전성 해석 및 폐기물 고정화 시설에 대한 품질보증 활동의 일부분으로 중요한 역할을 하게 된다. 침출시험 결과는 고화체의 품질보증과 실험실간 상호비교가 매우 중요한 사항이기 때문에 세계 각국에서는 많은 침출시험법들을 개발하여 각국의 실정에 부합되게 표준화하고 있다.

침출시험법은 크게 사용 목적, 침출수 교체 및 교반 유무에 따라 분류할 수 있는데 많은 시험법 중에서 처분장 운영국가와 실험실에서 널리 이용되는 IAEA 시험방법은 반무한고체 모델에 의해 확산 침출과정을 해석할 수 있는 시험법이다. 이 시험법은 시편상부의 한 단면만을 노출시키고 나머지 면은 시편 제조용기나 침출수의 침입을 차단할 수 있는 물질로 둘러싸게 하여 침출시험동안 고화체의 건전성을 유지할 수 있기 때문에 시멘트 고화체와 같은 rigid한 시편보다는 아스팔트나 파라핀 고화체와 같은 flexible한 고화체 시편에 매우 적합할 것으로 보인다. 대략적인 총 시험기간은 8 개월 이상으로 하고 필요에 따라 그 기간을 연장할 수 있게 되어 있다.

ANS 16.1에서는 90 일간의 시험기간을 요구하고 있는데 이 기간동안 침출시험의 진행에 따라 침출기구에 어떠한 변화가 있는지 알아보기 위한 것이다. 고화체로부터 관찰된 초기 침출율은 대부분 확산에 의해 설명되고 있으며 침식, 용해 또는 부식과 같은 다른 기구는 오랜 침출 시간 후에 구별할 수가 있다. 시멘트 고화체에 대하여 5 및 90일 시험을 비교한 결과 대부분의 시편에 대하여 5 일과 90 일 사이의 침출지수의 차는 비교적 작으므로, 시멘트 고화체에 대해 5 일간 침수 시험이면 충분하다고 한다.

그리고 프랑스의 FT-04-020 침출시험법은 실제 방사성 폐기물로 행하거나, 고화체 폐기물을 대표할 수 있는 시편으로 행해지며, 소규모 시편 또는 실고화체 크기의 시편으로 수행할 수 있다. 이 시험법은 국제 규정인 ISO 6961에 근거를 두고 있으며 ISO-6961은 E.D.HESPE (IAEA)법에 근거를 두고 있다.

본 연구에서는 현재 중저준위 처분장을 운영하고 있는 미국과 프랑스 그리고 IAEA에서 권고하고 있는 시험법들인 ANS 16.1, FT-04-020 및 HEPSE method을 방사성 핵종을 이용하여 상호비교 평가하였다.

2. 각국의 침출시험법

가. IAEA 침출시험법

침출시험에서 침출액 교체마다 침출액내로 누출된 핵종의 방사능을 측정 한 후 아래 식을 이용하여 도식화하고, 도식화된 직선으로부터 기울기를 계산하여 유효확산계수(cm^2/day)를 구한다.

$$(\sum a_n/A_o)/(S/V) \text{ versus } \sum t_n \text{ 또는 } (\sum a_n/A_o) \text{ versus } \sum \sqrt{t_n}$$

여기서,

a_n : 침출액 교체기간(n)동안에 침출된 방사능(Bq or μCi)

A_o : 시편의 초기 방사선량(Bq or μCi)

S : 시편의 노출면적(cm^2)

V : 시편의 부피(cm^3)

t_n : 침출액 교체기간(day).

침출액 교환시 누출된 방사능을 침출 교체시간($(t_n - (t_n - t_{n-1}))/2$)에 대하여 아래 식을 이용하여 침출율을 계산한다.

$$R_n = (a_n/A_o)/(F/V)t_n$$

나. 프랑스의 FT-04-020 시험법

각 핵종에 대해 침출시간 t_i 후의 침출율은 아래 식으로 구한다.

$$FL = \frac{a_i}{A_i}$$

여기서,

a_i : i단계에서 누출된 방사능(Bq or Ci)

A_i : 시간 ($t_0 + t_i$)에서 계산된 시료의 초기 방사능 Bq (혹은 Ci), 여기서 t_0 는 초기 침출 시험기간

그리고 침출 연간 방사능 분율은 다음과 같은 관계로 표현한다.

$$FAL = \sum \left(\frac{a_i}{A_i} \right)$$

침출 연간 방사능 분율은, 실제 포장물의 다른 크기 시편에 대해서 얻은 경우에는 포장물과 시료에 대해 침출 속도가 동일하다는 가정하에 보정이 이루어져야 한다.

$$FAL = \sum \left(\frac{a_i}{A_i} \right) \frac{v_1}{s_1} \frac{S}{V}$$

여기서

v_1 : 초기 시료의 부피 m^3 (혹은 cm^3)

s_1 : 침출액에 노출된 초기 시료의 표면적 m^2 (혹은 cm^2)

s : 포장물의 외관 면적 m^2 (혹은 cm^2)

v : 포장물의 부피 m^3 (혹은 cm^3)

평균 침출속도는 초기 침출 단계를 지난 후 계산되며, 각 핵종에 대해 다음과 같은 식으로 표현한다.

$$R_o = \sum \left(\frac{a_i}{A_i} \right) \frac{V}{S} \frac{1}{\sum \Delta t_i}$$

여기서

R_o : 포장물의 평균 침출속도는 m/s (혹은 cm/d) 혹은 kg/m^3 (혹은 $g/cm^3 \cdot s$)인데, 이는 먼저 얻는 값에 포장물의 비중 kg/m^3 (혹은 g/cm^3)을 곱해서 얻는다.

$\sum \left(\frac{a_i}{A_i} \right)$: 이는 연간 방사선 침출율로서, 경우에 따라서는 크기에 따라서 보정된 값

여기서,

V : 포장물의 부피 m^3 (혹은 cm^3)

S : 침출액에 노출된 포장물의 초기 기하학적 면적 m^2 (혹은 cm^2)

다. 미국의 ANS 16.1 시험법

본 시험법에서는 고화체로부터 침출된 방사능이 20%이하인 경우에는 침출기구는 주로 확산거동에 의한 것으로 판단하여 아래와 같은 과정을 거쳐 최종 침출지수를 구한다.

$$D = \pi \left[\frac{a_n/A_o}{(\Delta t)_n} \right]^2 \left\{ \frac{V}{S} \right\}^2 T$$

여기서,

D = 유효 확산계수(cm^2/s)

V = 시편의 체적(cm³)
 S = 시편의 표면적(cm²)

$$T = \left[\frac{1}{2} (t_n^{1/2} + t_{n-1}^{1/2}) \right]^2$$

n 번째 침출구간의 평균시간을 의미하는 침출시간

위 식에서 구한 유효확산계수로부터 아래 식을 이용하여 침출지수를 결정한다.

$$Li = \frac{1}{10} \sum_{i=1}^{10} [\log(\beta/Di)]_n$$

여기서, β 는 결정되어 있는 상수이며(1.0cm²/s), Di는 시험자료로부터 계산된 핵종 i의 유효확산계수이다.

3. 침출시험

가. 침출시험용 시험시편 제조

(1) 시편의 재료

고화체 제조에 사용된 시멘트는 포틀란트 I형, 파라핀 왁스는 국내 원자력발전소에서 사용하고 있는 Aristowax 165(Fully Refined Paraffin Wax)와 순도 99.8%인 미세분말 형태의 붕산, 이온교환수지로는 IRN-150LC를 사용하였다.

침출수로 탈염수(pH = 6.02, L(conductivity) = 1.01 μ S/cm) 와 ANS 16.1에 기술된 합성해수(pH = 8.19, L(conductivity) = 51.0 μ S/cm)를 이용하였다.

(2) 시멘트 고화체

고화체의 침출시험을 위한 고화체 제조는 KSL 5109(2001)에 기술된 혼합용기를 사용하였으며 또한 기술된 혼합시간 및 혼합속도에 따라 방사성 고화체를 제조하였다.

이때 붕산함유 시멘트 고화체 제조를 위하여 붕산폐액은 70℃에서 붕산의 농도가 12 wt.%가 되도록 한 후, NaOH로 중화처리하여 pH가 8이 되도록 하였다. 고화 혼합비율은 무게비율로 붕산 농축폐액 / 시멘트 / 소석회 = 39.0 / 55.1 / 5.9(wt.%)로 하였다.

한편 폐수지함유 시멘트 고화체의 혼합비율은 폐수지/물/시멘트/소석회 = 9.40/22.11/61.69/6.68(wt.%)이 되도록 하였다. 폐수지와 물의 비율을 결정하기 위하여 폐수지(IRN-150LC)의 수분함유율은 50.67 wt.%, 습윤수지의 진밀도는 1.1138 g/cm³, 수지사이의 공극율은 34.5%로 하였다. 따라서 수지내부의 물은 시멘트 고화에 참여치 않고 오직 수지사이의 공극에 존재하게 되는 물만 시멘트 고화에 참여하는 것으로 계산하였다. 그리고 물은 100 ppm의 붕산을 함유하는 것으로 하였다.

(3) 파라핀 고화체

Fig. 1의 반응용기에 먼저 파라핀왁스를 주입하여 완전히 녹인 후 투입구를 통해 붕산을 조금씩 넣으며 교반기를 사용하여 혼합하였다. 가열온도는 파라핀왁스의 전열벽면에서의 탄화방지를 위하여 90 ~ 100℃를 유지하였고, 교반기의 교반속도는 약 180

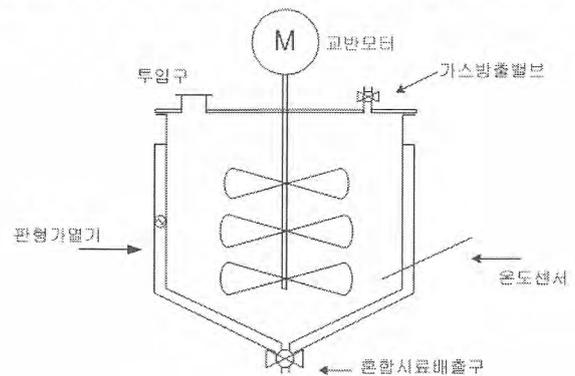


Fig. 1. Parafin Wax Mixer

rpm으로 하였다. 약 10분 동안 혼합시킨 후 완전하게 섞인 혼합물을 PE 원통형 몰드에 담아 약 15일간 경화시킨 후 몰드를 제거하여 시편을 제조하였다. 이때 붕산과 파라핀 왁스의 혼합비는 원자력발전소의 CDWS 운전기록을 참조하여 무게비(%)로 70 : 30으로 하였다.

(4) 초기 방사능량

고화체의 침출특성을 규명하기 위하여 분석이 용이한 방사성 추적자를 이용하였는데 방사성 추적자로 Co-60과 Cs-137을 이용하였다. 고화체에 주입된 방사능량은 사전에 연구소의 실험과 Co와 Cs 염의 용해도(수용성 및 불용성 정도) 그리고 고화매질을 고려하여 결정하였다. 본 연구에서 수행한 각국의 표준 침출시험법의 상호비교를 위하여 동일 크기의 시편에 동일한 방사능이 주입 되도록 하였으며 이때 시편의 크기는 직경/높이 = 1로 하면서 직경이 50, 80mm인 시편들을 제조하였다. 시편크기와 고화매질별 주입된 방사능량은 Table 1과 같다.

Table 1. Initial Activities of Co-60 and Cs-137 Incorporated in Waste Form

고화매질	시편크기, mm	폐기물 종류	방사능량, μCi	
			Co-60	Cs-137
시멘트	50	붕산	54.105 ~ 59.126	18.867 ~ 19.709
		폐수지	55.916 ~ 60.391	19.880 ~ 23.939
	80	붕산	204.615 ~ 242.750	71.077 ~ 80.917
		폐수지	246.306 ~ 258.081	88.705 ~ 92.945
파라핀	50	붕산	35.548 ~ 38.883	12.949 ~ 14.914
	80		149.808 ~ 160.911	54.349 ~ 62.064

나. 침출 시험방법

(1) IAEA 방법

Fig. 2처럼 고화체 제조 몰드용기를 그대로 사용하면서 고화체의 상부만을 노출시켰는데 이를 위하여 용기와 고화체간의 틈을 에폭시 접착제와 순간접착제를 순차적으로 사용하여 고화체가 침수되었을 때 고화체와 용기 틈사이로 침출수의 입출입이 불가능하게 하였다. 이어서 침출수/시편의 노출면적 $\leq 10\text{cm}^2$ 의 침출수를 넣을 수 있는 용기속에 시편을 주입하였다. 이때 시편이 침출용기의 중간부분에 위치토록 하기위하여 접착면을 최소화 하면서 SS줄을 이용하였으며 침출용기의 2중 덮개중 안쪽 덮개에 걸어 흔들림이 없도록 하였다.

침출시험은 상온($25\pm 5^\circ\text{C}$)에서 수행하였으며, 침출시험 시작 후 일주일 동안은 매일 1회씩, 8주 동안에는 주 1회씩, 6개월 동안에는 월 1회씩 침출수(탈염수와 합성해수)를 교체하였으며, 침출액 150ml를 채취하여 pH, conductivity 그리고 핵종별 방사능을 분석하였다.

(2) 프랑스의 FT-04-020 침출시험 방법

본 시험법은 IAEA법과는 달리 시편의 전면을 침출수에 노출토록 하며, 침출수로 처분장의 지하수로 수행토록 요구하고 있으며 침출수 교체시기에 차이가 있다.

따라서 본 연구에서는 Fig. 2에서 시편몰드를 제거하

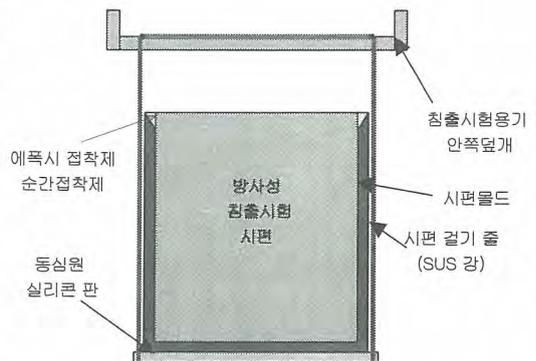


Fig. 2. Conditioning of Specimen for Leaching Test

여 시편의 전면을 침출수(탈염수와 해수)에 노출되도록 가공하였다. 침출수/시편의 노출면적 $\leq 10\text{cm}$ 의 침출수를 넣을 수 있는 용기속에 시편을 주입하여 상온에서 침출시험을 수행하였다. 침출수 교체는 누적일수로 3, 7, 15, 60, 90, 180, 270일로 하였다. 침출수 교체시 침출액 400ml를 채취하여 pH, conductivity 그리고 핵종별 방사능을 분석하였다.

(3) 미국의 ANS 16.1 침출시험 방법

침출시험은 FT-04-020과 동일하게 수행하였으며 다만 침출수 교체는 누적시간으로 2, 7, 24, 28, 72, 96, 120, 456, 1128 그리고 2160시간으로 수행하였다. 침출수 교체시 침출액 400ml를 채취하여 pH, conductivity 그리고 핵종별 방사능을 분석하였다.

4. 결과 및 고찰

가. 각 시험법의 침출시험 결과

(1) IAEA

Fig. 3에 봉산이 함유된 시멘트 고화체로부터 침출된 Co-60의 누적 침출분율을, Fig 4에는 파라핀 고화체로부터의 침출된 Co-60의 누적 침출분율을 나타냈다. 그리고 Fig. 5에는 두 고화체의 Cs-137에 대한 누적 침출분율을 나타냈다. Fig 3과 4에서 보듯이 파라핀 고화체에서 Co의 침출이 시멘트 고화체에 비하여 약 100배 정도 높게 침출됨을 알 수 있다. 그리고 Fig. 3에서 침출시간이 증가함에 따라 탈염수보다는 합성해수에서 Co-60의 침출이 증가함을 알 수 있으며 이와 반대로 파라핀 고화체에서는 합성해수에서 Co의 침출이 낮음을 알 수 있다. 고화체 종류에 따른 침출의 차이는 Co가 불용성 화합물로 전환되는가에 의존하는 것으로 보이며, 침출수의 종류에 따른 침출정도의 차이는 침출수내의 염의 농도와 매우 밀접한 관계가 있는 것으로 판단된다. 즉 시멘트나 파라핀 고화체에서의 침출기구는 확산에 의해 지배되는 것으로 볼 때, 침출수내의 염의 농도구배에 의존하기 때문이다.

한편 Fig. 5에서 보듯이 Cs의 경우도 동일한 고화체에 있어서 합성해수보다는 탈염수에서 침출이 잘 일어나고 있음을 알 수 있다. 파라핀 고화체보다 시멘트 고화체에서 침출이 높은 것은 시멘트 고화체가 다공성 구조를 갖고 있는 것에 기인한 것으로 보이나 이는 침출시험 초기에나 해당되는 것으로 침출시험이 더 진행된 후에 판단이 가능할 것으로 판단된다.

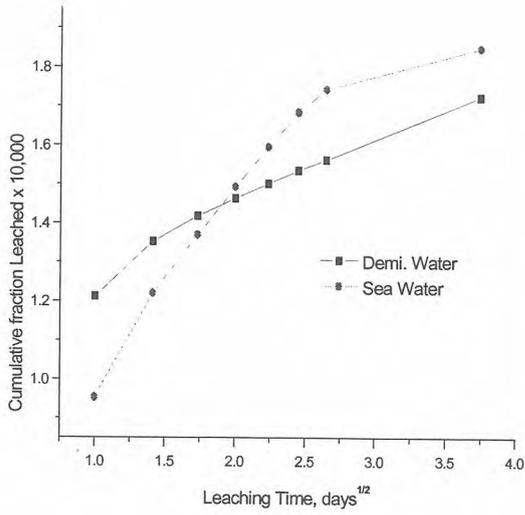


Fig. 3. Cumulative Fraction Leached of Co in cement waste Form(D=50mm) Incorporated Borate Waste

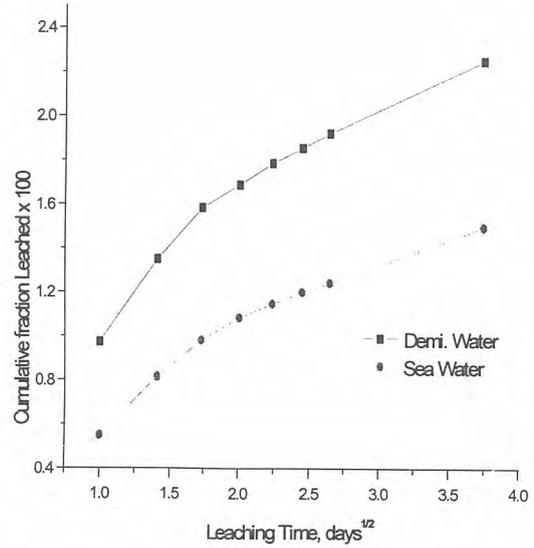


Fig. 4. Cumulative Fraction Leached of Co in Paraffin waste Form(D=50mm) Incorporated Borate Waste

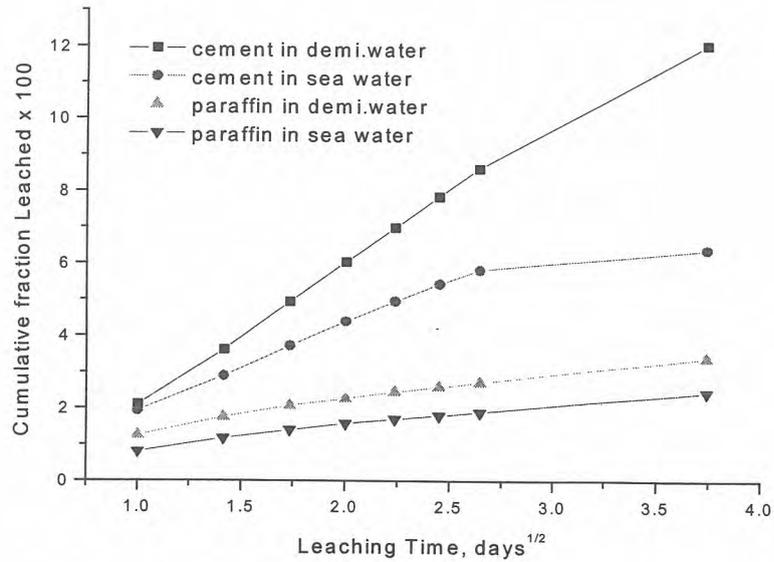


Fig. 5. Cumulative Fraction Leached of CS-137 in Cement and Paraffin Waste Form(D=50mm)

(2) FT-04-010

FT 시험법은 IAEA 시험법과 거의 동일한 침출거동을 보이고 있으며, Fig. 6에서 보듯이 시멘트 고화체에 있어서 합성해수와 탈염수에서의 Co의 침출정도는 유사하지만, Fig. 7에서 보듯이 Cs의 침출정도는 해수보다 탈염수내에서 높음을 알 수 있다.

IAEA 시험법에서 살펴보았듯이 시멘트 고화체의 다공성 구조와 Co와 Cs 염의 불용성 여부에 밀접한 관계가 있는 것으로 보인다.

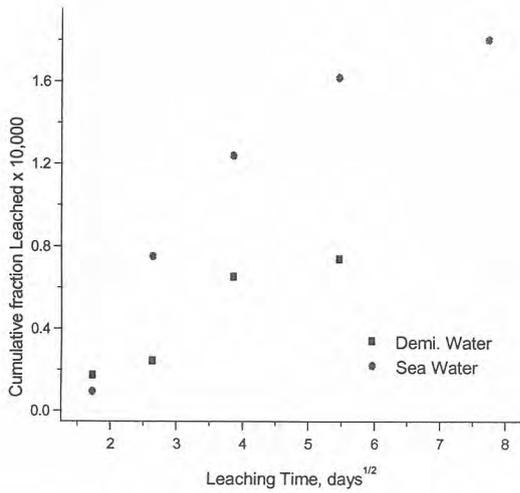


Fig. 6. Cumulative Fraction Leached of Co in Cement Waste Form (D=50mm)

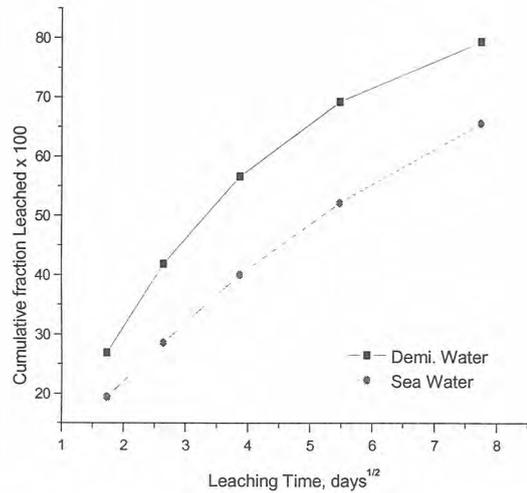


Fig. 7. Cumulative Fraction Leached of Cs in Cement Waste Form (D=50mm)

(3) ANS 16.1

ANS 16.1의 시험법에 따라 계산된 침출지수를 Table 2에 나타냈다.

Table 2. Leaching Index Calculated by ANS 16.1

	Cement Waste Form		Paraffin Waste Form	
	Demi Water	Sea Water	Demi Water	Sea Water
Co-60	13.46 ~ 15.03	14.0 ~ 14.82	7.64 ~ 8.10	7.52 ~ 7.76
Cs-137	6.82 ~ 7.17	6.84 ~ 7.80	7.44 ~ 7.76	7.33 ~ 7.44

그리고 IAEA의 시험결과 해석법에 따라 Co-60, Cs-137의 침출 거동양상을 살펴보기 위하여 누적 침출분율을 계산하여 Fig. 8 ~ 10에 나타내 보았다. 본 시험에서의 침출거동은 지금까지 살펴본 시험법과는 정반대의 양상을 띠었다. 이러한 양상은 타 시험법과는 달리 침출시험을 수행한 지 1일 이내에 약 3회의 침출수 교체를 요구함에 따른 침출액을 분석한 것이기에 타 시험법에서는 발견할 수 없는 거동이다. 따라서 이와 같은 거동을 계속 유지하는가는 침출시험을 완료한 후에 평가하여야 할 것으로 판단된다.

나. 누적침출분율 상호비교

시험평가 대상인 3개의 시험법을 수행하여 얻은 결과를 Fig. 11 ~ 14에 정리하였다.

ANS 시험법을 제외하고는 FT와 IAEA시험에 의한 침출거동은 매우 유사하였으며, 임의 시간에서의 Co의 침출분율은 시멘트 고화체에서의 IAEA > ANS > FT의 순으로 높았으며, 반대로 파라핀 고화체에서는 이의 역순이었다.

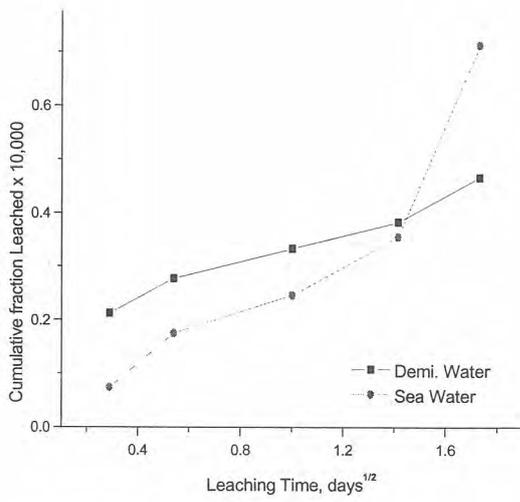


Fig. 8. Cumulative Fraction Leached of Co in cement waste Form (D=50mm)

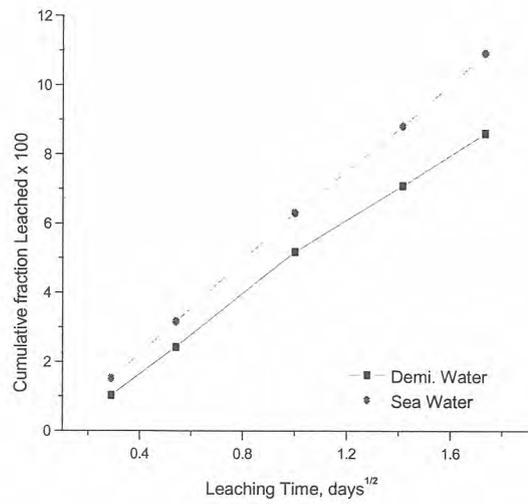


Fig. 9. Cumulative Fraction Leached of Co in Paraffin waste Form (D=50mm)

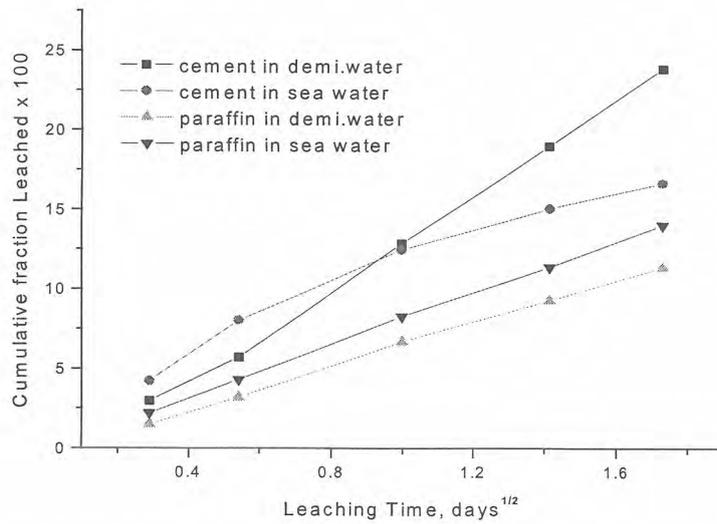


Fig. 10. Cumulative Fraction Leached of Cs-137 in Cement and Paraffin Waste Form(D=50mm)

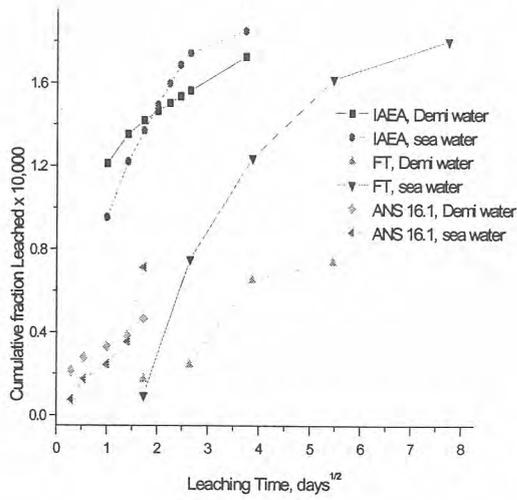


Fig. 11. Cumulative Fraction Leached of Co in Cement (D=50mm)

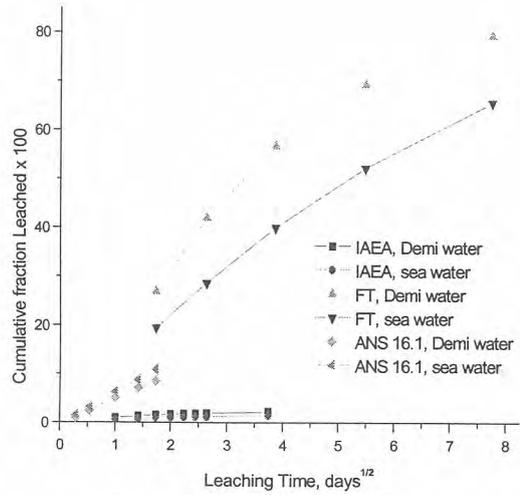


Fig. 12. Cumulative Fraction Leached of Co in Paraffin (D=50mm)

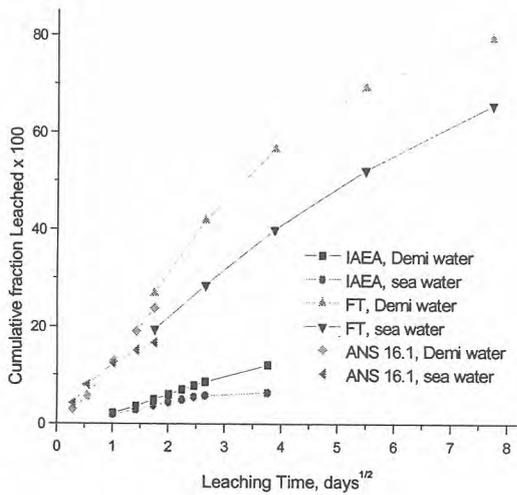


Fig. 13. Cumulative Fraction Leached of Cs in Cement (D=50mm)

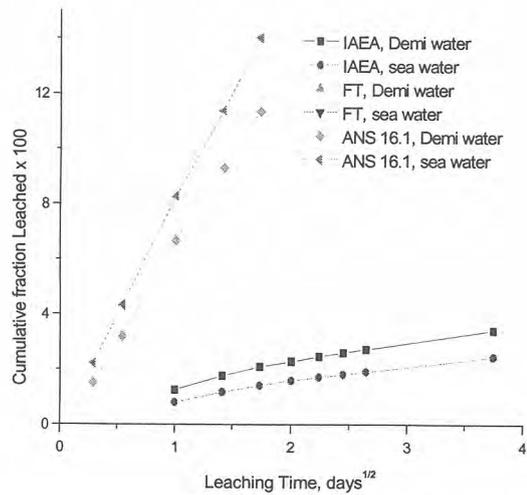


Fig. 14. Cumulative Fraction Leached of Cs in Paraffin (D=50mm)

5. 결 론

IAEA, FT-04-010, Ans 16.1의 침출시험법을 각각 수행하여 얻은 결론은 아래와 같다.

가. 봉산을 함유한 파라핀 및 시멘트 고화체의 침출지수는 6 이상 이었다.

나. 침출수로 합성해수와 탈염수를 사용하였을 경우 Co는 시멘트 고화체에서는 합성해수에서, 파라핀 고화체에서는 탈염수에서 침출이 높았다. 반면에 Cs의 침출정도는 시멘트에서는 탈염수,

파라핀에서는 해수에서 높았다.

다. Co의 침출분율은 시멘트 고화체에서의 IAEA > ANS > FT의 순으로 높았으며, 반대로 파라핀 고화체에서는 이의 역순이었다.

토양폐기물 고정화 특성실험

Immobilization Experiment of Soil Wastes

최영조, 박지훈, 강기두, 신상운
한국수력원자력(주) 원자력환경기술원

오원진
한국원자력연구소

요 약

한국원자력연구소에서 약 4,500드럼 규모의 토양폐기물을 임시로 보관하고 있다. 이를 안전하게 처리하기 위한 고화기술 개발이 필요함에 따라 시멘트와 폴리머를 선정하여 시험을 수행하였다. 이를 위해 토양폐기물에 시멘트와 폴리머를 적절히 혼합하여 고화시편을 제조하였으며, 저장에 따른 처분기준 만족여부를 평가하기 위하여 압축강도시험과 침출시험을 수행하였다. 폐기물함량이 40%인 시멘트고화체와 65%인 폴리머고화체의 압축강도가 약 5,300psi 로서 유사하였으며, 침출지수는 11 이상으로서 모든 시편에서 기준치를 만족하였다. 고화과정의 균질한 혼합여부와 시편의 다짐상태가 고화체의 건전성에 큰 영향을 미치는 것으로 확인되었다. 감용효과는 폴리머고화체가 시멘트고화체에 비해 20% 정도 우수한 것으로 평가되었다.

Abstract

The amount of 4,500 drums of soil waste are temporarily stored in KAERI. In order to develop a technology for safe treatment of the soil waste, a number of tests were performed by applying cement and polymer as solidifier. Immobilization specimens were adequately made by mixing soil waste with cement or polymer. Compressive strength and leaching tests were performed in order to see the fulfillment to standard of disposal following the storage. A compressive strength, about 5,300psi was obtained from both solidifiers of cement containing 40% of soil waste and polymer containing 60%. The obtained leaching index was larger than 11, which was satisfied with the relevant standard. It was shown that the integrity of the solidified waste much depends on homogenization in solidifying process and hardness of the specimen. Volume reduction of solidified waste with polymer was better than that of cement by 20%.

I. 서 론

국내의 원전 및 각종 원자력 관련시설의 건설, 운영이 증가됨에 따라 사용이 종료되거나 시설 개선 등으로 인해 제염 및 해체가 늘어나고 있는 등 오염된 토양폐기물 발생량이 증가하는 추세에 있어 이를 안전하게 처분하기 위해서는 폐기물 특성에 맞는 고화기술 개발이 필요하다. 한국원

자력연구소에서는 TRIGA연구로 부지에서 발생된 토양과 자체발생 토양폐기물(약 4,500드럼)을 임시 폐기물저장고에 보관하고 있다. 이를 제염하여 환경으로 방출하기 위해서는 물리·화학적인 방법에 의한 제염을 실시한 후 Clearance level 이하의 것은 환경에 영향을 미치지 않도록 방출하고 더 이상 처리하기 어려운 폐기물은 처분기준을 만족하도록 고화하여 처분하여야 한다. 방사능 및 화학물질이 포함된 토양폐기물의 고화기술은 아직까지도 연구단계에 있으며 고화기술 개발은 미미한 상태이다. 오염토양의 처리방법은 오염특성 및 부지상황에 따라 크게 격리, 고화/안정화, 화학적 분리, 물리적 분리 및 유리화로 구분할 수 있다. 세계적으로 오염토양을 처리하기 위한 연구는 주로 제염 및 오염지역의 부지 복원이 대부분인데 원자력관련시설에서 사용 중에 있는 각종 고화기술을 기반으로 국내외에서 사용 또는 개발중인 기술을 조사·분석하여 오염토양에 적용 가능한 최적의 고화기술을 개발하면 저장시설의 저장안정성을 개선할 수 있고 향후 제염, 해체 및 환경복원시 발생이 예상되는 오염토양의 처리에 활용할 수 있을 것으로 전망된다. 따라서 현안인 KAERI에서 임시 보관중인 토양폐기물을 처리하기 위하여 오염물질의 유동성을 제한하는 고화방법으로 널리 사용하고 있는 시멘트와 폴리머를 선정하여 폐기물함량, 압축강도 시험, 침출시험을 통해 토양폐기물에 적합한 매질을 선정하는 시험을 수행하였다.

II. 본 론

1. 고화제

시멘트는 고화공정이 비교적 간단하고 다양한 방사성물질을 수용하며, 상온에서 고화가 가능하고 압축강도가 크며 비용이 저렴한 매질이기 때문에 주 매질로 선정하였으며 이의 비교대상으로 성형성이 좋고 내식, 내화특성이며 방사성폐기물에 대한 함유율이 큰 폴리머를 선정하여 특성시험을 수행하였다. 시험에 사용된 포틀랜드시멘트(IV종)의 화학적인 주요성분과 물리적인 성능을 표 1과 표 2, 폴리머 액상 수지에 대한 사양을 표 3에 나타내었다.

분말도	비표면적(Blaine)cm ³ /g	2,800 이상	
안정도	오토클레이브 팽창도(%)	0.8 이하	
응결시간	길모어시험	초결 (분)	60 이상
		종결(시간)	10 이하
	비이커시험	초결 (분)	45 이상
			375 이하
수화열 (cal/g)	7일	60 이상	
	28일	70 이하	
압축강도 (kgf/cm ³)	7일	75 이상	
	28일	180 이상	

표 1. 포틀랜드시멘트의 화학성분

산화제이철(Fe ₂ O ₃)	%	6.5 이하
산화마그네슘(MgO)	%	5.0 이하
C ₃ A 8% 이하일 때	%	2.3 이하
감열 감량	%	2.5 이하
C ₃ S	%	35 이하
C ₂ S	%	40 이하
C ₃ A	%	7 이하

표 2. 포틀랜드시멘트의 물리적 특성

표 3. 폴리머(액상수지)의 사양

Factor	Polycoat	폴리머
Appearance		Clear-Colorless Liquid
Color(Hazen)		60 Max.
Viscosity(Gardner)		L ~ N
Viscosity(Poise)		3 ~ 4
Gel Time		5 ~ 9
Air Dry		None
Recommended		General Use

* Gel Time at 25 °C : Resin 50 g, 0.6 % Co-Naph 1 ml, 55 % MEKPO 1 g

2. 고화체 제조

고화체 제조절차는 시멘트의 경우 ASTM C192 를 참조하였으며, 28일 동안 상온에서 경화시켜 양생한 후 압축강도와 침출시험을 수행하였다.[1] 폴리머는 2~3일 동안 몰드 속에서 경화시킨 다음 경화가 완료되면 몰드를 제거하고 특성시험 전까지 기밀용기 안에 밀봉하여 보관하였다.[2]

3. 압축강도 및 침출특성 평가

시편을 제조하기에 앞서 매질별 토양폐기물의 최대 함유율을 알아보기 위하여 시멘트와 폴리머 각각 40 %에서 75 %까지 5 % 간격으로 8개를 제조하여 고화체 성형상태를 육안으로 관찰한 결과 시멘트는 60%, 폴리머는 75%에서도 고화체 성형상태는 양호한 것으로 판단되었다. 따라서 토양폐기물과의 함량을 시멘트는 40%, 50%, 60%, 폴리머는 45%, 55%, 65%로 혼합하여 압축강도 및 침출 시험용 시편을 제조하였다. 제조된 시편의 압축강도시험은 ASTM C39[3]에 따라 수행하였고, 침출시험은 ANS 16.1[4]의 방법을 참조하여 침출액을 1일, 7일, 30일, 90일 주기로 교체하여 시편 제작 당시의 초기 방사능농도와 침출액 중의 최종 방사능농도를 감마핵종분석기로 측정·분석하여 침출지수를 산출하였다.

4. 결과 및 논의

가. 압축강도시험 결과

시멘트 고화체의 압축강도는 표 4에서 보는 바와 같이 기준치(압축강도 > 500 psi)를 모두 만족하는 것으로 평가되었다. 시험결과 시멘트고화체 보다 폴리머고화체의 압축강도가 높은 것으로 나타났다으며 폐기물함량이 많을수록(폐기물함량 상한 65 %) 압축강도는 낮아지는 경향을 보였으나 이 경우에도 기준치를 모두 만족시키는 것으로 나타났다. 그림 1에서 알 수 있는 바와 같이 폐기물 함량이 40 %인 시멘트고화체와 65 %인 폴리머고화체의 평균 압축강도가 5,300 psi로서 유사하였다. 압축강도 측면에서만 본다면 폐기물함량 증가에 따른 압축강도 변화비율도 폴리머가 시멘트에 비해 상대적으로 유리한 것으로 평가되었다. 즉 폐기물함량을 10 % 증가시켰을 때 압축강도의 감소비율이 시멘트는 6~32 %, 폴리머는 25~27 %였다.

표 4. 압축강도시험 결과

시편종류	압축강도 (kgf/cm ²)	압축강도 (psi)	평균압축강도 (psi)	시편종류	압축강도 (kgf/cm ²)	압축강도 (psi)	평균압축강도 (psi)
시멘트 (40%)	369	5,250	5,270	폴리머 (45%)	439	6,240	5,636
	372	5,290			341	4,850	
	174	2,470			307	4,370	
시멘트 (50%)	213	3,030	3,590	폴리머 (55%)	171	2,430	7,135
	287	4,080			483	6,870	
	257	3,660			520	7,400	
시멘트 (60%)	268	3,810	3,830	폴리머 (65%)	402	5,720	5,330
	267	3,800			347	4,940	
	273	3,880			187	2,660	

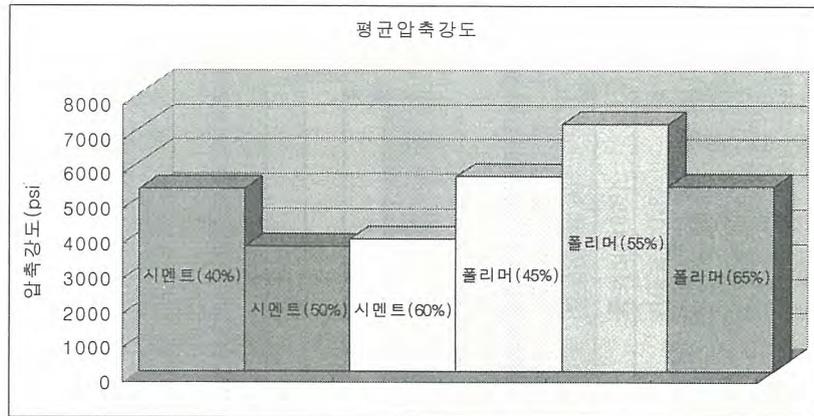


그림 1. 토양폐기물의 평균 압축강도

그림 2는 시편 종류별로 압축강도 결과를 보여주는데, 폐기물함량이 40%인 시멘트고화체 #3와 55%인 폴리머고화체 #1과 65%인 폴리머고화체 #3의 경우 상대적으로 압축강도가 낮음을 알 수 있다. 이러한 현상은 시편 제조과정에서의 불균일한 혼합이 주요 원인이었을 것으로 추정되는데, 특히 폴리머고화체의 경우 폐기물과 고화제의 균일한 혼합이 고화체의 건전성에 큰 영향을 미치는 것으로 판단된다.

나. 침출시험 결과

침출시험 결과는 시멘트고화체나 폴리머고화체의 침출지수 모두 기준치(침출지수>6)를 만족하는 것으로 평가되었다. 그림 3에서 보는 바와 같이 시멘트와 폴리머 모두 1일 경과 후의 침출지수가 가장 낮았으며, 침출기간이 경과할수록 침출지수는 증가하는 경향을 보였는데 이는 침출시험 1일 경과 후의 침출이 상대적으로 많이 일어나는 것에 기인한 것으로 판단된다.

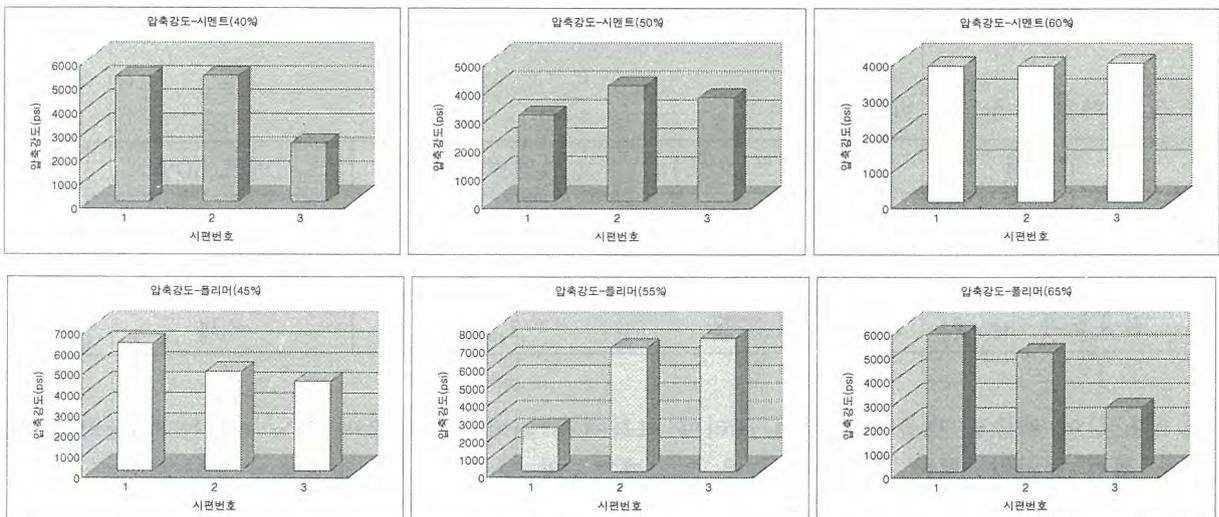


그림 2. 시멘트와 폴리머의 압축강도 시험 결과

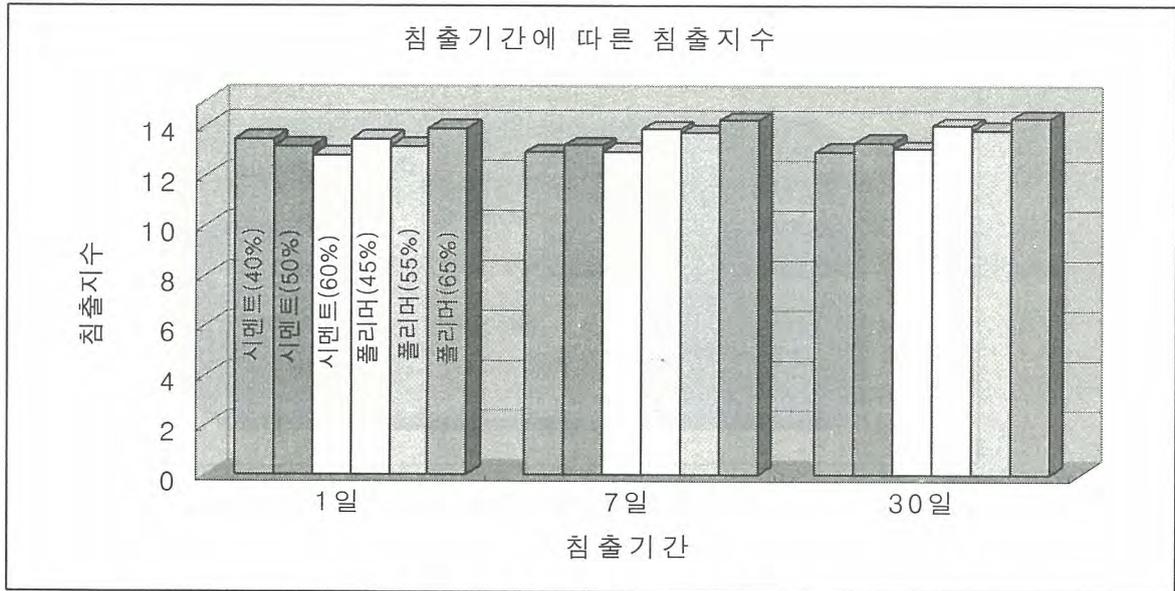


그림 3. 침출기간에 따른 침출지수 추이

표 5. 고화체 침출시험 결과(침출지수)

고화체	⁶⁰ Co			¹³⁷ Cs		
	1일	7일	30일	1일	7일	30일
시멘트(40%)	11.49	11.75	11.97	12.95	12.98	13.10
시멘트(50%)	11.66	11.84	12.13	13.18	13.23	13.36
시멘트(60%)	11.41	11.69	11.89	12.83	12.97	13.08
폴리머(45%)	11.98	12.11	12.24	13.49	13.88	14.01
폴리머(55%)	11.76	12.09	12.21	13.20	13.72	13.83
폴리머(65%)	11.87	11.73	11.84	13.90	14.23	14.30

표 6. 고화체 감용효과 비교

고화체	시멘트(40%)	시멘트(50%)	시멘트(60%)
감용효과 (kg/cm ²)	1,255	1,021	813
고화체	폴리머(45%)	폴리머(55%)	폴리머(65%)
감용효과 (kg/cm ²)	1,375	1,100	894

표 5와 같이 핵종별 침출지수 역시 폴리머 고화체가 높게 나타났으며 ⁶⁰Co 보다는 ¹³⁷Cs의 침출지수가 훨씬 높았다. 특히 폴리머의 경우 토양폐기물의 함량이 많은 시료에서 침출지수가 더 높게 나타났는데, 이는 폐기물함량보다는 고화체 표면의 국부적인 균질성이 오히려 65%를 함유한 시편에서 양호하였기 때문으로 추정된다. 즉 균질한 시편을 제작한다면 65%이상(폴리머) 토양폐기물을 혼합하더라도 침출지수 기준을 충분히 만족시킬 수 있는 것으로 판단된다.

다. 감용효과 비교

토양 1kg을 고화하였을 경우 발생하는 최종 고화체의 단위부피당 질량비는 표 6과 같다. 표 6

에서 알 수 있는 바와 같이 폴리머고화체의 감용효과가 다소 높게 나타났는데 다짐상태에 따라 약 20 % 가량의 차이를 보였다.

III. 결 론

토양폐기물을 대상으로 시멘트와 폴리머 고화제의 고화특성 및 감용효과를 분석하였다. 폐기물 함량 40%인 시멘트고화체와 65%인 폴리머고화체의 압축강도가 모두 5,300 psi 로서 압축강도 기준치(500 psi)를 모두 만족하였으며, 동일한 압축강도 하에서 폐기물함량은 폴리머가 시멘트에 비해 무게비로 약 25% 이상 높았다. 침출지수의 경우 ^{60}Co 에서는 11~12, ^{137}Cs 에서는 12~14로서 모두 기준치인(6) 이상을 만족하였다. 위와 같은 고화체의 특성실험 결과 고화과정에서 폐기물과의 균질한 혼합여부가 압축특성과 침출특성을 좌우하는 중요한 요소가 됨을 알 수 있었다. 또한 감용효과를 분석한 결과 시편 제조 과정에서의 균질한 혼합도 중요하지만 다짐 상태에 따라 감용효과가 상당한 차이를 보이는 것으로 확인되었다.

IV. 참 고 문 헌

- [1] ASTM, "Standard Practice for Making and Curing Concrete Test Specimens in the Laboratory", ASTM C 192, 2000
- [2] "Solidification of Spent Ion-Exchange Resins in Polymers", ki-hong kim, et al., 1987
- [3] ASTM, "Standard Test Method for Compressive Strength of Cylindrical Concrete Specimens", ASTM C 39, 1996
- [4] ANS, "American National Standard Measurement of the Leachability of Solidified Low-Level Radioactivity Wastes by a Short-Term Test Procedure", ANSI/ANS-16.1, 1986

방사성 부식생성물 제거를 위한 전자석 및 영구자석을 이용한 필터의 개념설계

Conceptual Design of the Filter using Electromagnet and Permanent Magnets for Removal of Radioactive Corrosion Products

송민철, 공태영, 이진재
한국과학기술원

요 약

가압경수형 원자력발전소 일차계통에서 발생하는 방사성 부식생성물(크러드)은 원자력발전소 작업종사자 피폭의 주요원인이다. 또한, 최근 원자력발전소의 장주기운전 추세에 따라 장기간 노심에 침적된 방사성 부식생성물은 hideout 현상으로 노심의 출력에 영향을 주는 축방향이상출력(AOA) 현상의 원인이 되고 있다. 크러드의 주요 성분은 마그네타이트, 니켈페라이트, 코발트페라이트가 주를 이루며, 이러한 산화물 형태는 강자성의 자기적 성질을 가지고 있다. 따라서, 전자석과 영구자석의 적절한 배치를 통하여 자기장을 발생시켜 크러드를 제거하는 필터 개발을 위해 개념 설계를 하였다. 기존의 필터와 달리 유체의 흐름을 방해하지 않아 압력저하 현상이 발생하지 않고, 연속적으로 사용할 수 있는 장점이 있다. 크러드 제거 기술의 하나로써 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

Abstract

In a pressurized water reactor, radioactive corrosion products (CRUD) in primary coolant system are one of the major sources for the occupational radiation exposure of the personnel in a nuclear power plant. Through the recent trend of long term fuel cycle in a nuclear power plant, radioactive corrosion products deposited in reactor core for a long time are also the cause of Axial Offset Anomaly (AOA) having an effect on reactor power by the hideout of boron. CRUD consist primarily of magnetite, nickel ferrite, cobalt ferrite, and so on. They have the characteristic of strong magnetism. Therefore it is performed the conceptual design to develop the filter which removes the CRUD by magnetic field that is generated by an arrangement of permanent and electric magnets. Contrary to the conventional filter, the proposed filter does not interrupt the fluid flow, so there is little pressure drop and it can be used continuously. It is expected to be applied as one of the technologies for removal of the CRUD.

1. 서 론

가압경수형 원자력발전소 일차계통 재질의 부식물이 노심에 침적되면, 중성자 속에 의해 방사성 핵종으로 바뀌게 된다. 대표적인 핵종이 Co-60과 Co-58으로써 Co-60은 미량 발생되나 긴 반감기(5.27년) 및 높은 감마에너지를 가지고 있으며, Co-58 핵종은 증기발생기 전열관의 주요 재질인

니켈이 방사성 핵종으로 변화된 것으로 그 발생량이 다른 핵종에 비해 많아 주요 핵종으로 취급되고 있다. 코발트 핵종이외에도 철, 니켈, 크롬, 망간등의 핵종도 발생하는 주요 방사성 핵종이다. 이 핵종들은 발전소내에 종사하는 작업자들의 피폭에 주요원인이 되고 있다고 알려져 있다.[1] 최근 작업자 피폭량의 규제치가 ICRP 60 권고안에 의해 대폭적으로 저감되어야 하는 상황에 놓여 있어, 방사성 부식생성물의 저감 및 제어는 매우 중요하다. 그리고 국내 대부분의 가압경수로형의 발전소는 경제성을 높이기 위해 18개월의 장주기 운전이 적용중이다. 그러나 장주기 운전은 수질 관리 측면에서 불리한 면을 가지고 있는 관계로 화학조절(pH 조절)을 통한 방사성 부식생성물의 생성억제가 어려운 단점을 가지고 있다.[2] 따라서, 방사성 부식생성물의 발생 증가로 인하여 노심에서의 출력이 비뚤어지는 축방향 이상출력(AOA) 현상이 일부 보고 되고 있다. 이 현상은 표면 비등(subcooled boiling)과 봉산 그리고 방사성 부식생성물의 침적이 복합적으로 이루어져 발생하는 것으로 이 중 제어가 가능한 것은 방사성 부식생성물 뿐인 관계로 최근 노심관련 연구에서도 매우 중요한 연구 중 하나로 부각되고 있다.[3]

방사성 부식생성물들은 이온 상태로 존재하거나, 화합물(주로 oxide) 형태의 입자(크리드)로 존재하게 된다. 화합물은 페라이트 형태로 주로 존재하며 이들은 보통 강한 자기적 성질을 가지고 있다. 주로 마그네타이트, 니켈페라이트, 코발트페라이트의 형태이며, 주위 환경에 의해 일부 조성이 바뀌는 것으로 알려져 있다.[1] 이온 상태로 존재하는 것들은 대부분 이온교환수지에 의해 제거가 되며, 입자상으로 존재하는 것들은 여과기(일반적으로 마이크로 필터)에 의해 제거가 되고 있다. 그러나 여과기의 경우 필터 전후단간의 압력차이가 발생하여 유체의 흐름을 원활하게 할 수 없어 연속적인 사용의 어려움이 있다. 따라서 크리드의 강한 자기적 성질을 이용하여 전자석 및 영구자석의 자기장을 이용하는 방법을 제안하고자 한다. 전자석은 온도에 거의 영향을 받지 않고 영구자석에 비해 강한 자기장을 발생시킬 수 있으며, 영구자석은 최근 제조기술의 발달로 비교적 높은 자기장을 발생시키며 에너지 소비가 없고 소형화가 가능하다는 장점이 있다.

2. 본 론

2.1 자기분리의 이론

자기장을 이용하여 불순물을 분리하는 기본적인 식은 아래와 같다. 제거하고자 하는 물질의 자화율과 매질(유체)의 자화율 차이를 이용하는 간단한 원리이다.[4]

$$F_m = -\nabla(\Delta U_p) = -\nabla \left\{ \frac{V_p (\mu_0 M_p \cdot H)}{2} - \frac{V_f (\mu_0 M_f \cdot H)}{2} \right\}$$

V_p	: 자화된 입자의 부피	μ_0	: 투자율
M_p	: 입자의 자화율	M_f	: 유체의 자화율
H	: 자기 강도	F_m	: 자기력

위 식은 일반적으로 철분이 자석에 붙는 현상을 수식적으로 표현한 것으로, 물질의 자화율뿐만 아니라 자기구배의 강도 또한 매우 중요하다는 것을 보여준다. 자기구배의 강도를 높이기 위해 자기장 내에 메트릭스(mesh type or ball type)를 두어 자기장을 형성하는 것이 전자기 필터에 많이 사용되는 고구배 자장(high gradient magnetic field)이다.

2.2 전자석의 응용

1980년대 중반까지 전자기 필터에 대한 연구가 전 세계적으로 많이 수행되었으나 에너지 소비가 많으며, 냉각장치의 부피가 크고 역세척(backflushing)시 몇몇 문제점이 발생되어 원자력 발전소에서 범용적으로 사용되지 못하고 있다. 전자석을 이용한 전자기 필터는 대용량의 유체를 처리할 수 있으며, 상대적으로 자성이 약한 물질의 제거에도 유용하다는 장점이 있다. 특히, 고전적인 open gradient magnetic separation(OGMS) 보다 효율이 뛰어난 high gradient magnetic separation(HGMS)이 1970년대에 미국에서 개발되어 연구가 활발히 진행되었으며, 최근에는 초전

도체를 이용한 연구 또한 이루어지고 있다. 그림 1에는 HGMS와 OGMS를 이용한 전자기 필터의 개략도를 나타내었다. HGMS의 경우 입구와 출구가 각각 하나씩 있으며, 자기장을 형성하는 매트릭스에 포집된 입자가 포화상태에 이를 경우 운전을 정지시키고 역세척을 해주어야 하는 운전상의 복잡함이 있다.[5] 그러나, HGMS는 OGMS보다 강한 자기장을 형성하기 때문에 불순물의 제거 효율관점에서는 더 뛰어나다고 알려져 있다. OGMS는 유체내에서 강하게 자기장을 형성하는 매트릭스가 없기 때문에 자기장 세기에서는 HGMS에 비해 약하며, 한 개의 입구와 두 개 이상의 출구를 가지고 있어 연속적인 사용이 가능하다는 장점이 있으나, 2차 폐기물의 양이 많다는 단점을 가지고 있다.

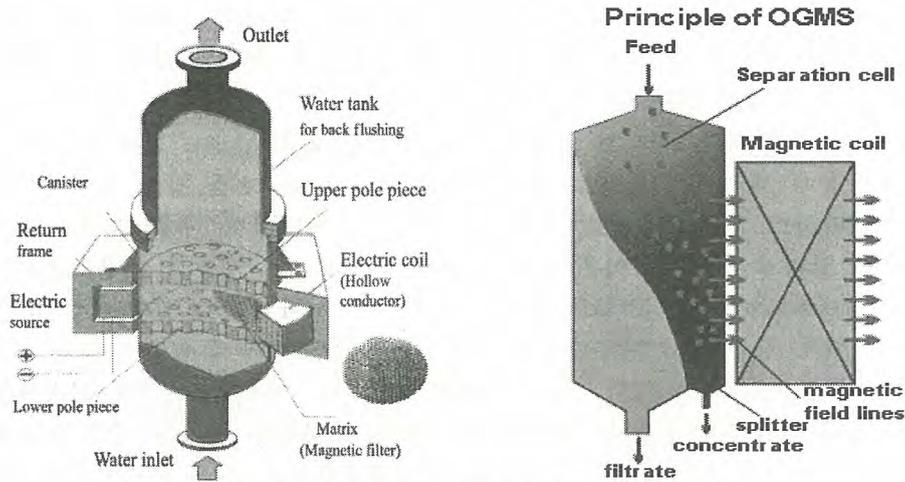


그림 1. HGMS 와 OGMS의 개략도

본 연구에서는 강한 자기장을 형성시키는 HGMS의 장점과 연속적인 사용이 가능한 OGMS의 장점을 함께 가진 시스템을 개발 목표로 하고 있으며, 이를 위해 전자기 필터로서의 역할이 아니라 전자석을 이용하여 불순물의 입자 크기를 증가 시키는데 그 목적이 있다. 증가된 입자들은 후단에 설치된 또 다른 필터에 의해 쉽게 제거할 수 있도록 설계에 주안점을 두고 있다. 그림 2에 그 개념도를 나타내었으며, 입자를 크게하는 조립장치는 (또는 응집기) 전자기 필터의 원리와 유사하며, 자기장의 세기를 적절히 조절하여, 크기가 어느 정도 커지면 유체의 흐름에 의해 빠져나가게 하는 원리이다. 여기서 핵심이 되는 것은 크기가 증대된 입자들이 매트릭스에 계속 남아있지 않고 다시 배출되어야 하는 점으로써 자기장의 조절 및 매트릭스의 다양한 적용을 통해서 이루어져야 할 것으로 판단된다. 조립장치의 후단에는 다른 여러 가지 필터의 적용이 가능하다.

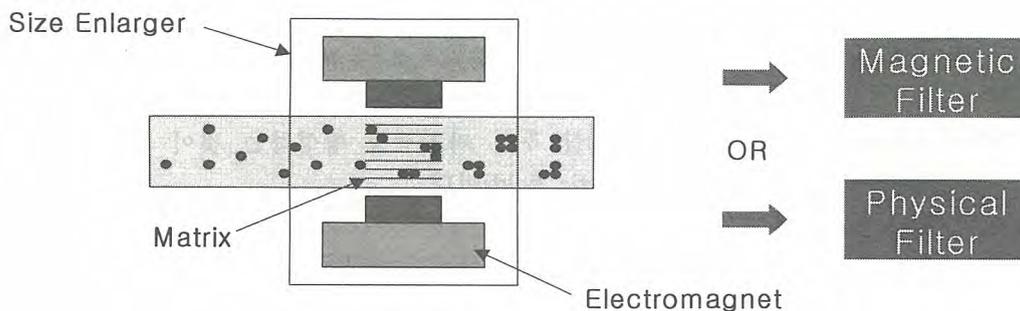


그림 2. 전자석을 이용한 조립장치의 개념도

2.3 영구자석의 응용

영구자석은 외부 에너지를 이용하지 않고 반영구적으로 자기장을 형성하는 큰 장점을 가지고 있다. 현재까지 여러 가지 재료의 영구자석이 개발되었으며, 1980년대 중반이후 희토류 원소인 네오

듐(Nd) 자석의 제조기술이 급속히 발달하여, 강한 자기장 형성뿐만 아니라 저렴한 가격으로 공급이 가능하게 되었다. 높은 퀴리(curie) 온도를 가지고 있어 다른 영구자석에 비해 비교적 고온(150도)에서도 자기장을 유지하는 장점이 있다. 철을 이용하여 자기회로를 구성하면 5KGauss 이상의 높은 자기장을 형성할 수 있다. 이러한 특징을 가진 희토류 영구자석을 이용한 필터는 전자기필터에 비해 에너지 소모량이 적고 소형으로 제작할 수 있는 이점이 있을 것이다. 현재 연구중인 마그네틱 필터는 유체내에 포함된 크러드 입자를 영구자석을 이용하여 포집한 후 영구자석의 회전을 이용하여 유체의 흐름이 거의 없는 곳으로 이동시켜 제거하는 원리이다. 그림 3은 영구자석을 이용한 마그네틱 필터의 단면도 및 유체가 이동하는 통로의 개략도를 나타낸 것이다.[6,7]

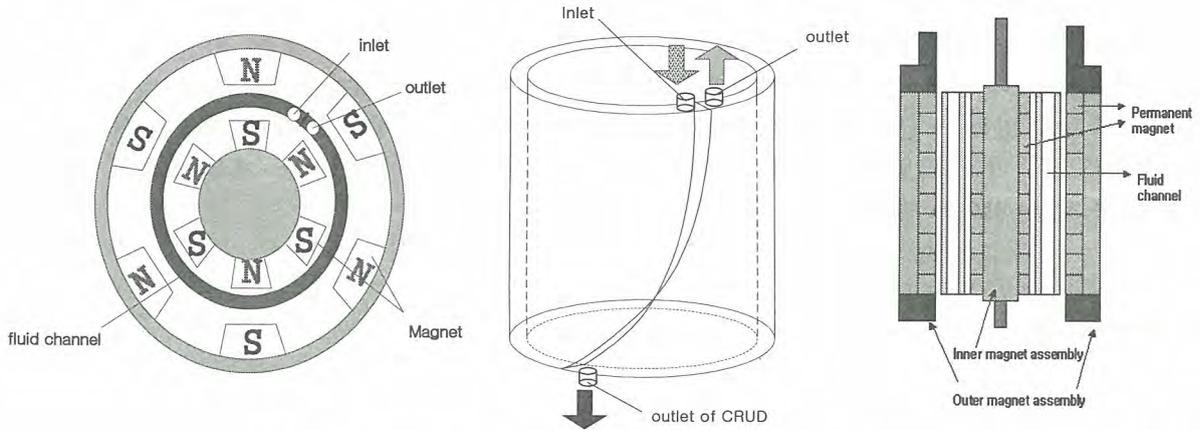


그림 3. 마그네틱 필터의 단면도 및 유로용기의 개략도

위 그림에서 보듯이 S-N극의 교차배열로 영구자석이 이루어져 있으며, 유로용기 내외측에 각각 자석 어셈블리가 위치하고 있다. 반대극끼리 마주보고 있으며, 이들은 구동 모터에 의해 같은 회전속도로 회전하게 된다. 유로용기 내부로 들어온 유체는 유로용기를 바닥을 한 바퀴 돌면서 밖으로 유출이 되며, 유체내에 함유된 불순물은 유로용기에 형성된 자기장에 의해 그 움직임이 지배가 된다. 즉, 자석의 이동과 함께 움직이게 되며, 이는 자석이 회전하여 크러드의 출구(중간그림의 아래쪽 출구) 부근에 쌓이게 되는 효과를 가져올 것이다.

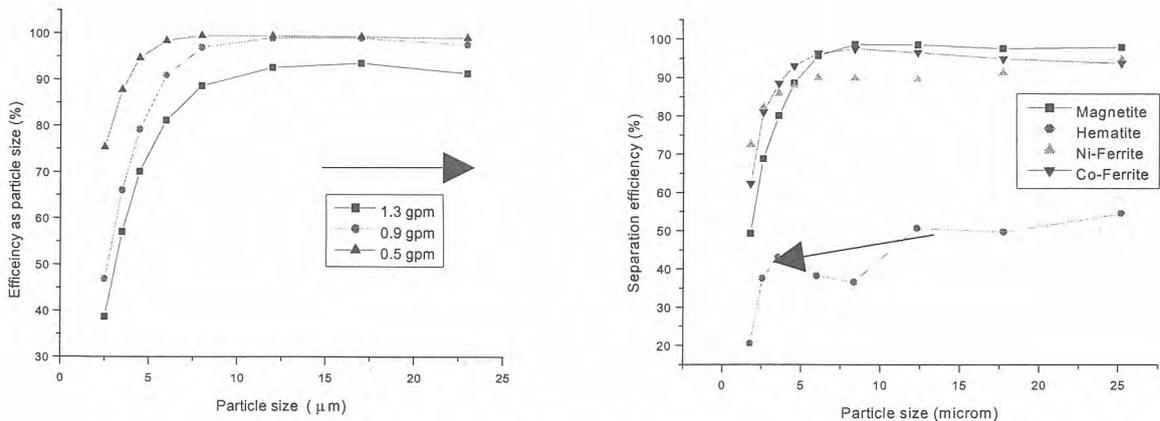


그림 4. 마그네틱 필터의 입자크기별 제거효율

그림 4는 본 연구에서 개발된 마그네틱 필터를 이용하여 입자 크기에 따른 제거효율을 나타낸 그래프이다. 왼쪽의 그래프는 마그네타이트(Fe_3O_4)의 경우를 나타낸 것이며, 오른쪽의 그래프는 여러

가지 입자를 이용하여 실험한 결과이다. 즉, 입자크기가 커질수록 제거효율이 상당히 높아짐을 알 수 있다. 2.2 절에서 설명한 전자석의 이용한 조립장치가 마그네틱 필터의 전단에 설치되어 입자 크기를 증대시킬 수 있다면 입자의 제거효율은 더욱 높아질 것으로 판단된다. 현재 단계에서는 영구자석을 이용한 마그네틱 필터만 본 연구에서 설계 및 제작 되었으며, 전자석을 이용한 조립장치는 개념 설계중인 상태에 있다.

3. 결 론

원자력 발전소에서 발생하는 크러드에 대한 관리가 최근 매우 중요한 문제로 부각되고 있다. 이를 효과적으로 제거하기 위한 하나의 방안으로써 영구자석과 전자석을 이용한 마그네틱 필터를 제안하였다. 개발된 마그네틱 필터의 효율은 대체적으로 80% 이상의 비교적 높은 제거효율을 보여주고 있으나, 효율을 더욱 높이기 위해 영구자석보다 더 큰 자기장을 형성하는 전자석을 이용하여 유체 내에 포함되어 있는 크러드 입자를 증가시키는 역할을 하는 조립장치에 대한 개념을 본 연구에서 제시하였다. 두 가지 타입의 자석을 적절히 배치함으로써 효율적인 크러드 제거 방법의 하나로써 적용할 수 있을 것이라 기대된다.

4. 감사의 글

본 연구는 과학기술부 원자력 기초연구과제의 일환으로 수행된 것입니다.

5. 참고문헌

- [1] Min Chul Song, A Study on the Evaluation of Radioactive Corrosion Product Behavior at PWR for Extended Fuel Cycle, MS thesis, KAIST, 1999
- [2] Min Chul Song, Kun Jai Lee, The evaluation of radioactive corrosion product at PWR as change of primary coolant chemistry for long-time fuel cycle, Annals of Nuclear Energy, vol. 30, 2003
- [3] EPRI. PWR Axial Offset Anomaly(AOA) Guidelines. EPRI TR-110070, 1999
- [4] John R. Reits, etal. Foundation of Electromagnetic Theory, Addison-Wesley, 1993
- [5] Paul cohen, The ASME handbook on water technology for thermal power system, ASME, 1989
- [6]. Min-Chul Song and Kun Jai Lee, "The experimental result of magnetic filter using permanent magnet for removal of radioactive corrosion product ", SFEN, Avignon, France, April 22-26, 2003
- [7] Min Chul Song and KunJai Lee, "The Experimental study on the magnetic filter system using permanent magnet for separation of Radioactive Corrosion Products", Water chemistryand corrosion workshop, Muju, Korea, 2003

국내원전 액체방사성폐기물계통 설계경험

이병식, 김길정

한국전력기술주식회사

요 약 문

The performance of the Radwaste System is measured in terms of generation of waste volumes, the release of radioactive materials to the environment and the occupational radiation exposure to workers. Based on our design and operating experience from PWR plants, various design goals for liquid radwaste system were developed to improve system performance. It has been making continuous effort to develop the advanced liquid radwaste processing technology for new PWR plants since 1998. The primary goal of this effort was to obtain better performance and to design a more economical liquid radwaste system. This paper describes lesson learned experience from design of the liquid radwaste system in Korea Nuclear Power Plants.

I. 개 요

국내원전이 1978년 상업운전을 시작한 이후로, 3개 부지에서 14기의 가압경수로형 원전이 운영되고 있으며, 2004년 - 2010년도에 상업운전을 목표로 6기의 원전이 추가 건설 중에 있다. 국내원전에는 다양한 액체방사성폐기물 처리기술이 적용되고 있으며, 이들 폐기물 처리기술들을 크게 구분하면 4개의 그룹으로 분류할 수 있다.

사회적 및 정치적으로 환경에 대한 관심이 점차적으로 증가하고 있으며, 이러한 추세는 관련 법, 규칙, 및 규제요건들에 반영되어 왔다. 또한, 향후 예상되는 물 부족현상으로 인한 발전용수 확보를 위해, 경제성 및 효율성 차원에서 처리된 액체방사성폐기물을 원자로설비에 재활용하는 방안을 검토하게 되었다. 이러한 여건의 변화는 액체방사성폐기물 처리기술 개선방안을 지속적으로 검토하게 된 계기가 되었으며, 그 검토결과를 반영하여 액체방사성폐기물 처리기술을 신규원전과 기존 원전 설비개선에 적용하여 왔다.

본 논문에서는 각 방식별 액체방사성폐기물 처리기술에 대한 설계개념 및 운전경험을 기술하고 액체방사성폐기물 처리기술 도입경험을 제시하며, 향후 폐기물처리 신기술 도입에 고려할 사항에 대해 기술한다.

II. 설계 및 운전특성에 따른 계통분류

운영중 또는 건설중인 원전의 액체방사성폐기물계통을 설계 및 운영특성에 따라 다음과 같이 4개의 그룹으로 분류할 수 있다.

그룹1 - 단일 증발설비

그룹1로 분류된 액체방사성폐기물계통은 국내 원전에 초기 도입된 설비로, 호기별 처리개념 및 단순 방출개념으로 설계되어 있다. 그룹 1에는 고리1호기, 고리2호기, 울진 1,2호기가 포함된다.

액체방사성폐기물은 처리방법에 따라 세탁 및 Hot shower 탱크, 바닥배수탱크 및 방사성폐액 수용탱크 등 3개의 탱크에 수집된다.

세탁 및 Hot Shower 탱크에 수집된 폐액은 단순 여과 처리되며, 바닥배수 폐액은 여과 및 탈염 처리공정을 거친다. 방사성폐액 수용탱크에 수집된 액체방사성폐기물은 증발설비에 의해 처리되며, 증발설비에서 처리된 증류수는 탈염처리 된다. 처리된 액체방사성폐기물은 방출전 감시탱크에 수집된다. 그룹1의 특징은 저용량의 단일 증발설비를 적용하고 있다는 것이다.

그룹1의 액체방사성폐기물계통은 정상 운전중 액체방사성폐기물 발생량을 기준으로 용량이 산정되어 있다. 다중성 개념이 적용되어 있지 않으므로, 운영중 단일 증발설비 고장으로 인한 방사성폐기물 처리 문제가 예상될 수 있다.

그룹2 - 이중 증발설비

그룹2의 계통구성은 그룹1과 유사하나, 그룹1에 비해 처리용량이 증가되었으며, 운전성 향상을 위해 다중성 개념으로 액체방사성폐기물계통이 설계되었다. 그룹2에는 고리 3,4호기, 영광 1,2호기, 영광 3,4호기 및 울진 3,4호기 등 8기의 원전이 해당된다.

액체방사성폐기물은 처리방법에 따라 3개 처리계열(고용존 고형물폐액, 저용존고형물 폐액, 및 화학폐액)로 구분된다. 제염폐액은 화학폐액 처리계열로 이송되어 여과 처리되며, 저용존고형물 폐액은 여과처리 및 탈염처리 된다. 고용존고형물 폐액은 수집된 후 30 gpm의 용량을 지닌 증발설비에서 처리되며, 증발설비에서 처리된 증류수는 탈염 처리된다. 모든 처리폐액은 감시탱크에 수집된 후, 바다로 방출 또는 발전소 재사용을 위해 재순환된다.

계통운전성 향상을 위해 예상운전과도상태를 수용할 수 있는 용량으로 설계되어 있고, 계통 신뢰성 향상을 위해 2개의 증발설비를 설치하고 있다. 그러나, 동 운전방식에서는 여과기 교체빈도 증가, 유입폐액에 동반되는 기름 및 부유고체로 인한 이온교환설비 및 증발설비의 기능 저하 등과 같은 문제점이 발생하고 있다.

그룹3 - 원심분리설비 및 선택성 이온교환설비

그룹3은 기계적 여과방식 및 증발설비 대신 원심분리설비 및 이온교환설비를 적용하여 폐액을 처리한다. 그룹3에는 영광 5,6호기와 울진 5,6호기가 포함된다.

이온교환설비 및 원심분리설비는 각각 미국 및 유럽 원전에서 검증된 설비이며, 동 설비에서 발생하는 폐수지 및 원심분리설비 슬러지 발생량은 그룹2의 증발설비 농축폐액 및 폐여과기 발생량에 비해 매우 적으므로 고체방사성폐기물 발생량 최소화가 가능하다. 또한, 증발설비를 제거함으로써 주요 보수항목이 제거되어 운전보수원의 방사선 피폭이 저감되고, 설비비용을 최소화할 수 있는 장점이 있다.

그러나, 액체방사성폐기물계통은 전량방출개념으로 설계되어 있으며, 방사성물질 소외방출량이 그룹 2에 비해 증가하는 단점이 있다. 그룹3에서는 폐기물 처리량을 최소화하고 효율적인 폐액 처리가 가능하도록 분리수집 개념을 적용하고 있다.

그룹4 - 역삼투압설비

그룹4의 계통은 그룹3의 원심분리설비 대신 역삼투압설비를 적용하고 있다. 그룹3의 처리개념은 충분한 제염능력과 액체방사성폐기물계통 설계목표를 달성하고 있는 것으로 판단되나, 액체방사성폐기물계통 처리효율성 증대와 처리된 폐액의 재사용률 증대를 위해 역삼투압설비 및 이온교환설비를 적용하게 되었다.

역삼투압설비는 미국 원전에서 사용실적이 증가하는 추세이며, 그 실적도 우수한 것으로 확인되고 있다. 역삼투압설비를 적용하고 있는 미국 PWR원전 중 Surry 및 Wolf Creek 원전이 역삼투압설비를 운영하고 있다. 역삼투압설비 및 원심분리설비를 적용하여 설계중인 발전소는

신고리 1,2호기와 신월성 1,2호기이며, 향후 신규 건설되는 원전에도 적용할 예정이다.

액체방사성폐기물계통은 발전소 재사용을 고려하고 있으며, 그룹3에 적용되어 있는 분리수집개념을 반영하고 있다.

III. 성능

액체방사성폐기물계통의 성능인자로 일반적으로 방출방사능, 고체방사성폐기물발생량, 작업자 피폭선량을 고려하고 있으며, 각 성능인자에 대한 각 액체방사성폐기물 처리기술별 평가결과는 다음과 같다.

환경 방출방사능

액체 방출물에서의 연간 예상방출방사능은 PWR-GALE 코드에 의해 계산되며, NUREG-0017에 제시된 제염계수를 적용하였다. 여러 처리기술별 예상 설계방출방사능 및 2001년도 운영자료 기준으로 실제 방출실적은 다음 표와 같다.

표 1 액체방사성폐기물계통 예상 방출방사능 및 2001년도 방출실적

처리기술	예상 방출방사능	방출실적	비고
그룹1	7.2 Ci/yr	0.00053 Ci/yr	고리1,2기준
그룹2	0.52 Ci/yr	0.00037 Ci/yr	영광3,4기준
그룹3	0.64 Ci/yr	0.027Ci/yr	영광5,6기준
그룹4	0.57 Ci/yr	-	

GALE 입력 자료로 증발방식의 경우 90%의 처리수를 발전소 용수로 사용하는 것으로 적용하였으며, 기타 방식에서는 모든 처리폐액이 소외로 방출되는 것으로 가정하였다. 단, 역삼투압설비는 증발설비와 동일한 가정을 적용하였다.

폐기물발생량

증발설비, 원심분리설비/선택성 이온교환설비, 및 역삼투압/이온교환설비에 의한 고체방사성폐기물 발생량 비교결과를 표 2에 제시하였으며, 고체방사성폐기물발생량 비교시 사용된 가정사항은 다음과 같다.

- 증발 및 농축폐액 건조설비
연간 고체방사성폐기물드럼 발생량은 농축폐액건조설비에 의한 운영 자료를 기준으로 하였다.
- 원심분리설비 및 선택성이온교환설비
미국 원자력발전소에서의 선택성이온교환설비 운영경험으로부터 처리량이 18,000 - 33,000 gallon/ft³ 이었다. 국내 운영경험을 토대로, 연간 약 2,500,000 gallon의 액체방사성폐기물을 처리하는 것으로 적용하였다.
- 역삼투압 및 이온교환설비
미국 원자력발전소에서 역삼투압설비에 의한 운영경험으로부터, 연간 고체방사성폐기물 발생량을 추정하였다.

표 2 액체방사성폐기물계통 운영에 따른 연간 고체방사성폐기물 발생량

처리방법	평균 (cu-ft/yr)
증발설비	680
원심분리설비 / 선택성 이온교환설비	380
역삼투압설비 / 이온교환설비	285

따라서, R/O 및 이온교환설비를 적용할 경우에는 폐기물부피가 이전 방식에 비해 감소하게 될 것으로 예상된다.

작업자 피폭선량(ORE) 감소

원자력발전소 운영경험으로 원심분리설비 및 선택성 이온교환설비에 의한 ORE는 각각 1.12 mrem/yr 및 0.5mrem/yr 이다. 증발설비를 운영하고 있는 국내원전에서 ORE는 고화운전을 포함하여 약 7.5 mrem/yr 이었다. 반면, 역삼투압설비 및 이온교환설비에서의 ORE는 총 0.9 mrem/yr로 조사되었다.

IV. 신규 액체방사성폐기물처리설비 도입시 고려사항

신규 폐기물처리 설비 도입을 위해서는 Reg. Guide 1.110에 제시된 비용이득분석을 수행하여야 하며, 충분한 비용이득이 있음을 입증하여야 한다. 기존설비 대비 신규설비에 대한 기기구매 및 유지비용, 방사능의 환경 방출영향, 고체방사성폐기물발생량, 운전원 방사선피폭 등이 고려되므로 비용이득 분석결과는 종합적인 타당성을 검증하는 결과로 이용되고 있다.

이러한 비용이득분석을 기준으로 국내원전에 신규 액체방사성폐기물 처리개념을 도입하는 과정에서 각 관련 기관으로부터 다양한 의견이 제시되었으며, 환경 소외방출 방사능에 대한 의견이 가장 많은 편이었다.

신뢰성

신규 도입된 액체방사성폐기물 처리기술은 해외 운영경험이 있는 기술이었으며, 해외원전 운영경험과 계통 변경에 따른 비용이득분석을 토대로 그 도입여부를 결정하였다.

반면, 국내 원자력산업계에서는 실증실험 등과 같은 검증이 미확보 되었다는 점이 가장 큰 논의 대상이었으며, 실제 도입 후 운영결과가 해외 원전 운영결과와 다른 결과를 나타내는 경우가 일부 발생하고 있으므로 신뢰성에 이견을 제기하기도 하였다.

운영성

신규 도입설비에 대한 설계목표로 운전편이성 / 작업자 피폭선량이 포함되어 있다. 각 처리기술별 비교로부터 신규 도입되는 설비에서는 작업자 피폭선량 감소가 확인되고 있으며, 계통을 단순화하고, 대형설비를 자제하고, 보수 기기항목을 최소화하고 있다.

그러나, 신규 설비 도입으로 인해 기존 운전경험을 활용하지 못한다는 지적이 있으며, 운전원의 운영부담 증가를 우려하는 일부 의견이 있다.

환경방출방사능

액체방사성폐기물계통은 과기부 고시 2002-23호에 제시된 환경 방출허용기준치를 준수하도록 설계하고 있으며, 추가적으로 환경 방출방사능 최소화가 가능한 설비를 적용하는 것을 목표로 하고 있다.

국내원전은 최근 몇 년간 Zero Release를 목표로 운영하였고 그 결과 환경 방출방사능을 극소화할 수 있었으며, 소외 방출실적이 해외에 비해 좋은 결과를 얻을 수 있었다. 반면, 미국발전소의 환경 방출방사능량이 국내원전에 비해 높은 유지되고 있었으며, 이는 폐기물처리비용 절감과 고체방사성폐기물 발생량 최소화를 목표로 운영한 결과로 국내원전과 미국 원전간의 액체방사성폐기물 처리개념에 차이가 있다는 것을 확인할 수 있다.

환경에 대한 사회적 및 정치적 관심 증가에 따라, 국내원전에서는 환경 방출방사능에 민감하게 고려되고 있는 상태이며, 결과적으로 액체방사성폐기물계통에 대한 처리목표로 가장 큰 비중을 두는 의견이 많았다.

신규 액체방사성폐기물처리설비를 도입한 경험으로부터 처리기술에 대한 신뢰성 및 경제성을 판단하는 일관된 기준이 설정될 필요가 있음을 확인하게 되었으며, 다음 사항을 고려하여 처리기술 평가기준을 설정하여야 할 것이다.

1. 법적 방출허용기준치 대비 실제 방출허용기준?
2. 신규 도입되는 설비의 신뢰성을 확보하기 위한 방안은?
3. 신규 설비 도입시 설비 운영성 개선방안?
4. 관련 액체방사성폐기물계통 처리목표 수정 필요성?
5. 국내 표준 액체방사성폐기물 처리설비 설정이 필요한가?

V. 결 론

국내원전에 적용 가능한 방사성폐기물 처리기술들을 평가하여 왔고, 그 결과로 신규원전에 역삼투압설비 및 이온교환설비를 적용 중에 있다. 신규설비 도입과정 중 다양한 의견이 제시되었으며, 이는 궁극적으로 국내원전에 효율적이고 경제적인 방사성폐기물기술 도입에 관심이 집중되고 있다는 것을 의미한다.

국내 원자력산업계 의견 제시 및 조율을 통해 처리기술에 대한 신뢰성 및 경제성을 판단하는 일관된 기준이 설정되어야 하며, 향후 신규 처리기술 적용 평가에 효율적으로 활용되었으면 한다.

VI. 참고자료

- [1] B.S.Lee, K.J.Kim, Improvement of PWR Liquid Radwaste System in Korean Nuclear Power Plants, EPRI Int'l LLW Conference, 1995
- [2] B.S.Lee, H.G.Park, Y.H.shin, Application of Reverse Osmosis Technology to Liquid Radwaste Management at PWR Plants, the 16th KAIF-KNS Conference, 2001
- [3] T. Chandrasekaran, et.al., Calculation of Releases of Radioactive Materials in Gaseous and Liquid Effluents from Pressurized Water Reactors(PWR-GALE Code), NUREG-0017 Rev.1, April 1985
- [4] Annual Summary Report of Radiation Management in 2001, KEPCO
- [5] J, Freeman, Wolf Creek Liquid Radwaste Processing System Improvements, EPRI LLW Conference 1998
- [6] Jack Torbitt, Nine Mile Point – Unit 1 Experience with Membrane Processing of Radwaste, EPRI International LLRW Conference 1997
- [7] J. Freeman, R.Werline, et. al., LRW Processing with Membranes, Tips, Tricks and Traps, EPRI LLW Conference 2000
- [8] Operating Experience for the Selective Ion Exchange System in US Nuclear Power Plant prepared by Diversified Technologies Service, 1996
- [9] A. Bilau and F. Ruter, Liquid Radwaste Processing History at Fort Calhoun Station, Omaha Public Power District Fort Calhoun Nuclear Station Unit 1, presented at WM'89
- [10] Chem-Nuclear's Thermax Operations at Surry Nuclear Power Plant, January, 1999

AP-200L 토치를 이용한 비가연성 방사성폐기물 고온용융처리 Experiment on the Vitrification of Nonflammable Wastes Using AP-200L Plasma Torch

최종락, 유병수, 김천우, 박종길, 하중현
한수원(주) 원자력환경기술원

요 약

원자력발전소로부터 발생하는 비가연성 고체폐기물의 모사시료에 대해 플라즈마 토치를 이용하여 고온용융처리 시험을 실시하였다. 실험은 AP-200L 공동형 플라즈마토치를 사용하여 콘크리트, 흙과 금속이 포함되는 혼합물에 대하여 약 50시간 정도 수행되었다. 처리속도, 토치의 노즐과 용융물 표면과 간격, 토치 회전속도, 토치가스 유속 그리고 용융로의 압력 등 몇몇 실험조건을 사전에 결정하였으며, 냉각수 온도, 배가스 온도, 토치출력변화 등 기본 파라메타를 측정하였다. 유리화된 시료는 SEM/EDS로 분석하였다.

Abstract

The high temperature melting test for nonflammable wastes using a plasma torch was conducted. The AP-200L hollow cathode type plasma torch was installed at the pilot plasma melting furnace in NETEC. The surrogates were prepared to simulate concrete, soil and their mixture with steel. The experimental conditions such as feeding rate, the distance between melts surface and torch nozzle, torch rotation speed, gas flow rate and pressure in the furnace were decided. Basic parameters such as temperatures of cooling waters, off-gas and torch power were measured. The vitrified samples were analyzed by SEM/EDS.

1. 서 론

국내 원자력발전소에서 발생하는 중·저준위 고체 방사성폐기물은 현재 가연성폐기물과 비가연성폐기물로 분류하여 각 발전소에 임시저장하고 있다. 이러한 방사성폐기물은 방사성폐기물 처분 시설에서 통합 관리하여야 하므로 현재 한수원(주)과 정부는 처분시설 부지를 확보하기 위해 최선의 노력을 경주하고 있다.

방사성폐기물을 고온으로 열처리하면 유기물이 분해 또는 소각되고 무기물만 남아 부피가 줄고, 환경에 적합한 형태로 안정화된다. 가연성폐기물의 경우 일본 등에서는 소각로를 이용하여 연소시켜 남은 재를 비가연성폐기물과 혼합하고 플라즈마토치를 이용하여 용융 처리하는 연구를 하고 있지만, 한수원(주)은 유도가열식저온로를 이용하여 가연성폐기물을 소각처리 공정 없이 용융유리 위에서 직접 연소시켜 유리화 시키고, 비가연성폐기물은 플라즈마토치용융로(PTM)를 이용하여

용융 처리하는 기술을 개발하고 있다.

PTM은 주로 원자력발전소로부터 방출되는 구조물, 필터 등 비가연성 중저준위 방사성 폐기물을 처리할 목적으로 실증설비를 설치하여 연구 중에 있다. 본 논문에서는 수냉식 용융로와 비이송식 공동형 플라즈마 토치를 이용하여 콘크리트, 흙 및 못을 포함한 혼합폐기물 등 모사시료에 대한 플라즈마 용융 실험을 수행한 결과를 기술하고자 한다.

2. 장치 구성

2.1 플라즈마토치용융로

본 연구에서 사용한 실증용 수냉식 플라즈마토치 용융시스템은 폐기물을 이송하는 폐기물 이송 컨베이어, 이송된 폐기물을 용융로에 투입하기 위한 폐기물 투입 호퍼, 투입된 폐기물에 열에너지를 가하는 플라즈마토치, 폐기물 용융반응이 일어나는 수냉식 플라즈마토치용융로, 가열된 용융로를 냉각하는 용융로 냉각설비, 플라즈마토치를 수평으로 회전시키고 상하로 움직이게 하는 토치구동 제어장치, 용융로 내부를 감시하는 핀홀(pin hole) 모니터링 시스템 등으로 구성되어 있다.

수냉식 플라즈마토치용융로는 상단부와 하단부로 구성되며, 상단부는 배기구, 폐기물 투입구, 토치 구동제어장치가 부착된 돔(dome)으로 되어있고 하단부는 출탕구가 부착된 도가니로 이루어져 있다. 상단부와 하단부의 밀봉은 하단부에 설치된 유압 승강기에 의해 이루어진다. 도가니의 재질은 탄소강이며 용량은 187리터이다. 용융로는 운전 중 $-50 \sim -200 \text{ mmH}_2\text{O}$ 의 부압을 유지하도록 되어있다. 플라즈마토치용융로의 크기는 직경 59 cm 높이 68 cm 이며, 용융로의 모습은 그림 1과 같다.

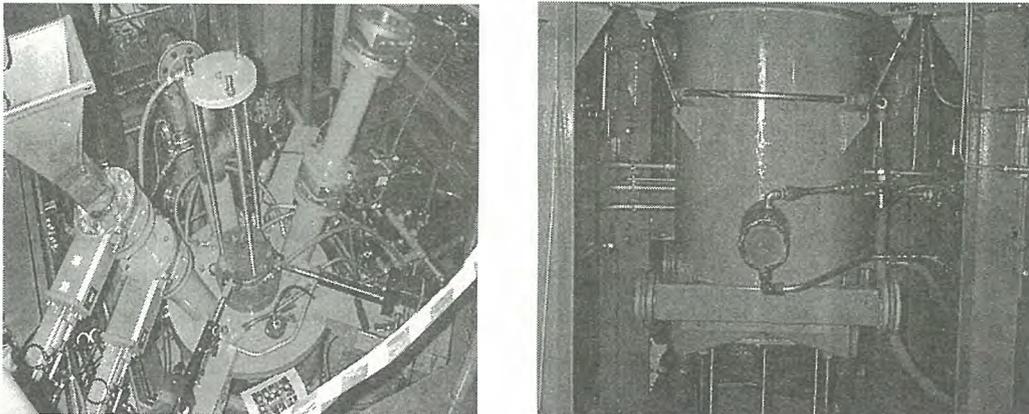


그림 1. 플라즈마 토치 용융로

2.2 플라즈마 토치 시스템

그림 2는 플라즈마 토치의 운전 및 interlock system의 개관도이다. 플라즈마 토치 시스템은 크게 보아 본체, 전원시스템, 냉각수 시스템, 질소 공급 시스템 및 운전 시스템으로 이루어진다. 본체는 AP-200L 플라즈마 토치로서 비이송식 공동형이며 구경이 10.6cm, 길이가 95cm이다. 동작 전압은 600V이며, 전류의 조절에 의하여 출력이 결정된다. 토치 전극의 냉각을 위한 냉각수의 회로는 음극과 양극을 분리하여 저전도도 냉각수를 사용할 필요가 없도록 되어 있다. 토치의 하우징 역시 분리된 냉각수 회로에 의하여 냉각된다. 그러나 냉각수 순환을 위한 펌프는 하나이며, 각각의 회로에 적당한 압력이 걸리도록 밸브를 조절하여 사용하였다. 플라즈마 매질로는 질소를 사용하였는데, 이는 질소산화물(NOx)의 발생을 억제하기 위한 것이다. 질소 가스는 액체 질소를 기화

기에서 적절한 속도로 기화시켜 얻었다.

플라즈마 토치의 인터록 시스템은 플라즈마 토치의 손상을 사전에 방지하고, 이어지는 용융로의 오염을 방지하기 위한 것이다. AP 토치의 인터록 시스템은 냉각수의 온도(Ti)와 유량스위치, 질소 유량스위치 및 토치 전압계, 그리고 외부의 인터록 입력으로 구성되어 있다. 일단 인터록 조건이 발생하면, 즉시 토치로 공급되는 전원 중지시키도록 되어 있다.

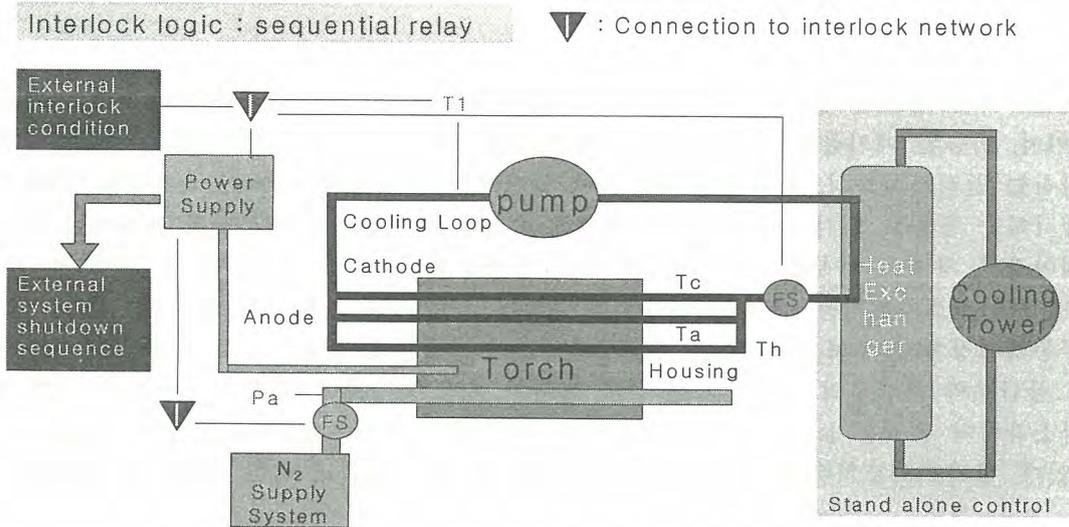


그림 2. AP-200 plasma torch.제어 및 interlock 계통

3. 실험

모사시료에 대한 유리화 실험은 3차례에 걸쳐 수행되었다. 각 실험의 기본 조건은 표 1에 기록되어 있다. 토치는 연속적으로 회전하면서 시료를 처리하였다. 균일한 용융상태를 유지하기 위하여 회전속도(원주속도)를 일정하게 유지하면서 회전반경을 연속적으로 증가 혹은 감소시키는 방법을 사용하였다. 토치의 노즐과 용융물 표면사이의 간격은 시료의 녹는 상태를 관찰하면서 결정하였는데, 대략 20 - 25cm 정도를 유지하였다.

각 실험 동안 주요 인자 (플라즈마토치 전압, 냉각수 인입온도, 냉각수 토출 온도, 용융로벽 냉각수 인입 온도, 용융로벽 냉각수 토출 온도, 베가스 온도)의 시간대별 변화는 그림 3에 나타나 있다. 전반적으로 보아 실험 시간 동안 플라즈마 토치와 용융로의 동작이 상당히 양호한 것을 볼 수가 있다. 플라즈마 토치의 출력은 수%의 범위내에서 거의 일정

표 1. 고온용융 시험 대상별 실험 조건

실험번호	모사 시료	소요 시간	투입속도	토치전력	질소유량
1	콘크리트 33kg	4시간 25분	14.4kg/시간 (600g/회, 2분 30초 간격)	150kW	690 l/min
2	흙 75kg	6시간 55분	14.4kg/시간 (600g/회, 2분 30초 간격)	150kW	837 l/min
3	혼합시료 69kg (콘크리트3: 흙2 : 못1)	6시간 40분	14.4kg/시간 (600g/회, 2분 30초 간격)	150kW	705 l/min

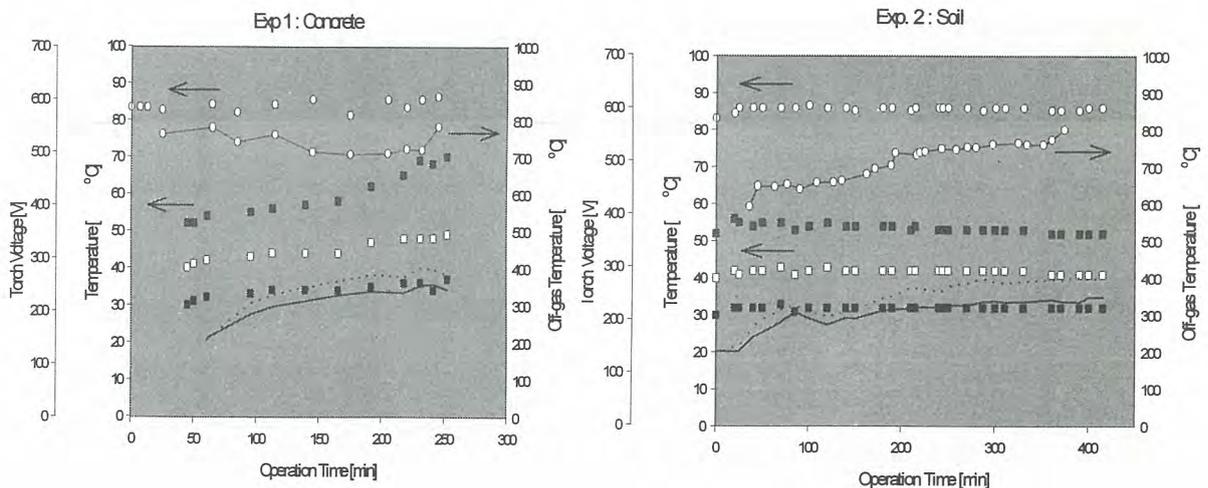
하게 유지되었다. 냉각수 온도의 경우 3번의 실험에서 특이한 차이점은 실험 1의 양극 냉각수 온도는 시간이 지나면서 점점 높아지는데 비하여 실험 2,3의 경우 별 차이가 없다는 사실인데, 이는 양극(노즐) 부위의 차이에 기인한다. 즉, 실험 1의 경우 시간이 지남에 따라 노즐에서 막힘 현상이 생겨 냉각수의 온도가 올라가고, 효율도 따라서 나빠지는 현상이 목격되었다. 이는 또한 토치에서 토출되는 플라즈마의 속도를 더욱 증가시켜서, 투입된 시료를 용융시키기보다는 비산시키는 요인으로 작용하였다. 따라서 실험 2,3에서는 노즐의 앞 부위를 원뿔 형태로 넓혔으며, 이에 따라 막힘 현상이 없어졌고, 온도의 변화도 줄어들었다. 용융로의 냉각수의 경우도 3번의 실험 동안 온도의 변화가 거의 유사한데, 초기만 제외하면 냉각수의 온도 상승은 거의 일정한 것은 용융로의 외벽을 통한 열손실이 일정한 것을 나타낸다. 이는 캐스타블을 사용하는 용융로의 경우 온도의 상승과 함께 열손실이 점점 증가하는 것과 대별되는 특징이라고 할 수 있다. 실험동안 용융로의 압력은 -20mmAq 로 유지하였으며, 이 때 배기가스의 온도는 그림4에서와 같이 약 700-800도를 유지하였다. 그림 4는 플라즈마토치에 의한 모사시료의 용융과정 사진이다. 용융로가 캐스타블이 없는 수냉식이기 때문에 실험의 초기에는 열전달에 의한 냉각효과 때문에 용융물이 국부적으로만 생성된다. 하지만 용융물이 바닥을 채운 후에는 전체적으로 용융상태를 유지하는 것을 목격할 수 있었다.

4. 결과 및 논의

플라즈마 용융시료의 SEM 사진은 그림 5와 같다. 그림 5-(a)는 콘크리트, 5-(b)는 토양, 그리고 5-(c)와 (d)는 혼합(콘크리트, 토양, 금속)시료에 대한 사진이다.

콘크리트 및 토양 용융물에서는 SiO₂와 유리상의 2가지 상이 나타났으며 혼합폐기물에서는 2가지 상과 금속상이 아울러 나타났다. (a)와 (b)의 사진에서 어두운 색이 SiO₂이며 밝은 부분이 유리상이다. (c)에서는 어두운 상이 SiO₂, 회색 부분이 유리상 그리고 밝은 부분이 금속상이다. 각 용융물의 성분별 농도는 표 2와 같다.

콘크리트 용융물에서는 약 100 μm 정도의 bubble이 존재함이 확인되었고 토양 용융물에서는 200 μm 정도의 bubble 과 crack line 이 확인되었다. 또한 혼합폐기물 용융물에서는 완전히 용융되지 않은 금속 못도 관찰되었다(그림 5-(d) 참조).



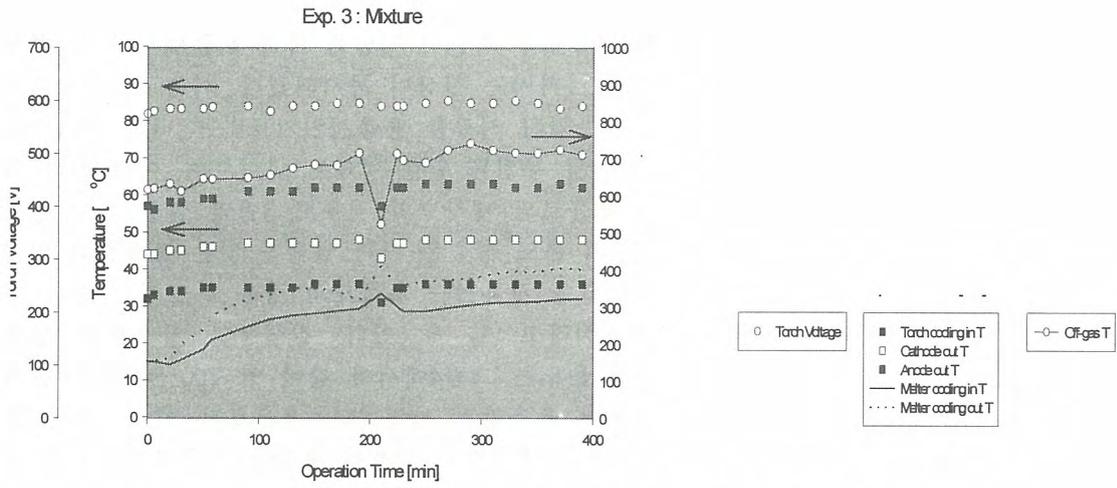
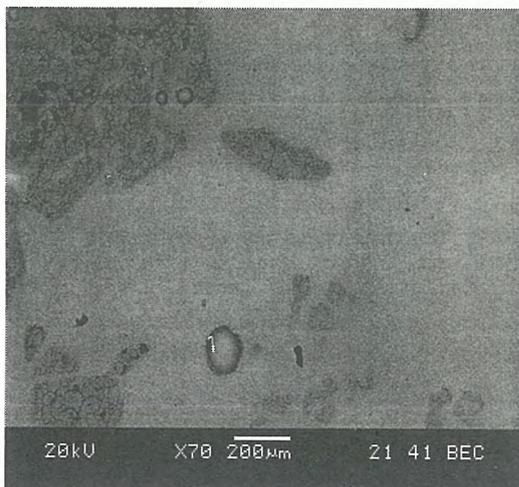


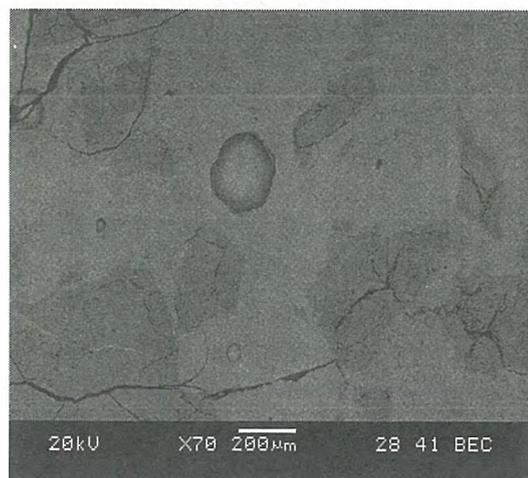
그림 3. 각 폐기물별 주요 인자의 변화



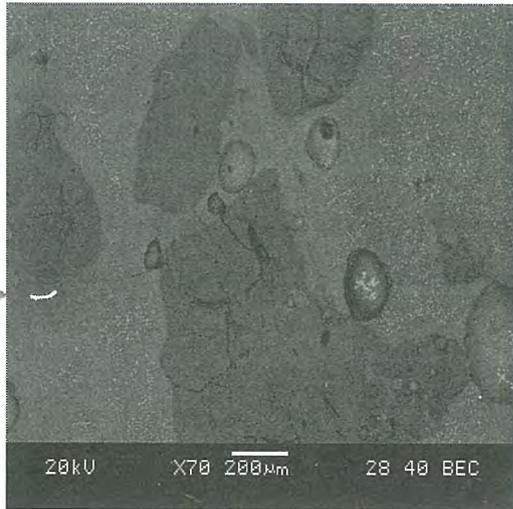
그림 4. PTM 운전 사진. 토치가 오른쪽에 있다.



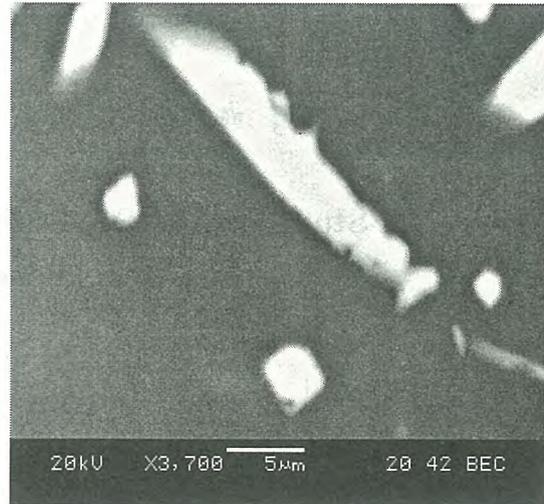
(a) 콘크리트



(b) 토양



(c) 혼합폐기물



(d) 혼합폐기물(3,700배)

그림 5. 폐기물별 용융물 SEM 분석

이는 전체적으로 폐기물 투입 속도에 비하여 에너지 공급이 적은 것이 원인인 것으로 판단된다. 즉 금번 실험에 사용된 AP-200L 토치는 주로 가연성인 도시폐기물을 산소를 매질로 하여 플라즈마 용융 처리하기 위하여 개발된 것으로 연소시 유기물의 산화에너지가 상대적으로 적은 량의 무기질을 유리화 시키는데 사용되는 것으로 고려하였으나 금번 시험과 같이 전체가 무기질인 경우에는 플라즈마 가스의 온도가 전체적으로 상당히 높아야 한다.

따라서 이 시험과 같은 정도의 폐기물을 투입할 경우 우선 전력을 약 20%정도 높은 180 kW 정도로 유지하고 플라즈마 가스의 유량을 현재의 690 - 840 lpm에서 180 - 240 lpm으로 낮추어 가스 온도 구배를 크게 할 경우 충분히 균질한 유리질의 무기폐기물 용융물을 얻을 수 있을 것으로 생각된다.

표 2. 시료별 용융물 성분 분석 결과(wt %)

성분 시료	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	K ₂ O	Na ₂ O	MgO	TiO	계
콘크리트	67.44	10.61	7.63	7.47	3.72	1.65	0.75	0.74	100.01
토양	61.77	23.74	1.74	3.29	6.51	2.94	-	-	99.99
혼합물	60.46	17.85	8.61	4.98	4.52	2.91	0.67	-	100

5. 결 론

AP-200L 플라즈마 토치를 이용한 비가연성 방사성 폐기물에 대한 용융 실험을 수행하였다. 플라즈마 토치와 용융로의 안정적 동작을 확인하였으며, 플라즈마 토치의 전력을 상승시키고 플라즈마 가스의 유량을 적정량으로 줄여 공급할 경우 수냉식 플라즈마 용융로에서도 플라즈마 가스의 에너지가 충분히 용융 대상으로 전달되어 양질의 용융물을 생산할 것으로 판단되며 이에 대한 지속적인 연구와 시험이 요구된다.

방사성 폐기물 내 ^{55}Fe , ^{90}Sr 및 ^{94}Nb 의 분리 연구

Study on the Separation of ^{55}Fe , ^{90}Sr and ^{94}Nb in Radioactive Wastes

이창헌, 정기철*, 임석남**, 김원호, 지광용

한국원자력연구소

*(주) ACT

**한국수력원자력주식회사

요 약

원자력발전소의 특성에 따라 서로 다른 방사성 폐기물의 핵종 재고량 평가에 필요한 척도인자와 주기적 검증방법을 개발하기 위하여 규제 대상의 핵종으로 검토되고 있는 다수의 핵종 중에서 개별분리가 요구되는 ^{55}Fe , ^{90}Sr 및 ^{94}Nb 을 공존 핵종들로부터 선택적으로 분리, 회수할 수 있는 방법에 관하여 기술하였다. 고·액체 방사성 폐기물과 유사한 화학조성의 모의 방사성 폐기물 용해용액을 사용하여 이온교환수지법과 추출 크로마토그래피로 Fe, Sr, Nb 및 공존원소들의 흡·탈착거동을 조사하였다. 방사성 폐액의 발생과 분석자의 방사선 피폭을 최소화하기 위하여 한 개의 시료로부터 각 핵종을 순차적으로 회수하도록 분리조건을 최적화하였으며 확립된 분리조건에서 회수율을 측정하고 신뢰도를 평가했다.

Abstract

Several radionuclides are considered as an object of the assesment to develop a scaling factor and a periodical verification method which are needed for the evaluation of radionuclide inventory of various radioactive wastes from nuclear power plants in Korea. A selective separation of ^{55}Fe , ^{90}Sr and ^{94}Nb which should be recovered individually for the radiochemical analysis was described in detail. Sorption and desorption behaviours of ion exchange and extraction chromatographic resins for Fe, Sr, Nb and co-existing metal ions were investigated using an artificial waste solution simulated of chemical composition of real radioactive wastes. Separation conditions available for the sequential recovery of these metal ions from a single sample were optimized to minimize a

discharge of radioactive wastes produced through the analytical process and a radiation exposure to analysts. Their recovery yields were measured with reliability.

1. 서론

근래 국내의 모든 원자력발전소에서 발생하는 중·저준위 방사성 폐기물의 효율적 관리를 목적으로 폐기물 유형과 규제핵종 선정기준을 마련하고 핵종분석용 척도인자와 주기적 검증방법을 개발하려고 하는 연구가 수행되고 있다.

고려되는 규제 핵종은 ^3H , ^{14}C , ^{55}Fe , ^{58}Co , ^{59}Ni , ^{60}Co , ^{63}Ni , ^{90}Sr , ^{94}Nb , ^{99}Tc , ^{129}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{144}Ce , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{244}Cm , ^{242}Cm 및 gross-alpha로서 비파괴 분석이 불가능한 다수의 알파선과 베타선 방출핵종이 포함되어 있다.

본 연구에서 연구 대상으로 하는 ^{55}Fe , ^{59}Ni , ^{63}Ni , ^{90}Sr 및 ^{94}Nb 은 핵분열생성물과 조사과정에서 재료물질로부터 생성되는 방사화물질로서 낮은 에너지의 X-선과 베타선을 방출하므로 정밀, 정확한 분석을 위해서는 공존하는 핵종들뿐만 아니라 다양한 화학조성의 폐기물 매질(Ca, Mg, Al, Zn, Cr, Pb, Pb, Cd, Mo, Mn, Cu, Ti, Zr, U)로부터 이들 핵종들을 개별적으로 분리, 정제해야 한다.

핵연료주기에 관련된 시료의 분석과정에서 금속이온의 분리에 주로 적용되는 방법은 이온교환수지법¹⁻² 및 유기용매추출법³⁻⁵ 등이며, 특히 유기용매추출법의 선택적 분리특성과 이온 크로마토그래피의 다단계 분리특성을 함께 갖춘 추출 크로마토그래피는 이온교환수지법과 같이 방사성 폐액의 발생량을 최소화 하고 분리과정이 단순한 특징을 갖고 있기 때문에 핵종의 흡착특성에 관해 폭 넓은 연구가 수행되고 있다⁶.

본 연구에서는 음이온교환수지와 추출 크로마토그래피로 ^{55}Fe , ^{90}Sr 및 ^{94}Nb 을 공존 핵종과 폐기물의 매질로부터 개별적으로 분리한 후 액체섬광계수법과 X-선 분광 분석법으로 정량하도록 하였다. 이를 위하여 방사성 폐기물의 산 용해용액과 화학조성이 유사한 모의용액을 사용하여 금속이온들의 용리거동을 조사하고 특히, 분석자가 방사선에 과다하게 노출되지 않고 과량의 방사성 폐액이 발생하지 않도록 하나의 시료로부터 분석핵종을 순차적으로 회수할 수 있도록 분리조건을 최적화하였으며, 확립된 분리조건에서 회수율을 측정하고 신뢰도를 평가하였다.

2. 실험

2.1. 기기 및 장치

분리관을 통과하기 전후의 금속이온 농도를 측정하기 위하여 여러 원소들을 동시에 분석할 수 있는 Jobin Yvon사 (France)의 유도 결합 플라즈마 원자방출분광기(ICP-AES)를 사용하였다.

2.2. 시약 및 용액

실험에 사용된 모든 시약은 분석 시약급으로서 정제하지 않았으며, 이차 증류수는

탈염수를 Milli-Q plus Ultra Pure Water System (Millipore)에 통과시킨 것을 사용하였다. 방사성 폐기물 용해용액과 화학조성이 유사한 비방사성 모의 혼합 금속이온 용액을 제조하기 위하여 Spex사의 유도결합 플라즈마 원자방출분광분석 검정용 표준용액 (1,000 mg/L)을 혼합, 제조하였다.

2.3. 분리관 준비

실험에 사용된 분리관은 폴리프로필렌 재질의 일회용 주사기 (1 mL, NSC사, Germany)로서 폴리에틸렌 재질의 필터 (Alltech, U.S.A.)를 끼워 제작하였다. 음이온 교환수지는 Bio Rad사의 AG 1X8 (100-200 mesh)을 그리고 추출 크로마토그래피용 수지는 Eichrom사의 TRU spec.과 Sr spec.으로서 100-200 mesh의 것을 사용하였다.

3. 결과 및 토의

3.1. Fe 분리 및 회수

Fe, Ni 및 Sr이 100 µg씩 그리고 Ca, Mg, Al, Zn, Cr, Pb, Cd, Mo, Mn, Cu, Ti, Zr 및 U이 각각 10 µg씩 함유되어 있는 10 M HCl 용액 1 mL를 Fe 분리용 음이온 교환수지 분리관에 넣고 완전히 통과시켰다. Fig. 1에서와 같이 10 M HCl을 5 mL 통과시켜 Ni, Sr, Ca, Mg, Al, Cu, Mn, Cr, Ce 및 Pb를 그리고 계속해서 4 M HCl을 20 mL를 통과시켜 남아있는 Cu, Co 및 Zr을 제거하였다. 마지막으로 2 M HF를 통과시켜 Fe(III)을 Cd, Zn 및 U과 함께 회수하였다.

음이온교환수지 분리관에서 Fe(III), Zn, Cd 및 U을 회수하고 용리액 (2 M HF)를 백열등 아래에서 증발건고하였다. 이어서 8 M HNO₃ 1 mL로 용해시키고 TRU spec. 분리관에 넣은 후 8 M HNO₃ 10 mL를 통과시켜 Zn와 Cd를 제거한 다음 2 M HNO₃ 10 mL로 Fe을 선택적으로 회수하는 용리과정을 Fig. 2에 나타내었다. 음이온교환수지법으로부터 TRU spec.까지의 연속 분리과정에서 100 µg Fe의 회수율은 99%이었으며 이 때 상대표준편차는 0.1%이었다(Table 1)

3.2. Sr 분리 및 회수

Fe 분리과정에서 10 M HCl로 Ni, Ca, Mg, Al, Cu, Mn, Cr, Ce 및 Pb과 함께 정량적으로 회수된 Sr이 함유된 염산 용액을 백열등 아래에서 증발건고한 후 8 M HNO₃ 1 mL로 용해시킨 다음 Sr spec. 추출 크로마토그래피 분리관에 넣었다. Ni, Ca, Mg, Al, Cu, Mn, Cr 및 Ce은 8 M HNO₃으로 제거하였으며 Fig. 3에서와 같이 0.05 M HNO₃ 20 mL로 Sr을 정량적으로 회수할 수 있었다. 100 µg Sr의 회수율은 103.7% 그리고 상대표준편차는 3.4%이었다 (Table 2).

3.3. Nb 분리 및 회수

Fe, Ni, Sr 및 Nb이 100 µg씩 그리고 Ca, Mg, Al, Zn, Cr, Pb, Cd, Mo, Mn, Cu, Ti, Zr 및 U이 각각 10 µg씩 함유되어 있는 3 M HCl/11.6 M HF 혼합산 1 mL를 주사기 거르개 (Syringe filter, 0.45 µm, Waters)로 Ce 및 Zr 침전물을 제거한 다음 거른용액 0.8 mL를 음이온교환수지 분리관에 넣어 Nb을 흡착시켰다. Fig. 4에서와 같이 20 mL의 3 M HCl/ 11.6 M HF 혼합산으로 Fe, Ni, Sr, Ca, Mg, Al, Cr, Pb,

Mo, Mn, Cu, Ti, Zr 및 U을 그리고 7.2% $\text{NH}_4\text{Cl}/4.08 \text{ M HCl}/11.6 \text{ M HF}$ 용액으로 Zn와 Cd 일부를 제거하였다.

Nb을 Zn과 Cd로부터 선택적으로 분리시키기 위하여 앞에서 Nb, Zn 및 Cd을 용리시킨 5 M $\text{HNO}_3/0.2 \text{ M HF}$ 혼합산을 백열등 아래에서 증발건고한 후 1 mL의 1 M $\text{HF}/0.1 \text{ M HNO}_3$ 혼합산으로 용해시킨 다음 음이온교환수지 분리관에 넣었다. Fig. 5에서와 같이 1 M $\text{HF}/0.1 \text{ M HNO}_3$ 혼합산 20 mL를 통과시켜 Zn 및 Cd을 제거시킨 후 10 mL의 0.2 M $\text{HF}/5 \text{ M HNO}_3$ 혼합산으로 Nb을 선택적으로 분리, 회수할 수 있었다.

4. 결 론

음이온교환수지와 추출 크로마토그래피 수지를 사용하여 모의 방사성 폐기물 용해 용액으로부터 Fe, Sr 및 Nb의 선택적 분리조건을 최적화하였다. 금속이온마다 다르지만 5% 이하의 정밀도로 정량적인 회수가 가능하여 실제 방사성 폐기물 용해용액으로부터 이들 핵종의 분리와 회수에 적용이 가능하다고 판단된다.

참 고 문 헌

1. E. A. Huff, D. L. Bowers, *Appl. Spectrosc.* **1989**, *43*, 223.
2. Walton, H. F.; Rocklin, R. D. *Ion Exchange in Analytical Chemistry*; CRC Press; Boca Raton, FL, 1990.
3. Floyd, M. A.; Morrow, R. W. *Spectrochim. Acta* **1983**, *38B*, 303.
4. T. J. Sehagiri and Y. Babu, *Talanta* **1984**, *31*, 773.
5. R. Ko, *Appl. Spectrosc.* **1984**, *38*, 909.
6. T. Braunt, G. Ghersini, Ghersini, Eds.; *Extraction chromatography*; Elsevier: Amsterdam, 1975.

Table 1. Recovery of Fe by anion exchange and TRU extraction chromatography

Element	Added, μg	Sample No.	Found, μg	AV. μg	Recovery, %	RSD. %
Fe	104.6	1	103.6	103.5	99.0	0.1
		2	103.4		98.9	
		3	103.6		99.0	

Table 2. Recovery of Sr by Sr spec. extraction chromatography

Element	Added, μg	Sample, No	Found, μg	AV. μg	Recovery, %	RSD.
Sr	93.7	1	94.4	97.2	100.7	3.4
		2	96.4		102.9	
		3	100.8		107.6	

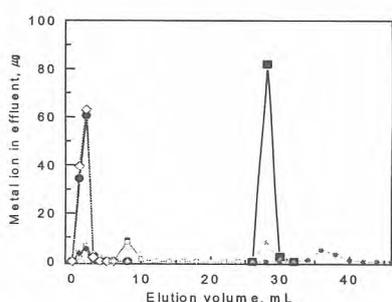


Fig. 1. Elution behavior of Fe and co-existing metal ions on the anion exchange resin column. Sample solution; 10 M HCl (1 mL). Eluent; 10 M HCl: 5 mL, 4 M HCl: 20 mL, 2 M HF: 20 mL. Column; anion exchange resin: Bio Rad AG 1X8, 100-200 mesh, I.D.: 5 mm, bed volume: 1 mL, bed height: 55 mm.

—○— Cr —●— Ni —▲— Mn —△— Mg —◇— Al —□— Cu
—○— Pb —●— Sr —▲— Co —△— Zr —◇— Cd —□— Fe
—*— U

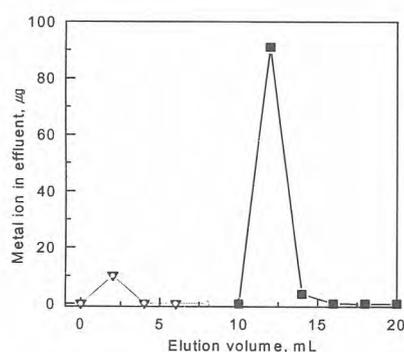


Fig. 2. Elution behavior of Fe, Zn and Cd on the TRU extraction chromatographic resin column. Sample solution; 8 M HNO₃; 1 mL. Eluent; 8 M HNO₃; 10 mL, 2 M HNO₃; 20 mL. Column; TRU spec. resin: 100-200 mesh, weight: 200 mg, I.D.: 5 mm, bed volume: 0.5 mL, bed height: 30 mm. —▼— Zn —○— Cd —■— Fe.

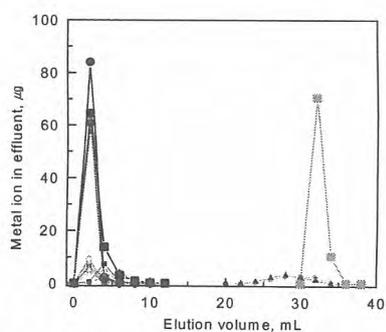


Fig. 4. Elution behavior of Nb and co-existing metal elements on the anion exchange resin column. Sample solution; 3 M HCl/20% HF: 0.8 mL. Eluent; 3 M HCl/20% HF: 20 mL, 7.2% NH₄Cl/12.5% HCl/20% HF: 10 mL, 0.2 M HF/5 M HNO₃: 10 mL. Column; anion exchange resin: Bio Rad AG 1X8, 100-200 mesh, I.D.: 5 mm, bed volume: 1 mL, bed height: 55 mm.

—■— Mo —○— Cr —●— Zn —▲— Pb —△— Cd —◇— Co —□— Ni
—○— Mn —■— Fe —▲— Mg —△— Al —◇— Nb —□— Cu —●— Ti
—*— U —○— Ca —●— Sr

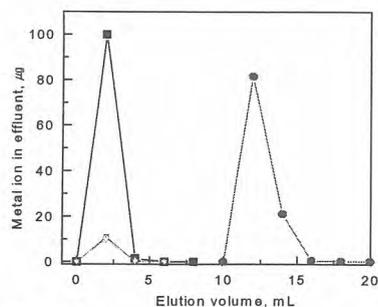


Fig. 3. Elution behavior of Sr and co-existing metal ions on the Sr extraction chromatographic resin column. Sample solution; 8 M HNO₃; 1 mL. Eluent; 8 M HNO₃; 10 mL, 0.05 M HNO₃; 20 mL. Column; Sr spec. resin 100-200 mesh, weight: 300 mg, I.D.: 5 mm, bed volume: 0.9 mL, bed height: 60 mm.

—■— Cr —●— Ni —▲— Mn —△— Mg —◇— Al —□— Ca —●— Cu
—○— Ce —●— Sr

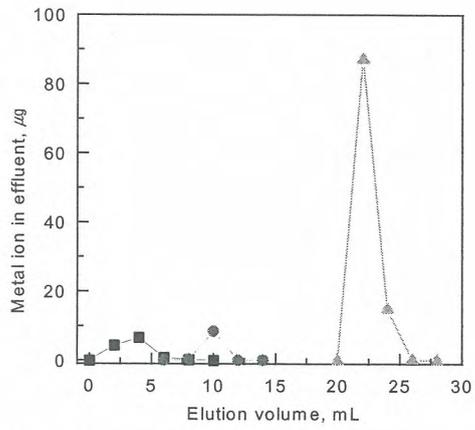


Fig. 5. Elution behavior of Zn, Cd and Nb on the anion exchange resin column. Sample solution; 1 M HF/0.1 M HNO₃; 1 mL. Eluent; 1 M HF/0.1 M HNO₃; 20 mL, 0.2 M HF/5 M HNO₃; 10 mL. Column; anion exchange resin: Bio Rad AG 1×8, 100-200 mesh, I.D.: 5 mm, bed volume: 1 mL, bed height: 55 mm. —■— Zn —●— Cd —▲— Nb

방사성고화체의 물리화학적 안정성 평가

Evaluation on the Stability of Solidified Waste Forms

유영걸, 김기홍, 홍권표

한국원자력연구소

정의영, 고덕준

한국수력원자력(주) 원자력환경기술원

요 약

중·저준위폐기물 처분장 인수조건 평가를 위한 미국 및 프랑스의 시험법을 사용하여 붕산 및 폐수지함유 시멘트 고화체와 파라핀 고화체의 안정성을 평가하였다. 고화체의 압축강도는 176.03 kgf/cm²(시멘트), 15 kgf/cm²(파라핀) 이상으로 미국 및 프랑스의 천층 처분장 인수기준치보다 높았다. 온도내구성시험에서는 고화체의 외관 및 부피변화는 없었으며 무게 감소는 평균 6.15% 이었다. 120일간의 내수성 시험에서 파라핀 고화체의 무게 감소는 8.85~5.14%, pH는 3.83이었다. 방사선 조사영향에서 흡수선량 10⁸rads에서 시멘트 고화체의 무게 감소를 보였으며, 고화매질인 파라핀왁스의 수소와 메탄의 G 값은 각각 2.65, 0.016 이었다.

Abstract

The stability of various waste forms to meet waste acceptance criteria was evaluated by using standard test methods of U.S.A and France. Compressive strength of waste forms were above 176.03 kgf/cm²(cement), 15 kgf/cm²(paraffin). In the thermal cycling test, there were no any change in their feature and volume, the loss of weight was 6.15% on the average. In the immersion test for 120 days, the loss of weight of paraffin waste form was 8.85 ~ 5.14% pH = 3.83. The G-Value of H₂ and CH₄ in paraffin wax at 10⁸rads of exposure dose were 2.65, 0.016.

1. 서 론

방사성 폐기물은 영구처분을 위하여 국가의 규제기관과 처분코자 하는 처분장에서 제시한 폐기물 수용기준을 준수할 수 있도록 제조하게 되며, 폐기물 수용기준은 처분시설의 가동동안 인간과 환경 보호 그리고 최대 300년간의 제도적 통제기간을 고려하여 처분장의 안전성 확보를 위하여 설정되어진다. 이때 폐기물 인수기준에서 요구하는 사항들은 국가 규정에서 최소화하여 규정하게 되고, 처분장에서는 국가규정과 처분환경조건을 고려하여 보다 더 엄격히 규정하고 있는 것이 일반적이다.

방사성 폐기물 고화체와 그의 고화용기는 방사성 핵종의 1차 누출 방어역할을 하는데 방사성 고화체는 폐기물의 종류, 폐기물의 물리화학적 성질, 핵종 및 고화매질에 따라 방사능 누출등의 특성들이 달리하게 되므로 폐기물 고화체와 포장물의 특성규명을 위하여 생물학적, 화학적, 물리학적, 방사학적 특성을 측정할 수 있는 신뢰성 있고 효율적인 방법들을 개발하고 있으며, 일부는 표준화되어 있는 실정이다.

폐기물 인수기준중 고화체의 안정성 평가와 관련하여 미국(NRC/BTP)은 폐기물의 종류와 고화매질에 따라 유리수, 압축강도, 방사성 영향특성, 미생물 영향 특성, 침출 특성, 내수성 및 내온도 주기성 등에 대하여 표준시험법을 제시하였으며, 또한 그의 기술기준치도 제시하고 있다. 그리고 프랑스(DRDD/ BECC)에서는 미국보다 매우 세밀하게 평가항목들을 분류하고 있으며, 평가시험들을 처분 환경과 처분방식에 맞게 표준화하고 있다.

일반적으로 압축강도(기계적 특성)는 적재내구 및 찻수 안정 그리고 충격에 매우 중요한 항목이며, 기타 특성평가 시험전후에 고화체의 안정성을 비교하거나 평가하는데 이용되기도 한다. 적재내구성은 저장, 취급, 수송 및 처분시 직면하게 될 압력을 이겨낼 수 있도록 적어도 6단 적재(IAEA 수송규정)에서도 안전한 지지력을 갖추어야 한다. 고화체는 경화나 저장동안 일어나는 화학반응, 방사선의 영향, 폐기물을 처분시켰을 때 물의 침입 등으로 인하여 수축 또는 팽윤되어 폐기물 고화체가 감당할 수 없는 압력에 이르다면, 고화체는 변형되거나 파쇄될 수밖에 없다.

폐기물 고화체가 저장과 수송조건에 따라 0°C 이하에 놓여질 경우 특히 시멘트 고화체에 있어서 이러한 낮은 온도에서 고화체가 동결되고 이에 수반되는 공극내의 수분과 폐기물 구성물질의 팽창으로 고화체에 손상이 발생할 수 있다. 계속되는 미세한 압박이 붕괴에 이루게 할 수 있는 힘으로 작용할 수 있으므로 반복되는 동결-융해 주기하에서 고화체는 이를 이겨낼 수 있는 내온도 주기성을 갖고 있어야 한다.

보통 고화체는 처분장의 관리기간인 300년 동안 고화체내의 핵종들로부터 $10^7 \sim 10^8$ rads 정도의 피폭을 받는다고 가정한다. 따라서 고화체를 장기간 저장하거나 처분하는 경우에는 방사선(고화체내에 함유된 핵종들에 의한 것과 포장물 적재에 의한 타 포장물에 의한 외부 방사선)에 의하여 피폭되어 고화체의 팽윤, 수축 등으로 취약한 상태로 변화시키거나 고화체내의 수용상과 폐기물에서의 방사분해로 고화매질을 붕괴할 수 있을 정도의 압력을 야기시킬 수 있는 기체를 발생시킬 수 있다. 방사분해에 의한 붕괴를 이겨낼 수 있는 가는 고화체에 대한 가스투과성과 선량율에 의존된다. 즉 가스발생은 총 선량율에 의존하게 되고, 고화체로 부터의 기체방출은 시간에 의존하게 된다.

따라서 본 연구에서는 미국과 프랑스 및 기타 국가에서 고화체의 안정성 평가에 활용되고 있는 시험법들을 이용하여 폐기물, 고화매질 및 시편 크기별로 고화체의 안정성을 상호 비교하였으며, 또한 시험조건을 서로 교차하여 고화체의 안정성을 평가하여 보았다.

2.. 실 험

가. 고화체 시험시편 제조

(1) 시편의 재료

고화체 제조에 사용된 시멘트는 포틀란트 I형, 파라핀 왁스는 국내 원자력발전소에서 사용하고 있는 Aristowax 165(Fully Refined Paraffin Wax)와 순도 99.8%인 미세분말 형태의 붕산, 이온교환수지로는 IRN-150LC를 사용하였다.

(2) 시멘트 고화체

고화체의 안정성 평가시험을 위한 고화체 제조는 KSL 5109(2001)에 기술된 혼합용기를 사용하였으며 또한 기술된 혼합시간 및 혼합속도에 따라 모의 고화체를 제조하였다.

이때 붕산함유 시멘트 고화체 제조를 위하여 붕산폐액은 70℃에서 붕산의 농도가 12 wt.%가 되도록 한 후, NaOH로 중화처리하여 pH가 8이 되도록 하였다. 고화 혼합비율은 무게비율로 붕산/농축폐액 / 시멘트 / 소석회 = 39.0 / 55.1 / 5.9(wt.%)로 하였다.

한편 폐수지함유 시멘트 고화체의 혼합비율은 폐수지 / 물 / 시멘트 / 소석회 = 9.40 / 22.11 / 61.69 / 6.68 wt.%이 되도록 하였다. 폐수지와 물의 비율을 결정하기 위하여 폐수지(IRN-150LC)의 수분함유율은 50.67 wt.%, 습윤수지의 진밀도는 1.1138 g/cm³, 수지사이의 공극율은 34.5%로 하였다. 따라서 수지내부의 물은 시멘트 고화에 참여치 않고 오직 수지사이의 공극에 존재하게 되는 물만 시멘트고화에 참여하는 것으로 계산하였다. 그리고 물은 100 ppm의 붕산을 함유하는 것으로 하였다.

(3) 파라핀 고화체

Fig. 1의 반응용기에 먼저 파라핀왁스를 주입하여 완전히 녹인 후 투입구를 통해 붕산을 조금씩 넣으며 교반기를 사용하여 혼합하였다. 가열온도는 파라핀왁스의 전열벽면에서의 탄화방지를 위하여 90~100℃를 유지하였고, 교반기의 교반속도는 약 180 rpm으로 하였다. 약 10분 동안 혼합시킨 후 완전하게 섞인 혼합물을 PE 원통형 몰드에 담아 약 15일간 경화시킨 후 몰드를 제거하여 시편을 제조하였다. 이때 붕산과 파라핀 왁스의 혼합비는 원자력발전소의 CDWS 운전기록을 참조하여 무게비(%)로 70 : 30으로 하였다.

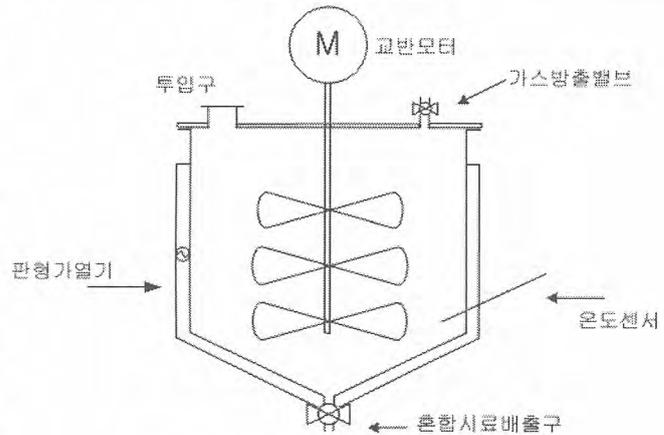


Fig. 1. Paraffin Wax Mixer

(4) 고화체 시험시편의 크기와 갯수

각국의 압축강도, 내수성, 내온도주기성 및 내방사성 특성시험과 시험조건 변화시험을 고려하여 시험시편의 크기와 갯수를 결정하였다. 그리고 한 시험에 대하여 산술평균값을 얻도록 3개씩 시험시편을 취하였다.

나. 고화체의 안정성 평가시험

(1) 압축강도

압축강도 시험은 상온, 밀봉된 상태로 28일의 경화시간이 경과한 뒤 압축강도를 측정하였다.

압축강도 측정시험에 사용된 시험장비는 한국 대경테크(주)에서 제작한 30톤 용량의 시험장비로서 시험 전에 교정하였다.

시멘트와 같은 rigid형 고화체에 대하여서 미국(ASTM C-39)은 시편의 크기를 1.8 < 직경/높이 (D/L) < 2.2, 재하속도는 0.24 ~ 0.34 MPa/s를, 프랑스(FT-02-010)에서는 직경/높이(D/L, D = 110mm) = 2.0, 재하속도는 0.5 MPa/s를 제시하고 있다.

한편 파라핀과 같은 flexible형 고화체에 대하여서는 미국(ASTM D-1074)은 시편의 크기를 직

경/높이(D/L) = 1, 재하속도는 0.05L mm/min를, 프랑스(FT-02-011)에서는 직경/높이(D/L, D = 80mm) = 1.5, 재하속도는 0.3L mm/min를 제시하고 있다.

본 평가시험에서는 상기 시험조건을 고려하여 압축강도를 측정하였다.

그리고 압축강도 계산은 아래 식과 같이 시편이 깨지는 순간 시편이 받은 힘(kgf)을 시편의 단면적(cm²)으로 나누어 계산하였다.

$$C = \frac{F}{S}$$

여기서

C : 압축강도, kgf/cm²

F : 힘, kgf

S : 단면적, cm²

(2). 온도 내구성

온도 내구성시험에 대하여 미국은 ASTM B-553, 프랑스에서는 FT-02-031를 적용하고 있다. 현재 ASTM B-553은 ASTM에서 사용하고 있지 않지만 NRC/BTP에서는 이의 사용을 권고하고 있다. ASTM B-553의 시험조건은 +22℃(1시간) → +60℃(1시간) → -30℃(1시간)을 1주기로 하여 총 30회의 주기 시험을 요구하고 있으며, FT-02-031에서는 +5℃(2시간) → -20℃(24시간) → +5℃의 동결과정을 1주기로 하여 총 5회를 수행한 후 이어서 +5℃(2시간) → +40℃(24시간) → +5℃의 용해과정을 1주기로 하여 총 5회를 시험토록 하고 있다.

따라서 본 평가시험에서는 상기 시험조건을 고려하여 내온도주기성 시험을 수행하였으며, 시험 전후의 시편의 칫수를 측정하여 무게 및 부피변화를 시험하였고, 육안관찰을 위하여 사진촬영을 하였으며, 시험이 완료된 후에는 압축강도를 측정하였다.

(3) 내침수성

현재 고화체의 침수 특성에 대하여서는 어떠한 시험법도 없다. 이에 따라 본 시험에서는 각국에서 표준시험법으로 채택하고 있는 침출시험법을 이용하여 내침수성을 시험하였으며, 시험(침출수 교체)전후의 칫수와 무게를 측정하여 무게 및 부피변화를 측정하였고, 침출수의 pH와 전기전도도를 측정하였다.

(4) 내방사성

방사선 고화체에 대한 방사선 조사 시험법으로 프랑스의 FT-05-030이 있다. 미국에서는 시험법은 없으나 NRC/BTP에서 이에 대한 입장을 제시하였다. 미국에서는 이온교환수지나 기타 유기물질을 함유하고 있지 않거나 예상되는 누적 피폭량이 10⁹ rads 이상이 되지 않을 경우, 10⁸ rads 까지, 프랑스에서는 10⁷ rads까지 고화체 시편이 피폭될 때까지 조사하여 고화체의 건전성을 평가토록 하고 있다. 특히 프랑스에서는 조사 선량율을 5 x 10² < dose rate < 5 x 10³ Gy/hr로 할 것을 요구하고 있다.

따라서 본 시험에서 방사선 조사는 Co-60(72,023.9 Ci)를 이용하여 5.43 x 10⁵ rad/hr의 조사 선량율로 고화체의 피폭량이 10⁶, 10⁷, 10⁸ rads가 될 때까지 조사하여 시험전후의 부피 및 무게 변화를 살펴보고, 압축강도도 측정하였다.

그리고 파라핀 왁스의 G 값을 얻기 위하여 파라핀왁스 1 g을 Break seal Ampule에 주입한 후에 1 x 10⁻⁴ mmHg의 진공으로 밀봉하였다. 총 선량은 10⁶, 10⁷, 10⁸ rads로 하였다. 가스조성은 Precision Gas Mass Spectrometer(Finnigan MAT 271)로 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

가. 압축강도

시멘트 고화체의 압축강도는 시멘트의 종류나 성분뿐 아니라 시멘트와 물의 혼합비, 함유되는 폐기물의 양과 첨가제의 종류와 양에 의해서도 크게 달라진다. 그리고 경화시간, 수분 및 온도 등의 경화조건에 의해서도 영향을 받기도 한다. 이외에 고화체를 제조할 때 시멘트 반죽내에 포함되는 기포도 영향을 미치는 것으로 알려져 있다.

시멘트 압축강도 측정시험은 일반적으로 최고 강도의 75%정도를 갖게 되는 28일 경화후에 수행하게 된다.

본 연구에서는 각국의 압축강도 측정시험법의 시험조건들을 종합적으로 비교평가 하기위하여 시멘트의 구조적 사항인 아닌 시험측정 영향인자들을 변화시켜 시멘트와 파라핀의 압축강도를 측정하였다.

Fig. 2와 3에 봉산함유 시멘트 고화체의 압축강도 시험결과 나타냈는데, Fig. 2 ~ 3에서 보듯이 176.03 kgf/cm² 이상이였다. Fig. 2는 시편의 크기를 ASTM C-39와 FT-02-010의 시편조건을 만족도록 하여 시험한 결과인데 직경이 클수록 시편(높이/직경 = 2)의 압축강도는 작아짐을 보여주고 있다. Fig. 3은 ASTM C-39와 FT-02-010의 재하속도를 모두 포함하는 재하속도를 다양하게 변화시키면서 측정한 시험결과로써 재하속도가 클수록 압축강도가 증가함을 보여주고 있다.

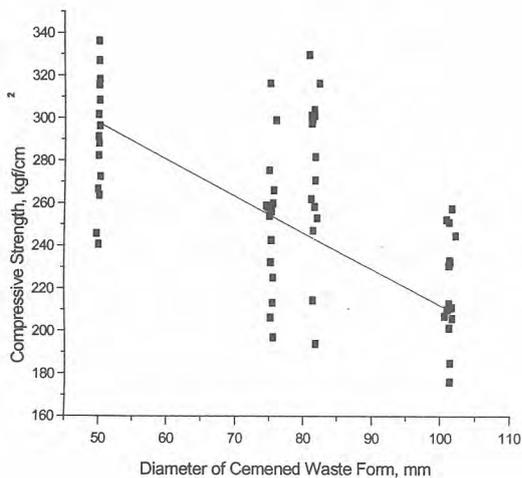


Fig. 2. Compressive Strength of Cement Waste Form Incorporated Borate waste with the Change of Diameter

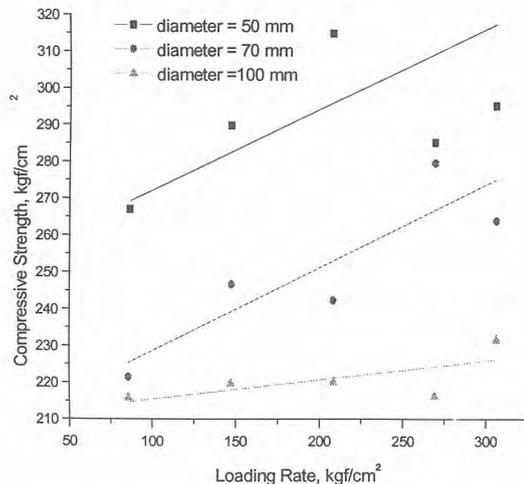


Fig. 3. Compressive Strength of Cement Waste Form Incorporated Borate Waste with the Change of Loading Rate

따라서 방사성 고화체의 압축강도를 측정할 경우 상기 두 측정시험법 모두 가능함을 알 수가 있고, 측정작업자의 방사선 피폭을 최소로 하기위하여 시편의 크기는 작게, 측정시간의 단축을 위하여 가급적 재하속도를 크게하는 것이 바람직 할 것으로 보인다.

한편 파라핀 고화체에 대하여 압축강도를 측정한 결과를 Fig. 4에 나타냈다. Fig. 4에서 보듯이

시멘트와 동일한 양상을 보였으며, 압축강도 값은 15 kgf/cm^2 이상이였다. 이 값은 미국의 인수조건인 4.08 kgf/cm^2 의 대략 3.7배 정도이다. 본 시험 역시 ASTM D-1074과 FT-02-011의 시험조건과 재하속도를 포함하는 시험조건으로 얻은 결과이다.

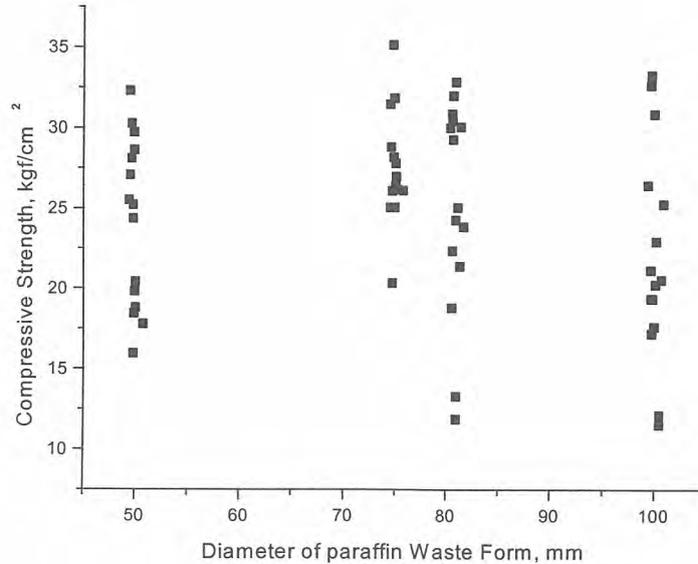


Fig. 4. Compressive Strength of Paraffin Waste Form Incorporated Borate waste with the Change of Diameter

나. 온도내구성

온도내구성 시험동안 고화체의 다양한 미세 성분간의 열팽창계수차에 기인한 응력이 발생되며 이러한 응력에 의해 균열이 성장하여 고화체를 현저하게 약화시킨다. 시멘트 고화체의 경우에는 균열, 파쇄, 팽윤정도는 고화매질인 시멘트의 혼합량, 폐기물의 양, 폐기물과 시멘트간의 결합력, 고화체의 미세구조내에 미세한 성분의 구조와 형태와 같은 다양한 인자들에 의해서 영향을 받는다.

본 시험에서는 ASTM B-553의 시험조건인 $+22^\circ\text{C}$ (1시간) $\rightarrow +60^\circ\text{C}$ (1시간) $\rightarrow -30^\circ\text{C}$ (1시간)을 1 주기로 하여 총 30회의 주기 시험을 수행하였고, 또한 이와는 별도로 FT-02-031의 시험조건인 $+5^\circ\text{C}$ (2시간) $\rightarrow -20^\circ\text{C}$ (24시간) $\rightarrow +5^\circ\text{C}$ 의 동결과정을 1주기로 하여 총 5회를 수행한 후 이어서 $+5^\circ\text{C}$ (2시간) $\rightarrow +40^\circ\text{C}$ (24시간) $\rightarrow +5^\circ\text{C}$ 의 융해과정을 1주기로 하여 총 5회를 시험하였다. 폐수지 함유 시멘트 고화체 대하여 FT-02-031에 의한 시험결과를 Fig. 5와 6에 나타냈다.

시험후의 압축강도는 165.06 kgf/cm^2 이상이었으며, 외관상 특이한 사항은 보이지 않았고, 부피변화는 거의 없었으며($\pm 0.28\%$), 다만 무게변화가 있었으며 시험 후 무게는 평균 6.15%가 감소하였다.

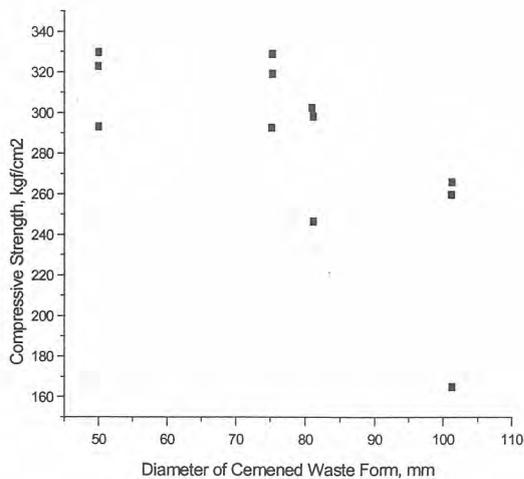


Fig. 5. Compressive of Cement Waste Form Incorporated Spent Resins After Thermal Cycling Test

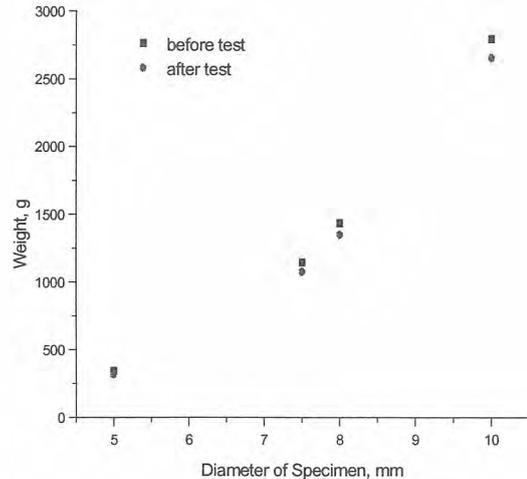


Fig. 6. Weight of Cement Waste Form Incorporated Spent Resins Before and After Thermal Cycling Test

본 시험결과 무게변화와 부피변화를 고려할 때 압축강도는 기준치를 상회하는 것으로 보아 고화체의 건전성을 유지하는 것으로 보인다. 그러나 프랑스 시험조건은 온화한 조건으로 간주되므로 보다 냉혹한 시험조건으로 수분을 함유하고 있거나, 수분을 흡수할 수 있는 폐기물을 함유한 고화체에 대하여서는 내온도주기성시험에 의한 안정성평가가 이루어져야 하겠다는 판단이 든다.

다. 내침수성

처분장내로 예상치 않게 지하수 등이 유입될 경우에 유입된 물은 고화매질 및 고화체내의 함유 물질과 상호작용하여 고화체에 부피변화 및 구조적 특성에 영향을 끼쳐 고화체가 균열, 파쇄, 팽윤될 경우에 처분장의 안전성에 중대한 영향을 미치기 때문에 침수시험은 고화체의 건전성을 평가해야 할 중요한 시험이다.

그러나 현재까지 침수시험에 대한 시험조건 및 절차 등이 없어 침출시험에 준하여 시험을 수행하거나 일정시간동안 물에 침수시켜 일정간격으로 고화체의 부피변화, 무게변화 등을 조사하게 된다.

본 침수시험에서는 침출시험(IAEA, FT 그리고 ANS 16.1)에 준하여 일정시간 간격으로 물을 교체하여 부피 및 무게변화를 살펴보았으며, 또한 교체 침수물의 pH와 conductivity 등을 측정하였다.

침수시험결과는 Fig. 7과 8에 시편의 크기에 따라 침수일수 경과일수별로 시편의 무게변화와 그때의 침수물의 pH를 나타냈다.

Fig. 7과 8에서 보듯이 시멘트 고화체는 침수시간의 진행에 따라 다소 무게가 감소하면서 pH는 증가하고 있음을 알 수 있는데 이는 시멘트의 다공부분으로 물이 침투하여 들어가기 때문으로 보이면 pH는 시멘트로 침투한 물에 의하여 염이 용해되어 물속으로 빠져나오기 때문에 증가하는 것으로 보인다. 반면에 파라핀 고화체인 경우에는 고화체내로 침투한 물에 의하여 계속 봉산이 빠져나와 pH가 감소함을 알 수 있다. 시멘트에 비하여 파라핀 고화체의 무게 변화는 매우 빠른 것으

로 보이며 비교적 물에 장기적으로 침수될 경우에는 구조적 문제점이 발생할 것으로 보인다.c

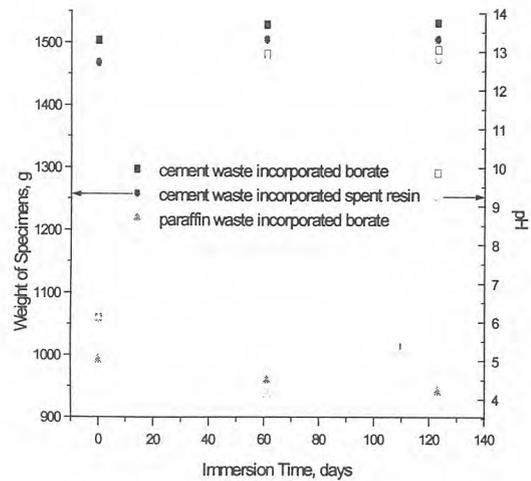
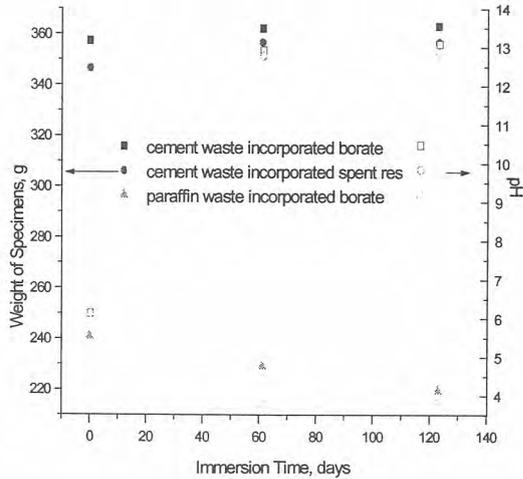


Fig. 7. Weight Change and pH in Immersion Test of various Waste Forms (D=50mm)

Fig. 8. Weight Change and pH in Immersion Test of various Waste Forms (D=80mm)

마. 내방사성

(1) 방사성고화체가 방사선 조사를 받으면 팽윤, 기체나 산의 생성, 휘발성 물질의 휘발 및 고화체의 열화등 직접적인 영향을 받게 되어 구조적 안정성의 저하뿐만 아니라 처분장의 불안정화도 초래할 수도 있다.

이에 따라 본 시험에서는 비교적 방사선에 취약성을 가질 것으로 예상되는 폐기물을 함유한 고화체(폐수지함유 시멘트 고화체)와 유기화합물이며 고화매질로 이용되고 있는 파라핀 고화체에 외부 방사선원으로 조사하여 그의 외관 및 압축강도 등을 측정하였다.

이때 방사선 조사는 Co-60(72,023.9 Ci)를 이용하여 5.43×10^5 rad/hr의 조사선량율로 고화체의 피폭량을 10^6 , 10^7 , 10^8 rads가 될 때까지 조사하였다.

조사후의 고화체 외관을 살펴보았을 때, 특별한 점은 없었으나, 파라핀 고화체중 10^8 rad의 조사를 받은 고화체의 외부 색깔변화가 있었다. 조사량에 따른 고화체의 무게 및 압축강도 측정결과를 Fig. 9 ~ 11에 나타냈다. 시멘트 고화체의 무게는 선량율에 따라 감소하였으며, 파라핀 고화체는 무게감소를 무시할 정도였다.

(2) 가스발생량

방사선 조사에 의해서 발생하는 대표적인 가스인 수소 및 메탄의 조성을 Table 1에 나타내었다. 방사분해 가스중 수소의 조성은 98.1 ~ 99.6 % 이었으며, 발생가스의 조성은 방사선 조사선량율에 따라 거의 변화가 없었다.

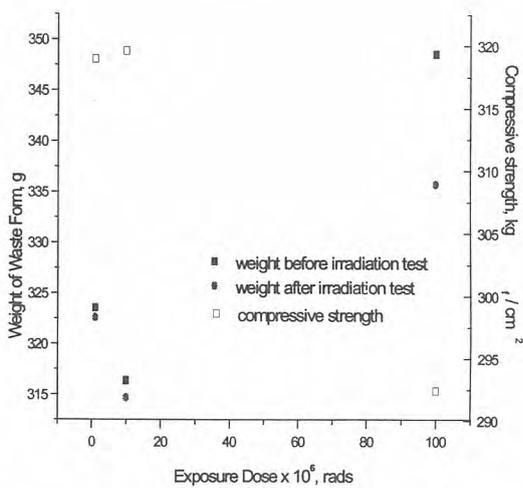


Fig. 9. Weight Change and Compressive Strength Before and After Irradiation Test of Cement Waste Form (D=50mm) Incorporated Borated Waste

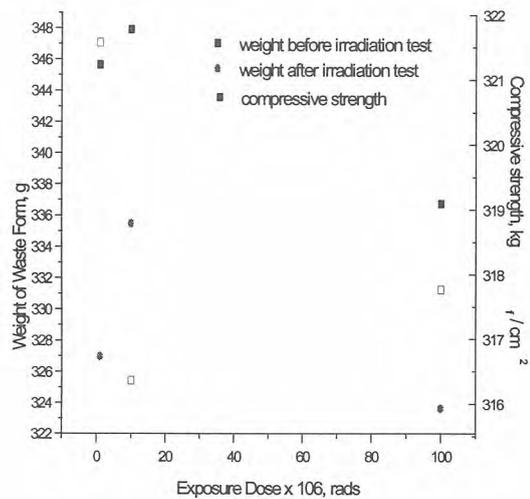


Fig. 10. Weight Change and Compressive Strength Before and After Irradiation Test of Cement Waste Form (D=50mm) Spent Resin

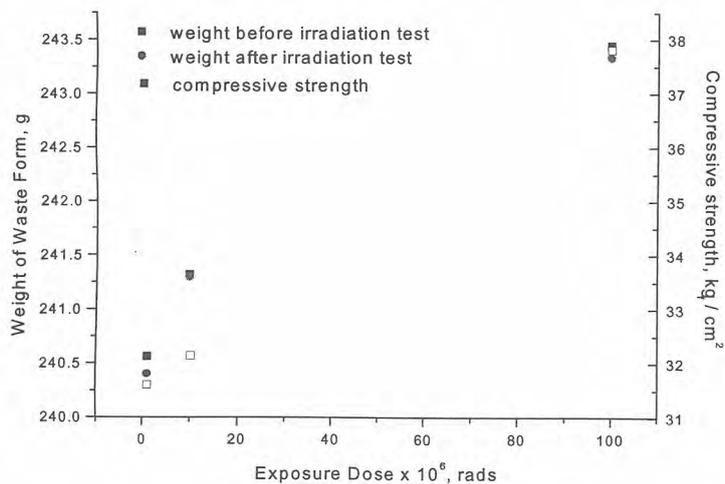


Fig. 11. Weight Change and Compressive Strength Before and After Irradiation Test of Cement Waste Form (D=50mm) Incorporated Borated Waste

Table 1. Gas Composition for γ -irradiation of Paraffin Wax

고화매질	총선량(kGy)	가스조성(Vol. %)	
		H ₂	CH ₄
파라핀 왁스	10	99.4	0.6
	100	99.6	0.4
	1000	99.4	0.6

파라핀 왁스의 가스 발생량을 Fig. 12에 나타내었다. 1 MGy에서 파라핀왁스의 수소 발생량은 6.6 cm³/g이었고 메탄가스 발생량은 0.039 cm³/g이었다.

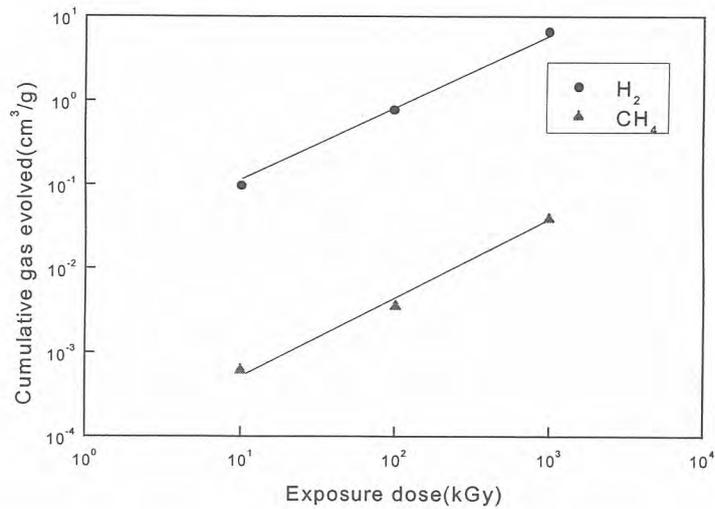


Fig. 12. Gaseous Products of Radiolysis Evolved from 1g of Paraffin Wax

방사선 조사에 의해서 발생되는 가스의 양을 나타내는 G-value는 아래 식을 이용하여 계산하였다. G-value는 매질에 누적되는 100 eV 에너지당 발생되는 총 가스분자 수를 나타낸다.

$$G(\text{gas}) = (P_f - P_i) \left(\frac{NV}{RT} \right) \left(\frac{100 \text{ eV}}{D} \right)$$

여기서,

G(gas) = total molecules evolved per 100 eV

P_f = final pressure(atm)

P_i = initial pressure(atm)

N = Avagadro's number, 6.02 x 10²³ /gmol

V = ampule free volume(cm³)

R = ideal gas constant, 82.057 atm · cm³/gmol, ° K

T = temperature, ° K

D = energy deposited, eV

위식에 의해서 계산된 흡수선량에 따른 수소 및 메탄의 G-value를 Table 2에 나타내었다.

Table 2. G-values of Gas Evolution from Paraffin Wax

고화매질	총선량, x 10 ⁶ rads	G-value	
		G(H ₂)	G(CH ₄)
파라핀 왁스	1	3.84	0.024
	10	3.13	0.014
	100	2.65	0.016

4. 결 론

원자력 발전소의 고화조건으로 제조된 봉산 및 폐수지함유 시멘트 고화체와 파라핀 고화체의 안정성 평가를 미국 및 프랑스의 시험법으로 수행하여 얻은 결과는 다음과 같다.

1) 시멘트 고화체와 파라핀 고화체의 시편의 크기(직경높이, 직경 변화), 재하속도 등을 다양하게 변화시키면서 측정한 압축강도는 미국 및 프랑스의 천층 처분장 인수기준치보다 매우 높았으며, 그의 압축강도는 각각 176.03 kgf/cm², 15 kgf/cm² 이상이었다.

2) ASTM B-553의 시험조건으로 온도내구성을 평가한 결과, 폐수지함유 시멘트 고화체의 외관에 특이한 것은 보이지 않았으며, 부피 변화는 없었고, 무게 감소는 평균 6.15%이었으며, 압축강도는 165.06 kgf/cm²이상 이었다.

3) 120일간의 내수성 시험에 따른 무게변화에서 시멘트 고화체는 증가하였으며, 파라핀 고화체는 감소하였는데 각각의 무게변화율은 1.61 ~ 1.87%, - 8.85 ~ - 5.14 이었다. pH는 초기 6.13에서 각각 13.09, 3.83으로 변화였다.

4) 방사선 조사영향은 흡수선량율이 증가함에 따라 시멘트 고화체의 무게는 감소하였으나 파라핀 고화체의 무게감소는 없었다. 고흡수선량에서는 파라핀 고화체의 외부 색깔은 눈에 띌 정도였다. 파라핀 왁스의 조사분해가스는 수소와 메탄이었으며 이중 수소가스가 99.4%를 차지하였다. 흡수선량 108rads에서 파라핀왁스의 수소와 메탄의 G 값은 각각 2.65, 0.016 이었다.

제1분과(A)

방사성폐기물처리 및 처분 (I) - 처리(Poster)

빈 면

Prediction of the Dynamic Adsorption Behaviors of Uranium and Cobalt in a Fixed Bed by Surface Modified Activated Carbon

Geun IL Park, Jung Won Lee, Kee Chan Song,
In Tae Kim, Kwang Wook Kim, Myung Seung Yang
Korea Atomic Energy Research Institute

Abstract

In order to predict the dynamic behaviors of uranium and cobalt in a fixed bed at various influent pH values of liquid waste, the adsorption system was regarded as multi-component adsorption between each ionic species in a solution. Langmuir isotherm parameters of each species were extracted by incorporating equilibrium data with the solution chemistry of uranium and cobalt using IAST. Prediction results were in good agreement with the experimental data, except for a high concentration and pH. Although there was some limitations in predicting the cobalt adsorption, this method may be useful in analyzing a complex adsorption system where various kinds of ionic species exist in a solution.

1. Introduction

Various kinds of radioactive fission or corrosion products as well as uranium are simultaneously present in liquid wastes, and exist in several characteristic forms.^{1,2)} These are generated during the fabrication and reprocessing of nuclear fuels, decommissioning of alpha contaminated facilities, and other activities.³⁾ In particular, because of its long half-life and high radiological toxicity, uranium is considered to be a serious long-term environmental hazard. Cobalt is considered to be one of the key radionuclides contributing to the radiation dose for workers and the public.⁴⁾ Like uranium, a very low concentration of cobalt is allowed in the effluents from a nuclear facility.⁵⁾ In order to avoid the problems arising from the contamination of radioactive nuclides, both ion exchangers and sorbents for improving the removal efficiencies have been used. Numerous experimental studies have also been conducted on the removal of residual uranium and cobalt in radioactive liquid wastes.⁶⁻⁸⁾

The prediction of dynamic behaviors in a practical column process generally depends on the incorporation of the adsorption equilibrium relationship and the transport mechanism with a mass balance. In the adsorption of metal ions from aqueous solutions, solution pH may significantly affect the extent of the adsorption.⁹⁾ Therefore, surface complexation models are useful to quantify the metal ion adsorption onto a hydrous solid surface.¹⁰⁾ While the use of the complexation hypothesis in correlating metal ion adsorption data has been found to be useful, this approach also has its deficiencies. On considering the prediction of the adsorption

behaviors in a continuous-flow column operation, an equilibrium model to calculate the adsorption amount of a specific ion over a wide range of variables should be combined with a transport model in a column operation. In this case, the large number of parameters, presented in the surface complexation models, often make it difficult to obtain a stability of the numerical solution, and to ascertain the true physical significance of these parameters. In this study, the theoretical approach for analyzing the effect of the pH on the dynamic behaviors in a fixed bed packed with surface-modified activated carbon was performed using generalized adsorption model. Isotherm parameters of each uranium species were estimated by the combination of equilibrium data with solution chemistry using the minimizing routine. Based on this method, the trend of the breakthrough curves with the variation of the influent solution pH could be predicted.

2. Experimental

The granules of activated carbon, obtained from Han-il Green Tech. Co., were ground, sieved to give an average particle size of 0.85mm from the sieve openings. Some of the pre-treated activated carbons were oxidized by heating in 7 N nitric acid solution at a temperature of 80 ~90 °C for 10 hours in a volumetric flask.^{6,8)} Fixed bed runs were confined to the oxidized and activated carbons. The adsorption experiments in the fixed bed were carried out using a glass column of 0.01m inside diameter and 0.3 m in length. Pretreated adsorbents were packed into the column and sustained by glass beads. A micro-metering pump was used to maintain the constant down-flow of 2 ml/min. Effluent from the column was collected periodically by a fraction collector, and the pH of the collected samples was directly measured, except for the over-night runs.

3. Theoretical Approach

Dynamic model for uranium adsorption in fixed beds packed with oxidized and activated carbon was formulated. The generalized equations consist of the transport equation and the mass balance equation for the adsorbed component in a multi- component system. The techniques of orthogonal collocation for finite elements combine the classical procedure of orthogonal collocation with the high accuracy of the finite element method. Owing to the system stiffness, its integration is made by means of a stiff solver : LSODI of the International Mathematics and Science Library (IMSL).

4. Results and Discussion

4.1. Extraction of Isotherm Parameters for Each Species

For the convenience of a simple calculation, it is assumed that the competitive adsorption of three components are as follows ; UO_2^{2+} and $\text{UO}_2(\text{OH})^+$ as a monomer, $(\text{UO}_2)_2(\text{OH})_2^{2+}$ as a dimer, and $(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_5^+$ as a trimer at around pH 6 or below. Therefore, the total adsorption amount of uranium is the sum of each component adsorption amount. In considering the above

assumptions, an uranium adsorption system in an aqueous solution would be regarded as the multi-component adsorption of each uranyl hydroxyl species. Once we obtain the equilibrium pH and the total adsorption amount from the equilibrium experiments over a wide range of pH, the equilibrium parameters of each uranyl hydroxyl species can be calculated by the combination of the solution chemistry of the uranium with the pH variation with IAST(Ideal Adsorption Solution Theory).¹¹⁾

The Langmuir equation is adopted for calculating the equilibrium adsorption amount of each uranyl hydroxyl species with a variation of the pH. A mutual competitive adsorption between each species is represented by IAST. For an uranium adsorption system, the isotherm parameters for each ionic species (monomer, dimer and trimer) are listed in Table 1. For cobalt, the isotherm parameters of each species are confined to the adsorption system for activated carbon, as listed in Table 1.

4.2. Prediction of Dynamic Adsorption Behaviors

When the competitive adsorption of each ionic species was not considered, the large discrepancies between the prediction and experimental data are observed, with the exception of the breakthrough curve at $pHi=3$ (pHi : influent solution pH). These results may come from the inaccurate calculation of the adsorption amount with the variation of the pH.

Table 1. Langmuir isotherm parameters of each uranyl species and cobalt ions calculated by IAST

System Species	As-received activated carbon		Oxidized carbon	
	$q_m(\text{mol}/\text{m}^3)$	$B(\text{m}^3/\text{mol})$	$q_m(\text{mol}/\text{m}^3)$	$B(\text{m}^3/\text{mol})$
U(monomer)	2.2×10^{-2}	7.42	0.268	65.2
U(Dimer)	5.1×10^{-2}	23.8	0.35	50.2
U(Trimer)	1.14×10^{-1}	103	0.67	30.0
Co^{2+}	4.8×10^{-2}	1.06	-	-
$\text{Co}(\text{OH})^+$	9.4×10^{-2}	1.1×10^5	-	-

Fig. 1 represents a comparison of the experimental data with the model prediction, which was obtained by introducing the competitive adsorption of each uranyl hydroxyl species based on the isotherm parameters in Table 1. For the cobalt adsorption system, dynamic behavior of cobalt on activated carbon was satisfactorily predicted by considering the competitive adsorption of each species, as shown in Fig. 2.

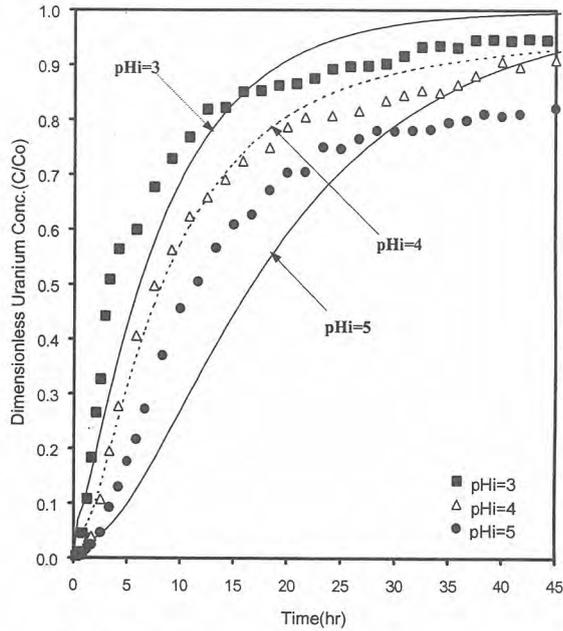


Fig. 1. Prediction of the experimental data of uranium adsorption on oxidized carbon in fixed bed [$C_0=0.84 \text{ mol/m}^3$, $\text{pHi}=3, 4, 5$].

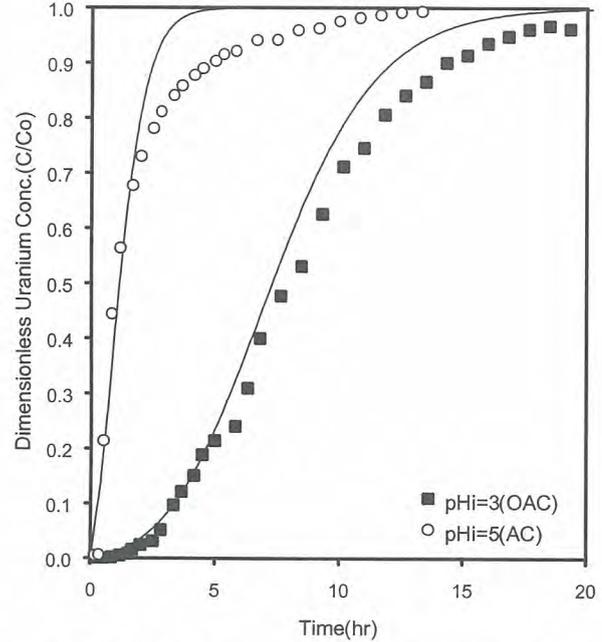


Fig.2. Prediction of experimental data of cobalt adsorption on activated carbon in fixed bed [$C_0=0.21 \text{ mol/m}^3$, $\text{pHi}=3$, and 5].

Agreement between the experimental and prediction curves was fairly good, with the exception of the breakthrough curve at $\text{pHi}=5$. This deviation at $\text{pHi}=5$ may come from a sharp pH variation inside the column compared to that at $\text{pHi}=3$ and 4.

However, because the isotherm parameters of each ionic species in oxidized carbon-cobalt adsorption system could not be obtained, the method adopted in this study has a relative limitation in predicting the dynamic behaviors, as a associated with a simple system. However, at the low pH ranges, the prediction result gives a good fit with the experimental data. As a whole, the prediction method adopted in this study for predicting dynamic behavior incorporated with a pH influence may be applied to a complex system where various kinds of species exist in a solution.

5. Conclusions

While a surface complexation model is useful for predicting the adsorption behaviors of a metal ion, the use of an excessively large number of parameters can rule it out for a practical consideration, especially a column operation. Therefore, for describing the adsorption equilibrium and correlating the isotherm data, an alternative approach for representing the equilibrium data considering the pH effect on the metal adsorption was suggested using a generalized Langmuir equation. In an uranium adsorption system, the competitive adsorption of three kinds of uranyl hydroxyl species were considered. Based on the results from the equilibrium studies, the equilibrium isotherm parameters of each uranyl hydroxyl species were

extracted by the combination of the solution chemistry of the uranium with the pH variation with IAST. Experimental breakthrough curves at various influent pHs was satisfactorily predicted by introducing the competitive adsorption of each uranyl hydroxyl species, with the exception of the breakthrough curve at pH 5. Although some limitation in predicting the cobalt adsorption system was observed, this method may be useful for analyzing a complex adsorption system where various kinds of ionic species exist in a solution.

Acknowledgement

This project has been carried out under the Nuclear R&D Program by MOST

References

1. Propst, R.M., Ekechukwu O.E. and Dameron H.J., Pretreatment and Selective Materials for Improved Treatment of PWR Liquid Radioactive Waste, Electric Power Research Institute, EPRI NP-5786 (1988).
2. Department of Energy, Technology for Commercial Radioactive Waste Management, DOE/ET-0028(1979).
3. IAEA, Management of Cladding Hull and Fuel Hardware, Technical Reports Series No. 258, Vienna (1985).
4. Walker, S.M., Cobalt Adsorption on Zirconia and Hematite at Low Temperature, Central Electricity Generating Board, CEGB-TPRD/B/1065/R87 (1987).
5. White, S. K., "Removing Uranium by Current Municipal Water Treatment Processes," J. Am. Water Works Assoc., 75, 374 (1983).
6. Abbasi, W.A. and Streat, M., "Adsorption of Uranium from Aqueous Solutions Using Activated Carbon," Separation Science and Technology, Vol. 29, No. 9, pp. 1217-1230 (1994).
7. Paajanen, A., Lehto, J., Santapakka, T. and Ymorneau, J.P., "Sorption of Cobalt on Activated Carbon from Aqueous Solution," Separation Science and Technology, 32(1-4), pp. 813-826 (1997).
8. Park, G. I., Influence of pH on the Adsorption of Uranium Ions by Oxidized Activated Carbon and Chitosan. Separation Science and Technology 34(5), 833-854 (1999).
9. Carrott, P. J. M., Riberio Carrott, M. M. L. and Nabais, J. M. V., Prates Romalho, J. P. "Influence of Surface Ionization on the Adsorption of Aqueous Zinc Species by Activated Carbon," Carbon, 35(3), 403-410 (1997).
10. Hayes, K.F. and J.O. Leckie, Modeling ionic strength effects on cation adsorption at hydrous oxide/solution interfaces, J. Colloid Interface Sci., 115, 564-572 (1987).
11. Yu, Q. and Wang, N., "Multicomponent Interference Phenomena in Ion Exchange Columns," Separation and Purification Methods, Vol. 15, No. 2, pp. 127 (1986).

증기발생기 세정폐액 처리 공정 평가

Evaluation on Decomposition Processes of Laundry wastewater produced from Steam Generator

강덕원, 이홍주, 최영우, 이두호
한국전력공사 전력연구원

요 약

국내 원전에서 증기발생기 세정 후 발생하는 Fe-EDTA 함유 폐액 처리를 위한 초임계수 산화 공정 (Supercritical Water Oxidation Process), 광촉매 산화 공정 (Photocatalyst Oxidation Process) 및 DBD 상온 플라즈마 공정 (Dielectric Barrier Discharge Atmospheric Pressure Plasma Process)이 평가되었다. 초임계수 산화 공정에 의해 99.98 %이상의 EDTA 전환율을 나타내어 EDTA 처리를 위한 효과적인 반응공정임을 확인하였으나 공정의 안정성, 부식 방지대책 등이 마련되어야 할 것으로 판단된다. 광촉매산화공정으로는 10 % 정도의 낮은 EDTA 전환율을 보여 세정폐액 처리 공정으로는 부적합한 것으로 나타났다. DBD를 이용한 Methylene Blue 분해 결과 저 에너지 소비율로 높은 유기물 분해 효율을 얻을 수 있었으나 실 EDTA 공정에서의 적용 및 공정 규모 확장 등에 대한 향후 연구 평가가 필요한 것으로 사료된다.

Abstract

For the decomposition of laundry wastewater containing Fe-EDTA produced from the steam generators in nuclear power plants, Supercritical Water Oxidation (SCWO) Process, Photocatalytic Oxidation (PO) Process, and Dielectric Barrier Discharge (DBD) Atmospheric Pressure Plasma Process were evaluated. Even though EDTA was converted over 99.98 % by the SCWO process, it was estimated that the countermeasure against corrosion of the equipment should be reinforced for the process stability. It was considered that the PO process is not appropriate for the decomposition of high concentrated laundry wastewater since the conversion ratio of EDTA was around 10 %. Finally, High efficiency of the decomposition of organic matter (methylene blue) was obtained using DBD process even low energy was supplied. However there is still room for the evaluation of EDTA decomposition in order that the DBD process should be applied for the field samples.

1. 서 론

증기발생기내 슬러지의 제거방법은 정상운전 중에는 blow-down을 실시하고, 정기보수기간에는 슬러지 랜싱을 실시하여 제거하나 이는 주로 연성슬러지(soft sludge) 만을 제거하는 방법으로 경성슬러지(hard sludge)는 제거 할 수 없음. 따라서 증기발생기 전열관 손상이 2차측 침전물에 의해서 대부분 발생하는 바, 이를 효과적으로 제거할 수 있는 고도 화학세정기술의 개발과 현장적용 기술의 조기구축이 필요하다. 특히, 최근 영광 4호기와 울진 3호기에서 발생된 ODSCC(outer diameter stress corrosion crack)는 슬러지 침적부위에서 주로 발생되고 있는바, 이의 적절한 제거

가 시급하며 국내 표준형 원전의 증기발생기는 세관 간격이 매우 좁아 물리적 방법의 제거는 매우 미흡하여 화학적 세정방법의 제거가 요구되고 있는 실정이다. 또한 화학적 세정 후 발생하는 세정 폐액의 효율적 처리 방안이 긴급히 강구되어야 하는데 본 연구에서는 다양한 처리 공정법을 이용한 세정폐액 처리 타당성을 평가하고 효과적인 처리 공정 평가를 통하여 경제성 높은 세정폐액 처리 기술 개발의 기초 연구 자료로서 활용하고자 하였다. 따라서, 본 연구에서는 초임계수 산화 공정, 광촉매 산화 공정 및 DBD (Dielectric Barrier Discharge) 상압 플라즈마 공정이 세정폐액 처리 기술로 적용 되었으며 세정폐액을 모사하여 각 공정에 적용하고 공정별 운전 조건에 따른 처리 효율을 비교 평가하므로써 향후 실제 세정폐액 처리 장치를 개발하기 위한 원천 기본 기술 능력을 확보하는데 평가의 목적을 두었다.

2. 실험 장치 및 방법

2. 1. 초임계수 실험 장치 및 실험방법

초임계수 공정을 이용한 세정폐액 처리 적용평가를 위한 연구에서 사용한 대상시료는 $\text{Na}_2\text{EDTA} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (Ethylenediaminetetraacetic acid, disodium salt dihydrate, ALDRICH, 99+%) 및 NaFeEDTA 를 사용하였으며, 산화제로는 H_2O_2 (JUNSEI, 30%)를 사용하였다. 초임계수산화공정으로 처리된 유출수는 YONGLIN HPLC (SDV 300Plus, UV 730D, CTS 30)로 분석 하였으며, 유출수중에 함유된 유기화합물의 총량은 COD_{Cr} 으로 분석하였다. EDTA의 분석은 EDTA 자체가 가진 특성상 2가 혹은 3가의 양이온 금속과 빠른속도로 착염을 형성하게된다. 따라서 분석은 이러한 특성을 이용하여 Free EDTA를 FeCl_3 를 주입하여 FeEDTA 착염을 형성시켜 UV 254 nm에서 분석하였다.

2. 2. 광촉매 산화공정 실험장치 및 광촉매

실험에 사용된 자외선 램프의 파장 범위는 300 ~ 400 nm이며, 최고 파장이 약 360 nm에서 나왔다. 실험에 사용된 증류수는 760 mL가 사용되었고, 순환속도는 60 L/hr로 고정하였다. 어느 정도의 전환율을 고정시킬 수 있도록 UV lamp (15 W, Black light, 360 nm)를 50분 동안 조사시키면서 진행되었고 반응물 저장조에는 반응속도를 측정하기 위한 sampler가 부착되었다. 촉매로 사용된 티타니아 (Degussa P-25)는 80 %의 아나타제 (anatase) 상과 20 %의 루타일 (rutile) 상의 혼합구조로서 기본입자의 평균크기는 30 nm, 비표면적은 $57 \text{ m}^2/\text{g}$ 이다. 금속-EDTA 착화합물 제조에 사용된 시약 중 EDTA는 물이나 알코올 (alcohol) 그리고 그밖의 유기용매 (ether, acetone) 등에 쉽게 용해되지 않기 때문에 실험에서는 그 2Na 염인 Na_2EDTA (Ethylenediaminetetraacetic acid, sodium salt volumetric standard, 0.1 M solution in water, aldrich[®])를 사용하였다. 여기서 EDTA는 거의 모든 금속 이온과 1 : 1의 몰수비로 안정한 수용성 킬레이트를 만들기 때문에 EDTA와 금속이온이 1 : 1로 완전히 반응하였다.

2. 3. DBD 플라즈마 공정 장치 및 실험

세정 폐액처리용 Planar reactor 형 DBD 시스템을 제작하여 플라즈마 장치의 성능 시험을 위해 Methylene Blue (MB)를 이용한 분해실험을 수행하였다. He : O_2 의 혼합비를 40:1로 고정하였고, 입력전압은 30 mA, 150 W 용량의 Transformer를 이용하여 AC 180 V을 사용하였다. 실험시간은 30 초, 1 분, 3 분, 5분 등으로 변화를 시키면서 MB의 분해율을 조사하였다. 실험에 사용한 반응기의 실 부피는 20 mL이었으며 MB의 농도변화를 측정하기 위하여 UV-Vis Spectrophotometer를 사용하였다.

3. 결과 및 토의

3. 1. 초임계수 공정 장치의 성능 결과

10 w% Na₂EDTA의 초임계수 산화실험 결과를 그림 1에 나타내었다. 그림에서 보는바와 같이 10w%의 고농도임에도 불구하고 아임계 영역(Subcritical regime)에서부터 시작하여 초임계영역에 이르기까지 산화제투입량 100 %에서 99.98 % 이상의 전환율을 나타내었다. 산화제투입량을 화학양론량의 100 %를 주입한 것은 과산화수소수 원액 (30 % purity)을 사용할 경우 화학양론량의 약 100 %가 되기 때문에 결국 30 % 순도 과산화수소수 원액을 희석없이 사용하였다. NaFeEDTA의 분해경향을 조사하기위하여 본 연구에서는 압력을 250 bar로 고정시킨 다음 반응양론량의 산화제를 200 % 초과하여 주입한 다음 온도의 변화에 따른 NaFeEDTA의 초임계수산화를 실시하였다. 그림 2에서 나타난 바와 같이 반응성의 증가는 약 200 °C부터 증가하기 시작하여, 임계 조건에서부터 초임계상태로 진행되는 과정에서 급격한 산화분해반응이 진행되었으며, 430 °C의 영역에서는 96 %이상의 분해가 진행되었다.

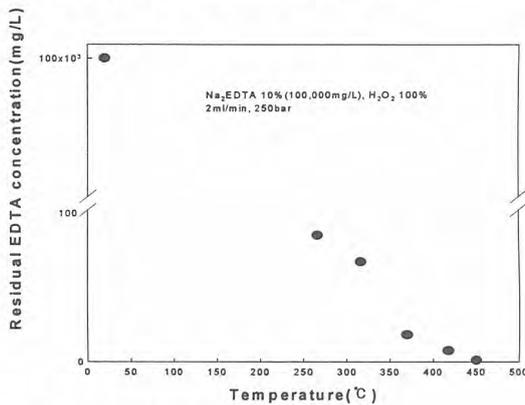


그림 1 온도에 따른 EDTA 분해
(250bar, 100% of H₂O₂)

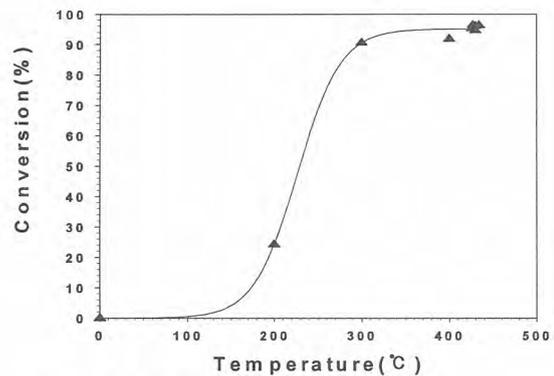


그림 2 온도에 따른 NaFeEDTA 전환율
(250bar, 300% H₂O₂, 2 ml/min of NaFeEDTA)

3. 2. EDTA 및 Metal Complexed EDTA의 광분해

단일 배치반응기를 이용하여 세정공정 폐액 처리를 위한 적용평가를 위하여 모의 세정폐액을 만든 후 EDTA 농도와 TiO₂의 양을 변화하면서 EDTA 제거율을 조사하였다. 산화제(H₂O₂)의 영향을 조사하기 위하여 Without H₂O₂, With H₂O₂ (15 H₂O₂/EDTA mole ratio), Only TiO₂ (Degussa P25 0.8g/L), TiO₂ with H₂O₂ 등의 네 가지 조건에서 실험을 수행하였다. 모의 세정폐액의 조성은 다음과 같다; EDTA 10wt.%, N₂H₄ 1.0wt.%, Fe concentration 7 g/L, Cu concentration 0.5 g/L, pH 7 (controlled by NH₄OH). 각각의 실험조건에 따른 EDTA 분해율을 살펴보면 그림 3에 나타난 바와 같다. EDTA의 제거율은 광촉매를 사용한 경우 가장 높은 값을 보이고 있는데, 12 % 정도의 값을 보이고 있다. 산화제를 사용한 경우 분해율이 오히려 낮은 값을 보이고 있는데, 이는 EDTA : H₂O₂ = 1 : 15의 실험조건을 감안하면 부피가 증가하여 분해율이 낮아진 것으로 생각된다. 그림 4의 x축은 광촉매의 양, y축은 EDTA의 양의 나타내었으며, 각 조건에 대한 EDTA 분해율을 도시하였다. 그림에서 보는 바와 같이, 10 wt% EDTA의 분해율은 0.5 g/L, 1.0 g/L, 1.5 g/L가 증가함에 따라 2.87 %, 9.79 %, 17.52 %로 증가하였다. 이러한 실험결과는 세정폐액을 처리하기 위한 공정으로 적합하지 않음을 알 수 있다. 세정폐액의 실험조건은 광촉매의 활성을 위한 선원이 투과하지 못하기 때문으로 생각된다.

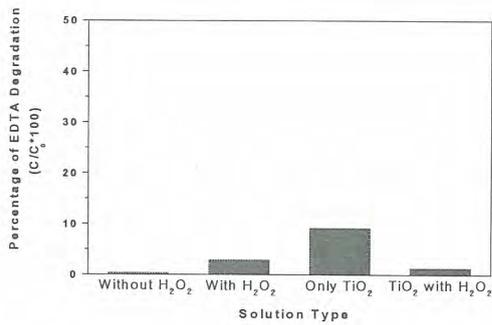


그림 3. 산화제 조건에 따른 EDTA 분해율의 비교

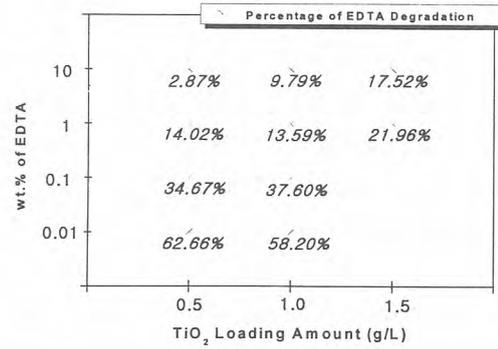


그림 4. EDTA 농도와 광촉매양에 따른 분해율

3. 3. DBD 상온플라즈마 공정 성능 평가

MB는 292 nm에서 maximum peak이 측정되었다. 그리고, 여러 가지 표준시료 농도에 대한 Absorbance를 측정하여 Calibration curve를 작성하였다. 평판형 DBD 반응기를 사용한 MB의 분해실험 결과, 분해율이 5 min의 반응시간 내에 98.2%의 제거율을 보였다. MB의 분해실험을 이용한 플라즈마 장치의 성능시험을 통하여 평판형의 DBD 반응기의 플라즈마 방전으로 인하여 빠른 속도로 유기물을 분해할 수 있음을 확인하였다 (그림 5, 6 참조).

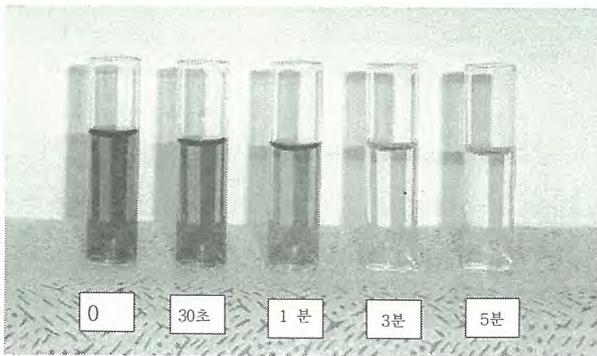


그림 5. 처리 시간에 따른 시료(MB)의 색의 변화

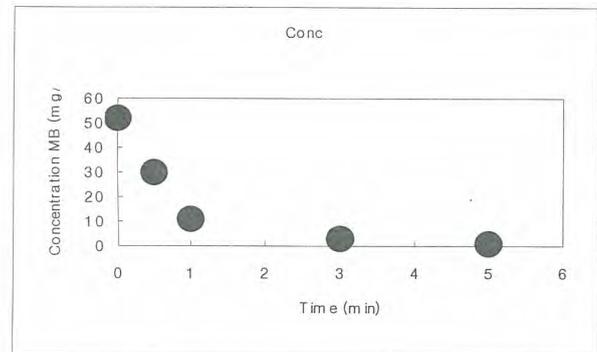


그림 6. 시간에 따른 Methylene Blue 분해경향

4. 결 론

SCWO 공정에 의한 10 wt%의 EDTA에 대한 실험결과, 고농도의 EDTA임에도 불구하고 아임계 및 초임계 영역에서 99.98% 이상의 전환율을 나타내어 EDTA 처리를 위한 효과적인 반응공정임을 확인하였다. 세정폐액처리를 위한 예비 적용평가에서 초임계수 공정은 공정의 안정성, 부식 방지대책 등이 마련되어야 할 것으로 여겨진다. 다음으로, 광촉매산화공정에 의한 세정폐액 처리 공정 적용평가를 위하여 Degussa P-25 Titania를 이용한 광촉매산화공정에 관한 실험을 수행한 결과, 10% 정도의 낮은 EDTA 전환율을 보여 광촉매산화공정이 세정폐액 공정에 적용하는 것은 적합하지 않음을 알 수 있었다. 이는 광촉매 활성을 야기시킬 수 있는 자외선원이 투과할 수 없기 때문으로 생각된다. 또한, DBD(Dielectric Barrier Discharge)을 이용한 모의 세정폐액 처리 공정 적용평가에 의해 수행된 실험 결과를 통하여 저 에너지 소비율로 높은 유기물 분해 효율을 얻을 수 있었으나 실 EDTA 공정에의 적용 및 공정 규모 확장 등에 대한 향후 연구 평가가 필요한 것으로 사료된다.

5. 참고문헌

1. Min Jung Kim, Seung Bin Park, Duk-Won Kang and Hong-Joo Lee, "Photoactivity enhancement by increasing surface area and changing pore morphology, *Proceedings The 4th Korean Conference on Aerosol and Particle Technology*, YongPyong, Korea, 2003
2. Chung Yun Seup and Seung Bin Park, "Preparation of titania coated NiFe₂O₄ photocatalyst by using spray pyrolysis", *Proceedings The 4th Korean Conference on Aerosol and Particle Technology*, YongPyong, Korea, 2003
3. Min Jung Kim, Seung Bin Park, Hong-Joo Lee, Duk-Won Kang and Sang Kyun Park, "Photocatalysis of Metal-EDTA Complexes by Macroporous Titania", *Theories and Application of Chemical Engineering*, 9[1] 1244, 2003
4. Dae Jong Seo, Sang Kyun Park and Seung Bin Park, "Anatase TiO₂ nanoparticle synthesis by flame spray pyrolysis", *Theories and Application of Chemical Engineering*, 9[1] 1044, 2003

사용후핵연료 집합체 캐스크 감온, 감압 공정의
방사성 액체폐기물 처리 대한 연구

Study on the Radioactive Liquid Waste Treatment of Cooling and
Decompression Process of Spent Fuel Assembly Cask

손영준, 전용범, 김은가, 엄성호, 권형문, 민덕기, 양송열,
이은표, 이형권 황용하, 서항석, 김길수,
한국원자력연구소

요 약

조사후시험시설내에는 사용후핵연료 집합체의 취급을 위하여 감온, 감압 공정이 있다. 이 공정은 3가지 공정으로 분류하는데 첫째, 사용후핵연료 집합체 캐스크를 제염하기 위한 제염시키는 공정, 둘째, 사용후핵연료 집합체 내의 붕괴열에 의해 온도, 압력이 상승된 폐액을 감온, 감압 시키기 위한 냉각 공정 셋째, 사용후핵연료 피폭관 결합에 의해 발생되어 캐스크 내에 존재하는 불용성 입자를 여과기를 통해 여과하는 공정으로 되어 있다. 본 보고서에서는 감온, 감압 공정과 관련하여 현재까지 수행된 기술검토와 사용후핵연료 집합체에 의한 감온, 감압의 실용적 이론에 관해 고찰하였고 또한 각종 시험을 통한 시운전 내용과 실제 원자력발전소로부터 수송해온 사용후핵연료 집합체 J-44, K-23 대한 감온, 감압 결과들을 상세히 기술하였다. 본 보고서는 향후 지속적인 가동과 도출되지 않은 문제점 등을 계속 보완하여, 원만하고 안전한 정상조업을 수행하는데 효과적으로 이용될 수 있을 것으로 본다.

Abstract

A temperature- and pressure-reducing process is utilized to handle the spent fuel assembly in the post-irradiation examination facility. This process includes three separated unit processes. First one is the decontamination process to clean the spent fuel assembly casks. The second process is the temperature-reducing process to reduce the temperature elevated by decay process in the spent fuel assembly. The third process is the filtration process to remove insoluble particles existed in the casks using filters.

Up-to-date technologies as well as practical theories related to the temperature- and pressure-reducing process is reviewed in this report. The test-operation process for various tests and the test results of the temperature- and pressure-reducing process for J-44 and K-23 spent fuel assemblies are also described in detail. This report must be effectively used for the normal operation of the facility with the awareness of unprecedented problems which could occur by continuing operation of the PIE facility.

1. 서론

원자력발전소로부터 수송해온 사용후핵연료 집합체가 담겨있는 수송용기는 고준위방사성 물질을 함유하는 고온, 고압의 상태로 본 시설에 운반되어진다. 이 수송용기가 사용후핵연료 저장수조에 하역하기 전에 조사후시험시설내 설치된 감온, 감압계통에서 고준위방사성 물질을 제거하여 용기 자체의 내부방사성 물질로 인한 외부 피폭을 줄여야하며 사용후핵연료 집합체의 결함에 의한 붕괴열로 상승된 온도와 압력을 감온, 감압시켜야한다. 조사후시험시설의 핵연료 저장수조에는 저장되어있는 사용후핵연료 집합체는 J-44와 K-23 2개가 저장되어있다. J-44는 1993년도 고리1호기에서 K-23은 2001년도 영광 2호기에서 수송하여 저장되어 있다. 두개의 사용후핵연료 집합체에 대한 감온, 감압 시험을 수행하여 그 결과들을 비교 평가하였으며 또한 본 보고서에는 사용후핵연료 집합체의 감온, 감압 공정의 전반적인 운전 경험에 의한 수집 데이터 및 운전 기술을 보고하고자 한다.

2. 사용후핵연료 집합체의 감온, 감압공정의 구성

조사후 시험시설내의 사용후 핵연료집합체의 감온, 감압 공정의 관리의 기술적인 요구들은 고준위 방사성 물질들을 제거하는 필터정화계통, 환기계통, 감온,감압시키기위한 냉각계통이 포함된다. 사용후 핵연료집합체의 감온, 감압 공정의 냉각계통은 저장되어 있는 사용후 핵연료 집합체에서 생성되는 붕괴열을 제거시켜 사용후 핵연료 저장조에 저장 전에 수온을 미리 설정된 제한치 이내로 유지시킨다. 사용후 사용후 핵연료집합체의 감온, 감압 공정의 필터정화계통은 고준위 방사성 물질들의 불순물을 제거하여 용기 자체의 내부방사성 물질로 인한 외부 피폭을 줄여야한다. 그리고 조사후 시험시설내의 사용후 핵연료집합체의 감온, 감압 공정의 공정도는 그림 1에 나타내었다.

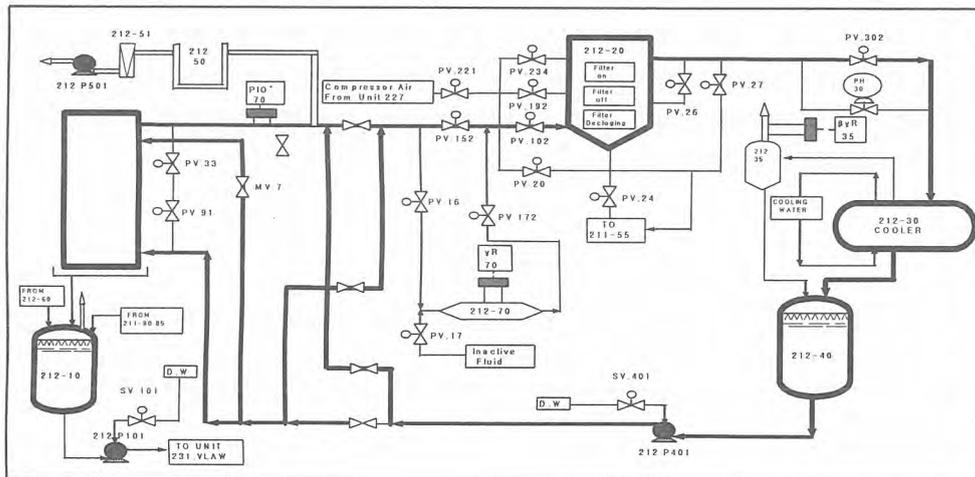


그림 1. 조사후시험시설의 감온, 감압공정 공정도

3. 사용후핵연료 감온, 감압 공정의 운전경험

조사후시험시설의 핵연료 저장수조에는 저장되어있는 사용후핵연료 집합체는 J-44와 K-23 2개가 저장되어있다. J-44는 1993년도 고리1호기에서 K-23은 2001년도 영광 2회에서 수송하여 저장되어 있다. 이러한 사용후핵연료 집합체는 고온, 고압의 상태로 운반되어 저장수조에 하역 전에 전처리 과정인 감온, 감압 공정을 거치게 된다. 본 보고서에는 사용후핵연료 집합체의 감온, 감압 공정의 전반적인 운전 경험에 의한 수집 데이터 및 운전 기술을 보고하고자 한다.

가) 운전조건

표 7과 같은 운전조건하에서 감온, 감압 공정을 운전하였으며 사용후핵연료 집합체 내에 함유한 방사능들은 본 공정에 설치된 Unit 212-20 카트리리지형 필터를 이용하여 제거하였으며, 감온, 감압은 Unit 212-30 열교환기를 사용하였다. 운전기간 중에 사용후핵연료 집합체의 방사선량을 기준치는 200mR/hr로 정하였으며, 일정시간을 정하여 본공정

표 1. 감온, 감압 공정의 운전조건

운전온도	25℃
운전시간	8hr/day
운전기간	J-44 : 1993년도
	K-23 : 2002년도
처리유량	15 m ³ /hr
사용된 필터형태	카트리리지형 금속 필터망
분석항목	방사선량을, 캐스크 내,외부온도, 압력

에 설치된 RMS 방사선량을 측정기를 이용하여 측정하였다.그리고 온도 기준치는 25로 정하고, 감압 기준치는 5bar로 정하여 운전 하였다.

나) J-44, K-23 사용후핵연료 집합체 캐스크 외부온도 측정결과

조사후시험시설의 사용후핵연료 집합체 J-44의 캐스크 외부온도 측정지점 및결과를 그림 14에 나타내었으며, K-23의 외부온도 측정지점 및 결과는 그림 15에 나타나있다. 두 개 집합체 외부온도 측정은 캐스크 상부(4개 지점: ⑥,⑦,⑧,⑨), 캐스크 중간(5개 지점 : ⑩,⑪,⑫,⑬,⑭), 캐스크 하부(5개 지점 : ①,②,③,④,⑤)로 나누어 측정하였다. 측정시간은 8시간 간격으로 총 4회 측정 하였으며 측정기기는 로 사용했으며 측정 부위별 온도 센서를 부착하여 측정 결과를 얻었다. J-44의 캐스크 외부 최저온도는 34.7℃, 최고 온도 지점은 61.6℃로 나타났으며, K-23 캐스크 외부 최저온도는 44.2℃, 최고 온도 지점은 54.7℃로 나타났다. J-44 사용후핵연료 집합체 캐스크 측정 지점별 외부 평균온도 분포는 상부지점(4개지점) : 51.88℃, 중간지점(5개 지점) : 59.03℃, 하부지점(5개 지점) : 42.56℃로 나타났으며 캐스크 중심 부분과 하부 지점 사이의 평균 온도차는 16.47℃의 차이가 나타 났다. K-23 측정 지점별 외부 평균온도 분포는 상부지점(4개지점) : 44.13℃, 중간지점(5개 지점) : 53.33℃, 하부지점(5개 지점) : 47.65℃로 나타났으며 캐스크 중심 부분과 상부 지점 사이의 평균 온도차는 9.20℃의 차이가 나타 났다. J-44와 K-23의 평균 최대 온도차는 J-44가 K-23에 비해 평균 5.70℃의 평균온도가 상승하였다. 이는 집합체 결함 정도에 따른 붕괴열에 의한 기인한 것으로 본다. J-44, K-23의 지점별 온도 분포를 그림 16, 17에 그래프로 나타내었다.

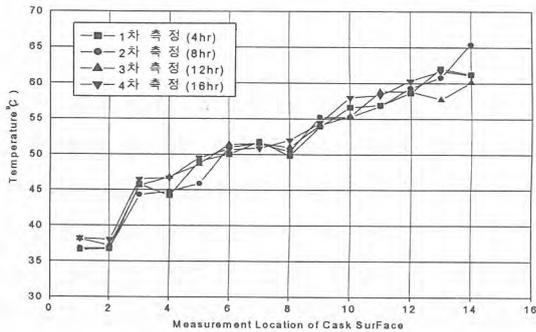
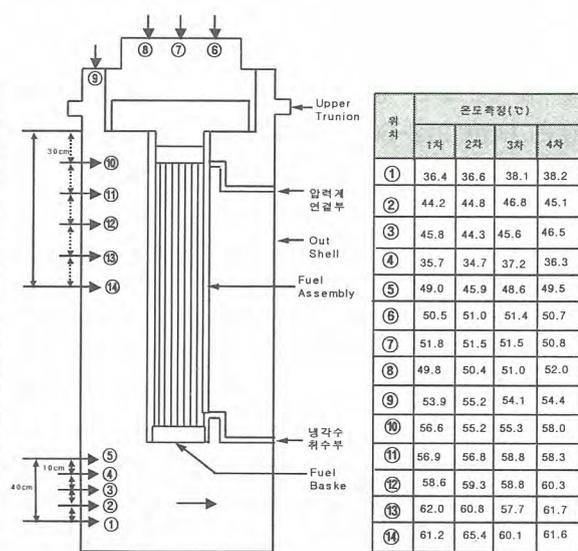
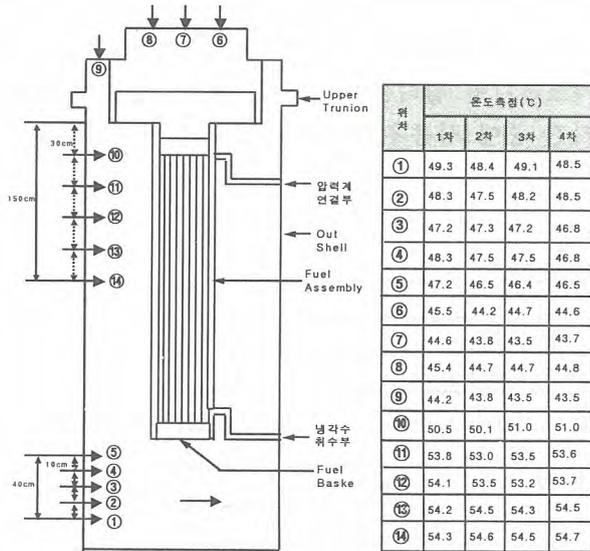


그림 2. 사용후핵연료 집합체 캐스크의 외부온도 측정결과(J-44)

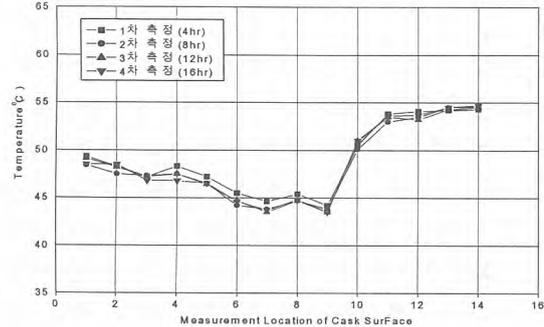


그림 3. 사용후핵연료 집합체 캐스크의 외부온도 측정결과(K-23)

다) J-44와 K-23 사용후핵연료 집합체 수송용기의 감온, 감압 운전결과

핵연료를 담은 수송용기가 원자력발전소로부터 수송되어 왔을 때 수송용기 내부의 고온, 고압 상태를 감온, 감압 시키기 위한 공정으로 본 시설에서는 J-44와 K-23의 수송용기에 대한 감온, 감압 운전결과를 아래에 나타내었다. 세밀한 운전 방법은 본 보고서 뒤편에 부록으로 첨부해 두었다. J-44와 K-23의 두 개 집합체에 대한 감온, 감압 운전 결과를 표 8, 9에 나타내었으며, 이들 결과에 대한 그림을 그림 18, 19에 나타내었다. J-44에 대한 감온, 감압 운전에서는 필터 내부 온도(TI-20), 폐액탱크 내부 온도(TI-40), 냉각수 입구 온도(Tx-30.1), 냉각수 출구 온도(Tx-30.2)에 의한 온도 결과를 점검하였으며 압력은(PIO⁺-70)에 의하여 1분 간격으로 점검하였다. 수송용기 내부온도를 표시하는 TI-20의 경우에 최초온도는 44.5°C로 나타났으며 20분 후에 28°C로 감온 되었으며, 냉각수 입구온도 최초온도는 27°C로 나타났으며 20분 후에 24°C, 냉각수 출구온도 최초온도는 26°C로 나타났으며 20분 후에 23°C로 냉각수 계통의 온도 변화는 크게 나타나지 않았다. 이는 본 시설에 설치되어 있는 냉각시스템이 이과식 냉각수계 형태로 되어 있기 때문에 열교환 장치를 단 1회 통과한 냉각수가 외부로 바로 배출되기 때문에 온도차가 거의 없는 것으로 판단된다. 감압 운전은 PIO⁺-70에 의하여 점검 했으며 최초압력이 3.7bar에서 0.2bar까지 감압되었다. K-23에 대

한 감온, 감압 운전도같은 조건하에 운전되었으며, TI-20의 경우에 최초온도는 28.5℃로 나타났으며 20분 후에 25.3℃로 감온 되었으며, 냉각수 입구온도 최초온도는 25℃로 나타났으며 20분 후에 23℃, 냉각수 출구온도 최초온도는 24℃로 나타났으며 20분 후에 20℃로 냉각수 계통의 온도 변화는 크게 나타나지 않았다. 감압 운전결과는 최초압력이 1.8bar에서 0.2bar까지 감압되었다. J-44와 K-23의 두 개 집합체에 대한 감온, 감압 운전 결과에 따르면 수송용기의 최초 내부온도는 J-44가 44.5℃이고 K-23이 28.5℃로 나타났으며 최초 내부압력은 J-44가 3.7bar, K-23이 1.8bar로 나타났다. 두 개의 집합체를 비교했을 때 온도는 J-44가 K-23에 비해 16℃가 더 상승했으며 압력은 1.8bar 더 높은 것으로 나타났다. 이는 수송용기 내부에 담겨있는 핵연료 집합체의 결합에 의한 차이인 것으로 판단된다.

표 2. 감온, 감압 공정의 온도와 압력 변화(J-44)

Time (min)	TI 20	TI 40	Tx 30.1	Tx 30.2	PIO'70
0 (15:20)	(T.C:℃)	(T.C:℃)	(T.C:℃)	(T.C:℃)	(P.I:bar)
5	44.5	40.4	27	26	3.7
6	43.1	37.1	26	25	3.6
7	41.6	36.2	25	24	3.0
8	40.0	35.5	24	23	2.5
9	38.7	32.8	24	23	2.4
10	37.5	31.3	24	23	2.3
11	36.4	30.6	24	23	2.0
12	35.3	30.3	24	23	1.8
13	34.1	30.2	24	23	1.7
14	33.2	29.3	24	23	1.4
15	31.9	28.2	24	23	1.0
16	31.2	27.8	24	23	0.5
17	30.3	27.5	24	23	0.4
18	27.4	26.5	24	23	0.3
19	28.7	25.9	24	23	0.3
20	28.0	25.8	24	23	0.2

표 3. 감온, 감압 공정의 온도와 압력 변화(J-44)

Time (min)	TI 20	TI 40	Tx 30.1	Tx 30.2	PIO'70
0 (15:20)	(T.C:℃)	(T.C:℃)	(T.C:℃)	(T.C:℃)	(P.I:bar)
5	28.5	23.5	25	24	1.8
6	28.4	23.4	24	23	1.7
7	28.3	23.3	23	20	1.6
8	28.1	22.9	23	20	1.4
9	28.0	22.5	23	20	1.2
10	27.9	22.2	23	20	1.1
11	27.5	21.4	23	20	1
12	27.0	21.0	23	20	1
13	26.1	20.5	23	20	0.9
14	26.0	20.5	23	20	0.8
15	25.9	20.5	23	20	0.7
16	25.9	20.5	23	20	0.6
17	25.4	20.5	23	20	0.5
18	25.3	20.5	23	20	0.4
19	25.3	20.5	23	20	0.2
20	25.3	20.5	23	20	0

FLOWRATE OF COOLANT WATER : 15m³/h
 FLOWRATE OF PROCESS WATER : 15m³/h
 INVENTORY OF CAVITY WATER : 230 L
 * Value of LI40 When Pump 401 is Working : 50% (1220 L)
 * Value of LI40 When Pump 401 is not Working : 60% (1450 L)

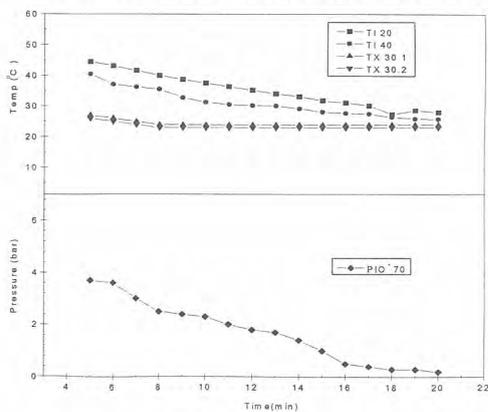


그림 4. 감온, 감압 공정의 온도와 압력 변화(J-44)

FLOWRATE OF COOLANT WATER : 15m³/h
 FLOWRATE OF PROCESS WATER : 15m³/h
 INVENTORY OF CAVITY WATER : 230 L
 * Value of LI40 When Pump 401 is Working : 50% (1220 L)
 * Value of LI40 When Pump 401 is not Working : 60% (1450 L)

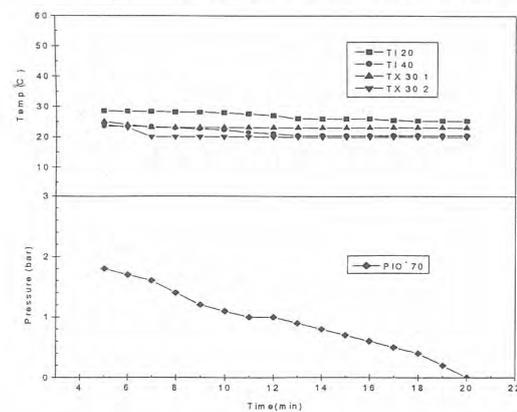


그림 5. 감온, 감압 공정의 온도와 압력 변화(K-23)

라) J-44와 K-23 사용후핵연료 집합체 수송용기 내의 방사선량을 측정결과

J-44, K-23의 사용후핵연료 집합체 수송용기 내의 방사성 액체의 방사선선량율은 본 공정에

설치된 RMS 장치에 부착된 γ -Monitor로 필터의 압력은 콘트롤 패널에 부착된 압력기록계로 측정 하였으며, 측정결과를 표 10과 그림 20에 나타내었다. 측정시간은 5분 간격으로 측정 하였으며, 여기에서 필터의 압력이 5bar 이상이되면 이미 필터에 오염물질이 흡착이 다된 것을 의미하며 이 때에는 필터를 탈착 시켜 다시 운전을 하여야한다. 따라서 그림 에 나타낸 것과 같이 두 집합체 대하여 방사선량을이 저감될수록 필터의 압력은 점차 증가하는 현상을 볼 수 있다. 그리고 표 에 볼수 있듯이 J-44의 집합체의 경우는 최초방사선량율이 1650(mR/hr)으로 나타났고 K-23은 246(mR/hr)로 나타났다. J-44가 K-23에 비해 1404(mR/hr) 더 높은 방사선량율이 측정되었으며 이는 J-44는 결합이 있는 집합체이며 K-23은 결합이 없는 집합체이기 때문인 것으로 판단된다. 방사선을 감소현상은 J-44의 경우는 1시간 운전후 300(mR/hr) 까지 방사선량율이 감소하였고 K-23의 경우는 76(mR/hr) 까지 방사선량율이 감소하는 현상이 나타났다. 그리고 방사선량율을 낮추기 위한 정화 처리용 필터의 최초 압력은 J-44가 1.2(bar), K-23이 0.7(bar)로 나타났으며최종 운전 종료시 필터의 압력은 J-44가 6.0(bar), K-23이 4.2(bar)로 나타났으며 운전 종료후 필터의 탈작공정 운전 절차에 따라 필터의 탈착을 실시 하였으며 필터 오염에 대한 안전을 고려하여 필터 제염 작업도 병행하여 실시하였다.

표 4. 사용후핵연료 집합체 수송용기 내의 방사선량을 측정결과표(J-44, K-23)

Time (min)	Cask 내부 방사능 측정치 (mR/hr)		dPIA+20 (Filter Pressure) (bar)	Vessel-40 Water Level (%)
	γ -Detector (상부)	γ -Detector (하부)		
5	1650	1040	0	54
10	890	850	0	54
15	850	850	2	53
20	400	470	3	53
25	350	350	4	53
30	190	200	5	53
35	180	180	6	53
40	250	260	7	53
45	270	300	10	53
50	300	320	12	53

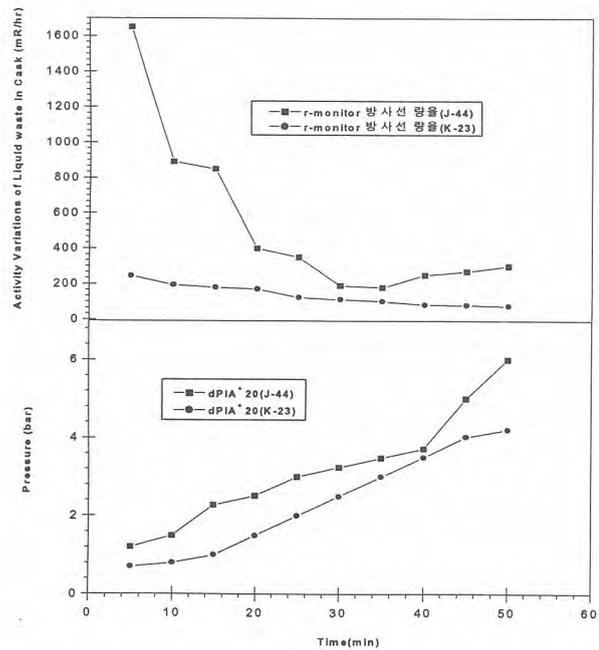


그림6. 사용후핵연료 집합체 수송용기 내의 방사선량을 측정결과(J-44,K-23)

제4장 결 론

1. 조사후시험시설내 사용후핵연료 집합체 캐스크의 감은, 감압 운전 경험

가) 사용후핵연료 집합체 캐스크 외부온도 측정지점 및 결과(J-44, K-23)

두 집합체에 대해서 캐스크 외부온도 측정을 수행하였으며 측정지점은 캐스크 상부, 중앙,

하부지점으로 크게 3부분으로 나누어 측정하였다. J-44의 캐스크 외부 최저 온도는 34.7℃, 최고 온도는 61.6℃로 나타났으며 K-23의 캐스크 외부 최저 온도는 34.7℃, 최고 온도는 61.6℃로 나타났다. 최대 온도차는 J-44가 K-23에 비해 10.5℃가 높게 나타났다. 온도 분포는 두 집합체가 동일하게 캐스크 중앙 지점 > 캐스크 상부 지점 > 캐스크 하부 지점 > 온도 순으로 나타났다. 이는 캐스크 중앙 지점에 핵연료 집합체가 위치해 있으므로 집합체 결합에 의한 붕괴열에 기인한 것으로 본다.

나) J-44, K-23 사용후핵연료 집합체 수송용기의 감온, 감압 운전 결과

J-44와 K-23의 감온에 대한 운전결과는 J-44의 경우 집합체 내부 폐액의 최초 온도는 44.5℃로 나타났으며 K-23은 28.5℃ 나타났다. 두 개의 집합체에 대하여 열교환기로 이용하여 냉각한 결과 20분 후에 J-44는 28℃, K-23은 25.3℃ 까지 감온 현상을 보였으며 열교환기로 주입되는 냉각수 입구 온도는 J-44의 경우 27℃에서 23℃의 출구 온도로 배출되었으며 K-23은 25℃에서 20℃로 크게 온도 변화가 나타나지 않았다. 이는 본 공정의 냉각시스템이 이과수 냉각수계 형태로 되어 있기 때문에 냉각수가 열교환 장치를 1회 통과한 후 온도차가 없는 것으로 본다. J-44와 K-23의 감압에 대한 운전결과는 bar의 사용후핵연료 집합체 캐스크의 내부 압력은 J-44가 3.7bar, K-23은 1.8bar로 나타났으며 20분간 운전 결과 내부 압력은 J-44가 0.2bar, K-23이 0bar 까지 감압 되었다. 두 개의 사용후 핵연료 집합체를 비교 할때 최고 온도는 J-44가 K-23에 비해 16℃가 더 높았으며 최고 압력도 1.9bar가 더 높은 것으로 나타났는데 이는 캐스크 내부에 담겨있는 핵연료 집합체 결합 정도에 의한 차이인 것으로 판단된다.

다) J-44, K-23 사용후핵연료 집합체 수송용기내의 방사성 선량을 측정 결과

사용후핵연료 집합체 수송용기 내의 방사성 액체의 선량을 낮추기 위해 본 공정에 설치된 카트리지 형태의 금속 판형의 여과기를 이용하여 정화 처리 하였다. 방사성 선량을 측정에 의하면 여과기 정화하기 전 최초 방사선량이 J-44는 1650mR/hr의 고방사선량이 나타났으며 K-23은 246mR/hr으로 나타났다. 두 개의 사용후 핵연료 집합체를 비교 할때 J-44가 K-23에 비해 1404mR/hr이 더 높게 나타났는데 이는 J-44는 결합이 있는 집합체이며 K-23은 결합이 없는 집합체이기 때문인 것으로 판단된다. 방사성 선량을 낮추기 위해 여과기로 1시간 동안 정화 처리한 결과 J-44는 300mR/hr 까지 K-23은 76mR/hr 까지 감소되었으며 그리고 운전초기의 필터의 압력은 J-44가 1.2bar, K-23이 0.7bar 였으며 최종 운전 종료시 여과기의 압력은 J-44가 6.0bar, K-23이 4.2bar 까지 상승하였다.

라) 사용후핵연료 집합체 수송용기의 감온, 감압 공정 안전성 분석

조사후시험시설내 감온, 감압 공정의 정상 조업시 예상되는 각 부분에 대한 이상 현상 및 주요 원인 및 조치 방법 등을 안전성 분석을 하였으며 운전을 수행하기 위한 원만한 조업을 위해 만전을 기하였다.

참 고 문 헌

1. Guide book on Spent Fuel Storage, IAEA, T.E 240(1984)
2. Guide book on Spent Fuel Storage, IAEA, T.E 240, Second Edition (1991)
4. Chemical Engineering note P-GM/MGC-N⁰ H 0160, S.G.N (Unit-211)
5. Process flow sheet 1900 H 1026, S.G.N (Unit-211)
6. Operating Procedures Note B/PB/CC N⁰ H 0160, S.G.N (Unit-211)

중수로 환형기체 계통의 방사능 inventory 평가

김진태, 강덕원, 손 욱
전력연구원

요 약

환형기체(Annulus Gas) 계통의 화학적 관리는 계통 재질의 건전성 확보와, 계통내 냉각재 또는 감속재 중수 유입 여부 감지 및 방사선량 저감화 등을 통하여 설비의 안전성 과 신뢰성을 유지하는데 목적이 있다. 환형기체 계통의 화학 관리절차서 중 CO₂ 규격 관리는 계통 재질의 건전성 확보와 방사선량 증가에 직결되기 때문에 고순도의 품질 보증이 요구되고 있다. CO₂의 순도가 기준 값에 미달될 경우는 계통내에 직접적인 영향을 줄뿐 아니라 주변 환경으로의 오염 가능성도 상존하기 때문에 불순물의 정량관리는 매우 중요하다. 따라서 중수로 환형기체 계통에 공급되는 CO₂ 중의 C, N₂ 및 Ar등의 농도분석을 통하여 계통내에서 생성 될 수 있는 방사능 inventory를 평가 하였으며 CO₂의 불순물 관리 최적화와 중수로에서 생성되는 기체 방사성 폐기물 관리에 유용한 정보로 사용 될 수 있을 것이다.

Abstract

Chemical management of annulus gas system is carried out for the purpose of ensuring the safety and reliability of the system via securing the integrity of the system, detecting the D₂O in-leakage of coolant and/or moderator, and reducing the radiation dose. Since the quality of CO₂ gas, which is used as a filling gas for annulus gas system at CANDU plants, has a propound effect on the integrity of the system material and the radiation dose, CO₂ gas of high quality is needed. If the quality of CO₂ gas does not meet the specification, it may give rise to undesirable effect not only on the annulus gas system, but also on the environment due to the production of radioactive nuclei. Therefore, it is very important to check the impurities of CO₂ gas. Based on this background, the inventories of C-14 and Ar-41 in CO₂ gas that is supplied as annulus gas were estimated using the data on concentrations of the impurities of CO₂ such as C, N₂ and Ar. The results of this study is expect to give useful information on optimization of CO₂ impurities maintenance and management of gaseous radioactive wastes produced at CANDU plants.

1. 서 론

중수로 환형기체 계통은 계통 부식방지를 위해 CO₂로 채워져 있으며 이 계통은 중성자장하에 놓여 있기 때문에 공급되는 CO₂의 순도가 낮을 경우 CO₂ 중에 함유하고 있는 불순물인 CH (Hydrocarbon)형태의 물질과 Ar 및 N₂는 쉽게 방사화되어 환형기체 계통 주변의 방사선량률을 높이는데 기여한다. 탄화수소는 C_nH_m의 형태로 존재하나 방사화될 경우 폴리머 형태의 점도가 높은 유기합성물도 형성할 수도 있으며 이러한 유기물이 계통에 다량 침적할 경우, Pig-Tail이 막히거나 Fan의 회전운동을 방해할 수 있으므로 이러한 가능성 때문에 외국 원전의 경우, 환형기체 계통에 사용되는 중수로 원전에 사용하는 CO₂의 품질을 까다롭게 규정하고 있다. 따라서 중수로 환형기체 계통에 공급되는 CO₂의 순도 측정과 불순물 성분의 분석을 실시하여 계통내에서 생성될

수 있는 방사능 inventory를 평가하였다.

2. CO₂ 시료 분석

2.1 시료 분석조건

평가를 위해 사용되는 시료는 일반 CO₂와 고순도 CO₂를 사용하였으며, 분석 항목은 주로 Ar, N₂, CO 및 THC(C₁~C₄)을 분석하였고 실험 환경은 온도 23±1 °C, 상대습도 RH 65 % 이하에서 실시하였다. 실험 방법으로는 액체 이산화탄소의 불순물 시험절차(T-02-019-2000, KRISS)와 Gas-MS에 의한 혼합 및 순수가스 분석 시험절차 (T-02-030-2000, KRISS)를 따랐다.

2.2. 시료 분석법

2.2.1. GC-DID에 의한 H₂, O₂+Ar, N₂, CO의 분석

GC-DID의 분석조건은 분리관 molecular sieve 5 A(packaged, 1/8" × 6 ft, sus tube, 80/100 mesh, RESTEK), oven temp. 85 °C, sample loop 0.5 mL, sample flow rate 60 mL/min로 하였다. 일반 공업용 CO₂ 시료와 고순도 CO₂ 시료에 포함된 불순물 성분들의 농도는 상당한 차이가 있으므로 각각의 시료분석에서 시료 성분의 불순물 농도와 비슷한 농도 수준의 두 종류의 표준가스를 사용하였다. 일반 공업용 시료 분석에 사용한 표준가스(H₂, O₂, N₂, CH₄, CO/He)의 각 성분의 농도는 93.5, 114.4, 100.5, 107.4 및 110.9 µmol/mol이며, 고순도 시료의 분석에 사용한 표준가스의 각 성분의 농도는 각각 10.5, 11.5, 9.6, 11.3, 12.5µmol/mol이다.

2.2.2. Gas-MS에 의한 Ar의 분석

시료중의 Ar불순물은 GC 분리관을 통과하여도 산소와 Ar의 머무름 시간이 같아 독립적으로 Ar을 분석하는 것은 대단히 어려워 시료 중 Ar의 분석을 위해 정밀가스 질량분석기(Gas-MS, Finnigan MAT 271)를 사용해 이산화탄소 중의 Ar에 대한 정량분석을 실시하였다.

2.2.3. CH₄과 Total Hydro Carbons(THC)의 분석

GC-FID는 hydrocarbons류에 대한 분석 감도가 탄소의 수에 비례하는 특성이 있으며 선택적으로 감응하기 때문에 순도분석에 가장 널리 사용된다. 불순물 중 CH₄을 포함한 THC를 정성/정량하기 위하여 사용한 분리관은 activated alumina(1/8" × 6 ft sus tube, 80/100 mesh)로 sample loop 1mL 및 sample flow rate 100mL/min의 조건에서 일차적으로 머무름 시간이 짧은 메탄의 컬럼 온도를 30°C로 하여 분석하고 다른 머무름 시간이 긴 탄화수소류 불순물들은 컬럼 온도를 100°C로 하여 분석하였다. 시료 중 메탄과 THC를 정량분석하기 위하여 CH₄, C₂H₆, C₂H₄, C₃H₈, C₃H₆, C₂H₂ 및 C₄H₁₀ 성분을 가진 표준가스를 사용하였다. 시료 중 메탄을 포함한 THC(C₁ ~ C₄)를 정성 분석하는 과정에서 CH₄, C₂H₆, C₂H₄이 검출되었다. 고순도 CO₂ 시료중의 메탄을 정량하기 위하여 1.8137 µmol/mol CH₄/Air 표준가스를 사용하였고, THC 분석을 위하여 23.178 µmol/mol C₂H₄/N₂ 표준가스를 사용하였다. 또한 일반 공업용 CO₂시료의 분석에 사용한 메탄 표준가스는 101.376 µmol/mol CH₄/N₂이며, THC 분석에 사용된 표준가스는 1005.08 µmol/mol C₂H₄/N₂ 및 105.705 µmol/mol C₂H₆/N₂ 이다.

3. CO₂ 품질평가

3.1. CO₂중의 불순물 분석

이산화탄소 원료가스 중 불순물 성분분석은 GC-DID/FID, Gas-MS를 사용하였다. 공업용 시료와 고순도 시료를 GC-DID로 O₂+Ar을 분석한 결과 농도는 각각 143.5 및 1.55 µmol/mol 였고, Gas-MS를 사용하여 Ar을 독립적으로 정량한 결과, 시료의 Ar 농도는 40.9 µmol/mol 이었다. 고 순도 CO₂ 시료의 경우는 GC-DID에 의한 O₂+Ar의 분석 결과 이의 농도가 미량 수준으

로 추가로 Ar을 분석하지는 않았다. 산소의 농도값은 102.6 $\mu\text{mol/mol}$ 로 나타났다. 또한, 공업용 시료의 N_2 와 CO 의 농도는 각각 185, 648 $\mu\text{mol/mol}$ 으로 정량되었으며, 고순도 시료는 각각 2.5와 0.1 $\mu\text{mol/mol}$ 로 검출되었다. 전체적으로 불순물이 많은 공업용시료의 경우 N_2 , CO , CH_4 , THC 불순물의 많은 비중을 차지하고 있었으며, 고순도 시료는대부분의 불순물 성분이 검출한계 이하 또는 저농도 수준으로 나타났다.

4. 환형기체 계통내의 방사능 Inventory 평가

방사능 inventory 평가를 위해 CO_2 기체중에 함유하고 있는 C-13, O-17 및 Ar-40의 존재비 값을 사용하였으며 C-13과 O-17은 CO_2 기체중에는 일정존재비로 함유되어 있기 때문에 문헌상의 제시값을 사용하였고, Ar-40은 CO_2 정제 과정에서 다량의 불순물로 함유될 수 있기 때문에 Ar-40의 존재비는 인위적으로 변화시켜가면서 계산하였다.

4.1. 환형기체(CO_2)내의 탄소의 $^{13}\text{C}(n, \nu)\text{C}^{14}$ 반응에 의한 ^{14}C 의 생성량
원자로 계통에서 1년 동안의 중성자흡수반응에 의해 발생하는 방사성핵종의 inventory 계산식은 다음과 같다.

$$A_i = \phi_i \sigma_i n_i \lambda_i t \quad \dots\dots\dots(1)$$

$$n_i = W_i k_i f_i A_v/M_i \quad \dots\dots\dots(2)$$

여기서, A_i : 중성자 포획반응 i에서의 ^{14}C 연간 방사능 ($\text{Bq} \cdot \text{a}^{-1}$)

ϕ_i : 평균 중성자속 (average neutron flux) ($\text{n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)

σ_i : 각 중성자 포획반응에 관련된 핵종의 중성자에 대한 유효 단면적 (cm^2)

λ_i : 붕괴상수(= $\ln(2)/t_{1/2}$, s^{-1} , 여기서 $t_{1/2}$: ^{14}C 의 반감기, $5730 \times 3.15576 \times 10^7$, s)

t: 연간중성자 조사시간 (=CF \times t_0 , CF: annual reactor power capacity factor,

t_0 : 당해년도 적용시간, 초)

W_i : 표적물질의 무게 (g)

M_i : 표적물질의 분자량

k_i : 단위 표적물질 분자식 중의 표적원자의 수

f_i : 표적원자의 동위원소 존재비

A_v : 아보가드로 수 ($6.023 \cdot 10^{23}$)

4.1.1. 표적원자 : ^{13}C

$$W_1 = 2.65 \cdot 10^4 \text{ g } (\text{CO}_2), k_1 = 1, f_1 = 1.11 \% , M_1 = 44 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1} (\text{CO}_2),$$

$$\phi_1 = 1.65 \cdot 10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1} , \sigma_1 = 1.4 \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2$$

$$n_1 = W_1 k_1 f_1 A_v/M_1 \quad \dots\dots\dots(3)$$

$$n_1 = 2.65 \cdot 10^4 \text{ g} \times 1 \times 0.0111 \times 6.023 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1} \div 44 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1} = 4.03 \cdot 10^{24}$$

$$A_1 = \phi_1 \sigma_1 n_1 \lambda_1 t \quad \dots\dots\dots(4)$$

$$A_1 = 1.65 \cdot 10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1} \times 1.4 \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2 \times 4.03 \cdot 10^{24} \times 3.833 \cdot 10^{-12} \text{ s}^{-1} \times 2.1459168 \cdot 10^7 \text{ s} \cdot \text{a}^{-1}$$

$$= 7.64 \times 10^7 \text{ Bq} \cdot \text{y}^{-1} (2.04 \times 10^{-3} \text{ Ci/년})$$

4.2. 환형기체(CO_2)내의 산소의 $^{17}\text{O}(n, \alpha)\text{C}^{14}$ 반응에 의한 ^{14}C 의 생성량

4.2.1. 표적원자 : ^{17}O

$$\begin{aligned}
W_2 &= 2.65 \cdot 10^4 \text{ g (CO}_2\text{)}, k_2 = 2, f_2 = 0.037 \% , M_2 = 44 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1} \text{ (CO}_2\text{)} \\
\phi_2 &= 1.65 \cdot 10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}, \sigma_2 = 2.35 \cdot 10^{-25} \text{ cm}^2 \\
n_2 &= W_2 k_2 f_2 A_v / M_2 \dots\dots\dots(5) \\
n_2 &= 2.65 \cdot 10^4 \text{ g} \times 2 \times 0.00037 \times 6.023 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1} \div 44 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1} = 2.68 \cdot 10^{23} \\
A_2 &= \phi_2 \sigma_2 n_2 \lambda_2 t \dots\dots\dots(6) \\
A_2 &= 1.65 \cdot 10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1} \times 1.4 \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2 \times 2.68 \cdot 10^{23} \times 3.833 \cdot 10^{-12} \text{ s}^{-1} \times 2.1459168 \cdot 10^7 \text{ s} \cdot \text{a}^{-1} \\
&= 4.85 \cdot 10^8 \text{ Bq} \cdot \text{y}^{-1} (1.36 \times 10^{-6} \text{ Ci/년})
\end{aligned}$$

4.3. 환형기체 계통내의 Ar-41의 inventory 평가

CO₂ 기체중에 함유된 Ar-40의 농도값은 CO₂ 정제 과정에서 변화되기 때문에 정제 과정에서 다양한 농도값으로 존재할 수 있다는 가정하에 Ar-40의 농도를 10, 20, 30, 40, 50 ppm으로 변화시켜 가며 계산하였다.

1년 동안의 중성자흡수반응에 의해 발생하는 방사성핵종의 인벤토리 계산식(A)은

$$A = \phi \sigma m \lambda t CF / 100 \dots\dots\dots(7)$$

- 여기서 ϕ : 열중성자 플럭스 ($\text{n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)
- σ : 중성자흡수단면적 (cm^2)
- m : 표적원자의 개수
- λ : 붕괴상수 ($=\ln(2)/t_{1/2}$, $t_{1/2}$ =반감기)
- t : 시간 ($3.15576 \times 10^7 \text{ s}$, 1년)
- CF : annual capacity factor (%)

4.3.1. 환형기체공간내의 표적원자 (Ar-40)의 개수 (m)

- 환형기체 공간 내 압력 : 523.1 atm (가정치, $(14+96)/2 \text{ kPa}$)
- 환형기체 공간 중 기체가 차지하는 부피 : 10,670 L ($=11\text{m}^3 \times 0.97$)
- 환형기체 공간 내 온도 : 465 K ($192 + 273$)
- 환형기체 내 모든 기체가 이상기체라고 가정 시 존재하는 모든 기체의 몰수(n) : 146,380 mole (이상기체의 상태방정식을 적용, $n = PV/RT$)
- Ar의 환형기체공간내의 농도: 40.9 ppm ($\mu\text{mol/mol}$, 공업용의 경우)
- Ar-40의 존재비: 99.6 %
- Ar-40의 원자개수 (m) : $146,380 \text{ mole} \times 40.9 \times 0.996 \times 6.023 \times 10^{23} \text{ atom} \cdot \text{mol}^{-1} / 10^6 = 3.592 \times 10^{24} \text{ (개)}$

4.3.2. Ar-41 inventory 계산법을 위한 자료

- 환형기체공간내의 중성자 플럭스 : $1.65 \times 10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$
- Ar-41 생성 반응식 : $^{40}\text{Ar}(n,\gamma)^{41}\text{Ar}$
- Ar-41 반감기($t_{1/2}$, s) : 6540 (109분) *
- Ar-41의 붕괴상수 ($\ln(2)/t_{1/2}$, t^{-1}) : 1.05986×10^{-4}

따라서, CF가 100%라고 가정하고 식(7)에 위의 값들을 대입하면

$$\begin{aligned}
A &= \phi \sigma m \lambda t CF / 100 \\
&= \phi \sigma m \lambda t \\
&= 1.65 \times 10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1} \times 6.10 \times 10^{-25} \text{ cm}^2 \times 3.592 \times 10^{24} \times 1.05986 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1} \times 3.15576 \times 10^7 \text{ s} \\
&= 1.21 \times 10^{18} \text{ Bq/yr} (3.27 \times 10^7 \text{ Ci/년}) \text{의 값을 얻을 수 있다.}
\end{aligned}$$

표 1. 환형기체 계통 내 방사성핵종별 총 생성량

(Ci /년)

핵종		표적원자	C-13	O-17	Ar-40
C - 14			2.04×10^{-3}	1.36×10^{-6}	
Ar - 41	10 ppm				7.99×10^6
	20 ppm				1.60×10^7
	30 ppm				2.40×10^7
	40 ppm				3.20×10^7
	50 ppm				3.99×10^7

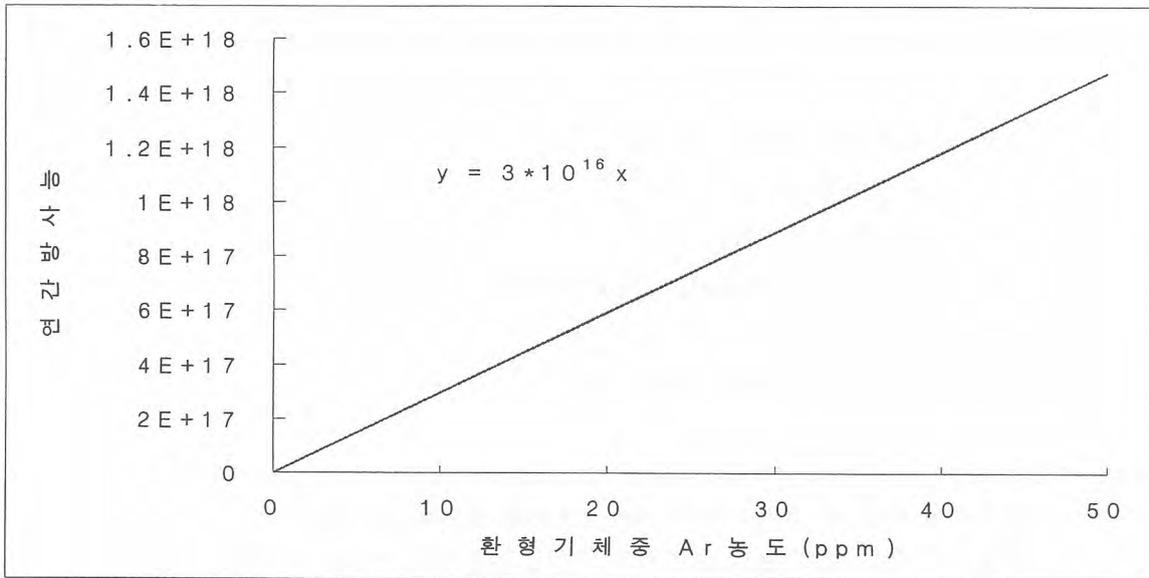


그림 1. 환형기체 계통내 Ar 농도값에 따른 방사능량

5. 결론

원자력발전소의 환형기체 계통에 사용되는 CO₂ 관리는 계통재질의 부식방지와 방사선량 저감화와 직결되기 때문에 고순도의 품질이 요구된다. 본 연구에서는 국내에서 사용중인 CO₂ 중에 불순물이 함유되어 있을 경우에 대비한 계통에 미치는 영향 평가와 불순물의 존재로 인한 방사선 Inventory를 평가하여 보았다. 반감기(5,730년)가 길고 에너지가 높아 환경 방출시 직접적인 영향을 줄 수 있는 방사성탄소(C-14)의 생성량은 두 시료 모두 낮은 것으로 평가되었고 Ar의 경우는 운전 제한값인 10ppm 이상 CO₂ 가스중에 포함되어 있을 경우, 붕괴 상수값이 타 원소에 비해 훨씬 크기 때문에 비록 소량이지만 계통내 방사선량 준위를 높이는데 크게 기여하므로 Ar 농도값은 가능한 한 낮게 유지해야한다. 따라서, 중성자장하에 놓여 있는 계통에 CO₂ 기체를 사용할 경우는 가능한 한 불순물이 극미량 함유된 고순도의 이산화탄소 기체를 사용하는 것이 주변 환경오염 최소화와 작업자의 피폭 저감화에 기여할 수 있을 것으로 기대된다.

참고문헌

1. 강덕원, 지준화, "기체크로마토그래피를 이용한 기체중 이산화탄소 분석", KEPRI Technical Memo, TM.00NC02.P2002.149.
2. 강덕원, 지준화, 손 욱, 이홍주, 이두호, "중수로 감속재 계통내 C-14 저감기술 개발 보고서", 한국수력원자력 주식회사, 2003.
3. 강덕원, 김진태, 지준화, 이재근. "방사선 이산화탄소 제거를 위한 흡착제별 제거 효율 평가", "한국 원자력학회 춘계학술발표회, 2002.

조사후시험시설에서의 방사성 오염배기체의 포집장치 및 여과효율

Filtration System and its Efficiency of Exhaust System at Post Irradiation Examination Facility

황용화*, 이형권, 전용범, 민덕기, 엄성호, 홍권표
한국원자력연구소 핵연료주기시험부

요 약

조사후시험시설에는 시설내의 부압기준을 다르게 설정하여 시설의 운전조건을 최적화로 유지하고 방사성물질을 처리하기 위한 오염배기를 포집하는 여과장치가 설치되어 있다. 필터 포집장치에 대해 관련된 효율시험과 검사를 주기적으로 수행하여 운전효율과 안전을 향상시키고 있다.

ABSTRACT

Filtering system is installed at post irradiation examination facility(PIEF) to maintain optimized operating condition of the facility by keeping different negative pressure condition depending on contamination level in the PIEF due to its treatment of radioactive materials. Inspection on each system, filter leak test and other related test are periodically performed as the performance test for increasing operational efficiency and safety.

1. 서 론

다목적연구 원자로에서 조사된 방사능 물질인 핵연료, 노재료, 사용후핵연료봉 등으로 이런 핵물질의 안전 및 건전성을 평가하기 위한 시험을 수행할 때 시설에서 취급하는 핵연료로부터 방사성 부유입자, 방사성 기체 등 오염물질이 종사자의 피폭과 시설 내외부로 확산되어 오염이 우려된다. 이런 사고를 미연에 방지하기 위해서는 시설내 부압유지와 배기체 여과장치가 필연적이다. 방사성 오염배기체를 포집에는 해파(HEPA)필터 및 활성탄 장치가 설치되어 있으며, 주기적인 누설을 및 효율시험을 실시하여 좋은 성능이 유지되고 있다.¹⁾

2. 배기체의 여과성능

2.1 방사성 해파(HEPA)필터 포집장치 및 여과효율

오염 배기체의 여과에는 저방사능작업구역(MUP, Medium Under Pressure)과 화학분석(FH, Fume Hood)에는 1단의 필터뱅크로 설치되고 핫셀과 같은 고준위 방사선이 존재하는 DUP(Deep Under Pressure)에는 2단 직렬의 필터뱅크가 있다.(Fig.1) 필터매질을 통과하는 투과공기는 공기 유속에 비례하며 필터의 기공발생 등의 결함이 있는 경우, 투과율은 급격한 증가로 이러한 거동은 해파필터의 결함유무를 판별하는데 매우 유용하다. 해파필터의 성능시험에는 DOP(Dioctyl

Phthalate) 입자발생기(NUCON F-1000-DG)와 입자검출기(NUCON F-1000-DD)가 필요하다. 입자발생기는 DOP를 가열하여 식(1)에 의해 적정량의 분무입자가 Fig.2와 같이 필터전단부(upstream)에 투입되어 흡입공기에 희석된다. 검출기는 필터 전·후단과 튜브로 연결되며 채취한 공기시료는 광산란방식에 의해 투과율과 효율이 측정된다. ANSI N-509 및 N510에 의해 5fpm(2.5Cm/sec)이하의 설계유속에서 0.3 μ m입자가 99.97%이상 여과효율을 기준으로 하고 있다. 현장누설시험에는 식(2)에 의해 DOP 누설율이 0.03% 이하로 유지되고 있으며 필터의 손상(핀홀, 크랙, 가스켓 손상 등), 설치에 따른 누출 등의 점검이 실시되고 있다.²⁻³⁾



Fig.1 2-stage HEPA filter casing.

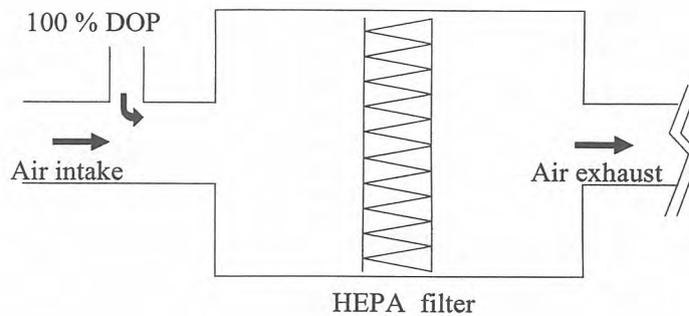


Fig.2 Testing of HEPA filter of each bank

$$\text{DOP유량} \quad DOP \text{ Flow} = \frac{\text{Air Flow} \times \text{Concentration of DOP}}{\text{Generator Efficiency} \times \text{DOP s.g.}} \quad (1)$$

- 공기유량 : Air Flow(cfm)
- DOP 농도 : Concentration of DOP(gm/lit)
- 발생기 효율 : Generator Efficiency(%)
- DOP s.g. : DOP Specific Gravity(g/lit)

$$\text{누설율} \quad \%P = \frac{C_d}{C_u} \times 100 \quad (2)$$

- P = Percent Penetration
- C_d = Downstream
- C_u = Upstream

2.2 침착활성탄(Activated Charcoal)필터의 포집장치 및 여과효율

핫셀 배기체에는 Tray 타입(Fig.3) 활성탄필터를 설치하여 공기중의 분진을 포집하고 있으며, 핵연료에서 생성되는 요오드(I131)는 활성탄에 흡착·반응되어 여과되어진 된다. 포집장치는 Fig.3과 같이 R-11 추적(tracer)가스를 상류측에 투입하여 활성탄층으로 통과되며 할로젠검출기(halogen leak detector)에 의해 필터의 상·하류측에서 채취한 시료공기로 농도를 측정하고 있다. 추적가스의 양을 Fig.4와 같이 투입시키고 5분 동안 Upstream과 Downstream을 실시간 비교 측정 한 결과 99.97% 이상의 성능이 유지됨을 알 수 있었다. 또 포집효율은 식(3)과(4)에 의해 설정되며 활성탄의 포집성능은 필터내의 공기풍속, 풍화(weathering) 지속기간 및 요오드의 함량에 따라 효율이 점차 저하되는 것으로 알려져 있다.

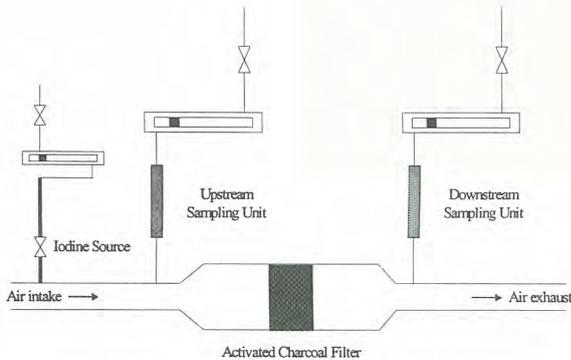


Fig.3 Test setup for radio-iodine tracer tests.

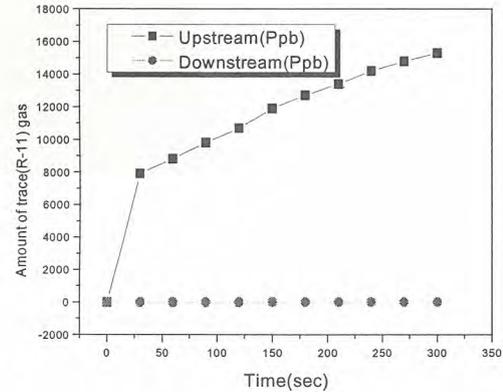


Fig.4 Amount of Trace gas(R-11)

$$\text{Leakage } P = 100 \times C_d / (C_u \times 1000) \quad (3)$$

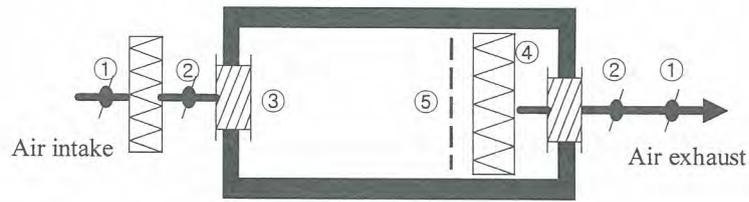
$$\text{Efficiency } E = 100 - [100 \times C_d / C_u \times 1000] \quad (4)$$

2.3 핫셀배기체 포집장치

핫셀(hot-cell)에는 핵료봉의 파괴 및 비파괴 실험으로 배출된 고준위의 방사능이 존재한다. 따라서 핫셀 전단으로 인입한 공기는 하단의 원통형 해파필터를 통과하여 핫셀 외부의 2단 직렬 배기체필터(Fig.5)에서 완전히 포집 여과시키고 있다. 공기의 유동이 상단부에서 하단부로 통과하면서 방사능 분진미립자가 자중으로 바닥에 가라앉도록 되어있고, 또 원통필터(cylindrical filter)를 셀 내에 장착하는 이유는 원격조종기(manipulator)로 필터교체가 용이하기 때문이다. 셀 내의 부압은 항상 15~25mmWg 범위로 유지하여 셀 외부로 오염공기 누출을 방지하고 있다.

2.4 필터의 초기차압 및 교체주기

필터의 차압 및 사용수명은 여과될 기체의 분진, 입자의 크기 및 시설내의 청결조건에 밀접한 관계가 있다. v-pleats type의 해파 신필터는 Fig.6에서와 같이 초기압손이 3,000CMH의 유량에서 25mmWg(1inch)이하이며 사용기간의 경과에 따라 약 2배의 차압이 발생하는 60mmWg에서 최종압손점으로 설정하였다. 그러나 100 μ g/m³/year의 분진포집 설계조건에서 볼 때 구조재의 손상 또는 효율저하가 없으면 최종압손점 이상까지도 사용이 가능하나, 필터의 손상방지와 안전을 위해



- ① Manual Damper ② Isolating Damper ③ Protecti
 ④ Absolute Filter ⑤ Spark Arrestor

Fig.5 In-output port of Hot-cell

50mmWg를 교체주기로 제시하였다. 최종압손점 이상(100mmWg)에서는 필터차압이 선형적인 상승이 나타났으며 여과재는 포화상태에 도달되었다. 여기부터는 허용범위 내의 공기배출이 어렵고 핀홀(pin-hole) 발생과 필터의 파손으로 이어질 수 있었다. 활성탄 카트리지(Fig.7)필터는 개당 150CMH에서 1inch 이내의 차압이 유지되며 2inch 차압까지 사용이 가능하였다. 누설시험은 ANSI 규정의 시험방법에 따라 매 18개월 주기로 실시되며 99.97%이상의 성능이 나타났다.

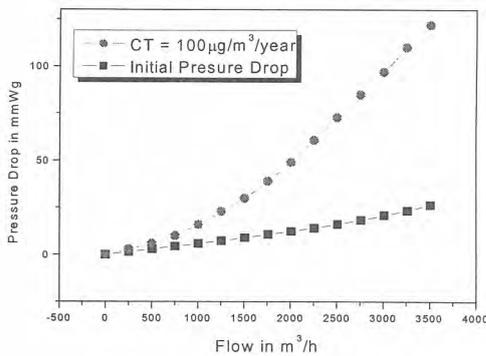


Fig.6 resistance & clogging capacities in HEPA filter(No.1506-26)

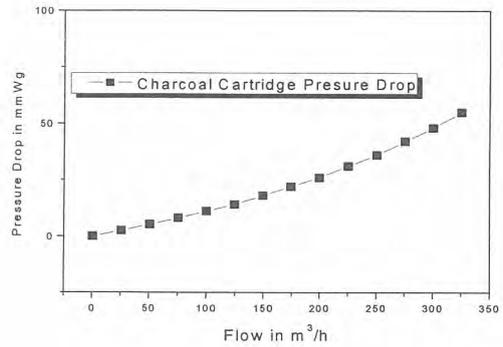


Fig.7 Charcoal cartridge characteristics & pressure drop (model 3604)

4. 결 론

- 방사성오염 배기체 여과장치는 시설내의 방사능 부유입자와 유독가스를 포집하여 제거하는 것이 주목적으로 주기적인 성능시험과 필터에 대한 효율적인 측정기술이 중요하다.
- 해파필터 및 침적활성탄의 누설시험은 검출기의 예민한 특성으로 주변(background)의 영향을 많으므로 실험전에 충분한 실내환기가 필요하다.
- 포집장치는 정상상태로 점검 유지되고 ANSI에 규정한 이상의 여과효율이 나타났다. 또 정확한 데이터를 얻기 위해서는 많은 현장시험(field test)에 대한 경험이 요구되었다.

참 고 문 헌

1. Hwang, Y. H., 1999, KAERI/TR-1387/99, Design & Operation Technology of Ventilating System for Irradiated Materials Examination Facility, pp.17
2. C.A. Burchsted. Nuclear Air Cleaning Handbook (ERDA 76-21), pp198-205
3. Hwang, Y. H., 1997, KAERI/TR-943/98 Field Test of Radioactive High Efficiency Filter and Filter Exchange Techniques of fuel Cycle Examination Facility, pp. 13-20

공기유입시스템에서의 섬유매체에 의한 방사성액체폐기물
처리에 관한 연구

A Study on the Treatment of Radioactive Liquid Wastes
using Synthetic textile by Air Intake System

김태국, 이영희, 안섬진, 손종식, 홍권표
한국원자력연구소

요 약

저준위 방사성액체폐기물 처리방법으로 에너지 소모가 적은 경제적이고 효율적인 처리방법을 제시하기 위하여 면 과 Polyester 가 함유된 합성섬유를 증발매체로 하여 자연기상 상태의 건조한 공기를 유입하여 방사성 액체폐기물과 접촉시켜 증발하는 연구를 하였다. 본 연구에서는 자연상태의 공기를 강제 유입시켜 액체의 증발현상, 증발매체표면에서의 물질전달 등 이론을 토대로 방사성액체 폐기물을 처리하는 연구를 수행하였다. 실험은 방사성폐액을 직접 사용하였으며, 증발에 영향을 미치는 변수에 따라 증발 단위 면적당 방사성 폐액의 증발량측정 및 체염계수를 조사하였다. 증발효과는 유입공기의 습도가 낮고 공기의 유속과 공급액의 유량이 증가하고 폐액의 온도가 높아질수록 증발량이 증가하였다. 실험결과 습도는 70% 이하, 공급폐액의 유량이 3.4 l/hr.m^2 이상, 공기유속은 $1.14 \sim 1.47 \text{ m/sec}$ 범위가 조업조건이며, 이때 체염계수는 5.1×10^3 , 배출공기의 방사능 농도는 $4.7 \times 10^{-13} \text{ } \mu\text{Ci/ml.air}$ 로 측정되었다. 공급유량이 4.6 l/hr.m^2 와 공기유속이 1.47 m/sec 일때 최대 증발조건으로 확인되었으며 대기의 온.습도 및 풍속에 따른 실험을 통하여 달톤형의 증발식 Air factor $[Eh = (0.0168 + 0.0141V) \Delta H]$ 를 도출하였다.

Abstract

In this study based on the mass transfer theory, experiments for the evaporation rates depending on various conditions were carried out through the operation of the existing Natural Evaporation Facility in KAERI.

Evaporation media were made of the cotton and polyester. Air circulation in the facility was forced by exhausting fans. The evaporation rate and the decontamination factor were calculated by the result of experiment. The evaporation rate increased as the flow rate of air supply, the feed rate of liquid waste, and the temperature of supplied air increased. As for the humidity of supplied air, the evaporation rate was getting higher as the humidity was getting lower.

As the result of this study, operation conditions of the Natural Evaporation Facility are optimized as follows ; The air temperature above 8C° , the air humidity below 70%, the air flow rate $1.14 \sim 1.47 \text{ m/sec}$, and the liquid waste feed rate 4.6 l/hr.m^2 . The decontamination factor and the

radioactivity are 5.1×10^3 and $4.7 \times 10^{-13} \mu\text{Ci/ml}$ respectively, at the above mentioned optimum operation conditions.

The air factor in the Dalton's equation for evaporation was determined from results of experiment on the temperature, the humidity, and the flow rate of supplied air as following ; $E_h = (0.0168 + 0.0141V) \Delta H$

1. 서 론

저농도 방사성 액체폐기물은 지금까지 주로 이온교환과 증발농축 방법을 사용하여 감용을 하고 있으나 폐액이 함유하고 있는 특성에 따라 감용의 한계를 가지고 있다는 단점이 있다. 현재 자연 증발에 관한 많은 연구가 국내외적으로 이루어지고 있다. 인도에서는 증발표면적을 넓히기 위한 Ceramic 계통의 다공성 물질을 사용하여 저농도 방사성 액체폐기물을 처리하고 있으며⁽¹⁾, 뉴델리의 Non-Conventional Energy Sources에서는 농산물의 곡물 건조공정에 이용하고 있다⁽²⁾. 프랑스의 Aceren에서는 대기와 증발대상 액체와의 증기압 차이를 driving force로 하여 접촉면적을 늘리기 위한 porous plastic sheet를 사용하여 처리하고 있으며⁽³⁾, 오스트리아에서는 solarpond 및 aluminum hydroxide를 사용하여 저농도 방사성 액체폐기물을 처리하고 있다⁽⁴⁾. 또한 이집트의 El-Minia에서는 태양열에 의한 증발 대상 액체의 온도를 증가시켜 증발시키는 방법을 이용하고 있다⁽⁵⁾.

본 논문에서는 합성섬유로 제작된 증발천을 수직으로 여러개 설치한 system에서 수직형증발표면에서의 증발이론, 액체의 증발현상 및 물질전달 등 이론식을 바탕으로 증발현상에 대한 이론적 고찰을 하였으며, 이러한 이론을 토대로 면 35%와 Polyester 65%가 함유된 일반합성섬유를 증발매체로 사용하여 외부의 공기를 유입하여 저농도 방사성 액체폐기물을 직접 처리하는 연구를 수행하였다.

2. 이 론

2.1. 수직형 증발표면(합성섬유)에서의 증발이론

증발표면의 일부를 고려해볼 때, 이 부분에서의 단위면적 그리고 단위시간당의 증발량은 다음과 같은 식으로 표현된다⁽⁶⁾.

$$d_E = k \cdot (P_s - P_w) / H \cdot dt$$

d_E : 단위 면적당, 단위 시간당 증발량, P_s : 점 M에서의 포화증기압
 P_w : 공기의 수증기압, k : 상수, H : 대기압

2.3. 물질 전달에 의한 증발이론

증발현상에 관한 물질전달 이론은 prandtl과 Schmidt의 혼합길이와 Taylor의 연속혼합개념에 의한 두가지 과정으로 크게 나눌 수 있다^(7,8). 이 두방법에 관한 물리적 및 수학적 설명은 Anderson 과 Marciano 에 의하여 소개되었으며^(9, 10), 수증기 q 의 확산과정을 다음과 같이 일반식으로 표시할 수 있다.

$$\frac{q}{t} = \bar{U} \nabla Ke \nabla q$$

q : Specific humidity, Ke : Diffusion coeff of vapor
 \bar{U} : Mean wind velocity, ∇ : Laplace operator

2.4. 물질 전달에 의한 경험식

증발에 영향을 미치는 함수를 고려한 증발량은 다음과 같이 Dalton형으로 나타낼 수 있다.

$$E_h = f(v) (H_w - H_a)$$

3. 실험방법

실험은 저농도 방사성액체폐기물을 직접사용하였으며 실험장치로는 길이 5m, 폭 1.2m의 직사각형 형태인 증발천과 순환펌프, 액체필터를 설치하였으며 배출공기중 Cs,Co농도를 측정하기 위한 냉각장치 및 외부공기를 여과하기위한 공기필터와 온,습도측정기를 설치하였다. 실험변수로는 자연변수인 유입공기의 습도와 증발면적 및 증발천 사이의 간격을 고려한 공기유속에 따라 증발량을 측정하였으며 공학적변수인 공급액유량 및 공급액 온도변화 조건에서 증발율을 측정하였다. 최적의 증발량 및 제염계수를 도출하기 위하여 방사능 농도가 $10^{-4} \sim 10^{-7}$ $\mu\text{Ci/ml}$ 방사성폐액을 증발천에 완전히 흡수시킨 시스템이 정상상태에 도달하였을 때부터 일정시간 간격으로 유입 및 배출의 온,습도를 측정하였으며, 증발천 모듈 사이에서의 풍속을 측정하였다. 저장조에 설치된 수위기록계를 통해서 증발량 측정실험을 수행하였다. 또한 배출되는 공기의 일부를 포집하여 응축시켜 그 응축액을 MCA로 분석하여 제염계수 및 배출공기의 방사능농도를 측정하였다.

4. 결과 및 고찰

4.1 유입공기의 상대습도 변화에 따른 증발량

공기유속과 공급액 온도가 일정한 상태에서 상대습도가 40%에서 80%까지 증가함에 따라 증발량은 급격히 감소하며 상대습도가 80% 이상에서는 거의 증발이 일어나지 않았으며 따라서 유입공기의 상대습도를 낮출 경우 증발량을 증가시키는데 효과적임을 알 수 있다.

4.2 공기유속 변화에 따른 증발효과

유입공기의 습도가 낮을 수록, 공기의 유속이 높을수록 증발량이 비례적으로 증가하며 1.47 m/sec 일때 최대의 증발을 나타냈으며 풍속이 증가하면 증발량도 증가하나 풍속이 무한대로 증가할 경우 증발량은 오히려 감소하였다. 이러한 이유는 증발천이 서로 붙으므로써 증발 면적이 감소하는 결과로 증발량이 저하되었다.

4.3 공급액 유량에 따른 증발효과

유입공기의 상대습도가 57%인 조건하에서 공급액의 유량을 변화시키면서 증발량을 조사한 결과 공기속도가 1.47m/s 인 조건에서 폐액의 공급량이 4.6 $\ell/\text{hr.m}^2$ 일때 최대의 증발을 나타내며 3.4 $\ell/\text{hr.m}^2$ 이하에서는 증발량이 급격하게 감소하였다. 따라서 증발에 필요한 포화증기압을 기준으로 공급액을 적절하게 공급해 주어야한다.

4.4 시간대별에 따른 증발효과

24시간 공정을 가동하면서 각 시간대별에 따른 증발량 변화를 알아보기 위하여 대전지방 년도별 월평균 조건과 5월중 시간대별 자연증발시설의 온습도 변화량에 따른 증발량변화를 직접 방사성액체폐기물을 처리하면서 조사하였다. 인입공기의 습도 변화에 따라 증발량도 민감하게 변화함에 따라 일몰이후 야간에는 증발이 거의 일어나지 않았으며(상대습도 80%이상) 오전 10시이후 부터 증발이 되기 시작했으며 오후 1-4시까지가 최대증발이 일어났다.

4.5 제염계수 및 배기체의 방사능측정

본 연구의 실험을 통하여 처리된 방사능농도는 $2 \times 10^{-5} \mu\text{Ci/ml}$ 이며 제염계수(DF)가 $1.1 \times 10^3 \sim 5.1 \times 10^3$ 으로 높게 측정되었으며 배기체농도는 대기방출 허용농도 $1 \times 10^{-9} \mu\text{Ci/ml}$. air 기준으로 볼때 stack에서 $4.7 \times 10^{-13} \sim 4.7 \times 10^{-14} \mu\text{Ci/ml}$. air으로 나타나 배기체중 Cs과 Co가 공기중에 허용기준치 이하로 배출되어 안정함이 입증되었다.

5. 결 론

1. 증발효과는 유입공기의 습도가 낮을수록, 공기의 유속이 증가할수록, 공급액의 온도 및 유량이 증가할수록 증발량이 증가하는 것으로 나타났다.
2. 대기의 온도, 습도 및 풍속에 따른 실험 data를 통하여 달톤형 증발식으로부터 다음과 같은 실험식을 도출하였다.

$$E_h = (0.0168 + 0.0141 V) \Delta H$$

3. 기상조건과 증발처리용량을 고려한 적절한 조업조건으로서 유입공기의 습도는 70% 이하이며, 공급폐액의 유량은 3.4 l/hr.m^2 이상과 폐액온도는 10°C 이상이었 으며 공기유속은 $1.14 \sim 1.47 \text{ m/sec}$ 범위가 적정조업 범위에 해당되었다. 또한 공급유량이 4.6 l/hr.m^2 과 공기유속 1.47 m/sec 가 최대증발 조건으로 나타났다.
4. Stack을 통해서 나가는 배출공기의 비방사능을 측정한 결과 제염계수(DF)가 $1.1 \times 10^3 \sim 5.1 \times 10^3$ 으로 측정되었으며, 대기방출 농도가 $4.7 \times 10^{-13} \sim 4.7 \times 10^{-14} \mu\text{Ci/ml}$. air 로 공기중의 허용기준치 이하로 안정함이 입증되었다.

참 고 문 헌

1. K. BALU, S.C. BHATIA, Management of Radioactive Wastes, Bhabha Atomic Research Centre, Bombay (1979).
2. T. Nejat Veziroglu "Alternative Energy Sources VI" Vol 1. PP. 369
3. CENG, Technical Report, CENG (1964).
4. IAEA, Treatment of Low and Intermediated Level Radioactive Waste Concentrates, IAEA TR-No. 82, (1968).
5. T. Nejat Veziroglu "Alternative Energy Sources VI" Vol. 1 PP.369~401
6. H.L.Penman, "Natural Evaporation from open water", Proc. Roy., Soc., London, A, 1984.
7. Bird, Transport Phenomena, John Willey & sons Co. (1974).
8. Welty, "Fundamentals of Momentum, Heat and Mass Transfer", John Wiley and sons Co., PP.555-559, (1984).
9. E.R.Anderson and I.J.Marciano, "A Review of Evaporation Theory and Development of Instrumentation", U.S. Navy Elect. Lab. (1950).
10. G. Earl Harbeck, "A Practical Field Technique for Measuring Reservoir Evaporation Utilizing Mass-Transfer Theory", U.S. Geological Survey Pro. Paper, 272-e, (1962).

습식 제염장치의 성능시험

Performance Test of Wet Type Decontamination Device

이은표, 김은가, 민덕기, 전용범, 이형권, 서항석, 권형문, 홍권표
한국원자력연구소

요 약

방사성 물질 취급시설인 핫셀을 출입하거나 핫셀 내의 장비 반출 등으로 인하여 핫셀 뒤편에 위치한 서비스 구역은 오염이 발생할 수 있다. 오염이 발생된 서비스 구역을 법령이 정한 표면허용오염도 이하로 제염 관리하기 위해서는 많은 방사성폐기물이 발생할 뿐만 아니라 제염하기 위한 소요인력 및 시간 또한 많이 요구된다. 이러한 문제점을 해소하기 위한 습식 제염장치는 부착된 오염원을 바닥 면으로부터 분리시키는 브러시를 회전시키는 부분, 회전브러시에 제염액 또는 세제를 공급하는 부분, 바닥 면에서 분리된 오염원과 제염액 또는 세제를 흡입하는 부분 그리고 주행하는 부분으로 구성되며, 스테인리스 재질로 제작하여 내부식성 뿐만 아니라 장치 자체의 제염도 쉽게 제작하여 조사후시험시설의 서비스 구역에서 제염장치의 성능시험을 수행하였다.

Abstract

The intervention area located at rear hot cell can be contaminated by hot cell maintenance work. For effective decontamination of the intervention floor a wet type decontamination device was developed. The device was assembled with a brush rotating part, a washing liquid supplying part, an intake part for recovering contaminated liquid and a device moving cart part. The device was made of stainless steel for easy decontamination and corrosion resistance. The function test carried out at intervention area of the PIE facility showed good performance.

1. 서 론

한국원자력연구소의 조사후시험시설(PIEF)[1,2,3]은 상용 원자로 핵연료에 대한 조사후시험을 목적으로 3개의 풀과 4개의 중콘크리트 핫셀 및 2개의 납 셀을 가지고 있으며, 연계 시설로는 방사화학 실험시설 및 폐기물처리시설 등이 있다. 1987년 준공이후 현재까지 경수로 원자력 발전소의 사용후핵연료, 제어봉 및 열교환기 튜브에 대한 각종 비파괴시험 및 파괴시험이 수행되어 왔다. 풀은 사용후핵연료 운반용기로부터 사용후핵연료를 하역하기 위한 하역 풀, 사용후핵연료를 저장하기 위한 저장 풀(최대 15개의 PWR 핵연료 집합체 수용)이 있으며 사용후핵연료 집합체를 해체하고 수중에서 시험하기 위한 시험.해체 풀로 구성되어 있다. 중콘크리트 핫셀은 핵연료봉에 대한 외관검사, 와전류결함검사, 감마스케닝, 제원측정, 외면 산화층두께측정 그리고 X-선 촬영을 위한 비파괴시험 셀, 핵연료봉의 핵분열기체포집 및 절단을 위한 해체 셀, 핵연료시편을 저장하기 위한 저장 셀 및 핵연료시편에 대한 금속조직 시편준비를 위한 시편준비 셀로 구성되며, 납 셀은 방사선 차폐형 광학현미경의 금속조직시험 셀과 핵연료의 밀도측정 및 단면 감마스케닝을 수행할

수 있도록 건설되어 있다. 고방사능을 가진 조사 시편을 시험하기 위하여 핫셀 내에 많은 시험장비가 설치되어 있으며, 이러한 시험 장비들을 핫셀 내부에서 원격조종기로 일차 원격제염한 후 유지보수를 위해 핫셀 밖으로 취출하거나 또는 핫셀 내를 작업자가 출입할 수 있을 정도로 2차 제염을 한 후 작업자에 의해 핫셀 내에서 보수되기도 한다. 이러한 핫셀의 제염 및 기기 보수 시에 핫셀 뒤편에 위치한 서비스 구역의 오염확산 등이 일어날 수 있어 관련오염방지설비 및 제염실등을 제작 활용하고 있다. 종래에는 오염된 서비스 구역을 제염할 때 제염액 또는 세제를 묻힌 제염지로 바닥 면을 닦아내어 제염을 실시하였다. 이와 같은 방법으로 제염할 경우 다량의 폐기물이 발생될 뿐만 아니라 젖은 폐기물의 건조 그리고 많은 인력과 시간이 필요하였다. 효과적인 제염과 발생폐기물의 저감을 위하여, 또한 한사람의 작업자로서도 제염이 가능하도록 자동 습식형 제염장치를 설계 제작하였다.

2. 습식 제염장치의 설계요건

습식 제염장치는 넓은 바닥의 효율적 제염을 위해 넓은 브러시를 가져야 하며 습식으로 세척액을 사용하는 관계로 브러시에 세척액의 공급이 원활하여야 한다. 또한 이러한 오염된 세척액을 회수할 수 있는 회수장치가 있어야 하며, 한사람의 작업자에 의해 작업이 가능하게 장치의 움직임이 자동으로 운전조작 될 수 있어야 한다. 장치 자체의 부식을 방지하기 위하여 스테인리스강으로 제작하고 제염이 용이하도록 표면을 버핑가공하여야 한다.

3. 습식 제염장치의 구조 및 제작

3.1. 습식 제염장치의 구조 및 제작

오염된 서비스 구역을 제염하는 습식 제염장치는 그림 1과 같이 길이 1170mm, 폭 740mm 그리고 높이 1100mm의 크기를 가지고 있다.

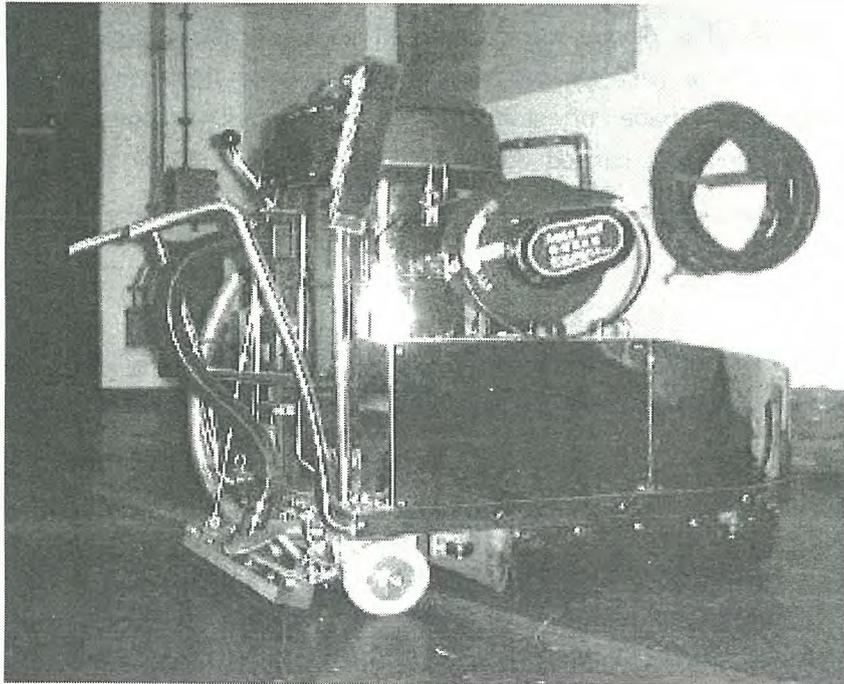


그림 1. 습식제염장치의 사진

3.1.1. 대차

대차는 스테인리스 사각 형강을 사용하여 벤딩과 용접을 하여 견고하게 제작하였으며 하부에는 2개의 구동바퀴와 1 개의 캐스터 바퀴가 부착되며 상부에는 브러시를 회전시키는 장치, 제염폐액을 흡입하는 장치, 바퀴 구동장치, 제염액 탱크 및 각종 부품들이 부착되어 있으며 3개의 아이볼트를 부착하여 크레인으로 위치를 이동할 수 있게 하였다.

3.1.2. 주행 장치

주행 장치는 구동모터와 클러치에 의하여 동력을 발생시키며 이에 연결된 2개의 구동바퀴와 1 개의 캐스터 바퀴로 구성되며 90W 기어드 구동 모터가 회전 시 전자 클러치가 작동하여 동력을 전달하며 정.역회전과 이동속도를 2m/min - 15m/min으로 가변 할 수 있다. 구동바퀴와 캐스터 바퀴는 제염폐액 또는 세제액으로 있는 바닥 면과의 마찰력을 증대시키기 위하여 우레탄 바퀴를 사용하였으며 오염 물질과 항상 접촉하고 있으므로 오염이 누적되어 제염이 불가능할 경우 교체가 용이하고 구입이 쉽도록 시제품을 적용하여 설계하였다.

3.1.3. 브러싱 장치

브러싱 장치는 안쪽방향으로 회전하는 회전방향이 반대인 2개의 1HP, 180rpm 구동모터에 의하여 구동되며 브러시는 오염발생시 교체가 용이한 구조로 하였으며 14인치의 시제품 박리용 야자 브러시를 사용하였다. 브러싱 장치의 상하구동은 핸들 아래쪽에 위치한 레버로 링크장치를 이용하여 작동되며 잠금장치가 부착되어 있으며 최대 작동거리는 70mm이다.

3.1.4. 진공흡입장치

진공흡입장치는 바닥 면으로부터 분리된 오염원을 내포하고 있는 제염폐액을 수거하는 약 70리터 용기와 진공을 발생시키는 1200W 용량의 건.습식 진공펌프 3 대로 구성되어 있다. 진공펌프의 진공도는 2600W/L, 풍량은 540m³/h이며 바닥 면에 위치한 흡입부에서 제염폐액을 흡입하며 바닥 면의 상태에 따라 진공펌프의 가동을 2대 또는 3대로 가변 할 수 있다. 흡입부 구동은 레버기구에 의하여 상하로 구동할 수 있고 잠금장치가 부착되어 있다. 제염폐액 수거용기 하단에는 배수 밸브가 장착되어 있어 작업이 완료되었을 때 제염폐액을 밖으로 배출한다.

3.1.5. 제염액 탱크

제염액 또는 세제액 탱크는 제염폐액 수거용기 좌우에 위치하고 있으며 용량은 20리터로서 자연압에 의하여 브러시 상단 면에 공급되며 이때의 공급유량은 유량조절밸브에 의하여 조절할 수 있으며 잔여 제염액은 배수밸브를 통하여 밖으로 배출된다.

3.1.6. 전원 및 제어판

전원은 220V 삼상으로 서비스 구역을 감당하기 위한 30m 정도의 전선을 구비하고 있으며 제어판에는 장치의 전원 스위치, 구동 모터 on-off 스위치, 구동모터의 정.역회전 스위치, 전자클러치 on-off 스위치, 진공펌프 on-off 스위치가 부착되어 있다.

4. 장치의 성능시험 결과 토의

제작된 장치를 사용하여 비방사성 물질을 대상으로 성능시험을 수행한 결과 초기 설계조건을 잘 반영하고 있음을 확인하였으며, 조사후시험시설의 핫셀 유지보수관리 구역에서 대한 직접적인 제염을 실시하였다. 이어서 바닥의 초기 오염도가 낮아 제염 후의 제염정도 차이를 정확히 파악할 수 있는 자료를 얻을 수는 없었으나 바닥에 묻어있던 페인트의 흔적들이 제염 후 깨끗이 없어진 것으로 판단할 때 바닥의 습식제염의 효과는 충분할 것으로 판단되었다. 실험을 통하여 파악된 문제점은 세제액을 공급하는 관로 상에 1개의 유량조절 밸브가 부착되어 있어 장비의 수평상태가 이루어지지 않을 경우 2개의 브러시에 똑같은 일정량의 세제액 공급이 이루어지지 않고 한쪽으로 많은 양의 세제액이 배출되므로 각각별도 관로와 밸브를 부착하여 세제유량을 조절하고 세제액의 최적 낙하지점을 선정할 필요가 있다는 것과, 바닥면의 오염된 제염폐액을 모두 흡입하는 동시에 제염폐액 수집용기로부터 배출되는 배기에 수분이 배출되지 않도록 흡입부와 바닥 면과의 틈새 조절과 풍량을 조절하여야 한다는 점, 또 제염폐액 수집용기에서 배출될 수 있는 습한 배기로 인

하여 건.습식 펌프의 전원 콘넥터에 누전의 우려가 발생할 수 있으므로 배출공기의 영향이 미치지 않는 위치로 변경할 점 등이다. 앞으로 많은 성능시험을 수행하고 보완하여 장비의 활용도를 높일 것이다.

5. 결 론

방사성 물질의 취급시설에서 오염된 바닥을 습식으로 제염할 수 있는 장치를 설계 제작하여, 일차적으로 비방사 성능시험 및 오염이 발생하지 않은 바닥에 대한 성능시험을 수행하였다. 시험 결과 장치는 초기 설계요구조건의 대부분을 만족하는 것으로 나타났으나, 세제액 관로 재구성, 바닥 면과 흡입부와의 틈새, 풍량 및 전선 콘넥터 위치 등을 개선하여 오염이 발생된 서비스 구역을 법령이 정한 표면허용오염도 이하로 제염 관리하는데 활용할 예정이다.

참 고 문 헌

- [1] 민덕기 외, “조사후시험시설운영”, KAERI/MR-341/99.
- [2] 민덕기 외, “조사후시험시설운영”, KAERI/MR-348/2000.
- [3] 전용범 외, “조사후시험시설운영”, KAERI/MR-388/2002.

핫셀 방사성고체폐기물 감용

Volume Reduction of the Radioactive Solid Wastes in Hot Cell

양송열, 서항석, 이형권, 이은표, 권형문,
민덕기, 김길수, 조일제, 전용범, 홍권표
한국원자력연구소

요 약

국내 원자력 산업의 급속한 성장과 더불어 하나로 시설의 본격적인 가동 및 핵연료주기시험과 관련한 연구의 증가로 인하여 방사성폐기물의 발생량 및 누적량이 지속적으로 증가될 전망이다. 이에 따라 방사성폐기물의 안전성 확보 및 감용 처리를 위한 노력이 더욱 강조되고 있다. 조사후 시험시설에서는 원자력발전소에서 발생하는 사용후핵연료봉의 결함원인 규명과 건전성 평가를 위한 조사후시험을 수행하고 있으며, 본 연구에서는 조사후시험시설에 설치되어 있는 방사성고체폐기물 처리설비를 활용하여 조사후시험에서 발생하는 폐기물의 압축, 파쇄, 절단기술 및 경험사례에 대하여 기술하였다. 고준위 방사성고체폐기물 처리는 특수 제작하여 핫셀에 설치되어 있는 100톤 압축기로 방사성고체폐기물을 압축하여 폐기물의 양을 1/12정도로 감용 처리 하였으며, 중·저준위 방사성고체폐기물은 인터벤션에 설치된 60톤 압축기를 사용하여 가연성폐기물을 1/8정도로 압축 감용 처리하였다. 폐플라스틱 통은 파쇄기를 사용하여 절단처리 함으로써 1/5, 폐 필터는 1/6의 감용 비를 얻었으며, 비 가연성물질인 금속류 물질 또한 절단 처리하여 드럼의 양을 줄일 수 있었다.

Abstract

The amount of radioactive waste is expected to be increased continuously because of the rapid growth of the domestic nuclear industry, full power operation of the HANARO reactor and the increased research activities of the nuclear fuel cycle. Accordingly the efforts are focused to achieve the handling of radioactive waste in safe and reduce the volume of radioactive waste. The PIEF is carrying out the PIE (post irradiation examination) of spent fuel rods related to the identification of cause defect and evaluation of integration safety. This study describes the technologies and experiences of compaction, shredding and cutting of the solid radioactive waste used in the PIE. The quantity of the high level waste was reduced by 1/12 using the 100-ton compressor installed in hot-cell. Also middle and low level waste was reduced by 1/8 using the 60-ton compressor installed in intervention area. Plastic drums were shredded by crusher to be compacted in the ratio of 1/5, used filters in the ratio of 1/6 and the number of drum is also reduced by cutting procedure for the non-volatile materials such as metal.

1. 서 론

핵연료주기시설의 다변화와 연구시설의 증대에 따른 방사성폐기물의 발생량 및 누적량이 급격

히 증대될 전망으로 이의 안전성 확보 및 방사성폐기물 감용 처리를 위한 노력은 더욱 강조되어 질 것이다. 특히 방사성고체폐기물은 액체나 기체 폐기물과는 달리 상당히 오랜 기간 동안 저장을 해야 하기 때문에 발생량의 감소와 감용 처리에 대해서 지속적인 연구와 기술 개발이 절실히 요구되고 있다. 물론 국내외 방사성폐기물 관련 실무 및 연구기관 등의 연구발표 내지는 경험개선 사례 등이 활발히 이루어지고 있으며, 많은 기술개발을 통해 보다 좋은 감용 율을 갖는 설비들도 개발 운영되고 있다.

한국원자력연구소의 조사후시험시설(PIEF)[1,2,3]은 상용 원자로 핵연료에 대한 조사후시험을 목적으로 건설되었으며, 1987년 준공이후 현재까지 약 10여개의 집합체에 대한 조사후시험이 수행된 바 있다. 조사후시험시설은 3개의 풀과 4개의 중 콘크리트 핫셀 및 2개의 납셀을 가지고 있으며, 연계시설로는 방사화학 실험실 및 폐기물처리시설 등이 있다. 사용후핵연료를 취급하는 조사후시험시설은 방사성폐기물의 발생량이 상당히 많으며 핵연료를 절단하고 실험하는 핫셀에서는 고준위의 고체폐기물이 많이 발생한다. 핫셀에 설치되어 있는 고준위 고체폐기물 압축장치는 핫셀 크기가 협소하기 때문에 제한된 공간 내에서 압축해야하므로 50ℓ 원형 폐기물통을 제작하여 특수 제작된 핫셀 고준위폐기물 압축장치로 압축하여 1/12정도로 감용 처리 하였으며, 핫셀 지붕에 설치된 Solid Wastes Cake 설비를 이용하여 폐기물 저장고로 이송하였다. 인터벤션에 설치된 중·저준위 고체폐기물 압축장치는 200ℓ 드럼에 가연성폐기물을 가득 채우고 압축하여 1/8정도로 압축하였으며, 폐플라스틱 통은 파쇄기를 사용하여 절단처리 함으로서 1/5의 감용 효과를 얻었다. 폐 필터는 압축하여 1/6의 감용 비를 얻었고, 비 가연성물질인 금속류 등은 절단 처리하여 드럼통의 양을 줄일 수 있었다.

2. 방사성고체폐기물 처리방법

가. 처리방법

방사성폐기물의 처리목적은 폐기물의 발생량을 감소시키고, 최종생성물을 화학적, 방사선적으로 안정한 형태로 전환시켜 추후에 폐기물의 수송과 최종처분에 적합하도록 하는데 있다. 이러한 폐기물의 처리는 폐기물의 상, 성상, 물리 화학적 특성, 방사능준위 등에 따라 적절한 방법을 사용하게 된다[4].

1) 압축 감용

압축 감용 법은 폐기물을 기계적으로 짓눌러 찌그러뜨려 용적을 줄인다. 이것은 폐기물 자체의 용적을 작게 함으로써 용기 하나에 들어가는 폐기물의 양을 늘리고, 그 결과로 전체 폐기물의 용적을 낮게 억제하는 방법이다. 압축처리는 소각처리나 기타 처리가 적합하지 않은 경우에 효과적이며 현재 널리 사용되고 있다. 핵주기 시험시설에서 발생하는 중·저준위 고체폐기물의 70~80%가 압축처리가 가능하나 폐기물의 조직이 너무 치밀하고 단단하여 부피감소를 무시할 수 있거나 극히 작은 것 또는 압축기 및 압축용기를 손상시킬 수 있는 물질, 인화성 및 폭발성 물질, 액체를 함유하고 있는 물질은 압축처리 할 수 없다. 압축처리에 사용되는 압력은 45톤에서 1,500톤으로 다양하며, 사용 압축력이 100톤 미만일 때는 저압압축, 그 이상일 때는 고압압축이라 한다. 압축처리 할 때 얻을 수 있는 감용 비는 3~10정도이다 [5]. 국내 원자력발전소에서는 기존의 10톤 압축기로 1차 압축하여 생성된 폐기물드럼을 2,000톤 용량의 초고압압축기로 재 압축하여 잡 고체폐기물의 최종 발생량을 감소시키고 있다.

2) 파쇄처리

가연성 잡고체중에는 폴리에틸렌 통이나 호스, 튜브 같은 내용물이 없는 상태에서 공간만 차지하는 폐기물이 있다. 또한 폴리에틸렌 통은 압축처리 할 경우 스프링 백이 커서 실제로 감용 율이 크지 않다. 따라서 이들 빈 용기를 포장용기 내에 그대로 넣으면 부피만 차지함으로 몇 개 집어넣지 못한다. 이와 같이 연질의 종이류나 플라스틱류의 폐기물은 용기에 수집하기 전, 또한 소각처

리 하기 전에 파쇄기에 넣고 잘게 썰어 부피를 축소하는 방법을 사용하는 것이 효율적이다.

3) 소각처리

원자력시설에서 발생하는 방사성고체폐기물중의 상당부분이 가연성 물질로 구성되어 있어 이를 소각처리 할 경우 감용 비는 약 40~100 정도이다. 소각처리는 이와 같이 폐기물의 감용 효과가 클 뿐 아니라 폐기물의 불활성 또는 반응성이 작은 소각재의 형태로 전환시켜, 추후 수송 및 저장시의 문제 발생을 감소시켜 주므로 미국을 비롯한 원자력 선진국에서 과거 수십 년 이상 시행되어 왔다[6]. 소각공정은 원리는 간단하나 폐기물의 불완전연소, 배기 체 처리계통의 과도한 부식, 필터 및 기타 배기 체 장치에 타르 및 매연의 오염, 배 기체 처리효율 저하, 방사선 환경 하에서의 소각기 조작에 따른 기계적 문제 등이 제기되고 있어 이를 해결하기 위한 연구개발이 진행 중에 있다. 도시 폐기물이나 산업폐기물의 처리에 이용되는 것과 같이 방사성폐기물의 소각처리 목적은 가연성 폐기물의 감용, 무기안정화 및 유기물의 회수에 있으며 특히 감용 효과가 크다. 소각처리는 발생량이 많은 가연성 잡 고체의 대량처리에 적합할 뿐 아니라 달리 적당한 처리방법이 없는 동물사체나 오염의 처리방법으로 좋다. 또 소각재는 무균이고 불연성이며 분해가 어렵고 안정한 고화 체를 만들기 쉬운 점 등 폐기물 처분 상 매우 좋은 장점을 갖고 있다.

4) 절단

절단처리방법에는 전극과 피절단물 사이에 플라즈마 아크를 발생시켜, 동작가스를 전리시킴으로써 고온상태를 얻어 피절단물을 국부적으로 가열 용융해서 절단하는 플라즈마 아크 절단법과 고속회전(300~1,200rpm)하는 블레이드와 피절단물 사이에 고전류 아크를 발생시키고, 피절단물을 국부적으로 용융하여 블레이드의 회전으로 용융물을 제거 절단하는 아크톱 절단법, 회전하는 원판상, 또는 주행하는 밴드톱형 전극과 피절단물 사이에 직류전압을 걸어서 발생하는 아크열을 이용해 용융 절단하는 방전가공 절단법, 소모전극인 와이어를 보내면서, 절단물과의 사이에서 아크를 발생시켜서 노즐에서 고압 물제트를 분사하여 용융금속을 불어 날리면서 절단하는 용극식 물제트 절단법 등의 전기 에너지 절단과 가스화염(산소, 아세틸렌염 등)으로 절단부를 예열시켜 점화구 중심에서 산소를 분사하여 철을 산화 연소시키면서 절단하는 가스절단, 원반형 카터날을 피절단부에 대고 날끝이 피절단부를 파고 든 상태에서 이동시킴으로써 절단하는 물리적 절단, CO₂ 가스등의 레이저광선을 발생물질인 구성 원자를 여기 시켜서 발생한 레이저광을 렌즈로 집속시켜 에너지밀도가 높은 열원으로 대상물을 절단하는 레이저 절단법이 있다.

5) 용융

프레스를 사용하여 기계적으로 압축 감용 하는 방법에는 한계가 있기 때문에 기계적이 아니라 열적으로 감용을 꾀하는 용융처리 라고 하는 방법이 있다. 이것은 기계로 눌러 찌그러뜨린다는 미적지근한 방법이 아니라, 전기로 에서 단숨에 녹여서 금속덩어리로 만드는 것으로 방사능 준위가 낮은 금속폐기물을 제염, 용융(smelting) 처리한 후 방사능을 측정하여 무 구속한계의 이하임을 확인하여 재사용하는 방법이다[7]. 용융처리에서는 폐기물 중의 일부 방사성폐기물을 제거할 수 있는 장점도 있다. 이것은 슬래그 제염이라고 하는 것으로 폐기물을 적당한 용융온도로 하여, 그때 용점이 낮은 불순물을 슬래그로서 제거하고 비등점이 낮은 불순물을 기화시켜서 금속 덩어리 밖으로 내보낸다는 것이다. 그 결과 용융 처리된 금속의 방사능 농도를 그만큼 줄일 수 있는 것으로 기대된다. 또한 이상의 장점 이외에 잘 제거되지 않았던 Co-60 등 방사성물질에 대해서는 금속덩어리 중에서 균일하게 혼합 분포시키면 내부에 분포된 방사성물질로부터의 방사선이 금속자체의 차폐효과에 의해 표면에 이르기까지 자연히 약화되는 효과(소위 자기차폐 효과)가 기대된다. 이와 같이 용융처리는 감용 효과뿐만 아니라 폐기물의 방사능농도 그리고 표면의 방사선강도를 내리는 효과도 기대할 수 있어 일석이조 이상의 일을 하는 폐기물처리기술로서 유망 시 되고 있다.

6) 고화처리

가) 시멘트 고화 (Cementation)

시멘트 고화법은 중, 저준위 방사성폐기물의 고화방법으로 가장 많이 사용[8]되고 있으며 주로 고체를 많이 함유하고 있는 슬러지, 농축폐액, 조각재, 이온교환수지 등을 처리하는데 적합하다. 이때 사용되는 시멘트는 ASTM type I 과 ASTM type II이며 시멘트에 대한 폐기물의 중량 비는 20~30% 정도이다. 시멘트 고화 시 방사성 핵종이 Sr, Pu, Am인 경우에는 핵종이 시멘트 내에 잘 결합되어 있기 때문에 좋으나 Cs, Ru인 경우에는 핵종의 침출율이 상당히 높아 이에 대한 대책이 필요하다. 시멘트와 폐기물의 혼합방법으로는 in-drum 혼합방식과 in-line 혼합방식이 있다.

나) 아스팔트 고화 (Bituminization)

아스팔트 고화공정은 폐기물의 고화 매체로서 아스팔트를 사용하는 공정으로서 100℃ 이상의 아스팔트와 방사성폐기물을 혼합시켜 고화시키며, 이때 폐기물 내에 함유된 수분의 99.5% 이상이 증발되고 나머지 폐기물과 아스팔트가 저장용기에 담겨져서 냉각된다. 최종 생성물의 조성은 아스팔트 60%, 폐기물 40% 정도이다. 최종 고화 체의 표면 선량율은 시멘트 고화 체 보다 높으나 시멘트 고화 체에 비해 강도가 낮으며, 물과 접촉 시 팽윤현상을 나타내는 점이 단점으로 지적되고 있다. 현재 사용되고 있는 아스팔트 고화공정 중 대표적인 것은 회 분석공정, extruder공정 및 박막증발공정이 있다.

다) 폴리머 고화 (Polymerization)

이공정은 최근에 개발된 고화공정으로서, 고화매체로 폴리머를 사용한다. 이때 사용되는 폴리머는 polyester/epoxy, urea formaldehyde, polyethylene, styrene-dephen benzene 등 여러 가지가 있으며 사용 폴리머에 따라 혹은 60℃에서 서서히 monomer의 중합반응이 일어난다.

라) 유리화 (Vitrification)

유리화공정은 사용후핵연료의 재처리과정에서 발생된 고준위폐액을 고화하기 위한 공정으로 프랑스, 영국, 일본 및 미국에서 개발 중 또는 상용화하고 있다. 일반적으로 고준위폐액의 고화처리 공정은 증발, 가소 또는 탈질산 및 유리화의 3단계로 나누어 생각할 수 있다. 제1~2단계에서 얻어지는 고화 체는 (calcine)이라고 하는데 이 가소반응은 500~800℃에서 종료된다. 제3단계에서는 제2단계의 탈 질산 공정에서 얻어진 분말상의 가소물 첨가제와 혼합하여 900~1,000℃에서 유리 (주로 borosilicate glass)와 함께 용융시켜 고화 체를 제조하는 공정으로 유리화를 위한 첨가제는 폐기물의 조성과 공정에 따라 선택되며 silicon, boron, titanium 등이 사용된다.

7) 제염 재활용

오염된 기기나 장비의 제염은 앞에서 언급한 절단, 조각, 압축 등과 같은 감용 처리와는 다른 방사성폐기물 저감뿐 만 아니라 자원의 재이용을 목적으로 함과 동시에 폐기물의 운반이나 보관 관리 등 취급을 용이하게 하는 것을 목적으로 하는 것이다.

가) 물리적 방법

회전브러시로 표면 오염을 씻어내는 브러시세척과 고압수를 노즐로 분사하여 표면의 오염물을 박리, 제거하는 물 제트, 초음파에 의하여 발생한 국부적인 충격력에 의하여 오염을 박리, 제거하는 초음파 세정, 특수한 페인트를 오염 면에 바르고 그 후 건조 고화된 페인트를 오염물질과 함께 벗겨내는 도막박리 제염, 탱크 안에 제염대상물과 연마제를 넣고 진동을 가함으로서 오염을 연마 제거하는 진동 제염이 있다.

나) 화학적 방법

전해액 중에서 제염대상물에 전류를 흘리고 표면의 얇은 층을 전기화학적으로 용해함으로서 오염을 제거하는 전해연마제염과 화학 제염 액에 제염대상물을 침지하여 화학반응에 의해 용해시켜 오염을 제거하는 침지화학 제염방법이 있다. 방사성폐기물처리시설에는 화학 침 수조, 분사연마기, 초음파연마기 등의 제염설비가 구비되어 있다.

3. 방사성고체폐기물처리

1). 고 준위 방사성고체폐기물 압축 감용

사용후핵연료를 취급하는 조사후시험시설은 핵연료봉을 절단하여 피복관 시험과 핵연료 조직시험을 수행하기 위하여, 핵연료를 그라인딩(grinding) 및 폴리싱(polishing) 하기 때문에 고 준위의 방사성고체폐기물을 발생한다. FIG. 1은 핫셀 고 준위 방사성고체폐기물 압축장치를 나타낸 것이다. 10톤 에어실린더를 작동하여 폐기물 압축장치 뚜껑을 개방하고 핫셀 Roof Door를 개방한다. 빈 폐기물 용기를 Solid Wastes Cake에 삽입하고, 루프 도어 위에 맞춘 후 설치된 크레인을 이용하여 특수 제작한 50ℓ 원형 방사성고체폐기물통을 핫셀 압축장치 위에 장착한다. 원격조종기를 사용하여 고준위 방사성고체폐기물(폴리싱 디스크, 플라스틱 용기, 제염지, 핫셀 고 준위필터, 휴지, 폐비닐, 기타 오염물질 등)을 용기에 가득 채운다. 그런 다음 100톤 에어실린더를 작동하여 폐기물을 압축하였으며, 50ℓ 용기 14개 분량을 압축 처리하여 1개의 용기에 충전 하였으며, 핫셀 고준위 원형필터는 1개의 용기에 2개 밖에 넣지를 못하였으나, 압축하여 10개를 고준위 폐필터를 충전할 수 있었다. 따라서 핫셀 폐기물의 감용 비는 1/12정도였다.

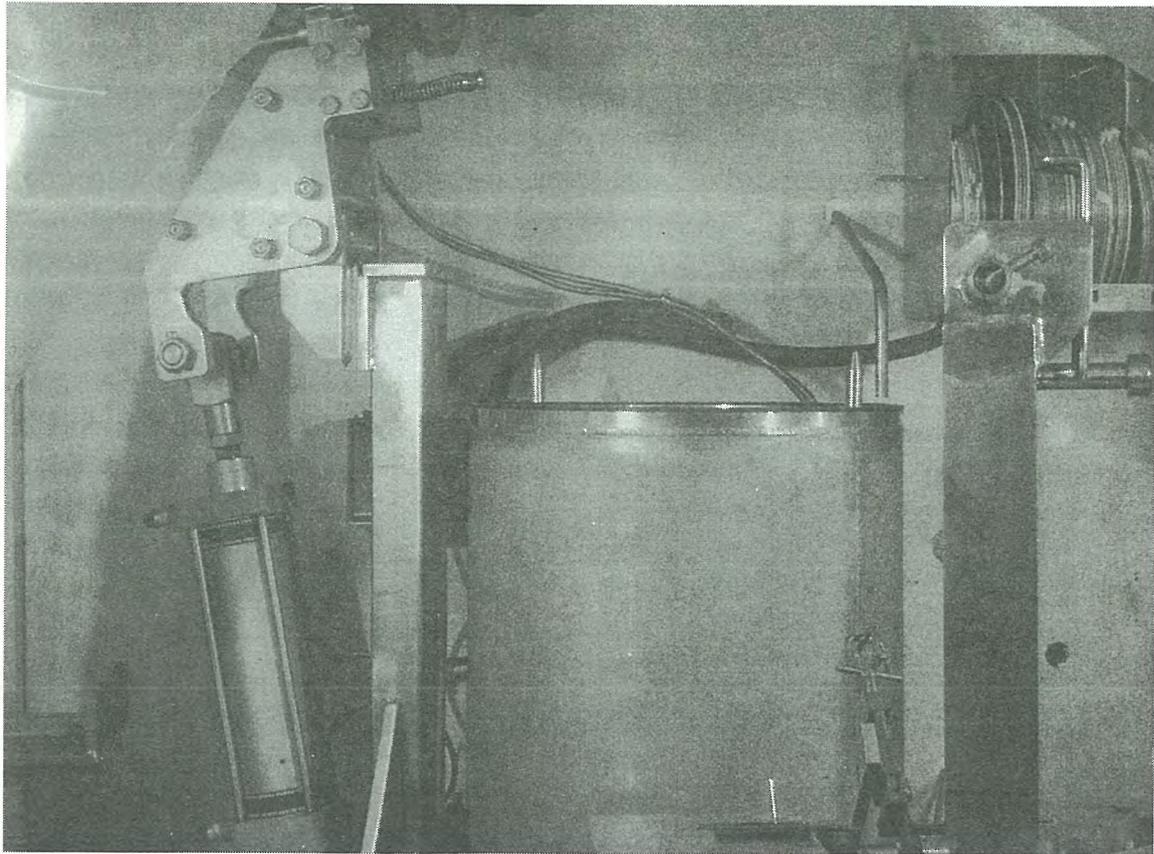


FIG. 1. HOT CELL 고준위 방사성고체폐기물 압축장치

2). 중·저준위 고체폐기물의 압축 감용

조사후시험시설에서 발생하는 고체폐기물은 다양하다. 가연성폐기물(타이 백, 장갑, 덮신, 비닐, 마스크, 작업복, 고무신, 작업화, 가운, 방독마스크, 플라스틱류, 전선, 호스 등)과 비가연성폐기물(금속류, 폐 필터 등)을 분류하여 200ℓ 드럼통에 비닐봉지에 담아 가득 채운 다음 60톤 압축기를 사용하여 폐기물을 압축하여 감용 처리한다. FIG. 2는 중·저준위 방사성폐기물 압축장치를 나타낸 것이다. 글로브 박스 문을 개방한 다음 압축기 뚜껑을 10톤 에어실린더를 작동하여 위로 올린 상태에서 200ℓ 드럼을 삽입하고, 방사성고체폐기물을 가연성, 비가연성으로 분류하여 비닐에 담고 표찰을 붙인다. 그런 다음 오염 확산을 방지하기 위해 환기설비가 작동되는 장치의 내부 및 외부

문인 글로브 박스 문을 닫고 뚜껑을 내린다. 60톤 에어실린더가 장착된 압축기를 작동하여 폐기물을 감용 처리하는 구조로 되어 있다. 고체폐기물 처리설비를 활용하여 처리한 결과는 60톤 압축기로 200ℓ 드럼 가연성 폐기물 730개 분량을 압축하여 200ℓ 드럼 92개에 포장하였다. 압축결과로부터 최대압축효과를 거두기 위해서는 100bar의 압축력이 적당하였으며 가연성고체폐기물의 감용 비는 1/8이었다. 금속류 등은 절단하여 드럼통의 양을 현저히 줄였다.

3). 파쇄

방사성액체폐기물을 수집하였던 오염된 폴리에틸렌 통 및 플라스틱 통, 오염된 호스 등을 부피 감용하기 위하여 절단기를 이용하여 절단처리 하였다. 절단처리 후 발생된 폐기물통 조각은 200ℓ 드럼에 수집하였으며 1드럼에 약 20개에서 25개의 폐기물통을 파쇄 처리하여 수집할 수 있었다. 본 파쇄처리를 통해 절단처리 하지 않고 드럼에 저장할 경우 1드럼에 4개의 폐기물통을 담을 수 있으나, 압축처리 할 경우는 약 7~8개의 폐기물통이 충전 되는 것으로 보아 이와 같이 절단처리에 의한 감용 효과는 뛰어난 것으로 생각된다. 한편 파쇄기 칼날의 두께가 30mm로 비교적 두꺼워 잘게 썰어지지 못하며 피 절단물의 크기가 제한되는 단점이 있어 너무 얇은 경우는 절단효과가 떨어질 것으로 생각된다.

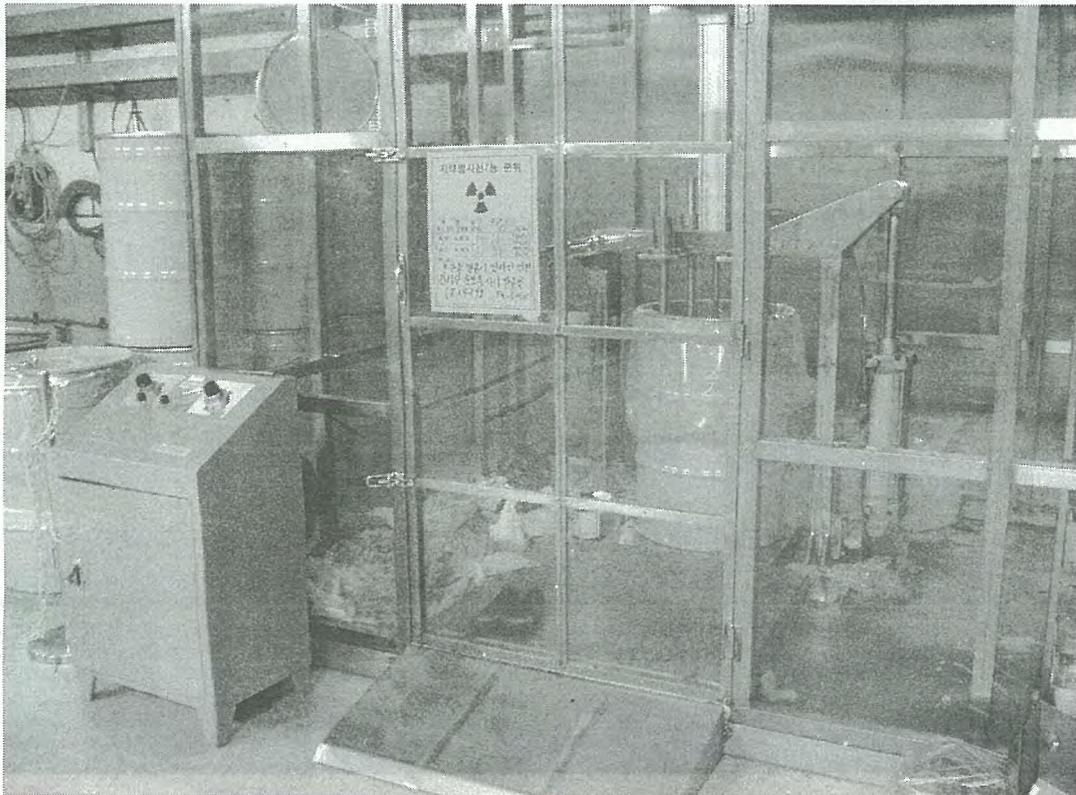


FIG. 2. 중, 저준위 방사성고체폐기물 압축장치

4). 폐 필터 압축처리

직육면체 형상의 폐 HEPA 필터(L610mm x W610mm x H292mm)를 전 처리장치를 사용해서 시험 처리한 결과, 500(+0, -20)mm Dia. x H300(+0, -8)mm의 원추형상으로 양호하게 성형 압축되었다. 폐 필터 전 처리장치에서 원형으로 1차 축소된 필터는 200ℓ 드럼 내에 수집이 가능하게 되었다. 드럼 내에 수집된 폐 필터는 60톤 압축기로 보내져 폐 드럼 방법과 같은 방법으로 압축 감용 한다. 이와 같이 폐 필터를 1차 전 처리한 후 2차 압축 감용 하였을 때 폐 필터는 200ℓ 드럼 내에 모두 6개를 수집할 수 있었다. 따라서 폐 필터를 처리하기 전에 1개를 넣을 수 있는 것과 비교하였을 때 감용 비는 1/6정도이다.

5). 비 가연성 폐기물의 절단

금속류 등의 고체 폐기물을 폐기물통에 수집하기 위하여 후드가 설치된 글로브 박스에서 절단하여 수집을 용이하게 하였으며, 드럼통의 개수를 줄였다.

6). 파쇄처리

방사성액체폐기물을 수집하였던 오염된 폐기물통을 부피감용하기 위하여 절단기를 이용하여 절단처리 하였다. 절단처리 후 발생된 폐기물통조각은 200ℓ 드럼에 수집하였으며 1드럼에 약20개에서 25개의 폐기물통을 파쇄 처리하여 수집할 수 있었다. 본 파쇄처리를 통해 절단처리하지 않고 드럼에 저장할 경우 1드럼에 4개의 폐기물통이 충전 되나 압축처리 할 경우는 약 7~8개의 폐기물통이 충전 되는 것으로 보아 이와 같이 절단처리에 의한 감용 효과는 뛰어난 것으로 생각된다. 압축대상 폐기물통은 200ℓ 드럼 기준으로 2,786개이었으며 절단처리 후 발생된 폐기물은 200ℓ 드럼 139개에 수집, 포장하여 가연성폐기물로 저장관리 하였다. 따라서 당초 200ℓ 드럼통 4개를 포장했을 때와 비교하였을 때의 감용 비는 1/5이었다.

7). 공 드럼 제염 재활용

방사능에 의한 오염정도가 미미하거나 고가의 장비인 경우에는 폐기하지 않고 재사용 또는 재활용하여야 한다. 최근에 방사성폐기물의 발생량을 줄이는 방안으로 제염의 필요성이 대두되고 있으며 가까운 장래에 처분장의 건설과 폐기물의 효과적인 감용 처리가 수행되지 않은 한 적극적인 제염을 통하여 폐기물의 발생량을 최소화할 수 있는 기술축적이 선행되어야 한다. 제염기술은 각 분야의 모든 기술이 요구되는 공학적 기술 분야로서 최근에 원자력산업에서 급속하게 성장하고 있는 기술이다. 이 기술은 인체피폭 저감과 방사성폐기물 처리비용 절감의 대안으로서 현재까지 원자력 선진국가에서 많은 연구개발이 진행되어 개발된 기술을 상용화하여 이용하고 있다.

4. 결과 및 고찰

1. 고 준위 방사선고체폐기물의 감용을 위하여 핫셀에 설치된 100톤 압축기를 사용하여 1/12정도로 고 준위폐기물의 양을 줄일 수 있었다.
2. 중·저준위 방사성폐기물을 60톤 압축기로 압축하여 가연성폐기물을 1/8정도로 감용 처리하였다.
3. 방사성액체폐기물을 수집하였던 오염된 폴리에틸렌 통 및 플라스틱 통, 오염된 호스 등을 부피 감용하기 위하여 절단기를 이용하여 절단처리 하였으며, 1/5 정도로 감용 처리하였다.
4. 드럼 내에 수집된 폐 필터는 60톤 압축기로 압축처리 하여 1/6정도로 줄였다.
5. 금속류 등의 고체 폐기물을 폐기물통에 수집하기 위하여 후드가 설치된 글로브 박스에서 절단하여 수집을 용이하게 하였으며, 드럼통의 개수를 줄일 수 있었다.
6. 오염된 드럼통은 제염해서 재활용하였으며, 고가의 장비는 제염하여 재활용하였다. 활용할 수 없는 방사선 준위가 높은 금속류의 고체폐기물은 제염하여 저준위고체폐기물로 처리하였다.

5. 참고문헌

1. 민덕기 외, “조사후시험시설운영”, KAERI/MR-341/99 (1999).
2. 민덕기 외, “조사후시험시설운영”, KAERI/MR-348/2000 (2000).
3. 민덕기 외, “조사후시험시설운영”, KAERI/MR-369/2001 (2001).
4. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, “Treatment of Low-and Intermediate Level Solid Radioactive Wastes”, Technical Report Series No. 236, IAEA, Vienna (1984).
5. Trigils G., “Volume Reduction in LLW Waste Management” NUREG/CR/2206, USNRc (1981).
6. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, “Treatment of Low-and Intermediate Level Solid Radioactive Wastes”, Technical Report Series No. 223, IAEA, Vienna (1983).
7. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, “Factors Rlevant to the Rccycling or Reuse of Components Arising from the Decommissioning and Refurbishment of Nuclear Facilities”, Technical Report Series No. 293, IAEA, Vicnna (1988).
8. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, “Conditioning of Low-and Intermediate Level Solid Radioactive Wastes”, Technical Report Series No. 222, IAEA, Vienna (1983).

삼중수소취급계통의 설계(II):
주입계통, 재생계통

Design of Tritium Handling System(II):
Injection System, Regeneration System

김광신, 김경숙, 정은수, 손순환, 김위수
한국전력공사 전력연구원

요 약

지난 논문¹⁾에 이어서 삼중수소 취급시설의 일부인 삼중수소 주입계통과 재생계통을 소개하였다. 두 계통은 모두 삼중수소의 유출이 가능한 계통들로서 GB 안에 설치되어야 하는 계통들이다. 삼중수소 주입계통은 삼중수소 취급시설을 사용하여 목적하는 제품을 생산하게 되는 주 계통으로서 삼중수소의 관리를 위하여 정확히 삼중수소의 주입/분배량을 계량할 수 있어야하고, 주입 후 계통 내 잔여 삼중수소를 최대한 회수할 수 있도록 하여 방사성 물질의 환경방출을 최소화 할 뿐만 아니라 귀한 자원의 손실을 최소화하도록 설계되었다. MS, Ni catalyst bed, metal getter 등 재생이 필요한 TRS 내부의 장치들은 별도의 재생계통을 사용하여 재생한다. 다른 장치들의 재생은 장치를 가열하면서 적절한 purge gas를 흘려주는 비교적 간단한 방법으로 재생이 가능하나 삼중수소를 흡착한 metal getter의 재생은 삼중수소를 회수해야 하기 때문에 복잡한 공정을 거쳐야 한다.

Abstract

In succession to the previous paper¹⁾, the tritium injection system and the regeneration system of the tritium handling system are presented. Both systems should be placed inside glove boxes since there can be potential leakage of tritium from these systems. The tritium injection system should be capable of measuring the exact amount of the injected tritium to keep track of the tritium inventory. The tritium injection system is designed to recover the remaining tritium from the system after injection for the minimization of tritium release to the environment as well as for the recovery of precious resource. TRS equipment such as MS, Ni catalyst bed, and metal getter are regenerated with a standalone regeneration system. Unlike other equipments which can be regenerated by heating and purging with appropriate gas, regeneration of the metal getter used to recover tritium is somewhat complicated.

1. 서 론

삼중수소는 수소동위원소로서 수소 및 중수소와 양성자의 수는 같으나 중성자의 수가 다르므로

화학적 특성은 수소와 유사하나 물리적인 특성이 다르게 나타나며, 삼중수소만이 방사성붕괴를 하는 방사성 동위원소로 알려져 있다. 삼중수소는 매우 낮은 에너지의 베타선을 방출하여 적은 양을 취급할 경우에는 인체에 별다른 영향을 주지 않아 일반 산업용으로 많이 이용되는 방사성 동위원소이나 수천 혹은 수만 큐리 정도의 많은 양을 사용할 경우에는 밀폐된 공간에서 사용해야 하며, 사용 후 대기로 방출하기 전에 반드시 회수해야 하고, 항상 대기로 방출되는 양을 감시해야 하는 등의 특별한 관리가 요구되는 방사성물질이다.

현재 국내에서는 수 mCi, 혹은 1 Ci 미만의 매우 적은 양의 삼중수소가 생물, 생화학, 농학 및 의약품 합성연구에 사용되고 있고 이보다 많은 삼중수소를 포함하는 민수용 및 군수용 야광제품 등은 전량 수입하여 사용하고 있으므로 국내의 삼중수소 취급 기술은 거의 개발되지 않은 상태이다. 그렇지만 월성원자력 발전소의 삼중수소 제거설비(Wolsong Tritium Removal Facility, WTRF)가 2005년도 후반에 완공되어 가동이 시작되면 국내에서 삼중수소의 생산이 가능해지고 우리나라가 ITER에 참여하여 삼중수소 관련부문의 80%를 공급하게 됨에 따라 삼중수소 취급 기술의 국내 확보는 필수적인 것으로 보이며 기타 삼중수소를 활용하는 국내연구도 활성화 되리라 기대된다.

한전 전력연구원 (KEPRI)은 2002년 후반기부터 산업자원부 전력기반기금으로 삼중수소를 활용하는 과제를 시작한 이후, 상업화된 군수용과 민수용 자발광유리관 제품을 각각 한 가지씩 선정하여 상업화를 위한 기술개발을 목표로 하여 연구하고 있다. 목표로 하고 있는 이들 제품을 생산하기 위해서는 고농도 (순도 90% 이상)의 삼중수소를 유리관에 봉입, 취급하게 되므로 이를 위해서는 잘 설계된 글로브박스 (glove box, GB)를 포함한 삼중수소 취급시설이 필요하게 된다. 삼중수소 취급시설은 삼중수소 누설방지, 누설된 삼중수소의 산소와의 혼합방지, 누설된 삼중수소의 최대한 회수, 그리고 누출되는 삼중수소량의 감시의 4가지를 기본 목표로 하여 설계 되었다. 지난 번 논문¹⁾에서는 삼중수소 취급 시설 중 2차 격납 시설인 glove box(GB), 삼중수소회수장치 (Tritium Removal System, TRS), 및 배기 계통을 소개하였다. 이 계통 들은 방사선 방호를 위한 계통들로서 삼중수소를 사용하는 제품을 만드는 주계통의 보조 계통 들이다. 본 연구에서는 삼중수소를 사용하는 제품을 만드는 주계통의 하나로서 상기 삼중수소활용과제에서 필요로 하는 유리관에 삼중수소를 주입하는 삼중수소 주입계통을 소개하고 삼중수소 회수 장치 등에 사용되는 metal getter와 molecular sieve 등의 재생을 위한 재생 계통을 소개하고자 한다.

2. 본 론

삼중수소 주입계통은 삼중수소의 양을 정확히 측정하여 용기에 주입하기 위한 계통으로서 본 연구과제에서처럼 유리관에 삼중수소를 주입하거나 대량의 삼중수소를 보관하고 있는 용기로부터 작은 용량의 삼중수소 용기로 삼중수소를 분배하는데 사용될 수 있다.

재생 계통은 보조 계통들에 사용되는 장치들 중 재생이 필요한 장치, 즉 삼중수소를 제거하는 metal getter 들과 수분을 제거하는 molecular sieve(TRS에 있는 것), Ni catalyst bed 들이 삼중수소 및 수분을 흡수하여 기능을 하지 못하게 되면 재생이 필요하므로 이들을 재생을 하기 위한 계통이다. 이는 재생을 하는 과정에서 삼중수소가 발생할 수 있으므로 발생한 삼중수소의 방출을 막고 회수하는 것이 필요하기 때문이다. glove box 내의 수분 및 산소를 제거하기 위한 molecular sieve 및 Cu/CuO bed는 재생계통에서 재생하지 않고 in-situ로 재생하여 발생하는 수분은 TRS에서 처리하도록 한다.

삼중수소 주입계통과 재생계통에서는 삼중수소가 누출될 수 있으므로 이 계통들은 GB안에 설치되어야 한다.

2.1. 삼중수소 주입계통(Process Loop, PL)

삼중수소의 주입량은 제품의 성능을 위해서 뿐만 아니라 삼중수소의 관리를 위해서도 반드시 정확히 측정되고 기록되어야 한다. GB가 실험실내 기압에 대하여 약간 음압으로 유지하여 삼중수소의 누출 가능성을 줄이는 것과는 달리 삼중수소 주입시스템의 압력은 주입하고자하는 양에 따라 GB 내부 압력보다 높은 압력으로 유지 될 수도 있으며 하기한 바와 같이 주입과정에서 시스템내의 압력은 변하게 된다.

삼중수소 주입시스템의 개념도를 그림 1에 나타내었다. 시스템을 구성하는 주요 부품은 T gas vessel, circulation pump, vacuum pump, U-bed, metering tank, tritium monitor(TM), gas chromatograph(GC), metal getter 및 온도, 압력 sensor들로 구성된다. T gas vessel은 시스템에서 사용할 삼중수소를 초기에 주입하는 용기를 말하는 것으로 과제에 사용할 목적으로 구입한 삼중수소를 담고 있는 용기를 말한다. 삼중수소의 주입과정에서 삼중수소를 반복적으로 저장용기에서 꺼내거나 넣어야 하는데 삼중수소를 구입할 때 오는 용기는 이와 같은 작업에는 적당하지 않다. 그러므로 구입한 삼중수소는 일단 용기를 가열하여 전부 빼내어 다른 적합한 용기에 저장하고 그 용기로부터 삼중수소를 꺼내어 사용해야한다. 이러한 목적으로 사용되는 용기가 U-bed이다. U-bed는 삼중수소의 저장물질로 우라늄을 사용하는 용기이다. 우라늄은 상온에서의 평형수소압력이 낮을 뿐만 아니라 삼중수소의 주입, 추출이 상대적으로 용이한 편이라 일시적인 삼중수소의 저장물질로 적합하다. U-bed는 두개를 병렬로 연결하여 사용하게 되는데 하나는 초기에 주입되는 삼중수소를 저장하게 되며 다른 하나는 주입과정에서 발생하는 잔여 삼중수소를 회수하는데 사용된다. 주입하는 U-bed 내의 삼중수소가 고갈되고 회수하는 U-bed 내에 삼중수소가 증가하게 되면 회수 U-bed를 공급용으로 사용하고 공급용 U-bed를 회수용으로 교대하여 사용하게 된다. U-bed에는 시스템 내에서 가장 삼중수소를 많이 포함하고 있는 장치로서 누설 시 삼중수소의 누출이 많아지므로 외부에 용기를 하나 더 설치하여 이중으로 하고 용기사이에는 진공펌프로 수시로 배기하여 누출된 삼중수소를 제거한다. 삼중수소의 주입량은 사전에 정확하게 부피가 측정된 metering tank를 사용하여 주입 전 후의 tank의 압력과 온도를 정확히 측정하여 계산한다. metering tank는 대략 분배 주입되는 삼중수소의 총량과 같은 부피로 한다. 주입 전 metering tank의 압력은 분배 주입하고자 하는 압력의 약 2~3배 정도가 되도록 하여 주입 전후의 압력 변화가 너무 작거나 크지 않도록 한다. 삼중수소의 주입은 압력차에 의해 이루어지나 시스템내의 잔여 삼중수소를 회수하기 위해서는 circulation pump가 필요하다. 시스템 내 잔여 삼중수소가 U-bed에 회수되면 시스템을 개방하기 전에 진공펌프로 잔여기체를 뽑아내고 진공펌프에서 나오는 기체는 metal getter를 거쳐 TRS로 보내어 회수되지 않은 삼중수소를 다시 회수하여 방출이 허용되는 수준까지 삼중수소의 농도를 낮춘 후 배기시스템을 통하여 대기 중으로 방출한다. 삼중수소의 농도는 TM을 사용하여 측정한다. GC는 주입기체 중의 삼중수소의 농도를 측정하기 위한 것인데 이는 삼중수소 구입 시 1회만 측정하고 매 주입 시마다 측정하지는 않는다. 마지막으로 manifold는 삼중수소가 분배 주입되는 용기를 연결하는 부분으로서 본 연구과제에서는 형광체로 코팅된 한쪽 끝이 막힌 자발광유리관들을 연결하게 된다. manifold는 연결부위에서의 삼중수소 누출이 일어나지 않도록 설계되어야 한다.

구입한 삼중수소를 U-bed에 초기 장입하는 과정은 다음과 같다. 이해를 돕기 위하여 그림 1의 U-bed 중 위의 것(500℃로 표시된 것)을 U-bed[1], 아래의 것(cold로 표시된 것)을 U-bed[2]로 이름 붙여 설명하겠다.

- (1) T gas vessel을 시스템에 연결하기 전 시스템이 GB 대기로부터 폐쇄되도록 외부와 연결되는 밸브를 잠그고 시스템을 진공 배기한다. 진공 배기하기 전 시스템은 GB 대기(본 과제의 경우 Ar)가 차 있게 된다.
- (2) U-bed는 둘 다 삼중수소가 제거되고 활성화된 상태로 연결되어 있어야 한다.
- (3) T gas vessel을 시스템에 연결하고 삼중수소를 추출할 수 있도록 가열한다.

- (4) T gas vessel과 삼중수소를 초기 저장할 U-bed[1] 사이의 밸브 들을 열고 다른 밸브들은 닫는다.
- (5) U-bed[1]에 삼중수소의 저장이 완료되면 U-bed[1] 및 T gas vessel 연결 밸브를 닫고 T gas vessel을 계통에서 분리한다.

삼중수소 주입계통의 운전절차는 다음과 같다.

- (1) 유리관들을 manifold에 연결한다.
- (2) 계통을 진공펌프로 배기한다.
- (3) 진공이 유지되는지(GB 대기가 새어 들어오지 않는지) 확인한 후 진공펌프를 계통에서 차단한다.
- (4) 삼중수소를 공급하는 U-bed[1]의 밸브를 열고 다시 진공배기 한다. 이 과정에서는 U-bed[1] 내에 발생한 He-3 등의 잔여기체를 제거한다. 이 때 U-bed[1]의 온도는 아직 상온으로서 삼중수소가 U-bed[1]에서 나오지 않고 있다.
- (5) 유리관에 주입할 삼중수소의 양을 계산한다.
- (6) U-bed[1]과 metering tank 사이의 밸브만 열고 나머지 밸브들은 닫아 삼중수소가 U-bed[1]으로부터 metering tank로 주입될 수 있도록 한다.
- (7) U-bed[1]을 500℃로 가열하여 삼중수소를 유리관 주입압력(그림1의 경우 0.9 atm)의 약 3배 정도(그림1의 경우 3 atm)가 될 때까지 metering tank에 주입하고 나서 밸브를 닫고 U-bed[1]의 가열을 중지한다. 이때 metering tank의 온도 및 압력을 정확히 기록한다.
- (8) U-bed[1]에 저장된 삼중수소를 처음으로 주입하는 경우에는 소량의 sample을 GC로 보내 구입한 T gas vessel 내의 삼중수소의 농도를 측정한다. 삼중수소는 방사성 동위원소로서 자연 붕괴가 일어나므로 구입한 삼중수소의 정확한 농도는 GC 등의 분석 장치로 측정해야한다.
- (9) metering tank와 manifold간의 밸브를 열어 삼중수소를 유리관에 사전에 계산한 만큼 주입한 후 밸브를 닫고 metering tank의 온도와 압력을 다시 정확히 기록한다.
- (10) metering tank와 U-bed[2]사이의 밸브를 열어 metering tank 내의 삼중수소를 회수한다. U-bed[2]는 상온으로 유지되는데 상온에서의 우라늄의 삼중수소 평형압력은 상당히 낮으므로 metering tank내에 삼중수소가 남아있지 않은 것으로 계산한다. 압력의 변화가 없으면 밸브를 닫는다.
- (11) manifold에 연결되어 있는 유리관들을 밀봉/절단하여 계통으로부터 분리한다.
- (12) manifold와 metering tank사이의 밸브를 열어 잔여 유리관과 manifold내의 삼중수소가 metering tank까지 확산되도록 한 후 metering tank의 온도 및 압력을 정확히 기록한다. 위의 세 번의 온도 및 압력의 기록과 metering tank의 부피로부터 유리관에 주입된 삼중수소의 양을 정확히 계산할 수 있다.
- (13) metering tank와 U-bed[2] 사이의 밸브를 열어 manifold와 metering tank안의 삼중수소를 회수한다. 이 경우 삼중수소는 확산에 의하여 U-bed로 들어가게 된다.
- (14) 계통내의 압력이 더 이상 떨어지지 않으면 circulation pump를 가동하여 삼중수소가 U-bed 내로 들어가는 것을 촉진한다. circulation pump의 가동을 위해 필요하다면 Ar을 계통 내에 주입한 후 pump를 가동한다. (그림 1의 경우 500 Torr가 될 때까지 주입)
- (15) 계통 내 기체를 순환시키면서 TM으로 삼중수소의 농도를 감시하여 삼중수소의 농도가 허용치 이하로 떨어지게 되면 pump를 중지하고 U-bed[2]를 계통에서 고립시킨다.
- (16) 계통 내 잔여 기체를 진공펌프를 사용하여 배기한다. 배기되는 기체는 metal getter(ST198, ZrFe 합금)를 통과시키면서 잔존하는 삼중수소를 제거한 후 TRS로 보내어 삼중수소를 대기 방출 허용한도까지 낮춘 후 방출한다.

- (17) 진공배기가 끝난 계통에 Ar을 주입하여 GB 내 압력과 같도록 조정된 후 manifold에 부착되어 있는 잔여 유리관을 분리한다.
- (18) 새 유리관을 manifold에 부착하고 앞의 과정을 반복한다. 이러한 반복과정에서 U-bed[1]내의 삼중수소를 다 사용하게 되면 잔여 삼중수소가 회수된 U-bed[2]를 삼중수소공급에 사용하고 U-bed[1]은 삼중수소 회수에 사용한다. 이 경우 U-bed[2]는 500℃로 유지되고 U-bed[1]은 상온으로 유지된다.

2.2. 재생계통

재생 계통에서 재생되는 장치들은 TRS의 ST198 metal getter, Ni Catalyst bed, Molecular sieve(MS) 등이다. 재생계통의 개념도를 그림2에 표시하였다.

MS는 350℃로 가열한 후 건조한 Ar(이슬점 -100℃)을 통과시켜 수분을 제거한다. 제거된 수분은 collector에 수집되고 collector에서 나오는 잔여 수분은 Drier(MS)를 통과시켜 제거한다. 방출되는 기체 중의 삼중수소는 TM으로 감시한다. 여기서 사용되는 Drier의 재생도 같은 장치를 사용하여 한다.

Ni catalyst bed는 500℃로 가열한 후 Ar과 수소의 혼합기체를 통과시켜 재생한다. 수소는 일부 산화되어 있는 Ni를 환원시키는 역할을 한다.

ST198 metal getter에 회수된 삼중수소는 재생하는 과정에서 추출하여 회수해야 하는데 ZrFe(ST198) metal getter를 U-bed에 직접 연결하는 것은 바람직하지 않으므로 일단 MS에 흡수시킨 후 다시 U-bed로 보내게 된다. 이 재생과정은 약간 복잡하여 다음과 같은 순서로 하게 된다.

- (1) 재생하려는 ST198 metal getter를 550℃ 가열하여 삼중수소를 추출한다.
- (2) circulation pump를 사용하여 추출된 삼중수소를 77K로 유지되는 MS로 회수한다. 이때 U-bed는 계통에서 격리시킨다.
- (3) 24시간 정도 가열하여 삼중수소가 다 추출되면 metal getter를 계통에서 격리시킨다.
- (4) U-bed를 계통에 연결한 후 MS를 120K로 가열하여 삼중수소를 U-bed로 옮긴다. circulation pump의 원활한 동작을 위하여 계통에 He 가스를 주입한다.
- (5) TM으로 삼중수소의 농도를 감시하여 충분히 삼중수소가 U-bed로 저장되었다고 판단되면 U-bed를 계통에서 격리시킨다.
- (6) MS를 350℃로 가열하여 MS에 흡착되어 있는 삼중수소화 된 화합물들을 탈착시켜 Ni catalyst bed 쪽으로 내보낸다. 탈착된 삼중수소화 유기물 들은 Ni catalyst bed를 통과하면서 분해 된다. Ni catalyst bed를 통과한 기체는 이전의 MS나 Ni catalyst 재생계통과 마찬가지로 경로를 통하여 방출한다.

3. 결 론

지난 논문에서 소개하지 않은 삼중수소 취급시설의 일부인 삼중수소 주입계통과 재생계통을 소개하였다. 두 계통은 모두 삼중수소의 유출이 가능한 계통들로서 GB 안에 설치되어야 하는 계통들이다. 이 계통 들은 Dr. Shmayda, rc-Tritec 등의 해외 전문가/전문기관의 자문과 WTRF 과제를 통해 습득한 기술을 바탕으로 설계되었다.

삼중수소 주입계통은 삼중수소 취급시설을 사용하여 목적하는 제품을 생산하게 되는 주 계통으로서 삼중수소의 관리를 위하여 정확히 삼중수소의 주입/분배량을 계량할 수 있어야하고 주입 후 계통 내 잔여 삼중수소를 최대한 회수할 수 있도록 설계하여 방사성 물질의 환경방출을 최소화할 뿐만 아니라 귀한 자원의 손실을 최소화해야 한다. 구입한 삼중수소의 용기는 저장/운반용으로 주입공정에 사용하기에는 적합하지 않으므로 임시 저장용인 U-bed를 사용한다. U-bed는 내부

용기와 외부용기 사이를 진공으로 유지하는 이중용기이므로 가열시 쉽게 온도가 떨어지지 않으므로 고온으로 사용되는 공급용 용기와 상온의 회수용 용기 두개를 병렬로 연결하여 사용한다.

삼중수소 취급계통 중의 재생이 필요한 장치들은 in-situ로 재생하고 재생 시 발생하는 기체는 TRS로 처리하는데 이와 같은 방법으로는 TRS 내부의 장치들은 재생할 수 없으므로 별도의 재생계통이 필요하게 된다. 재생계통에서 재생되는 장치들로는 MS, Ni catalyst bed, metal getter 등이 있다. 다른 장치들의 재생은 장치를 가열하면서 적절한 purge gas를 흘려주는 비교적 간단한 방법으로 재생이 가능하나 삼중수소를 흡착한 metal getter의 재생은 삼중수소를 회수해야 하기 때문에 복잡한 공정을 거쳐야 한다.

이로써 QA 계통을 제외한 주요 삼중수소 취급계통들이 다 소개되었다. QA 계통은 QA 절차와 함께 소개하는 것이 적합할 것으로 생각되어 제외되었다.

ACKNOWLEDGEMENT

본 과제는 산업자원부 기반기금 과제로 수행되었다. 삼중수소 주입계통과 재생계통의 설계에 많은 도움을 주신 Dr. Shmayda에게 감사드린다.

참 고 문 헌

1. 김광신 외, "삼중수소취급계통의 설계", 2003년도 한국방사성폐기물학회 춘계학술발표회 P194 (2003)
2. 손순환, 송규민 외, "삼중수소 제거기술 개발 (I) 제 1단계", TR96NJ18.J1998.45, KEPRI (1998).
3. 김위수, 손순환 외, "삼중수소 제거기술 개발 (I) 제 2단계 (최종보고서)", 96NJ18, KHNP (2002).
4. Caffarella, Thomas E., Radda, George J. and Dooly, Harry H, Jr., "Miniature Radioactive Light Source and Method of its Manufacture", US Patent, 4,213,052 (1980).
5. 정홍석, 안도희 외, "삼중수소 자발광체 제조기술, KAERI/AR-411/94 (1994).
6. Lasser, R., "Tritium and Helium-3 in Metals", Springer-Verlag, New York (1989).
7. McNair, Rhett C, "Self-luminous Light Source", US Patent, 4,990,804 (1991).
8. Kim, W. S., Jung, Y. G., Kim, K., Lee, S. K. and Song, K. M., KEPRI Report, TM.00NP34. T2001.175 (2001).
9. Sinclair, K. Warren, "Tritium in the Environment", NCRP Report, 62 (1979).
10. W.T. Shmayda, A.G. Hejes and N.P. Kherani, "Comparison of uranium and zirconium cobalt for tritium storage", Journal of the Less-Common Metals, 162, 117-127 (1990).
11. W.T. Shmayda and N.P. Kherani, "Uranium for hydrogen isotope removal from inert gas streams, Fusion Engineering and Design 10, 359-363 (1989).
12. C.L. Folkers and M.F. Singleton, "Collection of deuterium on a uranium getter during dynamic flow conditions, UCRL Report 76734, Lawrence Livermore National Laboratory (1975).
13. A.G. Hejes and W.T. Shmayda, "Design of a second generation secondary enclosure clean-up system, Fusion Technology, 28, 1509-1514 (1995).
14. N.P. Kherani, W.T. Shmayda, and R. A. Jalbert, "Tritium removal from inert gases using Zr_2Fe ", 12th, SOFE, IEEE87CH2507-2, 1239-1242 (1987).

15. N.P. Kherani and W.T. Shmayda, "Zr₂Fe tritium scavenger beds", Ontario HydroResearch Division Report, # 89-199-k (1989).
16. A. Nobile, W.C. Mosley, J.S. Holder and K.N. Brooks, "Deuterium absorption and material phase characteristics of Zr₂Fe", J. Alloys and Compounds, 206, 83-93 (1994).
17. W.T. Shmayda, N.P. Kherani, B. Wallace, and F. Mazza, "Inert gas secondary enclosure clean-up system", Fusion Technology, 21, 616-621 (1992).
18. E-mail communications with Dr. Shmayda
19. Drawings and e-mail communications with rc-Tritec technical staff

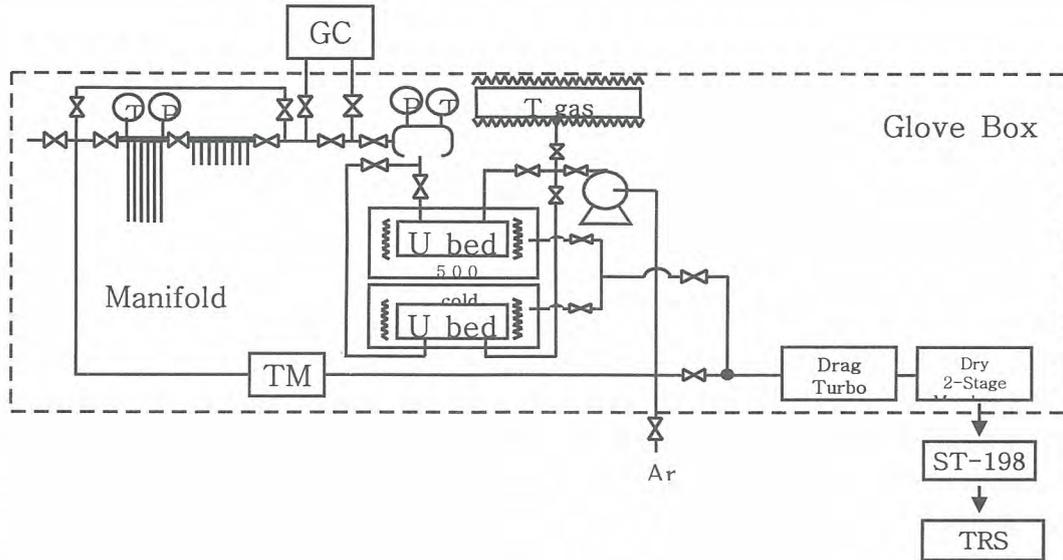


그림 1 삼중수소 주입계통

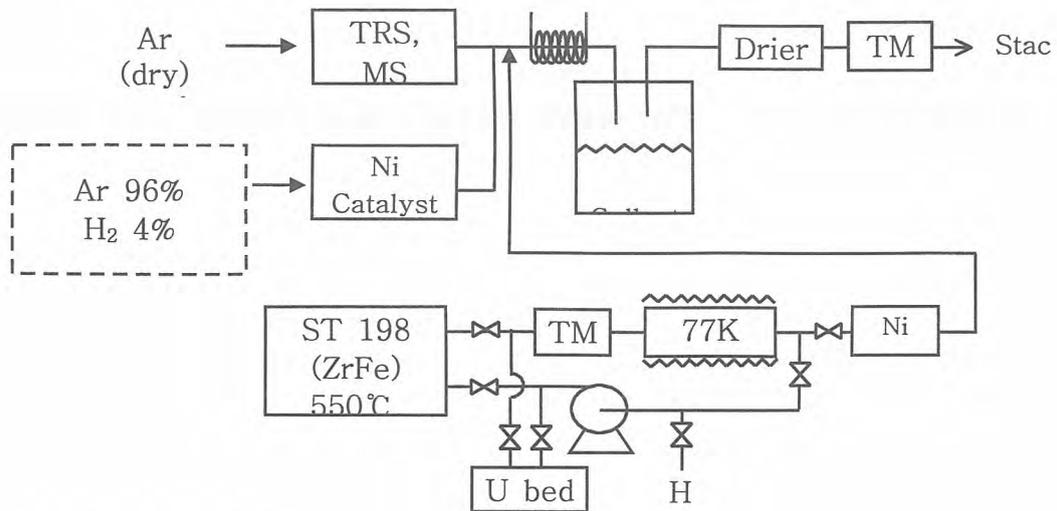


그림 2. 재생 계통

붕산함유파라핀 고화체의 직경/높이 및 재하속도에
따른 압축강도비교

Comparison on Compressive Strength of Paraffin
Waste Form with H/D Ratio and Loading Rate

곽경길, 유영걸
한국원자력연구소

요 약

국내원전의 농축폐액건조설비에 적용되고 있는 붕산/파라핀의 혼합비가 3.3/1 인 고화체를 제조하여 H/D비가 1, 1.25, 1.5, 1.75, 2.0인 시편과 50/100 mm인 시편으로 H/D 및 Loading rate에 따른 압축강도변화를 비교하였다. 실험에서 압축강도의 크기가 $d=50 > 75 > 100$ mm의 현상을 보였으며, 평균 압축강도는 34.25 kgf/cm^2 ($d=50\text{mm}$), 24.94 kgf/cm^2 ($d=100\text{mm}$)에 걸쳐 시험체의 직경크기에 따라 감소하고 있음을 확인하였으며, 이들 모두 NRC/BTP에서 권고하고 있는 4.1 kgf/cm^2 이상임을 알 수 있었으며 NRC/BTP에서는 시험체의 크기를 $D=2 \sim 3$ inch, $H/D=2$ 를 권고하고 있는데 본시험에서도 H/D의 비가 2.0으로 하여 시편을 제조하여 시험하는 것이 바람직한 것으로 보인다. 또한 Loading rate에 있어서는 재하속도가 클수록 압축강도가 증가하는 것으로 나타났다.

Abstract

In case that the mixing weight ratio of waste form between boric acid and paraffin was 3.3/1, which had been adopted in the concentrate waste drying system(CWDS) of domestic nuclear power plants. Using several specimens with different diameters and heights, 50/100mm specimens. compressive strength were measured. The experiment result showed that the small diameter specimens of compressive strength are increased more than large diameter specimens. ($d=50 > 75 > 100$ mm) The average compressive strength of specimens showed that the range from 22.43 kgf/cm^2 to 38.57 kgf/cm^2 (NRC standard $\geq 4.1 \text{ kgf/cm}^2$). NRC standard is recommended that the compressive strength test specimens be right circular cylinders, 2 to 3 inches in diameter, with a height-to-diameter(H/D) ratio of approximately two. and compressive strength were increased more than large loading rate. As test result, this conditions are a good agreement, and estimated.

1. 서 론

국내원자력발전소에서 발생하는 중·저준위 방사성폐기물로서 붕산 농축폐액이 발생되고있으며

이 농축폐액은 보통 포틀랜드 시멘트에 의해 고화처리되고 있으나 1990년대 중반부터 파라핀 왁스에 의해 고화처리가 이용되고 있다. 따라서 발생하는 봉산함유 파라핀고화체에 대한 건전성평가를 위해 수행되는 압축강도측정에 있어서 Flexible Type의 재료인 왁스(폴리머)에 대한 압축강도 측정시험을 수행하게 되었으며 고화체에 대한 처분장 인수기준에서 고화체의 압축강도는 단순히 고화체 적재 시 고화체가 수직으로 받는 하중을 고려한 것으로 고화체의 구조적 안전성을 평가하는데 가장 중요한 시험항목이다. 압축강도의 측정결과 자료는 경화된 고화체의 건전성을 판별하는데 적용되거나 온도내구성, 내방사선, 미생물영향, 침수시험전후에 고화체의 안전성을 비교하거나 판정하는데 사용된다. 10 CFR 61.56(b) (1)에 명시된 “ 구조적으로 안정한 고화체는 일반적으로 처분장의 예상조건 하에서 고화체는 물리적인 크기와 형태를 유지하여야한다.” 는 것을 기초로 처분장의 매몰재료의 밀도를 1.9 g/cm^3 로 가정하여 최소한의 압축강도를 3.4 kg/cm^2 (50 psi)로 고화체 기술지침서 (branch technical position on waste form. Rev.0, 1983)에 명시하였다. 그러나 Hanford 처분장의 매몰깊이가 깊어짐에 따라 (13.7 m 에서 16.8 m) 모든 고화체에 대한 최소 압축강도를 4.1 kg/cm^2 (60 psi)로 높였다. 한편 시멘트고화체에 대해서는 처분장의 매몰량(burial load)과 고화체의 dimension 과 form을 장시간 동안 유지할 수 있도록 새로운 값인 500 psi 를 제시하여 이를 권고하고 있다(1991). 한편 본 시험에서는 시편크기에 따른 영향을 살펴보기 위하여 사전에 시편의 상하부분을 수평되게 연마한 후 ASTM-D-1074(Compressive Strength of Bituminous Mixtures)에 따라 파라핀고화체의 압축강도를 측정하였다. 일반적으로 압축강도는 시험체의 형상, 크기, 재하속도등의 시험조건과 구성하는 물질의 종류 등에 따라 크게 영향을 받는다. 특히 본시험에서는 원주형시멘트 고화체에 적용되고 있는 NRC/BTP의 시험체의 크기를 $D=2\sim 3 \text{ inch}$, $H/D=2$ 를 권고하고 있는데 본시험에서는 봉산함유 파라핀 고화체를 이용하여 비교하였으며 또한 재하속도에 따른 압축강도변화를 비교하였으며 이들 조건을 만족시키고 있는 것으로 확인되어 안정된 고화체로 판단되어지며 시편 크기 비 및 재하속도에 따른 강도변화를 비교하여 파라핀왁스의 최적시편 크기 비를 도출하여 표준시험방법에 활용하고자 하였다.

2. 실 험

2.1 실험재료

파라핀 고화체시편은 원자력발전소에서 사용하고 있는 파라핀 왁스와 같은 미국 산 LUXCO, Model No. FR160 과 봉산분말을 이용하여 제조하였으며 파라핀왁스의 비중은 0.93이고, 파라핀은 72°C 이상의 온도에서 녹기 시작하며 온도상승에 따라 점도가 낮은 액체가 된다. 파라핀왁스는 물에 불용성이며, 열을 가하지 않고도 일정한 압력하에서 변형이 일어나는 열가소성수지이다. 고화체 내의 파라핀은 봉산과 화학적 결합을 하지 않고 단지 혼합상태로 존재하며 실험에 사용된 봉산(Boric Acid)은 비중이 1.44이며, 녹는점은 171°C 이고 끓는점은 359°C 이다. 파라핀과의 비중차이로 인한 층 분리 현상은 혼합 시 적정온도에서의 혼합 및 혼합비율, 그리고 충분한 교반에 의해 해결하였다.

2.2 시편제조

본 시험을 위해 제작된 혼합기에 파라핀을 넣어 15분간 용해시킨 후 봉산을 조금씩 넣으며 교반을 통해 혼합하였다. 혼합온도조건은 $70\sim 120^\circ\text{C}$ 에 온도범위를 주고 파라핀왁스의 증발을 최소화하기 위해 $70\sim 90^\circ\text{C}$ 의 범위에서 혼합하였으며 봉산투입량을 3 batch로 나누어 용해된 파라핀에 투입하며 교반하였으며 혼합기의 교반속도는 $300\sim 500 \text{ rpm}$ 사이에서 교반하여 15분 동안 혼합시킨 후 실린더형의 PVC 몰드에 주입한 후 상부를 비닐 밀봉하여 실온에서 1주일간 경화시킨 후, 몰드

를 제거하고 표면을 가공하였다. 본 연구에서는 봉산과 파라핀의 혼합 무게 비(%)는 3.3/1 (원자력발전소의 PCP와 동일) 로 하였으며 직경 50, 75, 100mm에 따른 H/D비 1, 1.25, 1.5, 1.75, 2 및 50/100mm의 시편을 제조하였다.

Table 2-1. Specification of Specimens with H/D Ratio

시편번호	높이 (mm)	직경 (mm)	단면적 (cm ²)	시편번호	높이 (mm)	직경 (mm)	단면적 (cm ²)
S-1	50.16	49.64	19.36	S-16	112.97	74.52	43.59
S-2	50.08	49.38	19.14	S-17	131.26	74.57	43.64
S-3	62.66	49.63	19.33	S-18	131.28	74.52	43.59
S-4	62.58	49.27	19.05	S-19	150.04	74.74	43.86
S-5	75.16	49.26	19.05	S-20	150.52	75.09	44.27
S-6	75.25	49.63	19.33	S-21	99.52	98.69	76.46
S-7	87.67	49.46	19.20	S-22	99.59	99.14	77.15
S-8	87.54	49.60	19.31	S-23	123.70	98.79	76.62
S-9	100.10	49.79	19.46	S-24	123.95	98.47	76.12

시편번호	높이 (mm)	직경 (mm)	단면적 (cm ²)	시편번호	높이 (mm)	직경 (mm)	단면적 (cm ²)
S-10	100.16	49.8	19.47	S-25	149.33	99.06	77.03
S-11	75.19	74.16	43.17	S-26	149.27	99.19	77.24
S-12	75.48	74.17	43.18	S-27	174.03	100.07	78.60
S-13	93.81	74.05	43.04	S-28	173.39	100.16	78.75
S-14	93.83	74.07	43.06	S-29	200.24	99.80	78.19
S-15	112.76	74.37	43.42	S-30	200.46	99.68	78.00

Table 2-2. Specification of Specimens for Loading rate

시편번호	높이 (mm)	직경 (mm)	단면적 (cm ²)	시편번호	높이 (mm)	직경 (mm)	단면적 (cm ²)
S-31	99.85	49.52	19.25	S-36	100.17	49.88	19.53
S-32	100.09	50.71	20.18	S-37	100.09	49.65	19.36
S-33	100.18	49.89	19.53	S-38	100.08	49.85	19.51
S-34	100.07	49.79	19.46	S-39	100.10	49.64	19.35
S-35	100.07	49.71	19.40	S-40	100.28	49.74	19.43

3. 실험결과 및 고찰

3.1 재하속도에 따른 압축강도

재하속도에 따른 시험체의 압축강도 변화특성을 살펴보기 위해 50/100 mm의 봉산 함유파라핀 고화체를 제조하여 4주간 경화시킨 후 10톤 용량의 유압식 압축강도측정기를 사용하여 시험체의 강도를 측정하였으며 재하속도는 5mm/min, 7.5mm/min, 8mm/min, 10mm/min, 30mm/min으로 하였으며 그 결과를 Fig. 1 에 나타냈다. 그래프에서 보는바와 같이 재하속도가 증가할수록 압축

강도가 증가하였으며 재하속도를 대수좌표로 하여 표현한 결과 거의 선형적으로 증가함을 알 수 있었다.

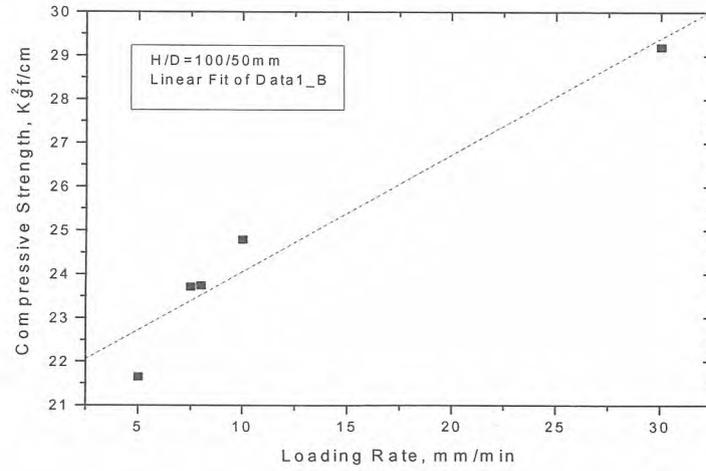


Fig. 1. Compressive Strength Change with Loading Rate

3.2 직경변화에 따른 압축강도

시험편은 응력집중을 피하기 위해 시험체의 양단을 정확한 수평면으로 가공되었으며 수평성이 결여되면 시험체와 재하판과의 유효접촉 면적이 감소하여 응력집중이 일어나 결보기강도가 감소하게 된다. Fig. 2 에서 보듯이 압축강도의 크기가 $d=50 > 75 > 100$ mm의 현상을 보이고 있으며, 조그만 시험체가 큰 시험체 보다 높은 강도를 나타내고 있다. 이 현상은 Graffith의 이론에 의하면 저응력도 하에서는 짧은 균열보다도 긴 균열이 성장하기 시작한다. 따라서 긴 균열이 존재하면 강도가 저하될 것이다. 그 외에 결함이나 불연속인 부분이 존재하여 그들의 기하학적인 성상이 높은 응력집중을 발생시킬 경우에는 더욱더 강도를 저하시킬 것이다.

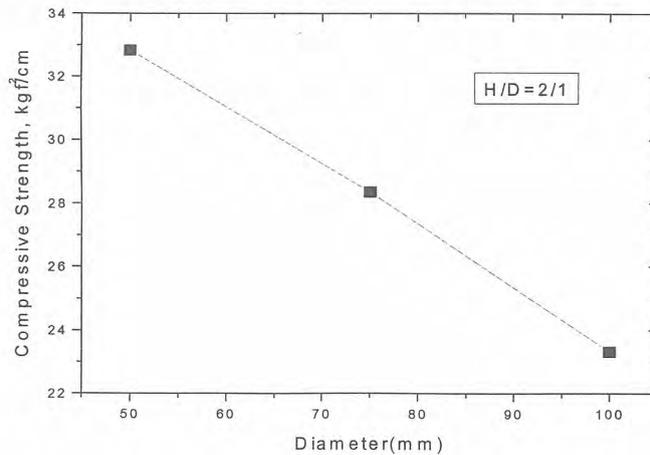


Fig. 2. Compressive Strength with Diameter

시험체가 그와 같은 약점 부를 포함할 가능성은 그 부피, 즉 크기가 증대함에 따라 커질 것이다. 따라서 봉산함유고화체의 압축강도는 조그만 시험체는 큰 시험체 보다 높은 강도를 나타내고 있는 것을 확인하였다.

3.3 H/D 변화에 따른 압축강도

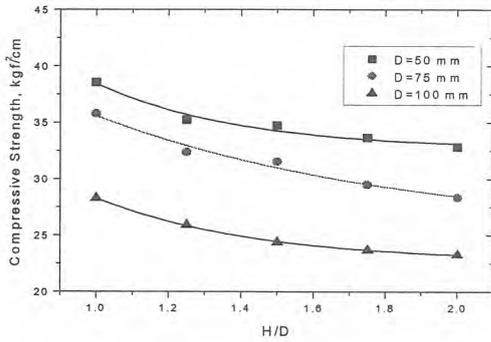


Fig. 3. Compressive Strength with H/D Ratio

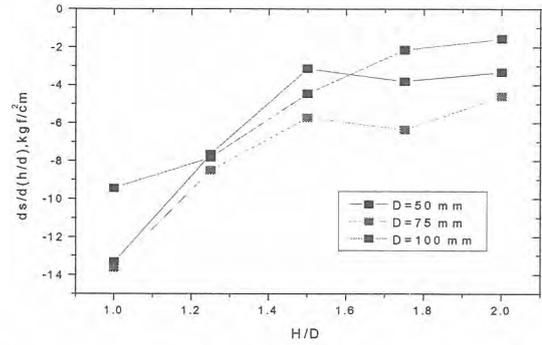


Fig. 4. Differential Value of Compressive Strength with H/D Ratio

높이/직경 비에 따른 강도시험시 재하속도는 30 mm/min로 일정하게 하였다. Fig. 2에서보면 H/D 비가 증가함에 따라 압축강도가 감소하였으며 H/D=1.7 이상부터는 기울기가 완만하여 감소 비율이 비교적 낮았다. 각 곡선에서의 기울기를 구하여 Fig. 3에 나타냈는데 H/D=1.5 에서부터 H/D=2.0 까지 기울기가 완만하였으며 이 범위 내에서 가장 낮은 차이를 보이고 있다. 그러므로 이와 같은 비율로 시편을 제조하는 것이 바람직하며 규격이 다른 시험체를 시험하였을 경우도 2.0 을 기준으로 하여 압축강도를 보정하여 자료 분석하는 것이 바람직한 것으로 생각된다.

4. 결 론

본 연구에서는 봉산함유 고화체의 H/D 비의 변화에 따른 압축강도측정시험을 통하여 아래와 같은 결론을 얻었다.

1. 재하속도에 따른 시험체의 압축강도측정결과 재하속도가 증가할수록 압축강도가 증가하였으며 재하속도를 좌표로 하여 표현한 결과 거의 선형적으로 증가함을 알 수 있었다.
2. 압축강도의 크기가 $d=50 > 75 > 100$ mm의 현상을 보이고 있으며, 본 시험체의 평균 압축강도는 시험체의 직경크기에 따라 34.25 kgf/cm^2 ($d=50\text{mm}$), 24.94 kgf/cm^2 ($d=100\text{mm}$)로 감소됨을 알았으며 이들 모두 4.1 kgf/cm^2 이상임을 알 수 있으며 매우 안정된 고화체로 판단된다. 조그만 시험체가 큰 시험체 보다 높은 강도를 나타내고 있다. 이는 저응력도 하에서 짧은 균열보다도 긴 균열이 성장하기 시작하여 높은 응력집중을 발생시켜 조그만 시험체는 큰 시험체 보다 높은 강도를 나타내고 있는 것을 확인하였다.
3. NRC/BTP에서는 원주형 시멘트 고화시험체의 크기를 $D=2\sim 3$ inch, $H/D=2$ 를 권고하고 있는데 본시험에서도 H/D의 비가 2.0으로 하여 시편을 제조하여 평가하는 것이 타당한 것으로 판단된다.

참 고 문 헌

1. 박헌휘외, "고화체 특성규명연구", KAERI-NEMMAC/RR-65/92.
2. 김기홍외, "고화체 특성규명연구",KAERI-NEMMAC/RR-139/94.
3. American Society for Testing and Materials Standard Test Method for Compressive Strength of Cylindrical Concrete Specimens, ASTM C39, October 1984.
4. U.S. Nuclear Regulatory Commission, "Low-Level Waste Licensing Branch Technical Position on Waste Form" , Rev. 0. May 1983.
5. ASTM D-1074, "Compression Strength of Bituminous Mixtures" , American Society for Testing Materials, 1980.

하나로의 고체 폐기물 발생 현황

The solid waste production status in HANARO

강태진, 황승렬, 최호영, 이 문
한국원자력연구소

요 약

하나로의 출력 운전이 시작된 1996년 이후 2002년까지 발생하였던 고체 폐기물의 양을 정리하고 원자로 출력량과의 상관 관계를 비교하였다. 이 기간동안 발생한 폐기물량 및 처리 비용은 각각 69,598 ℓ, 1,878만원이었으며 출력량 대비 폐기물 발생량 및 처리 비용은 각각 3.01 ℓ/MWD, 811원/MWD이다. 또한 폐수지의 부피를 줄이기 위해 수지건조장치를 개발하여 폐수지의 양을 약 40% 감소시켰다.

Abstract

The quantity of solid waste produced during HANARO operation for the years from 1996 to 2002 has been investigated and the interrelation with the reactor power output has been analysed. The waste amount produced during this period was 69,599 ℓ and the processing expense was 1,878,000 won. The waste amount and processing expense per reactor power output are 3.01 ℓ/MWD and 811 won/MWD, respectively. A dry equipment for the spent resin was developed and the spent resin volume has been reduced by about 40% by using it.

1. 서 론

하나로시설은 하나로 본체와 부속 실험시설로 구성되어 있으며 이를 운영 및 이용하는 과정에서 방사성폐기물이 발생된다. 하나로에서 발생하는 방사성 폐기물은 대부분 저준위 또는 극저준위 폐기물이다. 고체 폐기물은 작업자와 방문자가 사용했던 작업복, 휴지, 덧신, 장갑, 폐부품 등의 가연성과 수조수 정화 계통에서 배출되는 폐수지, 폐필터 및 계통 또는 기기의 작업 후 발생하는 철제류 등의 비가연성으로 분류된다.

본 논문에서는 1996년부터 2002년까지 하나로 원자로실에서 발생한 고체 폐기물의 발생량, 처리비용 및 원자로 출력량과의 관계를 비교하고 폐기물 발생 저감을 위하여 조치된 내용을 기술하였다.

2. 고체 폐기물 발생원

하나로 원자로실에는 하나로 본체와 이용시설이 있다. 원자로실 내에 있는 이용시설로는 빔 포트를 이용하는 중성자 실험시설, 시료의 중성자 조사를 위한 수직조사공, 중성자 방사화 분석을

위한 공기이송장치 및 수력이송장치가 있다. 이러한 장치들의 운영 및 이용 과정에서 방사성 폐기물이 발생되며, 하나로의 운전 및 보수, 실험시설 이용자들의 원자로실 작업, 실험 등의 업무 수행 과정에서 발생된다.

가연성 폐기물은 작업자 및 실험자의 작업복, 신발, 덧신과 작업 후 부산물로 발생하는 비닐, 휴지, 호스, 장갑, 고무장갑, 실끈, 플라스틱 류 등이 있다. 비가연성 폐기물은 하나로 시설과 계통의 수리 및 보수 작업 후 발생하는 파이프 조각 등 철제류와 이용 부서에서 실험 설비 및 기기들의 설치 후 발생하는 쓰레기 중 오염된 전선, 석면, 편사호스 등 각종 작업 부산물과 시료의 중성자 조사 후 발생하는 와이어 등이 있다. 폐수지 및 폐필터는 1차 냉각수 및 사용후 저장조 냉각수의 수지 및 필터 교체 작업 후 발생하는 폐수지와 폐필터, 환기계통에서 배출되는 HEPA, Medium, Charcoal등의 공기 필터 등이 있다.

3. 연도별 폐기물 발생 현황

표 1에 1996년(1995년 2월 임계 이후 시운전 분 포함)부터 2002까지 하나로에서 발생한 폐기물 발생량을 가연성, 비가연성, 폐공기 필터 및, 폐수지 별로 분류하였으며 총 폐기물량은 69,598ℓ로, 1 MWD 당 3.01ℓ가 발생되었으며 이를 그림 1에 나타내었다. 폐기물 관리 부서로 이송한 폐기물량은 60,600ℓ(349 드럼)로 처리비용은 1,878만원, 1 MWD 당 811원이 지출되었다(표 2). 그림 2는 발생한 폐기물의 총구성비로, 가연성 폐기물이 58%, 비가연성이 5%, 폐공기 필터가 20%, 폐수지가 17%를 차지하고 있다. 그림 3은 발생한 폐기물의 연도별 구성비율이며, 96년에는 폐수지가, 97년에 이후에는 가연성 폐기물이 대부분을 차지하고 있다. 그림 4는 연도별 발생 증감율을 나타낸 그림으로 1996년도 폐수지 증가는 원자로 시운전 과정에서 수조 및 1차 계통의 이물질 흡착 등으로 수지 교체가 많았기 때문이며 1995년도의 발생분이 포함되어 있기 때문이다. 1999년도에 가연성 폐기물이 증가한 이유는 BNCT(boron neutroncapture therapy) 조사시설 설치와 원자로실 바닥 확장 공사, 열 교환기 전열판 교체 작업과 하나로 시설 정기 검사로 시설 및 계통의 점검이 있었고 또한 원자로실 방문객이 늘어 덧신 사용량이 많았기 때문이다. 2001년도는 BNCT 차폐체, 원자로 수조 덮개 등의 설치 작업등으로 가연성 폐기물이 증가하였다. 또한 2002년도 폐수지 발생량이 증가한 이유는 원자로 출력 일수 증가 및 출력 상승 등 수지 교체 주기가 짧아진 것이 원인이다. 이외에 가연성 폐기물이 급감한 것은 9.11 테러 이후 이의 영향으로 방문객의 원자로실 입실이 금지됨에 따라 덧신의 사용이 급감하였기 때문이다. 가연성 및 비가연성은 이용시설의 설치가 일단락 되었고 작업 종사자의 저감 노력으로 점차 감소되고 있다.

표 1. 연도별 고체 폐기물 발생 현황

연도	가연성 (ℓ)	비가연성 (ℓ)	폐공기필터 (ℓ)	폐수지 (ℓ)	계 (ℓ)	출력량 (MWD)	발생량/출력량 (ℓ/MWD)
1996	2,526	833	2,787	5,383	11,530	2,688	4.29
1997	7,143	280	1,546	1,653	10,621	2,036	5.22
1998	5,833	280	1,580	1,027	8,720	3,062	2.85
1999	7,582	307	2,395	585	10,870	3,042	3.57
2000	5,190	387	2,449	968	8,995	3,699	2.43
2001	8,551	495	1,726	1,010	11,782	3,771	3.12
2002	3,352	961	1,568	1,201	7,081	4,853	1.46
계	40,177	3,542	14,053	11,827	69,598	23,151	3.01

표 2. 연도별 고체 폐기물 이송 현황

연도	가연성 (ℓ)	비가연성 (ℓ)	폐공기 필터 (ℓ)	폐수지 (ℓ)	계 (ℓ)	계 (드럼)	처리 비용 (원)	처리비용/출력량 (원/MWD)
1996	1,400	800	2,400	4,000	8,600	55	2,666,000	992
1997	7,400		1,600	2,800	11,800	67	3,658,000	1,797
1998	5,400			1,200	6,600	33	2,046,000	668
1999	7,400	800	2,000	400	10,600	53	3,286,000	1,080
2000	4,200				4,200	21	1,302,000	352
2001	10,400	800	5,200		16,400	108	5,084,000	1,348
2002	2,400				2,400	12	744,000	153
계	38,600	2,400	11,200	8,400	60,600	349	18,786,000	811

4. 출력량 대비 폐기물 발생량 검토

1995년 2월 임계이후 하나로에서 발생한 폐기물량과 출력량의 상관 관계를 검토하였다(그림 5). 출력 1 MWD당 발생한 폐기물량은 3.01 ℓ이다. 1997년도 출력량 별 폐기물 발생량이 5.22ℓ로 높은 것은 원자로 정기검사와 정기적인 핵연료 정기검사로 출력량이 전년도보다 약 20% 감소하였으나, 오히려 고체 폐기물은 원자로실 천정 보수작업으로 인하여 증가하였기 때문이다. 이후 폐기물량은 전체적으로 매년 감소 추세에 있으나 폐수지 및 공기필터의 배출량은 원자로 운전 일수 및 출력량의 증가에 따라 점진적으로 증가하고 있는 추세이다. 아울러 가연성 폐기물도 원자로 운전시간과 방문객의 수와 비례하여 증가하고 있다. 폐수지에는 약 55% 이상의 수분이 포함되어 있으므로 이를 조절하면 체적을 감소시킬 수 있다. 그리고 폐수지를 폐기물 보관 장소로 이송하기 전에는 습기 제거가 기본 요건중의 하나이다. 이에 따라 폐수지 건조장치를 개발하여 부피를 약 40% 감소시켰다(그림 6).

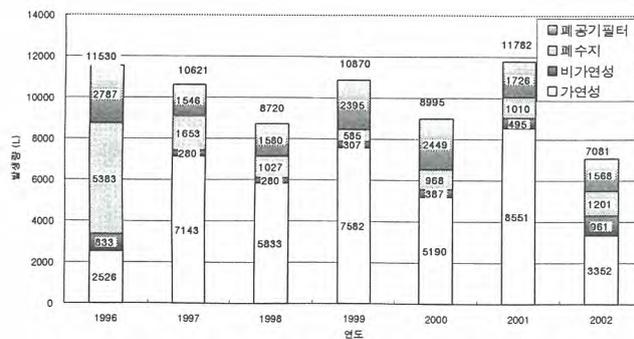


그림 1. 연도별 고체 폐기물 발생량

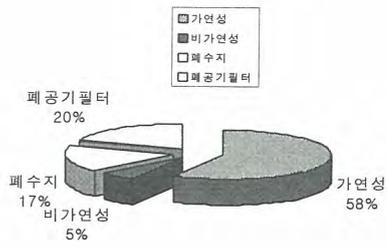


그림 2. 폐기물 총 구성 비율

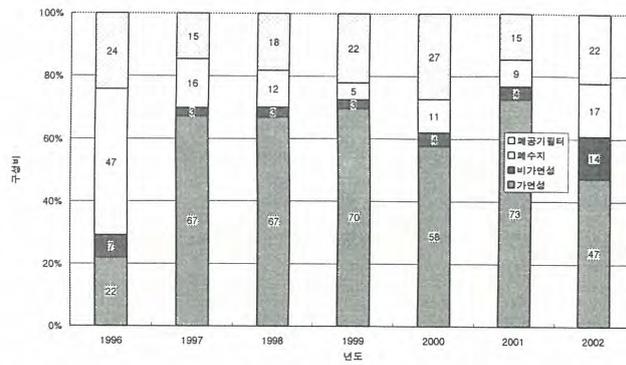


그림 3. 연도별 고체 폐기물 구성 비율

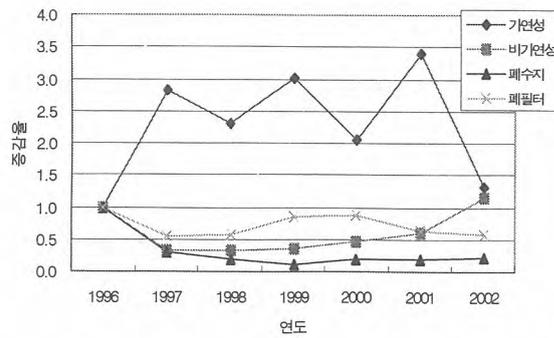


그림 4. 연도별 증감율

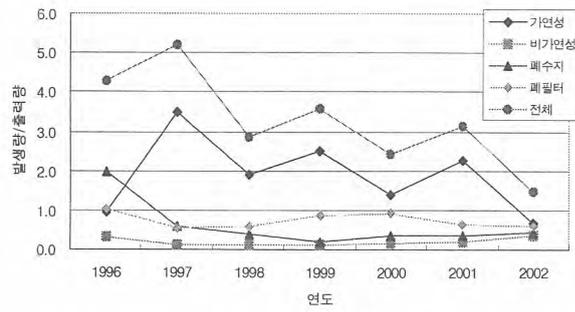


그림 5. 출력량 대비 발생량

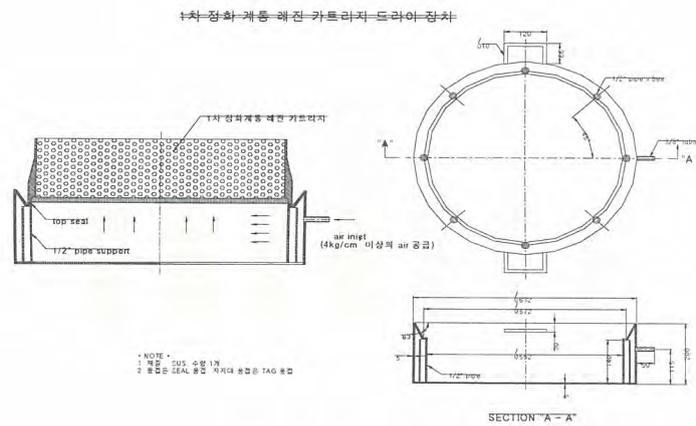


그림 6. 폐수지 건조장치 도면

5. 결 론

하나로의 출력운전이 시작된 이후 1996년부터 2002까지 하나로에서 발생한 폐기물 및 처리 비용은 각각 69,598 l, 1,878만원이다. 또한 원자로 출력 1 MWD 당 발생량 및 처리 비용은 3.01 l, 811원이었다. 또한 폐수지의 부피를 줄이기 위해 수지건조장치를 개발하여 폐수지의 양을 약 40% 감소시켰다.

감사의 글

본 연구는 정부의 출연금에 의한 기관 고유 사업으로 수행되었기에 감사의 뜻을 표한다.

참 고 문 헌

- [1] 하나로 운영기술지침서, KAERI/TR-708/96, 한국원자력연구소
- [2] 하나로 안전성 분석보고서, KAERI/TR-710/96, 한국원자력연구소
- [3] "2002년 하나로 운영", 한국원자력연구소, KAERI/MR-395/2002

하나로의 액체 폐기물 발생 현황 및 저감 대책

A study on decreasing the liquid waste and the liquid waste production status in HANARO

강태진, 황승렬, 최호영
한국원자력연구소

요 약

1996년부터 2002년까지 하나로의 출력 운전 중 발생한 액체 폐기물의 양을 조사, 정리하고 원자로 출력량과의 상관 관계를 비교하였다. 이 기간동안 발생한 폐기물량 및 처리비용은 각각 263,530 ℓ, 8,169만원이었으며 출력량 대비 폐기물 발생량 및 처리 비용은 각각 11.38 ℓ/MWD, 157 원/MWD이다. 폐기물 저감 대책은 원자로 홀 내에서 수행되는 보수 작업 및 실험 공정을 개선하여 저감하였다.

Abstract

The quantity of liquid waste produced during HANARO operation for the years from 1996 to 2002 has been investigated and the interrelation with the reactor power output has been analysed. The waste amount produced during this period was 263,530 ℓ and the processing expense was 81,690,000 won. The waste amount and processing expense per reactor power output are 11.38 ℓ/MWD and 157 won/MWD, respectively. The waste has been reduced by improving repair work procedure and experiment process in the reactor hall.

1. 서 론

방사성 폐기물이란 방사성 물질과 방사성 물질에 의하여 오염된 물질 중 폐기의 대상이 되는 물질로 경제적인 가치가 없는 것을 말하며, 방사능이 높고 낮음에 따라 고준위, 중준위 및 저준위 폐기물로 분류한다. 하나로 시설에서 발생하는 액체 폐기물은 원자로와 원자로 보호계통, 부속 실험 시설의 운영 과정에서 발생되며 대부분 저준위 또는 극저준위 폐기물에 해당된다. 액체 폐기물은 원자로실 출입자가 출입 후 오염 또는 오염 발생 가능부분의 세척 시 발생하는 Hot shower sump 폐기물과 수조상부의 배수구, 세척실, 기계실 등의 배수구를 통해 모여지는 Reactor sump 폐기물로 분류된다.

본 논문에서는 1995년 원자로 임계 이후 2002년까지의 출력 운전 기간 동안 하나로 원자로실에서 발생된 액체 폐기물의 발생량과 처리비용을 산출하여 원자로 출력량과의 관계를 비교하고 폐기물 발생 저감을 위하여 취한 대책을 기술하였다.

2. 액체 폐기물 발생원

하나로 원자로실에는 원자로와 보조계통, 원자로를 이용하는 이용시설이 있다. 이용 시설에는 빔 포트를 이용하는 중성자 실험시설, 시료의 중성자 조사를 위한 수직 조사공, 공기 이송 장치 및 수력 이송 장치 등이 있는데, 이 장치들의 운영 및 이용 과정에서 방사성 액체 폐기물이 발생한다.

하나로에서 발생하는 모든 방사성 액체 폐기물은 23톤 용량의 원자로실 배수조(Reactor sump) 와 10톤 용량의 핫샤워 배수조(Hot shower sump)로 분리 수집된다. 위치별 폐기물 발생원은 다음과 같다.

2.1 원자로실 배수조에 수집되는 폐기물

1차 계통 기계실에 있는 열교환기, 냉각펌프, 밸브류 등의 누수와 보수작업 시에 다량의 액체 폐기물이 발생한다. 그리고 1차 냉각수 정화계통과 사용후 핵연료 저장조 냉각계통의 수지 및 필터 교체 작업을 위해 이온교환기와 필터 하우징을 계통으로부터 격리시켜 내부의 물을 배수시킬 때도 많은 양의 액체 폐기물이 생긴다. 그외 새 핵연료의 세척, 원자로 수조에 들어가는 실험 장비 및 구조물의 세척, 조사된 NTD(Neutron Transmutation Doping) 인코트의 제염, 실험 후 반출되는 장치들의 제염 작업이나 원자로실 청소 시에도 폐기물이 발생된다.

2.2 Hot shower sump에 수집되는 폐기물

주로 원자로실 작업자 또는 출입자의 신체 오염 부위를 제염할 때 발생한다.

2.3 수집 탱크 및 이송 계통

Rx sump 및 Hot shower sump 수위가 높아져 1.0m, 1.6m에 도달하면 시료를 채취해 수질 분석을 하고 방사능 농도를 확인한다. Sump 수위가 더욱 높아져 1.1m, 1.7m에 도달하면 자동으로 동위원소 건물의 액체 폐기물 저장조로 이송된다. 동위원소 건물의 액체 폐기물 탱크 용량은 극저준위 탱크 50톤(25톤 용량 탱크 2개)과 저준위 탱크 50톤(25톤 용량 탱크 2개)으로 구성되어 있으며, 그림 1은 액체폐기물 이송 계통도를 개략적으로 보여 주고 있다.

3. 연도별 폐기물 발생 현황

표1은 1996년부터 2002년까지 하나로의 연도별 액체폐기물 발생량 현황과 출력량별 발생량 및 처리 비용이다. 총 발생량은 263,530 ℓ, 총 처리비용은 8,169만원 이었으며, 원자로 출력 1 MWD당 발생량과 처리 비용은 각각 11.38 ℓ, 157원이다. 그림 2는 연도별 액체 폐기물 발생량을 보여 주고 있다. 1997년도에 Rx Sump 액체 폐기물이 증가한 이유는 1차 열교환기 분해 청소 및 원자로실 천정 석고 보드가 사용후 저장조로 떨어져 사용 후 수조수 일부를 폐기물로 처리하였기 때문이며, 이후 발생량은 정상적인 운영 상태에서 발생한 것으로 매년 감소하는 추세이다. 그림 3은 수집된 액체 폐기물의 수집원 별 구성 비율을 보여 주고 있다. 운전 시작 후 4년이 경과된 1999년부터는 Hot sump에서 발생하는 액체 폐기물이 급감하고 있다. 이는 원자로실에서의 작업 절차가 확립되어 작업자의 오염이 줄었기 때문이다. 그림 4는 발생된 액체 폐기물의 총구성비로, Rx Sump가 88%, Hot sump가 12%로 Rx Sump 폐기물이 대부분을 차지하고 있다. 그림 5는 연도별 발생 추이를 보여 주고 있는데 액체 폐기물은 매년 감소하는 추세이다. Rx Sump 폐기물 발생량이 2001년에 증가한 이유는 수조 덮개의 신규 제작, 설치에 따른 설비의 세척, 열교환기 전 열판 제염 작업 등 비정기적인 작업의 증가에 따라 액체 폐기물량도 증가하였기 때문이다.

4. 출력량 대비 폐기물 발생량

그림 6은 1995년 2월 이후 하나로에서 발생한 폐기물량과 출력량의 상관 관계를 보여주고 있다. 출력 1 MWD당 발생한 폐기물량은 11.38ℓ이다. 1997년도 출력량별 폐기물 발생량이 30.24ℓ로 높은 것은 원자로 정기검사와 정기적인 핵연료 검사로 출력량이 전년도에 비해 약 80%로 감소한 반면, 계획되지 않은 1차 열교환기의 분해, 청소작업으로 인하여 액체 폐기물 양이 증가하였기 때문이다. 이후 폐기물량은 전체적으로 매년 감소하고 있다. 2001년도 액체 폐기물량이 증가한 이유는 원자로 수조 덮개 교체 작업으로 인한 설비 세척 및 정기검사로 인한 물 사용량이 늘어났기 때문이다. 이를 제외한 1997년 이후 매년 운전 일수 및 출력량은 증가하고 있지만 폐기물 발생량은 점차 감소하고 있음을 그림을 통해서 볼 수 있다.

5. 폐기물 저감 대책

지난 7년간의 운전 경험을 토대로 원자로실 내에서 폐기물 저감을 위해 개선된 작업 또는 실험 공정(세척 및 배수)등은 다음과 같다.

열 교환기, 펌프 점검 및 보수, 체크 밸브의 상태 점검 시에 배출되는 1차 냉각수는 임시 펌프와 호스를 설치하여 작업수조로 되돌려 보낼 수 있도록 조치 후 작업을 수행하였다. 또한 정화계통 수지 및 필터 교체 시 배수되는 물을 최소화하기 위해서 격리 밸브의 누수를 차단하였으며, 조사 후 NTD 인고트를 제염하는 공정을 개선하여 행군 물은 Rx sump로 배수하지 않고 작업수조 또는 사용 후 수조의 보충수로 사용하였다. 그리고 핵연료 이동용 캐스크 제염작업은 작업수조에서 실시하여 액체 폐기물 발생이 저감되도록 조치하였으며, 원자로실 퇴실자 중 오염되지 않은 사람은 청정구역에서 손을 닦도록 절차를 개선하였다.

표 1. 연도별 액체 폐기물 발생 현황

연도	Rx Sump(ℓ)	Hot Sump(ℓ)	계(ℓ)	처리비용(원)	출력량(MWD)	발생량/출력량(ℓ/MWD)	처리비용/출력량(원/MWD)
1996	24,570	9,913	34,483	10,689,686	2,688	12.83	425
1997	55,530	6,048	61,578	19,089,326	2,036	30.24	452
1998	37,890	8,102	45,992	14,257,530	3,062	15.02	268
1999	30,560	3,355	33,915	10,513,699	3,042	11.15	112
2000	25,480	3,040	28,520	8,841,135	3,699	7.71	69
2001	37,940	986	38,926	12,067,027	3,771	10.32	21
2002	19,130	986	20,116	6,235,927	4,853	4.15	13
계	231,100	32,430	263,530	81,694,330	23,151	11.38	157

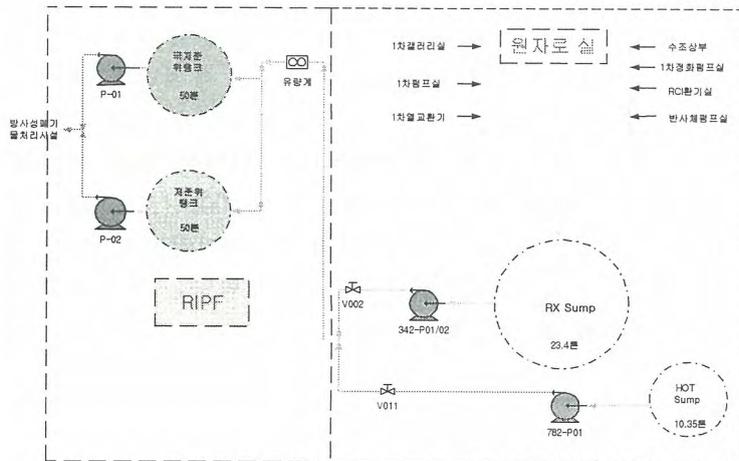


그림 1. 액체 폐기물 수집 탱크 및 이송 계통도

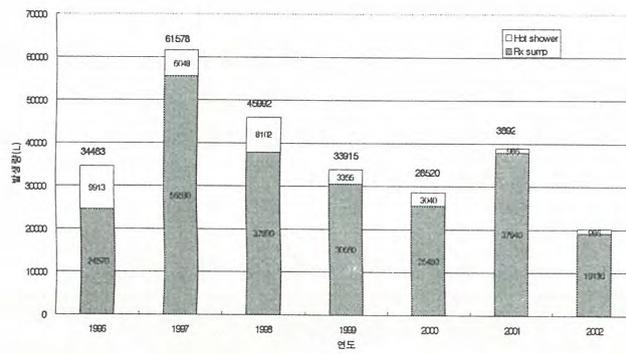


그림 2. 액체 폐기물 발생량

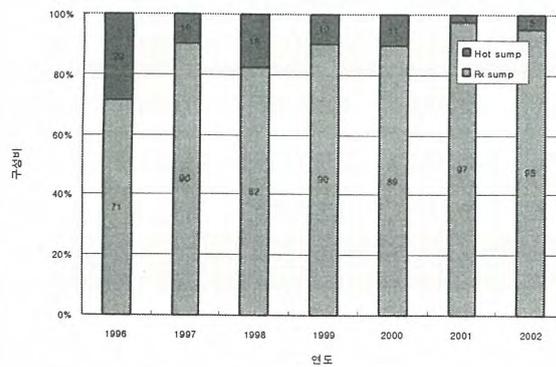


그림 3. 액체 폐기물 구성 비율

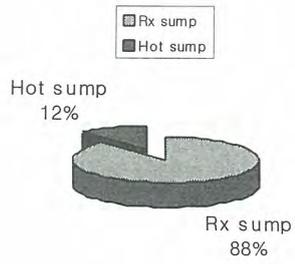


그림 4. 발생 구성비

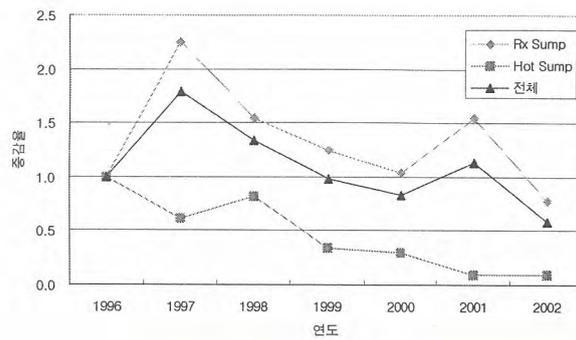


그림 5. 발생 증감율

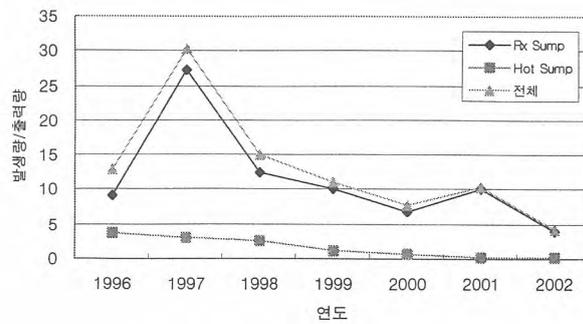


그림 6. 출력량 대비 발생량

6. 결 론

하나로의 출력운전이 시작된 이후 1996년부터 2002까지 하나로에서 발생한 폐기물 총량 및 총 처리 비용은 각각 263,530 ℓ, 8,169만원이다. 원자로 출력 1 MWD 당 발생량 과 처리 비용은 11.38 ℓ, 157원이다. 운전 일수 및 출력량은 매년 증가하고 있지만 전반적으로 액체 폐기물 발생 추이는 1997년을 제외하고 점차 감소하는 경향을 나타내고 있다. 지난 7년간의 운전 경험을 토대로 원자로실 내에서 폐기물 저감을 위해 개선된 작업 과 실험 공정(세척 및 배수)은 첫째, 정화계 통 수지 및 필터 교체 시 배수되는 물을 최소화하기 위해서 격리 밸브의 누수를 차단하였으며, 조 사 후 NTD 인고트를 제염하는 공정을 개선하여 행군 물은 Rx sump로 보내지 않고 작업수조 또 는 사용 후 수조의 보충수로 활용하였다. 둘째, 열 교환기 보수 또는 펌프 점검 및 보수, 체크 밸 브의 상태 점검 시에 배출되는 1차 냉각수는 임시 펌프와 호스를 설치하여 작업수조로 되돌려 보 낼 수 있도록 조치 후 작업을 수행하였다. 셋째, 핵연료 이동용 캐스크 제염작업을 작업수조에서 실시하여 액체 폐기물 발생이 저감되도록 조치하였으며, 원자로실 퇴실자 중 오염되지 않은 사람 은 청정구역에서 손을 닦을 수 있도록 절차를 개선하였다.

감사의 글

본 연구는 정부의 출연금에 의한 기관 고유 사업으로 수행되었기에 감사의 뜻을 표한다.

참 고 문 헌

- [1] 하나로 운영기술지침서, KAERI/TR-708/96, 한국원자력연구소
- [2] 하나로 안전성 분석보고서, KAERI/TR-710/96, 한국원자력연구소
- [3] “2002년 하나로 운영”, 한국원자력연구소, KAERI/MR-395/2002

방사성 액체 폐기물 처리공정 관리 응용프로그램 구현

Implementation of a Management Applied Program for Liquid Radioactive Waste Treatment

이영희, 안섬진, 조한석, 손종식,
한국원자력연구소

요 약

한국원자력연구소에서 발생하는 액체폐기물은 환경으로의 무방출 원칙에 따라 탱크에 임시저장 하면서 증발농축의 감용처리를 거쳐 고체화하거나 자연증발시설을 통해 최종 증발 처리를 한다. 폐기물의 효율적 관리를 위한 체계적인 이력관리와 문서관리 및 각종 통계자료를 도출할 수 있는 데이터베이스 시스템의 구축의 일환으로 현재 연구소에서 실시하는 액체와 고체 방사성폐기물의 처리공정상에서의 데이터 확보가 필요하다. 이를 위해 폐기물 발생현황과 처리공정별 데이터를 분석하고 공정의 흐름과정에서 확보하는 데이터를 데이터베이스에 입출력하는 응용프로그램 설계를 완료하였다. 본 연구는 연구소에서 발생하는 방사성폐기물의 발생현황과 이를 수집하여 부피축소와 감용 처리 공정을 거치는 일련의 공정과정을 분석하여 도식화한 결과와 이를 토대로 폐기물처리 업무에 맞는 데이터 입출력 프로그램을 설계 내용을 소개한다. 제한된 환경에서의 실험이 아닌 실제 처리공정상의 데이터는 서류와 인적, 물적 자원의 절약을 도모하고 방사성폐기물에 대한 추적관리 및 처리의 효율성을 향상시키며 정확하고 신속한 정보를 제공하여 방사성폐기물의 물질수지연구에 이바지 할 수 있다.

Abstract

A data collection of a liquid radioactive waste treatment process of a research organization became necessary while developing the RAWMIS(Radioactive Waste Management Integration System) which it can generate personal history management for efficient management of a waste, documents, all kinds of statistics. This paper introduces an input and output application program design to do to database with data in the results and a stream process of a treatment that analyzed the waste occurrence present situation and data by treatment process. Data on the actual treatment process that is not limited experiment improve by a document, human traces, saving of material resources and improve with efficiency of tracking about a radioactive waste and a process and give help to radioactive waste material valance and inventory study.

1. 서 론

연구소내의 원자로 및 동위원소 생산시설, 조사후 시험시설, 조사재 시험시설, 화학분석시설 및 각 연구실에서 발생하는 방사성 액체 및 고체폐기물을 안전하게 처리하고 있다. 방사성 폐기물 처리시설은 증발농축 및 이온교환 설비와 아스팔트 고화설비를 포함한 액체폐기물 처리시설과 압축, 절단설비, Shredder를 포함하는 고체폐기물 처리시설, 오염기기 세염시설 및 오염피복 세탁시설로 구성되어 있다. 그 외에 극저준위 방사성 액체폐기물을 무방출 개념으로 최종처리하기 위한 자연증발시설과 고체폐기물 저장고가 있다. 수집된 방사성 액체폐기물은 증발농축 처리하고 농축액은 폐 이온교환수지와 함께 혼합하여 아스팔트 고화한 후 고화체는 폐기물 저장고에 저장한다. 증발농축 후 생성된 증기는 응축시켜 이온교환처리로 잔류방사능을 제거시킨 후, 자연증발시설로 수송하여 최종 증발 처리한다. 특히 액체폐기물의 수집과 처리 부분은 몇 가지 공정을 거치며 관리된다. 이러한 일련의 액체 폐기물 처리절차를 분석하고 과거 문서상의 내용을 데이터화 한 후 발생특성과 처리공정 상에서 발생하는 데이터를 확보하여 방사성폐기물의 재고기록을 유지하고 물질수지 연구에 활용하고자 데이터베이스와 연동되는 응용프로그램을 구현하였다.

2. 액체 폐기물 관리 업무영역 분석

연구소내의 하나로, 조사 후 시험시설 및 각 연구실에서 발생하는 방사성 액체폐기물은 성분 및 방사능 농도에 따라 분류되어 폐기물 처리시설내의 각 저장탱크로 저장된다.

가. 방사성 액체 폐기물 접수

폐기물 처리시설의 방사성 폐액 저장계통은 극저준위 폐액 저장탱크(50m³ × 3기), 저준위 폐액 저장탱크 (60m³ × 3기), 중준위 및 부식성 폐액 저장 탱크 (20m³, 각 1기) 등으로 구성 되어 있다. 폐기물 발생부서중 조사후 시험시설, 하나로 및 조사재 시험시설은 지하 수송관으로 폐액을 수송하며, 기타 연구실 발생 폐액은 20ℓ 용기를 이용하여 처리시설의 각 저장소에 저장한다. 각 발생부서에서 발생된 폐기물은 이송전 화학 분석 및 방사능 분석을 실시한 후 분석 결과에 따라 적합한 저장탱크를 선택하여 저장한다.

나. 방사성 폐액의 저장관리

발생부서로부터 이송되어 저장된 폐액은 각 저장탱크에 설치된 고수위 및 저수위 경보장치, 수위기록계 등을 통해 중앙집중 제어실에서 수위의 변동을 알 수 있다. 담당자는 저장폐액 관리절차에 의하여 매월 저장탱크의 수위변동사항을 기록하고 매 분기 마다 각 저장탱크 폐액의 시료를 채취하여 화학 및 방사능농도 분석을 분석부서에 의뢰한다. 저장된 폐액은 이 분석결과에 따라 적합한 처리공정으로 처리한다.

다. 증발농축 공정

방사성폐기물처리시설의 증발기는 반회분-강제순환식 (Semi-Batch Forced Circulation) 증발기로서 시간당 약 1m³의 액체폐기물을 처리한다. 증발기내의 폐액은 처리된 양만큼 자동으로 공급되어 항상 일정한 수위를 유지한다. 순환펌프에 의하여 가열기를 통과한 폐액은 증발기 내에서 기화하여 상부에 설치된 6단의 포종단(Bubble Cap Plate)을 통과하게 되는데 이때 수증기에 포함된 다수의 핵종이 제거된다. 포종단을 지난 수증기는 증발기 최상부의 Demister를 거쳐 응축기와 냉각기를 지나 이온교환기에서 미량의 핵종까지 제거한 후 자연증발시설로 수송되어 최종 처리되고

농축액은 아스팔트고화공정으로 보내어 고화처리한다. 증발농축 공정의 흐름을 요약하면 Fig.1과 같다.

라. 아스팔트 고화 처리

아스팔트 고화 장치는 연속적으로 운전이 가능한 박막증발기 형식이며 아스팔트 고화 공정은 크게 6개의 계통(열매체유 순환, 아스팔트 공급, 폐액 및 폐이온교환수지 저장 및 공급, 아스팔트와 폐액의 혼합 및 박막증발, 증발증기 응축, 아스팔트 고화체 포장 및 반출)으로 구성되어 있다. 전 공정의 흐름을 요약하여 나타내면 Fig.2과 같다. 아스팔트 공정으로 처리되는 폐기물은 폐이온교환수지, 증발농축 폐액, 중준위 폐액 및 부식성 폐액을 처리한다. 아스팔트 고화법은 기본적으로는 가열하여 용융된 아스팔트와 방사성 폐기물을 혼합하여 물에 거의 불용성인 고화체를 제조하는 것이다.

마. 자연증발 처리시설

방사성폐기물 처리시설의 액체폐기물 증발농축처리 공정에서 발생하는 정제액은 방사성핵종, 농도 및 pH를 분석한 후 액체수송차량을 이용하여 총 저장용량이 860m³인 자연증발시설의 지하 저장조에 저장한다. 정제액 및 극저준위 방사성폐기물을 최종 처리하는 자연증발시설에서는 면과 Polyester가 함유된 합성섬유를 증발매체로 하여 외부의 공기를 강제 송풍시켜 증발시킨다. Fig.3은 자연증발공정의 흐름을 요약한 것이다. 전체적인 액체폐기물의 흐름을 요약하면 Fig. 4와 같다.

3. 액체폐기물 관리 업무영역 분석을 고려한 관리항목 선정

앞서 분석된 결과를 토대로 관리공정을 단순화하여 공정별로 데이터베이스로 관리하고자 하는 항목을 도출하였다. 관리항목은 크게 물질정보, 용기정보, 처리정보, 이송정보, 시설정보로 구분되며 Fig.5에서는 공정별 관리항목을 표현하였다. 세부공정별 관리항목을 도출하기 위하여 각 공정을 단순화한 흐름도를 작성 후 공정흐름절차에 따라 관리하고자 할 데이터를 선정하였으며 Fig.6부터 Fig.8까지 표현하였다.

4. 액체폐기물 정보관리 시스템 구축

가. 폐기물 정보관리 DB 서버 구성

운영체제는 Windows 2000 Server, DBMS는 Oracle 9i를 사용하였고 하드웨어는 Web Server와 DB Server로 구성하였으며 응용프로그램은 Microsoft Visual Basic 6을 사용하여 구현하였다.

나. 각 화면 프로그램 구현

액체 폐기물의 발생분류 상 소량으로 용기에 담아 관리되는 폐기물과 발생시설에서 대량으로 발생되어 지하 배관을 통해 이송/관리되는 폐기물을 구분지어 그 정보를 관리하도록 액체 폐기물의 관리의뢰와 수집을 단위수집과 라인수송으로 분리하였다. 또 각 공정에서 측정하는 항목들을 관리하여 공정일지 작성, 자료 경향, 통계 및 현황과약 등에 활용한다. 각 공정별 응용프로그램의 화면은 Fig.9부터 Fig.12에 제시하였다.

5. 결 론

방사성폐기물 관리 시스템 및 데이터베이스 설계에 대한 연구결과의 활용에 있어서 과학 기술적

기대 효과로는 연구소에서 발생하는 모든 방사성폐기물의 재고량(inventory) 규명과 물질수지 연구에 처리공정의 데이터를 활용할 수 있다는 것이다. 현업의 담당자가 공정을 운영하면서 실험데이터가 아닌 실제 처리공정상의 데이터를 입출력하는 응용프로그램은 직접적으로 데이터베이스를 제어하고 데이터의 입력과 각종 현황 데이터와 보고서 등의 출력을 원활히 할 수 있도록 데이터베이스와 사용자간의 인터페이스를 제공한다. 특히 현재 국가적으로 추진하고 있는 방사성 폐기물 처분장에 직접적으로 제공이 예상될 자료를 확보할 수 있게 되었다는 점과 함께 그간 관리 체계 미비로 처리공정 및 공정연구에 관련된 자료 수집/정리를 수작업으로 하여 다소 부실했던 방사성 폐기물 이력관리 데이터와 관련된 정보관리를 수행할 시스템을 확보할 수 있는 근간이 되어 추후 연구소 폐기물처리시설에서의 다각적인 폐기물처리에 대한 물질수지연구와 공정연구에 근간이 되는 신뢰성 있는 데이터를 제공하고 데이터를 통계적으로 분석, 평가할 수 있는 기반을 마련할 수 있게 되었다.

사 사

본 연구는 과학기술부의 원자력연구기반확충사업 중 “방사성폐기물 안전관리 통합정보시스템의 구현 및 운영” 과제의 일환으로 수행되었습니다.

참 고 문 헌

1. 김길정 외, “방사성 폐기물 처리시설 운영”, KAERI/MR-387/2002, 한국원자력연구소
2. 이진행, “방사선안전정보체계구축”, 제8회 원자력안전기술정보회의, 한수원(주), 2003
3. 이춘식, “데이터베이스 설계와 구축”, 한빛미디어
4. “방사성폐기물 및 사용후핵연료 안전관리 통합정보시스템 최적체계개발(1단계)”, KINS/HR-477, 한국원자력안전기술원, 2002
5. “방사성폐기물 및 사용후핵연료 안전관리 통합정보시스템 최적체계개발(2단계)”, KINS/HR-477, 한국원자력안전기술원, 2002
6. Kevin Loney, “ORACLE 9i DBA Handbook”, 정보문화사
7. Scott Jesse, “Oracle 9i for Wondows 2000”, 영진닷컴
8. Lick Greenwald, “Oracle Essentials: Oracle 9i, Oracle 8i & Oracl”,e 8, O'REILLY
9. Kerry Watson, “WIPP Waste Information System User’s Guide”, DOE/CBFO 97-2273, Rev.4, Office of National TRU Program, 2002
10. “Waste inventory record keeping system(WIRKS) for the management and disposal of ra-radioactive waste”, IAEA-TECDOC-1222, IAEA, 2001
11. “SWITS data entry and submitted instruction for Hanford Site user”, Hanford Site
12. “Waste Profile Sheets”, Hanford Site
13. “DOE NEWS : Low-level Waste Information Available”, DOE Idaho Operation Office, 1996
14. “Manifest Information Management System(MIMS)”, INEEL
15. “Low-track software-1996”, INEEL

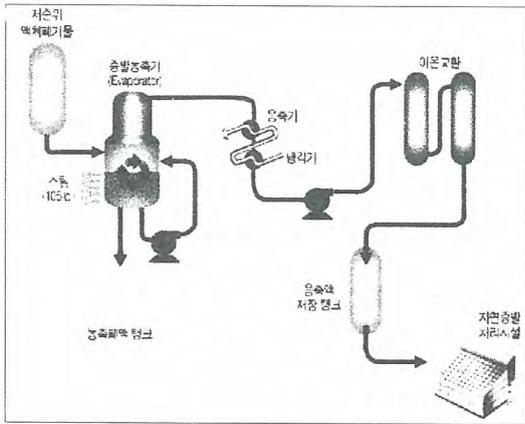


Fig. 1. 증발농축 공정

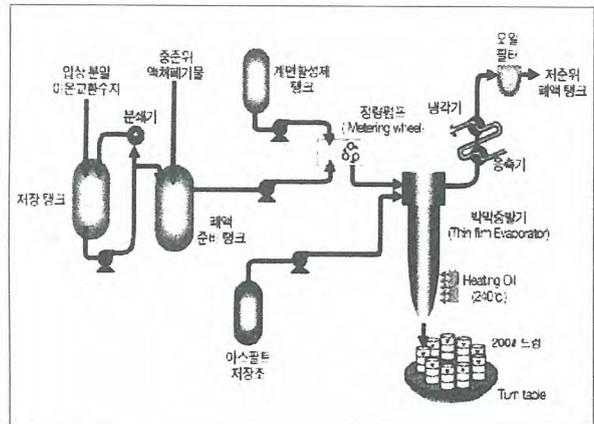


Fig. 2. 아스팔트고화

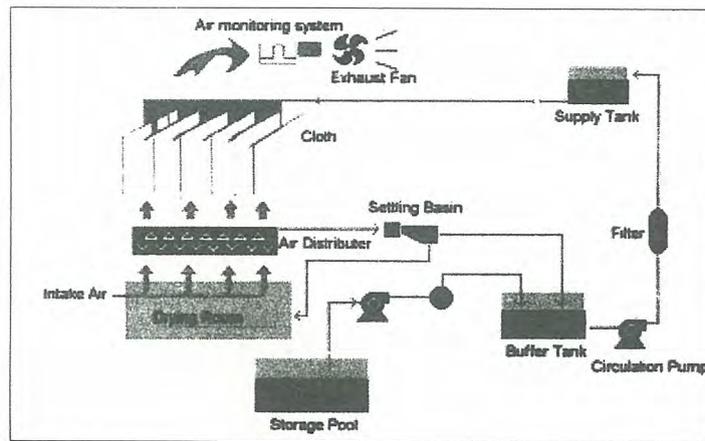


Fig. 3. 자연증발 공정

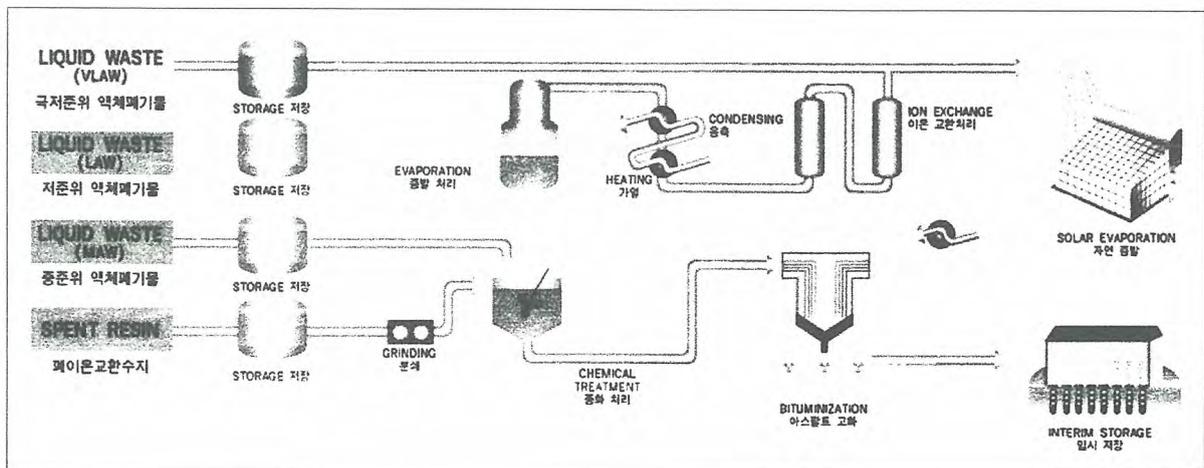


Fig. 4. 액체폐기물의 처리 공정

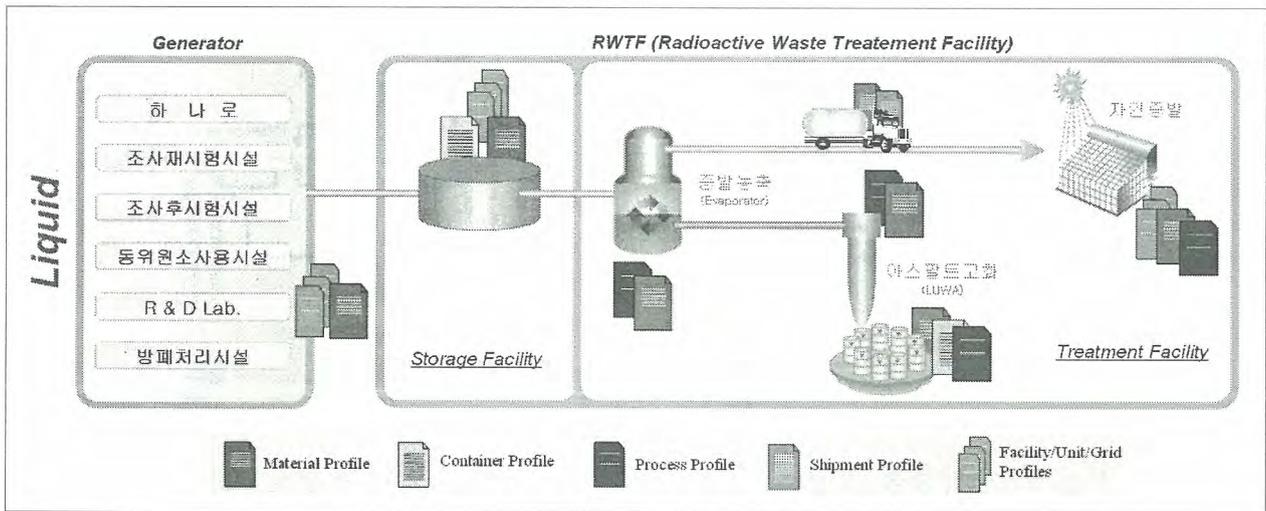


Fig. 5. 공정에 따른 관리항목 선정

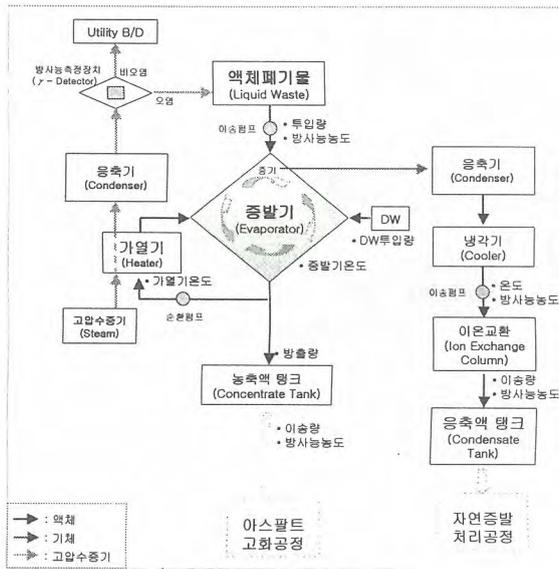


Fig.6 증발농축공정 흐름도

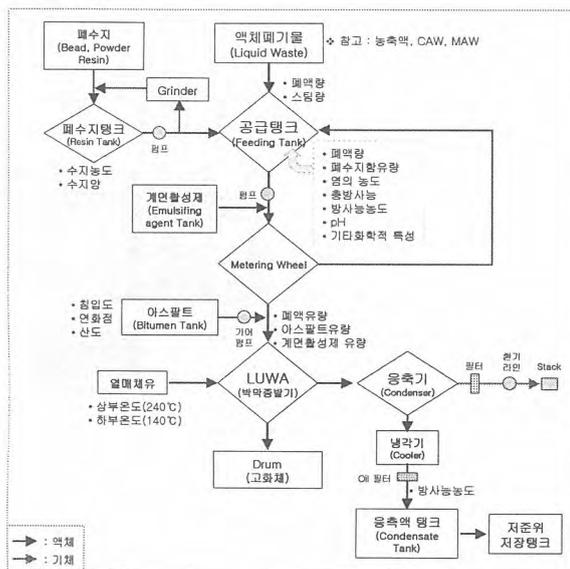


Fig.7 아스팔트고화공정 흐름도

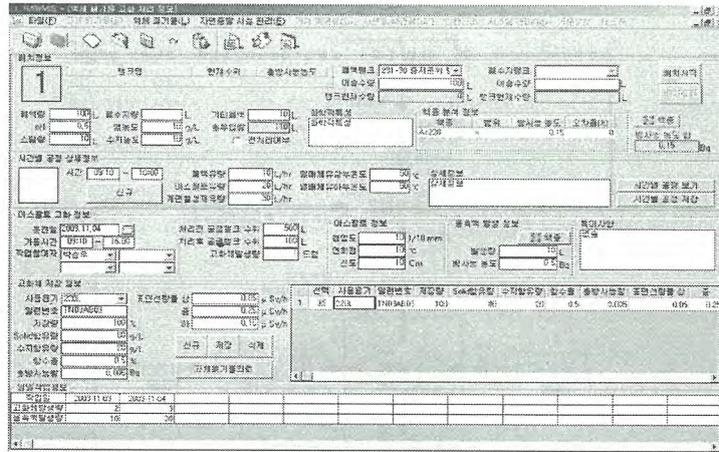


Fig.11 아스팔트 고화 공정 화면

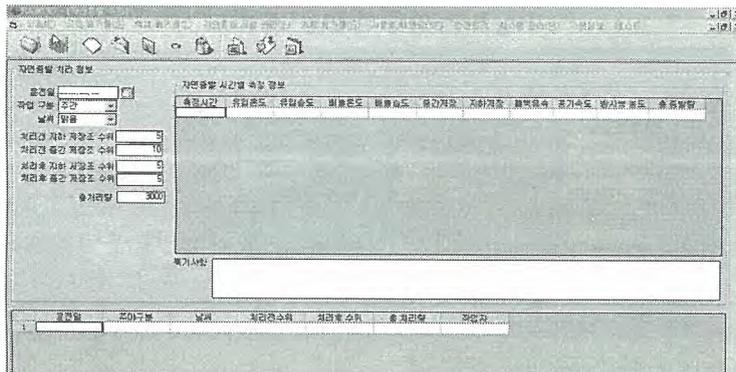


Fig.12 자연증발 공정 화면

KAERI 개발 HEPA 필터폐기물 압축처리장치 특성 및 일본, 미국 압축처리장치와의 비교

Characteristics of HEPA Filter Waste Compactor Developed by KAERI and Comparison with Japan's and U.S.A's Compactors

이강무, 안섬진, 배상민, 손종식, 홍권표
한국원자력연구소
김홍태
한국원자력안전기술원

요 약

원자력산업 분야의 공기정화장치에 사용되고 있는 HEPA 필터폐기물은 무게 약 20 Kg, 크기 610 x 610 x 292 mm의 직육면체로써 무게에 비해 부피가 상대적으로 크다. 따라서 이는 방사성 폐기물의 임시저장 및 영구처분 시에 필요 이상의 많은 저장 공간을 차지하게 되고 관리에 따른 비용도 많이 소요된다. 각국에서는 이런 HEPA 필터폐기물의 부피를 최소화하기 위해서 일반적으로 압축처리를 하고 있는데, 본고에서는 한국원자력연구소(KAERI)에서 개발한 HEPA 필터폐기물 압축처리장치의 특성을 소개하고 일본 및 미국의 압축처리장치와 비교 검토하였다.

Abstract

The HEPA filter waste (Hexahedron, 610 x 610 x 292 mm, 20 Kg), which is used for the ventilation system in the nuclear industries, has relatively large volume to compare with its weight. Due to the large volume of HEPA filter waste, it needs the large storage and/or disposal space and managing cost during the long period of storage and management. Many countries use the compactor to reduce the volume of HEPA filter waste. On this paper we introduce the new type compactor developed by KAERI with the characteristic comparison to the Japan's and U.S.A's compactors.

1. 서 론

HEPA 필터(High Efficiency Particulate Air Filter; 고성능공기여과기)는 원자력산업분야의 환기설비에 사용되는 배기처리장치용 필터로서, 필터폐기물에는 인체에 해로운 방사성 분진 등이 함유되어 있기 때문에 인간 및 자연환경에 영향을 미치지 않도록 안전하게 처리하고 처리된 폐기물은 인문환경으로부터 격리하여 엄격히 관리되어야 한다.

현재 HEPA 필터폐기물의 처리는 일반적으로 필터폐기물을 압축하여 강철재 드럼 등의 포장용

기에 넣어 밀폐포장하는 방식을 택하고 있는데, 여기에는 두 가지 측면이 고려되어야 한다.

그 첫째는 폐기물의 부피를 최소로 감용시키는 문제이며 또 하나는 처리된 폐기물을 규격화된 포장용기에 포장하는 것으로써, 이렇게 함으로써 폐기물의 처리 및 관리를 보다 효율적으로 할 수 있기 때문이다. 이를 위해서는 필터폐기물의 압축처리장치가 무엇보다도 중요하다. 즉, 압축처리장치의 작업공정이 단순하여 처리 소요시간이 짧아야 하며 또한 구조가 간단하여 장치의 운전 및 유지보수도 용이해야 한다.

이에 상응하기 위해서 한국원자력연구소 방사성폐기물처리 팀에서는 종래의 장치를 개선한 보다 효율적인 HEPA 필터폐기물 압축처리장치를 개발하였는데, 여기서는 이에 대한 특성 및 현재 일본 및 미국에서 사용되고 있는 HEPA 필터폐기물 압축처리장치를 비교 검토하고자 한다.

2. 본 론

2.1 기술 현황

HEPA 필터는 일반적으로 알루미늄 또는 아연도 강판의 프레임 안에 여과재를 채운 것으로써 부피에 비해서 무게는 상대적으로 가벼운 제품이기 때문에, 방사성폐기물로써의 처리 및 저장 관점에서 볼 때는 그 형상이나 크기를 적절히 변경시키는 것이 바람직하다.

즉, 방사성폐기물 영구처분장의 건설 및 수백년 간에 걸친 장기간 동안의 저장관리 비용을 줄이기 위해서는 폐기물의 부피를 최소로 줄이는 게 필수적이며 또한, 저장관리의 효율화를 위해서 가능하다면 규격용기에 넣어 포장할 수 있도록 폐기물의 형상을 적절히 변형시킬 필요가 있다.

이를 위해서 HEPA 필터폐기물의 프레임과 여과재를 분해하거나 또는 그대로 압축처리하는 방법을 사용하고 있다. HEPA 필터폐기물의 부피 감용에는 일반적으로 3-axis 압축기를 사용하여 폐기물을 3 방향(x, y, z축 방향)으로 압축하는 방식을 쓰고 있는데, 이는 3 개의 작업공정(x, y, z축 공정)으로 이루어지기 때문에 압축작업에 소요되는 시간이 많이 걸리고, 장치도 크고 복잡해지는 단점을 가지고 있다.

형상의 변형도 역시 3-axis 압축방식을 사용하고 있는데 이는 단순히 HEPA 필터폐기물의 부피 감소만을 위한 것으로써, 방사성폐기물 포장용 규격용기에 적합한 형상으로 변형시키기 위한 목적은 아니다.

근래에는 초고압 압축기를 사용하여 HEPA 필터폐기물은 물론이고 다른 일반적인 압축성 폐기물들을 모두 압축처리 하고 있는데, 압축효율이 좋은 반면 장비의 가격 및 유지관리 비용이 매우 높은 게 흠이다.

2.2 일본 및 미국의 HEPA 필터 압축처리 장치

가. 일본의 HEPA 필터 압축처리 장치

일본에서는 HEPA 필터의 여과재(Media, 濾過材)와 프레임(Frame)을 분해한 후 각각 별도로 처리하는 방식을 사용하고 있다.

Fig.1에서 보는 바와 같이 1차적으로 HEPA 필터의 여과재를 프레임 밖으로 밀어내어 밀에 놓

여 있는 성형실린더 안에 넣은 다음 여과재를 포장용기 드럼에 들어갈 수 있는 형상과 크기로 성형한다.

이렇게 용기에 맞게 성형된 여과재는 다시 성형 실린더 아래쪽에 놓여있는 포장용기 안으로 넣은 다음 여과재의 부피를 줄이기 위한 2차 압축과정을 거치게 된다. 여과재로부터 분리하였던 HEPA 필터의 프레임은 별도의 처리과정을 거치게 된다.

일본의 HEPA 필터폐기물 압축처리장치는 필터의 미디어만을 성형, 압축하는 방식이기 때문에 우선 HEPA 필터폐기물의 미디어와 프레임을 분리시키지 않으면 안된다. 이를 위해서는 별도의 분리공정이 필요하게 되고, 이에 따라 장치가 더 복잡해지고 작업시간도 추가로 길게 소요되게 된다.

성형장치에서도 무려 4개의 압축 실린더가 사용되고 있고, 장치 전체로서는 무려 7개나 되는 많은 실린더를 사용하고 있기 때문에, 장치가 매우 복잡하고 거대해짐은 물론이거니와 이는 필연적으로 잦은 고장의 요인도 안게 된다.

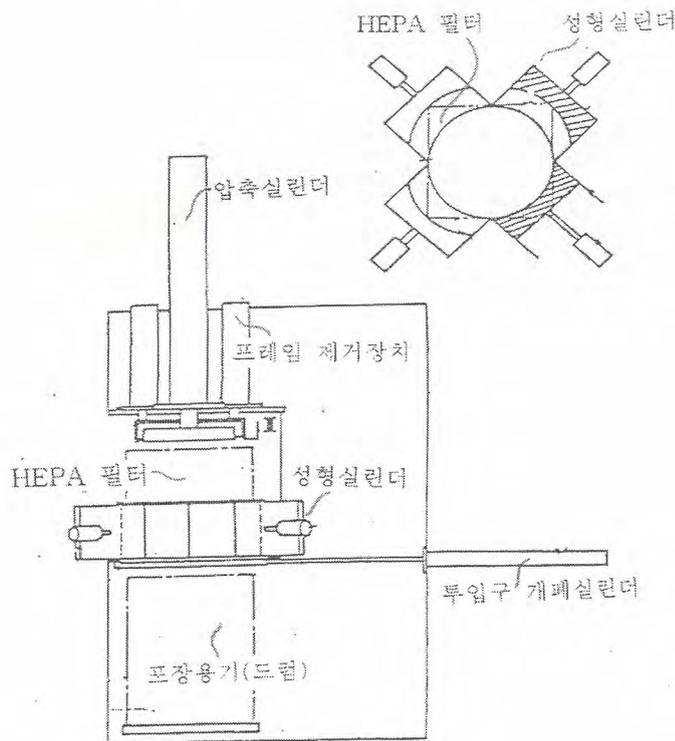


Fig.1 Japan's HEPA Filter Waste Compactor

이 장치는 당초 목적이 필터 미디어만을 성형압축하기 위한 장치이나 만일 이를 미디어와 프레임 포함 필터 전체를 성형, 압축하는 장치로 사용하고자 한다면, 성형 실린더 사이로 돌출하여 밀려나온 프레임 때문에, 현재 방사성폐기물 포장용기로 일반적으로 사용되고 있는 DOT17H 원주형 드럼에는 넣을 수 없는 문제가 있다.

나. 미국의 HEPA 필터 압축처리 장치

미국의 경우에도 압축처리장치의 기본개념은 일본의 방식과 비슷하다. 즉, HEPA 필터의 프레임과 여과재를 각각 별도로 처리하는데, 다른 점은 여과재를 고압으로 압축하여 소형 펠렛으로 만든 다음 포장용기에 담은 방식이다.

기계적 구조를 보면, 먼저 Media Stripping Cylinder로 여과재를 HEPA 필터 프레임으로부터 분리시킨 후 가로축 실린더를 사용하여 1차 압축을 실시한다. 1차 압축을 통하여 펠렛 Die에 적합한 크기로 성형된 여과재를 고압 실린더로 펠렛 Die 안으로 밀어 넣어 압축함으로써 소형의 펠렛을 형성하게 되는 구조이다.

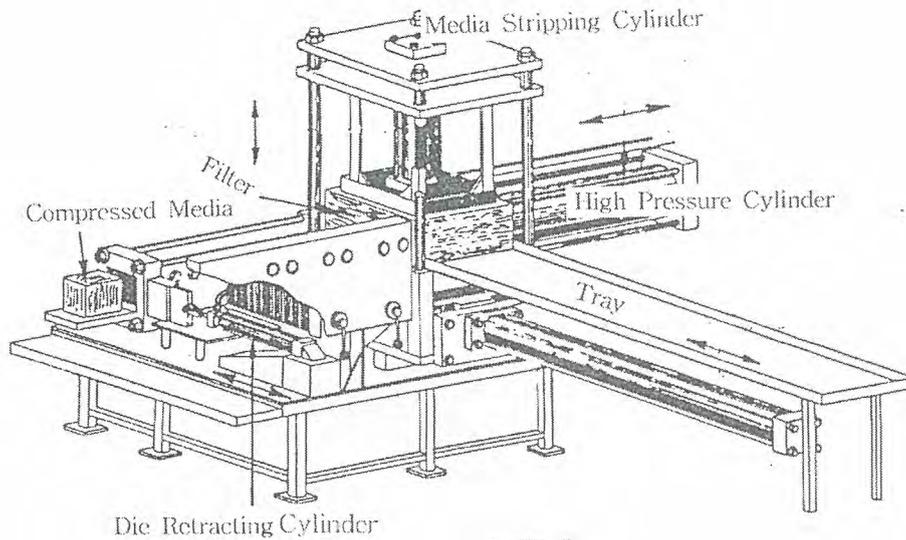


Fig.2 U.S.A's HEPA Filter Waste Compactor

그런데, 이 압축처리장치 역시 Fig.2에서 보는 바와 같이 Die Retracting Cylinder를 포함하여 모두 4개의 실린더를 사용하게 됨으로써 장치가 크고 복잡한 단점이 있다. 그러나 폐기물이 아주 소형의 펠렛으로 성형됨으로 감용효과가 우수한 장점을 가지고 있다. 그러나 압축된 여과재의 복원(Spring back)을 줄이기 위한 별도의 대책이 마련되어야 할 것이다.

2.3 KAERI 개발 HEPA 필터 압축처리 장치

KAERI에서 개발한 HEPA 필터폐기물 압축처리장치는 프레임과 여과재를 분해하지 않고 동시에 압축처리하는 방식을 취함으로써, 처리공정을 단순화하였으며 특히 성형 및 압축용 실린더를 두 개만 사용함으로써 장치를 대폭 간소화하였다.

2축식 원주형 방사성 HEPA 필터폐기물 압축처리장치인 본 개발장치는 Fig.3 및 Fig.4에 보인 바와 같이 이동축 원주형 성형틀(1), 고정축 원주형 성형틀(2), 유압식 성형실린더(3), 유압식 압축실린더(4) 그리고 유압구동 유니트(8)와 장치 프레임(7) 만으로 매우 단순하게 구성되어 있다.

본 장치는 직육면체 형상의 HEPA 필터폐기물(6)을 x축 방향의 단일 성형공정만으로써 x, y축

방향의 변형을 얻을 수 있도록 고안되어 있는데, 이는 두 원주형 성형틀의 독특한 구조 및 작동방식에 의해서 가능하게 된다. 이동측 원주형 성형틀과 고정측 원주형 성형틀이 마치 왼손과 오른손을 깎지 끼듯이 서로 겹치면서 조여줌으로써 x 방향 1축의 단일 성형공정만으로 x, y 두 방향의 변위를 동시에 얻으면서 HEPA 필터폐기물이 원주형상으로 성형되는 방식이다. 이때 고정측 원주형 성형틀은 장치 프레임에 고정되어 있고, 이동측 원주형 성형틀만이 성형실린더에 의해서 이동된다.

또한, 본 장치는 직육면체 형상의 HEPA 필터폐기물이 규격용기인 DOT17H 포장용 드럼에 직접 투입될 수 있도록 원주형상으로 성형하는데, 성형실린더(3)에 의해서 이동측 원주형 성형틀(1)이 고정측 원주형 성형틀(2) 쪽으로 전진을 시작하면 HEPA 필터폐기물은 압축실린더의 바로 아래 위치까지 점점 밀려들어가게 된다. 이 과정에서 직육면체 형상의 HEPA 필터폐기물은 최종적으로는 성형틀(1) 및 (2)의 반경을 갖는 원주형상으로 압축, 성형되게 된다.

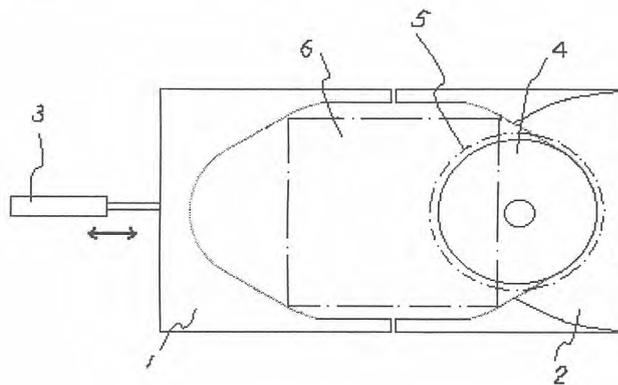


Fig. 3 Schematic Plane View of the Equipment

이렇게 원주형상으로 성형된 HEPA 필터폐기물은 압축실린더(4)에 의해서 압축실린더의 바로 아래 지점에 놓여있는 방사성폐기물 포장용 규격용기인 원주형 드럼(DOT17H Drum) 안으로 자동적으로 직접 투입되면서 동시에 감용을 위한 수직방향(Z축)의 압축이 연이어 진행된다. HEPA 필터폐기물이 압축되어 부피가 최대한도까지 축소되면 압축실린더는 복귀되고, 다시 같은 과정을 반복하면서 다음 HEPA 필터폐기물을 성형, 압축하면서 포장용기 드럼을 가득히 채우게 된다.

Fig.4는 장치의 개략적인 입체도이다. 본 장치 중 성형부분(즉, 압축실린더 부분을 제외한 나머지 부분)의 기능만을 별도로 사용하면, 기존의 일반 압축기를 그대로 병행 사용해서도 본 장치를 사용하는 것과 같은 효과를 얻을 수 있다.

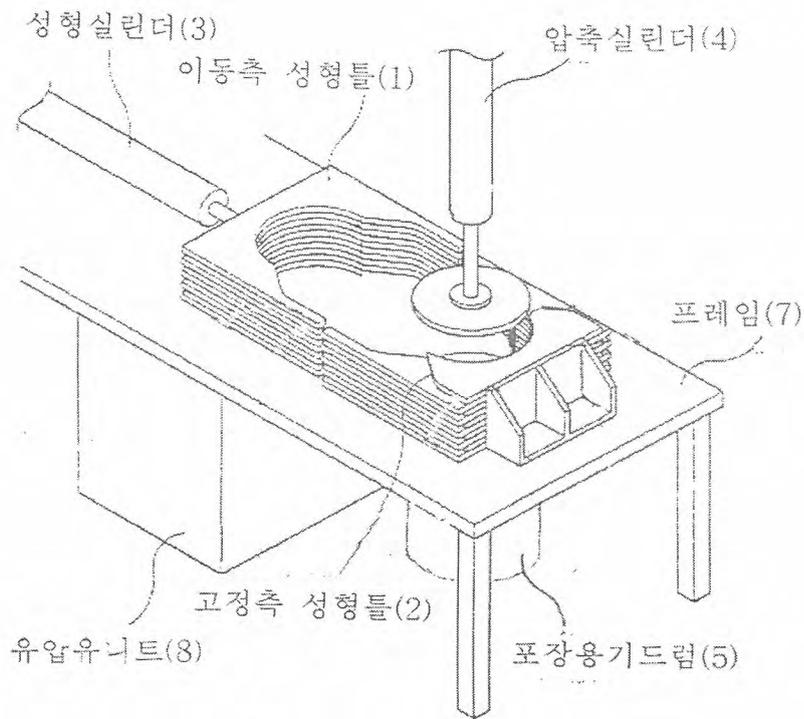


Fig. 4 Schematic Bird-Eye's View of the Equipment

Table 1은 KAERI에서 제작한 장치의 사양, Fig.5는 외형을 보여주고 있다.

Table 1 Specification of the KAERI Compactor

항 목	Specification
크기 및 중량	2,300x1,200x2,200 mm
압축력/압축속도	16 mm/min, 15 ton
압축물 크기(Max.)	640 x 640 x 315 mm
압축 후 크기	460 mm \varnothing x 315 mm H
구동방식	유압 실린더 방식
안전장치	Over-stroke shutdown
Table Lifter 방식	유압 실린더 방식

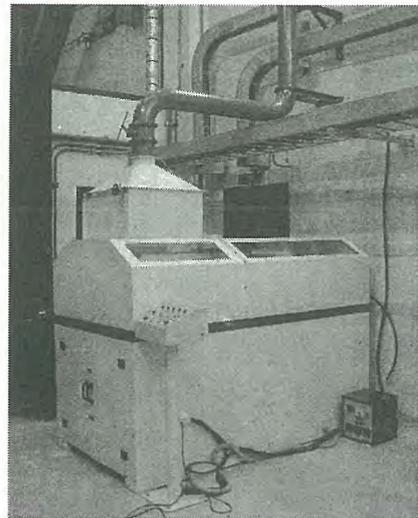


Fig. 5 KAERI's Compactor

KAERI에서는 일반 고체폐기물 처리용으로 보유하고 있는 기존의 압축처리장치를 그대로 사용하기 위해서, 위에 기술한 바와 같이 압축실린더를 제외한 원주형 성형장치만을 제작하였다. 본

장치를 사용하여 직육면체 형상의 HEPA 필터폐기물을 원주형상으로 성형한 후, 방사성폐기물 포장용 규격용기인 원주형 드럼(DOT17H Drum) 안에 넣어 기존 압축기를 사용하여 압축처리하기 위해서이다.

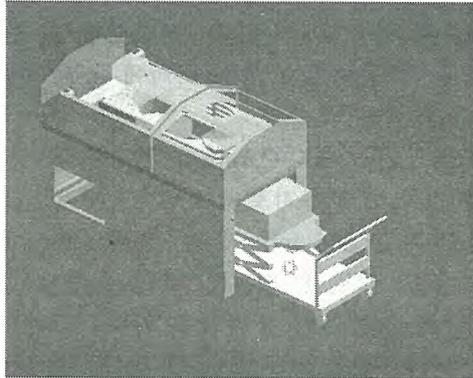


Fig. 6 Compacting Procedure

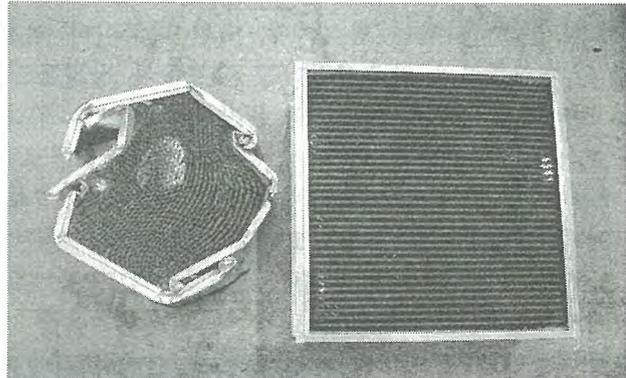


Fig. 7 HEPA Filter Waste
- Before(Right) and After Compaction(Left)

Fig. 6은 본 장치를 사용한 압축처리과정이며 Fig.7의 오른쪽은 압축성형 전의 HEPA 필터폐기물(610 x 610 x 292 mm 직육면체)이고, 왼쪽은 압축성형 후의 HEPA 필터폐기물 형상(ø500 mm 원주형)을 보여주고 있는데, 방사성폐기물 포장용 규격용기인 DOT 17H 드럼(ø606 mm x 높이 884 mm)에 적합한 형상 및 크기를 얻을 수 있었다.

Table 2는 HEPA 필터폐기물과 DOT17H 드럼의 제원 비교표이다.

Table 2 Specification of HEPA Filter Waste and DOT17H Drum

	HEPA 필터 폐기물	DOT17H 드럼
형 상	직육면체	원주형
크 기	610 x 610 x 292 mm	ø 606 x 884 mm
재 료	프레임: 알루미늄, 또는 강철 여과재: Glass Wool	드럼 : 강철 내부 : 방식도장

2. 4 KAERI 및 일본, 미국 압축처리장치의 특성 비교

일본 및 미국의 HEPA 필터폐기물 압축처리방식은 필터의 프레임과 여과재를 분해하여 각각 별도로 처리하는 하는 것이 특징이다. 이는 폐기물을 종류별로 분류하여 처리 및 저장관리 한다는 측면에서는 긍정적이나 이를 위하여 투입되는 시간과 비용 그리고 이에 필연적으로 수반되는 크고 복잡한 압축처리장치의 운전 및 유지관리 비용 등을 고려하면 그렇게 바람직한 방식은 아니다.

미국의 경우에는 HEPA 필터폐기물의 여과재를 분리한 후 이를 고압 압축하여 소형 펠렛으로 만드는 방식인데 폐기물의 부피 감용면에서는 매우 효과적일 것으로 판단된다. 그러나 이 역시 처

리에 투입되는 시간과 비용 등의 문제가 남아 있다. 이렇게 고압으로 처리하는 방식이라면 근래 들어 일반적인 고체폐기물의 처리에 사용되고 있는 초고압 압축기를 이용하는 것이 더 바람직할 것으로 보인다.

KAERI에서 개발한 HEPA 필터폐기물 압축처리장치는 필터의 프레임과 여과재를 분리하지 않고 일괄 압축처리하는 방식이며, 또한 미국이나 일본과 같이 4 - 7개의 많은 실린더를 사용하지 않고 단지 2개만의 압축실린더를 사용하여 장치를 극히 단순화함으로써, 압축처리에 소요되는 시간을 절감하고 장치의 운전 및 유지관리 또한 매우 용이하게 한 방식이다.

또한, HEPA 필터폐기물이 가로 610 mm x 세로 610 mm x 높이 292 mm의 직육면체 형상이기 때문에 현재 우리나라를 비롯하여 외국에서 방사성 폐기물 포장용기로써 마치 국제적인 규격 용기처럼 일반적으로 사용되고 있는 DOT17H 원주형 드럼(직경 606 mm x 높이 884 mm)에 직접 넣어 포장할 수가 없는데, 본 장치는 HEPA 필터폐기물을 적절한 크기를 갖는 원주형상으로 변형시킴으로써, DOT17H 드럼 안에 필터폐기물을 직접 넣어 최종적인 부피감용 압축처리까지 마무리할 수 있게 함으로써 이런 문제를 완전히 해결하고 있다. Table 3은 KAERI 및 일본, 미국의 압축처리장치의 특성 비교표이다.

Table 3 KAERI 및 일본, 미국의 압축처리장치 특성 비교

KAERI	일 본	미 국
1. 필터 프레임과 여과재를 분리하지 않고 함께 처리	1. 필터 프레임과 여과재를 분리하여 별도로 처리	1. 필터 프레임과 여과재를 분리하여 별도로 처리
2. 2축 방식으로 구조 간단	2. 7축방식으로 구조 매우복잡	2. 4축 방식으로 구조 복잡
3. 압축 후 복원 없음	3. 압축 후 복원(Spring back)	3. 압축 후 복원
4. DOT17H 드럼에 직접 포장	4. DOT17H 드럼에 부적합	4. 처리시간 과다소요 및
5. 처리시간 및 장비관리 유리	5. 처리시간 과다소요 및	장비유지관리 어려움
6. 기존 일반압축기 병용 가능	장비유지관리 비용 많음	5. 프레임 별도처리 필요
	6. 프레임 별도처리 필요	

3. 결 론

가. 일본 및 미국의 HEPA 필터폐기물 압축처리장치는 필터프레임과 여과재를 분리하여 별도 처리하는 방식으로써, 처리공정이 복잡하고 이에 따른 비용 및 소요시간이 많이 걸린다.

나. KAERI에서 개발한 HEPA 필터폐기물 압축처리장치는 필터프레임과 여과재를 일괄 처리하는 방식이며 또한, 일본 및 미국의 장치가 다축(4~7축) 구조방식인데 반해 2축방식의 매우 간단한 구조이기 때문에 장치의 운전과 유지관리가 용이하고, 처리시간 및 비용이 감소된다.

다. 또한, HEPA 필터폐기물을 적절한 크기의 원주형상으로 압축, 성형함으로써, 현재 방사성폐기물 포장용기로써 가장 일반적으로 사용하고 있는 원주형 DOT17H 드럼에 직접 넣어 포장할 수 있으며, 필터프레임과 여과재를 함께 압축하는 방식이기 때문에 비압축성 재료인 여과재의 복원변형(Spring back)도 상호 억제되어 포장용기의 적재공간을 100 % 활용하게 된다.

참 고 문 헌

- [1] JP 昭62-113099 “廢 HEPA 필터 濾材減用裝置”
- [2] Buttedahl, O.I. et al., "Compaction and packaging of low level and TRU waste contaminated HEPA filters", Proc. Symp. Waste Manage., v.2, 1981, p.837-848. (CONF-810217-)
- [3] Buttedahl, O.I. "Volume reduction of used HEPA filters", RFP-3132, 1981.

고효율 방사성이산화탄소 흡착제 개발

Development of Adsorbent for Radioactive Carbon Dioxide

지준화, 강덕원
한국전력공사 전력연구원
이재의, 한재욱
아주대학교 분자생명공학부

요 약

중수로형 원전의 감속재 상층기체에 포함되어 원전 주변 대기로 방출되는 방사성이산화탄소 ($^{14}\text{CO}_2$)를 효과적으로 흡착하여 분리, 고정할 수 있는 고효율 흡착제를 개발하기 위해, 활성탄 및 활성탄섬유에 금속수산화물(LiOH)을 담지한 몇 가지의 흡착제를 대상으로 XRD, BET, SEM/EDX 분석을 수행하였으며, 이산화탄소 흡착 성능을 시험하였다. 성능 시험 결과, 활성탄과 LiOH를 물리적으로 혼합한 시료가 함침법으로 LiOH를 활성탄에 담지한 시료에 비해 흡착 성능이 우수함을 알 수 있었으며, 활성탄의 표면을 개질한 결과 1N 질산으로 처리하였을 때에도 흡착 성능이 향상됨을 확인하였다.

Abstract

To develop an effective adsorbent for radio active Carbon Dioxide, $^{14}\text{CO}_2$, which is discharged to nearby atmosphere from nuclear power plants of CANDU type, we made some preliminary adsorbents and tested their abilities of CO_2 removal. The chemical agents used was LiOH and we supported or impregnated it on the surface or the internal volume of activated Carbon(GW-H). The physical and chemical properties of various adsorbents were measured using methods such as XRD, BET. SEM images were taken to investigate the change of surface morphology of the adsorbents. Finally, amount of CO_2 adsorption of them were verified under specific conditions. We found that mechanical mixing of LiOH and activated Carbon showed the maximum CO_2 removal ability, while surface activation of activated Carbon by Nitric Acid-treatment enhanced its CO_2 removal efficiency to some degree.

서 론

과기부고시(제98-12호)에 의거, 환경감시항목으로 지정되어 있는 방사성탄소, C-14은 최대에너지 156keV의 β 선을 방출하는 핵종이면 5,730년에 달하는 긴 반감기를 가지고 있다. C-14의 비방사능 준위는 원자력발전설비로부터의 배출, 핵실험, 자외선 등이 일으키는 자연적 방사화학반응 등 여러 가지 요인에 의해서 변화될 수 있으며, 일반 대기에서의 C-14 비방사능 준위는 약 0.25Bq/gC 정도인 것으로 알려져 있다. 대기중의 C-14 방사능은 주로 탄화수소나 이산화탄소 형

태로 존재하는 C-14에 기인하며, 특히 방사성이산화탄소($^{14}\text{CO}_2$)는 동, 식물에 의한 호흡이나 탄소 동화작용을 통해 생물체 내에 고정되고 먹이사슬의 경로를 거쳐 인체 내에 축적될 수 있어 다른 방사성 핵종보다 각별한 관리와 감시가 요구된다. 국내의 환경을 위협하는 주요 C-14 방출원으로는, 현재 18기가 설치, 운전되고 있는 원자력발전소를 들 수 있으며, 특히 가압중수로를 채택하고 있는 월성 원전은 감속재 상층기체를 필요에 따라 외부로 방출시키는 계통의 특성상 방사성이산화탄소 형태를 C-14의 방출여지가 타 발전소보다 높아 더욱 세심한 C-14 방출 감시가 요구된다.

최근 CANDU형 원자로를 채택하고 있는 월성 원전의 호기별 C-14 방출량이 높아짐에 따라 국내의 규제기관은 원전사업자로 하여금 C-14 방출목표를 설정, 준수하기 위한 종합적인 대책을 강구토록 권고하기에 이르렀다. 이에 따라, 원전 주변 환경에 미치는 영향을 최소화하고, 향후 더욱 엄격해질 것으로 예상되는 방출 규제에 대응하기 위하여, 기체중 존재하는 C-14을 효과적으로 흡착, 분리할 수 있는 흡착제 개발 연구에 착수하게 되었다.

실험 방법

활성탄(GW-H 32×60(일)), 시약급 LiOH를 함침법과 물리적으로 각각 담지한 활성탄, 그리고 1N의 질산으로 처리한 활성탄에 LiOH를 함침법으로 담지한 흡착제를 사용하였다. 이들 흡착제의 특성 분석은, 질소를 흡착시켜 각 흡착제의 비표면적과 세공의 부피와 분포를 측정하였고, XRD를 이용하여 LiOH의 결정구조와 CO_2 의 흡착에 의한 구조 변화를 측정하였으며, SEM/EDX 사진을 통해 LiOH 담지와 산 처리에 의한 활성탄의 표면 형상의 변화를 확인하였다. 마지막으로, GC를 이용하여 CO_2 흡착 능력을 실시간으로 측정하여 각 흡착제의 효율과 시간경과에 따른 효율 변화를 조사하였다. 이산화탄소 흡착 성능 시험은 대기압, 30°C의 온도 하에서 이루어졌으며 각 흡착제는 실험에 앞서 200°C의 He 기체를 이용하여 2시간동안 고온, 건조시키는 전처리를 하였다.

실험 결과

<SEM/EDX 및 XRD 측정결과>

그림 1에 활성탄의 산처리에 따른 표면 형상의 변화를 나타내었다. 황산처리한 결과도 질산처리한 결과와 유사한 변화를 보였으며, 전반적으로 산 처리에 의해 활성탄의 표면이 불규칙적으로 변형되는 것을 확인할 수 있었다. 질산 및 황산 처리에 의한 활성탄 표면의 성분 변화를 표 1에 나타내었다.

표 1 산처리한 활성탄의 EDX 측정 결과

element	HNO_3 treated GW-H			H_2SO_4 treated GW-H	
	weight %	atomic %		weight %	atomic %
C	74.12	79.23	C	81.55	85.59
O	25.88	20.77	O	18.11	14.27
			S	0.34	0.13

그림 2에는 물리적 혼합과 LiOH 수용액을 이용하여 함침시킨 활성탄의 SEM 사진을 나타내었다. 물리적 혼합의 경우 LiOH 분말이 활성탄의 세공 사이에 비교적 잘 분산되어 있음을 알 수 있으며, LiOH 수용액에 의한 함침의 경우에는 활성탄 구조의 뚜렷한 변화나 변형이 보이지 않았다.

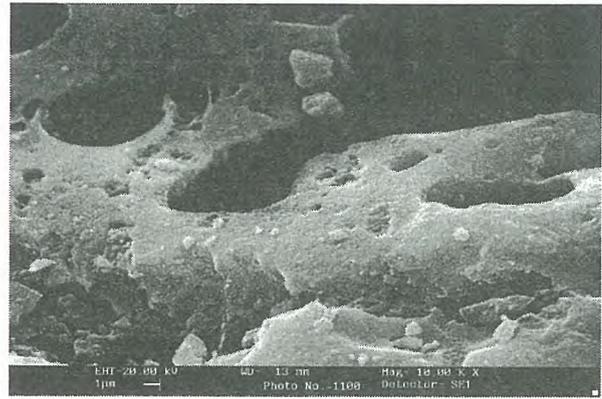
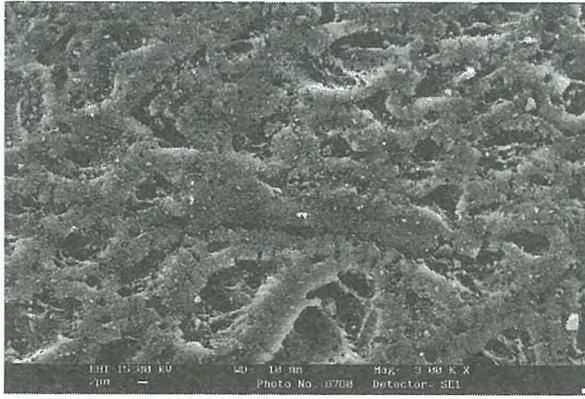


그림 1 산처리 전(좌)과 1N 질산 처리후의 활성탄의 SEM 사진(×300)

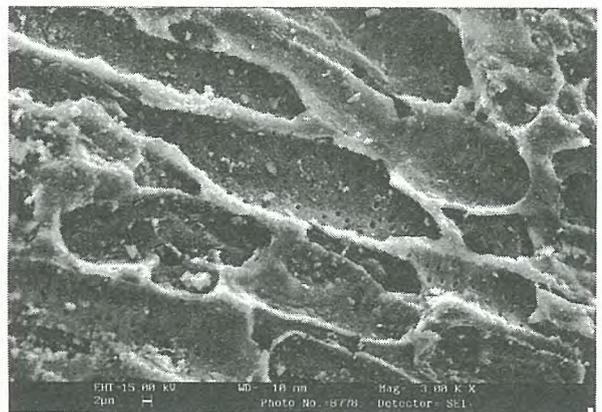


그림 2 LiOH 분말의 기계적 혼합(좌)과 함침(우)후 활성탄의 SEM 사진 (×300)

<N₂ 흡착 결과>

표 2에는 산처리 전후의 활성탄의 비표면적과 세공부피의 변화를 N₂ 흡착 실험을 통해 조사한 결과를 나타내었다. 이미 SEM 사진에서도 예상할 수 있듯이 산 처리에 의해 활성탄의 비표면적이 다소 저하되는 현상을 볼 수 있으며 그 정도는 황산과 질산이 초산이나 염산보다 심하게 나타났다. 활성탄 1g당 세공의 부피 역시 비표면적과 마찬가지로 산 처리에 의해 저하되는 것을 알 수 있으며 그 저하 경향이 비표면적보다 더욱 뚜렷히 나타남을 확인할 수 있다.

표 2 산처리 전후의 활성탄의 질소흡착 실험 결과

	GW-H	1N 초산	1N 질산	1N 염산	1N 황산
BET surface area (m ² /g)	1172.12	1149.48	1117.13	1088.66	1088
total pore volume (cc/g)	0.5135	0.5024	0.4886	0.4781	0.4211

CO₂ 흡착능 측정 결과

그림 5는 LiOH 1mol당 흡착되는 CO₂의 양을 물리적으로 혼합된 LiOH의 함량에 따라 나타낸 그래프이다. 700ppm의 CO₂/He 기체를 LiOH와 활성탄의 혼합물이 들어있는 컬럼에 51ml/min의 유량으로 흘리면서 컬럼 전후의 CO₂ 농도 변화를 관찰한 것이다. 그림에서 보듯, LiOH의 상대적인 함량을 늘려도 LiOH 1mol이 흡착하는 CO₂의 양은 거의 변화가 없었으며 따라서 물리적인 혼합시 LiOH의 함량을 높임으로써 비례하여 많은 양의 CO₂를 흡착시킬 수 있음을 알 수 있다.

그림 6은 활성탄을 산처리 한후 LiOH를 함침시켜 CO₂ 흡착량을 측정하는 것이다. 산에 의한 표면 개질 효과는 크지 않은 것을 알 수 있었다. 이때 산은 2% 황산, 2% 초산, 2% 질산을 사용하

였으며 2% 질산처리 후 증류수로 세척한 흡착제의 결과도 함께 나타내었다. 질산에 의한 개질 효과가 황산이나 초산에 의한 경우보다 2배 이상 나타나나, 전반적으로 물리적 혼합의 경우보다 흡착량이 적은 것을 알 수 있다.

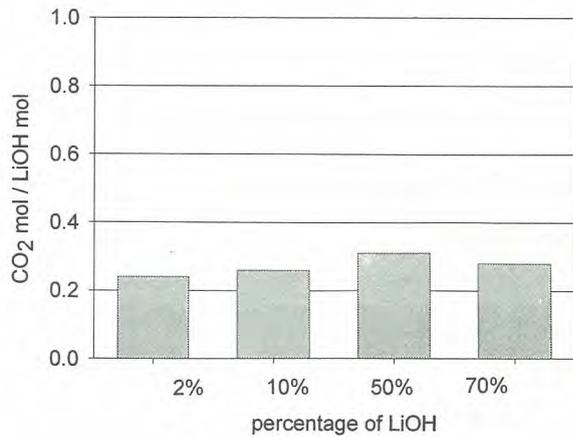


그림 3 물리적혼합에 의한 CO₂흡착량 변화

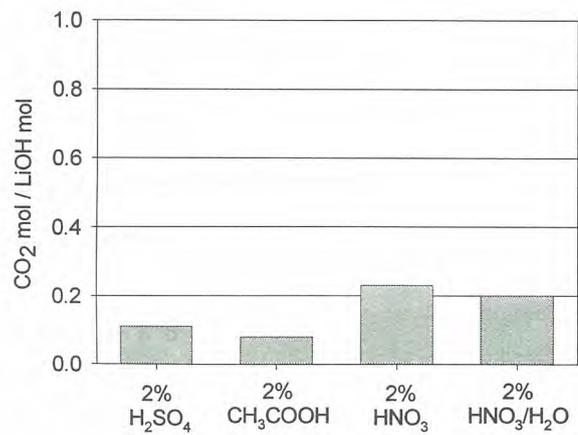


그림 4 산처리의 의한 CO₂ 흡착량 변화

결 론

LiOH의 단위 질량당 CO₂ 흡착능을 향상시키기 위해 수행한 본 실험 결과, 활성탄과 LiOH를 물리적으로 혼합한 흡착제가 LiOH를 활성탄에 함침법을 이용해 담지시킨 경우보다 흡착성능이 우수함을 알 수 있었으며, 두 경우에 있어 모두 이론적인 CO₂ 흡착량(0.5 CO₂ mol/LiOH mol)에는 크게 못 미치는 결과를 얻었다. 또한 활성탄 표면을 산처리한 후 LiOH를 담지시킨 경우, 1N의 질산을 이용하여 처리하였을 때 흡착성능의 향상을 목격할 수 있었다. 이와 같은 결과는, 앞으로 물리적인 혼합에 의해 LiOH가 가지고 있는 높은 CO₂와의 반응성과 활성탄이 가지고 있는 다공성 및 화학적 안정성을 겸비한 고효율 흡착제의 개발이 가능함을 시사하는 것이다.

참 고 문 헌

1. M. J. Kabat, "Monitoring and Removal of Gaseous Carbon-14 Species," in Proc. 15th DOE Nuclear Air Cleaning Conference, CONF-780819, National Technical Information Service, Springfield, VA, 1979
2. H. Braun, H. Gutowski, H. bonka, and D. Grundlen, "Plant for Retention of C-14 in Reprocessing Plants for LWR Fuel Elements," in Proc. 17th DOE Nuclear Air Cleaning Conference, CONF-820833, pp. 381-399, 1983
3. H.K.Song. K.H.Lee, Sep. Sci. thecnol. 33, 2039 (1998)
4. 이영환, 김현진, 최대기, 공업화학 전망, 5, 16 (2002)
5. Hiroki Ago, T. Kugler, F. Cacialli, W. R. Salaneck, M.S.P.Shaffer, A.H.Winde, R.H.Friend, J. Phys. Chem. B. 103, 8116 (1999)
6. 유동관, 김성현, 공업화학, 9, 286 (1998)

조사재시험시설 풀물의
방사성오염에 대한 고찰

Investigation to Radioactive Contamination of
Pool Water in IMEF

송웅섭, 이종현, 이흥기, 홍권표
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동150

요 약

조사재시험시설에 설치되어 있는 풀 (3mx6mx10m)은 조사재운반용 수송용기(Cask)를 풀에 하역하여 풀물 속에서 조사재(시료)를 꺼내어 핫셀 내로 반입/반출 하는 목적으로 사용한다. 수송용기를 풀에 하역하여 시료를 취출시 또는 버킷 엘리베이터에 장착시 모든 작업은 육안으로 행하여지기 때문에 항상 풀물을 양호한 수준으로 관리하여 수중취급 작업을 용이하게 하여야 하며, 방사성 오염관리 측면에서는 물에 잔존해 있는 방사성물질을 원자력법령에서 정하는 규정치 이하로 관리하여야 한다. 본 논문에서는 조사재시험시설에 설치하여 운용하고 있는 풀물정화장치 운전에 의한 방사능오염 및 수질에 대한 거동을 반출입된 시료별로 오염분포를 기술하였다.

Abstract

The pool (3mx6mx10m) in Irradiated Materials Examination Facility is usually used for the purpose of taking the specimen out of cask loaded into the pool, and carrying in/out the specimen to/from the hot cell. Always, it must be cared for the water into the pool to be fine condition because all operation are worked with the naked eye during taking an irradiated materials out of the cask and plunging them in the bucket-elevator. In the aspects of the radioactive contamination control, remained substances in the water must be controlled so that the amount of substances are to be lower than the standard amount prescribed by RCA Korea Activity in a part of radioactive contamination control. This paper describes a behavior of the quality of water and the radioactive contamination of pool water for working of pool water purging system and contamination diffusion distribution behavior of each specimens carried in/out.

I. 서론

1. 풀

조사재시험시설에서 풀은 써비스구역에 위치하며 cask를 하역하여 내부의 시료를 핫셀로 반입 또는 반출하는 통로로 사용되며, 풀의 내부는 스테인레스강 304L로 라이닝 되어있으며, 구조물의 두께는 1 MeV 감마선의 10^6 Ci에 해당하는 핵연료가 놓여 있을 때 지하층 풀외벽에서의 방사선량은 9.0×10^{-6} Sv/hr이하로 설계되었다. 풀물 정화설비는 200 m^3 의 수조수를 72 시간에 1 회씩 순환시켜 정화시키는 설비로 풀물 순환 펌프의 유량은 $16 \text{ m}^3/\text{hr}$ 로 하였으며, 필터와 이온교환수지를 설치하여 풀물의 방사능이 $10^{-4} \mu \text{ Ci/cc}$ 이하로 정화하도록 설계하였다. 이 설비는 오염된 필터 및 이온교환수지의 장착/탈착 작업을 편리하게 할 수 있도록 인출장치를 설치하였으며, 오염된 필터 및 이온교환수지로부터 나오는 방사선을 차폐하기 위한 차폐보강 구조를 갖추고 있다. 조사재를 풀에서 하역 및 취출시 또는 버켓 엘리베이터에 장착시 모든 작업은 육안으로 행하여지기 때문에 항상 풀물의 부유입자는 $6 \mu\text{m}$ Absolute까지 여과하여 물의 투명도(turbidity)를 적어도 3 NTU 이하로, 전도도를 $5 \mu\text{S/cm}$, pH를 $5 < \text{pH} > 8$ 정도로 유지하여 수질을 양호한 수준으로 관리하여 수중취급 작업을 용이하게 하고 물에 잔존해 있는 방사성물질을 원자력법령에서 정하는 규정치 이하로 관리하고 풀주변의 방사선량률은 15 mR/hr 이하로 유지, 관리하여야 한다. 수조의 수위는 8.30 m이상이 되도록 유지하여야 한다.

II. 본 론

1. 풀물정화장치

풀물정화장치는 지하의 풀사이드에 설치되어 있으며 풀의 상부 사이드벽을 관통하는 4" 파이프의 흡입라인으로 물을 흡입하여 필터링 한후 4" 파이프 리턴라인으로 풀로 들어가게 되어 있다.

가. 공급되는 순수 수질은 다음 조건을 만족하고 있다.

- pH : 5.5 ~ 6.5
- Cl⁻, F⁻ : 합계 < 0.2 ppm
- 전도도 : < 5 μ mhos/cm
- Fe : < 0.5 ppm
- Cu : < 0.1 ppm
- SO₄⁻ : < 0.2 ppm
- 탁도 : < 1 NTU

나. 풀물정화장치 개요

풀에서 4" 파이프 또는 스키머를 통하여 직접 물을 흡입하여 정화하는 장치로 이의 계통도는 그림 1과 같으며, 이 장치는 풀사이드와 연하여 지하실에 설치되어 있고, 관련된 부속장비는 다음과 같다.

1) Pre-Filter Housing 및 Filter

물 속에 이물질을 1차로 제거해 주는 장비로 filter housing속에 $40 \mu\text{m}$ 의 filter element가 장착되어 있다.

2) Filter Housing 및 Filter (F-001)

물 속의 이물질을 제거해 주는 가장 핵심적인 장비로 filter housing속에 $6 \mu\text{m}$ 의 filter element가 장착되어 있다.

3) Ion exchanger 및 Resin cartridge (E-001)

순수 속에 이온상태로 녹아있는 방사성 불순물을 제거하기 위한 장비로 resin cartridge속에 resin이 들

어 있다.

- 4) Conductivity cell 및 Indicator
- 5) DPS & DPA
- 6) Control Panel
- 7) Shielding Wall
- 8) Pump & Motor
- 9) Basket strainer
- 10) Piping system, Valves & 게이지류
- 11) Filter 및 Ion-exchanger cartridge 교체 장비

2. 정화장치 운전방법

가. 1, 2차 필터만을 통과하는 by-pass운전

1) 통상 풀물의 정상운전이라 함은 1, 2차 필터를 거친, 레진 카트리지를 통과하지 않는 운전을 말하며 하기의 data는 정상운전으로 얻어진 값이다.

2) 1차 filtering

1차로 펌핑된 물은 40 μm 의 pre-filter를 거치게 된다. pre-filter의 제원은 위에서 언급한 바와 같고, filter housing속에는 4개의 element가 들어가 있다.

3) 2차 filtering

1차 filtering을 거친 물은 바로 6 μm 의 2차 필터를 거치게 된다.

나. Resin 통과운전

1) 풀물에 방사성물질이 검출되고 오염되어 있다고 판단되었을때는 by-pass라인을 잠그고, 레진을 통하는 운전을 하게 된다.

2) 레진을 통과하는 목적은 풀물속에 잔존해 있는 이온화 되어 있는 방사성물질을 잡기위한 것으로 당 설에서 사용하고 있는 레진은 mixed ion exchange resin으로 알카리(pH7-14, 염기(-))와 산(pH1-7, 산기(+))을 모두 포함하는 레진으로 \pm 이온화 되어있는 물질을 함께 잡을 수 있는 특징이 있다.

3. 결 과

'02년 1월부터 '03년 8월까지 측정된 풀물의 방사선량 및 수질의 특성은 그림 2~그림 7에, 조사재 및 연료의 반출입 시료별 오염도 현황은 표 1에 있다. 먼저 α 오염의 분포도를 보면 거의 변화가 없으며, β 오염의 경우 올진 2-4차 감시캡슐이 반입된후 약 한달동안 최대치를 보였으며, 이때 CO-60의 수치도 최대가 되었다. Cs-137은 '02년 10월 8일경 Dupic 핵연료 리그의 반입이 있던 직후에 나타났다. 수질의 특성에서는 탁도는 조사시료의 반출입과는 별 지장이 없었으며, 전기전도도가 '02년 4월 29일 경 영광 3호기 감시캡슐 및 '03년 3월중 계장캡슐의 반입후에 최대치를 보였으며, 물은 점차 산성화 되어감을 알 수 있었다.

III. 결 론

2년여에 걸친 조사재시험시설 풀물의 방사능 오염도 측정결과 허용치 이상의 오염은 발생하지 않았으

며, 자연방사선 수준으로 수질의 상태는 매우 양호한 수준으로 나타났다. 가끔 이상 피크를 나타낸 것도 있지만 filter를 교체하고 레진통과 운전을 계속함에 따라 방사능, 전도도 및 pH의 수치는 양호한 수치로 떨어짐을 알 수 있었고, 탁도는 filter 만의 운전으로 양호한 수준을 얻을 수 있었다. 경미한 방사능오염이 되면 약 1주일의 레진통과 운전을 거친후 pre- filter 및 메인 filter만을 통과하는 운전 만으로도 기대한 효과를 얻을 수 있었다. 따라서 filter를 자주 교체하고(약 4kg/cm² 가 되면) 하루 최소 8시간 이상의 운전이 필요하다는 결론을 얻었으며, pH의 조절 및 전기전도도를 낮추는 일이 중요하다.

표 1. 조사재 및 연료의 반출입 시료별 오염도 현황

반입일자	반입시료의 종류	오염도(Bq/mL)		방사선량률 (Bq/mL±2σ)		탁도 (NTU)	전도도 (μg/cm ³)	pH
		α- Corrected	β- Corrected	Co-60	Cs-134			
'02. 2. 5	DUPIC 하나로 연료	-	1.2E-04					
'02. 3.26	영광3-1 감시 캡슐	4.7E-05	2.4E-02					
'02. 4.29	영광3호기감시 캡슐	6.8E-03	2.2E-01					
'02. 5. 9	물질화학분석의뢰	<2.00E-02	<4.00E-02	<5.32E-03	<5.25E-03	<0.5	4.0	6.03
'02. 6.12	조사후시험시편 반출(2회)	1.9E-03	6.1E-02					
'02. 9. 5	물질화학분석의뢰	1.03E-02±0.003	9.22E-02±0.009	<9.39E-03	<5.82E-03	<0.5	3.72	5.95
'02. 10.8	DUPIC 핵연료 리그 반입	5.7E-03	9.2E-02					
'02. 11.8	물질화학분석의뢰	7.62E-03±3.6.6%	3.57E-01±4.8%	<1.51E-02	<3.90E-03	<0.5	3.7	5.47
'02.11.14	영광증기발생관 및 감시캡슐	7.1E-03	3.2E-01					
'02.11.19	하나로인허가용 핵연료	1.4E-04	1.2E-03					
'02.11.22	영광4-1 감시캡슐	8.9E-04	7.3E-03					
'03. 1. 8	울진2-4 감시캡슐	8.1E-03	5.8E-01					
'03. 1. 9	물질화학분석의뢰	<1.2E-02	<5.0E-01	5.01E-02±8.5%	<6.62E-03	<0.5	3.99	5.68
'03. 3.11	계장캡슐(01M-05U)	1.9E-04	1.3E-03					
'03. 4.30	물질화학분석의뢰	<3.0E-02	<5.0E-02	<6.20E-03	<3.24E-03	<0.5	5.31	5.84
'03. 5.20	고리4-5감시캡슐	1.1E-03	2.1E-02					
'03. 6.10	물질화학분석의뢰	<3.0E-02	<5.0E-02	<1.25E-02	<5.43E-03	<0.5	1.66	5.85
'03. 7.29	물질화학분석의뢰	<3.0E-02	<5.0E-02	<5.09E-03	<5.70E-03	<0.5	1.03	5.58

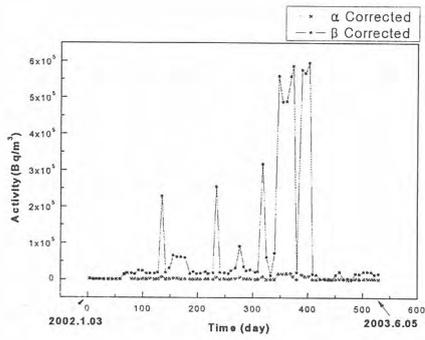


그림 2. α -Corrected and β -Corrected.

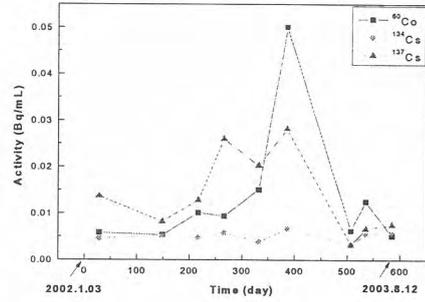


그림 3. Co-60, Cs-134, Cs-137의 방사능.

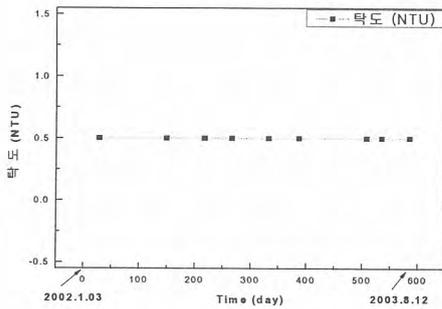


그림 4. 탁도 (NTU).

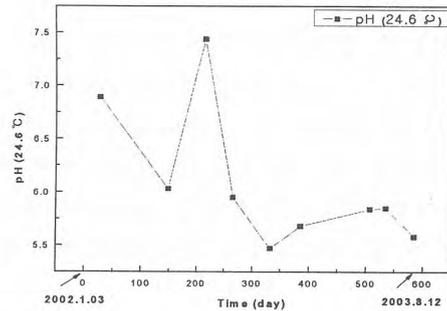


그림 5. pH (24.6 °C).

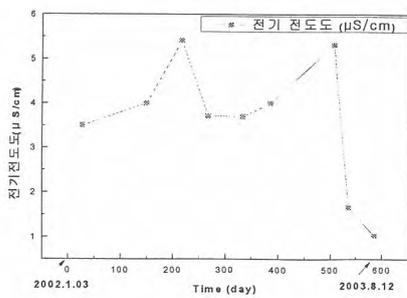


그림 6. 전기전도도 ($\mu\text{S/cm}$).

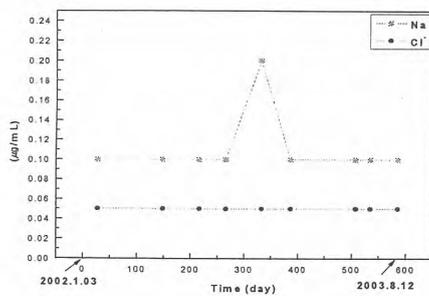


그림 7. Na^+ , Cl^- ($\mu\text{g/mL}$).

조사재시험시설의 핫셀 내부 고준위 고체폐기물 반출 및 처리

Carrying Out and Management of High Level Solid Radwaste for Hot Cell in IMEF

주용선, 송웅섭, 김도식, 유병옥, 정양홍, 백승제, 오완호, 이은표, 홍권표
한국원자력연구소

요 약

조사재시험시설(IMEF : Irradiated Materials Examination Facility)은 원자력연구소 부지 내에 위치하고 있는 핫셀 시험시설로써, 하나로 연구용 원자로 및 상용 원자력발전소에서 중성자에 조사한 사용후핵연료 및 구조재료 등의 조사특성에 대한 시험 및 평가를 수행하고 있다. 따라서 핫셀 내부에서 시험을 완료한 고준위 고체폐기물들은 시설의 고유기능을 지속적으로 수행하기 위해서 정기적으로 핫셀 외부로 반출 및 원자력연구소 부지내의 저장시설에 옮겨 처리해야 한다. 시설 준공(1993년 말) 후 현재까지 고준위폐기시설인 모노리스(monolith)로 반출 및 처리한 물량은 50 리터용 폐기물처리용 통(bin)으로 약 30개 이며, 해마다 그 양이 늘어나고 있는 추세이다. 본 논문에서는 조사재시험시설의 핫셀에서 고준위폐기시설인 모노리스(monolith)까지의 일련의 반출 및 처리에 대한 절차 및 작업내용을 간략하게 기술하고자 한다.

Abstract

The IMEF(Irradiated Materials Examination Facility), located in KAERI site, is a hot cell facility to test and evaluate the irradiation defects or embrittlement through post-irradiation examination(PIEs) of irradiated nuclear fuels and structural materials which are come from HANARO research reactor and commercial nuclear power plants. Therefore, to carry out its own function, the high level solid radioactive wastes, produced through PIEs, are periodically carried out and managed from hot cell to monolith. So far, approximately 30 drums which contains 50 liters are transported to monolith, and it is shown that the quantity is slowly increasing. In this paper, the procedures and work contents of the high level solid radwaste carrying out and management for IMEF are described in detail.

1. 서 론

조사재시험시설에서는 중성자에 조사한 사용후핵연료 및 구조재료 등의 조사 결함 및 조사취화(irradiation embrittlement) 정도를 시험 및 평가하기 위해 하나로 연구용 원자로 및 상용 원자력발전소로부터 방사선량을(dose rate)이 매우 높은 시료들을 반입하고 있다.¹⁾ 연구용원자로인 하나로 시설로부터는 연구용원자로 운전용 핵연료다발, 개발용 핵연료다발, 핵연료개발용 무게장캡슐, 구조재료개발용 계장캡슐 및 무게장캡슐 등을 그리고 상용 원자력발전소로부터는 원자로 압력용

기 감시캡슐, 원자로제어봉 가이드 고정용 볼트, 핵연료 상판스프링 고정용 볼트 등을 반입하고 있다.

시설에 반입한 고방사능 원자력재료(핵연료 및 재료)들은 해체 및 절단작업을 거쳐 시험에 필요한 시편들을 제외한 구조물 및 부품 등을 고준위 고체폐기물로 분류하여 내부용적이 약 50 리터 인 고체폐기물용 통에 넣어 핫셀 내부에 한시적으로 저장한 후, 이를 절차에 따라 정기적으로 핫셀 외부로 반출하여 고준위폐기시설인 모노리스로 운반 및 처리하고 있다. 이러한 일련의 절차 및 작업들은 조사재시험시설이 고준위폐기물 저장시설이 아닌 핫셀 시험시설일 뿐 아니라 시설의 본래 기능을 100% 활용하기 위함이다.

1994년부터 현재까지 고준위폐기시설인 모노리스(monolith)로 반출 및 처리한 물량은 50 리터용 폐기물처리용 통으로 약 30개 이며, 해마다 그 양이 늘어나고 있는 추세이다.

2. 본 론

가. 고준위 고체폐기물 종류 및 발생량

조사재시험시설로 반입하는 고방사능 원자력재료는 상용 원자력발전소 및 하나로 연구용원자로에서 중성자에 조사한 핵연료 및 재료들이 대부분이며, 이들의 종류는 다음과 같다.

- 하나로 조사 무게장 핵연료 캡슐
- 하나로 운전용 핵연료 다발
- 연구용원자로용 핵연료 개발용 핵연료 다발
- 하나로 조사 계장 및 무게장 재료 캡슐
- 일체형 원자로용 핵연료 다발
- 경수로형 원자로 압력용기 감시캡슐
- 경수로형 원자로 제어봉 가이드 고정용 볼트
- 경수로형 핵연료다발 상판스프링 고정용 볼트

조사 핵연료(상용발전소 및 연구용원자로 운전 핵연료)의 고준위 고체폐기물은 주로 미세/미소 금속조직을 관찰하기 위한 광학 및 전자현미경용 시편을 제작하는 과정에서 발생하는 것들이 대부분이다. 시편의 준비절차는 절단, 연삭, 연마 및 에칭으로 행해지는데, 이중에서도 연삭 및 연마 시 시편의 표면을 닦거나 문지르기를 하는 작업과정에서 제일 많이 발생한다. 또한 하나로 연구용원자로 핵연료를 개발하는 경우에는 핵연료다발의 구조에 따라 조금씩 다르기는 하지만, 18봉 환상형 구조를 선택하는 경우 개발용 연료봉 3개 또는 6개를 제외한 나머지 dummy 연료봉 및 구조물 등은 고준위 고체폐기물이며, 핵연료개발용 캡슐인 경우에는 핵연료를 제외한 모든 구조물들이 이에 속한다. 그리고 연간 발생량은 50 리터용 폐기물처리용 통을 기준으로 약 2개이다.

조사 재료의 고준위 고체폐기물은 비파괴(외관검사 및 제원측정) 및 파괴시험(충격, 인장, 광학 및 전자현미경 미세/미소 금속조직을 관찰)을 마친 시험편 등을 포함한 모든 재료들이다. 경수로형 원자로 압력용기 감시캡슐은 단면이 50 x 75 mm²이고, 길이가 약 1.3 m이며, 외피는 스테인레스강으로 shim(중성자모니터 및 온도모니터), dosimeter(U-238, Np-237), 충격시편, 인장시편, CT 시편 및 spacer 등으로 구성되어 있다. 이 중에서 고준위 고체폐기물로 처리하는 것은 중성자모니터와 온도모니터를 해체한 shim, U-238과 Np-237 파우더캡슐을 해체한 dosimeter, 그리고 spacer 등이다. 하나로 조사 계장 및 무게장 재료 캡슐은 외통, 시편 홀더(specimen holder), 단열재(insulator), 열전대, 히터선 등으로 구성되어 있는데, 이 중 시편홀더에 담겨져 있는 각종 시편들(중성자모니터 포함)을 해체한 후 모든 구성품들은 고준위 고체폐기물로 처리한다. 그리고 연간 발생하는 양은 50 리터용 폐기물처리용 통을 기준으로 약 3개 이다.

나. 고준위 고체폐기물 핫셀 외부 반출 및 처리

핫셀 내부로 반입한 고방사능 원자력재료들은 해당 시험들을 완료한 후 저장용 핫셀인 M4 핫셀로 이송한다. 본 핫셀에서는 이송한 시편 및 고준위 고체폐기물을 재분류하고, 이를 폐기물처리용 통에 담고 체결용 볼트로 뚜껑을 닫은 후 고체폐기물처리용 반출구를 설치한 M3 핫셀로 이송한다. 조사후시설시설(PIEF)에서 고체폐기물운반용 캐스크(이송 장치)를 제염한 후 11톤 트럭을 사용하여 인수해 조사재시험시설의 M3 핫셀 천장에 설치된 어댑터(adapter)에 부착시켜 호이스트를 이용하여 고체폐기물용 통을 인양하여 고체폐기물운반용 캐스크에 넣어 핫셀 밖으로 인출한다. 고준위 고체폐기물을 인출한 후 캐스크의 표면오염도 및 방사선량을 방사선안전관리요원이 측정하고, 그 결과를 『고준위 고체폐기물』양식에 기록한다. 측정을 완료한 캐스크는 11톤 트럭에 실어 방사성폐기물처리시설의 모노리스로 운반한다.

고체폐기물운반용 캐스크 내부에 장착한 고체폐기물처리용 통이 완전하게 저장 구멍(pit)에 안착되었는지 여부를 확인할 수 있는 방법이 없어 처음에는 고체폐기물운반용 캐스크를 크레인으로 들어 올려 바닥을 육안으로 확인하는 방법으로 하였으나, 이는 작업자에게 방사선 피폭이라는 위험성을 지니고 있어 이를 이송장치와 이송장치 어댑터 사이의 틈새에 선량을 측정장치를 접촉시켜 하강할 때의 선량률과 상승할 때의 선량률 차이를 상호 비교하는 방법으로 개선하여 수행하였다. 일련의 작업과정을 그림 1에 나타내었고, 처리에 관련하여 사용한 서류의 목록은 다음과 같다.

- ◆ 방사성폐기물 저장 통보계
- ◆ 방사성폐기물 관리의뢰서
- ◆ 방사성폐기물 기록표(고체폐기물, 종류 : 고준위폐기물)
- ◆ 첨부 : 상세기록(고준위 고체폐기물)
- ◆ 현장검사 일지
- ◆ 방사성물질 (운반·반출) 통보계
- ◆ 방사성물질 운반차량의 방사선량률 및 표면오염도 측정 기록부
- ◆ 표면오염도 기록부

3. 결론 및 건의사항

조사재시험시설의 준공(1993년 말)후부터 현재까지 고준위폐기시설인 모노리스(monolith)로 반출 및 처리한 고준위 고체폐기물 처리에 대한 내용을 정리하면 다음과 같다.

1) 처리물량은 50 리터용 폐기물처리용 통으로 약 30개이며, 해마다 그 양이 늘어나고 있는 추세이다.

2) 조사재시험시설 및 고준위 폐기물 저장소의 처리에 관련한 장비들의 가동조건이 100%이면, 1회의 폐기물 통의 처리에 소요되는 시간은 약 1시간이다.

3) 고준위 폐기물 저장소의 처리 관련 장비들 및 전기장치 등의 적절한 수정조치로 저장 및 처리작업이 개선되어 작업시간이 매우 단축되었을 뿐 아니라 사고 없이 안전하게 수행할 수 있는 절차 및 방법이 구축되었다.

그리고 고준위폐기시설인 모노리스(monolith)에서 작업자들이 조금 더 안전하게 작업하기 위해서는 관련 장비의 개선 및 보완이 시급히 이루어져야 할 것으로 건의한다.

4. 참고 문헌

1. 주용선 외, “연구로용 원자로에서 조사된 캡슐 및 핵연료 다발 해체 장비 기술개발”, KAERI/TR-1078/98(1998).

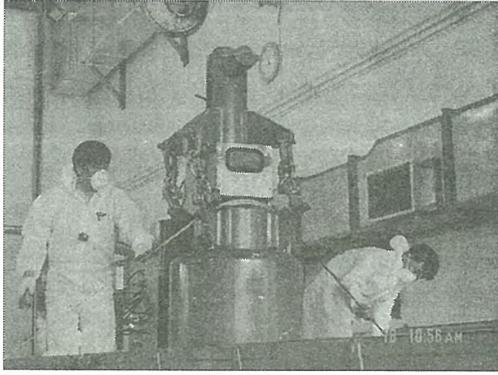


사진 1. 고체폐기물처리용 캐스크 운반.
(PIEF->IMEF).

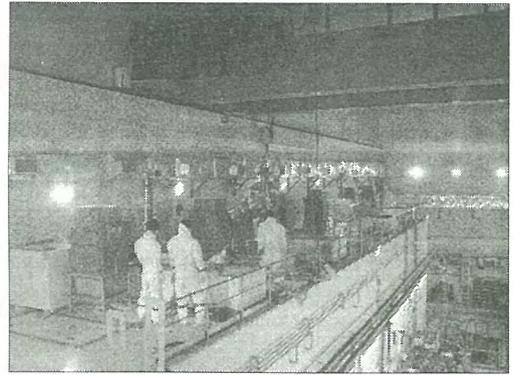


사진 2. 고체폐기물처리용 캐스크 M3
핫셀 지붕의 어댑터에 장착.



사진 3. 고체폐기물처리용 캐스크 운반
(조사재->MONOLITH).

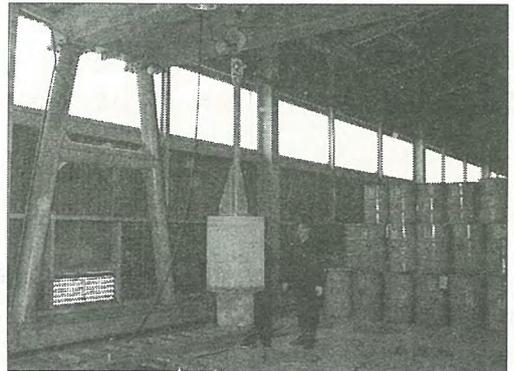


사진 4. MONOLITH pit용 cover 분리.



사진 5. 고체폐기물처리용 캐스크 안착
장치 설치.



사진 6. 고체폐기물처리용 캐스크 설치
및 방사선량을 측정.

그림 1. 조사시험시설의 고준위 고체폐기물 반출 및 처리과정 사진 모음.

트리튬 처리기술 현황

A Status of Tritium Processing Technologies

안도희, 김광락, 백승우, 이민수, 임성팔, 정홍석
한국원자력연구소

요 약

핵확산 저항성 핵연료주기공정, 트리튬을 활용하는 첨단산업 시설과 중수로형 원전 등의 국내 원자력 산업에서 다양한 화합물 형태로 발생하는 트리튬 폐기물을 처리하는 기술을 개발하기 위하여 국내외 트리튬 처리기술의 현황을 조사하였음. 트리튬 폐기물을 크게 기체상, 유기상, 수용액상으로 분류하였고, 이들을 각각 처리할 수 있는 기술을 분석하였음. 이러한 트리튬 폐기물의 처리기술 개발은 원자력 산업의 지속적인 발전을 위한 기술력 기반조성 및 국민의 방사성 폐기물에 대한 긍정적 이미지를 심어 주는데 필수적임.

Abstract

Various type of tritium wastes can be produced from nuclear fuel cycle process satisfying non-proliferation, CANDU reactors, and nuclear industry. Activities of tritium processing in the world were surveyed to develop the processing technologies of tritium wastes. The tritium wastes were classified into gas phase, liquid phase, and organic phase. And the treatment techniques for the tritium wastes are analyzed. Development of tritium processing technologies is essential to finding public acceptance of radioactive wastes and forming a solid foundation to foster the growth of nuclear industry in Korea.

1. 서 론

1.1. 원자력발전에 의한 트리튬 생성과 누출[1]

트리튬은 자연계에서 대기중 질소 또는 산소가 우주선 중성자 등과 충돌하여 4~8 MCi/yr의 속도로 생성되며, 자연붕괴를 고려한 지구상의 평형 재고량은 약 70~140 MCi이고 99%가 HTO 형태로 물에 존재함. 트리튬은 원자로에서 우라늄 등의 3차 핵분열과 중성자 활성화 반응 등에 의해 생성되는데, 생성속도는 원자로 형태와 발전용량에 따라 달라짐. 표 1과 같이 2003년 세계 원자로의 발전용량 약 360 GWe 로부터 추산한 결과 약 50 MCi/yr로 자연계의 6~12배임.

세계 원자력발전소에서 환경으로 방출되는 트리튬의 양은 표 2와 같이 원자로에서 생성된 트리튬 총량 50 MCi/yr의 약 1.3%인 0.63 MCi/yr 수준으로 추정되며, 나머지는 주로 핵연료 또는 원자로계통 내에 남아있게 됨. 그러나 사용후 핵연료주기공정의 처리과정에서 핵연료 내에 잔류한 트리튬의 대부분이 빠져나오게 되므로 환경오염 방지를 위하여 이를 안전하게 처리하여야 함. 현

재 세계의 핵연료재처리공장의 처리능력은 50 GWe의 전기 생산과 상응하는 약 1,400 MTU/yr 수준으로 0.5~1.0 MCi/yr의 수용액 트리튬 폐기물을 환경으로 방출하고 있으며, 특히 지하수의 오염과 관련하여 철저한 트리튬의 관리를 요구받고 있음.

1.2. 국내 트리튬 처리기술 개발의 필요성

핵확산저항성 핵연료주기공정에서 발생하는 트리튬 폐기물은 사용후핵연료의 탈피복관 과정 등에서 기체 또는 증기상태로 배출됨. 2010년 국내 PWR에서 발생하는 사용후핵연료의 추정량은 표 3과 같이 332 MTU 수준임. 우리나라 농축도가 3.21% UO_2 , 연소도가 35,500 MWe·d/MTU인 사용후핵연료를 10년간 냉각시켰을 때 트리튬 농도는 ORIGEN2에 의해 286 Ci/MTU로 계산되므로 핵연료주기공정에서 발생하는 트리튬 폐기물의 총량은 연간 95 kCi수준으로 ALARA 개념으로 안전하게 처리되어야 함.

현재 우리나라의 트리튬 응용기술은 매년 6 kCi의 트리튬을 전량 수입하여 사용할 정도로 매우 낮은 수준임. 그러나 2005년 월성 TRF의 가동에 따라 매년 7 MCi의 트리튬이 생산되고, 정부가 RI(방사성동위원소) 이용 활성화 정책을 추진하고 있으므로 트리튬 응용 기술의 발전 속도와 이에 따른 트리튬의 수요량이 급격히 증가할 것으로 예상됨.

2. 국내외 트리튬 처리기술 현황

2.1. 트리튬의 관리기준

국내의 경우 방사성 물질인 트리튬의 유도한도(연간섭취한도, 유도공기중농도 및 배출관리기준)는 표 4와 같이 과학기술부 고시 “방사선방호등에 관한 기준”에 명시되어 있음. 트리튬의 화학적 형태를 7 가지로 분류하였는데, 물리적 상태(기체와 액체)와 유기물과의 결합상태를 기준으로 분류하였음. 배기 또는 배수 중의 배출관리 기준은 일반인이 이러한 농도를 갖고 대기 또는 수중으로 트리튬을 흡입하거나 섭취할 경우에 받는 피폭선량이 일반인의 선량한도에 해당하는 유도된 수치임. 삼중수소가 결합된 물 즉 트리튬 산화물의 경우 배수 중의 배출관리 기준은 40,000 Bq/l 임을 알 수 있음.

음용수의 트리튬 허용농도는 미국 Environmental Protection Agency (EPA)의 규제치의 경우 20,000 pCi/l = 740 Bq/l 이며, 캐나다 온타리오 안전 지침의 경우 7,000 Bq/l 임. 캐나다의 경우 SRB Technology사의 트리튬 발광선원 제조공장이 위치한 온타리오주 Pembroke에서 1999년 일어난 트리튬 누출사고를 계기로 주의회 자문단은 음용수의 트리튬 허용농도를 100 Bq/l 로 낮출 것을 권고하였음. 이러한 음용수 허용치는 음용수로 사용될 가능성이 있는 트리튬관련 시설 주변의 지하수에 엄격히 적용되고 있음. 향후 국내에서도 트리튬에 대한 관심이 높아지면, 국민 보건 향상측면에서 음용수의 트리튬 허용농도의 규제가 선진국 수준으로 이루어질 것으로 전망됨.

2.2. 국외 트리튬 처리기술 현황

2.2.1. 기체 트리튬 처리기술

2.2.1.1. 산화-흡착 기술

트리튬 관련 시설 작업환경, 환기 및 배기계통에서 존재하는 기체 트리튬의 제염은 촉매산화 내지는 고온 열분해에 의하여 산화물로 전환시켜 흡착 회수하고 있음[2]. 귀금속 촉매를 이용한 기체 트리튬의 산화는 150°C 이상에서 충분히 트리튬 산화물로 전환될 수 있는 반응활성을 가지기 때문에 고온 열분해보다는 경제적인 공정으로 알려져 있음. 트리튬 산화물의 흡착 제염 기술은 공정자체가 기계적으로 단순하고 조작 및 보수가 용이하기 때문에 중수로의 중수증기회수 계통에 적용되는 기술로서 주기적 흡착 및 재생 운전모드로 중수 및 트리튬 회수를 극대화 하고 있음.

이러한 흡착 제염에서 광범위하게 사용되는 molecular sieve는 약 18%까지의 함수율을 나타내고 열적 안정성이 우수하기 때문에 고온에서 물리적으로 흡착된 모든 수분을 탈착시키므로 재생이 가능함. 그러나 실제 재생모드 온도에서는 트리튬으로 치환된 결합수의 탈착이 용이하지 않아 흡착제의 트리튬 메모리 용량으로 보존되므로 다음 흡착 주기에서 영향을 미칠 수 있음. 일본 및 유럽연합에서는 이러한 사용후 흡착제의 결합 보존 트리튬을 동위원소 교환반응으로 탈착시켜 비방사성 폐기물로 전환시키는 기술을 개발하고 있음[3]. 캐나다 CRL 및 이탈리아 JRC에서는 제올라이트 구조 흡착제의 고유 산화물 결합수에 의한 트리튬 잔존 메모리 문제를 해소하기 위하여 새로운 흡착제를 개발하고 있다. 고성능 흡착제 적용으로 개발이 가능한 무기 산화물로는 Silicalite, Silicoaluminophosphates(SAPO), Metalloaluminophosphates(MeALPOs), Aluminophosphates (ALPOs), VIP-5, Aluminoborates, Beryllphosphates 등 제올라이트 구조 산화물들이 여기에 속함.

일본 원자력연구소 트리튬 프로세서 연구동(TPL)에 설치된 트리튬 포집·저장시설(TREX)의 경우 글로브 박스내부와 건물내 작업환경의 환기계통은 최종적으로 트리튬 제거공정(TRS)을 거치게 되어 있음[4]. 이 공정은 촉매산화 반응기, 제올라이트 흡착탑(2기), 순환 펌프, 가습기, 트리튬 모니터 등으로 되어 있다. 이 설비는 필요시 관류형 내지는 순환모드 선택 운전이 가능하며, 배기는 항상 촉매산화 반응기를 통과시켜 굴뚝으로 폐기되고 트리튬 농도가 높게 되면 제올라이트 흡착탑 2기를 직렬로 가동시킬 수 있고, 촉매산화 반응기는 수소뿐만 아니라 탄화수소도 산화되기 때문에 500℃까지 촉매탑 고온 운전이 가능함.

2.2.1.1. 기타 요소 기술

여러 가지 기체 중 트리튬 분리 및 전환 기술은 물과 메탄 같은 불순물 기체로부터 트리튬을 제거하는 공정에 적용됨. ITER의 경우 Pd/Ag alloy membrane permeator와 결합된 Ni/kieselguhr 촉매층을 이용하여 불순물 기체흐름 중의 트리튬 농도를 0.1% 이하 수준으로 감소시키는 제염계통을 설계하였음[5].

기체상의 수소동위원소 분리 방법 중에서 초저온 증류공정이 월성 TRF와 같은 대용량의 상용 설비에는 가장 적합한 것으로 알려져 있으나 수소 액화점 근처의 초저온에서 운전해야 하는 단점을 가지고 있음. 크로마토그래피를 이용한 분리방법은 운전과 구조가 단순하고 분리효율이 높은 장점이 있으나 아직은 분리효율이 충분치 못하여 지속적인 연구가 필요한 상태임[6].

2.2.2. 유기상 트리튬 처리기술

벨기에의 SCK·CEN은 제약산업에서 생성된 유기상 액체 트리튬폐기물을 약 20년간 저장해왔음. 이 폐기물은 95%가 메탄올과 물의 혼합물이며, 나머지 5%는 에테르와 클로로포름 등의 유기물로 구성되어 있음. 폐기물의 양은 178ℓ이고 트리튬의 방사능은 1.65 TBq이며, 2.5ℓ의 유리용기 70개에 저장되어 있음. 벨기에 정부와 규제기관은 SCK·CEN 측에 유기상 트리튬폐기물을 처리하여 비휘발성 형태로 장기간 보관할 것을 요청하였음. 용매혼합물을 파괴시키는 기술로서 열산화 직후 촉매산화하는 방법을 이용하였는데 파괴효율은 99.999% 이상임을 확인하였음. 이 계통에 유기상 액체 또는 증기상 폐기물을 직접 주입할 수 있는데, 용량은 일간 수 리터 수준임. 반응열은 외부 냉각 또는 물을 함께 주입하는 방법으로 쉽게 제거될 수 있으며, 생성된 물은 반응기 배출부에서 분리됨. 이 계통의 심장부는 그림 1에 나타난 바와 같이 2단계 고온 반응기로 용매는 산화제인 산소에 의해 고온의 연소실로 분사되어 주입됨[7]. 연소실 후단의 알루미늄 diffuser에서 산화생성물과 과잉 산소가 재혼합된 후 알루미늄에 백금이 0.5% 담지된 고온의 촉매층을 통과하는데, 반응기를 떠나는 기체들은 응축과 비응축 기체로 분리됨. 반응기 외부 벽에 두 개의 히터가 부착

되어 있는데, 연소실의 온도를 750℃로 촉매층의 온도를 700℃로 조절하는데 사용되고, 연소실 히터 아래에 설치된 질소냉각장치는 필요시 반응열을 제거하는 데 사용됨.

미국의 경우 용매 등의 유기상 트리튬폐기물은 두 가지 형태의 처분 규제를 받기 때문에 제거하기가 어려움. 즉, 발화성이므로 EPA 규칙상 위험폐기물로 간주됨과 동시에 DOE 규제상 방사성 폐기물로 취급됨. 유기상 트리튬폐기물은 위험하고 방사성이므로 혼합폐기물(mixed wastes)로 분류됨. EPA에 따르면, 고방사능의 트리튬을 함유한 혼합폐기물을 처분할 시설도 없으며, 이 혼합폐기물의 처리 방안은 극히 한정적이고 많은 비용이 소요될 것으로 예상됨. 2001년 12월 로렌스 버클리 국립 연구소의 National Tritium Labelling Facility(NTLF)가 폐쇄되었는데 유기상 트리튬폐기물 15ℓ가 발생되었음. 이를 처리하기 위하여 촉매산화계통이 개발되었는데, 원리는 유기물을 산화시켜 파괴하고 생성된 트리튬 산화물을 수집하는 것으로 SCK·CEN의 그것과 유사함.

2.2.3. 수용액 트리튬 처리기술

수용액 트리튬폐기물의 처리는 주로 HTO 형태의 트리튬 산화물에 포함되어 있는 트리튬을 제거하여 H₂O 형태의 비방사능 물로 제염하는 과정으로 물 탈삼중수소 (water detritiation)이라고 함. 처리공정의 1단계는 수용액상의 트리튬을 기체상으로 전이하는 것으로 백금촉매상의 화학교환 (HTO + H₂ = H₂O + HT) 또는 물의 분해 (HTO → HT + 1/2 O₂)에 의해 가능함. 1단계 공정은 증기상촉매교환(VPCE), 액상촉매교환(LPCE), 전기분해와 CECE 공정이 있을 수 있음. 기체상으로 전이된 트리튬 (HT/H₂)은 2단계에서 수소상의 트리튬이 농축되는데, 초저온증류(CD)가 주로 이용되고 있으며 소용량의 경우 GC가 적용될 수도 있음[8].

VPCE, LPCE 및 전기분해 공정이 수용액상의 트리튬을 단지 기체상으로 전이시키는 것과 달리 CECE 공정은 수소동위원소를 탈기하고 농축할 수 있음. 즉 물을 수소로 분해하는 전해조와 트리튬을 농축하는 LPCE 탑으로 구성되어 있음. 그림 2에 CECE 공정을 포함한 트리튬폐기물 처리공정을 도시하였는데, CECE 공정에서 트리튬은 탑하부에서 농축되고 트리튬이 제거된 수소는 탑상부에서 배출됨. 트리튬은 LPCE 탑상부로 공급되는 자연수에 의해 탈기되고, 전기분해조에서 농축되며 기체상태의 트리튬 농축 생성물이 탑하부에서 고정화시스템으로 이송됨. CECE 공정의 개발을 위해 캐나다의 AECL, 미국의 DOE 산하 Mound site, 일본의 JAERI, 벨기에의 원자력연구센터(SCK/CEN), 러시아의 원자력 물리 연구소(Nuclear Physics Institute) 등에는 실험실 또는 pilot 규모의 연구를 수행한 바 있음.

현재 세계의 핵연료재처리공장은 주로 PUREX 공정을 이용하고 있는데, 공정의 특성상 100m³/MTU 수준의 많은 수용액 트리튬 폐기물이 발생되며 그 농도는 3.5~7.0 mCi/ℓ 수준임[9]. 바닷가에 있는 공장들은 이 폐기물을 바다로 직접 방출하고 있으나, 미국 DOE 산하 Hanford site 등과 같이 내륙에 위치한 공장들은 지하수중의 트리튬 농도를 EPA의 음용수 허용치 이하로 유지시키기 위해 대량의 트리튬폐기물을 경제적으로 처리하는 기술은 물론 저장하는 방법의 개발을 활발하게 진행하고 있음. Hanford site에서의 폐수중 트리튬 처리시설의 기술적 성능 요건은 연간 1~4백만 gallon의 폐수에 포함되어 있는 2~3백만 pCi/ℓ의 트리튬을 2만 pCi/L이하로 감소시키는 것임.

2.3. 국내 트리튬 처리기술 현황

1989년 한국원자력연구소와 전력연구원은 과기부의 요구에 따라 트리튬에 의한 월성원전 종사자는 물론 주변 주민의 피폭감소와 환경오염방지를 위해 트리튬 제거방안에 대한 기술적, 경제적 검토를 한 결과, 2013년까지 약 30MCi의 누적 및 2,300man-rem 작업종사자의 피폭이 예상되어 트리튬 제거시설의 설치가 불가피함을 제시하였음. 그 후 한국원자력연구소는 이를 위한 기반기술을 확보하기 위해 초저온 증류기술(CD), 액상촉매 교환(LPCE)용 촉매 개발 등 트리튬 제거용 단

위공정 장치개발에 주안점을 두고 연구를 수행해 왔으며, 1999년부터 전력연구원과 공동으로 TRF를 위한 파일럿 실증연구를 수행하였음. 월성 2,3,4호기의 건설 이후 한국수력원자력주식회사는 AECL을 설계의 주계약자로 하여 TRF를 건설 중에 있으며, 2005년 이후 가동될 예정임. 월성 TRF는 LPCE와 CD로 설계되었으며, 특히 한국원자력연구소와 전력연구원이 공동으로 오랫동안 개발해온 LPCE 공정용 소수성 백금촉매가 핵심소재로 사용되게 되었음.

월성 원전의 삼중수소 환경방출량은 연간 400 TBq 수준이며, 기체상 방출량이 전체의 80% 수준임. 기체 트리튬 환경방출량은 중수 증기회수시스템의 성능에 좌우되는데, 1호기의 중수 증기회수 시스템에는 10개의 dryer가 설치되어 있으며, 중수 증기의 흡착제로서 약 22m³의 molecular sieve 13X가 충전되어 있음. 고성능 흡착제를 적용할 경우 중수 증기회수시스템의 성능 제고를 통해 ALARA 개념에 입각한 트리튬 환경방출량의 저감화를 이룰 수 있음.

2005년 이후부터 가동 예정인 TRF의 최종 생성물은 99.0%이상의 트리튬 기체이며, 금속 트리타이드 형태로 안전하게 보관되어야 함. 한국원자력연구소에서는 월성 TRF의 저장시스템에 사용되는 500 kCi급 트리튬 저장용기, 이 저장용기를 월성 원전 외부로 운송하기 위한 운반용기 및 향후 트리튬의 취급에 대비하기 위한 취급시스템을 개발함으로써 500 kCi급 트리튬 저장용기를 국산화하고, 향후 트리튬 활용에 대비하기 위한 기반기술을 확보하기 위한 연구를 수행중 임. 수행된 주요 기술은 금속 수소화 관련 저장재 및 수소동위원소 흡탈장 특성기술, 저장용기와 운반용기의 제작 및 시험 평가 기술, 트리튬취급시스템관련 수소 rig와 글러브 박스 설계기술 등이 포함됨.

국내 핵확산저항성 핵연료주기공정의 경우 사용후핵연료의 탈피복관 과정 등에서 트리튬이 기체 또는 증기상태로 핵연료에서 방출됨. 이 트리튬을 산화-흡착 복합공정 등으로 적절히 수집하면 기존의 재처리공장에서 발생하는 트리튬 폐기물에 비해 농도는 2~20 Ci/l로 높은 반면에 수용액 처리량은 매우 적을 것으로 예상됨. 따라서 기존의 재처리공장에 비해 경제적인 액체 트리튬폐기물 처리기술을 효과적으로 확보할 수 있을 것으로 판단됨. 최적공정으로 유망한 CECE 공정은 크게 촉매교환탑과 전기분해조로 구성되어 있는데, 촉매교환탑의 기능은 Sulzer 사가 상세 설계한 월성 TRF의 촉매교환탑과 동일하나 그 구조는 처리량 감소에 따른 친수성 충전물의 변화로 크게 달라짐.

3. 결 론

기체 트리튬폐기물을 처리하는 산화-흡착 복합공정과 수용액 트리튬폐기물을 처리하는 CECE 공정 등을 포함한 트리튬 폐기물 처리공정은 국내 트리튬취급시설로부터 발생하는 다양한 트리튬 폐기물의 안전한 처리에 직접 활용. 핵확산저항성 핵연료주기공정에서 발생하는 기체 트리튬 폐기물의 처리에 직접 활용하고, 유기상 트리튬 폐기물 처리기술 등은 트리튬 관련 산업체에 이전하여 트리튬 자원화에 기여. 한국형 CECE 공정을 개발하기 위해서는 국산 KAERI/KEPRI 촉매를 사용할 수 있는 소형 촉매탑을 국산화하고 이를 이용한 CECE 공정의 실증실험 및 설계기술의 확보가 필요함. 이러한 트리튬 폐기물의 처리기술 개발은 국민 보건 향상과 원자력 산업의 지속적인 발전을 위한 기술력 기반조성 및 국민의 방사성 폐기물에 대한 긍정적 이미지를 심어 주는데 필수적 임.

* 감 사 : 본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었음.

참 고 문 헌

1. J.E. Phillips & C.E. Eastery, *Nuclear Safety*, **22**(5), 612-626 (1980)
2. Y. Sakuma, et. al., *Fus. Eng. & Des.*, **49**, 939-943 (2000)
3. F. Toci, et. al., *Fus. Eng. & Des.*, **28**, 373-377 (1995)
4. M. Tanase, et. al., *J..Nucl. Sci. & Tech.*, **25**, 198-203 (1988)
5. H. Yoshida, et. al., *Fus. Eng. & Des.*, **55**, 313-323 (2001)
6. S. Ueda, et. al., *Fus. Sci. & Tech.*, **41**, 1146-1150 (2002)
7. W.T. Shmayda, et. al., *Fus. Sci. & Tech.*, **41**, 721-725 (2002)
8. D.A. Spagnolo and A.I. Miller, *Fus. Tech.*, **28**, 748-754 (1995)
9. G. Vasaru, Tritium Isotope Separation, pp. 12-14, CRC Press (1993)

표 1. 원자력발전에 의한 트리튬 생성속도

Reactor Type	MW/yr ¹⁾	TBq/MW/yr ²⁾	TBq/yr	Ci/yr	MCi/yr
LWR	329,230	1.00	329,230	8,898,108	8.90
HWR	17,180	89.00	1,529,020	41,324,865	41.32
HTGR	10,864	0.74	8,039	217,280	0.22
LMFBR	1,039	1.30	1,351	36,505	0.04
소계	358,313		1,867,640	50,476,758	50.48

¹⁾ Nuclear power plant information by IAEA (2003/10/20)

²⁾ J.E. Phillips & C.E. Eastery, *Nuclear Safety*, **22**(5), 1980

표 2. 원자력발전에 의한 트리튬 누출속도

Reactor Type	MW/yr ¹⁾	TBq/MW/yr ²⁾	TBq/yr	Ci/yr	MCi/yr
LWR	329,230	0.024	7,902	213,555	0.2136
HWR	17,180	0.890	15,290	413,249	0.4132
HTGR	10,864	0.022	239	6,460	0.0065
LMFBR	1,039	0.020	21	562	0.0006
소계	358,313		23,452	633,825	0.6338

¹⁾ Nuclear power plant information by IAEA (2003/10/20)

²⁾ J.E. Phillips & C.E. Eastery, *Nuclear Safety*, **22**(5), 1980

표 3. 국내 사용후핵연료의 발생량 추정치 (unit : MTU)

Year	PWR		CANDU		Total	
	Annual	Cumul.	Annual	Cumul.	Annual	Cumul.
1997	-	1,823	-	1,410	-	3,233
2000	203	2,376	376	2,256	579	4,672
2005	258	3,518	376	4,136	634	7,654
2010	332	5,067	376	6,016	708	11,083
2015	464	7,177	282	7,708	746	14,885
2020	464	9,497	282	9,118	746	18,615

표 4. 국내 트리튬의 유도한도 기준

	화학적 형태	연간 섭취한도	유도 공기중농도	배기/배수중의 배출관리기준
		Bq	Bq/m ³	Bq/m ³
흡입	G, 삼중수소가 결합된 물	1E+09	3E+05	3E+03
	G, 유기적으로 결합된 삼중수소	5E+08	2E+05	2E+03
	G, 원소상태의 삼중수소	1E+13	5E+09	4E+07
	G, 삼중수소가 결합된 메탄	1E+11	5E+07	4E+05
섭취	삼중수소가 결합된 물	1E+09	-	4E+07
	유기적으로 결합된 삼중수소	5E+08	-	2E+07

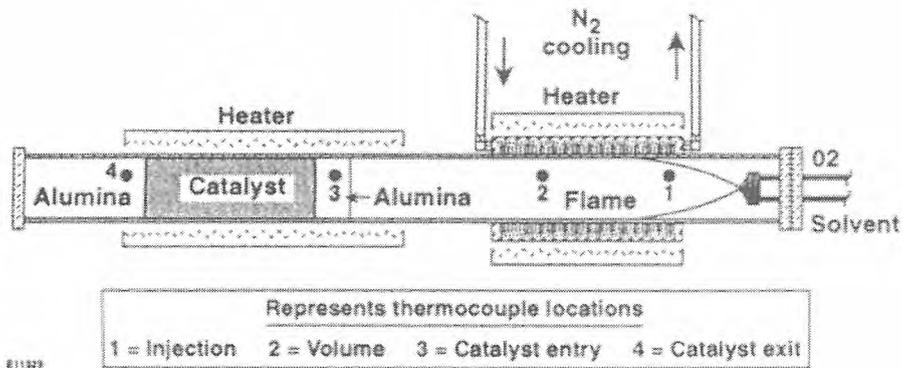


그림 1. 유기상 트리튬 처리계통의 개략도

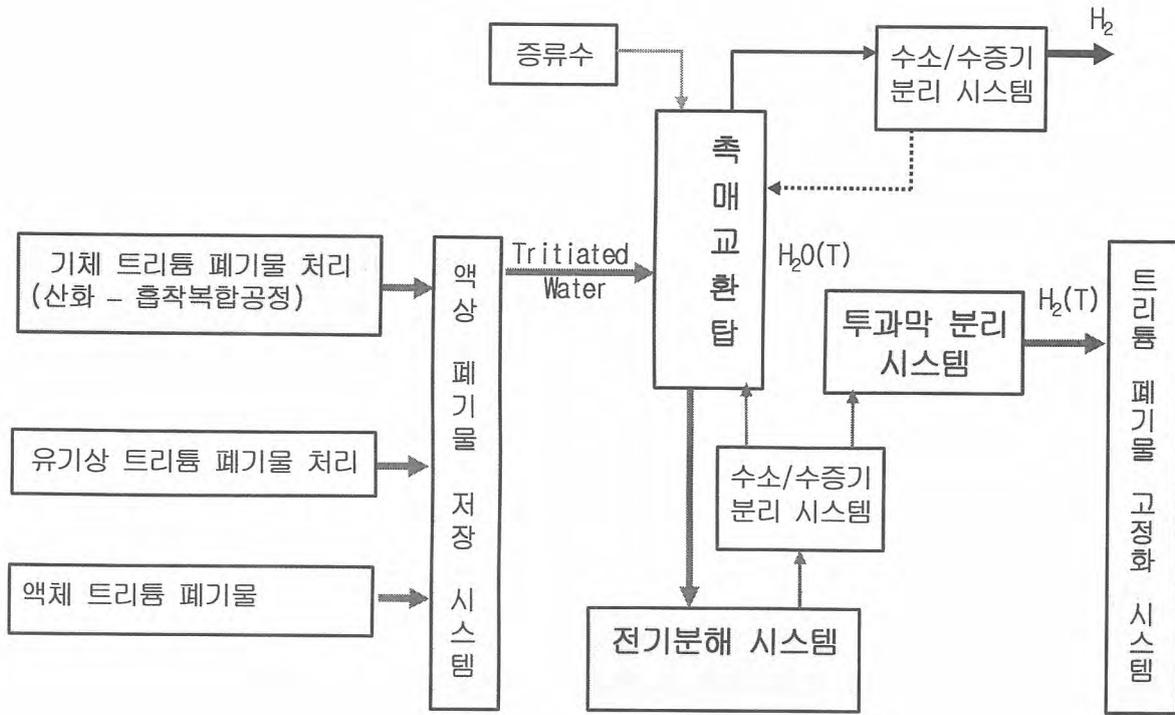


그림 2. 트리튬 폐기물 처리공정

건식처리에서 염폐기물 재생공정 필요성 (I)
- 폐기물 감량 측면 -

Necessity of Waste Salt Regeneration in Pyroprocessing (I)
- In View of Waste Reduction -

김정국, 김인태, 박근일, 권상운, 유재형, 김준형
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

원자력연구소에서 개발 중인 현재의 건식처리공정에서 발생될 용융염폐기물로 인한 최종 고화체의 발생량을 재생/재순환 공정을 도입할 경우와 비교하여 최종 고화체 발생량 감소와 이로 인한 재료비 절감액을 계산하였다. 현재까지 확보된 자료와 가정 하에 계산한 결과 1 ton HM을 처리하는 것을 기준으로 차세대관리공정 발생 LiCl염폐기물의 최종 고화체는 5.4 톤에서 1.7 톤으로 약 3.7 톤 (부피로는 1.6 m³) 줄게 되고, 1 ton U 규모의 전해정련공정 발생 LiCl-KCl 공용염폐기물의 최종 고화체는 2.7 톤에서 0.4 톤으로 약 2.3 톤 (부피로는 1.0 m³)이 줄어드는 것으로 계산되었다. 본 추정으로부터 건식처리공정이 보다 더 경제성을 높이기 위해서는 재생처리공정의 도입이 꼭 필요한 것으로 판단되었다.

Abstract

The reductions in final waste form and material costs, which were induced from an introduction of salt waste regeneration system, have been estimated and compared with those of the present pyrochemical process, which is under development in KAERI. The results calculated on the basis of published data and proper assumption showed that the final waste form of LiCl waste from the Advanced Conditioning Process would be reduced about 3.7 ton/ton HM (from 5.4 to 1.7 ton/ton HM). For the case of LiCl-KCl eutectic salt waste from the electro-refining process, the final waste form would be reduced 2.3 ton/ton U. Thus, these estimation suggested that the introduction of salt waste regeneration system was essential to improve the economical efficiency of the pyrochemical process.

1. 서론

현재 국내에서 개발 중인 사용후핵연료 (spent fuel; SF) 건식처리 공정(Pyrochemical process)에서는 LiCl 단일염 및 LiCl-KCl 공용염의 2종류의 염폐기물 (Waste salt)의 발생이 예상된다. 아

직 공정이 개발단계에 있어 정확한 염폐기물 발생량을 산정하기에는 이른 감이 있으나, 현재까지의 국내외 연구결과를 토대로 건식처리공정에서 발생하는 염폐기물을 재생하여 다시 재순환시키는 단위 공정이 개발되어 포함된다면 전체 건식처리공정의 폐기물 발생량이 얼마나 줄게 되며 이로 인한 경제적 비용절감 효과는 어느 정도인지를 예측해보고자 하였다.

2. 본 론

2.1 금속전환공정 발생 LiCl 염폐기물 재생공정

현재 한국원자력연구소에서 개발 중인 차세대관리공정은 고온의 리튬 용융염을 사용하여 SF를 금속으로 전환시키며, 동시에 Cs, Sr 등의 고방열 핵종들을 용융염 중에 남겨두는 방법으로 제거함으로써 SF의 체적 및 열부하를 원래의 약 1/4로 줄이는 핵비확산성 전처리 공정이다.¹⁾ 이 공정은 현재 전세계적으로 우리나라에서만 개발되고 있는 공정이라 여기서 발생하는 LiCl 염폐기물의 고정화 및 고화처리기술은 본 과제에서만 연구되고 있으며, 현재까지는 제올라이트 A를 이용한 염폐기물의 고정화 후 고온압착 (Hot-pressing) 장치를 이용하여 유리와 함께 압착하여 고화체를 만드는 실험실적 기술만 개발된 상태이다. 따라서 아직은 염폐기물 재생처리기술에 대해 재생 기준, 재생기술 개발비용 및 장치비용, 재생매질 소요량 등의 명확한 자료가 없는 상태라 몇 가지 가정을 가지고 분석하였으며, 상세한 가정은 아래와 같다.

- 1) 본 과제에서 수행한 염폐기물 고화기술로²⁾ 최종 고화체 제조
- 2) LiCl 염폐기물 재생은 목표 제거율을 기준함
- 3) Hot-cell 시설비용, 인건비, 장치비 및 전기료는 고려하지 않음
- 4) 최종 고화체 포장용기는 제외함
- 5) 금속전환공정 내에서 LiCl염을 평균 5 batch 재사용
- 6) 금속전환공정 내 LiCl 염사용량은 Heavy metal (HM)의 약 9배 사용
- 7) 고정화를 위해 첨가하는 제올라이트는 염의 약 0.5 - 2배의 범위가 적당하며, 여기서는 1배를 사용²⁾
- 8) 고정화생성물에 유리조성물질 (Glass frit)을 첨가하여 고온압착할 경우 LiCl-KCl 공용염폐기물은 1/3이 적당한 것으로 알려져 있으며³⁾, LiCl 염폐기물에 대해서는 아직 참고할만한 자료가 없어 여기서는 고정화생성물의 1/2를 첨가하는 것으로 가정
- 9) 고정화생성물의 겉보기밀도와 최종고화체의 밀도는 각각 1.2, 2.4 g/cm³
- 10) 제올라이트, 유리조성물질의 가격은 현 시세대로 각각 11만원/kg, 5만원/kg으로 가정
- 11) 계산기준 : HM 1 ton

2.1.1 현 공정(재생처리 없음) 발생 고화체량

HM 1 톤을 현재의 금속 전환공정에서 발생된 LiCl염폐기물을 현재 개발 중인 기술을 적용하여 고정화 및 고화처리하였을 경우 발생하는 최종 고화체의 양(포장용기 제외)은 아래의 계산과 같다.

- LiCl 염폐기물 발생량	1.0 ton * 9/5	= 1.8 ton
- 제올라이트 첨가량(고정화처리)	1.8 ton * 1	= 1.8 ton
- 고정화 생성물량		= 3.6 ton (3.0 m ³)
- 유리 첨가량(고화체 제조)	3.6 ton * 1/2	= 1.8 ton
- 최종고화체 발생량		5.4 ton (2.3 m ³)

즉, 금속 전환공정에서는 약 1.8 톤의 LiCl염폐기물이 발생되어 고정화 처리를 거치면서 3.6톤의 고정화 생성물로 되고 여기에 유리조성물질을 첨가한 후 고온압착하여 제조한 최종 고화체의 양은 약 5.4 톤으로 최종고화체의 밀도가 약 2.4 g/cm³임을 감안하면³⁾ 그 부피는 약 2.3m³에 이를 것으로 예상된다. 이러한 처리를 위해 소요되는 비용 중 Hot-cell 시설비용이나 인건비, 처리 장치비 및 전기료 등을 제외한 순수한 재료비는 제올라이트가 약 2억원, 유리조성물질이 약 1억원, 기타 가스비가 1억원 등 총 4억원 가량의 처리비용이 소요될 것으로 추정된다.

2.1.2 재생처리 공정을 추가할 경우 고화체 발생량

계산기준은 2.2.1과 같으나 아직 LiCl 염폐기물의 재생공정에 대해서는 회분식 이온교환처리 실험만 이루어진 상태라 재생 처리용 컬럼의 규모, 용융 LiCl염에 대한 적정 비율, 제거효율 등의 자료가 없어 정확한 계산은 어렵다. 다만, 연속식 재생컬럼에 사용될 제올라이트의 양이 이온교환이 가능한 최소 LiCl/zeolite 비가 4까지는 적용할 수 있으므로 이를 한계 목표치로 잡고 계산하였으며, 이 경우 최종 고화체의 양(포장용기 제외)은 아래의 계산과 같다.

- 재생컬럼회수 제올라이트	1.8 ton * 1/4 * 2	= 0.90 ton
- 제올라이트 첨가량(자유염 고정화)	0.45 ton * 1/2	= 0.23 ton
- 고정화 생성물량		= 1.13 ton(0.9 m ³)
- 유리 첨가량(고화체 제조)	1.13 ton * 1/2 = 0.57 ton	

- 최종고화체 발생량		1.70 ton (0.7 m ³)

여기서, 재생컬럼에 들어가는 깨끗한 제올라이트 (겉보기 밀도가 약 0.73)는 0.45 톤이지만 이온교환에 의한 핵중제거를 끝내고 회수한 제올라이트는 LiCl 염이 제올라이트의 결정의 세공과 결정 사이에 존재함으로 밀도가 2배까지 증가하는 것으로 가정하였다. 이렇게 회수된 제올라이트는 본 과제에서 개발한 기술인 염폐기물을 제올라이트로 직접 블랜딩하여 제조한 고정화 생성물에 비해 훨씬 더 많은 자유염이 존재하므로 이들을 고정화하기 위해 깨끗한 제올라이트를 첨가하여야 한다. 그 후 적당량의 유리조성물질을 첨가하여 고온압착함으로써 유리고화체를 만들게 된다. 이러한 단계를 밟아 만들어지는 최종 고화체는 약 1.7톤 (부피로는 0.7 m³)에 이를 것이므로 재생공정이 없는 현재의 경우에 비해 HM 1톤당 무게로는 약 3.7 톤, 부피로는 1.6 m³가 줄어드는 것으로 예상된다. 소요되는 재료비는 제올라이트가 약 0.75억원, 유리조성물질이 약 0.3억원, 기타 가스비가 0.45억원 등 총 1.5억원 가량이 소요되므로 약 2.5 억원/ton HM 가량이 절감될 것으로 보인다.

2.2 전해정련 공정 발생 LiCl-KCl 공용염폐기물 재생공정

현재 한국원자력연구소에서 개발 중인 장수명 핵종 소멸처리기술의 근간을 이루는 전해정련 공정은 차세대관리공정에서 제조된 금속체를 출발물질로 장수명 핵종인 TRU를 회수하여 핵종변환로에서 이들을 단수명 핵종으로 바꾸는 기술이다. 이 공정에서는 LiCl-KCl 공용염이 전해매질로 사용되므로 이들의 일부가 염폐기물로 발생된다. 차세대 공정과는 다르게 직접 SF를 다루지 않기 때문에 이 공정에서 발생하는 공용염폐기물에는 핵분열 생성물인 알칼리 및 알칼리 토금속 핵종은 거의 없을 것으로 예상되고 일부 TRU, 악티나이드 및 RE 등이 존재할 것으로 예상된다. 현재 공정개발의 초기단계라 공용염폐기물 발생량에 대한 상세한 정보가 아직 없으므로 여기서는 같은 전해매질을 사용하여 10 kg U/batch 규모의 실험을 100회 수행한 후 사용된 모든 염이 폐기물로 발생하는 것으로 가정하였다. 또, LiCl-KCl 공용염폐기물의 안정화 처리연구는 국내에서

아직 수행된 바 없으므로 미국 ANL에서 IFR 건식처리공정을 개발과 함께 수행한 LiCl-KCl 공용염폐기물의 고화체 제조기술에서 얻은 결과 즉, 제올라이트 및 유리조성물질의 적정 첨가량과 재생처리할 경우 추정치 등을 참고하여 계산하였으며, 그 상세한 가정은 아래와 같다.

- 1) 미국 ANL의 LiCl-KCl 공용염폐기물 고화기술로 최종고화체를 제조
- 2) Hot-cell 시설비용, 인건비, 장치비 및 전기료는 고려하지 않음
- 4) 최종 고화체 포장용기는 제외함
- 5) 10 kg U/batch 규모 전해정련공중에서 100회 분리 후 모두 염폐기물로 발생
- 6) 블랜딩 위해 첨가하는 제올라이트는 공용염의 1.6배 (Glass-bonded zeolite waste form 제조 시) 및 3.8배 (Glass-bonded sodalite waste form 제조 시)를 사용,³⁾ 여기서는 3.8배를 기준
- 7) 유리조성물질 첨가량은 고정화생성물의 1/3 사용⁴⁾
- 8) 고정화생성물과 최종고화체의 밀도는 각각 1.2, 2.4 g/cm³
- 9) 계산기준 : U 금속체 1 ton

2.2.1 현 공정(재생처리 없음) 발생 고화체량

10 kg U/batch 규모의 전해정련공정을 100회 수행한 후 사용된 모든 LiCl-KCl 공용염이 폐기물로 발생하는 것으로 가정하여 현재 미국 ANL에서 개발 중인 기술로 고정화 및 고화처리하였을 경우 발생하는 최종 고화체의 양(포장용기 제외)은 아래의 계산과 같다.

- LiCl-KCl 공용염폐기물 발생량		= 415 kg	
- 제올라이트 첨가량(고정화처리)	415 kg * 3.8	= 1,580 kg	
- 고정화 생성물량		= 1,995 kg (1.66 m ³)	
- 유리 첨가량(고화체 제조)	1,995 kg * 1/3	= 665 kg	

- 최종고화체 발생량		2,660 kg (1.11 m ³)	

금속전환공정에서 발생하는 LiCl 염폐기물에 비해 고방열성 핵분열 생성물이 적게 존재하므로 전해매질을 여러번 사용이 가능한 LiCl-KCl 공용염계에서는 발생하는 최종 고화체의 양은 크게 작다. 계산에 의하면 최종 고화체 발생량은 약 2.66 톤 정도(부피로는 약 1.1 m³)이며 차세대관리공정에 비하면 절반정도이다. 고화체를 제조하기 위해 소요되는 순수 재료비는 제올라이트가 약 1.75억원, 유리조성물질이 약 0.35억원, 기타 가스비가 0.5억원 등 총 2.6억원 정도의 처리비용이 소요될 것으로 추정된다.

2.2.2 재생처리 공정을 적용할 고화체 발생량

연속식 재생컬럼에 사용될 제올라이트의 양이 이온교환이 가능한 최소 염/zeolite 비가 4까지 적용할 수 있음을 감안하여 소요되는 제올라이트의 양은 재생처리대상 공용염폐기물의 1/4만 필요하고 회수된 염내포 제올라이트는 그 무게가 초기 제올라이트의 2배가 되는 것으로 가정하였다.

- LiCl-KCl 재생킬럼 회수 공용염폐기물(염의 25%)			
	$415 \text{ kg} * 1/4 * 2$	=	210 kg
- 제올라이트 첨가량(자유염 고정화)	$105 \text{ kg} * 1/2$	=	55 kg
- 고정화 생성물량		=	265 kg (0.2 m ³)
- 유리 첨가량(고화체 제조)	$265 \text{ kg} * 1/3$	=	90 kg

 - 최종고화체 발생량 355 kg (0.15 m³)

즉, 전해정련공정에 염폐기물 재생공정을 적용함으로 만들어지는 최종 고화체는 약 0.36톤 (부피로는 0.15 m³)에 이를 것이므로 재생공정 없이 바로 최종고화체로 안정화시키는 경우에 비해 U 1톤당 무게로는 약 2.3 톤, 부피로는 약 1.0 m³ 가량이 줄어들며, 소요되는 재료비는 제올라이트가 약 0.2억원, 유리조성물질이 약 0.1억원, 기타 가스비가 0.2억원 등 총 0.5억원 가량이 소요되므로 재생공정의 적용으로 인한 절감액은 약 2.1 억원/ton U 으로 추산된다.

2.3 기타 고려할 사항

몇몇 원자력 선진국들에 의해 연구개발이 진행중인 건식처리기술은 현재까지는 근간을 이루는 주요 단위공정을 중심으로 연구되고 있으며, 특히 건식처리공정의 특성상 연속공정으로 이루어지지 않고 전해조를 이용한 회분식 공정이 단계별로 진행된다. 따라서 건식처리공정에 폐기물 재생처리공정을 추가하는 것은 크게 어렵지는 않을 것으로 보인다. 다만, 주요 단위공정의 조업변수로 전해매질의 순도, 운전 변수 및 조건, 함유된 핵종들의 영향 등에 대한 연구가 완결된 상태가 아니므로 재생기준이 아직 설정되어 있지 않을 뿐만 아니라 과연 단일 공정으로 만족할 만한 재생이 이루어질 수 있는가에 대한 기술성 검토도 이루어지지 않은 상태이다. 대부분의 건식처리공정이 400℃ 이상 (차세대관리공정의 경우 650℃)의 고온의 비활성 분위기에서 이루어지며 매우 부식성이 크기 때문에 재생에 사용되는 매질이 제한적이다. 또한, 염폐기물에 함유된 핵종을 효율적으로 제거하기 위해서는 염을 완전 용융상태로 만들어 물리화학적인 방법을 적용하여야 하는데 온도에 민감하므로 재생용 킬럼이 잘 막히는 것으로 알려져 있다. 이러한 문제를 해결하기 위해 단순히 킬럼의 상부에서 용융염을 유입시키기보다 미리 제올라이트 입자가 고온의 용융염에 잠긴 상태에서 용융염폐기물이 유입되도록 하기도 하며,⁵⁾ 아르곤 기체를 이용하여 이를 가압함으로 연결된 재생킬럼의 하부로부터 용융염폐기물이 유입되도록 하는 시도가 있었으나⁶⁾ 아직 완전한 해결책을 찾지 못한 상태이다.

또 고려할 사항으로는 재생기술의 개발이 가능하다고 해도 기술개발에 소요되는 비용이 과연 깨끗한 염의 현재 가격에 대한 경제성 문제는 고준위폐기물 처분비용을 고려한 체계적인 경제성 검토가 필요하다.

3. 결 론

현재 원자력연구소에서 개발 중인 건식처리공정에서 발생이 예상되는 2종류의 염폐기물에 대해 재생/재순환 공정을 도입할 경우 최종 고화체 발생량 감소와 이로 인한 재료비 절감액을 추정할 결과는 다음과 같았다. 1 ton HM 규모의 금속전환공정에서 발생하는 LiCl 염폐기물의 고화체는 재생공정을 도입하면 약 3.7 ton/ton HM (부피로는 1.6 m³/ton HM) 줄게 되어 약 2.5억원의 재료비가 절감되며, 1 ton U 규모의 전해정련공정에서 발생하는 LiCl-KCl 공용염폐기물의 고화체는 약 2.3 ton/ton U (부피로는 1.0 m³/ton U)이 줄어 약 2.1억원의 재료비가 절감되는 것으로 계산되었다.

감사의 글

본 논문은 과학기술부의 원자력 중장기 연구개발 사업의 일환으로 수행되었음.

참 고 문 헌

1. Y.J. Shin, et al., "Development of Advanced Spent Fuel Management Process", KAERI/RR-2128/2000 (2000).
2. J.-G. Kim, et al., "The Properties of Zeolite A in Molten LiCl Waste", ICEM03, International Conference of Environmental Management 03, Sep. 21-25, Oxford, England, 2003; 2003년 춘계 원자력학회 및 NUPYRO2003 발표 논문집 (2003).
3. S.M., Frank, et al., "Characterization of Composite Ceramic High Level Waste Forms", Argonne National Laboratory, ANL/ED/CP-93616 (1997).
4. T.P. O'Holleran, T. DiSanto, S.G. Johnson, K.M. Goff, "Fracture Toughness Measurements on a Glass Bonded Sodalite High-Level Waste Form", 101st Annual Meeting Symposium, American Ceramic Society, Indianapolis, Indiana, Apr. 25-30, 1999.
5. C. Pereira and B.D. Bobcock, "Fission Product Removal from Molten Salt Using Zeolite", Argonne National Laboratory, ANL/CMT/CP-87995 (1996).
6. C. Pereira, M.A. Lewis, and J.P. Ackerman, "Overview of Mineral Waste Form Development for the Electrometallurgical Treatment of Spent Nuclear Fuel," Argonne National Laboratory, ANL/CMT/CP-88394 (1996).

방사성 소각재 함유 고화체의 매질 조성이 용출 특성에 미치는 영향에 관한 연구

*김광중, 이규성, 정찬우¹⁾, 김인태²⁾, 김준형²⁾, 서용철
연세대학교 환경공학과, 한국 원자력 안전기술원¹⁾, 한국 원자력 연구소²⁾

요 약

유리고화체의 내구성과 조성에 관한 이 연구의 목적은 구조적 모델, 비가교 산소 모델(NBO) 및 간단한 경험적 모델(Valence-oxygen)과 함께 침출 실험 결과들을 비교하는 것이다. 조성에 기초한 모델들 사이의 연관성들은 이와 같은 모델들이 지질학적 유리와 제조된 유리의 관련성에 대해 유리고화체의 내구성을 설명할 수 있다는 것을 나타낸다. 이러한 관계는 유리고화체의 장기간 내구성을 결정하는데 도움을 줄 수 있으며, 모델을 통한 유리고화체의 조성에 의한 실험 결과에의 영향성을 검토하였다. 90°C에서 7일간 수행된 PCT 침출 시험을 대상으로 모델들을 비교하였으며 Ash Loading wt%가 증가할수록 망목형성이온이 증가하기 때문에 침출 농도 및 침출 분율이 감소하는 것을 확인 할 수 있었으며, VO model의 변수 값이 증가할수록 주요 유리매질의 침출 분율은 완만한 기울기를 가지며 감소한다. 금속류의 침출 분율은 VO model의 변수 값이 감소함에 따라 대체적으로 증가함을 확인 할 수 있었다.

I. 서 론

유리고화체의 경우 다른 고화체에 비해 내마모성과 화학적 내구성이 우수한 장점이 있어 유해도가 높은 유해 폐기물과 방사성 폐기물을 대상으로 적용 가능한 기술이며, 특히 방사성 폐기물의 안전한 관리와 처분을 위해 내침출성이 강한 고화매질의 개발에 관한 연구가 국내에서 활발히 진행 중에 있다. 비결정질의 높은 내구성을 가지는 유리고화체는 미세경도, 압축강도, 밀도 등의 물리·기계적 특성이 우수한 것으로 알려져 있으며 유리고화 매질의 주를 이루는 Si가 고화체의 침출기전을 결정하는데 고화매질의 침출은 용해에 의한 침출이 지배적으로, 고화체 전체가 물에 잠기는 경우가 발생한다고 해도 수백년 이상의 장기 안정성을 가지고 있다. 고온에서의 용융과 서냉을 거치면서 공극이 적은 망목구조로 이루어져 있어 침출제에 고화체가 노출될 경우, 매질 성분들 대부분이 침출제와 접촉하고 있는 표면에서 반응을 한다. 유리고화매질은 침출제와 접촉하여 용해 또는 확산이 동반된 용해가 지배적인 침출기전으로 표면에서 적은 양이 지속적으로 침출되어 나오기 때문에 고화체 표면에서의 침출 특성 해석이 중요하다. 이때 표면에서 노출되는 유리매질 성분들의 침출 거동을 평가하므로써 유리고화체의 침출 거동을 해석할 수 있고 유리고화체의 제조시 조성 연구에 기초 자료를 제공하므로 표면에서의 매질 성분들의 침출 특성에 관한 연구가 필요하다 하겠다. 또한 수화 자유에너지 모델과 NBO 모델처럼, 산소-원자가 모델은 적용에 많은

[연락처] (우)220-710 강원도 원주시 흥업면 매지리 234 연세대학교 환경공학부 폐기물처리공학 연구실
김광중, Tel. : 033-760-2846, Fax. : 033-763-5224, E-mail : rhkdwhd@empal.com

제한사항들이 있다. 자유에너지 모델과는 달리, 산소-원자가 모델은 온도 변화나 침출액 조성의 변화에 따른 차이들을 예측할 수 없다. 그러므로, 산소-원자가 모델은 염수와 같은 농축된 침출액이 있는 조건에서는 정확한 용해속도를 예측할 수 없다. 또한, 이 모델은 유사한 조성들의 변화에 따른 차이들을 예측하지 못한다.

II. 시 료 및 실험 방법

1. 시료의 조성

연구소, 핵연료주기시설, 방사성동위원소의 생산 및 이용기관 등에서 발생하는 저준위 방사성폐기물 세부 구성비율과 가연성 잡고체 폐기물중의 각 성분물질의 구성비율, 각 성분물질의 회분함량 분석결과 및 각 물질의 연소후 발생하는 회분의 무기물 조성분석 결과를 토대로 원전 발생 가연성 잡고체 폐기물의 소각시 발생하는 소각재의 예상되는 대표 무기조성 결과로부터 유리고화체를 제조하였다(Table 1).

2 유리고화체의 제조

고화체 제조를 위해 프랑스의 R7T7 유리를 기본 유리매질로 하여 유해폐기물 소각재 및 방사성 폐기물 소각재와 일정한 비율로 변화시키면서 혼합하였다. 기본 유리매질 성분과 소각재를 무게비로 제조 혼합하여 용융용 내열 도가니에 넣는다. 미리 1,300℃로 유지시켜 놓은 전기로에 내열 도가니를 넣고 약 2시간 30분 동안 가열, 용융시킨후 550℃로 서냉시켜 제조하였다. 제조된 유리 고화체는 저속 diamond saw를 이용하여 적절한 두께로 절단 및 가공하여 diamond paste(1μm)로 최종 가공한 후 표면에 묻어 있는 미세 분진을 제거하여 실험용 시편으로 사용하였다.

Table 1. Composition of vitrified waste form

(Unit : wt%)

Ash content Composition	0 wt%	10 wt%	20 wt%	30 wt%	40 wt%	50 wt%	60 wt%	70 wt%	80 wt%	90 wt%	100 wt%
SiO ₂	54.94	41.67	34.78	59.88	53.614	53.283	52.951	52.62	52.288	51.957	51.625
B ₂ O ₃	16.94	15.246	13.52	11.59	10.164	8.470	6.776	5.082	3.388	1.694	-
Li ₂ O	2.39	2.153	2.072	1.813	1.443	1.206	0.969	0.732	0.496	0.259	0.022
Na ₂ O	11.09	12.72	28.13	15.63	7.512	6.415	5.318	4.221	3.124	2.027	0.930
CaO	4.88	15.48	15.31	0.42	9.42	10.555	11.690	12.825	13.961	15.096	16.231
Al ₂ O ₃	5.93	8.80	0.4	12.490	7.362	7.720	8.078	8.437	8.795	9.153	9.511
NiO	3.020	0.746	0.748	-	2.088	1.855	1.622	1.389	1.156	0.923	0.690
TiO ₂	0.224	1.063	1.902	2.741	3.358	4.197	5.037	5.876	6.716	7.555	8.394
K ₂ O	-	0.005	0.086	-	0.306	0.383	0.460	0.536	0.613	0.690	0.766
Fe ₂ O ₃	-	0.595	1.189	1.783	2.377	2.971	3.566	4.160	4.754	5.349	5.943
MgO	-	0.434	0.87	1.306	1.742	2.178	2.614	3.049	3.485	3.920	4.356
PbO	1.001	1.154	1.307	1.46	0.613	0.766	0.919	1.073	1.226	1.379	1.532
Sum	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100

3. VO Model

수화 자유에너지 모델과 비가교 산소 모델과의 모순현상을 해결하기 위해 산소-원자가 모델이라는 간단한 유리 용해/조성 모델이 개발되었다. 산소-원자가 모델은 유리 제조시 양이온은 원자가에 따라 반응이 진행되는 상대적인 안정도를 기본으로 한다. Jantzen과 Plodinec은 산소의 ΔG_{hyd} 가 반응하는 양이온의 원자와 관련 있다는 것을 관찰한 바 있다.

먼저, 모델을 설명하기에 앞서, 몇 가지의 항목들을 정의하였다. 모델의 기본이 되는 두 개념은 “안정한” 또는 “불안정한” 양이온과/산소의 결합이다. 하나의 원자를 갖는 양이온은 하나의 “불안정한” 양이온/산소 결합을 형성한다고 가정한다. 또한, $X > 1$ 인 원자를 갖는 양이온은 X개의 “안정한” 양이온/산소 결합을 형성한다고 가정한다. 안정한 결합과 불안정한 결합의 수를 평가하기 위해, (결합형태의 몰)/(유리 몰)을 (전체 산소원자수/유리 몰)로 나눈다. 원자가 변수, P,는 유리의 상대적인 안정도를 계산하는데 이용된다. P의 정의는 안정한 또는 불안정한 양이온/산소 결합의 수를 기본으로 한다.

$$P = (A - B) / C$$

$A = 3\sum(x_{R_2O})$: 모든 R_2O 산화물에 적용.

이 값은 (불안정한 양이온/산소 결합의 몰수)/(R_2O 몰) + (산소 몰)/(R_2O 몰)을 의미한다.

$B = \sum m(x_{R_jO_m})$: $2m/j > 1$ 인 모든 산화물에 적용. (B_2O_3 포함)

이 값은 (안정한 양이온/산소 결합의 몰수)/(산화물 몰) - (산소원자 몰)/(산화물 몰)을 의미한다.

$C = \sum k(x_{R_iO_k})$: B_2O_3 를 제외한 모든 산화물에 적용.

이 값은 (산소원자의 전체 몰수)/(유리 몰수)를 의미한다. B_2O_3 는 양이온/산소결합에서 아주 강한 공유결합을 하므로 B_2O_3 는 자체 산화물 형태로 남고, 실리카/산소/양이온이 결합되어 있는 유리매질에서 독자적인 거동을 한다. 따라서, B_2O_3 는 안정한 결합수나 유리에 포함되어 있는 산소수 계산에 포함시키지 않는다.

III. 결과 및 토의

11개의 제조된 유리고화체들은 7일 동안의 PCT 테스트를 통해 화학적 내구성이 평가되어졌다. VO model의 P값을 계산한 결과 $-0.390 \sim -0.620$ 의 변수를 나타내었다.

1. Measured Leached Concentration by VOM for Glass Compositions

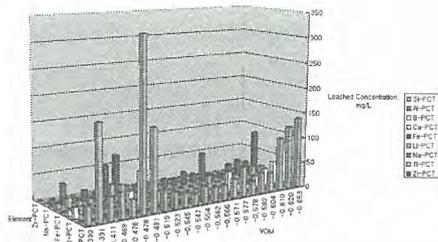


Fig. 1 Leaching Concentration of Glass Compositions

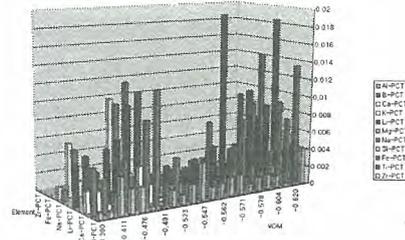


Fig. 2 Leaching Fraction of Glass Compositions

2. Measured leaching Fraction vs leaching Fraction Predicted by the VOM for Major Glass Compositions

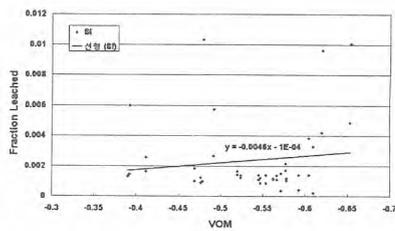


Fig.3 Leaching Fraction by the VOM for Si

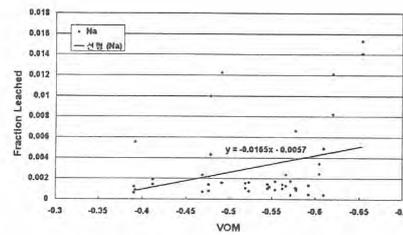


Fig.4 Leaching Fraction by the VOM for Na

1. Ash Loading wt%가 증가할수록 즉, P값이 감소할수록 침출농도 및 침출분율이 감소하였는데 이는 ash의 함유량이 많아질수록 망목형성이온이 증가하기 때문으로 판단된다.
2. VO model의 변수 값이 $-0.620 \sim -0.390$ 으로 증가할수록 주요 유리매질의 침출분율은 Na -0.0165 , Ca는 -0.0058 , B는 -0.0237 , Si는 -0.0046 의 완만한 기울기를 가지며 감소하였으며, $-0.476 \sim -0.491$ 부근에서 peak 값을 가졌다.
3. Mg, Fe, Ti, Zr등의 금속류의 침출분율은 VO model의 변수 값이 감소함에 따라 대체적으로 증가함을 확인 할수 있었으며, -0.562 , -0.577 에서 peak 값을 가졌다.
4. 자유에너지 모델과는 달리, 산소-원자가 모델은 온도 변화나 침출액 조성의 변화 유하한 조성들의 변화에 따른 차이들을 예측하지 못하며, 이러한 변수들은 본 연구에서는 다루지 않았다.

참 고 문 헌

- [1] B. Grambow, Geochemical Approach to Glass Dissolution, Corrosion of Glass, Ceramics and Ceramic Superconductors, 1992
- [2] M.Jantzen, Thermodynamic Approach to Glass Corrosion, Corrosion of Glass, Ceramics and Ceramic Superconductors, 1992
- [3] A.J.G.Ellision, J.J.Mazer, and W.L.Ebert, Effect of Glass Composition On Waste Form Durability, ANL-94/28,1994
- [4] R.W. Geldart, et. al., "The effects of composition on glass dissolution rates", Pacific Northwest Laboratory, PNL-6333, 1988.
- [5] B. Mason, Modular Enviroglass Vitrification Technology for Low-Level Radioactive and Mixed Wastes, Vectra Technologies Inc., Richland, WA, 1995.

Evaluation of the Demineralizer Performance and ^{65}Zn Activity on Spent Resin for a Zinc Addition Operation

Kwang-Rag Kim · Ki-Woung Sung · Jung-Won Na · Uh-Chul Kim
Korea Atomic Energy Research Institute

ABSTRACT

Zinc acetate has been proposed and used to evaluate ionic zinc as a means to reduce reactor radiation buildup at several nuclear plants. Thermodynamic analysis of the aqueous zinc system using reliable data shows that the stability of the hydrolyzed zinc species increases with pH and temperature. Adsorption kinetics and isotherm studies were carried out to investigate the mixed resin performance of the zinc adsorption. The equilibrium isotherms of the zinc adsorption onto nuclear grade resin indicate that the data correlate well with the Langmuir model and that the adsorption is physical in nature. The maximum capacity according to the Langmuir model is about 0.6meq/g for an initial zinc concentration of 100ppm at 50°C. The use of natural zinc could result in the generation of a ^{65}Zn activity with about 500 $\mu\text{Ci/mL}$ of resin after 12 months of operation.

1. Introduction

Recently, the addition of zinc to the primary coolant of a nuclear reactor has gained a great deal of attention and been seen as an attractive option because of its effective reduction of the radiation dose rates in piping systems and the prevention of cracking in certain metallic components [1-3]. Long-live isotope Zn-65 (forming from the Zn-64) provides an additional increase in the γ -radiation dose rate. Thus, Zn-64 needs to be decreased to 1-5% in the injecting Zn isotopes and results in a cost increase for the depleted zinc compounds (depleted of ^{64}Zn) [1].

Zinc depleted in Zn-64 is usually added as an aqueous solution of zinc acetate to the primary coolant system of pressurized water nuclear reactors. The zinc concentration of coolant is controlled to about 40ppb by adjusting the zinc addition rate at a zinc feed concentration of about several hundred ppm. It has been estimated that about 70% of zinc is inevitably removed by the coolant purification system from the operational experience with a zinc addition. Accordingly, the injection rate of the costly zinc should be higher than the removal rate on the purification mixed bed.

The zinc cation is readily removed from the solution by strong acid ion exchange resins such as those used in the purification demineralizers. In common with the ions of such corrosion products as cobalt, nickel and iron, zinc will be exchanged for hydrogen ions from the nuclear grade strong acid resin in the cation bed and the mixed bed. Thus, an evaluation is required for the potential effects of the zinc addition on the performance of the purification demineralizers. This evaluation is important to estimate the resin performance associated with the overall efficiency and expiration of the demineralizer resin with a zinc addition.

It is expected that aqueous zinc could form various ionic species for the range of pH and temperature when dissolved in the primary coolant. An aqueous equilibrium analysis of the dissolved zinc species is essential for this understanding.

In this work, a simple thermodynamic calculation was performed to estimate the possible reaction of the ion exchange for aqueous zinc species. The zinc adsorption on the typical mixed resin of a nuclear grade was evaluated to determine how the presence of zinc could have an adverse effect on the resin performance and expiration. Equilibrium adsorption isotherms are analyzed to obtain the Langmuir constants and the kinetic investigation at various temperature ranges is also undertaken. In

addition, the generation of the ^{65}Zn activity on the demineralizer was estimated on the basis of the CVCS operating condition of the PWR.

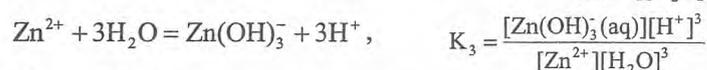
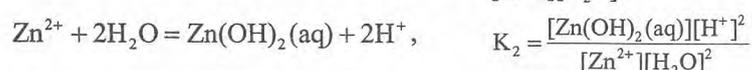
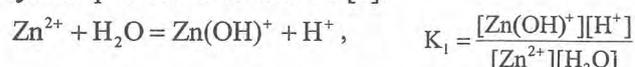
2. Dissolved Zinc Equilibrium in an Aqueous Solution

Dissolved zinc mostly forms the divalent cation Zn^{2+} when dissolved in a neutral aqueous solution and does not form complex ions except in acidic or alkaline solutions at room temperature. The basic dissolution reaction of zinc acetate in an aqueous solution can be written as follows [4,5]:



This is the solubility reaction of $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2(\text{s})$ to give the uncomplexed zinc ion in an aqueous solution.

Hydrolysis of the dissolved zinc ion could form zinc-hydroxyl complexes at an elevated temperature ($T > 25^\circ\text{C}$) or in an alkaline solution. The basic hydrolysis reactions of the zinc ion to form zinc-hydroxyl complexes are as follows [6]:



K_o , K_1 , K_2 , and K_3 are the equilibrium constants of the corresponding reactions. The molality of each species is assumed to be defined by the equilibrium of the relevant reactions. The existence of higher valence anions and polymer ions with other anions was also neglected.

Total charge concentration of the positive ions should be equal to that of the negative ions in the solution for the charge neutrality of the system. Total dissolved zinc concentration ($\sum[\text{Zinc}]$) is defined as the sum of the following species in an aqueous zinc acetate solution:

$$\sum[\text{Zinc}] = [\text{Zn}^{2+}] + [\text{Zn}(\text{OH})^+] + [\text{Zn}(\text{OH})_2(\text{aq})] + [\text{Zn}(\text{OH})_3^-] + [\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COOH})_2(\text{aq})]$$

Equilibrium constants for the hydrolysis of the zinc ion to form the zinc-hydroxyl complexes, and for the solubility reaction of $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2(\text{s})$ to give the uncomplexed zinc ion in a solution, were derived by Apelblat [4] and Giordano [5] in a MULTEQ-based analysis[7].

3. Experimental

The nuclear grade mixed resin of Amberlite[®] IRN150 (Rohm and Haas Co., USA) was used in this study. This mixed ion-exchange resin is generally used for the removal of radio nuclides from coolant and waste water. The physical properties and specifications of the resin as reported by the suppliers are shown in Table 1. A stock solution of 1000ppm zinc was prepared by dissolving $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (Junsei Chemical Co. Japan) in deionized water from a Barnstead triple-stage system. Adsorption isotherm and kinetic studies were carried out at elevated temperatures with different initial concentrations of zinc in an isothermal glass flask of a 2L capacity (jacked pressure reactor of Ace Glass Inc., USA). The operation temperature range of the reactor in this work was 20-60°C. The solution of the resin dispersed was monitored by a conductivity meter (Model: PHOR-90-10V-I, Omega[®] Eng. Inc., USA) for the zinc content.

4. Results and Discussion

A calculation of the published thermodynamic data has been performed for the aqueous species described in the previous section. The speciation equilibrium for an aqueous dissolved zinc at two temperatures (20 and 60°C) with the total zinc concentration of 100ppm is shown in Fig.1. The hydrolysis of Zn^{2+} results in the form of ZnOH^+ , $\text{Zn}(\text{OH})_2(\text{aq})$ and $\text{Zn}(\text{OH})_3^-$. The zinc species related to the higher hydrolyzed zinc complexes could not be considered for the range of pH in this calculation. The trends of zinc speciation as a function of pH show that the stability of the hydrolytic

zinc complexes such as $ZnOH^+$ and $Zn(OH)_2(aq)$ increase with pH and temperature even at a low total zinc concentration.

The adsorption isotherms are of fundamental importance in determining the adsorption capacity of Zn(II) onto the ion exchange resin. Results of the adsorption of zinc onto Amberlite IRN150, by applying the model of Langmuir are discussed below. According to the basic assumption of the Langmuir model, the amount of zinc adsorbed can be expressed by:

$$q_e = \frac{X}{m} = \frac{Q_o b C_e}{1 + b C_e}$$

Fig. 2 illustrates the Langmuir analysis of the experimental isotherm data at 30~60°C. The values of Q_o and b can be calculated either by the least squares method or graphically. The maximum monomolecular capacity was found to be about 0.6meq/g for an initial zinc concentration of 100ppm at 50°C. The adsorption is favored by a decrease in temperature, a phenomenon which is characteristic of a physical adsorption.

The selectivity of a typical mixed bed resin for the zinc cation vis-à-vis the hydrogen cation was evaluated to determine whether or not the presence of zinc would have an adverse effect on the resin performance. The results of this evaluation indicated that the adsorption capacity of the mixed bed resins is essentially the same for all of the divalent transition metal cations of interest. Hence, the zinc cations will be strongly adsorbed in the same exchange zone in the demineralizer bed as the alkali earth cations such as Ca^{2+} and Mg^{2+} , and the divalent transition metal cations of the radioisotopes, such as ^{58}Co , ^{60}Co , ^{54}Mn and ^{51}Cr .

One parameter that describes the operational characteristics of an ion exchanger is the operating capacity, resulting from the effective number of the functional active groups per unit mass of the mixed resin. The theoretical value depends upon the nature of the material and the form of the resin. When the column operation mode is employed, operating capacity is usually lower than the available capacity, and depends on several operational factors such as flow rate, temperature, particle size and concentration of the feeding solution. Fig.3 graphically depicts the shapes of the dynamic capacity curves observed in the case of the same Zn concentration in the influent at different temperatures (20~60°C). An acceptable breakthrough point is observed and the operating capacity is about 0.5mEq/mL at a flow rate of 10.6mL/min.

An estimate was made of the potential effect of zinc on the resin bed usage rate of CVCS. For the demineralizer performance during the zinc addition operation, it was estimated that a mixed ion exchange bed would last for a period of time that exceeded the length of the cycle and served for the entire fuel cycle of 12 months of operation.

In addition to the effect of zinc on the demineralizer resin performance, the use of zinc results in the generation of the ^{65}Zn activity, which must be considered in waste disposal activities. The projected ^{65}Zn coolant concentration at the end of the 12 month cycle with a natural zinc addition was about 0.004 $\mu Ci/mL$. The generation of the ^{65}Zn activity on the demineralizer was estimated on the basis of the CVCS operating condition as given in Fig.4. The estimated activity of the ^{65}Zn on the mixed bed demineralizer resin was about 500 $\mu Ci/mL$ of resin after 12 months of operation with a natural zinc addition.

5. Conclusions

Thermodynamic analysis of the aqueous zinc system using reliable data shows that the stability of the hydrolyzed zinc species increases with pH and temperature. The equilibrium isotherms of zinc adsorption onto nuclear grade resin indicate that the data correlate well with the Langmuir model and that the adsorption is physical in nature. The adsorption temperature influenced the rate of adsorption. The maximum capacity according to the Langmuir model is about 0.6meq/g for an initial zinc concentration of 100ppm at 50°C. The operating capacity is about 0.5mEq/mL at a flow rate of 10.6mL/min. The use of natural zinc could result in the generation of the ^{65}Zn activity with about 500 $\mu Ci/mL$ of resin after 12 months of operation.

Acknowledgement

This study has been carried out under the Nuclear R & D program by MOST in Korea.

References

1. R. Pathania, B. Cheng, M. Dove, R. E. Gold, and C. Bergmann, "Evaluation of Zinc Addition to the Primary Coolant of Farley-2 Reactor," Proceedings of the 8th International Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors, August 10-14, 1997, Amelia Island, FL, pp.379-386, ANS.
2. J. Haag, D. Nieder, P. Schneider-Kühnle, D. Wolter, "Operational Experience with Zinc Addition in a German PWR," Proceeding, JAIF International Conference on Water Chemistry in Nuclear Power Plants, October 13-16, 1998, Kashiwazaki, Japan, pp.505-509, Japan Atomic Industrial Forum, Inc.
3. R. E. Gold, C. A. Bergmann, J. Sejvar, N. D. Williams, J. W. Kormuth and A. E. Kiefer, "Evaluation of Zinc Addition During Cycle 9 at Diablo Canyon Unit 1," EPRI TR-113540, Westinghouse Electric Company, November 1999.
4. A. Apelblat and E. Manzurola, "Solubilities of Magnesium, Calcium, Barium, Cobalt, Nickel, Copper, and Zinc Acetates in Water from T = (278.15 to 348.15) K," Journal of Chemical Thermodynamics, Vol.31, pp.1347-1357 (1999).
5. T. H. Giordano and S. E. Drummond, "The Potentiometric Determination of Stability Constants for Zinc Acetate Complexes in Aqueous Solutions to 295°C," Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol.55, pp.2401-2415 (1991).
6. Y. Hanzawa, D. Hiroishi, C. Matsuura, K. Ishigure, M. Nagao, and M. Haginuma, "Hydrolysis of Zinc Oxide in High-Temperature Aqueous Systems," Nuclear Science and Engineering, Vol.127, pp.292-299 (1977).
7. J. H. Alexander and F. H. Howard, MULTEQ:Equilibrium of an Electrolytic Solution with Vapor-Liquid Partitioning and Precipitation, Vol.2: The Database (Rev.3), EPRI NP-5561s-CCML (1992).

Table 1 Characteristics of Amberlite® IRN150 mixed resin *

	IRN77 cation-exchange resin	IRN78 anion-exchange resin
Physical form	Uniform particle size spherical beads	
Shipping weight	800 g/L	689 g/L
Harmonic mean size	650±50 µm	630±50 µm
Matrix	Polystyrene DVB gel	
Functional groups	Sulphonic acid	Trimethylammonium
Ionic form as shipped	H ⁺	OH ⁻
Total exchange capacity	≥1.9 equiv./L (H ⁺ form)	≥1.2 equiv./L (OH ⁻ form)
Moisture holding capacity	49-55% (H ⁺ form)	54-60% (OH ⁻ form)

* Information provided by the manufacturer.

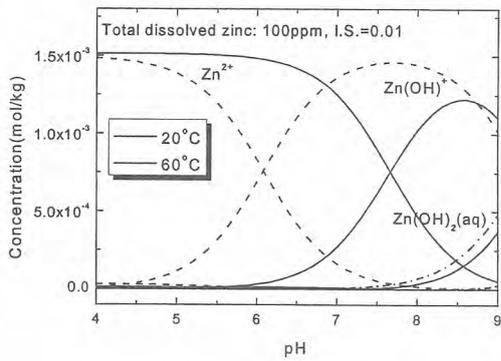


Fig.1 Aqueous equilibrium distribution of dissolved zinc species at different pH (20°C and 60°C).

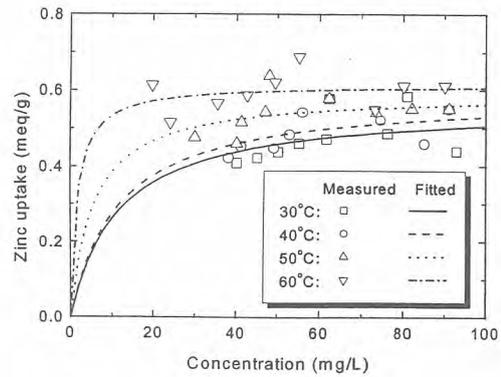


Fig.2 Langmuir equilibrium isotherm of Zn(II) onto mixed resin of IRN150 at various temperature.

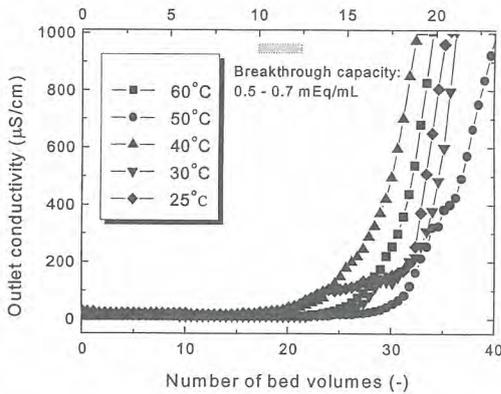


Fig.3 Dynamic capacity measurements for Zn(II) adsorption onto mixed resin of IRN150 at various temperature.

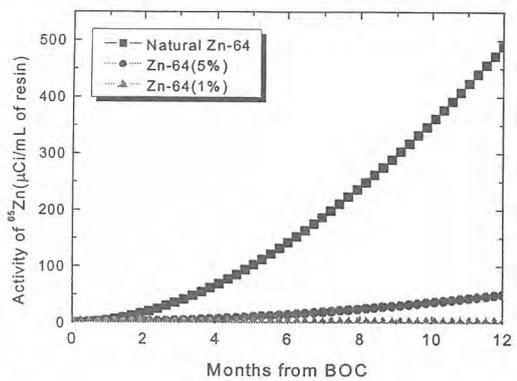


Fig.4 Projected activity of ^{65}Zn on the mixed bed demineralizer resin for the addition of natural and depleted zinc.

방사성 금속 폐기물의 전해제염 실험 비교 분석

The Analysis and Comparison of the Experiments for Electro-Decontamination about Radioactive Metal Wastes

강동우, 박광수, 문길호, 엄달선*

두산중공업

요 약

제염이란 방사능에 오염된 물체로부터 방사능을 어느 수준 이하로 떨어뜨리는 모든 종류의 작업을 말한다. 본 논문에서는 제염 방법 중의 한가지인 전해 연마 제염법을 이용한 방사선 오염 제거에 대하여 실험을 통하여 기술하였다. 알파선과 베타선에 오염된 각각의 SUS 시편을 사용하여 두 가지 방사선에 대한 제염도를 비교해 보았고, 베타선에 오염된 SUS 및 Carbon steel 시편을 사용한 각 전해액에 대한 제염 실험이 수행되었다. 전해액으로서는 황산, 인산, 질산, 구연산 및 옥살산 등을 사용되었다. 전해액의 종류, 통과하는 전류의 세기 및 시간에 따라 각 시편에 대한 제염도의 차이를 비교, 분석 할 수 있었다.

Abstract

Decontamination means every method that can drop the level of the radioactivities from the materials contaminated with them to the allowable one. In this paper, one of the decontamination methods, the electro-decontamination was described with lots of experiments. Two test specimens contaminated with alpha ray and beta ray respectively were used to compare the decontamination factors between two rays and many experiments were performed in every electrolyte with SUS and Carbon steel test specimens. Sulphuric acid, phosphoric acid, nitric acid, citric acid and oxalic acid were used as the electrolyte. Decontamination Factors(DF) could be compared and analyzed with different electrolyte, current intensities and time

1. 서 론

원자력을 이용하기 위한 원자로가 설립되고 가동되기 시작한지 수 십년이 경과 하였다. 따라서 이제는 새로운 원자로를 설치 및 가동하는 일 못지않게, 이미 수 십년 간 가동이 계속 되어온 노후한 원자로와 그 주변 시설물을 어떻게 처리하느냐가 중요한 과제로 부상하고 있다. 노후한

원자력 시설물의 처리에는 두 가지의 해결 방안을 생각해 볼 수 있다. 첫번째는 그 시설물 모두를 해체하는 것이고, 둘째는 적절한 보수 공사를 통한 수명 연장이다. 원자로를 비롯한 원자력시설물의 유지 보수 및 수명 연장 또는 동 시설물의 전면 해체 시에는 방사능에 오염된 설비나 부품의 취급은 필연적인 일이다. 현재 또는 장래에 모든 원자력 관련 시설의 유지 보수 및 수명 연장 또는 폐기 시에 발생하게 될 방사성 오염물질의 제염에 대한 폭 넓은 정보가 필요하다. 방사능에 오염된 물체로부터 오염된 방사성을 제거하는 방법은 두 가지의 대표적 방법, 즉 물리적 제염 방법과 화학적 제염 방법으로 분류 해 볼 수 있다. 대표적인 물리적 방법으로는, 고압수 분사제염, 도막박리제염, 거품제염, 초음파제염, 분진제염, 이산화탄소분사 제염 등 다수가 있으며 화학제염은 다시 희박화학제염과 농후화학제염으로 분리 되는데 희박화학 제염으로는 LOMI, CAN-DEREM, NITROX, CORD/UV 등이 있고, 농후화학제염으로는 CITROX, APAC, CONAP 등의 제염방법이 사용되고 있다. 전해연마 제염은 일종의 화학제염에 속한다.

2. 금속의 전해 연마 제염 기술

2.1. 전해 연마 제염

전해 연마 제염 기술은 무기산, 유기산 또는 중성염 등을 물에 적절히 희석하여 전해액을 만든 후 제염하고자 하는 금속 물체를 양극으로 하고 보통 도체를 음극으로 하여 두 전극간에 전류를 통하여 줌으로서 금속의 전기적 연마가 이루어지게 한다. 즉, 방사선에 오염된 금속 표면에 존재하는 부식 산화막 층이나 기판 금속표면의 얇은 층이 전해액 속에서 양극 산화 반응에 의해서 녹아 제거 됨으로 표면에 묻은 방사성 오염물질이 제거되는 것이다. 전해연마 제염 시 금속의 연마 정도는 금속을 통하여 흘러가는 전류의 밀도와 시간, 전해액으로 사용하는 화학 물질의 농도와 온도에도 관계가 있다. 전해액의 종류는 무기산의 인산, 질산, 황산 등이 있고 유기산의 구연산, 옥살산 및 이들 혼합물 그리고 중성염의 황산 나트륨, 질산 나트륨 등이 있다.

2.2. 전해 연마 제염의 특징

전해 연마 제염법의 장단점은 다음과 같다.

1) 장점

- 제염 시간이 상대적으로 짧고 비교적 높은 제염 계수를 얻을 수 있다.
- 2차 폐기물 발생량이 비교적 적고 제염 후의 제염물체의 표면이 부드럽다.
- 공정의 자동화 및 원격조정으로 높은 방사선 구역에도 적용 가능하다.

2) 문제점

- 형상이 복잡한 물체의 제염에는 적합하지 않다.
- 제염의 실시 동안 유독 기체가 발생할 수 있다.

3. 시편의 제작

본 실험을 위한 시편은 실험 1 용의 SUS 를 방사성 폐액(Cs-137)에 12 시간 담가 오염시킨 후 24 시간 건조 시킨 것과 실험 2 용의 TRIGA 연구로 2 호기 해체 과정 중 발생된 방사성 금속 폐기물의 SUS 와 Carbon Steel 을 적당한 크기로 절취하여 만든 두 가지이다. 각 시편은 두께 1.5mm 에 넓이 2.5cm×3cm 의 크기이고, 제염 실험 전후의 오염된 방사선의 양을 측정했다.

4. 방사능 측정설비

방사선 측정 장비(S5XLD)는 유리성 오염도를 측정할 수 있는 기계로 α 및 β 선원을 측정할 수 있다. 측정 방법은 시편을 측정장비에 직접 올려 측정하였으며 1 분 동안 측정하였다.

5. 실험 1: 방사선 알파선과 베타선에 대한 제염계수 차이 분석

동일 종류의 시편(SUS)에 대한 알파선과 베타선의 제염 계수를 비교해 보기 위하여 2 차례의 조건을 달리한 실험을 수행하였다. 실험 결과는 표 1, 2, 3 에 각각 나타나 있다.

5-1 실험 조건 1 및 결과(표 1)

표 1. SUS 시편의 알파와 베타선의 제염도 비교

No.	전해액	농도 (% orN)	시간 (sec)	전류 밀도 (A/cm ²)	alpha			beta		
					제염전	제염후	DF	제염전	제염후	DF
1	황산	5%	150	0.11	1.05E+02	7.68E+01	1.4	2.50E+03	5.99E+01	41.7
2	황산	5	150	0.33	6.02E+03	1.42E+03	4.2	7.93E+04	1.65E+04	4.8
3	황산	5	150	0.55	1.90E+02	7.68E+01	2.5	1.93E+03	5.99E+01	32.2
4	황산	10	300	0.11	7.68E+01	7.68E+01	1.0	1.56E+02	6.80E+01	2.3
5	황산	10	300	0.33	7.68E+01	7.68E+01	1.0	2.72E+02	5.99E+01	4.5
6	황산	10	300	0.55	1.05E+02	7.68E+01	1.4	1.88E+03	5.99E+01	31.4
7	황산	15	450	0.11	1.21E+03	7.68E+01	15.8	1.63E+04	1.56E+02	104.5
8	황산	15	450	0.33	1.05E+02	7.68E+01	1.4	1.33E+03	5.99E+01	22.2
9	황산	15	450	0.55	7.68E+01	7.68E+01	1.0	9.72E+02	5.99E+01	16.2
10	인산	60%	450	0.11	5.94E+02	7.68E+01	7.7	7.60E+03	7.78E+01	97.7

11	인산	60	450	0.33	1.26E+02	7.68E+01	1.6	2.02E+03	5.99E+01	33.7
12	인산	60	450	0.55	1.42E+02	7.68E+01	1.8	1.74E+04	3.40E+02	51.2
13	인산	80	150	0.11	1.05E+02	5.73E+02	0.2	1.89E+03	5.30E+03	0.4
14	인산	80	150	0.33	8.36E+01	7.68E+01	1.1	2.41E+03	9.72E+01	24.8
15	인산	80	150	0.55	8.36E+01	7.68E+01	1.1	1.13E+03	7.78E+01	14.5
16	인산	40	300	0.11	2.11E+02	7.68E+01	2.7	1.55E+03	2.14E+02	7.2
17	인산	40	300	0.33	2.54E+02	1.05E+02	2.4	3.92E+03	1.04E+03	3.8
31	인산	40	300	0.55	1.26E+02	7.68E+01	1.6	3.89E+02	5.99E+01	6.5
19	질산	0.5N	300	0.11	7.68E+01	8.36E+01	0.9	9.82E+02	1.85E+02	5.3
20	질산	0.5	300	0.33	8.36E+01	7.68E+01	1.1	8.27E+02	1.65E+02	5.0
21	질산	0.5	300	0.55	8.28E+02	3.81E+02	2.2	1.08E+04	4.53E+03	2.4
22	질산	0.1	450	0.11	7.68E+01	7.68E+01	1.0	1.16E+03	1.17E+02	9.9
23	질산	0.1	450	0.33	7.68E+01	7.68E+01	1.0	2.33E+02	7.78E+01	3.0
24	질산	0.1	450	0.55	3.17E+02	2.11E+02	1.5	4.65E+03	1.55E+03	3.0
25	질산	0.3	150	0.11	8.36E+01	7.68E+01	1.1	5.74E+02	5.99E+01	9.6
26	질산	0.3	150	0.33	1.26E+02	7.68E+01	1.6	2.41E+03	8.56E+02	2.8
27	질산	0.3	150	0.55	7.68E+01	7.68E+01	1.0	1.01E+03	2.53E+02	4.0

* α MDA = 7.68×10^1 , β MDA = 5.99×10^1

5-2 실험 조건 2(표 2) 및 결과(표 3)

표 2. 실험 2의 조건

No.	전해액	농도 (%)	시간 (sec)	전압 (V)	전류 (A)	전류밀도 (A/cm ²)
1	황산	5	60	1.0	0.6	0.05
2	황산	5	120	1.4	1.2	0.10
3	황산	5	180	2.6	1.8	0.15
4	황산	10	60	1.0	1.2	0.10
5	황산	10	120	1.9	1.8	0.15
6	황산	10	180	0.7	0.6	0.05
7	황산	15	60	1.0	1.8	0.15
8	황산	15	120	0.6	0.6	0.05
9	황산	15	180	0.8	1.2	0.10

표 3. 실험 2의 결과

No.	alpha			beta		
	제염전	후	DF	제염전	후	DF
1	9.76E+02	2.96E+02	3.297	2.15E+04	3.94E+03	5.457
2	3.08E+03	6.15E+02	5.008	7.18E+04	1.06E+04	6.774
3	4.02E+02	7.68E+01	5.234	5.36E+03	1.94E+02	27.629
4	2.75E+02	1.69E+02	1.627	7.48E+03	3.03E+03	2.469
5	9.34E+02	1.90E+02	4.916	2.32E+04	1.89E+03	12.275
6	5.09E+02	2.75E+02	1.851	1.34E+04	2.65E+03	5.057
7	3.81E+02	1.05E+02	3.629	7.88E+03	3.19E+03	2.470
8	2.54E+02	1.26E+02	2.016	6.13E+03	2.27E+03	2.700
9	4.45E+02	2.54E+02	1.752	7.97E+03	3.40E+03	2.344

* α MDA = 7.68×10^1

6. 실험 2 : 제염액 별 Carbon Steel 전해제염 실험 및 분석

Carbon Steel 시편에 대해 제염액별로 제염효과를 비교하기 위한 실험을 수행하였다. 전해액 중 옥살산과 구연산에서의 전해액 온도는 80 °C 이고 나머지는 상온에서 실험하였다. 실험 결과는 그림 1 과 같다.

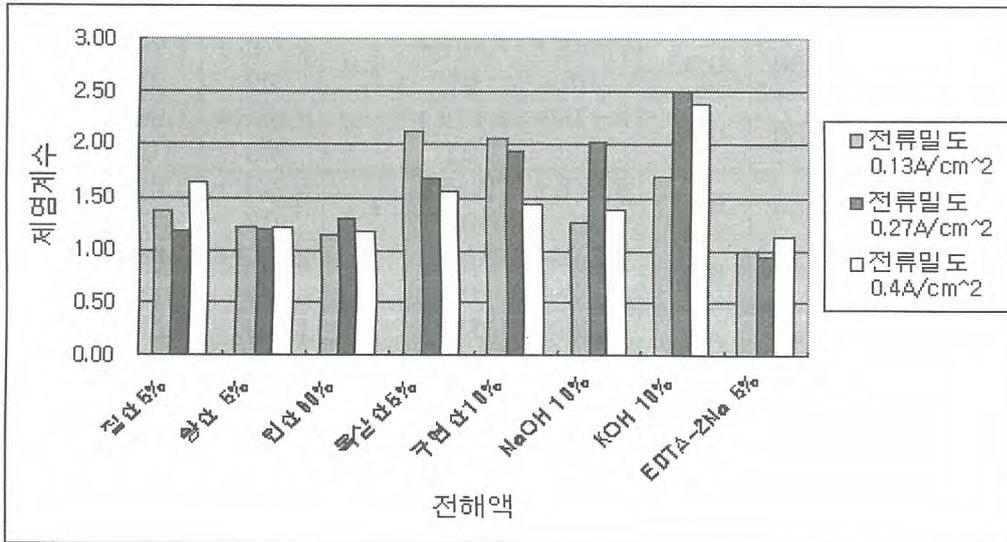


그림1. 전해액별 제염효과 비교(실험시간 5분)

7. 실험 3 : 제염 액 별 Stainless Steel 전해제염

Stainless Steel 시편에 대해 전해액 별로의 제염효과를 비교하기 위한 실험을 수행하였다. 실험 온도는 상온이다. 조건은 아래와 같다.

실험 결과는 그림 2 에 나타나 있다.

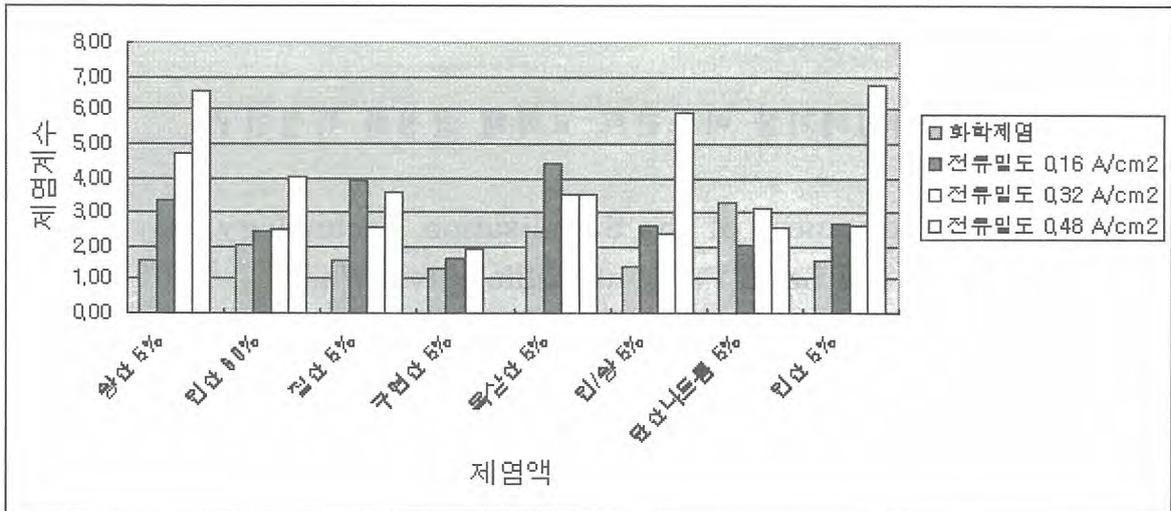


그림 2. 제염 액별 제염계수 비교(실험 시간 20분)

8. 결론 및 분석

실험 1의 결과로부터 동일 조건에서의 두 방사선, 알파선과 베타선 간의 제염정도를 비교해 본 결과 베타선 쪽이 전반적으로 더 높은 제염도를 나타내고 있다.

방사성 금속 폐기물인 Carbon Steel 및 SUS 폐기물에 대한 제염 실험을 수행하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) Carbon Steel의 경우 옥살산 제염이 가장 효과가 뛰어나게 나타났다.
- 2) SUS는 황산에서 가장 좋은 결과를 얻을 수 있었다.

Reference

1. E. L. Childs and J. L. Long, "Electrolytic Decontamination of Stainless Steel Using a Basic Electrolyte", Nuclear Technology, Vol.54, p208, 1981.
2. T. Izumida et al., "Electrolytic Decontamination of Surface Contaminated Metal by Alternating Electrolysis Using Square-Wave Current in a Neutral Salt Electrolyte", Nuclear Technology, Vol.70, pp249-253, Aug, 1985.
3. Allen, R. P. et al., "Electropolishing as a Decontamination Process : Progress and Applications", PNL-SA-6858, 1978.
4. 한원진, 박광수 등, "The development of the electropolishing process for interior surface of the Nuclear Steam Generator channel head", 2002, 두산중공업
5. 강덕원, 성기방 등, "A Feasibility Study on the Decontamination Technology for the RCP and the SG", Technical Report, 1999, 전력연구원
6. 오원진 등, "Decontamination and Decommissioning Technology Tree and the Current Status of the Technologies", 2001, 한국원자력연구소
7. 오원진 등, "방사성 금속 폐기물 재활용 기술 개발", 1998, 한국원자력연구소

방사성 폐기물 아스팔트 고화체 안정화 특성연구

A Development of the Stabilization Technology for the Solid Form of Radioactive Waste

*김태국, 이영희, 이강무, 안섬진, 손종식
한국원자력연구소

요 약

본 연구에서는 방사성 폐기물 아스팔트고화체를 장기간 저장시 형태유지가 되지 않는 단점을 보완하기 위하여 폴리에틸렌을 고화보조제로 아스팔트에 첨가하여 전처리의 분쇄 공정없이 입상수지를 직접 고화처리 함으로서 시멘트 고화체처럼 형태안정성을 지니는 아스팔트 고화체를 제조하는 방법을 개발하고 이 방법에 의해 제조된 고화체의 침출특성을 평가하여 실제 방사성 폐이온교환수지 처리에 적용함을 그 목적으로 하였다. 실험결과 고화보조제인 폴리에틸렌은 아스팔트와 폐수지가 혼합된 고화체내에서 가교역활을 하며 PE 함유량이 10 wt% 이상일 때 장기간 노출실험에서도 고화체 형태를 그대로 유지하였다. 최적조업조건은 폐수지의 함유량이 무게비로 40wt% 이고 PE의 함유량이 10wt%이며 이때 고화체내부에 수지입자의 밀도도 균일하게 분포됨을 확인하였다. 실험은 폐이온교환수지에 아스팔트를 혼합하고 여기에 폴리에틸렌(PE) 필름을¹⁾ 고화보조제로 첨가함으로서 고화체의 균일성, 수분과 접촉시 고화체의 침출을 최저로 하는 안정된 고화체를 개발 하였다.

Abstracts

In this study, a modified bituminization technology has been developed, which needs no grinding of the granular resin waste, and enables the solid form to keep its shape stability as good as that of a cemented solid form. Also, the study intended to apply the developed technology to the practical treatment of radioactive resin waste. In the experiment, the granular type resin was used and the straight-run distillation bitumen with penetration rate 60/70 was used as the solidifying agent. The PE was used as the additive. The shape stability increased remarkably with the additive of PE, which act as a binder in the solid form. The shape of the solid form was maintained without failure during the long-term exposure test when the additive content of spent PE is more than 10wt %. The proper ranges of bitumen content, PE content and operating temperature are 30-50wt%, 10-20wt% and 180°C respectively. The bituminized solid form of radioactive resin waste by the technology of this study has the remarkably superior quality than the conventional solid forms, partially for the shape stability.

1. 서 론

방사성액체폐기물 처리과정에서 발생하는 폐이온교환 수지는 주로 시멘트, 아스팔트, 고분자물질(Polymer)에 의하여 고화 처리되고 있다.²⁻⁵⁾ 시멘트 고화체에 비하여 아스팔트 고화체는 폐기물 감용율이 우수하고 방사성물질의 침출율이 낮다는 장점이 있다. 그러나 아스팔트 고화처리시 고화체내의 균일한 밀도를 만들기 위하여 폐수지의 경우에 분쇄와 같은 전처리공정을 거쳐야 한다. 또 폐수지로 고화 처리된 아스팔트 고화체는 안정한 형태로 장기간 저장이 어려울 뿐만 아니라 물과 접촉시 팽윤등으로 인하여⁶⁾ 방사성물질이 누출된다는 단점이 있다. 본 연구는 고화처리의 매질로 사용되는 아스팔트의 물리, 화학적 성질을 조사하고 고화처리기술과 고화공정을 조사하였다. 이 문헌연구를 토대로 액체폐기물 처리시 이온교환공정에서 사용하고 있는 입상형 양이온교환수지에 도로포장용 직류아스팔트를 혼합하고 여기에 폴리에틸렌을 고화보조제로 첨가하였다. 실험결과 고화체내의 수지의 균일성, 강도강화, 수분과 접촉시 고화체의 팽윤 및 침전을 최저로 하는 안정된 아스팔트 고화체를 개발 하였다. 본 연구를 통하여 방사성 아스팔트 고화체는 장기간 저장에도 형태안정성이 유지되어 안정성을 확보할 수 있으며 고화시 폐수지의 함량을 높힘으로 감용율을 증대할 수 있고 방사성 폐이온교환수지의 제약 요건인 고화체의 불균일성, 수분과 접촉시 고화체의 팽윤 및 침출을 최저로 하는 안정된 아스팔트 고화체를 개발하고 고화체내의 불균일한 밀도분포등의 단점을 해소하므로서 고화체 안정성 확보에 기여하고자 한다.

2. 실험 재료 및 방법

2.1. 실험재료

2.1.1. 아스팔트의 기계적, 유동학적 성질

아스팔트는 열가소성이며 다양한 기계적 작용을 받기 쉽다. 변형에 대한 기계적 저항성의 척도는 절대점도 단위인 poise로 측정될 수 있다. 아스팔트에 있어서 흐름은 순수액체 또는 뉴튼유체의 흐름에서 이탈하는 것이 일반적이며 소성(plastic)적 행동의 다양한 형태가 발견 된다. 아스팔트의 가장 중요한 특성은 흐름 또는 유동학적 성질이다. 아스팔트는 순수한 점성적 흐름특성을 가지는 것과 소성적 흐름특성을 가지는 것으로 나눌 수 있다. 소성적 아스팔트(plastic bitumen)는 아스팔텐을 더 많이 함유하고 점성적 아스팔트(viscous bitumen)에서 만큼 잘 분산되지 않는다. 경험적인 실험이 아스팔트의 흐름특성을 측정하는데 이용되고 있으며, 가장 중요한 실험은 침입도와 연화점이다. 아스팔트는 침입도가 5 또는 그 이하에서 부터 300 이상까지 다양하게 침입도 등급을 생산한다. 다양한 목적에 비해 순수한 점성적 흐름 특성을 지닌 아스팔트는 적응성이 만족스럽지 못하다. 가장 단단한 점성적 아스팔트조차 작은 압력에도 시간이 지남에 따라 흐름이 있을 수 있다. 아스팔트의 압축성은 아스팔트-폐기물 고화체의 망속 매립에 중요한 요소가 된다. 압력하에서 일정량의 순수 아스팔트의 부피변화는 온도에 따른 부피변화와 비교하여 상대적으로 적다. 아스팔트의 압축성은 $40 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{kg}$ 이고 1°C 당 열팽창계수가 600×10^{-6} 이므로 온도 1°C 하강에 따른 부피변화는 압력에서 15 kg/cm^2 상승에 따른 부피변화량과 같다.

2.1.2. Polyethylene

폴리에틸렌은 화학적으로 매우 안정된 플라스틱이며, 많은 약품에 잘 견디는데 할로젠이나 강산화성 물질에는 침식된다. 방향족 탄화수소 및 염화 탄화수소계의 용제는 70°C 이상에서 용해하

지만 상온에서는 저항성이 있다.

폴리에틸렌의 성질은 밀도에 따라서 차이가 있는데 0.91~0.925 g/cm³을 저밀도 폴리에틸렌(LDPE), 0.926~0.94 g/cm³을 중밀도 폴리에틸렌(MDPE), 0.941~0.965g/cm³을 고밀도(HDPE)로 분류한다. 수증기, 기체, 액체의 투과율은 밀도가 증가할수록 낮으며, 충격강도 또한 낮아진다. 밀도가 커지면 인장강도는 증가한다.

폴리에틸렌은 일반적으로 열안정성은 좋은 편인데 산소에 접촉하지 않을 때는 290℃ 까지 용융할 뿐 안정하며 300℃ 이상에서는 분해를 개시한다. 연화온도는 저밀도 일때는 105℃, 고밀도일 때는 124℃ 정도이다. 실험에 사용된 폴리에틸렌은 농업용 필름제조에 주로 사용되는 저밀도 폴리에틸렌(LDPE)으로 사업적으로 제조된 칩형태를 사용하였다.

2.2. 실험장치 및 방법

고화체내의 수지의 균일성 및 고화체의 팽윤등 안정된 아스팔트고화체를 개발하기 위하여 고화매질로 침입도 60/70의 낮은 침입도를 갖는 직류 아스팔트를 사용하였으며 저밀도 폴리에틸렌(LDPE) 필름을 고화보조제로 사용하였다. 또한 실험에 사용된 이온교환수지는 입상형 양이온수지를 분쇄하지 않고 실험에 직접 사용하였다. 회분식 Pot형 아스팔트 고화장치는 아스팔트 고화장치 중에서 가장 단순한 형태이며 폐기물에 포함된 입자의 크기가 미세하지 않아도 장치에 손상을 주지 않으므로 입자가 있는 폐기물에 적합하다. 용량이 4ℓ인 실험장치의 반응기는 이중벽으로 만들었으며 혼합물이 용이하게 배출할 수 있도록 Mixer는 스크류 형태로 제작하였고 반응기의 뚜껑은 혼합시 증발되어 나오는 증기를 응축할 수 있도록 하였다. 본 실험에서 고화보조제인 폴리에틸렌을 아스팔트에 대한 무게비를 기준으로 하고 수지의 함유율은 고화체 전체에 대한 무게비를 기준으로 하여 아스팔트, 고화보조제, 수지의 무게를 달아 반응기에 넣고 서서히 열매체유를 가열하여 실험온도인 180℃로 고정하였다. 완전히 혼합된 혼합물은 각각의 실험항목에 맞도록 mold용기에 시료를 받았으며 실온에서 24시간 냉각 시킨후 mold를 제거하여 실험을 수행하였다. 실험항목으로는 고화보조제 첨가량에 따른 혼합 및 혼합물 배출가능성을 관찰하고 대기중에 고화체시료를 장기간 놓아 고화체의 형태안정성을 평가하였다. 폐수지 함량을 40wt%, 50wt%, 60wt%로 하고 PE의 양을 10wt%로 첨가하여 제조된 시료를 증류수에 일정 기간동안 침수시켜 팽윤율 및 침출을 관찰하였다. 또한 고화체내의 수지 밀도분포 상태규명을 위하여 고화체를 3등분하여 상중하의 밀도를 측정하였으며 ASTM D36의 Ring and Ball 방법을 사용하여 고화체의 점도를 측정하였다.

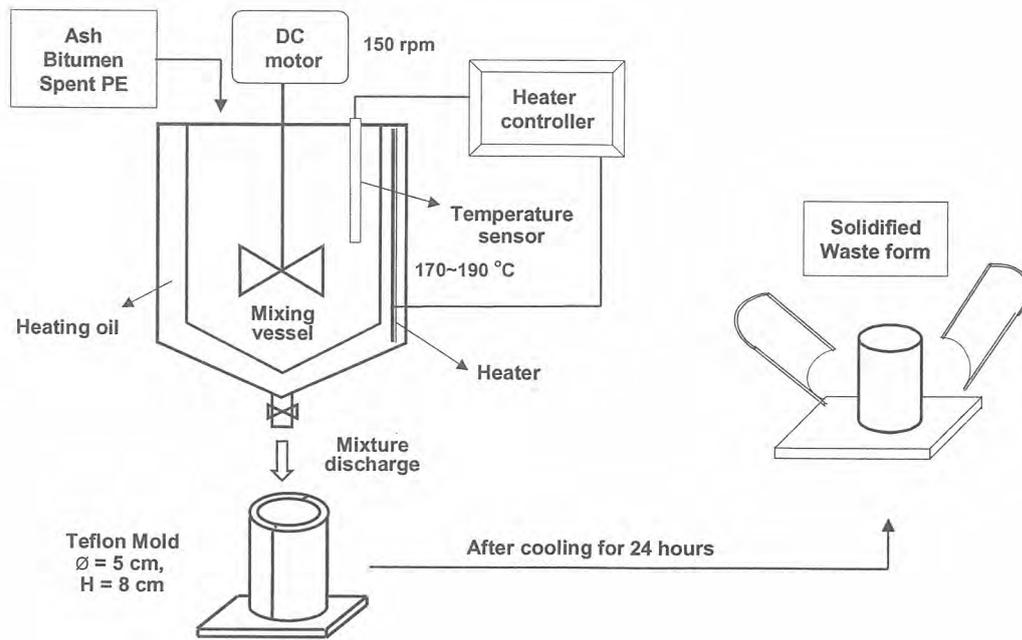


Fig. 1. View of heated mixing vessel and mixing blade for the production of laboratory scale asphalt waste forms

3. 실험결과 및 고찰

3.1. 고화체 혼합 및 배출조건

실험에 사용된 아스팔트와 폴리에틸렌의 용융온도는 각각 49°C 와 105°C 이므로 혼합물의 반응온도를 서서히 증가시키면 50°C 전후에서 아스팔트가 먼저 용융되기 시작하였고 100°C 전후에서 폴리에틸렌이 용융되어 반응적정 온도인 180°C에서는 아스팔트와 폴리에틸렌, 폐수지가 완전히 혼합되었다. 폐수지가 40wt% 이고 폴리에틸렌의 함유비가 25wt%를 초과하면 혼합물의 점도가 급격히 증가하여 Mixer 중앙부분으로 혼합물이 편중됨에 따라 혼합물배출이 잘 이뤄지지 않았다.

3.2. 연화점측정

아스팔트는 연화점이 낮아 상온에서도 고화체드럼으로 부터 미세한 공간을 통하여 아스팔트가 흘러나옴으로서 저장관리 측면에서 많은 문제점을 야기시킬 수 있다. PE 함유율을 0w%, 5wt%, 10wt%, 15wt%, 20w%로 증가시키고 수지함량을 30, 40, 50, 60wt%로 변화시키면서 제조된 고화체를 Ring and Ball 방법에 의해 연화점을 측정한 결과로서 수지함량과 PE함량이 증가할수록 연화점은 증가하였다. 이는 고화체내에서 PE가 아스팔트와 혼합되면서 체인고리 역할을 하여 고화체의 밀도분포를 균일하게 하고 강도를 증가시켜 연화점을 높혀 준다고 생각된다.

3.3. 밀도분포도

제조된 고화체를 실온에서 24시간 냉각후 3등분하여 상중하의 밀도를 측정하였다. 제조된 고화체의 상중하의 밀도를 측정한 결과 PE첨가 함유율이 5wt% 이상만되면 고화체내 수지의 밀도분

포는 약 $1.1\text{--}1.3\text{g/cm}^3$ 으로 균일하게 분포되었으며 폴리에틸렌 15wt% 첨가시 수지함량 40w%의 고화체 밀도는 1.12g/cm^3 로 폐수지는 고화체내 상중하부분에서 매우 균일하게 분포되었다. 수지함량이 증가할수록 고화체의 밀도는 증가하나 PE함량이 증가할수록 밀도가 저하된다 이 원인은 저밀도의 PE가 많이 첨가될수록 고화체내의 전체적인 밀도는 낮아지는 결과로 생각된다.

4. 결 론

SK-1B 입상형 양이온교환수지에 폴리에틸렌을 첨가하여 아스팔트 고화한 “이온교환수지의 고화체 안정화 특성연구”에 관한 본 연구에서 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 폴리에틸렌과 이온교환수지의 함유량이 증가할수록 혼합시간도 짧아졌으며 침수실험에서 이온교환수지 함유량(건조기준)이 40w%일 때 전혀 팽윤이 없어 고화체내에 폐수지의 함량을 증가시켜 처리할 수 있었다.
2. 폴리에틸렌 함유량이 10wt% 이상이면 입상이온교환수지의 침전을 막을수 있어 이온교환수지를 분쇄하지 않고도 고화체내 밀도분포가 균일한 고화체를 만들 수 있었다.
3. 침수실험에서 이온교환수지 함유량(건조기준)이 40w%일 때 전혀 팽윤이 없었으며, 50w%일 때 표면이 조금 팽윤되며, 60w%일 때 전체적으로 팽윤이 일어났다.
4. 폴리에틸렌 함유량이 10wt% 이상이면 고화체의 장기적 형태안정성을 유지하였으며 이온교환수지 아스팔트 고화체의 침출 메커니즘은 확산(Diffusion) model로 해석되며 침출 저항성이 매우 높은 것으로 판명되었다.

참 고 문 헌

1. IAEA, "Immobilization of low and intermediate level radioactive wastes with polymers", technical Reports Series No. 289, (1988)
2. Hoberg, A. J., watson, C. D., and West, G. A., "An evaluation of asphalt and other materials for lining radiochemical waste storage basins", ORNL- 2508, P. 50 (1958).
3. Rodier, J., Scheidhauer, J., and Malabra, F., "The conditioning of radioactive waste by bitumen", CEA-1992, P.23 (1961)...
4. Hild, W., Kluger, W., and Krause, H., "Bituminization of radioactive wastes at the nuclear research center karlsruhe-experience from plant operation and development work", ISBN 92-64-01509-4, P. 129-145 (1976).
5. Eschrich, H., "The bituminization of radioactive waste solutions at Eurochemic", ISBN 92-64-01509-4, P. 26-55 (1976).
6. IAEA, "Bituminization of radioactive wastes", *Technical reports series No.* 116 (1970).

고온공정에서 은교환 제올라이트 및 TEDA

침착활성탄의 유기요오드 제거성능

Removal Efficiency of Organic Iodide on Silver Ion-Exchanged Zeolite and TEDA-AC at High Temperature Process

최병선, 박근일, 윤주현, 김성훈, 배운영, 지성균
한국원자력연구소

양호연
한국수력원자력(주)

유승곤
충남대학교 화학공학과

요 약

원자력시설에서 방사성요오드 제거용으로 사용되는 TEDA 침착활성탄의 고온공정에서의 메틸요오드의 제거성능을 은이온제올라이트(AgX)와 상호 비교하였다. 30°C ~ 400°C 온도범위에서 온도에 따른 메틸요오드의 흡착량 및 탈착후 잔존량을 측정한 결과, 비침착활성탄의 흡착성능은 온도가 증가함에 따라 급격히 감소하지만 TEDA 침착활성탄의 흡착성능은 100°C 부근에서도 AgX와 거의 유사한 값을 나타내었고, 탈착후 잔존량은 250°C 까지도 비침착활성탄에 비하여 매우 높은 값을 유지하였다. 또한 100°C이상의 고온공정에서 AgX 및 TEDA 침착활성탄을 충전한 고정층 파괴특성을 상호 비교하였으며, 반응 생성기체의 분석으로부터 AgX에 의한 메틸요오드 제거 메커니즘을 제안하였다.

Abstract

Removal efficiency of methyl iodide at high temperature process by TEDA-impregnated activated carbon used for radioiodine retention in nuclear facility was experimentally compared with that of silver ion-exchanged synthetic zeolite(AgX). In temperature ranges of 30°C to 400°C, adsorption capacity of un-impregnated carbon was sharply decreased, but TEDA-impregnated carbon showed similar values of adsorption capacity of AgX even around 100°C. Especially, loading amount of methyl iodide on TEDA carbon up to 250°C represented higher values compared to un-impregnated carbon. Breakthrough curves of methyl iodide in fixed bed packed with AgX and TEDA-impregnated carbon at high temperature was compared. Removal mechanism of methyl iodide on AgX was proposed, based on analysis of by-product gas generated from adsorption reaction.

1. 서 론

원자력발전소 및 사용후핵연료를 이용하는 원자력시설등에서 발생하는 방사성 기체폐기물 중 특히 방사성요오드는 발생량이 비교적 많을 뿐 아니라 인체 및 자연환경에 미치는 위해도가 크므로 정상 운전시 뿐만 아니라 사고시에도 방사성 기체의 방출 규제치 이하로 처리되어야 한다. 따라서 이를 위하여 방사성요오드의 발생원 및 화학적 형태, 제거 방법등에 대하여 많은 연구가 수행되어 왔다.1~5) 원자력발전소에서 발생하는 방사성요오드는 계통내의 유기물질과 반응하여 방사성 유기요오드(특히 메틸요오드)로 전환되며 이러한 방사성 유기요오드는 원자력 발전소의 중대사고시 가동되는 Spray 시스템에 의해서 효과적인 제거가 불가능하므로 KI나 TEDA(TriEthyleneDiAmine) 등의 화학물질이 침착된 활성탄 필터를 사용하는 것을 원칙으로 하고 있다.2, 5) 또한 사용후 핵연료를 취급하는 건식공정의 경우 주로 유기요오드보다는 원소요오드, 특히 I-129의 발생량은 무시할 수 없을 정도이며, 고온 공정에서 방사성요오드를 제거하기 위하여 은이온교환 제올라이트를 사용하고 있다. 일반적으로 원자력발전소에서 사용중인 TEDA 침착활성탄은 사고시의 고습도 조건에서도 제거 성능을 유지할 수 있도록 주기적으로 성능검사를 수행하고 있지만, 고온 조건하에서 침착활성탄에 의한 방사성요오드의 제거성능은 급격히 감소하고 발화의 가능성 때문에 사용후 핵연료 이용시설과 같은 고온공정일 경우 침착활성탄을 사용할 수 없다. 따라서 이러한 고온분위기 하에서도 효과적으로 방사성요오드를 제거할 수 있는 은교환 무기흡착제의 국내 자체개발을 위하여, 본 실험실에서는 여러가지 은교환 무기흡착제를 제조하여 방사성 유기요오드의 제거성능을 전반적으로 평가하였고, 제조된 은이온 교환 흡착제의 보다 다양한 성능평가를 위하여 사용한 흡착제(담체) 종류별로 공정온도 변화에 따른 성능평가를 수행하였으며, 이를 바탕으로 제올라이트 13X 담체를 이용한 은이온 교환 무기흡착제 (AgX)의 최적 제조조건을 설정하고 은 교환량 및 공정온도 변화에 따른 메틸요오드의 제거성능을 은의 이용률 관점에서 평가하여 최적 운전조건을 제시하였다6~8). 본 논문에서는 이러한 연구의 계속으로 원자력발전소에서 현재 사용중인 TEDA 침착활성탄의 고온공정에서의 사용한계를 메틸요오드 흡착성능과 탈착후 잔존량의 관점에서 평가하였으며, 무게비 10wt%로 은이온 교환된 합성제올라이트(AgX-10wt%)의 고정층에서 흡착 파과특성과 상호 비교하였다.

2. 실험

본 실험은 TEDA 침착활성탄 및 은이온 교환 무기흡착제에 의한 메틸요오드의 제거성능을 분석하는데 있으며, 담체로 사용한 활성탄 및 13X의 온도증가에 따른 흡착성능을 동시에 비교하였다. 제올라이트 13X는 Aldrich(USA)사의 제품으로서 8~16 mesh로 입자크기

를 sieving하여 사용하였으며, 활성탄은 국내 (주)한일그린텍의 야자각 활성탄로서 13X와 동일한 입자크기를 사용하였다.

TEDA 침착활성탄의 제조방법은 본 연구실에서 제안한 특허⁹⁾에 상세히 기술되어 있으며, 본 실험에서는 TEDA 침착량은 6.5 wt%였다. 은교환 제올라이트(AgX)는 AgNO₃시약을 이용하여 이온교환 방법에 의하여 제조하였는데, 먼저 일정 입자크기로 조절한 13X가 물과 접촉하였을 때 부서지지 않도록 하기 위하여 포화증기에 약 3일 동안 접촉시켜 일정 수분함량을 유지시킨 후 증류수로 여러 번 세척하여 부서진 작은 파편을 제거하고 은을 이온교환시키기 위하여 일정농도의 AgNO₃용액에 넣어서 약 24시간 동안 방치한다. 이온 교환된 13X를 증류수로 2~3회 세척한 후 약 24시간 동안 120℃에서 감압상태로 건조시켰다. 본 연구에서는 AgX 제조시 포화증기에 의한 전처리 영향을 비교하기 위하여 전처리하지 않고 AgNO₃용액(ml)/담체양(g)의 비를 1~1.2로 하여 제조한 결과 흡착성능에는 큰 차이를 보이지 않음을 확인하였으며, 제조된 AgX는 이온교환 전후의 무게 증가를 측정하여 이온 교환량을 계산하였다.

본 연구에 사용된 실험장치는 그림 1에 나타난 바와 같으며, 특히 모든 실험장치는 관내에 요오드의 부착에 의하여 요오드의 손실이 생길 수가 있으므로 이를 최소화하기 위해 pyrex glass를 사용하였다. 또한 메틸요오드의 발생기의 출구부터 흡착탑을 거쳐 GC로 공급되는 관과 GC를 거쳐나온 후에 배출되는 메틸요오드가 통과하는 배관을 70℃ 이상의 일정 온도로 가열하였다. 흡착층에 공급되는 기체온도는 흡착층 중앙에 설치된 열전대를 이용하여 조절하였고 흡착층은 내부직경 18mm, 외부직경 22mm, 길이 700mm의 Pyrex 튜브를 사용하였다. 흡착층을 사용할 흡착제로 일정높이 충전한 후 메틸요오드를 흘려보내기 전에 일정 온도와 건조공기를 흘려보내서 일정 농도의 메틸요오드를 발생시켜 흡착실험을 수행하였고, 흡착후 메틸요오드가 포함되지 않은 공기를 주입하여 탈착특성을 분석하였다. 본 연구에서 수행한 흡착실험 변수의 범위와 운전조건을 표 1에 나타내었다.

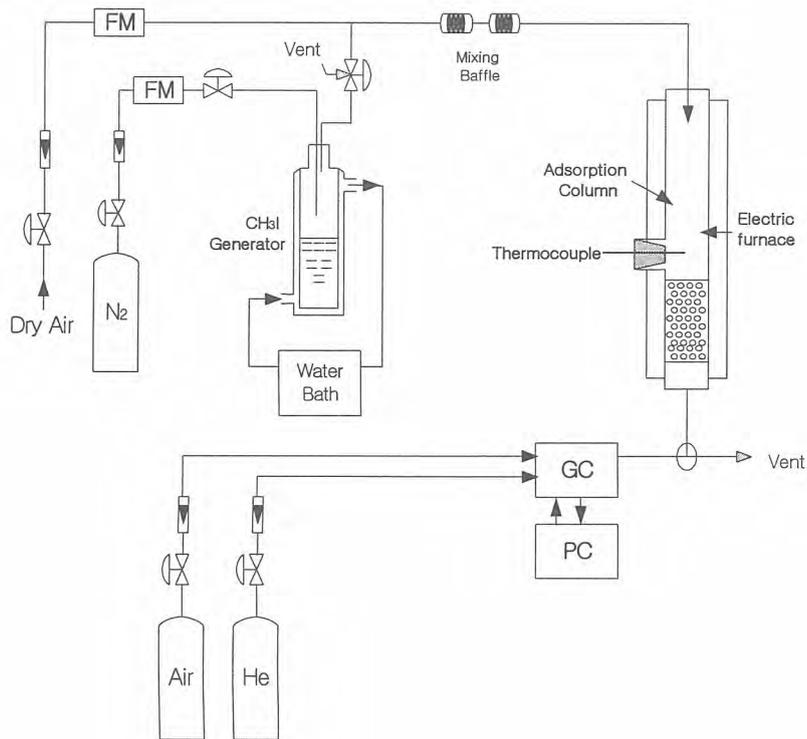


Fig. 1. Schematic diagram of the experimental apparatus.

Table 2. 메틸요오드 분석을 위한 실험장치의 운전조건 및 GC 분석조건

Experimental parameters	Operating conditions	Remarks
Process flow (l/min)	4.0	
Superficial velocity (cm/sec)	26	
Bed depth (cm)	2.6 ~ 10	
Input concentration (mol/l)	$10^{-6} \sim 10^{-4}$	
Gas generator temperature (°C)	5 ~ 30	농도에 의존
Bed temperature (°C)	30 ~ 400	
Relative humidity (%)	Dry	Process air 사용

3. 결과 및 고찰

30°C ~ 250°C의 온도범위에서 담체로 사용한 4가지 흡착제(활성탄, 13X, TEDA 첨착 활성탄, AgX-10)에 대한 온도에 따른 최대 흡착량을 측정하였으며(그림 2), 메틸요오드가 흡착된 흡착제에 대하여 흡착시와 동일한 온도에서 탈착실험을 수행하였고 흡착제별로 메틸요오드의 탈착후 잔존량을 측정하였다(그림 3).

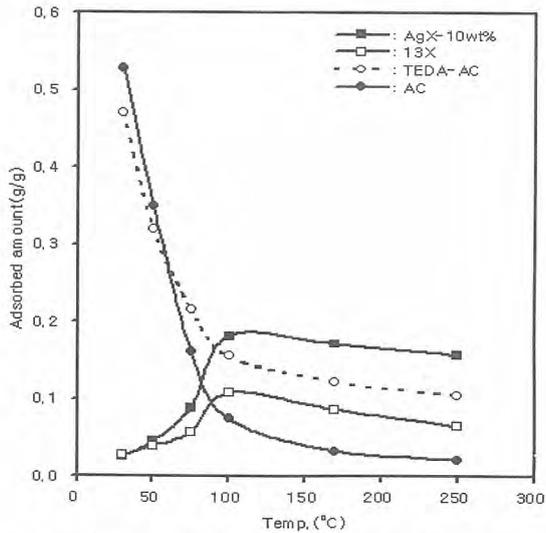


Fig.2. Adsorption amounts of CH_3I with temperature on various adsorbents. (Bed Depth = 3cm, $C_0 = 5 \times 10^{-5}$ mol/l)

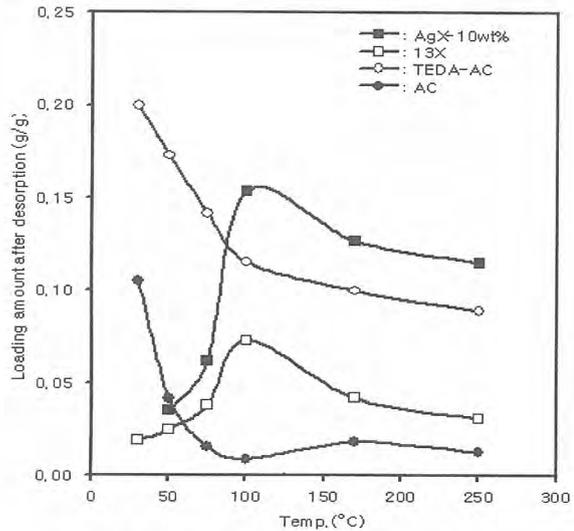


Fig.3. Loading amounts of CH_3I after Desorption with temperature on various adsorbents. (Bed Depth = 3cm, $C_0 = 5 \times 10^{-5}$ mol/l).

그림 2에 나타난 바와 같이 비첨착활성탄의 경우 온도가 증가함에 따라 메틸요오드의 흡착성능은 급격히 감소하며, 특히 70°C 이상에서는 흡착성능이 현저히 감소함을 보이고 있다. 이에 비하여 TEDA 첨착활성탄의 경우는 온도가 증가하더라도 비첨착활성탄의 경우보다 감소 폭이 크지 않는 것으로 나타났으며, AgX-10wt%와 비교하여 보면, 100°C 부근에서 메틸요오드 흡착성능은 비슷한 것으로 나타났다. 이는 온도가 증가함에 따라 메틸요오드와 TEDA의 화학반응에 의한 흡착량의 증가가 커지기 때문으로 생각되며, 고온에서 TEDA의 휘발 가능성을 무시할 수는 없지만 메틸요오드와 반응후 형성된 TEDA-요오드 착화물은 고온에서도 안정적인 것으로 판단된다. 아울러 메틸요오드의 탈착후 잔존량을 온도 변화에 따라 측정한 결과를 보면, 비첨착활성탄의 경우 잔존량은 75°C 이상일 경우 흡착된 메틸요오드가 대부분 탈착되지만, TEDA 첨착활성탄의 경우는 250°C 부근까지도 강한 화학결합을 유지하여 잔존량이 매우 높은 값을 유지하고 있다. 그러나 100°C 이상에서 AgX-10의 메틸요오드 흡착량 및 잔존량은 TEDA 첨착활성탄에 비하여 평균 30%정도 높은 값을 나타내어 고온에서 더 흡착성능이 우수함을 보여주고 있다. 그러나 AgX-10 제조시 사용되는 은의 가격이 고가이기 때문에 흡착제의 제조시 경제성을 고려하여 불 경우 약 150°C 부근까지는 TEDA 첨착활성탄도 효과적으로 사용할 수 있을 것으로 여겨지지만, 흡착열에 의한 발화가능성에 대한 평가가 수반되어야 한다.

흡착공정의 효율성 및 운전비용은 조업조건에 따라 크게 달라진다. 따라서 이를 위하여 흡착 운전조건별 특성을 분석하여야 하며, 일반적으로 충전탑에서 파과 특성 실험을 수행하여 운전 설계인자를 도출하여야 한다. 특히 고온공정에서 흡착열에 의한 영향이 클 경우 충전탑에서의 동적 거동이 매우 중요한 인자가 된다. 따라서 AgX-10 흡착제를 충전한 고

정층에서 메틸요오드 과과특성 실험을 온도 및 층 높이, 주입농도 변화에 따라 수행하였으며, 이를 그림 4 와 그림5에 각각 도시하였다.

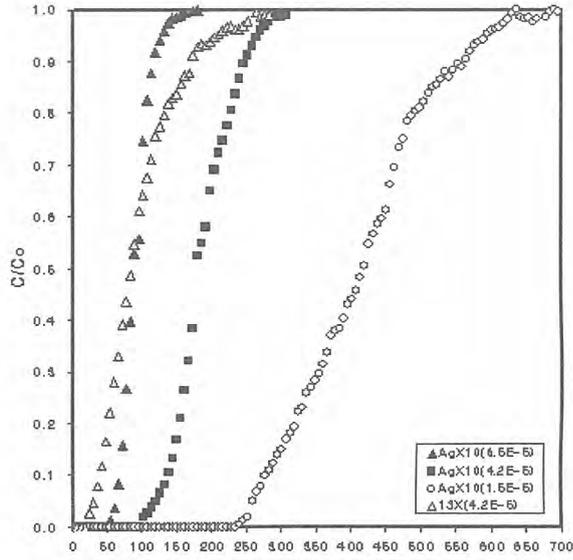


Fig.4. Breakthrough Curves of CH₃I Adsorption with Temperature on AgX-10. (Bed Depth = 2.6, 10 cm, C₀=5x10⁻⁵ mol/l)

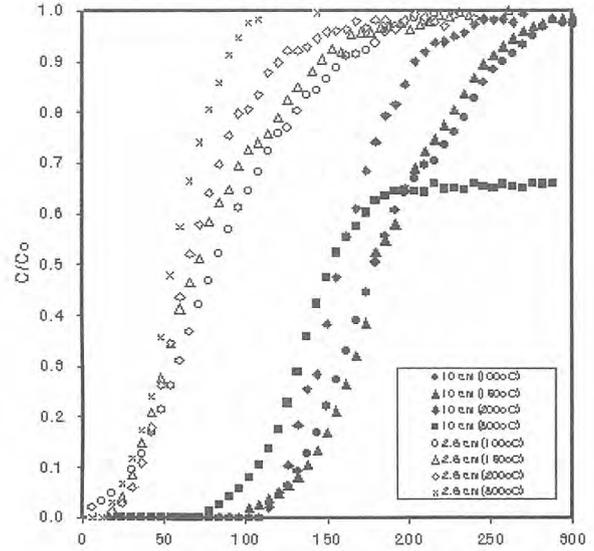


Fig.5. Breakthrough Curves of CH₃I Adsorption with Input Conc. on AgX-10. (Bed Depth = 10 cm, Temp.=150°C)

그림에서 보는 바와 같이, 온도가 증가함에 따라 과과시간은 감소하지만 온도 변화에 큰 영향을 받지 않는 것으로 나타났으며, 400°C에서의 과과곡선은 비정상적인 특성을 나타내었다. 이러한 현상은 Ag축매에 의한 메틸요오드 분해에 따른 영향으로 여겨지며, 흡착반응 후 생성된 기체의 성분을 분석한 결과 에탄 및 CO₂가 생성됨을 확인할 수 있었다(그림 6, 7참조). 따라서 이상의 결과로부터 AgX 흡착제에서 메틸요오드 흡착 메커니즘은 다음과 같이 제안하였다.

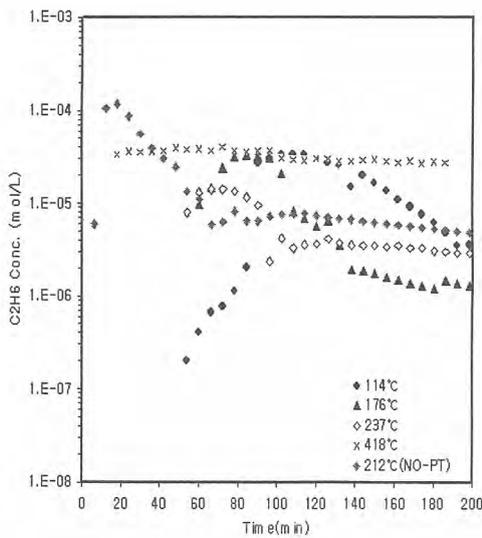


Fig.6. Concentration Profile of Ethane Gas with Adsorption Temperature on AgX-10. (Bed Depth = 10 cm, C₀=5 x10⁻⁵ mol/L)

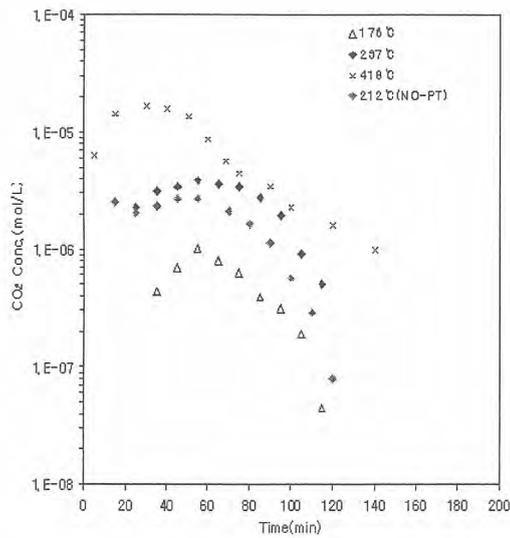
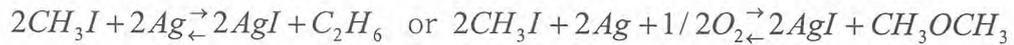


Fig.7. Concentration Profile of Carbon Dioxide with Adsorption Temperature on AgX-10. (Bed Depth = 10 cm, C₀=5 x10⁻⁵ mol/L)



즉, 온도가 증가함에 따라 메틸요오드는 Ag촉매에 의하여 분해되어 은과의 화학반응에 의하여 제거되는 것으로 판단된다. 따라서 이상의 결과를 바탕으로 AgX에 의한 메틸요오드의 고정층 흡착거동을 해석하기 위해서는 흡착열에 의한 온도영향 및 반응에 의한 생성기체의 영향 등을 다양하게 고려하여야 할 것이다.

4. 결 론

원자력발전소의 중대사고시 또는 사용후핵연료 건식공정 등의 고온공정에서 발생하는 방사성 유기요오드 제거용으로 사용되는 TEDA 침착활성탄 및 은교환 제올라이트(AgX)의 온도 변화에 따른 메틸요오드 흡착성능을 상호 비교 평가한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다. 일반적으로 원자력발전소에서 사용중인 TEDA 침착활성탄의 온도변화에 따른 흡착량 및 탈착후 잔존량은 온도가 증가하더라도 비침착활성탄과 비교하여 매우 높은 값을 나타내었고, 150°C까지는 사용할 수 있을 것으로 판단된다. 특히 100°C~ 250°C범위에서 탈착후 잔존량은 AgX-10의 성능과 비교하여 약 30%정도 낮은 값을 나타내었지만, 경제성을 고려할 경우 발화의 가능성을 억제할 수 있다면 효과적인 흡착제로 사용될 수 있을 것으로 생각된다. AgX-10 흡착제를 충전한 고정층에서 메틸요오드 파과특성 실험을 온도 및 층높이, 주입농도 변화에 따라 수행한 결과, 400°C에서 파과곡선은 Ag촉매에 의한 메틸요오드 분해에 따른 영향으로 비정상적인 거동을 나타내었으며, 흡착반응 후 생성된 기체의 성분을 분석한 결과 C₂H₆ 와 CO₂가 생성됨을 확인하였다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. D. T. Pence and B. A. Staples, "Solid Adsorbents for Collection and Storage of Iodine-129 from Reprocessing Plants," In Proc. 13th AEC Air Cleaning Conference, CONF-740807, Atomic Energy Commission, Washington, DC, August, p157 1974
2. International Atomic Energy Agency, Design of Off-Gas and Air Cleaning Systems at Nuclear Power Plants, Tech. No. 274, 1987
3. J.G. Wilhelm and J. Furrer, "Iodine Filters in Nuclear Power Stations," In CEC Seminar on Radioactive Effluents from Nuclear Fuel Reprocessing Plants, (Kernforschungszentrum, Karlsruhe, Federal Republic of Germany, 1977
4. R.H. Bellamy, Elemental Iodine and Methyl Iodide Adsorption on Activated

Charcoal at Low Concentrations, Nucl., Safety, vol. 15, 16, November, 1974

5. J.C. Wren, C.J. Moore, and M.T. Rasmussen, "Methyl Iodide Trapping Efficiency of Aged Charcoal Samples from Bruce-A Emergency Filtered Air Discharge Systems," *Nuclear Technology*, 125, 28-39, 1999.
6. B.S. Choi, G.I. Park, *et al.*, A Study on the Removal of Radioiodine on Silver-impregnated Adsorbents, Proceeding of the KNS Autumn Meeting, Vol. II, pp. 311-316, Taegu, Korea, 1997
7. B.S. Choi, G.I. Park, *et al.*, Adsorption and Desorption Characteristics of Methyl Iodide on Silver Ion-Exchanged Synthetic Zeolite at High Temperature, *Journal of Korea Nuclear Society*, Vol. 32, No. 5, 2000.
8. B.S. Choi, G.I. Park, *et al.*, Adsorption Equilibrium and Dynamics of Methyl Iodide in a Silver Ion-Exchanged Zeolite Column at High Temperatures, Adsorption, Submitted, 2000.
9. 이 후근, 박 근일, 박 성원, 전 관식, 박 현수, 방사성요오드를 제거하기 위한 TEDA/KI 첨착활성탄 제조방법, 특허등록번호 제 072819 호

제올라이트를 이용한 용융염폐기물 고정화

Immobilization of Molten Waste Salt Using Zeolites

김정국, 이재희, 김준형
한국원자력연구소

요 약

현재 국내에서 개발 중인 사용후 핵연료의 금속전환공정에서 발생이 예상되는 LiCl 염폐기물을 제올라이트로 고정화한 후 최종 고화체를 만드는 기술을 개발 중에 있다. 여러 혼합조건에 대해 고정화 생성물의 결정을 분석한 결과 모든 혼합조건에서 제올라이트 A형이 제올라이트 Li-A으로 전이되었으며, 일부 혼합조건에서는 Minor phase로 소달라이트 형도 발견되었다. 자유염 발생이 최소가 되는 혼합조건은 Cs, Sr 핵종이 포함된 LiCl/제올라이트 비가 1.0인 조건이었다.

Abstract

The technology to fix a molten LiCl waste, which would be generated from the process to convert spent fuel to metal, into zeolite and then make a final waste form is doing developed. The XRD results of salt-loaded zeolites with different mixing ratios showed that all zeolites transformed from zeolite A type into Li-A type, or also Sodalite type as a minor phase for some conditions. The optimum LiCl-to-zeolite ratio to bring a minimum free salt was 1.0 when the molten LiCl waste contained Cs and Sr.

1. 서 론

최근 사용후핵연료 (spent fuel; SF)를 효율적으로 관리하고 핵확산 저항성이 크다는 측면에서도 유리한 건식처리 공정 (Pyrochemical process)이 다양하게 연구되고 있다. 일반적으로 건식처리는 습식처리와는 다르게 고온의 용융염 중에서 전기화학적인 방식으로 이루어지는데 폐기물이 거의 발생하지 않는다는 장점을 갖고 있다. 그러나 공정개발이 진행됨에 따라 SF중의 핵분열성 물질 (fission products; FP) 중 일부 핵종이 전기화학적인 방법으로는 분리, 제거할 수 없음이 밝혀지고, 이들 원소가 가지는 고방열 특성으로 인해 용융염의 재순환 횟수가 제한되므로 그 일부를 배출시키고 새로운 용융염을 보충하여 방사능을 조절하고 있다. 이와 같이 배출된 용융염을 “염폐기물 (Waste Salt)”라 부르는데, 모든 염폐기물은 물에 잘 녹을 뿐만 아니라 방사선에 의해 쉽게 분해하여 염소와 금속 콜로이드를 생성하므로 처분장 수용기준을 만족하도록 안정화 처리되어야 한다. 여기서는 가장 기술개발이 많이 이루어진 미국의 기술현황을 고찰하고, 국내의 건식처리공정에서 발생이 예상되는 LiCl 염폐기물의 고정화 생성물을 제조하여 그 결정구조와 자유염 (Free salt)의 관계를 살펴보았다.

2. 염폐기물 처리기술

2.1 미국 ANL의 처리기술

1980년대 말, 미국 ANL (Argonne National Laboratory)에서 개발한 IFR (Integral Fast Reactor)은 금속 사용후핵연료를 On-site에서 건식 재처리하는 개념을 가지고 있었다. 전기화학적 기술에 의해 사용후 IFR 핵연료에서 악티ν 원소를 회수하는 건식 재처리 공정은 용융 LiCl-KCl 공융염이 담긴 전해정련용기에서 회분식으로 이루어진다. 이 과정에서 SF내의 핵분열성 물질(FP) 중 알칼리 금속 및 알칼리 토금속 핵종들은 주로 염화물 형태로 존재하게 된다.¹⁾ 이들 중 Cs, Sr 등의 염화물은 화학적 또는 전기적 분해방법에 의해 분리가 불가능하여 용융염과 함께 동반되어 순환되므로 공정내 방사능을 조절하기 위해 그 일부를 배출시키는데, 이를 “염폐기물 (Waste Salt)”이라 부른다. IFR에서 발생하는 염폐기물의 경우 초우라늄 (Transuranic; TRU) 원소의 함량이 100 nCi/g 이하로 매우 낮다.²⁾ 그러나 조사된 핵연료의 처리과정에서 직접 배출된 폐기물은 모두 고준위 폐기물(High-level waste; HLW)로 간주하는 규정에 의해 고준위 폐기물로 관리되고 있다.³⁾ 염폐기물을 지층 HLW 처분장에 처분하기 위해서는 수용기준을 만족하는 내침출성과 방사선 안정성을 갖도록 처리하여야 한다.^{2,4)}

염폐기물 고화처리기술에 관한 미국의 최근 연구방향은 그 대상 핵연료가 EBR-II 사용후 핵연료로 변경되었음에도 불구하고 1990년대에 연구하던 것과 같이 제올라이트 A를 핵종 고정화 매질로 이용하는 방법이다.⁵⁾ 전해정련 공정에서 발생하는 염폐기물의 재순환 가능성에 따라 그림 1과 같이 다음 2가지 기술이 개발되고 있다.

- 공정에서 발생된 염폐기물을 제올라이트 컬럼을 통과시켜 정제된 염을 재순환하고 컬럼의 제올라이트는 유리 분말과 혼합하여 고온로에서 세라믹 고화체로 만드는 기술
- 용융염을 결정상태에서 분쇄한 후 블렌딩 혼합기로 보내고 여기에 제올라이트와 유리를 혼합시켜 세라믹 폐기물 로에서 세라믹 폐기물고화체로 만드는 기술전자의 경우 용융염을 제올라이트 컬럼으로 보내기 전에 미리 악티ν족을 제거하는 단계가 필요한 반면, 후자의 경우 냉각된 염을 분쇄하는 단계가 필요하다. 이렇게 제조된 세라믹 고화체는 제올라이트를 기본으로 하고 유리에 의해 결합된 세라믹인데, 제올라이트의 세공내에 염이 내포되어 있으며 제올라이트의 양이온은 FP와 이온교환된 상태이다. 즉, 전해정련에서 발생된 염폐기물은 방사선을 띤 금속 FP (알칼리, 알칼리 토금속 및 희토류)와 TRU를 가진 채 제올라이트 A에 내포된 후, 염을 내포한 제올라이트 A (salt-loaded zeolite A)는 약 800-925°C에서 소달라이트로 전환시켜 최종 세라믹 고화체를 제조한다.

2.2 국내 염폐기물 처리연구

국내에서 연구개발 중인 핵비확산성 SF 건식처리공정에서는 크게 2가지 즉, LiCl 염폐기물과 LiCl+KCl 공융염폐기물의 발생이 예상된다. 전자는 용융온도가 623°C로 미국 ANL에서도 처리대상으로 기술개발 중인 LiCl+KCl 공융염 폐기물의 용융온도 400°C에 비해 고온이고 단일 염이라 핵종 고정화 매질과의 혼합성 및 결정성 등이 서로 상이한 것으로 나타났다.

2.2.1 염폐기물 고정화 실험

LiCl (Aldrich, 99+%) 단독 또는 5.6wt% CsCl (Aldrich, 99.9+%), 3.0wt% SrCl₂ (Aldrich, 99.9+%)가 혼합된 모의 염폐기물을 650°C로 용융한 상태에서 미리 탈수장치를 통과한 건조된 제올라이트 A (Aldrich, Molecular sieve 4A, Bead type, 8-12 mesh)를 혼합하였다. 혼합비 r (= wt

ratio of LiCl/zeolite)이 15, 10, 4.5인 염 과량 혼합은 회분식 이온교환장치를, r이 2.0, 1.0, 0.5, 0.25인 제올라이트 과량 혼합은 블렌딩 혼합기를 이용하였다. 혼합된 고정화 생성물은 상온까지 식힌 뒤 제올라이트만 분리하여 결정구조는 XRD (Philips, X'pert MPD)로, 제올라이트에 내포된 성분은 ICP-AES (Perkin-Elmer, Optima 4300)과 EPMA (Cameca, SC-50)으로, Cl-이온은 Ion Chromatograph (Diones, DX-100)로 분석하였다.

2.2.2 제올라이트 결정전이

염폐기물을 제올라이트로 고정화하는 단계에서 제올라이트는 그 혼합비 r 및 CsCl이나 SrCl₂의 첨가에 무관하게 A형 [Na₁₂Al₁₂Si₁₂O₄₈] 결정 구조가 Li-A형 [Li₂Al₂Si₂O₈] 결정구조로 전이되었다. CsCl이나 SrCl₂를 혼합하지 않은 LiCl 단독의 경우 r = 15, 10에서는 소달라이트 (Sodalite) 형 [Na₈Al₆Si₆O₂₄Cl₂] 결정 구조도 minor-phase로 발견되었다. 이렇게 2가지 결정상으로의 전이는 CsCl이나 SrCl₂를 첨가한 경우 r = 1.0 까지 확대되었는데, 이는 Cs, Sr 성분의 첨가가 소달라이트로의 결정전이를 촉진시키기 때문이다.

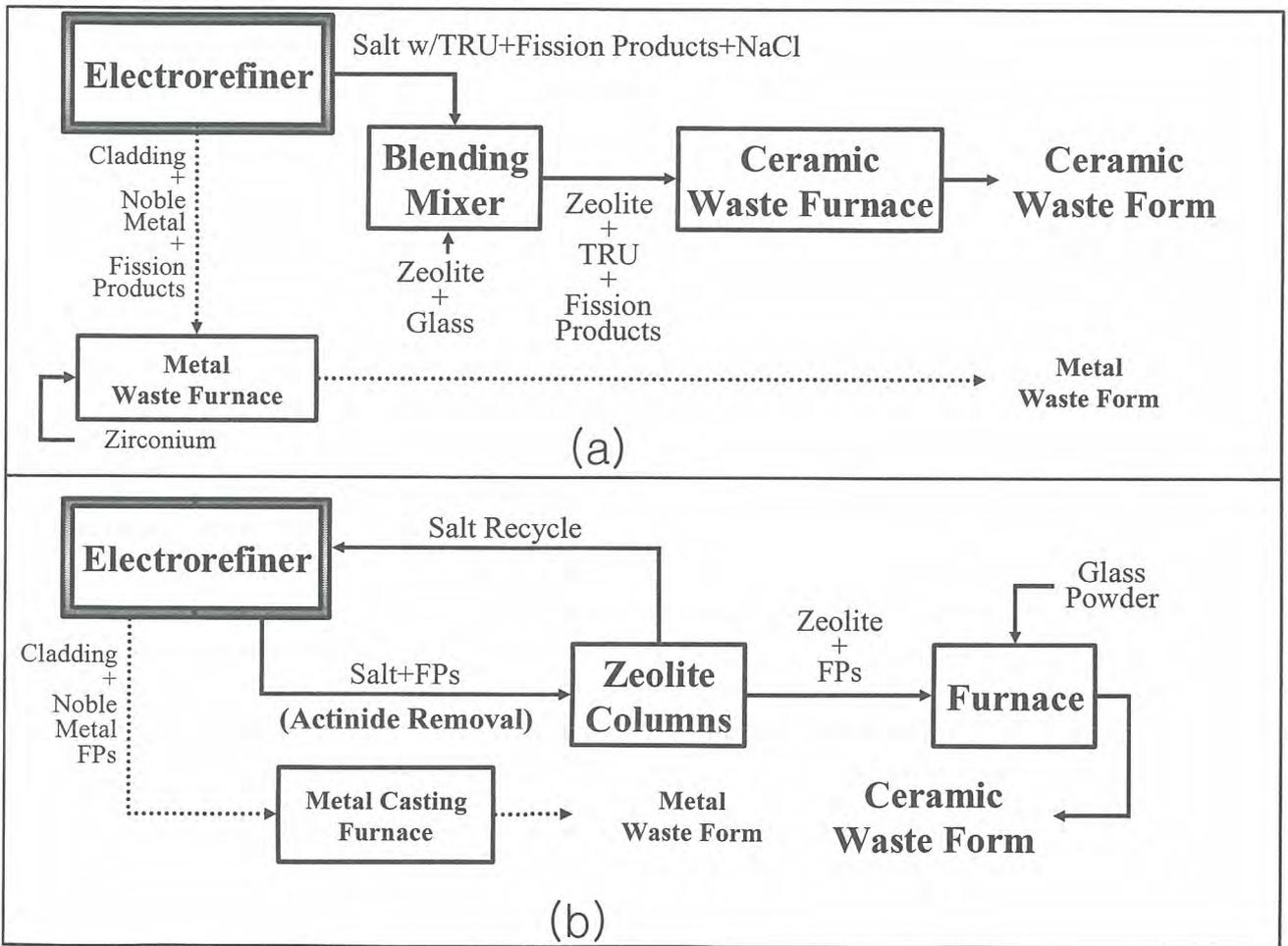


그림 1. 미국 ANL의 염폐기물 처리기술 개발 방향; (a) 염폐기물의 재생 없이 바로 고화처리하는 공정, (b) 염폐기물의 재생, 재순환을 가정한 고화처리공정

2.2.3 고정화 생성물중 자유염 존재량

혼합비 r= 2.0, 1.0, 0.25에 대해 블렌딩 혼합기를 이용하여 고정화 생성물을 제조하고 제올라

이트에 완전히 내포되지 않은 자유염 (Free salt) 량을 분석하여 표 1에 보였다. 실험은 고정화 생성물 5g을 취하여 50 ml의 증류수에 1분간을 놓아둔 후 제올라이트는 여과하고 남은 여액중의 Cl-이온 량을 분석하여 결정하였다.⁶⁾ Cl-이온은 음이온이기 때문에 제올라이트에 존재하는 양이온과는 이온교환하지 않는 대신 제올라이트 결정의 세공 내에 내포되는 것으로 알려져 있으며, 적정 혼합비에서 제조된 고정화 생성물의 경우 내포된 Cl은 거의 녹아 나오지 않고 제올라이트 표면이나 결정사이에 존재하므로 자유염의 양은 물과의 접촉시간에 거의 무관한 반면 초기 혼합비 r에 크게 관련되는 것으로 알려져 있다.⁶⁾ 2가지 혼합비 r = 1.0, 0.25로 제조된 고정화 생성물의 자유염을 비교하면, r = 0.25인 시료가 4배정도 더 많은 제올라이트로 고정화하였음에도 불구하고 자유염은 더 적었다. 이는 제올라이트가 많음으로 인해 충분한 Na-이온이 공급되어 이들이 Cl-이온과 결합하여 생성되는 Halite [NaCl]가 주원인 것으로 보이며, 이러한 결과는 ZRD 분석을 통해서도 확인할 수 있었다. 따라서 자유염이 최소가 되는 LiCl/제올라이트 혼합비(r)는 Cs과 Sr이 각각 5.6, 3.0 wt% 존재하는 조건에서 r = 1.0인 조건이며, 이 때 자유염 발생량은 약 1 wt%이었다.

표 1. 고정화 생성물의 자유염 생성량

고정화 생성물 r (=salt/zeolite)	LiCl only		LiCl with Cs		LiCl with Sr		LiCl with Cs, Sr	
	1.0	0.25	1.0	0.25	1.0	0.25	1.0	0.25
Free salt (wt%)	16.3	10.2	11.0	6.2	11.6	8.6	1.1	2.8

3. 결 론

국내의 건식처리공정에서 발생이 예상되는 LiCl 염폐기물을 제올라이트를 이용하여 핵종을 고정화시키고 이를 고화하는 안정화 처리연구의 첫 단계로 LiCl/제올라이트의 혼합비를 변화시키며 제조한 고정화 생성물의 결정을 XRD로 분석하고 자유염 생성량을 측정하였다. 혼합 단계에서 제올라이트 A형은 그 결정구조가 Li-A형 (Major phase)과 소달라이트형 (Minor phase)으로 전이되었다. 자유염 생성이 최소인 혼합조건은 Cs, Sr 핵종을 포함하는 LiCl염에 대해 LiCl/제올라이트의 비가 1.0일 경우 가장 적었으며 이 때 결정에는 소달라이트 결정은 존재하며, Halite [NaCl]은 생성되지 않았다.

감사의 글

본 논문은 과학기술부의 원자력 중장기 연구개발 사업의 일환으로 수행되었음.

참 고 문 헌

1. J.P. Ackerman, "Chemical Basis for Pyrochemical Reprocessing of Nuclear Fuel", *Ind. Eng. Chem. Res.* **30**, 141 (1991).
2. M.A. Lewis, D.F. Fischer, and L.J. Smith, "Salt-Occluded Zeolites as an Immobilization Matrix for Chloride Waste Salt", *J. Am. Ceramic Soc.* **76**, 2826 (1993).
3. Nuclear Regulatory Commission. 10 CFR Part 60, "Disposal of High-Level Radioactive Waste in Geological Repositories Procedural Requirements." Federal Register February 25, 1981.
4. M.A. Lewis, D.F. Fisher, and J.J. Laidler, "Leach Resistance Properties and Release Processes for Salt-Occluded Zeolite A," Argonne National Laboratory, ANL/CMT/ CP-77755 (1993).
5. M. Goff, "Pyroprocessing Plans for Spent Fuel Treatment and Waste Form Testing", Private presentation (2003).
6. C. Pereira, V. N. Zyryanov, M.A. Lewis, and J.P. Ackerman, "Mixing of Zeolite Powders and Molten Salt," Argonne National Laboratory, CONF-9604124-3 (1996).

방사성 폐액중의 붕소와 나트륨의 몰비 변화에 따른
농축폐액건조설비 운전 경험사례

The Operation Experience of the Concentrated Waste Drying System
with Variation in the Mole Ratio of Boron to Sodium

김영식, 김세태, 안교수, 박진석
1)박종길
한국수력원자력(주), 1)현대원자력(주)

요 약

원자력발전소에서 발생하는 방사성 폐액은 일반적으로 액체폐기물처리계통 폐액증발기 및 농축 폐액건조설비에서 증발 및 건조 공정을 통해 수분을 함유하지 않은 분말형태로 변한다. 이 분말 형태의 폐기물은, 취급 시와 처분 후 안전성을 확보할 수 있도록, 파라핀과 균일하게 혼합되어 고화된 후 철제드럼에 포장된다. 농축폐액건조설비를 이용하여 농축폐액을 건조시킨 후 분말 형태의 폐기물을 파라핀과 혼합하는 공정을 수행할 때, 방사성 폐액 중 붕소와 나트륨의 몰비가 0.2를 초과하는 경우, 분말형태의 폐기물이 파라핀과 균일하게 혼합되지 않고 층을 이루어 분리되어 드럼에 안정고화가 잘 안되는 경우가 발생하였고 또한 일부는 드럼화 전에 설비 내에 고착되는 현상이 발생하는 것을 경험하였다.

Abstract

Generally, liquid radioactive wastes generated in nuclear power plant exist in powder form which do not contain moisture through the evaporating process of the Liquid Waste Management System and drying process of the Concentrated Waste Drying System. This powder form wastes are blended homogeneously with paraffin solidification agent and packed in metal drum to ensure its stability during handling and disposal. However, it was experienced that the powder form wastes were not blended homogeneously and separated into two layers in metal drum, on the other hand, a Portion of powder was adhered and solidified to the Inside parts of facility during the blending process. And the flaw of blending process above would come in case the mole ratio of Boron to Sodium in liquid radioactive wastes exceeds 0.2.

1.0 서 론

농축폐액건조설비는 울진 1,2호기에서 미국 VECTRA 사 로부터 1995년 도입하여 운영하고 있다. 운영목적은 과거 콘크리트 고화 방식에서 파라핀 고화 방식으로 변경함으로써 폐기물 처리 작업 시 효율성을 높이고 폐기물 발생량을 약 88% 감용 하는데 있으며 이로 인하여 현재 각 원전 본부별로 임시 저장하고 있는 임시 저장고의 저장기간을 연장하는데 기여하고 있다. 한편, 농축폐액건조설비 운전기간 동안 설비를 이용하여 농축폐액을 건조시킨 후 분말 형태의 폐기물을 파라핀과 혼합하는 공정을 수행할 때, 방사성 폐액 중 붕소와 나트륨의 물비가 일정한 값을 초과하는 경우, 분말형태의 폐기물이 파라핀과 균일하게 혼합되지 않고 층을 이루며 분리되며 일부는 고형화 되어 설비 내에 고착되는 현상이 발생하는 것을 경험하였다. 이러한 사례를 분석하고 그 원인을 밝혀 설비운전에 적합한 기준을 세우고자 한다.

2.0 본 론

2.1 울진 1,2호기 액체폐기물처리계통

2.1.1 계통 개요

울진 1,2호기의 액체방사성폐기물처리계통은 발전소운영상 방사선관리구역내에서 필연적으로 발생되는 방사성 폐액을 저장, 처리 및 방출하는 계통으로서 원활히 운영되지 않을 경우 발전소 운영에 지장을 초래할 수 있다. 이러한 폐액처리를 위하여 울진 1,2호기 공용설비로 설치되어 운영 중에 있으며 발전소에서 발생하는 주요 폐수원은 공정배수, 바닥배수, 세탁배수 및 화학배수로 구분되어 선택적으로 수집, 처리된다. 저장탱크는 공정배수탱크(35m³, 2대), 바닥배수탱크(20m³, 4대), 세탁배수탱크(20m³, 2대)가 있으며 기기 제염 시 발생하는 화학배수는 액체폐기물 처리계통으로 유입되어 처리된다. 이러한 저장탱크의 액체 폐기물은 폐액증발기를 통하여 증발 처리한 후 농축폐액 저장탱크로 이송하여 저장된다. 농축폐액저장탱크에 저장된 농축폐액은 농축폐액건조설비를 이용하여 분말형태로 완전 건조 시킨 후 파라핀을 균일하게 혼합한 후 첼제드럼에 포장한다. 이러한 일련의 공정은 그림 1 과 같다.

2.1.2 액체폐기물의 조성

울진 1,2호기 폐액증발기에서는 다양한 종류의 액체폐기물을 처리하고 있으며 표 1 에 울진 1,2호기에서 발생된 방사성폐액의 물리, 화학 및 방사 화학적 특성을 나타내었다. 표 1 에서 보면 폐액의 pH는 8.6이며 오염물질의 주요 구성원은 붕소, 나트륨 및 실리카임을 알 수 있다. 폐액의 성분은 발생시기에 따라 다소 차이가 있는데 계획예방정비 기간 전후에는 고농도의 붕산폐액이 발생되며 이때 폐액수집탱크 및 폐액증발기로 가성소다(NaOH) 용액을 적당량 주입하여 물비를 조정함으로써 배관 내 붕산의 석출을 예방한다. 정상운전중 폐액의 유입원은 기기배수, 세탁배수, 탈염기세정 및 이송수 등 비교적 저농도 붕산폐액이 발생된다.

표 1. 울진 1,2호기 방사성폐액의 물리, 화학 및 방사화학적 특성

항 목	시 료	바닥배수집수 조	항 목	시 료	바닥배수집수 조
1. pH		8.6	6. 주요핵종($\mu\text{Ci}/\text{cc}$)		
2. 전기전도도($\mu\text{s}/\text{cm}$)		310	- Ag-110m		3.05E-4
3. 오염물질(ppm)			- Co-58		2.22E-4
	- Boron	183	- Mn-54		1.45E-4
	- Chloride	0.8	- Cr-51		1.99E-5
	- Sulfate	*	- Fe-59		1.16E-4
	- Sodium	84	- Zr-95		1.31E-5
	- Calcium	5.2	- Nb-95		1.31E-5
	- Magnesium	0.32	- Cs-134		ND
	- Iron	0.03	- Cs-137		ND
- Silica	4.8	- I-131		ND	
4. TOC(ppm)		*	7. 총 β - γ 농도		
5. 총부유고체(ppm)		0.57	($\mu\text{Ci}/\text{cc}$)		8.52E-4

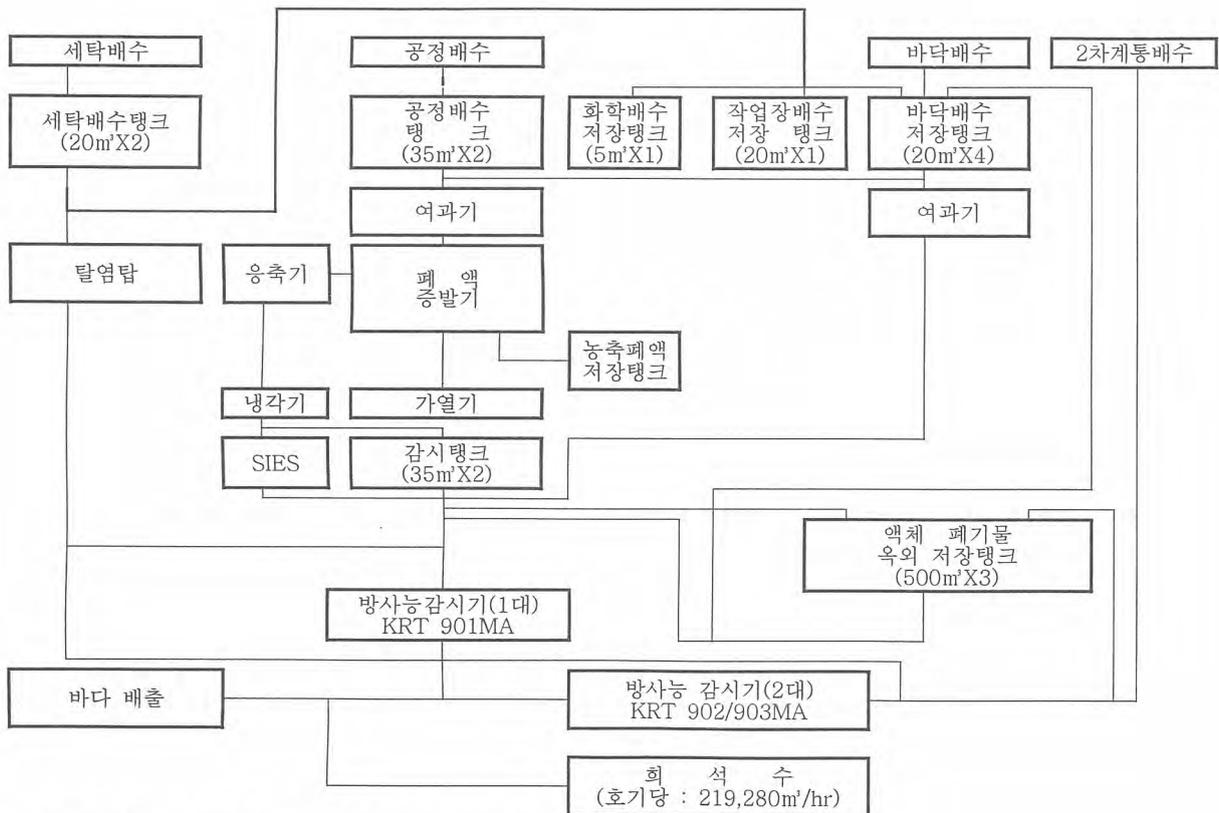


그림 1. 울진 1, 2호기 액체폐기물 처리계통 공정

2.1.3 액체폐기물 시료 채취 및 분석방법

액체폐기물의 시료 채취장소는 액체폐기물처리계통 증발기 시료채취밸브(TEU 403 VB)이며 1회 당 시료량은 500 ~ 700cc 이고 붕소 및 나트륨의 농도는 한국 표준과학연구원에서 검증된 화학 성분 분석 장치를 이용하는데 붕소는 붕소농도자동정기(702SM, 716DMS-Titrino)를 나트륨은 원자흡광분석기(SpectraAA-880)를 이용한다.

2.2 울진 1,2호기 농축폐액건조계통

2.2.1 계통 개요

농축폐액처리계통은 건조기 본체와 응축수 냉각기, 복수기 및 포장 및 이동설비로 구성되어 있다. 농축폐액저장탱크에서 농축폐액이 건조기 본체로 이송되면 약 230°F의 보조증기를 이용해 가열하여 농축폐액중의 수분을 증발시키고 보조 증기는 다시 응축되어 응축수 계통으로 되돌아가게 된다. 농축폐액으로부터 증발된 수분은 복수기를 통해 액체폐기물처리계통으로 되돌아가게 되며 2대의 감시탱크(35톤 용량)에 저장하였다가 시료채취를 하여 방사능 분석 후 배출기준인 $5 \times 10^{-7} \mu\text{Ci/cc}$ 이내일 경우 직렬로 연결된 방사능 감시기를 통해 해수로 배출된다. 복수기 및 응축수 냉각기에는 농축폐액건조설비 냉각기를 통해 약 42°F에서 52°F의 냉각수가 공급된다. 건조기에서 발생하는 배기체는 배기필터를 거쳐 설비실 내부로 방출되어 처리된다.

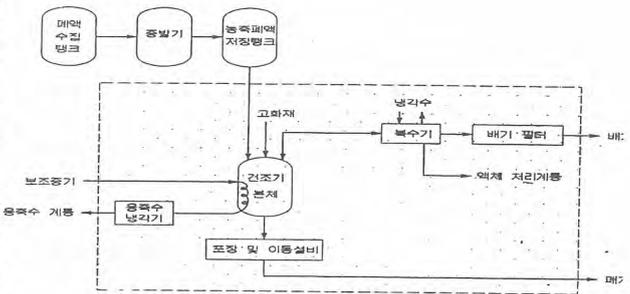


그림 2. 울진 1,2호기 농축폐액건조계통 개략도

2.3 농축폐액건조계통 비정상 운전 사례

2.3.1 시료분석

2003년 7월 4일, 액체폐기물처리계통 증발기에서 농축폐액저장탱크로 농축폐액이 이송되었으며, 이때 액체폐기물처리계통(TE U) 증발기 시료채취밸브(TEU 403 VB)에서 채취한 농축폐액은 고형화분이 16.3w%, 붕소농도는 31250ppm, 나트륨농도는 14000 ppm이었으며 다음 계산식에 의해 구해진 물비는 기준치 0.2보다 약간 높은 0.21이었다.

$$\begin{aligned} \text{물비} &= \text{나트륨 물수} / \text{보론 물수} \\ &= (C_{\text{Na}} / M_{\text{Na}}) / (C_{\text{B}} / M_{\text{B}}) \\ &= (14000 \text{ppm} / 23) / (31250 \text{ppm} / 10.8) \\ &= 0.21 \end{aligned}$$

2.3.2 농축폐액 및 고화재량 결정

농축폐액건조설비의 혼합건조기인 Blender/Dryer(이하 혼합건조기로 칭함)에서 한번에 처리되고 이송될 양은 최대 250kg이며 다음의 식을 이용하여 혼합건조기에 250kg의 폐액고체를 만들기 위해 처리할 농축폐액량 및 파라핀 고화재의 양을 결정하였다.

$$\begin{aligned} \text{처리할 농축폐액량} &= (250 \text{kg of solid waste} \times 100\text{w}\%) / 16.3\text{w}\% = 1533.7 \text{ l} \\ \text{고화재량} &= (250 \text{kg of solid waste} \times \text{농축폐액 고형화분에 대한 고화재비}(30\text{w}\%)) / 100 \\ &= 75 \text{kg} \end{aligned}$$

2.3.3 농축폐액건조설비 운전

2003년 7월 9일 10시 10분경, 약 567.75 l의 농축폐액을 농축폐액건조설비의 혼합건조기로 이송하고 건조운전을 시작하였으며, 동일 15시 10분 건조운전을 종료하였다. 건조혼합기 내부의 시간대별 온도변화는 표 2와 같이 118°F에서 176°F를 나타내었고, 건조혼합기 내부의 진공도는

농축폐액 저장 탱크(TES 001BA)
농축폐액건조설비 건조기 본체로 농축폐액 이송
보조증기(SVA) 공급하여 건조공정 수행
건조기 본체 감시 카메라로 건조상태 확인
적정량의 파라핀 주입 및 혼합 (농축 폐액량의 20~30%)
혼합물 드럼 이송
드럼 뚜껑 체결
표면 오염도, 선량 측정
임시 보관 장소로 이송 저장

그림 3. 농축폐액건조설비 운전절차

20inchHg에서 24inchHg사이의 값을 나타내어 정상적이었다.

표 2. 농축폐액건조설비 운전변수

운전변수명	10:10	11:10	12:10	13:10	14:10	15:10
혼합건조기 내부온도(TE-1, °F)	125	131	132	137	119	176
혼합건조기 내부온도(TE-2, °F)	118	132	132	137	136	174
혼합건조기 진공도(PT-10, inch Hg)	20	20	20	21	24	23

건조 운전이 종료된 후 약 27kg의 파라핀 액을 건조혼합기에 투입하여 농축폐액 고화분과 파라핀을 혼합하였으나 농축폐액 고화분과 파라핀이 혼합되지 않고 층을 이루며 분리되는 현상이 발생하는 것을 혼합건조기 내에 설치된 감시카메라를 통해 확인하였다.

농축폐액 고화분과 파라핀이 고르게 혼합되지 않으므로 덤프밸브(DV-1)를 개방하여 이들을 방출하려 했으나 파라핀만 방출되고 농축폐액은 젤 상태로 변하여 혼합건조기 내부에 고착되었다.



그림 4. 혼합건조기 내부에 고착된 농축폐액

2.3.1.3 조치

혼합건조기 내부에 고착된 농축폐액은 탈염수를 주입한 후 보조증기를 이용하여 재가열하여 용해시킨 후 방출시켰으며, 5000ppm의 붕산수 0.8톤을 농축폐액저장탱크내로 주입하여 농축폐액의 물비를 기존의 0.21에서 0.19로 변경하였다. 농축폐액의 물비를 0.19로 낮춘 후 다시 농축폐액건조설비를 운전한 결과 건조 및 파라핀 혼합공정이 정상적으로 진행됨을 확인할 수 있었다. 이러한 경험을 통하여 붕소와 나트륨의 물비의 중요성을 재인식하게 되었으며 나트륨이 금속성이므로 기준치를 초과하였을 경우 젤 상태로 변하여 파라핀과의 균질한 혼합이 불가능하고 이로 인해 농축폐액의 고화 안정을 이룰 수 없음을 확인하게 되었다.

3. 결 론

원자력발전소에서 발생하는 액체폐기물을 효과적으로 제한적인 시간내에 처리하는 것은 원자력 발전소의 정상적인 가동에 필수적인 요소이다. 액체폐기물은 울진 1, 2호기에서 연간 8,000톤에서 12,000톤 가량 발생되므로 이를 가장 최적화된 방법으로 처리하는 것은 폐기물량 감용과 종사자의 피폭 저감에도 상당한 중요성을 갖는다. 울진 1,2호기에서는 이러한 액체폐기물처리의 중요성을 인식하여 그동안 꾸준한 업무개선을 추진한 결과 액체 폐기물의 효과적인 처리와 폐기물 감용을 실현하기 위하여 지난 1995년부터 콘크리트 고화방식에서 농축폐액건조설비를 이용한 파라핀 고화방식으로 개선하여 액체폐기물을 효과적으로 처리하고 있다.

최근의 농축폐액건조설비 운전과정에서 경험하게 된 사례를 통하여 농축폐액의 물비가 0.2를 초과하면 농축폐액 고화분은 파라핀 고화재와 혼합되지 않고 유리되는 특성을 가지는 것을 알 수 있다. 따라서 농축폐액건조설비를 통한 농축폐액의 처리를 위해서는 물비를 0.2 이하로 반드시 유지해야 하며, 나트륨 과다로 인한 물비 기준치 초과시 붕산수를 첨가하여 물비를 조정해 주어야 한다.

참 고 문 헌

1. 한국수력원자력(주), 울진 1,2호기 최종안전성분석보고서 Chapter 11 "Radioactive Waste Management"
2. VECTRA, RVR-800 Concentrated Waste Drying System Operating Procedure (OM-079-WS), 1995
3. VECTRA, RVR-800 Concentrated Waste Drying System Maintenance Procedure (OM-076-WS), 1995
4. 한국전력기술(주), 선택성이온교환설비 기본설계서, 1997
5. 한국수력원자력(주), 농축폐액건조계통 성능점검 및 운전절차 Rev.02, 2003
6. 한국수력원자력(주), 원자흡광분석기(AA) 사용관리 Rev.0, 2003
7. 한국수력원자력(주), 자동적정기 운전 절차서 Rev.03, 1998
8. 한국수력원자력(주), 울진 1,2호기 방사성 폐액증발기 성능복구 및 방출방사능 제로화, 1997

빈 면

제1분과(B)

방사성폐기물처리 및 처분 (II) - 처분

빈 면

고준위 방사성폐기물 처분장에서 초기 용기 파손 시나리오의 장기
방사선적 안전성 평가

Post Closure Long Term Safety of an Initial Container Failure
Scenario for a Potential HLW Repository

황용수, 서은진, 이연명, 강철형
한국원자력연구소

요 약

고준위 방사성폐기물 처분장에서 적용하고 있는 다중 방벽의 한 부분인 처분 용기는 벤토나이트 완충재의 팽윤과 지압으로부터 폐기물을 역학적으로 안전하게 보호함과 동시에 일정 기간 방사성폐기물의 유출을 억제하는 역할을 한다. 용기는 엄격한 재질 선정과 품질 보증을 거쳐 건전성을 확보하나 보수적인 관점에서 보면 용기 제작 과정이나 수송 중 예상치 못한 사건으로 인해 불량품이 발생할 개연성이 있다. 본 연구에서는 이와 같은 사고 시나리오를 가정할 경우 불량 용기를 포함한 전체 용기에 거치된 방사성폐기물의 시간에 따른 환경 위해도를 평가하였다. 본 연구 결과 일부 처분 용기에 초기 파손이 발생하더라도 규제치를 잘 만족하는 것으로 판명되었다.

Abstract

A waste container, one of the key compartments in a multi-barrier system for a potential high level radioactive waste (HLW) repository in Korea ensures the mechanical stability against the lithostatic pressure of a deep geologic strata and the swelling pressure of the bentonite buffer. Also, it prohibits potential release of radionuclides for a certain period of time. before it is corroded by impurities. Even though the materials of a waste container is carefully chosen and all manufacturing processes are under heavy quality assurance, there might be a slight chance of intial defects in a waste container. Also, during the deposition of a waste container in a repository, there might be a chance of an incident affecting the integrity of a waste container. In this study, the FEP's and the scenarios over radiological impact of a potential initial waste container defect was developed. Then the total system performance assessment on this initial waste container failure (ICF) scenario was carried out by the MASCOT-K, one of the probabilistic safety assessment tools KAERI has developed. Results show that for the data set studied in this paper, the annual individual dose by the ICF scenario well meets the KINS regulation.

1. 서 론

1997년부터 2002년까지 국가 원자력 중장기 연구 개발 사업의 일환으로 추진되고 있는 고준위 방사성폐기물 처분연구에서는 우리 나라의 지수문 인문사회 환경에 적합한 처분 개념 도출과 이에 대한 안전성 평가를 수행하고 있다. 2003년 초 종료된 제 2 단계 연구에서는 처분 개념을 구성하는데 주요한 요소 중의 하나인 처분 용기 재질 선정을 위해 다양한 재질에 대한 기초 조사 연구를 수행하였다. 이를 통해 주철, 니켈 합금, 구리 등 역학적 안정성을 보장할 수 있으면서도 환경 환경에서의 내부식성이 높은 주요 물질들이 처분 용기 후보 매질로 선정되었으며 2003년부터 2006년까지의 제 2 단계 연구를 통해 처분 용기 후보 매질을 최종 선정할 예정이다. 처분 용기 후보 매질을 최종 선정할 때 중요한 요인의 하나가 용기 수명에 따른 처분장 폐쇄후 장기적 방사선적 안전성에 미치는 영향이다. 특히 엄격한 품질 보증 절차를 적용함에도 불구하고 소량의 불량 용기가 발생할 개연성이 있으므로 이를 고려한 보수적인 평가가 반드시 고려되어야 한다.

본 연구에서는 이러한 관점에서 먼저 ICF 시나리오를 구성하는 FEP들을 선별하고 이를 조합하여 RES (Rock Engineering System) 행렬을 구성하고 이와 같은 RES 행렬의 대각 요소 (diagonal element)들의 상호 반응으로 나타나는 비대각 요소 (off diagonal element)들을 조합하여 용기 파손, 지하수 유동, 핵종 이동 등의 부 시나리오 (sub scenario)들을 도출하고 최종적으로 이들을 조합하여 전체 ICF 시나리오를 도출하였다. 이와 같은 시나리오 도출 과정과 결과에 대한 투명성 (transparency)을 증진하기 위해서 본 연구에서는 2002년도 연구 기간 동안 개발된 FEAS (FEP to Assessment through Scenario) 프로그램을 수정 보완하여 FEP 개발, 선정, IFEP (integrated FEP) 구성, IFEP의 RES 행렬 대각 및 비대각 요소와의 mapping, 부 시나리오 도출, ICF시나리오 도출, AMF (Assessment Method Flowchart) 구성 및 최종 평가에 이르는 전 과정이 일반 이해당사자들도 보다 알기 쉽도록 기록 저장 가시화 하였다.

이와 같은 연구 결과 도출된 ICF 시나리오의 AMF에 따라 현재 한국원자력연구소가 개발 보유하고 있는 MASCOT-K를 이용하여 확률론적 방사선적 안전성을 평가하였다.

2. 시나리오 개발

2003년 초 종료된 제 2 단계 고준위 방사성폐기물 처분연구에서는 고준위 방사성폐기물 처분장에서 발생 개연성이 있는 사건들을 정리하여 KAERI FEP list를 개발하고 이를 내외부 전문가들의 평가를 통해 선별하고 그 중요도를 계량화하였다. 이와 같은 FEP 연구 결과는 한국원자력연구소가 개발한 FEAS 프로그램으로 입력되어 전체 FEP들의 개요, 선정 평가 결과들이 투명하게 잘 표현될 수 있도록 하였다. 이와 같은 연구 결과를 바탕으로 2002년도 연구에서는 한국 처분장 조건에 적합한 기준 시나리오를 도출하여 이에 대한 확률론적 안전성 평가를 수행한 바 있다. 2003년도 연구에서는 한 걸음 더 나아가 처분 용기가 초기에 불의의 사고나 제작 결함으로 일부 파손되어 방사성 핵종들이 처분 시점부터 외부로 유출되는 시나리오를 설정하였다. 이를 위해 각종 문헌 조사를 통해 초기 용기 파손 관련 FEP 과 발생 빈도를 조사하여 보수적인 관점에서 국내외 연구 결과 초기 용기 파손 발생 확률을 0.1 %로 가정할 수 있었다.

이와 같이 초기 용기 파손 사건은 발생 개연성이 있으므로 이에 따른 방사선적 처분 안전성을 정량적으로 평가하기 위해 관련 FEP들을 조합하여 ICF 시나리오를 도출하였다. 그림 1은 FEP 리스트로부터 도출된 ICF 시나리오 관련 RES 행렬을 도시한다. 이와 같은 RES 행렬의 각 요소들

그림 2에 나타난 바와 같이 상기한 네 가지 모든 경우에 대해서 정량적인 평가를 수행하였다. 그림에서 잘 나타나 바와 같이 용기 수명 및 불량 용기 발생 확률의 변화에 따라 개개 그래프의 경향의 차이는 있으나 전체적인 경향은 모든 경우들에 있어서 매우 유사했으며 특히 안전성 확인에 가장 중요한 피크 값의 경우에는 큰 차이가 없었다.

따라서 일부 불량 용기가 발생하고 처분 용기 평균 수명이 1,000 년으로 비교적 짧더라도 현재 제안되고 있는 처분 개념의 안전성이 확보될 수 있음이 확인되었다.

4. 결 론

본 연구에서는 한국형 처분 개념에 대한 방사선적 안전성 평가의 일환으로 대안 시나리오 (Alternative Scenario)의 하나인 ICF 시나리오에 대한 확률론적 평가를 수행하였다. 평가 결과 불량 용기 평균 발생 확률이 0.1 %이고, 용기 평균 부식 수명이 1,000 년인 경우 처분 개념에 대한 방사선적 안전성을 확보할 수 있었다. 향후 연구에서는 용기 수명을 10,000년, 100,000년, 1,000,000 년 등 보다 현실적으로 산정한 경우 이와 같은 용기 수명 변화와 불량 용기 발생 확률이 전체 처분 안전성에 미치는 영향을 정량적으로 평가해 ICF 시나리오에 대한 전체적인 처분 안전성을 종합 규명할 예정이다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부에서 주관하는 국가 원자력 중장기 연구 개발 사업의 일환으로 추진되었습니다.

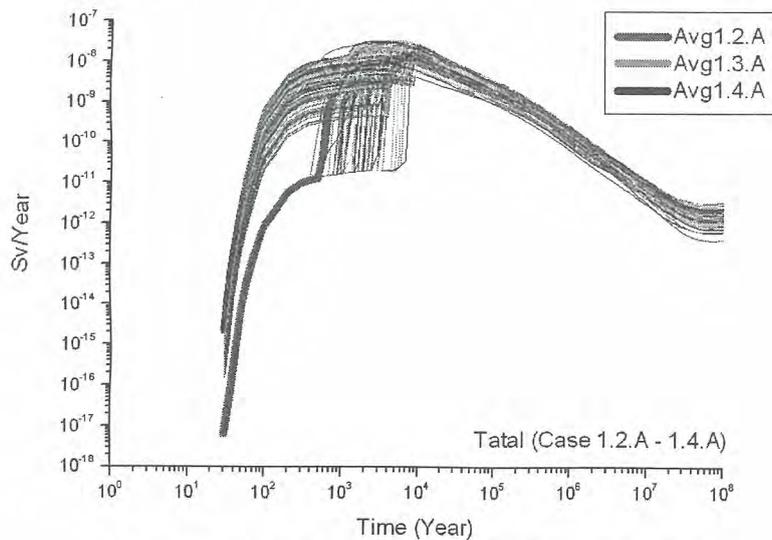


그림 2. ICF 시나리오에 대한 연간 개인 선량 평가

방사성폐기물 처분장 감시를 위한 다발형 광섬유 센서 및 Tapered 섬광체
방사선 센서에 관한 연구

A Study on the Bundle-type Scintillating Fiber and Tapered
Scintillator Radiation Sensors for Monitoring of Radioactive Wastes
Disposal Sites

김계홍, 박재우
제주대학교 방사능이용연구소

요 약

플라스틱 광섬유섬광체(PSF)를 여러 가닥의 다발로 묶은 방사선센서를 제작하여 ^{137}Cs 감마선원에 적용하여 가닥수에 따른 방사선 계측 특성을 분석하였다. 이를 통하여 센서부위와 전송용 광섬유간의 집광을 용이하게 하는 끝이 가늘어지는 광섬유(Tapered fiber)의 필요성을 발견하였다. Tapered 광섬유의 성능을 예측하기 위하여 polystyrene을 기반으로 미량의 dPOPOP와 PPO 또는 dPBD를 첨가한 Tapered 플라스틱 섬광체를 제작하였으며, ^{137}Cs 선원 1, 1.5, 3, 5 μCi 에 적용하여 출력과고 및 방사능과 총계수치 사이의 비례관계를 분석하였다. 본 연구를 통하여 플라스틱 광섬유섬광체를 Tapered 형태로 제작하는 경우 μCi 수준의 감마선장에서 방사선 계측기로 개발될 수 있음을 확인하였다.

Abstract

Several types of gamma-ray sensors were constructed by packing different numbers of fibers into aluminum tubes, and tested to detect the ^{137}Cs gamma ray. It has been found from this investigation that tapered fibers can be more efficient to collect the lights produced inside the sensor and transfer them into the transmitting fiber. In order to predict the functioning of the tapered fiber, tapered plastic scintillators, composed of polystyrene with minute amount of dPOPOP and PPO or dPBD, were fabricated and tested for the detection of gamma rays from 1.0 1.5 3.0 5.0 μCi ^{137}Cs sources, and the pulse hight spectrum and the relationship between the radioactivity and the total counts are analyzed. It has been found from this study that the tapered scintillating optical fiber, if manufactured, can be practically applied to the development of gamma-ray sensors which can be deployed in μCi -level radiation fields

1. 서 론

광섬유는 그 특성을 살려 현재 여러 가지 측정 센서로 이용되고 있으며, 원자력 분야에서도 다양

한 목적의 센서 개발에 대한 연구가 진행되고 있다.[1,2,3] 방사선 측정 측면에서 이러한 연구는 최근의 광학기술과 접목되어 다양한 방법으로 진보하고 있다. 광섬유를 활용한 방사선계측방법은 센서부분을 매우 소형화 할 수 있어서 연료봉 집합체 사이처럼 기존의 방사선 계측기로는 삼입이 곤란한 협소한 장소의 측정을 가능하게 할 수 있으며, 센서부위에 전원공급이 불필요한 장점을 활용하여 토양이나 수중에 직접 적용이 가능하다. Berthold[4]는 이러한 센서가 방사성 핵종의 누출을 감시하는 계통에 활용될 수 있음을 제시하고 있다.

본 연구에서는 이러한 방사선 센서의 가능성을 분석하기 위하여 BICRON BCF-12 1mm 광섬유를 다발형태로 묶은 센서를 제작하여 ^{137}Cs 감마선원에 대해서 시험하였다. 센서에 사용된 광섬유가닥수에 따라 측정되는 출력파고 스펙트럼을 분석하였으며 선원의 방사능과 총계수치간의 비례관계를 분석하였다. 이를 통하여 직경이 굵은 센서부위에서 생성된 섬광을 직경이 가는 전송용 광섬유로 효과적으로 집광하기 위해서는 끝이 가늘어지는 광섬유섬광체(tapered scintillating fiber)가 필요함을 발견하였다. 현재 국내에서는 본 연구의 목적에 맞는 굵기의 tapered 광섬유를 제조하는 곳을 찾을 수 없었기 때문에 플라스틱 광섬유 재료인 polystyrene에 발광성분으로 미량의 dPOPOP와 PPO 또는 dPBD를 첨가한 Tapered 플라스틱 섬광체를 끝이 가늘어지는 형태로 제작하였다. 이 섬광체를 ^{137}Cs 감마선원에 적용하여 출력되는 펄스 파고 스펙트럼을 분석하였고 선원의 방사능과 총계수치간의 비례관계를 분석하였다. 센서로부터 발생하는 광신호는 전송용 광섬유를 통해 Photomultiplier Tube(PMT)로 전송되고, 이것을 다중파고분석기(Multichannel Analyzer)로 채널별 계수치로 출력하였다. 이를 통하여 tapered fiber를 제조하여, 사용하는 경우 방사선 계측기로의 활용 가능성을 분석하였다.

2. 센서부위의 제작

플라스틱 광섬유는 외가닥으론 감마선과의 반응확률이 낮기 때문에 플라스틱광섬유섬광체인 BCF-12 1mm를 Fig.1(a)와 같이 알루미늄 튜브에 3, 7, 13, 18, 25가닥의 다발형태로 메워 넣어서 센서로 제작하였다. 센서의 한쪽 끝에는 박막의 알루미늄을 이용하여 외부광을 차단하고 내부에서 발생된 광신호를 반사하여 누설을 최소화 하였다.

Tapered 플라스틱 섬광체의 모형은 Fig.1(b)와 같으며 문헌[5]에 주어진 처방과 같이 모체인 styrene 단량체 용액에 미량의 용질을 첨가하여 열중합법으로 제작하였고 PMMA (Polymethylmethacrylate)로 코팅하여 피복하였다. 제1용질로 bPBD(2-4-T-Butylphenyl) 또는 PPO(2,5-diphenyloxazde)를 0.1%(mol/ℓ) 첨가하였고, 제2용질로는 dPOPOP (dimethyl POPOP)를 각각 0.01, 0.02, 0.03, 0.04%농도로 다르게 첨가하였다. Styrene 단량체에 개시제로 AIBN (Azobisisobutyronitrile, 아조비스이소부틸로니트릴)을 넣고 가열하면 개시제인 AIBN이 열분해하여 자유 라디칼을 생성시키고 생성된 자유 라디칼이 Styrene의 이중결합을 공격하여 중합이 일어나 polystyrene이 형성된다. 중합과정은 발열과정이므로 중합시 온도를 급격히 올리면 용매와 용질이 끓기 시작하여 기포가 발생하면서 고체화되기 때문에 교반기에서 90℃까지 서서히 온도를 상승 시킨 후 중합온도를 유지하도록 하였다. 이 상태가 4시간이 되면 제법 점성이 생기는데 이 점성이 있는 모노머를 형틀에 주입해 오븐에서 중합과정을 거친다. 중합온도는 오븐에서 50℃, 80시간 동안 유지하였고 상온에서 열처리하여 냉각하였다.

Tapered 섬광체의 피복은 코어로 사용된 재료보다 굴절율이 낮은 PMMA(Polymethyl methacrylate)를 사용 하였다. PMMA 폴리머를 만들기 위한 중합반응에도 개시제(Initiator)로 AIBN을 사용하였다. 기초 경화단계는 완전한 액체상태의 MMA 모노머를 100℃까지 온도를 올리

면서 서서히 교반 하여 준 뒤 다시 소량의 MMA를 주입하여 모노머가 끓는 것을 막고 80℃정도 까지 유지한다. 다시 온도를 90~95℃를 유지하면서 점도를 유지 한다. 이 과정을 반복하여 제법 점도가 있는 액체 상태를 유지하여준 뒤 60℃까지 온도를 내려주어야 한다. 이렇게 만들어진 점도가 있는 액체에 Tapered 플라스틱섬광체를 담가 클래드를 코팅한다. 이것을 오븐에서 40℃로 6시간 동안 건조시켜 경화시켰다.

섬광체에서 발생된 신호를 전송용 광섬유에 효율적으로 전송하기 위하여 한쪽 끝에는 400 nm 파장에서 반사율이 90%이상인 거울을 부착하였으며 외부는 알루미늄 호일로 감쌌다.

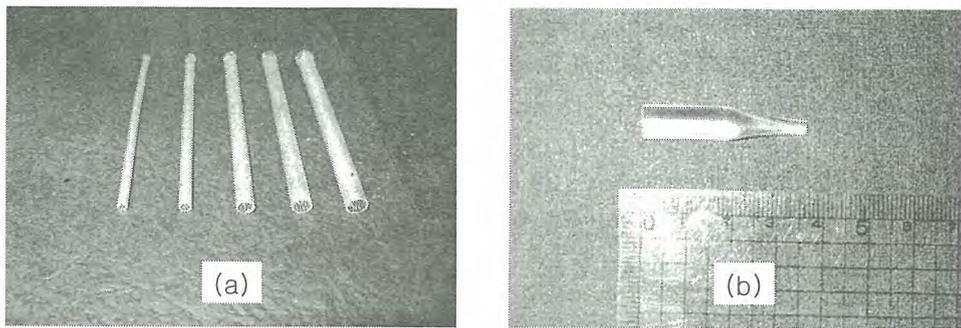


Fig. 1 Picture of (a)Multi-strand scintillating fiber sensor and (b) Tapered scintillator

3. 실험장치 구성 및 실험방법

섬광체 센서에서 생성된 섬광을 측정하기 위하여 사용된 실험장치의 구성은 Fig. 2와 같다. 실험 장치는 크게 센서 부분, 전송용 광섬유, PMT 및 다중과고분석장치(MCA)로 구성되어있다.

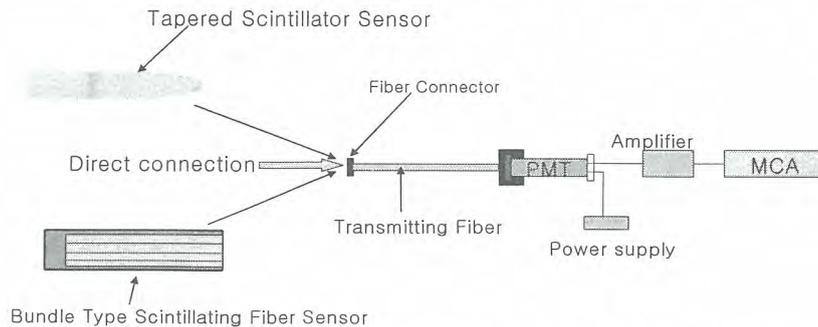


Fig. 2 Experimental setup for the test of the optical sensors

전송용 광섬유는 BICRON사의 BCF-12 model과 자체 제작한 Tapered 광섬유섬광체의 방출 파장의 범위가 350~600nm이기 때문에 이 파장 범위에서 전송손실이 적은 플라스틱광섬유를 선정하였다. 본 실험에 사용된 플라스틱 광섬유는 Edmund Optics사(Dia. 3mm)의 제품으로 재질은 core 용으로 PMMA($n_1 = 1.492$)가 사용되며 cladding 재질로는 불소계 폴리머(fluorine polymer, $n=1.402$)가 사용되었다.

센서부위로부터 발생된 광신호를 광신호를 측정·분석하기 위해서는 광전자증배관(Photomultiplier Tube 이하 PMT)을 사용하여 전기적신호로 변환한다. 섬광체의 발광파장이 350~600nm를 가지므로 PMT의 Photocathode 역시 이 에너지 영역에서 입사된 빛을 전자 방출로

전환하는 효율이 우수한 것을 선정하여야 한다. Bialkali 재질로 된 Photocathode의 경우 약 400nm 파장에서 최대의 효율을 가지므로, 이 재질로 된 창이 크기가 8mm인 Hamamatsu Model H3164-10과 H5784를 Head-on type으로 선정 하였다. PMT와 전송용 광섬유의 접속부위는 연결을 용이하게 하고 외부 광에 의한 신호의 교란을 줄이기 위하여 FC-type의 접속단자(connector)와 어댑터(adapter)를 이용하여 제작하였다.

PMT에서 발생하는 신호가 미약하여 전치증폭기와 주 증폭기를 모두 사용하는데 전치증폭기(Preamplifier)는 1차 신호를 증폭하고, 출력된 전하펄스를 전압펄스로 전환하며, 증폭율의 변화를 가변적으로 조절 가능한 C7319(Hamamatsu)것으로 선정하였다. 주 증폭기는(Canberra Amnplifier Model:2012) 제품을 이용하였으며, HV Power supply는 PMT에 안정적인 전원공급 및 전치증폭기에 동시에 전원을 공급할 수 있는 C3830(Hamamatsu)을 선정하였다. 신호 분석을 위한 MCA(Multi Channel Analyzer)는 Ortec trump-8k-32 + Maestero32로 PC에 On board형으로 장착하여 사용할 수 있는 제품을 선정하여 시스템을 구성하였다.

방사선원은 ^{137}Cs 용액을 각각 1,0 1.5, 3.0, 5.0 μCi 가 되게 정량하여 유리 시험관에 봉입한 것으로 시험관의 하부끝이 센서부의 측면과 접촉하도록 배치하였으며, 주위의 배경방사능의 영향을 최소화하기 위하여 납벽들을 사용하여 센서부위를 차폐하였다. 각 경우 계측시간은 300초로 하였다.

4. 결과 및 고찰

Fig. 3은 광섬유 다발 센서의 광섬유 가닥수에 따른 ^{137}Cs 3 μCi 에 대한 펄스파고 스펙트럼을 나타낸 것이다. 가닥수가 증가 할수록 계수치가 증가해 계측 효율이 증가함을 알 수 있다. 그러나 Fig. 4는 모든 채널의 계수치를 합한 총계수치로서 계수치 증가율이 가닥수가 증가함 따라 완만해 짐을 보여준다. 이것은 가닥수 증가에 따라 센서부의 직경이 전송용 광섬유의 직경보다 커지게 되어 일부의 광은 전송용 광섬유에 입사되지 못함을 말해준다.

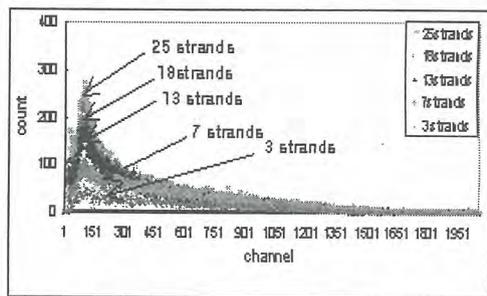


Fig. 3 Pulse-height spectrum measured for the 3 μCi ^{137}Cs source with the sensors having different number of fibers

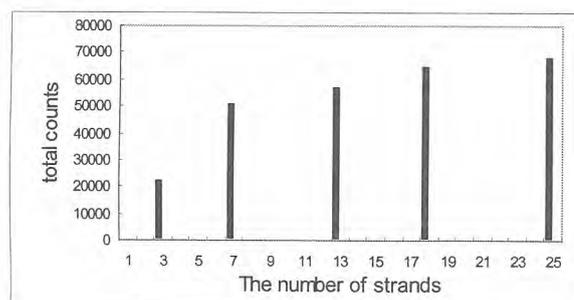


Fig. 4 The total counts measured with sensors having the different number of strands.

Fig. 5는 PPO 0.1%와 dPOPOP 0.02%를 첨가해 제작한 Tapered 섬광체의 ^{137}Cs 1, 1.5, 3, 5 μCi 에 대한 펄스파고 스펙트럼을 보여주고 있다. 방사능의 증가에 따라 스펙트럼의 형태는 변하지 않으나 높이가 증가함을 알 수 있다. Fig. 6은 dPOPOP의 농도를 0.01, 0.02, 0.03, 0.04%(mol/ ℓ) 다르게 첨가한 4가지 센서에 대해서 방사능과 총계수치와의 관계를 나타내고 있다. 모든 센서에 대해서 방사능의 증가에 따라 총계수치가 대체적으로 선형적으로 증가함을 볼 수 있다. dPOPOP의 농도가 0.02%일 때 가장 큰 계수치를 나타내고 있으나 4종류 센서의 dPOPOP 농도에 따른 감도를 비교

하는 데는 한계가 있었다. 각각의 센서마다 섬광체의 균질도, 전송용 광섬유와의 결합 상태, 접속부의 polishing 상태, 섬광체의 크기 등에서 편차가 있었기 때문에 농도에 따른 계수치 비교에는 어려움이 있었다. 그러나 전반적으로 감마선에 대해서 상당한 감도를 가지고 있음을 알 수 있다.

Fig. 7은 bPBD 0.1%와 dPOPOP 0.02%를 첨가해 제작한 센서의 ^{137}Cs 1, 1.5, 3, 5 μCi 에 대한 펄스파고 스펙트럼이고, Fig. 8은 dPOPOP의 농도가 0.01, 0.02, 0.04, 0.06%(mol/l)인 센서의 방사능에 따른 선형성을 보여주고 있다. 제 1용질로 dPBD를 첨가한 경우가 PPO보다 약간 감도가 높게 나타났으나 이 경우 역시 위에서 언급한 불확실 등으로 직접적인 비교는 곤란하였다.

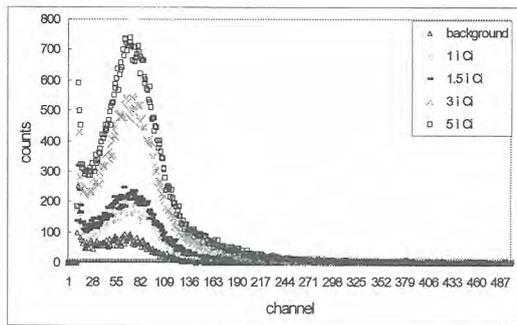


Fig. 5 Pulse-height spectrum measured with the tapered scintillator sensor. PPO and dPOPOP concentrations are 0.1%, 0.02%(mol/l), respectively.

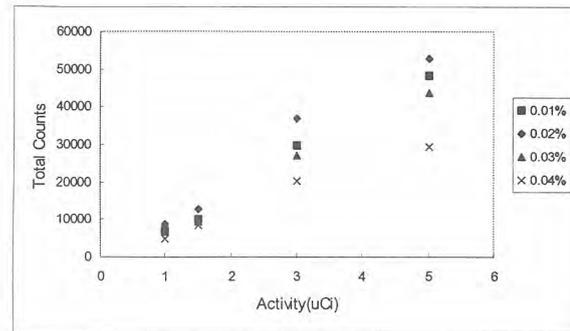


Fig. 6 Proportionality of the total count versus the source activity measured with the sensors having different concentrations of dPOPOP.

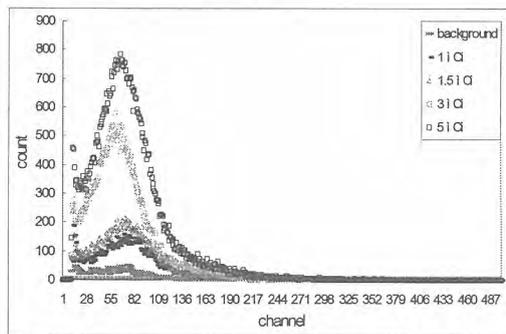


Fig. 7 Pulse-height spectrum measured with the tapered scintillator sensor. bPBD and dPOPOP concentrations are 0.1%, 0.02%(mol/l), respectively.

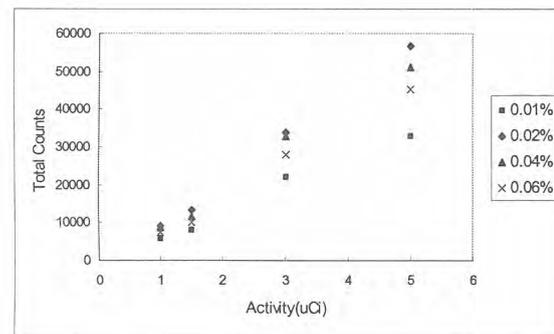


Fig. 8 Proportionality of the total count versus the source activity measured with the sensors having different concentrations of dPOPOP.

5. 결 론

방사성폐기물 처분장 주변의 지하에 매설하여 방사능 누설 감시를 위하여 활용될 수 있는 센서 후보로서 플라스틱 섬광체 광섬유를 다발형태로 묶은 센서와 한쪽 끝이 가늘어 지는 플라스틱 섬광체(tapered scintillator) 센서를 제작하여 ^{137}Cs 감마선에 대해서 시험하였다. 광섬유다발 센서는 여러 가닥의 플라스틱 섬광체 광섬유를 알루미늄 튜브에 봉입하여 제작하였고, tapered scintillator

는 문헌에 제시된 플라스틱 섬광체광섬유의 성분배합을 열중합하여 제작하였다. 광섬유 다발 센서의 경우 센서부위에서 생성된 광을 직경이 작은 전송용 광섬유로 효율적으로 집광/전송하는 데 한계가 있었으나 대체로 좋은 감도를 가지고 있음을 발견하였다. 이러한 집광상의 문제점을 극복하는 방안으로 tapered fiber의 사용 가능성을 확인하기 위하여 tapered scintillator를 사용하여 실험한 결과 충분한 감도가 있음을 확인하였다. 본 연구결과를 통하여 tapered 플라스틱 섬광체광섬유를 활용한다면 분포형 방사선 감시계통의 개발이 충분히 가능함을 확인 할 수 있었다.

감사의 글 : 이 연구는 과학재단 지정 방사선 안전신기술연구센터의 지원에 의해 수행되었음

참 고 문 헌

- [1] R. Van Geen, "Optical Fibere Sensing and Systems in Nuclear Enviroments" Proceeding of SPIE, Vol 2425, 1994.
- [2] 敦 木村, 光技術を用した原子力計測の研究, 學位論文, 東京大學, 2001.
- [3] Francis T. S. Yu and Shizhuo Yin, Fiber Optic Sensors, Marcel Dekker, 2002
- [4] John W. Berthold, "Overview of Prototype Fiber Optic Sensors for Future Application in Nuclear Environments", Proceeding of SPIE, Vol 2425, pp. 74-83, 1994.
- [5] Margarida Mizue Hamada et al., Radiation damage studies on the optical and mechanical properties of plastic scintillators, Nucl. Instr. and Meth. A, 422, 1999

중·저준위 방사성폐기물 처분시설 환경방사선조사 계획

Environmental radiation monitoring program of low- and intermediate-level waste disposal site

윤철환, 한재문, 김경덕
한국수력원자력(주) 원자력환경기술원

요 약

2008년 목표로 건설을 추진하고 있는 중저준위 방사성폐기물 처분시설의 환경 조사 계획을 수립하기 위해 국내 원자력법과 국제 수준을 조사하였다. 외국의 사례에 비추어 볼 때 원자력발전소에 비하여 분석량은 다소 증가할 것으로 예상된다. 중저준위 방사성폐기물 처분시설의 방사선 환경 조사는 원자력법과 처분 지역의 특성에 맞도록 조사 항목 및 지점을 조정하여 수행하여야 한다. 또한 주민에게 신뢰감을 줄 수 있는 다각적인 방법도 병행하여야 할 것으로 판단되었다.

Abstract

Environmental monitoring program is investigated based on Atomic Energy Law and foreign country radiation monitoring programs on low-and intermediate level radioactive waste disposal site. It is anticipated that the number of radiation measurements and samples will be higher than those of NPP's. The radiation monitoring program on LLW disposal site should be well prepared reflecting PA, site characteristics and regulation.

1. 서 론

중·저준위 방사성폐기물 처분장 건설 및 운영을 위해서는 시설 가동 전부터 허가 및 운영을 위하여 원자력법상 방사선환경 조사를 수행하여야 하므로 원자력 신청 시 필요서류인 방사선환경영향평가서 작성과 원자력시설 가동 전 약 2 ~ 3년간에 걸친 base-line data의 적기 확보를 위해 원자력법과 외국 사례의 분석을 통한 적정 환경방사선조사 방안 검토할 필요가 있다.

원자력법 제76조 (폐기시설 등의 건설·운영허가)에 의한 방사선 환경영향평가서(RER) 작성을 위하여 환경방사선/능 배경준위를 조사하여 기술해야하며 이 사항은 과학기술부 고시 제2001-24호에 기술되어 있고 법 제104조의 6 (환경보전)에 의한 사항은 "원자력시설의 방사선환경조사 및 평가" 일환으로 가동 전 약 3년간 방사선환경조사 및 평가가 필요하며 이 사항은 과학기술부 고시 제2001-25호에 규정되어 있다[1-3].

2. 환경감시계획 검토

방사선 환경영향 평가서 작성 시에는 환경방사선/능 배경준위를 기술하기 위해서 운영전 기초자료(base-line data) 조사와 환경 감시계획을 수립하여야 하고 가동전 방사선환경조사 및 평가를 수행하기 위해서는 환경방사선 조사계획 조사 1년전 수립하여 하고 운영전 2 ~ 3년간 환경방사선 조사를 - 항목별, 주기별, 지점별 시료 채취 및 분석해야 한다.

국외에서는 프랑스 로브 처분장의 경우 방사성핵종이 지하수를 통하여 이동하는 경로를 중시하여 이를 위주로 17,000여건을 분석중이고[1-4] 일본 로카쇼 처분장에서도 20,000 여건을 분석하고 있다[1-5]. (표 1~3 참조)

표 1. 공간방사선

측 정 항 목		측정빈도	지 점 수		
			구분	아오모리 현	사업자
공간방사선량률	monitoring station	연 속	시설주변지역	5	3
			비교지점(아오모리시)	1	-
	monitoring post	연 속	시설주변지역	6	-
			환경 감시 차량	1회/3개월	23
TLD에 의한 집적선량	3개월 총량	시설주변지역	23	13	
		비교지점(아오모리시)	1	-	

우리나라의 경우 원자력발전소에서 년 2,000여 건을 분석하고 있으나 중저준위 방사성폐기물 처분장 안전성에 관한 높은 관심으로 분석량이 원전에 비해 증가될 것으로 예상된다. 기본적으로 고시에 따라 수행하여야하는 조사항목 및 횟수를 개괄하면 표4와 같다.

표 2. 환경시료중의 방사능 (monitoring station)

시 료 의 종 류		측정빈도	지 점 수							
			아 오 모 리 현				사 업 자			
			전 α β	β 방사 능	요 드 1 131	불 소	전 α β	β 방사 능	요 드 1 131	불 소
시설주변지	대기부유진	1회/주	5	-	-	-	3	-	-	-
	대기(기체상)	연 속	-	5	-	-	-	3	-	-
			-	-	-	1	-	-	-	3
대기	1회/주	-	-	-	-	-	-	3	-	
비교대리시(아오모리시)	대기부유진	1회/주	1	-	-	-	-	-	-	-
	대기(기체상)	연 속	-	1	-	-	-	-	-	-
-			-	-	1	-	-	-	-	

기본적인 사항은 고시에 기술되어 있지만 그 외에 추가로 고려해야할 사항은 아래와 같으며 그 외 인허가 과정에서 정부나 지역주민과의 협의를 거쳐 가감될 수 있다고 본다.

- 주민 피폭 경로
- 결정 그룹 및 예상 피폭량
- 주요 피폭 기여 핵종

이 외에 외국의 경우도 마찬가지이지만 정부에서도 별도로 중저준위 처분장운영에 따른 환경 영향을 감시할 것이고 분석 신뢰를 확보하기 위한 외부기관과의 교차분석도 시행하는 것이 바람직하며 조사시에 주민환경감시기구도 참여시키는 것이 바람직할 것이다. 또한 측정의 불확도를 줄이고 신뢰도를 높이기 위해서 국가/국제 공인시험 기관 추진 등을 병행하는 것이 바람직할 것이다.

3. 결 론

2008년 목표로 건설을 추진하고 있는 중저준위 방사성폐기물 처분장의 환경 조사량은 외국의 사례에 비추어 볼 때 원자력발전소에 비하여 다소 증가할 것으로 예상되며 우리나라 원자력법에 따라 조사항목과 주기를 결정하여 그 결과를 정부에 보고하는 체계가 잘 수립되어 있어 이에 따라 시행하면 무리가 없을 것으로 예상되고 처분 지역의 특성에 맞도록 조사 항목 및 지점을 조정하여 수행하여야 할 것으로 생각된다. 또한 주민에게 신뢰감을 줄 수 있는 다각적인 방법도 병행하여야 할 것으로 판단된다.

표 4. 환경방사선/능 조사 항목

구분	조 사 항 목		조사주기	
	환경매체	감시핵종	채취빈도	분석빈도
방사선	환경방사선	공간감마선량률	연속감시	월1회
		집적선량(TLD)		분기1회
육상시료	공 기	전베타, ¹⁴ C, ¹³¹ I, U, 감마동위원소	연속채취	월1회
	공기중 수분	³ H		월2회
	식수 / 지하수	³ H, U, 감마동위원소	분기1회	분기1회
	빗물 / 지표수	전베타, ³ H, U, 감마동위원소	월1회	월1회
	표층 토양	⁹⁰ Sr, Pu, U, 감마동위원소	년2회	년2회
	하천토양	U, 감마동위원소	분기1회	분기1회
	농산물	³ H, ¹⁴ C, ⁹⁰ Sr, U, 감마동위원소	수확기	년2회
	육 류	¹⁴ C, 감마동위원소	년2회	년2회
	우 유	³ H, ⁹⁰ Sr, ¹²⁹ I, ¹³¹ I, 감마동위원소	월1회	월1회
				¹⁴ C
지표 생물	⁹⁰ Sr, 감마동위원소	년2회	년2회	
해양시료	해 수	전베타, ³ H	주1회	월1회
		⁹⁰ Sr, Pu, 감마동위원소		분기1회
	해저퇴적물	⁹⁰ Sr, Pu, 감마동위원소	년2회	년2회
	어·패류	⁹⁰ Sr, Pu, 감마동위원소	년2회	년2회
해조류	⁹⁰ Sr, ⁹⁹ Tc, ¹²⁹ I, ¹³¹ I, 감마동위원소	년2회	년2회	

참 고 문 헌

1. 원자력법
2. 과학기술부 고시 제2001-24호 “원자력이용시설 방사선 환경영향평가서 작성 등에 관한 규정
3. 과학기술부 고시 제2001-25호 “원자력이용시설 주변의 방사선환경조사 및 방사선 환경영향평가에 관한 규정”
4. Centre de l’Aube facility 2000 Report
5. 일본 원자력연료 주기 시설 환경방사선 등 조사 보고서 (2002)

황사빗물의 영향에 의한 방사성 폐기물
시멘트 고화체의 침출특성 분석

Leaching Characteristic Analysis of Cement Solidified Radioactive Waste
Attached by Yellow Sand Rain

김혜진, 이수홍, 황주호
경희대학교
이재민
고려공업검사(주)

요 약

본 논문에서는 황사빗물이 중·저준위 방사성 폐기물 시멘트 고화체에 미치는 영향을 알아보았다. 실험은 ANS 16.1 실험법을 채택하였다. Co 핵종을 포함한 시멘트 고화체를 제작한 후, 대기 중 황사성분의 질량농도를 이용해 침출수의 부피, 이온 및 금속의 농도 등을 결정한다. 실험을 위해 대기 중 황사 부하량이나 강수에 포함되는 황사성분의 양, 처분장의 면적 등은 적합한 가정을 통해 결정하였다. 본 논문에서는 황사의 특성에 대해 간략히 소개하고 침출 실험의 준비과정으로 실험 조건을 결정한 후에, 90일간의 침출실험을 통해 나온 결과로 황사빗물에 의한 시멘트 고화체의 영향을 평가·분석하였다.

Abstract

With a recent public concern rising on the radioactive waste, it is disclosed that the problem is more serious than expected. This research has been conducted to find effects of yellow sandy rainwaters on the solidified cement of mid-and-low level radioactive waste. The ANS 16.1 standard test method was chosen for this leaching experiment.

Make a cement solidified radioactive waste that contains Co nuclide, and fabricate it for over 28 days. Then, decide on the volume of leaching water and the concentration of ion and metal in leachate from the mass concentration of yellow sands in atmosphere.

In this paper, we have taken a short look at characteristics of yellow sand. Before going into the leaching experiment, we decided experimental conditions first. Then, it was evaluated and analyzed how sandy rainfalls have impact on the cement solidified radioactive waste based on data from 90 days of leaching experiment.

I. 서 론

2001년 겨울에 발생한 황사현상은 동해안을 제외한 전국 대부분 지역에서 진행되어 더 이상 황사가 봄철의 문제만이 아니라는 것을 시사했다. 또한 최근 몇 년간 황사 발생일수와 먼지 농도를

조사한 결과 그 수치가 점점 증가하고 있어 황사가 심각한 상황에 이르렀고, 앞으로 그 정도가 더 심해질 것이라고 짐작할 수 있다.

특히 매년 7~8%의 빠른 경제성장률을 보이고 있는 중국의 공업화로 인해 발생한 여러 중금속들과 이온들이 황사에 포함되어 우리나라의 산업·공업적 측면에서 볼 때 심각한 피해를 낳고 있다. 특히 SO_4^{2-} , Cl^- , Mg^{2+} , NO_3^- , Na^+ , Ca^{2+} 등의 이온이 시멘트의 건전성에 영향을 미쳐 건축구조물 등의 파손에 주범이 되고 있다.^[1]

한편 원자력 발전소 내 임시저장소에 저장되어 있는 중·저준위 폐기물 처분시설 및 고화체의 상당량이 시멘트로 이루어져 있다. 황사가 시멘트에 악영향을 미친다면 시멘트 고화체의 내구성에도 어느 정도 심각한 영향을 미칠 가능성도 있다는 점을 짐작할 수 있다. 특히 황사가 섞인 빗물에 의해 침수·침출 현상이 가속되며 시멘트 구조물의 내구성의 저하가 심화된다면 이는 폐기물 내에 있는 방사성 물질의 누출과 직접적으로 관련되고 이는 매우 심각한 사건이 아닐 수 없다. 더구나 최근 방사성 폐기물 처분장의 건설에 대해 사회적으로 많은 논란이 일고 있어 황사가 미치는 시멘트 내구성의 영향에 대한 연구의 필요성이 시급하다고 하겠다.

본 연구는 황사의 특성에 관한 조사를 통하여 시멘트의 내구성에 영향을 미치는 황사의 이온 및 중금속 성분을 토대로 한 모의 황사비를 제작, 이를 이용해 모의 시멘트 고화체의 침수 및 침출실험을 통해 황사빗물에 의한 방사성 폐기물 시멘트 고화체의 침출특성 분석에 그 목적을 둔다.

II. 본 론

1. 우리나라의 황사 현상

황사는 노란 빛깔의 모래 또는 중국 북부나 몽골 지방의 황토가 바람에 날려 하늘에 누렇게 끼는 현상을 말한다.^[7]

최근 들어 황사 발생일수가 점차 늘어나고 그에 따른 피해도 급증하고 있어 황사에 대한 관심이 증가하고 있다. 우리나라 10개 관측소 중 가장 황사 발생일수가 많았던 서울시 잠실에서 2002년 3, 4월 황사 발생일에 측정된 황사 주요성분의 총 질량농도를 표 1으로 나타내었다. 여기에서는 주로 시멘트의 건전성에 영향을 줄 수 있는 성분들을 나열했으며, 건전성에 영향을 미치나 너무 그 수치가 적은 성분들은 제외하였다. 또한 평소의 대기에도 황사성분이 존재함을 감안할 때 황사 발생일의 총 질량농도는 이보다 더 큰 수치임을 알 수 있으나 황사지칭 먼지량이 $150 \mu g/m^3$ 이상인 것을 감안, 황사 발생일만을 고려하여 계산된 수치임을 밝힌다.

표1. 2002년 3,4월 측정된 황사 주요성분의 Total 질량농도^[6]

이온	단위 [$\mu g/m^3$]					
	SO_4^{2-}	NO_3^-	Cl^-	Mg^{2+}	Ca^{2+}	Na^+
	131.79	81.46	37.36	4.33	33.27	32.9
농도비	1	0.62	0.28	0.03	0.25	0.25

시멘트 고화체 내부에는 미세 기공(micropore) 들이 존재한다. 이 미세 기공으로 황사성분을 포함한 빗물이 스며든다고 가정할 때 황사의 성분 중 SO_4^{2-} , Cl^- , Mg^{2+} , CO_3^{2-} , Na^+ 등과 시멘트 구성성분인 Ca^{2+} 와 반응하여 결정화가 이루어진다. 이 때에 결정의 크기가 미세기공의 크기보다 커지면 시멘트 고화체 내부에 고압이 걸리게 되어 결국 시멘트 고화체의 균열을 초래한다.^[4]

본 연구는 황사의 주요이온이 시멘트의 침출현상에 미치는 영향의 유무를 분석하기 위한 것이므로 다음과 같은 보수적인 가정을 설정하였다. 황사의 영향에 의한 시멘트 고화체의 침출 특성을 알아보기 위한 실험이므로 지난 35년 간 황사 발생일수가 가장 많았던 서울시를 지역으로 선정한

다. 황사의 영향에 의한 시멘트 고화체의 침출특성을 알아보기 위한 실험이므로 지난 35년 간 황사 발생일수가 가장 많았던 서울시를 지역으로 선정한다. 황사빗물이 지하수와 섞였을 시에 농도 변화를 무시하기 위해 황사빗물의 농도는 지하수의 농도와 같다고 가정한다. 대기 중에 부유해 있는 황사 성분이 모두 강수에 포함된다고 가정하고 황사 성분 중 표 1에서 지정한 이온들만 시멘트의 내구성에 영향을 준다고 가정한다. 지하수와 토양의 이동특성은 고려하지 않고, 모의 황사 빗물은 모두 직접 고화체와 접촉한다고 가정한다.

3. 침출 실험법^[1]

이 실험에서는 중·저준위 폐기물 고화체의 방사성 핵종에 대한 보전능력을 평가하는 표준이라고 할 수 있는 ANS 16.1 표준 침출 시험법을 이용하였다. 침출수 교환주기는 2h, 7h, 1d, 2d, 3d, 4d, 5d, 19d, 47d, 90d이다. 미국 NRC에서는 폐기물 내에 포함된 모든 방사성 핵종에 대하여 침출 지수가 6보다 커야함을 권고하고 있다.

누적 침출율이 20 % 이하인 실험에서는 다음과 같은 유효확산계수를 적용한다

$$D_e = \pi \left(\frac{a_n / A_0}{t_n - t_{n-1}} \right)^2 \left(\frac{V}{S} \right)^2 T$$

여기서 a_n = 침출 간격 n 동안 유출된 방사성 핵종의 방사능

A_0 = 침출시험 초기에 시편에 있는 방사성 핵종의 총 방사능

S = 시편의 노출 표면적, cm^2

V = 시편의 부피, cm^3

t_n = 침출수의 교환주기, d

$T = \left[\frac{(t_n^{1/2} + t_{n-1}^{1/2})}{2} \right]^2$, 침출간격의 평균시간, d

D_e = 유효확산계수, cm^2/s

각각의 시편으로부터 유효확산계수가 결정되면 다음과 같이 정의된 침출지수(L_i)가 구해진다.

$$L_i = \frac{1}{10} \sum_{n=1}^{10} [\log(\beta / D_{ei})]_n$$

여기서 β 는 $1cm^2/s$ 로 정의된 상수

D_{ei} 는 시험데이터로부터 계산된 방사성 핵종 i의 유효확산계수이다.

이와 같은 침출지수는 폐기물 고화체의 성능 요건(performance criteria)을 정의하는데 이용된다.

4. 실험방법

모의 시멘트 고화체 제작은 한일 포틀랜드 1종 시멘트와 Co, Cs 분말을 이용하여 제작하였다. 이 때 물과 시멘트의 비는 0.4로써, 시멘트 혼합기를 이용하여 시멘트를 섞은 뒤 지름 5cm, 높이 10cm의 12개의 실린더 모양 파이프에 담아 제작한다. 이 때 양생기간은 28일 이상으로 한다.

증류수에 SO_4^{2-} , Cl^- , Mg^{2+} , NO_3^- , Ca^{2+} , Na^+ 이온을 넣어 모의 황사빗물을 제조한다. 그 농도는 강수의 부피 186600 ml와 침출수의 부피 1960 ml의 비를 이용해 대기 중의 이온 및 금속농도를 침출수에 포함할 농도로 계산하였다. 그 값은 다음과 같다

이온	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Ca ²⁺	Na ⁺	Mg ²⁺
대기질량농도의 이온% ^[9]	2.39 %	1.48 %	0.67 %	0.60 %	0.60 %	0.07 %
대기에서의 양(g)	4460	2762	1250	1120	1120	131
침출수에서의 양(g)	46.85	29.01	13.13	11.76	11.76	1.37

침출수에 들어갈 이온의 양을 결정하는 부분에서도 대기 중의 황사성분이 빗물에 100% 섞여 들어간다는 보수적 가정을 이용해 가능한 수치의 최대값을 사용하였다.

각각 3개의 시편을 모의 황사 빗물과 증류수에 넣고 90일 동안 정해진 시간에 침출수를 교환해 주면서 침출실험을 한다.

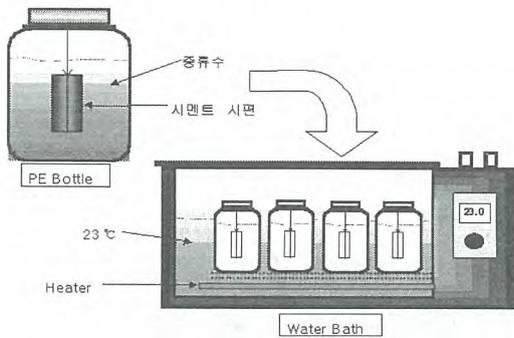


그림 1. 시멘트 시편 침출 시험 장치 개략도

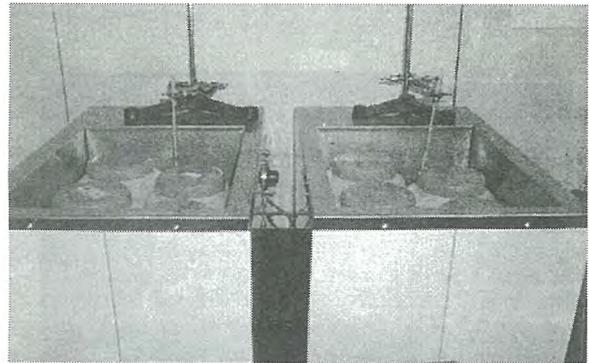


그림 2. 침출실험 수행상황

실험결과 분석은 경희대 기기분석실에 있는 ICPS(Inductive coupled Plasma Spectrometer) 를 이용해 Co의 침출 농도 변화를 확인한다.

5. 실험 결과

(1)고화체의 비교

다음 그림은 실험 전 고화체와 실험 후 고화체를 비교한 것이다. 실험 전 고화체나 증류수에 침수되었던 고화체에 비해 모의 황사빗물에 90일 동안 침수되었던 고화체의 표면이 눈에 띄게 거칠어져 있었다.

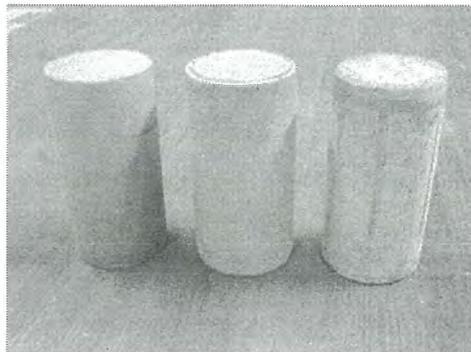


그림 3. 왼쪽부터 실험 전 고화체, 증류수 침수 고화체, 모의 황사빗물 침수 고화체

다음 그림은 Scanning Electron Microscope (주사형 전자현미경)으로 시멘트 고화체를 찍은 사진이다

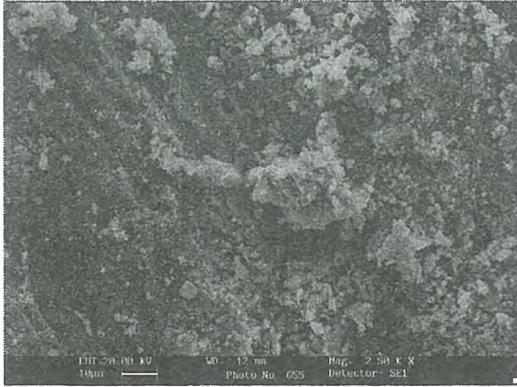


그림 4. 실험 전 고화체의 단면

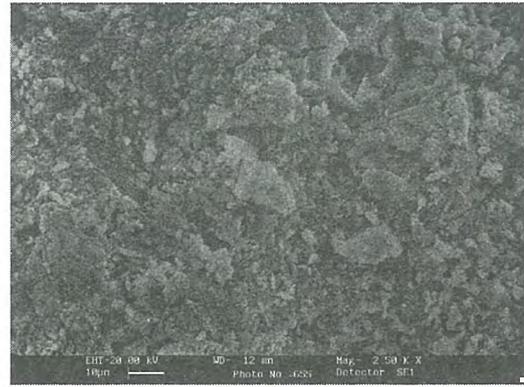


그림 5. 증류수 침수 고화체의 단면

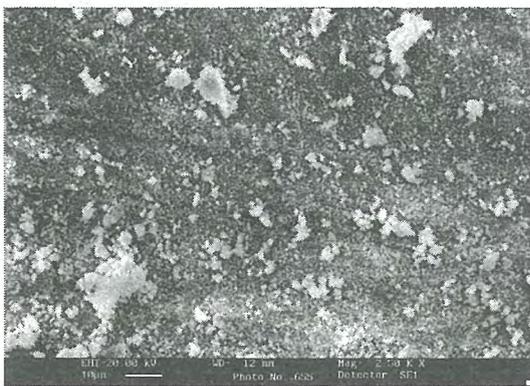


그림 6. 모의황사빗물 침수 고화체의 단면

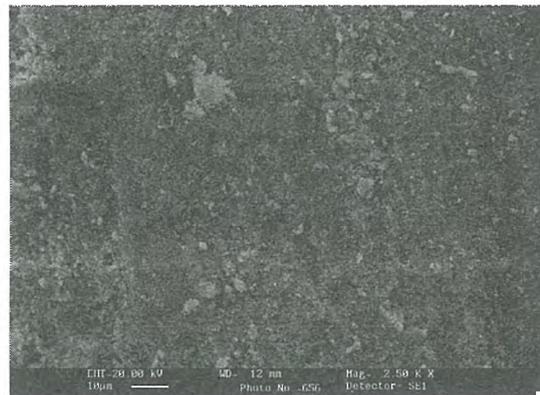


그림 7. 모의황사빗물 침수 고화체의 표면

실험 전이나 증류수 침수 고화체에 비해 모의 황사 빗물 침수 고화체의 단면 사진을 통해 시멘트의 구성성분의 결합이 많이 약해져 있는 것을 볼 수 있으며, 특히 모의황사빗물 침수 고화체의 표면은 그 정도가 심한 것을 볼 수 있다. 이로써 모의 황사 빗물이 시멘트의 내구성에 심각한 영향을 미치는 것을 알 수 있다.

(2) 유효확산계수와 누적침출율

90일간의 침출 실험 결과 Co 핵종의 누적 침출율은 다음과 같은 양상을 보였다.

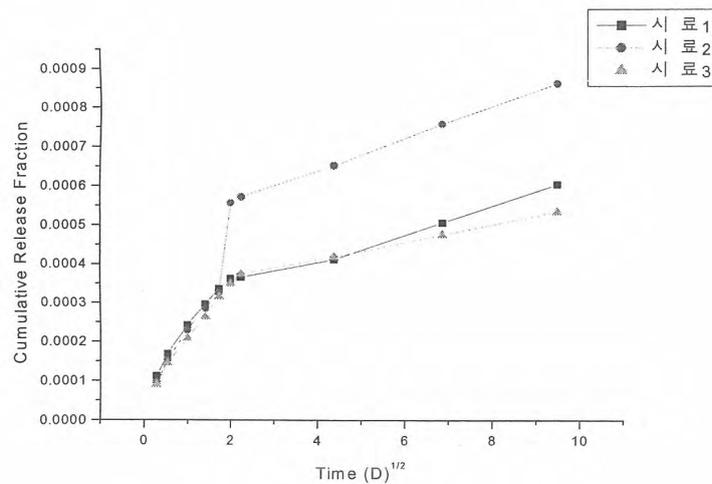


그림 8. Co 핵종의 누적 침출율

그러나, Co 핵종의 침출양상에서 유추할 수 있듯이 5d 이전의 결과는 표면효과가 작용하기 때문에 고화체 표면에서의 초기 방출의 상수항인 'β'값이 추가적으로 필요하다. 결국 최종적으로 반무한 매질에서의 누적침출분율은 다음과 같은 식으로 표현된다.

$$CRF = \frac{S}{V} \times 2 \left(\frac{DT}{\pi} \right) + \beta$$

where RF = Cumulative release fraction

V = Surface area to volume ratio of waste form(cm⁻¹)

D = Effective diffusivity(cm²/s)

t = Time(s)

β = y intercept or surface release

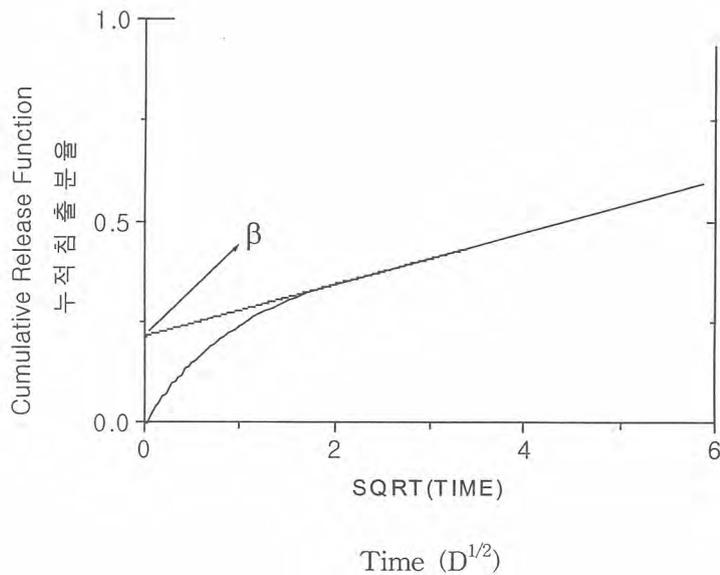


그림9 . 표면효과의 영향을 받은 침출곡선의 일반적인 경향

이처럼 β 값을 이용하여 계산한 평균 D_e 값은 8.12693E-11 cm²/s 이고, Li 값은 10.1944로 나왔다. 이는 기존에 발표되었던 논문 [2]에서 나온 D_e 값보다 크고 Li 값보다 작은 수치이다. 이러한 차이가 나타나는 주요 원인은 고화체의 고화 정도 및 폐기물 조성에 따른 차이로 판단된다. 비록 보수적인 가정을 설정해 제조한 모의 황사빛물을 이용한 침출실험이지만 이는 황사비가 방사성 폐기물 시멘트 고화체에 얼마나 심각한 영향을 미칠 수 있는가를 보여주는 것이라 할 수 있다.

III. 결 론

본 연구는 최근 점점 심각해지고 있는 황사가 강수에 포함되었을 때, 황사빛물이 중·저준위 폐기물 고화체와 접촉 시 어떠한 영향을 미치는가를 알아보기 위한 실험이다. 실험의 주요내용은 시멘트에 Co핵종을 섞어 28일의 양생기간을 거쳐 제작한 모의 시멘트 고화체를 보수적인 가정을 통해 제작한 모의 황사빛물과 증류수에 넣고 각각 침수 및 침출실험을 하였을 때 나타나는 결과를 분석하는 것이다. 실험 전 후의 시멘트 고화체의 단면을 비교해 볼 때, 실험전과 증류수 침수 고화체는 비슷한 양상을 보였으나 모의 황사 빛물 침수 고화체는 그 구조적 결합이 많이 약해져 있

음을 볼 수 있었다. 특히 모의 황사 빗물 침수 고화체의 단면과 표면을 비교해 보면 시멘트 고화체의 표면의 구조가 많이 파괴되어 있음을 알 수 있다. 다음으로 방사성 폐기물 처분 시 처분장의 기능 평가 및 폐기물 고화체의 안정성 평가의 주요 항목인 침출지수와 유효확산계수를 구한다. 모의 황사 빗물에서 Co 핵종의 유효확산계수는 $8.12693E-11 \text{ cm}^2/\text{s}$ 으로 기존에 발표된 실험 결과보다 비슷하거나 대체적으로 더 큰 수치이며, 침출지수는 10.1944으로 기존에 발표된 논문에서의 수치보다 작게 나왔다. 이는 다른 실험에서보다 Co 핵종이 더 빨리 침출된다는 것을 의미한다. 실고화체의 경우 방사성 핵종이 빠져나오는 것이므로 상당히 위험할 것이며 그에 따른 대책이 시급한 상황이다. 비교 대상으로 실험한 증류수에서는 Co 핵종이 검출되지 않았다. 이는 증류수가 시멘트에 별다른 영향을 미치지 않거나, 또는 그 수치가 너무 적어서 ICP-S의 검출한도보다 낮은 것으로 판단된다.

또한, 일반적으로 황(S)에 대한 영향 평가 시 보통 100일에서 300일에 걸친 장기적 실험을 하는데 비해 본 연구에서는 90일의 침수 실험만으로도 상당한 영향이 발견되었다. 또, 황의 농도를 높게 잡아주는 것이 일반적이지만, 침출수내의 황의 농도를 높게 할 경우에 황사에 포함되는 기타 이온에 대해서도 같은 비율을 적용해야 한다. 이 경우 용해도의 문제와, ICP-S로 분석할 때에 S나 Na 이온 농도가 높으면 잘 검출되지 않는다는 점에 착안하여 황의 이온 농도를 적게 잡았음에도 불구하고 De값이 크게 나왔다. 이로 미루어 볼 때 S를 많이 포함하고 있는 황사에 대한 영향 평가가 필요하며, 향후 처분시설 운영 시 운영기간을 고려해야 할 것으로 보인다.

IV. 감사의 글

본 연구는 과학기술부 원자력 인력양성사업 학부생 논문 연구 지원 분야의 일환으로 수행되었습니다.

V.참고문헌

1. 황주호 외 5명, 원전 발생 고화체의 희분식 침출특성 관련 실험(최종보고서), 기초전력공학공동연구소, 2002
2. 박헌휘 외, 고화체 특성 규명 연구, 과학기술처, 1994
3. 정용승 외 4명, 1997~2000년에 관측된 황사의 농도와 부하량 및 시정: 위성과 기상분석, 한국기상학회지, 2000
4. 황주호 외 6명, 중·저준위 방사성폐기물 처분시설 구조재의 장기성능평가(1차)최종보고서, 한국원자력안전기술원, 1997
5. 기상청 홈페이지 www.kma.go.kr
6. 국립 환경연구원 홈페이지 www.nier.go.kr
7. 황사관련 홈페이지 yellow.metri.re.kr

방사성폐기물관련 신문의 위험보도내용 분석

Study on the Risk Communication of Radioactive Waste Material in Newspaper

김수근·안소현·김종순
방사선보건연구원

요 약

방사성폐기물 관리시설에 관한 신문의 관심은 매우 컸으며, 3개월동안에 480건의 기사를 8개 신문에서 실었다. 사설도 38건이었으나 상황과 사안에 따라 모든 신문이 정형화된 내용과 비판을 하였다.

기사는 대부분 정부의 보도 자료에 의존한 하거나, 시위소식 등을 전하는 단순사안이 었고, 심층보도는 이 사업 추진에 가장 큰 장애요소가 되고 있는 지역주민과 시민단체의 반대논리와 여론을 이해할 수 있도록 전달하지 못하였다. 특히 가장 쟁점이 될 수 있는 방사성폐기물의 위험과 안전에 대해서는 68건의 심층 보도 가운데 17건에서만 언급되고 있었는데, 그 내용도 위험성과 안전에 대한 해설이나 분석기사는 아니었다.

결과적으로 신문은 정부와 지역주민간의 갈등을 해결하는 조화의 장을 이끌어 내거나 제공하지 못하였고, 찬성과 반대 측 전문가들에게 공론의 장을 제공하여 사회적 합의를 도출하는 데 기여하지는 못하였다. 오히려 많은 기사 보도의 남발로 방사성폐기물 관리시설에 대한 부정적인 이미지를 부각시키는 영향만 남았다고 판단된다.

서 론

위험에 대한 선택과 관리문제를 두고 합리적인 결정이라는 것이 대단히 어려운 일이지만, 우리가 행하는 어떠한 행동이나 선택이든 위험을 내포하지 않는 것은 없다는 사실을 인정할 때 합리성을 추구하는 것 말고 우리가 할 수 있는 것이 무엇이 있겠는가? 따라서 최대의 위험은 합리성을 포기하는 데에 있다고 생각한다.

방사성폐기물관리시설은 지역주민과 시민단체의 강력한 반발에 부딪쳐 정책집행주체와 힘겨루기로 나타나 갈등이 심각한 상태이다. 이러한 상황에서는 과학적으로 위험을 이해시키고 설득하기도 어렵고, 정치적으로 문제를 해결하기 위한 대안을 찾기도 어렵기 때문에 신문의 역할이 중요하다. 신문은 방사성폐기물 관리시설의 위험과 안전에 대한 것을 주민들에서 알려주는 것 외에도 관련된 문제점 분석과 안전관리 등의 대책을 전달하는 역할을 해야 하며, 입장이 다른 당사자들 간에 막힌 대화의 통로를 열어주어야 한다.

이 연구에서는 방사성폐기물 관리시설의 위험과 안전에 대하여 보도한 신문기사를 분석하고자

한다. 구체적으로 신문에서 방사성폐기물 관리시설의 위험과 안전에 대하여 얼마만큼 다루고 있는지를 알아보는 것이 일차적 목적이다. 다음으로 방사성 폐기물 관리시설에 대하여 신문이 어떤 관점을 가지고 있는지를 알아보고자 한다. 마지막으로 위험과 안전에 대하여 구체적으로 다룬 내용들을 알아보는 것이다.

연구방법 및 내용

1) 연구방법

연구 자료는 한국원자력문화재단에서 월간으로 제공하는 ‘원자력보도동향’ 7월호(통권 제133호)부터 9월호(통권 제135호)까지에 수록된 조선, 중앙, 동아, 한국, 한겨레, 경향, 대한매일, 문화일보 등 8개 신문에 보도된 기사로 하였다.

2) 연구내용

연구내용은 우선 신문의 보도 량과 보도형태를 살펴보고 신문의 사설을 통하여 방사성폐기물에 대한 신문의 관점을 파악하였다. 그리고 신문의 심층보도내용을 통해서 신문에서 다룬 방사성폐기물의 위험과 안전에 대한 내용을 분석하였다.

연구 결과

1) 신문의 보도형태와 량

신문에 보도된 방사성폐기물 관리시설 관련 기사는 다음 [표 1]과 같이 7, 8, 9월에 각각 204건, 141건, 135건 으로 3개월간의 전체 기사건수는 480개이었다.

표 1. 7-9월의 월별 방사성폐기물 관리시설 관련기사

월별	방폐물관련기사(A)	원자력 관련 기사(B)	A/B X 100
7월	204	219	93.3 %
8월	141	158	89.2 %
9월	135	156	86.5 %
합계	480	533	90.1 %

보도형태는 단순사안을 보도한 기사가 283건(59.0%)로 가장 많았고, 다음이 심층보도 68 건(14.2%), 컬럼과 논단이 59건(12.3%), 사설이 38건(7.9%), 독자투고가 32건(6.7%) 이었다(표 2).

표 2. 보도형태

보도형태류	7월	8월	9월	계(%)
단순보도	115	97	71	283 (59.0)
심층보도	30	12	26	68 (14.2)
사 설	20	10	8	38 (7.9)
컬럼/논단	30	10	19	59 (12.3)
독자투고	9	12	11	32 (6.7)

2) 방사성폐기물 관리시설에 대한 신문의 관점

신문의 방사성폐기물 관리시설에 대한 입장을 파악하기 위하여 3개월 동안 8개 신문의 사설을 검토하였다. 방사성폐기물에 관련된 사설은 총 38건이었으며, 부안군이 단독으로 유치 신청한 14일 이후인 16, 17일에 6개 신문에서 유치신청을 환영하면서 그 의의와 부안군의 결단을 높이 사는 내용이었다. 또한 이에 대한 보상으로 지역개발을 전폭적으로 지원할 것을 촉구하고 있었다. 방사성폐기물에 대한 위험성에 대해서는 이미 입증된 사실을 근거로 정보를 투명하게 공개하고 주민들을 설득해야 한다는 내용이었다. 확정발표에 임박하여 반대하는 지역주민과 시민단체들의 과격한 시위가 있고 나서 24, 25일에 7개 신문에서 과격한 시위로 인하여 방폐장 건설이 또 다시 후퇴하는 것을 우려하면서 여론수렴 미비점을 지적하고 정부가 신뢰를 획득할 수 있는 지원계획을 제시하고, 정보를 투명하게 공개하여 주민을 설득할 것을 촉구하는 내용을 실고 있다. 현금보상 문제가 제기된 이후 29, 30일에는 7개 신문에서 현금보상의 문제점을 형평성, 현실성, 명분 부족 등의 이유를 들어서 반대하고 정부의 신중하지 못한 방안에 대하여 비판하면서 실질적인 지원대책을 촉구하고 있다(표 3).

표 3. 7월의 사설제목(20건)

신문	16,17일	24, 25일	28, 29일
조선	扶安郡의 결단을 평가한다.	부안 放廢場, 나라 전체의 문제다	現金 뿌리기는 위도를 망칠 뿐이다
중앙	헛별 보게 된 核폐기물 처리장	代案없는 과격시위 안된다	核폐기장 현금 보상 문제 많다
동아	原電 수거물 '20년 방황' 이제 그만	제2의 '안면도 사태' 피하자	위도 주민 현금보상 최선인가
한국	-	약속 이행으로 위도에 보상하라	국책사업 어떻게 하려고
경향	부안 핵폐기장 성공하려면	위도 核폐기장 이제부터	'위도' 현금보상 재고해야
한겨레	핵폐기장, 지금부터가 중요하다	핵폐기장, '떨어붙이기'는 안된다	-
대한매일	-	부안 핵폐기장 안면도 재판 안돼	'위도 현금보상' 신중해야
문화	부안군민의 결단	-	위도 현금보상의 문제점

8월에는 6개 신문에서 10건의 사설에서 방폐장에 관한 내용을 다루었는데, 주민투표를 통하여 방폐장 유치문제를 해결하자는 방식의 문제점을 3개 신문에서 지적하면서 주민설득을 강조하였고, 1개 신문에서는 주민의 자유토론이 보장되는 것을 전제로 주민투표가 갈등을 해소하는 방안으로서 의미가 있다고 하였다. 고속도로 점거와 등교거부 등 지역주민의 반대시위가 다시 과격해지면서 4개 신문에서 과격시위의 문제점과 주민의 냉정한 판단을 촉구하면서 정부의 적극적인 주민설득을 촉구하였다(표 4).

9월에는 3개 신문에서 8건의 사설로 계속되는 등교거부에 대한 우려와 문제점을 지적하면서 군수 폭행사태까지 몰고 온 정부의 무능과 일관성 업무는 국책사업추진을 비판하고 있다(표 5).

3) 위험과 안전에 대한 보도내용

신문에서 방사성폐기물에 관한 위험과 안전에 대하여 다룬 내용을 파악하기 위하여 심층 보도한 기사들을 검토하였다.

7월에는 8개 신문 모두에서 30건의 관련 심층보도가 있었으며, 방폐장의 위험과 안전에 대하여 다룬 기사는 12건이었고, 8월에는 12건의 심층보도 중 2건의 기사에서 9월에는 26건의 심층보도

중 3건의 기사에서 방폐물의 위험과 안전에 대한 내용을 다루었다.

표 4. 8월의 사설(10건)

일자	제목	신문
01일	이러고도 여당이라 할 수 있나	중 앙
04일	放廢場 주민투표, 혼란만 부른다	조 선
	부안군 주민투표 문제 있다	동 아
	위도, 주민투표는 해결책 아니다	한겨레
	위도 주민투표 해 볼만 하다	대한매일
18일	고속도로 점거시위까지 해서야	동 아
26일	扶安의 혼란과 정부의 無策	조 선
	부안 주민 과격시위 자제해야	중 앙
	등교 거부까지 시켜서야	동 아
	등교거부, 빗나간 시위문화	경 향

표 5. 9월의 사설(8건)

일자	제목	신문
03일	투쟁수단 될 수 없는 등교거부	중 앙
04일	핵폐기장 반대 학생 불모 안돼	대한매일
10일	이 나라에 정부가 있는가	중 앙
	부안 사태, 폭력은 안돼	대한매일
	김군수가 주저앉아 린치당할 때 대통령과 행자부장관은 어디 있었나	조 선
15일	국정난제, 대통령이 앞장서 풀어야	중 앙
17일	대통령이 앞장서 나라 분위기 바꿔야	조 선
22일	국책사업 눈치보기 끝내라	대한매일

심층보도에서 다른 위험과 안전에 관한 내용은 정책의 신뢰와 안전에 관한 기사가 6건, 경제적 손실에 대한 기사 2건, 경제적 이익에 대한 기사 2건, 건강피해에 대한 기사 4건, 절대적 안전이 보장되어야 한다는 기사가 8건, 과학기술적으로 안전의 입증과 관련된 기사가 4건, 위험에 대한 수용을 높이기 위하여 위험에 대한 이식을 바꾸어야 한다는 내용의 기사가 8건 등이었다(표 6).

표 6. 심층보도에 나타난 방사성폐기물의 위험과 안전성

내용	기사건수
정책에 대한 신뢰와 안전	6건
경제적 손실	2건
경제적 도움	2건
건강상의 피해	4건
절대적 안전보장	8건
과학기술적으로 안전입증	4건
위험에 대한 해결(수용)	8건

결 론

17년 동안이나 표류하던 방사성폐기물 관리시설의 부지를 선정하는 국책사업이거 해당지역주민

과 관련단체의 이해관계가 다른 사안이므로 모든 신문에서 많은 관심을 가지고 3개월동안 480건의 많은 기사를 다루었다.

신문의 입장과 관점을 나타내는 사설도 38건이나 되었다. 그러나 모든 신문의 사설이 부지 유치 신청, 과격시위, 현금보상, 등교거부, 주민투표, 군수폭행 등 상황과 사안에 따라 동일한 시기에 동일한 사안에 대하여 거의 동일한 입장과 관점으로 사태를 평가하고 있었다. 즉, 정부에 대해서는 적극적인 설득과 정책의 투명성 및 도덕성을 촉구하고, 지역주민과 단체에 대해서는 과격시위의 자제와 문제점을 비판하면서 국책사업의 당위성을 들어 수용자세가 필요하다는 내용으로 일관하고 있었다.

대부분의 기사는 정부의 보도 자료에 의존한 하거나, 시위소식 등을 전하는 단순기사였으며, 심층보도는 지역주민의 반응을 기사화 하거나 외국의 성공사례 소개, 전문가 인터뷰 기사였으나, 사업 추진에 가장 큰 장애요소가 되고 있는 지역주민과 시민단체에서 왜, 무엇 때문에 반대하는 지에 대해서 이해할 수 있도록 하는 기사는 없었다. 지역주민과 시민단체들의 반대의 목소리와 시위상황을 전달하는 데 그치고 있었다. 무조건 반대는 곤란하지만 반대논리를 펴는 주민과 시민단체 등의 목소리가 어디에서 연유하는지를 알 수 있도록 하는 것이 필요하다. 그러나 모든 신문에서 이러한 여론을 전달하지 못하고 있었다.

특히 가장 쟁점이 될 수 있는 방사성폐기물의 위험과 안전에 대해서는 68건의 심층 보도 가운데 17건에서만 언급되고 있었는데, 그 내용 위험성과 안전에 대한 해설, 분석기사는 없고, 주민의 반응과 전문가의 인터뷰를 통한 내용 전달에 그쳤다.

결과적으로 신문은 정부와 지역주민간의 갈등을 해결하는 사회적 조화의 장을 이끌어 내거나 제공하지 못하였고, 찬성과 반대 측 전문가들에게 공론의 장을 제공하여 사회적 합의를 도출하는데 기여하지는 못하였다. 오히려 많은 기사 보도의 남발로 방사성폐기물 관리시설에 대한 부정적인 이미지를 부각시키는 영향만 남았다고 판단된다.

신문은 단순한 사실을 전달하는 것 뿐 만 아니라 다양한 일차적 정보원들이 제공하는 내용들 중에 사실에 대해서 설명하고 평가하는 메시지를 담아주어야 한다. 즉, 반대주민의 시위에 대한 단순보도가 아니라 그들의 입장과 그것을 둘러싼 논의를 반영해 주어야 하는 것이다. 이것은 방폐장의 필요성에 대한 보도에서도 마찬가지로 당위성보다는 필요성에 대한 논의를 실어주지 못하여 입장이 다른 주체들 간에 대화와 공론의 기회를 갖도록 해야 한다.

참 고 문 헌

- 강남준. 안면도사태 보도 분석. 상호설득적 환경정보교류 부재, 저널리즘 비평 12:13-19, 1994
소영진. 위험소통의 제도화 방안, 사회과학 39(2):27-63, 2000
이정춘. 현대사회의 위험과 위험보도의 쟁점에 대한 고찰. 한국언론학보, 1996,
한국언론학회
한국원자력 문화재단. 원자력보도동향. 통권 제133호-제135호, 2003

폐기물 인증프로그램

Waste Package Quality Certification Program

정의영, 이락희, 고덕준, 김현, 이제창, 임석남
한국수력원자력(주) 원자력환경기술원

요 약

본 논문은 처분시설에 인도될 폐기물이 처분시설의 폐기물인수기준(Site specific **W**aste **A**ceptance **C**riteria)에 적합한 특성을 갖고 있음을 입증하기 위해 폐기물발생자들이 이용하고 있는 방법과 처분시설운영자가 처분대상 폐기물의 처분적합성을 검증하기 위한 방법을 제안함으로써 처분을 고려한 폐기물 처리를 유도하고 궁극적으로 처분시설의 안전성을 확보하기 위함이다.

폐기물의 처분안전성을 위해서 폐기물 발생자는 발생된 폐기물을 처분자의 폐기물인수기준에 맞게 감용, 처리, 포장하여야 하며, 처분자는 체계적인 검사절차에 따라 인수기준의 충족여부를 확인하여야 한다. 폐기물에 대한 폐기물인수기준 충족여부 확인을 위하여 현재 처분시설을 운영하고 있는 국가에서는 폐기물인증프로그램(**W**aste package quality **C**ertification **P**rogram)을 도입하여 폐기물에 대한 처분수용여부를 확인하고 있다.

Abstract

The paper is aiming at presenting the proper treatment method and procedures of ILW waste to both waste generators and acceptor so that the waste characteristics are satisfied with the WAC(Waste Acceptance Criteria) and as a result, the disposal facility would be operating safely.

The ILW generators are responsible for reducing the volume of waste, treating and packaging the waste in order to meet the WAC, and acceptor has an obligation of inspecting the waste in conformity with the acceptance procedure established by regulation.

Recently, a number of countries including France and USA examine the disposal acceptability of ILW waste by the WCP(Waste Package Quality Certification Program).

1. 서 론

처분시설 운영자들은 폐기물(Waste Package)의 처분적합 여부에 대한 판단을 폐기물 발생자의 폐기물인증프로그램(**W**aste package quality **C**ertification **P**rogram : WCP)에 크게 의존하고 있다. 폐기물의 인수기준(Site specific **W**aste **A**ceptance **C**riteria : SWAC) 충족여부 확인을 위한

체계적 검사절차 방안으로 IAEA가 제안한 폐기물인증프로그램을 중심으로 폐기물인수절차를 소개하고자 한다. IAEA가 제안한 폐기물인증프로그램의 주요내용은 폐기물의 처리공정에 대한 설명(분류, 처리 등), 품질보증계획, 폐기물 특성평가 절차/방법 및 결과, 방사능 측정 및 계산방법, 폐기물 포장절차 및 방법, 자료의 기록 및 관리(Waste Tracking System) 등으로 구성된다.¹⁾

2. 폐기물의 검사 및 인수절차

폐기물 발생자는 발생된 폐기물이 처분부지의 특성을 고려하여 처분사업자가 마련한 폐기물 인수기준(SWAC)에 충족되도록 처리 및 포장될 것임을 보여주는 문서(Certification Program)를 작성하여 처리 및 포장작업 전에 폐기물 처분자에게 제출하여야 한다.

폐기물 처분자는 제출된 문서(Certification Program)를 검토하고 승인 여부를 결정하며, 폐기물 발생자는 승인된 문서의 절차에 따라 폐기물을 처리하고 포장을 하여야 한다. 폐기물 처분자는 절차의 충실한 이행 여부를 확인하기 위한 검사 및 QA감사를 사전에 마련된 계획에 따라 폐기물 발생부지에서 실시한다. 검사결과 만족되면 처분부지로의 폐기물 운반이 승인되고 처분부지에 도착된 폐기물에 대해서는 외관검사 및 몇몇 항목에 대해 비파괴 검사를 수행한 후 처분을 실시한다.

3. 폐기물인수기준 내용

폐기물의 처분 적합성을 입증하기 위한 폐기물이 갖추어야 할 화학적, 물리적, 생물학적, 방사학적 요건인 폐기물인수기준은 다음과 같은 내용으로 구성되어 있다.

가. General WAC

- 처분안전성 확보를 위해 규제기관이 마련하는 일반적, 개괄적, 비계량적 지침
- 주요내용
 - 폐기물은 고체 및 비분산성 형태이어야 함
 - 폐기물은 고화체가 함유하고 있는 핵종의 침출이 적절히 제한되어야 하며, 포장용기는 적절한 구조적 건전성을 유지할 수 있어야 함
 - 폐기물의 핵종별 농도, 총 방사능량 및 구성물질 등은 처분요건에 부합되어야 함

나. Site Specific WAC

- 처분시설의 설계, 주변환경, 일반대중의 방사선 방호 요건등을 고려한 안전성 평가의 결과에 입각하여 마련된 세부적, 계량적 기준
- 주요내용
 - 수용불가 폐기물의 종류
 - 방사능 제한치
 - 폐기물 포장물의 무게, 압축강도
 - 포장용기의 강도 등

4. 폐기물인증프로그램

폐기물인증프로그램의 목적은 폐기물인수기준에 부합하는 폐기물을 만들기 위해 폐기물 발생자가 채택할 폐기물 처리공정, 절차, 방법 및 품질보증 등에 관한 모든 계획을 폐기물 처분자에게

제시함으로써 폐기물의 처분 적합성을 사전에 인정받기 위한 프로그램을 말하며 주요내용은 다음과 같다.

○ 주요내용

- 폐기물의 발생, 처리, 포장관련 업무수행자의 역할과 임무를 포함한 수행조직
- 폐기물의 발생부터 포장까지의 일련의 처리공정에 대한 개괄
- 품질보증 계획
- 폐기물 특성평가 절차, 방법 및 결과
- 폐기물 포장 절차 및 방법
- 자료의 기록 및 관리

5. 검사 및 QA감사

폐기물 처분자는 폐기물인증프로그램 절차의 충실한 이행 여부를 확인하기 위하여 검사 및 QA 감사를 사전에 마련된 계획에 따라 폐기물 발생부지, 처분부지에서 실시한다. 이때 시행되는 검사 및 QA감사의 내용은 다음과 같다.

○ 폐기물 발생부지에서의 검사 및 QA감사

- 문서검토(Document Review) : 폐기물의 발생에서 포장까지의 자료를 수록한 문서
- 직접검사(Direct Inspection) : 폐기물의 특성 및 방사능, 처리공정 및 포장물 검사 등

○ 처분부지에서의 검사

- 처분부지로 운반된 폐기물 포장물이 인수기준에 충족됨을 확인함과 아울러 규제기관 및 일반국민에 대해 이를 직접 확인할 수 있는 기회를 제공하기 위해 실시
- 검사내용
 - 문서검토 : 무게, 방사능 제한치, 표면선량율, 표면오염도, 용기형태, 운반번호 등
 - 육안검사 : 포장물의 외부상태, 표지상태 등
 - 측정검사 : 무게, 표면선량율, 표면오염도, 폐기물의 물리적 형태, 유리수 존재 여부등

6. 외국의 현황

가. 프랑스

프랑스의 경우, 폐기물 처분자인 ANDRA는 규제기관의 Fundamental Safety Rule(RFS)에 근거하여 폐기물인수기준(Site Specific WAC)을 작성하고, 폐기물 발생자는 폐기물의 처리 및 포장작업에 앞서 처리공정, 작업수행, 품질보증(QA)계획 등의 내용이 포함된 폐기물인수서류(Waste Acceptance File)를 사전에 처분자에게 제출하여 폐기물이 처분시설의 폐기물인수기준에 적합한 특성을 갖고 있음을 입증한다. 폐기물 인수서류(WAF)의 내용은 다음과 같다.²⁾

○ 폐기물 포장물 처리공정 설명

- 고화 및 포장 방법/시설 설명
- 연간 처리량 및 방사능 준위 등

○ 폐기물 포장물의 특성평가 자료

- 특성평가의 목적
 - 폐기물 포장물이 규제기준 및 기술사양에 부합함을 입증
 - 실험실 시험자료의 검증

- 품질평가기준 한계치 검증
 - 특성평가 프로그램 설정(시험절차서 제안)
 - 특성평가 수행결과
- 핵종농도 결정방법 및 측정법 설명
 - 사용된 측정방법의 설명 및 선택이유
 - 측정하기 어려운 방사성핵종에 대한 방사능농도 측정
 - 폐기물 포장물의 최종 방사능 농도 계산방법
- 품질보증(QA)계획
 - ISO 10005에 부합되도록 작성

나. 영국

영국의 경우, 폐기물 처분자인 BNFL은 규제기관인 환경청(Environment Agency)이 마련한 「Guidance on Requirements for Authorization of Disposal Facilities on Land for Low and Intermediate Level Radioactive Wastes」에 의거하여 폐기물 인수기준을 작성하며, 인수절차는 인수기준(Specification), 품질보증(Qualification), 확인/검증(Verification)의 3단계로 구성된다. 폐기물 발생자는 BNFL의 인수기준(Conditions for Acceptance by BNFL of Radioactive Wastes for Disposal at Drigg)을 만족시키는 폐기물만을 인도해야 하며, 인수기준 내용은 다음과 같다.³⁾

- 방사능 제한치
- 핵분열성 물질의 함유량 제한치
- 폐기물 고화처리 요건
- 폐기물 포장요건
- 품질보증(QA)요건 등

BNFL에 인도되는 폐기물은 BNFL의 사전승인을 얻은 발생자 품질보증프로그램하에서 처리된 것이어야 한다. 폐기물 발생자는 승인된 품질보증시스템하에서 처리된 폐기물의 물리적, 화학적 및 방사화학적 특성에 대한 자료를 Waste Stream별로 작성한 “Waste Stream Characterization”을 폐기물 인도 이전에 BNFL에 제공해야 하며, BNFL은 이를 검토한 후 처분적합성 여부를 평가한다.

인도되는 폐기물이 인수기준을 충족하고 또한 처분자에 의해 승인된 폐기물 발생자의 품질보증 절차를 충실히 거쳤음을 확인하고 검증하기 위하여 품질감사 및 인수검사를 실시한다.

다. 미국

미국의 경우, 폐기물 처분자는 10 CFR 61(Waste Form, Classification), 10 CFR 20 (Radiation Protection), 10 CFR 71(Packaging and Transportation), 49 CFR(Transportation)등 연방규제법과 지침, 그리고 주(州) 규제법에 근거하여 폐기물 인수기준(Site Specific WAC)을 작성하거나 또는 이러한 규제법에 근거한 인허가 조건 그 자체를 폐기물 인수기준으로 간주한다.

반월의 경우, 자체 인수기준인 “CNSI Disposal Criteria”를 만족시키는 폐기물만을 받아들이고 있고, 나머지 처분장들은 별도의 인수기준 없이 처분시설 인허가 조건의 만족여부만을 확인한다. 폐기물 발생자는 인도되는 폐기물이 처분자의 폐기물 인수기준 또는 인허가 조건을 만족시키는 것을 사전에 보이기 위한 인증프로그램(Generator Certification Programs)을 수립하고, 그에 따라 폐기물을 처리하고 포장한다. 인증프로그램에는 절차의 이행여부 확인을 위한 폐기물 처분자 및 규제기관의 현장검사 및 감사가 포함된다.

(1) 폐기물 발생자의 인증(Certification)프로그램

폐기물 발생자는 처분자에 의해 승인된 Process Control Program에 의해 폐기물을 처리하고, 샘플링 프로그램에 의한 폐기물의 특성분석을 수행하며 운반 전에 QC에 의한 최종검사를 수행한다. 폐기물 처분자와 규제기관의 폐기물 인증프로그램 내용은 다음과 같다.

(2) 처분사업자의 검증(Verification)프로그램

- 폐기물 발생/처리 현장 검사 및 감사
- 처분부지에서의 검사
 - 운반차량에 대한 방사선 및 오염도 검사
 - 폐기물 포장물의 하역시 문서상의 내용과의 비교검사
 - 표본발취 또는 전수에 의한 단위 포장물 상태 검사
 - 표본발취에 의한 비파괴 검사

(3) 규제기관의 검증(Verification)프로그램

- 폐기물 발생/처리 현장에서의 감사활동(인증프로그램 이행여부 확인 및 서류검사)

7. 결 론

본 논문의 결과가 처분시설로 운반되는 폐기물이 처분시설의 인수기준을 만족시키고 있는지를 검증하는 처분자의 폐기물검증프로그램 개발과 발생된 폐기물이 처분시설의 인수기준에 만족되게 처리 및 포장되었음을 입증하기 위한 발생자의 폐기물입증프로그램 개발에 활용되기를 기대하며, 폐기물 품질의 검증 및 입증을 위한 방법론 개발에 광범위한 연구가 계속적으로 수행되어야 함을 첨언한다.

8. 참고문헌

- (1) DOE, "Method for Verifying Compliance with Low-Level Radioactive Waste Acceptance Criteria", DOE/LLW-85, DOE(1993)
- (2) ANDRA, "Waste Packages, Waste Acceptance Criteria and Approval Process for Waste Packages", Training Course Final Report, Vol. 1, ANDRA(1997)
- (3) 원자력환경기술원, "중.저준위방사성폐기물 천층처분시설 개념설계 종합보고서", 2000-1300-단9, 한국전력공사(2000)

국내 천층처분시설 방사성폐기물 수용요건 및 이행체계 수립

Establishment of Radioactive Waste Acceptance Requirements for Near-Surface Repository

정찬우 · 안상면 · 이윤근 · 석대원 · 박상훈
한국원자력안전기술원

요 약

현행 중·저준위방사성폐기물 인도규정의 개정에 초점을 맞추어 국내 천층처분시설에 대한 폐기물 수용요건의 개발 및 이행 방안을 제시한다. 개정안은 방사성폐기물 세부분류, 표층처분 방사능농도제한, 핵종 inventory 평가 등에 관한 구체적인 기준을 담고 있으며, 그 이행을 위하여 처분 전 폐기물관리, 처분시설 안전성평가, 처분시스템 등과의 합리적인 연계를 모색한다.

Abstract

This paper proposes acceptance requirements and the corresponding implementation strategy for the near-surface repository of low- and intermediate-level radioactive wastes. The proposed requirements include details on waste classification and radionuclide concentration limitation and inventory analysis. The strategy considers a relevant linking between predisposal waste management, disposal safety assessment and the overall disposal system.

1. 서 론

방사성폐기물의 특성은 그 처분시설의 장기적인 안전성을 결정하는 요소 중의 하나로서, 주어진 처분시스템에 대한 '폐기물수용요건(waste acceptance requirements)'으로 적절히 제한될 필요가 있다[1]. 또한 방사성폐기물의 특성에 관한 정보는 해당 처분시설의 안전성평가에 대한 필수입력자료가 되므로 그 안전성평가에 부합하게 정량화 되어야 한다. 현재 국내에는 원자력법 시행규칙 제88조(방사성폐기물의 인도) 및 과학기술부고시 제2001-32호(중·저준위방사성폐기물 인도규정)와 방사선안전관리등의 기술기준에 관한 규칙 제79조(천층처분시설에서의 저장·처리 또는 처분) 등이 이러한 폐기물수용요건의 골격을 이루고 있으나 처분시스템 설계와 처분시설 운영의 관점에서 보다 구체화하는 것이 필요하다.

이 논문은 과학기술부에서 시행하는 원자력중장기계획사업의 일환으로 한국원자력안전기술원(KINS)이 지난 수년간 수행한 폐기물수용요건 연구개발의 결과들[2-7]을 종합한 것으로 의견 수렴을 거냥한다. 먼저, 방사성폐기물 수용요건을 수립하기 위해 고려하여야 할 기본적인 사항들을 살펴보고, 이를 토대로 현행 중·저준위방사성폐기물 인도규정에 대한 개정안을 중심으로 국내 폐기물수용요건 수립 및 이행 방안을 제시한다.

2. 기본적인 고려사항

본 연구에서는 폐기물수용요건과 그 이행방안을 도출함에 있어 다음의 관점들을 고려하였다. 이들은 상호 밀접하게 연관되어 있으므로 통합적인 고찰을 필요로 한다[2,3].

- (1) 처분시스템 설계 기초로서의 역할. 수용요건은 기본적으로 주어진 처분시스템의 특성에 맞게 즉 처분시스템에 고유하게 정해져야 하는 반면, 처분시스템을 설계하기 위해서는 수용할 폐기물에 관한 기본적인 정보가 필요하다. 따라서 폐기물수용요건은 처분시스템의 설계에 필요한 폐기물의 기준 특성들을 우선적으로 제공하여야 한다.
- (2) 다중방호 기능. 처분시설의 안전성은 일반적으로 폐기물 특성뿐만 아니라 공학적 설계 특징, 부지 특성, 처분시설 운영 체계, 폐쇄 및 제도적 관리 등 여러 처분시스템 구성요소들의 통합적인 폐기물 격리성능에 의존한다. 그러나 처분시설의 안전성에 충분한 여유도를 부여한다는 측면에서 안전에 중요한 폐기물 특성들을 적절히 제한하는 것이 바람직하다. 반면에, 다른 처분시스템 구성요소들의 특성을 감안하는 것도 중요하다.
- (3) 폐기물 분류 및 처분방식과의 연계. (1), (2)항과 호응하여, 폐기물 수용요건은 방사성폐기물의 분류 방법 및 종류별 처분방식을 지정하는 역할을 포함할 때 전체적으로 완전하게 된다.
- (4) 안전성평가와 연계. 처분시설의 안전성은 체계적인 안전성평가에 의해 확인된다. 따라서 다른 처분시스템 구성요소들의 경우와 마찬가지로 수용요건은 안전성평가에 필요한 정보들을 제공하는 방식으로 구축되어야 한다.
- (5) 처분 전 폐기물관리와 연계. 합리적인 폐기물수용요건은 폐기물의 발생에서 처리, 저장, 운반 등 처분 이전의 모든 폐기물관리 단계들과 더불어 일관성이 있어야 한다. 근본적으로는 이들 처분 전 단계들에서 폐기물은 궁극적으로 처분(즉 처분시설 수용요건)을 고려하여 관리되어야 한다. 그러나 처분관점의 폐기물특성기준이 명확하지 않은 상태에서 처분 전 관리가 이루어진 경우를 비롯하여 많은 경우에 해당 수용요건은 현실적으로 처분 전 관리를 적절히 반영할 필요가 있다.
- (6) 특성요건과 특성평가 방법의 연계. 안전(성능)목표와 그 평가방법의 관계와 마찬가지로, 하나의 평가시스템이 그 자체로 완전하기 위해서는 성능기준과 그 평가방법이 하나의 세트로 주어져야 한다. 이런 맥락에서, 폐기물특성기준은 그 특성평가방법과 더불어 해당 폐기물수용요건으로 제시될 때 유효하다고 할 수 있다.
- (7) 처분시설 단계별 수립 방안. (1)에서 언급한 것처럼, 수용요건은 기본적으로 주어진 처분시스템에 맞게 정해져야 하는 바, 처분시설의 설계, 건설, 운영 단계를 거치면서 보다 구체적으로 보완되는 것이 자연스럽다. 이것은 안전성평가의 단계별 또는 주기적 갱신과도 연관된다.
- (8) 운영 편의성. 폐기물수용요건은 실질적으로 처분시설 운영자에 의해 집행되므로 운영상의 편의를 감안하는 것이 불가피하다. 따라서 규제요건에는 기본적인 제한사항만을 두고 세부기준은 사업자가 해당 처분시스템의 특성에 맞게 정하여 규제기관의 승인을 받아 이행하는 방식이 효과적이다. 한편, 수용요건은 폐기물의 처분시설 수용성을 입증하기 위한 핵심적인 절차인 폐기물특성조사의 관점에서 최적화되어야 한다.

3. 천층처분시설 폐기물수용요건 구축 방안

앞서 서론에서 언급한 바와 같이, 현행 원자력법령에서 폐기물수용요건과 관련한 규정은 원자력법 시행규칙 제88조(방사성폐기물의 인도) 및 이에 따른 과학기술부고시 제2001-32호(중·저준위 방사성폐기물 인도규정)와 방사선안전관리등의 기술기준에 관한 규칙 제79조(천층처분시설에서의 저장·처리 또는 처분)이다. 명목상으로는, 고시 제2001-32호는 방사성폐기물을 위탁 처분하는 경

우에 그 의뢰자가 처분시설 운영자에게 폐기물을 인도하는 시점에서 지켜야 할 기준이고 방사선 안전관리등의 기술기준에 관한 규칙 제79조가 처분 시점에서 적용할 기준 곧 수용요건이라고 할 수 있으나 이행의 측면에서는 대부분의 수용요건이 폐기물이 처분시설로 반입되는 시점에서 적용되어야 하므로 실질적으로는 둘 다 폐기물수용요건으로 볼 수 있다. 이런 맥락에서, KINS는 후자에 따른 세부기술기준(과학기술부고시)을 2004년까지 개발함에 있어 폐기물특성에 관한 사항들은 전자의 내용을 그대로 인용하는 방식을 고려하고 있다. 이 경우, 폐기물수용요건은 사실상 고시 제2001-32호로 단일화 될 것이므로, 현행 「중·저준위방사성폐기물 인도규정」을 보완하는 것이 현 시점에서 폐기물수용요건을 확립하는 지름길이라 하겠다.

〈표 1〉은 앞서 2절에서 고찰한 기본사항들을 고려하여 도출한 「중·저준위방사성폐기물 인도규정」에 대한 개정안을 요약한다. 개정안의 주요 내용은 다음과 같다.

- (1) 처분방식과 연계한 폐기물 분류 및 방사능농도 처분제한치 설정; 천층처분을 표층처분과 동굴 처분으로 나누어 표층처분에 방사능농도 제한치를 부과하는 방식으로 중·저준위폐기물을 분류하였다. 현재 국내에서 고려하는 표층처분 개념에 대하여 처분시설 폐쇄 후 단계에서 적절한 인간침입 시나리오를 기초로 일반적인(generic) 안전성평가를 통해 주요 핵종별 표층처분 제한치를 결정하였다. 대상 핵종들은 발생량, 반감기, 위해도, 측정 및 평가 등의 관점에서 선정하였으며, 주요 핵종별 농도값은 인간침입과 같은 비정상적인 상황에 대하여 일반적으로 개입이 정당화되는 선량준위의 하한인 10 mSv/yr의 작은 분율(1/10)에 상응하는 주어진 처분시설 내 평균 방사능농도 준위를 기초로 폐기물 포장물 당 예상되는 농도 편차(10배)와 이행 측면의 편의를 고려하여 조정하였다. 주어진 핵종들의 피크가 서로 다른 시점에 나타날 것으로 예상되므로, 이 값들은 분율의 합이 아니라 각각 독립적인 값으로 적용하도록 한다. 이 값들은 해당 평가모델(처분시설 설계, 부지환경 및 주요 시나리오의 기본가정, 선량기준 등)과 더불어 하나의 세트로 실제의 처분시스템에 적용되어야 할 것이다[4].
 - (2) 핵종 규명 요건 신설; 표층처분제한치가 부과되는 핵종들을 포함하여 18개 핵종의 재고량을 포장물(드럼)별로 평가하도록 하였으며, 아울러 재고량 평가방법에 관한 기본지침을 제시하였다.
 - (3) 고화체 특성 요건 보강; 침수시 형체 유지등 고화체의 건전성에 관한 요건을 보강하였다.
 - (4) 특성자료 제시 요건 신설. 안전성평가에 필요한 선원항을 제공하도록 하고, 안전성분석 및 방사선환경영향평가와의 연계 등을 통하여 처분시설 안전성평가와의 연계를 강화하였다.
 - (5) 특성평가 방법을 요건으로 도입; 폐기물의 특성치뿐만 아니라 그 평가방법을 제시하도록 함으로써 특성평가의 유효성을 도모하였다.
 - (6) 운용상의 유연성 부여. 주어진 규정의 테두리 안에서 처분시설 운영자가 처분시스템의 특성을 고려하여 보다 자세한 자체 기준(폐기물인수기준)을 수립하여 적용할 수 있도록 하였다.
- 이러한 보완 방안에 대한 자세한 배경과 근거는 앞서 발표된 자료들에 제시되어 있다[4-7].

4. 폐기물수용요건 이행 방안

위에서 설명한 현행 인도규정의 개정안 즉 폐기물수용요건(안)을 이행하기 위해서는 무엇보다 폐기물 발생자와 처분시설 건설·운영자의 적극적인 준비가 시급하다. 건설·운영자는 폐기물인도규정에 따른 보다 구체적인 폐기물인수기준과 자체검증체계를 수립하여야 하며 발생자는 인도규정 및 건설·운영자의 인수기준을 이행하기 위한 방법과 절차를 갖추어야 한다. 시행착오를 줄이기 위해서는 규제기관, 폐기물 발생자 및 건설·운영자 간에 긴밀한 의견교환이 필요하다.

여기서 특히 건설·운영자의 역할이 중요하다. 건설·운영자는 부지 및 시설의 특성이 구체화되는 시점에서 지하수 유동에 따른 방사성핵종의 이동을 고려하여 해당 부지 및 시설에 고유한 안전성평가를 통해 해당 처분부지 또는 처분고 당 총방사능 제한치를 결정하여야 한다. 이 값은 안전성분석보고서에 제시되어야 하며 운영기술지침서에 포함하여 이행하는 것이 바람직하다. 건설·

운영자는 또한 인도규정의 요건들을 폐기물 유형 또는 고화체 형상별로 구체화, 정량화 하여 인수 기준의 형식으로 절차화하여야 한다. 여기에는 각 특성 항목별 기준치와 평가방법 등이 포함된다. 절차화된 인수기준은 당해 처분시설의 사용전검사 단계에서 규제기관에 의해 최종적으로 검토 및 승인될 것으로 예상되며, 처분시설 운영중에는 처분검사와 정기검사 등을 통해 지속적으로 그 유효성이 확인될 것이다. 인수기준은 처분시설 운영단계에서 운영 경험을 반영하여 지속적으로 보완되어야 할 것이다. 인수기준에 관한 근거는 인도규정 개정안에서는 간접적으로 그리고 2004년도에 개발될 방사선안전관리등의 기술기준에 관한 규칙 제79조에 따른 과학기술부고시에는 구체적으로 마련될 것으로 예상된다.

한편, 폐기물 발생자 및 처분 전 폐기물관리자들은 인도규정 및 인수기준에 부합하도록 기존의 폐기물관리공정을 최적화하여야 한다[2,3]. 즉, 폐기물 처리, 포장, 운반을 처분시설 수용요건의 관점에서 재조명하여 최적의 관리방법과 절차를 수립하는 것이다. 한 예로, 국내 원자력발전소에서 발생하는 대부분의 폐기물 드럼은 운반물의 관점에서 IP형에 해당하는 바, 해당 폐기물의 처리 및 포장 단계에서부터 그 운반과 처분을 함께 고려하는 것이 바람직할 것이다. 수용기준을 만족시키기 위한 이러한 제반 활동에서 핵심은 품질보증이다. 이와 관련하여, 폐기물 발생자 및 처분 전 폐기물관리자들은 처분시설 건설·운영자와 협력하여 폐기물 인수기준에 부합하는 신뢰성 있는 폐기물인증프로그램(waste certification program)을 확립하여 처분 전 폐기물관리 및 특성평가에 적용하는 방안을 체계화할 필요가 있다[8].

5. 결 론

처분시설에 대하여 방사성폐기물 수용요건을 부과하는 목적은 처분시스템 안전성의 한 축을 이루는 폐기물 특성을 분별하여 그 결과적인 안전성을 보다 구체화하기 위함이다. 따라서, 폐기물수용요건을 설정함에 있어서는 처분시설 안전기준 및 안전성평가의 테두리 안에서 다른 처분시스템 구성요소들과 폐기물 특성인자 상호간의 관계를 통합적으로 고려하는 것이 중요하다. 본 고에서 제시한 국내 천층처분시설에 대한 폐기물수용요건 즉 중·저준위방사성폐기물 인도규정의 개정안과 그 이행방안은 이러한 접근방법에 따라 도출되었으며, 국내 고유의 수용요건으로 확립되기까지 관계전문가들의 적극적인 관심과 의견을 간구하는 바이다(e-mail; jcw@kins.re.kr).

참 고 문 헌

- [1] IAEA WS-R-1, Near Surface Disposal of Radioactive Waste (1999).
- [2] 정찬우 외, “중·저준위방사성폐기물처분시설 폐기물처분요건 수립 방안”, KINS/PR-034, 방사선안전평가기술 심포지움 논문집, pp. 211-234, KINS (2002).
- [3] Jeong et al., An integrated strategy towards establishing radioactive waste acceptance requirements for near-surface disposal, AOCRP-1 (2002)
- [4] KINS/HR-495, 천층처분시설 처분제한치 설정을 위한 성능평가방법론 개발, NETEC (2003).
- [5] KINS/HR-494, 방사성폐기물 처분을 위한 핵종재고량 평가방법에 관한 연구, KAIST (2003).
- [6] KINS/HR-493, 방사성폐기물 처분을 위한 고화체 특성평가 방법에 관한 연구, 연세대 (2003).
- [7] 정찬우 외, “천층처분시설 방사성폐기물 수용기준 개발”, 2003 춘계학술발표회 논문집, pp. 238-242, 대한방사선방어학회 (2003).
- [8] 황주호 외, “방사성폐기물 인증프로그램 개발 방향”, KINS/PR-047, 제2회 방사선안전평가기술 심포지움 논문집, pp. 235-241, KINS (2003).

〈표 1〉 중·저준위방사성폐기물 인도규정 개정안 요약

항 목	현 행	개 정 안	비 고
처분시설 운영자 인수기준	언급 없음	적용 근거 마련	구체적인 요건은 방사선안전관리등의 기술기준에 관한 규칙 제79조에 따른 과학기술부고시로 제시
폐기물 분류 및 농도제한	선언적 언급	처분방식과 연계하여 명시 - 지층처분; 모든 중저준위폐기물 수용가능 - 동굴처분; 반감기 20년 이상의 α핵종(U 제외) 농도 4 kBq/g 이하의 중저준위 - 표층처분; 다음 조건 충족하는 중저준위 · 반감기 20년 이상의 α핵종(U 제외) 농도 400 Bq/g 이하 · 열발생률 0.2 kW/m ³ 이하 · 주요핵종 농도 제한(포장물 당, Bq/g); C-14(7.4E6), Co-60(3.7E8), Ni-59(3.7E6), Ni-63(1.1E7), Sr-90(7.4E5), Nb-94(3.7E 3), Tc-99(1.1E3), I-129(3.7E2), Cs-137 (1.1E7), 전α(1.1E4)	부지 또는 처분고 당 총방사능제한치는 운영자가 안전성분석보고서(기술 지침)에 평가 및 제시
핵종 규명	포괄적 언급	- 18개 핵종 지정; H-3, C-14, Ni-59, Co-60, Ni-63, Sr-90, Nb-94, Tc-99, I-129, Cs-135, Cs-137, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Am-241, Cm-242, Cm-244 - 전체 방사능의 95% 이상 규명 - 예상주민선량의 95% 이상 기여분 규명 - 재고량 평가지침 제공	
고화체 특성요건		구조적 건전성 요건 일부 보완 - 처분환경에서 형태를 유지할 수 있는 적절한 기계적 강도와 안정성 요구 - 고건전성용기 사용시 또는 처분방식 하향 적용시 요건 완화	
구조적 특성시험방법	언급 없음	자료 제시를 요구하는 방식으로 간접 규제	
허가신청서류 와 연계	언급 없음	안전성분석보고서, 방사선환경영향평가서 등과 부합하도록 함	
안전성평가와 연계	언급 없음	적용범위 및 제출서류에 안전성평가에 필요한 선원항 자료 제공 요건을 명시	
운반 안정성	포함	제외 (운반 관련 사항은 별도 규정 적용)	

처분환경조건에서 모의 방사성폐기물
붕규산유리고화체의 장기침출률

Long-term leach rates of simulated borosilicate
waste glasses under a repository condition

전관식, 김승수, 최종원
한국원자력연구소

요 약

심부 처분환경조건에서 붕규산유리고화체의 장기침출거동을 규명하기 위하여 3종의 모의붕규산유리고화체에 대한 장기침출실험이 1997년에 착수되었다. 5년간의 침출결과는 붕소가 본 붕규산유리고화체의 장기침출지표물질로 사용될 수 있음을 확인시켜 주었고, 비록 고화체들의 조성은 약간씩 다르지만 초기 1년여 기간동안의 침출률을 제외한 장기침출률은 S/V에도 무관하게 $0.03\text{g}/\text{m}^2\text{-day}$ 에 근접함을 보여주고 있다.

Abstract

To understand the long-term leach behavior of a borosilicate waste glass in a repository, the leaching experiment with three kinds of simulated borosilicate waste glasses has been carried out since the middle of 1997. The five years results indicate that a boron would be applied as an indicator of a long-term leaching of their borosilicate waste glasses and that their long-term leach rates have a tendency to be close to about $0.03\text{g}/\text{m}^2\text{-day}$ even though their compositions and their ratios of the surface area to the volume of leachate are different.

1. 서 론

방사성물질의 누출률은 방사성폐기물의 처분안전성 평가시 선원항 예측에 추가 되는 인자이다. 그러나 이 누출률과 관련된 방사성물질의 침출메카니즘을 규명하는 데는 실제 처분환경을 모사하여야 하고 또한 이러한 환경에서 장기간 실험을 해야 하기 때문에 지금까지 축적된 정보자료가 미미하다. 비록 규모는 작지만, 고준위폐기물의 처분환경을 모사한 조건에서 1997년부터 모의 방사성폐기물 붕규산유리고화체 3종에 대한 침출실험을 지속하고 있다. 본 논문은 현재까지 실측된 누적 침출량과 침출률 및 예상되는 장기침출률에 관하여 기술하고 있다.

2. 실험방법

모의방사성폐기물 붕규산유리고화체 3종을 봉 모양으로 제조한 다음, 원판형 시편($\Phi 18 \times 2.7 \sim 3.6$ mm)과 분말시편으로 만들어 사용하였다(제조방법과 조성은 참고문헌 1 참조). 한편, 침출용액으로 화강암층 지하수를 합성하였는데, K, Ca, Mg, F, SO_4 , Cl, Na, HCO_3 의 농도를 각각 1.8, 14.6, 1.6, 5.6, 12.4, 37.9, 58.2 86.9 mg/ℓ 로 하였으며, pH는 7.8이었다.

침출실험장치는 그림 1과 같이 구성하였다. 이 그림에서 보는 바와 같이, 침출셀 내의 $1.4\text{Mg}/\text{m}^3$ 으로 압축된 벤토나이트 불럭($\Phi 30 \times 16.5$ mm) 중앙에 원판형 시편을 넣고 반대편에 또다른 벤토나이트 불럭을 붙여 시편의 양면이 압축벤토나이트와 직접 접하게 하였다. 그리고 침출셀의 양 끝은 벤토나이트의 누출을 막기 위하여 $10\mu\text{m}$ 다공성 스텐레스 강 필터를 두었다. 침출온도는 80°C 를 유지하였으며, 약 7.5기압의 아르곤기체로 지하수를 밀어 침출셀을 통과하여 일정기간 동안 흘러나온 침출액은 수집하여 분석하였으며, 동 침출셀로부터 해체된 시편은 무게변화를 측정하였다. 한편, 분쇄시편의 경우는 원판형 시편대신 분쇄시편 1.9 g(두께: 약 5 mm)을 넣고, 주기적으로 침출액을 수집하여 분석하였다.

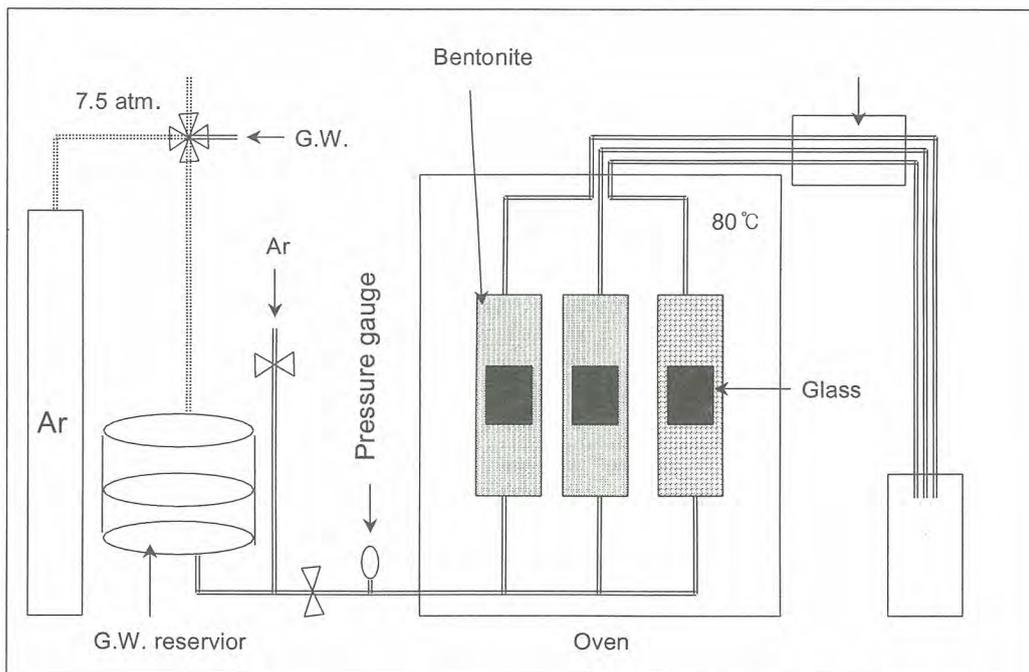


그림 1. 처분환경조건에서 모의붕규산유리고화체의 장기침출시험장치 개략도

3. 결과 및 토의

원판형 K-glass 시편의 침출경향이 그림 2에 도시되어 있다. 여기서 (a)는 벤토나이트 불럭을 통과한 침출액 중 붕소의 농도와 유리고화체 시편의 무게 감소율을 토대로 한 침출률을 나타내고 있으며, (b)는 벤토나이트 불럭을 통과한 침출액에 누적된 붕소의 총량과 유리고화체 시편의 총 무게감량에 의한 누적침출량을 나타내고 있다. 이 그림들에서 보는 바와 같이, 시편의 무게감소 경향이 벤토나이트 불럭을 통과한 붕소의 침출 경향과 일치함을 나타내고 있다. 한편, 몰리브덴과 붕소의 침출률(그림 3)이 서로 일치함을 나타내고 있음은 붕소나 몰리브덴이 지하수에 용해되면

음이온 상태로 존재하기 때문에 벤토나이트 불력에 흡착되지 않고 불력을 통과하여 밖으로 모두 빠져 나오게 된다는 것을 암시해 주고 있다. 이들 결과는 붕소가 본 유리고화체들의 침출 표지물질로 사용될 수 있음을 확인해 주고 있다.

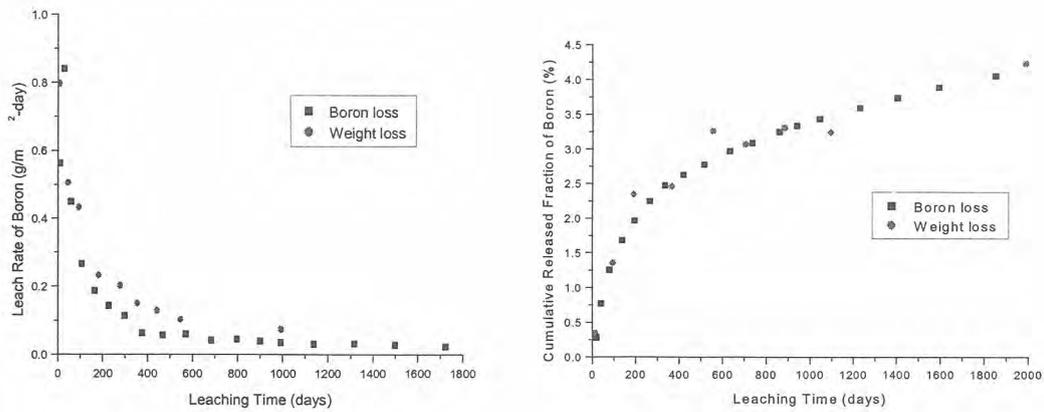


그림 2. 모의유리고화체의 무게감량과 붕소감량 비교

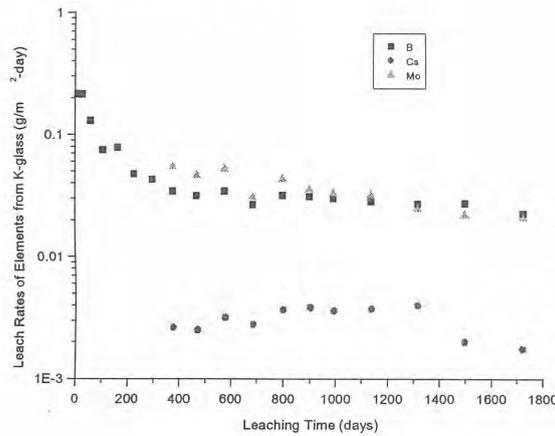


그림 3. 모의유리고화체로부터 주원소별 침출률 비교

시편의 형상별 시간에 따른 붕소의 침출률 변화가 그림 4에 도시되어 있다. 이 그림에서 보는 바와 같이, 초기 1년여 기간까지는 분말상($S/V=2.114m^{-1}$)과 원판형($S/V=0.765m^{-1}$) 시편들의 침출률들은 서로 큰 폭의 차이를 나타내고 있지만, 점차 그 폭이 좁아져서 3년여 기간이 경과된 후부터는 침출률이 서로 일치되는 경향을 나타내고 있다. 한편, 누적침출량은 서로 큰 차이를 나타내고 있는데, 이는 초기 침출률의 차이 때문임을 보여주고 있으면서, 아울러 S/V 가 증가하면 침출량이 감소하는 일반적인 경향을 따르고 있다[2].

또한 서로 조성이 다른 3개 시편에 대한 침출경향에서도 초기 침출률은 서로 달라도 점차 근접해 가는 경향을 나타내고 있다. 따라서 초기 침출률은 고화체의 조성에 크게 좌우되지만, 장기 침출률은 거의 같아지는 경향이 있음을 암시해 주고 있다.

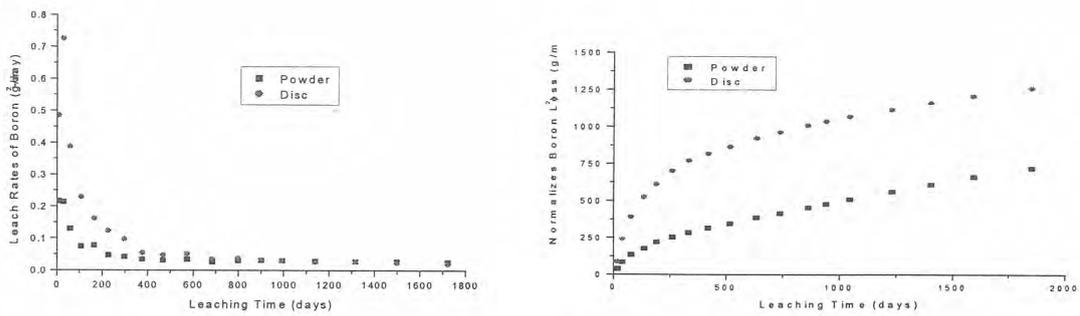


그림 4. 분말상과 원판형 모의유리고화체의 침출성 비교

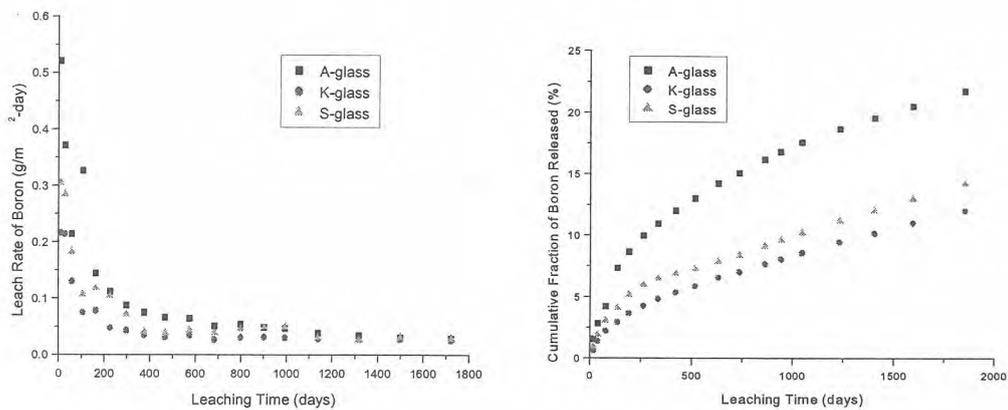


그림 5. 모의유리고화체의 종류별 침출성 비교

4. 결 론

- 가. 붕소는 붕규산유리고화체의 침출지표물질로 사용할 수 있다.
- 나. 붕규산유리고화체의 장기침출률은 S/V에 크게 의존하지 않는다.
- 다. 붕규산유리고화체의 장기침출률은 고화체의 조성에 따라 약간의 차이는 있을 수 있겠지만, 비교적 일치하는 경향을 나타낸다.
- 라. 1851일간의 침출시험결과, 본 붕규산유리고화체들의 장기침출률은 $0.03\text{g/m}^2\text{-day}$ 에 근접하고 있다.

참 고 문 헌

1. K.S. Chun, S.S. Kim and C.H. Kang, J. Nuclear Materials, vol.298, p.150 (2001).
2. I.K. Bjorner et al., "JSS project phase V : Final report on Testing and modelling of the corrosion of simulated nuclear waste glass powders in a waste package environment", SKB-TR-88-02 (1988).

고준위 폐기물 처분용기 주변에서의 열전달 해석

Analysis of Heat Transfer around the High Level Waste Canisters

최희주, 최종원, 이종열

한국원자력연구소

권영주

홍익대학교 기계정보공학과

요 약

고준위 폐기물 처분용기 개념설계의 일부분으로 열전달 해석을 수행하였다. 현재까지 진행된 처분개념인 지하 500 m 암반 내 처분공에 4개의 PWR 사용후 핵연료 다발을 처분용기에 넣어 처분하였을 경우에 대해 온도 분포를 구하였다. 열전달 해석에는 유한요소법을 이용하는 NISA 프로그램을 이용하였다. 처분용기 내 핵연료의 열 발생에 의한 「처분용기 + 벤토나이트 버퍼 + 처분터널 + 암반」 복합시스템의 온도분포를 구하였다. 처분터널 사이의 간격이 40m 처분공 사이의 간격이 6m인 경우 처분용기 외곽 쉘과 완충재 사이의 온도는 처분 후 15~16년에 도달할 때 최대 87.5°C 까지 증가하다가 서서히 감소하였다.

Abstract

The heat transfer analysis was conducted for the conceptual design of high level waste canisters. The temperature distribution due to the heat generation from four PWR spent fuel bundles which were contained in a canister located in a borehole 500 m below the surface was obtained. NISA computer program based upon FEM was used for the numerical solution. The temperature distribution in the composite system of 「canister + buffer + tunnel + rock」 due to heat generation from the spent fuel was obtained. In the case of 40 m tunnel spacing and 6 m borehole spacing the temperature showed the maximum value of 87.5°C around 15~16 years after disposal and decreased.

1. 서 론

원자력발전소로부터 발생하는 사용후 핵연료 내에는 수많은 방사성 핵종들이 존재하고, 이들은 자연 방사성 붕괴를 하며 열을 발생한다. 사용후핵연료 또는 고준위폐기물의 심지층 처분에 있어서 이와 같은 붕괴열은 처분용기, 완충재(buffer) 등의 설계에 영향을 미칠 뿐만 아니라 처분공 및 처분동굴의 간격 등의 결정에 영향을 준다. 일반적으로 사용후 핵연료로부터 발생하는 열량을 추정하기 위해서는 방사성물질의 노내연소를 모사하여 선원항평가 코드로 많이 쓰이는 ORIGIN2 프로그램이 이용되고 있으며[1], 본 연구에서는 97년 국내 원자력 발전소 노형에 따라 발생된 사용후핵연료의 특징과 이의 붕괴열을 추정한 결과를 활용하였다.

지하 수백 미터 암반 내에 처분되는 고준위 폐기물은 처분용기에 넣고 그 주변을 벤토나이트와 같은 완충 재료를 이용하여 지하수와의 차단한다. 완충재로서 가장 널리 이용되는 벤토나이트의 경우 온도가 증가하면 팽윤압, 수리전도도, 크립, 시멘트화가 변하는 것으로 알려져 있다[3]. 따라서 완충재의 온도를 100℃ 이하가 되도록 설계하는 것은 중요하다.

저자들은 국내 원자력발전소로부터 발생하는 고준위 폐기물을 영구처분하기 위한 처분시설을 설계하고 있다. 이를 위하여 국내 지질 조건을 고려한 처분용기, 완충재와 같은 인공방벽에 대한 개념설계를 진행 중이다. 현재까지 진행된 처분시설 개념을 이용하여 고준위 폐기물을 지하 암반 내에 처분하였을 경우 예상되는 온도를 추정하였다.

본 연구의 목적은 설계된 처분용기와 완충재에서의 열전달 해석을 통하여 처분동굴 및 처분공(borehole)의 간격 등이 적합한 지를 검토하는 것이다. 이를 위하여 선정된 처분장의 설계규격은 처분동굴의 간격이 40m, 처분공의 간격이 6m인 경우이다. 이와 같은 규격의 처분장에 대하여 본 연구에서는 처분용기내의 핵연료에서 발생하는 열에 의한 주위 벤토나이트 버퍼, 처분동굴 및 암반에서의 열전달 해석을 수행하여 처분시점부터 약 1,000년 동안 처분장 전체의 온도변화를 예측하였다.

2. 문제의 구성

개념설계에 의하면 국내 고준위 폐기물 처분 개념은 사용후 핵연료 4 다발을 처분용기 1개에 넣고, 처분공들을 일정한 간격으로 지하 500 m의 처분동굴 내에 배열하도록 되어 있다. 또 처분동굴들도 일정한 간격을 유지하고 있다. 처분 시스템 내에서의 열전달을 해석하기 위해서 처분공 및 처분용기도 원통형의 $\frac{1}{4}$ 대칭 형상과 이 $\frac{1}{4}$ 모델 내에 한 개의 핵연료 다발 1개를 설정하였다. 전체 처분장 내의 처분공들은 40m×6m 직사각형 규격의 무한 셀의 평면배열로 근사 시켰다. 각 처분공들은 $\frac{1}{4}$ 대칭 형상이기 때문에 전체 복합구조물에 대한 열전달 해석을 수행하는 대신에 20m×3m의 직사각형 평면 셀을 한 개의 단위 모델로 하는 그림 1과 같은 열전달 모델을 설정하였다.

고준위 폐기물의 열 발생에 의한 처분 시스템에서의 온도 변화를 예측하기 위해서 열전달 해석 모델의 수직 경계는 처분공 위로는 지표면까지 지하로는 처분공에서 지하 500m까지를 설정하였다. 열전달은 보수적으로 지하수의 이동에 의한 대류는 무시하고 전도에 의해서만 일어난다고 가정하였다. 열전달 해석을 위해 각 수직 대칭면에서는 대칭 열 경계 조건(절연 조건)을 설정하였다[4]. 지표면은 항상 일정한 온도(20℃)로 유지된다고 가정하였으며, 지표면 밑 암반의 온도는 지표면에서부터 지하 100m 당 3℃씩 증가한다고 가정하였다.

사용후 핵연료 다발의 열 발생률은 가압경수로(PWR45) 핵연료 다발의 경우 열 발생 후 40년째 되는 해에 처분용기에 밀봉된다고 하여 $Q=14,548.7t^{-0.76204}$ (t=year)Watt/tHM로 가정하였다. 고준위 폐기물이 처분되는 초기에 처분용기는 내부에 밀봉되어 있는 사용 후 핵연료 다발의 열 발생에 의하여 거의 일정한 온도를 유지하고 있고 처분장의 지하 암반도 일정 온도상태를 유지하고 있다. 고준위 폐기물이 처분된 후 시간이 경과에 따른 처분용기를 포함한 복합 구조시스템의 열전달에 의한 온도 변화를 예측하기 위해서는 처분용기의 초기 온도분포를 알아야 한다. 따라서 내부에 밀봉된 사용 후 핵연료의 열 발생에 의한 처분용기의 처분초기 온도분포를 구하여 계산에 이용하였다.

열전달 해석을 위해서 필요한 복합 열전달 구조 모델 시스템을 구성하는 각 물질들의 열적 물질 상수 값들은 표 1과 같다.

표 1. 열전달 해석을 위한 구성 재료들의 물성치

Material Properties	Cast iron (Insert)	Copper (Outer shell)	Compacted bentonite (Buffer)	Mixed bentonite (Backfill)	Granitic rock	Spent fuel
Mass density ρ (kg/m^3)	8,000	8,900	1,800	2,100	2,660	2,000
Thermal conductivity $k(W/m^{\circ}C)$	52	386	1.3	2.6	3.541	0.135
Specific heat C ($J/kg^{\circ}C$)	504	383	1,000	870.5	1,212	2,640

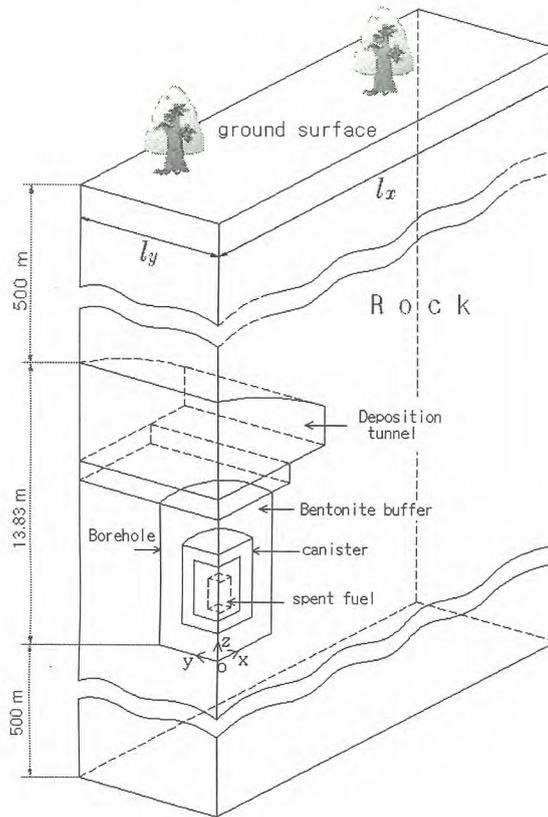


그림 1. 복합구조 열전달 해석을 위한 모델.

3. 유한 요소 해석

그림 1의 복합구조물에 대한 열전달 문제는 해석해를 구하기 어렵다. 수치적 방법을 이용하기 위하여 상용의 개발된 프로그램(NISA)을 이용하였다. NISA 프로그램은 유한 요소법을 이용하고 있으며, 이 프로그램을 이용하여 3차원 열전달 해석을 위해서 8개 절점의 육면체 요소(eight node hexahedron element)를 이용하여 모델을 만들었다. 처분용기와 처분용기 주위의 벤토나이트 버퍼 등은 세밀하게 유한요소 망을 구성하였다. 열전달 해석에 이용된 총 유한요소 개수 및 절점의 개수는 표 2와 같다.

표 2. 유한요소 모델의 총 유한요소와 절점의 개수

Parameter	개수
Element	47,120 EA
Node	52,320 EA

4. 해석결과 및 분석

고준위 폐기물이 처분된 후 처분용기 내의 사용후 핵연료는 서서히 열 발생률이 감소하면서 계속해서 열을 발생한다. 열 발생 시점부터 40년 후 처분용기 내의 초기의 온도 분포는 $t=40$ 년일 때의 열 발생률에 의한 온도분포이다. 이때의 최고 온도는 내부 핵연료다발 내에서 79.41°C 이다. 이 후의 열 발생률은 시간에 따라 서서히 감소하므로 이 열 발생률에 의한 처분용기 및 주위 압반대의 온도 분포는 시간에 따라서 변화하게 된다.

복합 구조 시스템에 대한 과도 열전도해석을 수행한 결과는 그림 2와 그림 3에 표시 되어있다. 그림 2는 처분 후 1년 동안의 온도변화이며, 그림 3은 처분용기가 처분된 후 1년부터 1,000년까지의 온도변화이다. 그림 2와 그림 3을 살펴보면 처분용기 내 핵연료 다발의 온도는 처분 초기 급격히 증가하기 시작하여 처분 후 4~5년 사이에 최고 온도(130.5°C)에 도달한 후 서서히 감소한다. 또한 처분용기 외곽 표면의 온도도 처분 초기 급격히 증가하기 시작하여 처분 후 15~16년 사이에 최고 온도(87.5°C)에 도달한 후 서서히 감소한다. 처분 용기 및 벤토나이트 버퍼와 처분 터널 내 혼합벤토나이트의 온도도 처분 초기 증가했다가 서서히 감소한다. 지표면과 처분공 지하 500m 근처의 온도는 수 백년 동안 거의 일정하게 유지되다가 거의 500년을 기점으로 그 이후부터 약간 증가한다.

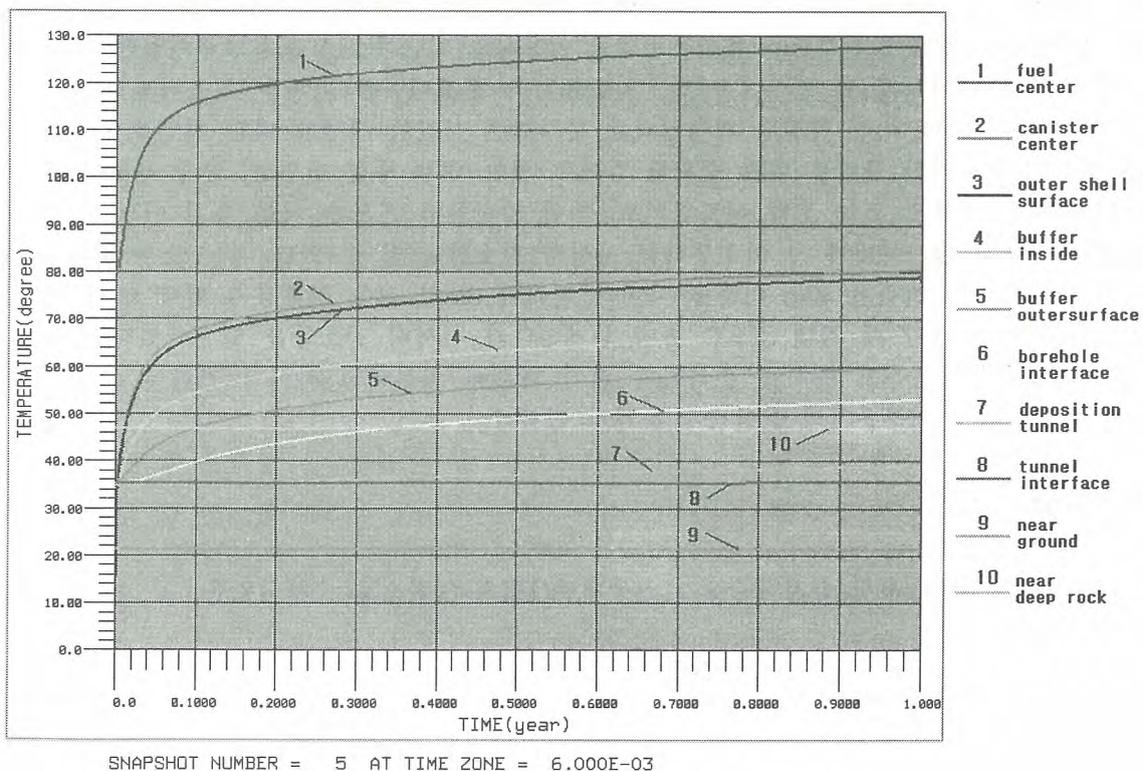


그림 2. 처분 직후 1년 동안의 온도 변화.

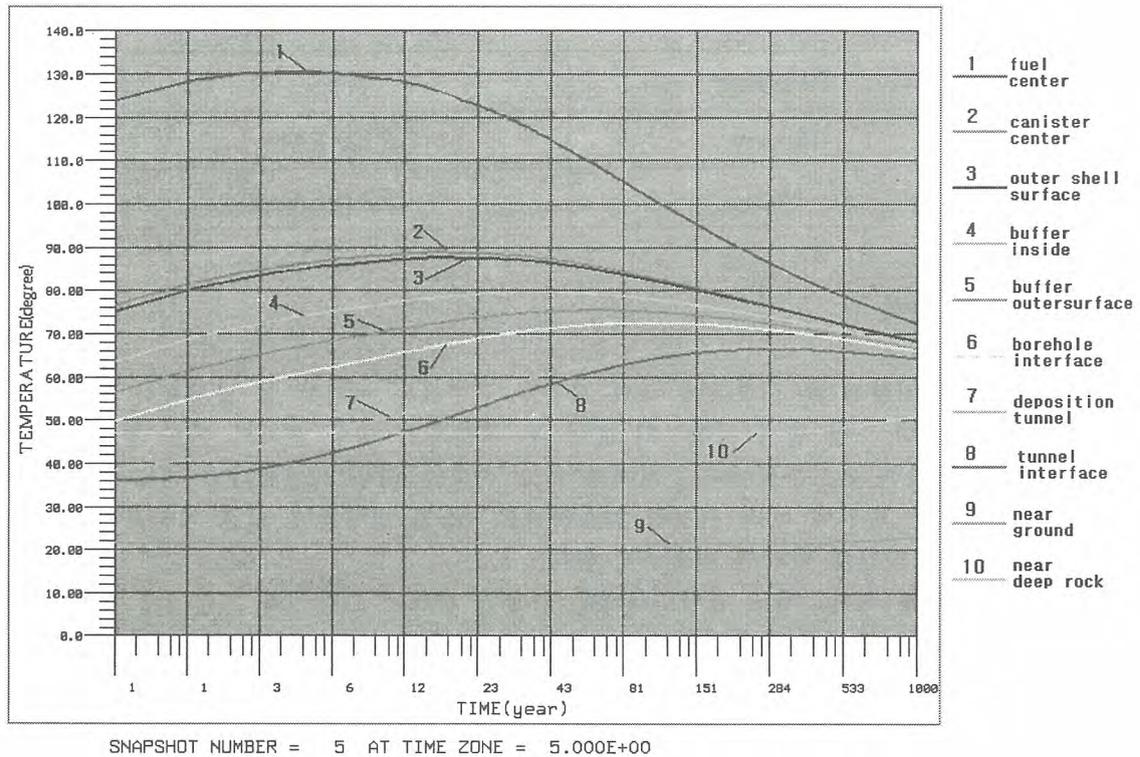


그림 3. 처분 후 1년부터 1,000년 사이의 온도 변화.

5. 결 론

처분용기 개념설계의 일부분으로 지하 500 m 암반 내 처분공에 4개의 PWR 사용후 핵연료 다발을 처분하였을 경우에 대해 현재까지 진행된 처분개념을 적용하여 이에 대한 열전달을 해석하였다. 해석에 이용된 프로그램은 유한요소법을 이용하고 있는 NISA 프로그램이었다.

처분용기 내 핵연료의 열 발생에 의한 「처분용기 + 벤토나이트 버퍼 + 처분터널 + 암반」 복합 시스템의 온도분포에 대한 열전달 해석결과를 분석하면 시간이 지남에 따라 핵연료 다발의 열 발생은 점점 감소하지만 핵연료 다발 주위를 감싸고 있는 내부 주철 삽입물, 압축 벤토나이트 버퍼, 처분터널 내를 채우고 있는 혼합 벤토나이트, 주위 암반들의 온도는 처분 초기 어느 일정한 기간 동안에는 꾸준히 증가하다가 그 이후부터는 서서히 감소함을 알 수 있다.

처분터널 사이의 간격이 40m 처분공 사이의 간격이 6m인 경우 처분용기 외곽 셸 표면의 온도는 15~16년에 도달할 때 최대 87.5°C 까지 증가하다가 서서히 감소함을 알 수 있다. 이는 외곽 셸 표면의 최대 허용온도 93°C를 초과하지 않기 때문에 처분터널 사이의 간격이 40m 처분공의 간격이 6m인 경우 처분용기의 안전성에 문제가 없었다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력증장기 연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

참 고 문 헌

1. JNC, H12 Project to Establish Technical Basis for HLW Disposal in Japan, Japan Nuclear Cycle Development Institute, (1999).

2. 최중원등“Reference Spent Fuel and Its Characteristics for a Deep Geological Repository Concept Development, J. KNS, Vol.31. No.6 (Dec. 1999).
3. Pusch, R., O. Karnland, H. Hoekmark, T. Sanden, and L. Borgesson, Final Report of the Rock Sealing Project-Sealing Properties and Longevity of Smectitic Clay Grouts, Stripa Project Technical Report 91-30 (1001).
4. Thunvik, R. and Carol Braester, Heat Propagation from a Radioactive Waste Repository, SKB 91 Reference Canister, SKB TR 91-01 (1991).

원전수거물 처분장 후보부지 특성평가 방안

Site Characterization for a Low-level Radioactive Waste Repository

김천수, 배대석, 박천수
한국원자력연구소

요 약

지층처분연구를 통한 지구과학분야의 기술적 발전은 천연방벽의 특성을 이해하기 위한 계층방법 및 단계적 부지조사·평가과정을 확립하였으나, 아직도 지하매질의 불균질성과 규모 종속적인 특성 때문에 후보부지특성에 대한 이해는 부족한 상태이다. 부지특성 평가결과의 불확실성으로 인한 시간적·경제적 부담을 줄이기 위해서는 무엇보다도 후보부지를 중심으로 계획된 정확하고 치밀한 부지특성평가계획의 수립과 전반적인 수행과정 및 결과에 대한 품질보증 시스템의 적용이 요구된다. 또한 원전수거물 처분시설에서 요구되는 충분조건과 필요조건으로 구분하여 단계별로 평가하여야 한다.

Abstract

The geoscientific study on geological disposal for radioactive wastes has established the stepwise site characterization program, methods and investigation technology. However the intrinsic properties of geological material such as heterogeneity and scale dependent properties make difficulty on satisfactory understanding of geological conditions. To avoid unnecessary time delay and unexpected extra-cost for site investigation, the accurate and complete site investigation program should be established in a stepwise manner and the QC programs for investigation methods and procedures. Moreover, the technical requirements and preferences for a repository should be distinguished and be assessed at the end of each investigation step.

1. 서 론

방사성폐기물의 관리목적은 폐기물로부터 발생하는 위해로부터 인간과 환경을 보호하는 것이다. 방사성폐기물을 격리하여 보관함으로써 현재뿐만 아니라 미래의 후손에게 책임을 전가하지 않으며, 폐기물처분으로 인하여 후손의 자유를 구속하지 않는 것을 포함한다. 지난 30년 동안 방사성폐기물의 지층처분에 대한 연구는 활발히 진행되어왔으나 기본개념은 변하지 않고 있다. 이와 같은 연구결과, 지층처분은 현재 인정되고 있는 최적의 방사성폐기물 처분방식으로서, 규정대로 설계·건설된 시설은 충분한 안전성이 유지될 수 있으나, 상기술에 대한 공감대가 아직도 일반대

중에게 충분히 이루어지지 않고 있다.

처분장의 안전성은 다중방벽(multi-barrier)에 의한 격납(containment)과 격리(isolation)기능으로 인위적인 행위가 필요 없는 수동적인 안전성(passive safety)을 확보하게 되며, 각 방벽의 독립적 기능(Russian doll type)보다는 역학적, 수리적, 화학적인 상호보완 기능으로 안전성이 유지되는 것이다. 천연방벽(natural barrier/geosphere)이 장기적 안전성을 확보하는데 주요한 기능을 갖게 한다. 일반적인 방사성폐기물처분장의 안전성기능은 다음과 같이 요약된다[1].

- 격납기능 (containment): 폐기물의 보관은 폐기물로부터 위대한 핵종이 누출되지 않도록 설계하는 것을 의미하며, 고준위폐기물인 경우 격납기능(containment)은 1차적으로 폐기물 고화체와 용기로 수백 년에서 수천 년까지 기능을 유지하게 된다.
- 격리기능 (isolation): 처분장의 1차적 안전성기능인 격리기능은 방사성폐기물의 주요 위해요소들을 생태계로부터 격리시키는 것으로 방사능이 대부분 소멸 될 때까지 공학적방벽(engineered barrier)과 천연방벽에 의하여 폐기물을 생태계와 인간 활동으로부터 보호한다.
- 지연기능 (retardation): 지연기능은 처분장의 격리기능의 보완 역할인 처분장의 2차적 안전성기능으로서, 장기간동안 생태계의 핵종이동을 지연시켜 궁극적으로 생태계로 누출되는 핵종의 위해성을 법적규제 기준치 이하로 최소화시키는 것이다.
- 희석과 분산기능 (dilution and dispersal): 폐기물위해성의 희석과 분산은 3차적인 안전성기능으로 고려되었으나 이는 예측하기가 어렵고 또한, 장기안전성개념과 위배되어, 처분안전성평가는 처분장의 안전성기능에서 제외하고 있다. 그러나 안전성기능으로는 고려되지 않지만 부지특성에 따른 희석조건은 안전성에 중요하게 작용하고 있다.

원전수거물(저준위방사성폐기물) 처분장 후보부지에 대한 부지특성평가 (site characterization)의 목적은 처분장의 건설인·허가를 획득하기 위해서 시설의 설계와 함께 건설·운영으로 인한 방사선적·비방사선적 안전성평가 및 환경영향평가의 선행 수행업무에 해당하는 사항이다. 부지특성평가를 수행하기 위한 평가계획에는 조사항목과 방법에 대한 자세한 계획이 먼저 수립되어야 한다.

2. 지질환경자료의 특성

지층처분은 안정된 지질환경을 활용하는 것으로 천연방벽은 처분장 안전성에 근본적으로 기여하게 된다. 그러나 지질환경특성의 시·공간에 따른 변화와 이와 관련된 해석/평가의 불확실성 때문에 지층처분에서 천연방벽의 역할이 축소 평가되고 있다. 지층처분연구를 통한 지구과학분야의 기술적 발전은 천연방벽의 특성을 이해하기 위한 계측방법 및 단계적 부지조사·평가과정을 확립하였으나, 아직도 지하매질의 특성에 대한 이해는 부족한 상태이다. 지하매질특성평가의 당면한 문제점들은 불확실성이 높은 다음과 같은 요소에 기인한다.

- 부지의 장기적인 지질학적 변화특성
- 공간적인 지질학적특성(역학적, 화학적, 수리적)변화
- 규모에 따른 특성의 변화 및 불균질성

이러한 문제점을 감소시킬 수 있는 방안으로 처분부지 조건의 복잡성을 야기하는 요소는 아무 리 처분환경에 도움이 되는 요소라도 불리한 요소로 평가하고 있다. 처분안전성과 관련된 지질환

경자료의 특성은 다음과 같이 요약된다.

- 천연방벽의 기능이 신뢰성 있는 자료에 근거하여 상세하게 기술되어야 한다.
- 안전성평가에 사용되는 인자나 부지특성자료는 직접적으로 계측될 수 없으며, 이들 자료는 지질학적인 관찰, 해석 및 지질구조모델링, 지질구조모델에 근거한 수리학적 자료해석, 수리학적 모델에 기반으로 해석된 지구화학자료에 의하여 도출된다.
- 현장에서 계측된 자료는 부지환경특성모델(site descriptive model)에 의한 평가/재해석 없이 직접적으로 안전성 평가모델에 사용될 수 없다.

원전수거물 처분장의 부지특성평가도 일반적으로 모든 상용프로젝트에서 접근하는 절차가 진행되어야 한다.

첫째, 기존자료 분석과 현안문제점 도출

둘째, 문제점의 범위 및 수행방법(시험·측정) 선정

셋째, 조사 업무의 시행 및 감시관리·감독

넷째, 현안문제의 해결 및 추가조사 여부의 결정

상기와 같은 일련의 업무는 필요시 반복적으로 수행될 것이다. 그러나 재시행으로 인한 시간적·경제적 부담을 줄이기 위해서는 무엇보다도 정확하고 치밀한 부지특성평가계획(site characterization program)의 수립, 전반적인 수행과정 및 결과에 대한 품질보증(quality assurance: QA)시스템의 적용이 반드시 요구된다. 부지특성평가 프로그램은 후보부지를 중심으로 계획된 프로그램이 요구된다.

3. 단계별 부지특성평가

현안문제의 발굴은 “중·저준위방사성폐기물 천층처분시설의 위치에 관한 기술기준(과학기술부 고시 제2002-24호, 2003)[2]”, “사용후핵연료 중간저장시설의 위치기준” (과학기술처고시 제91-8호, 1991)[3], “중·저준위방사성폐기물 부지특성평가보고서 작성 지침(과기처고시 제94-4호, 1994)”[4] 및 “사용후핵연료 중간저장시설의 부지특성보고서 작성지침” (과학기술처고시 제96-12호, 1996)[5]의 내용을 토대로 후보부지를 중심으로 접근하여야 한다. 현안문제의 발굴을 위한 출발은 처분장의 기본기능인 격리효과와 지연효과 평가를 위한 자료도출과 안전한 관리를 위해 해결하여야 할 장기적인 시설의 성능과 안전성 확보 차원에서 규명하는 주제로 구성된다. 이를 위해서 원전수거물 처분시설에서 요구되는 충분조건과 필요조건(requirements and preferences)으로 구분하여 평가(characterization)하여야 한다. 평가 시, 조사될 내용의 구성은 처분방식의 결정과 함께 이를 전제로 제기되는 주요 요소(main issues)를 비롯하여, 세부적인 다양한 현안과제들(sub-issues)이 도출되어야 한다.

수행 방법 및 범위의 선정에 있어서 가장 핵심 요소는 현안문제들의 해결을 위하여 적용되는 방법으로서 현재의 기술수준으로 공인된 방법을 활용하는 것이다. 현재, 지정고시를 위한 2차 지질조사 업무가 계획·발표되어 있고, 후속 업무로 처분시설건설 인·허가 단계를 위한 후보부지특성평가로 이어지는 일련의 기술·행정적인 절차를 감안할 경우, 크게 두 단계로 접근하는 것이 타당하다. 즉, 지정고시단계와 부지특성평가단계로 양분하여 현안문제를 광역적 규모에서 부지규모로, 개략적인 접근에서 단계별로 기술적인 정밀성·정확성의 심도를 증대시켜 나가는 전술이 필요하다. 이를 위하여 선행업무에서 발굴, 또는 새로 제기된 현안문제를 해결하기 위한 단계별 접근을 위해 다양한 분야 및 규모별 부지환경특성모델(site-descriptive model)의 구축이 바람직하다. 부지환경특성모델의 구축과정은 다양한 분야의 종합적인 해석·평가(multidisciplinary

interpretation)에 의해 반복적으로 수정·보완해 나가는 일련의 과정(iterative step)이다. 이러한 접근방법은 현재 지하공간 개발프로젝트에서도 유사한 개념으로 적용·수행되고 있다. Geoscientific model 도출을 위한 구성모델체계는 그림 1과 같다.

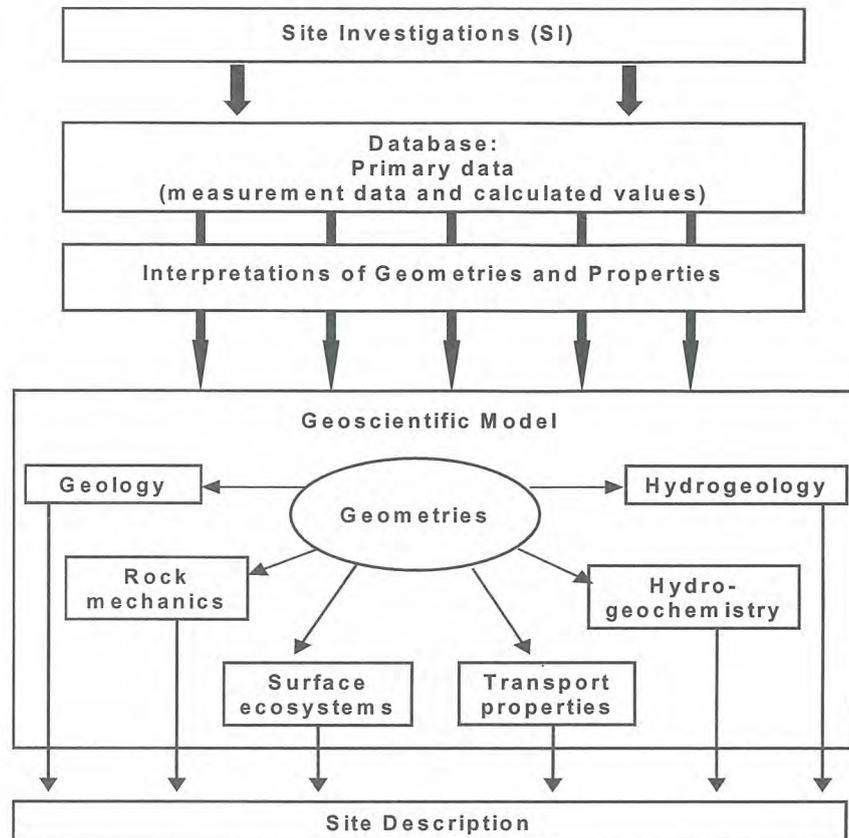


그림 1 Site Descriptive models for a LLW repository[6]

개념모델들을 수정·보완해 나가기 위하여, 지정고시단계와 부지특성평가 단계를 중심으로 업무의 선행·후행 여부를 분류한 후, 부지환경특성모델-v.1 및 v.2 등으로 각각 구분하고 생산 시점은 공정개념에 입각해서 접근하여야 한다(표 1; 그림 2). 근본적으로 본 처분장의 건설사업이 여러 장소에 반복적으로 수행되는 것이 아니기 때문에 이러한 부문별·단계별 개념모델링은 환경보전과 안전성측면에서 원자력산업의 본래 특성인 방어산업개념(defence work)에 근거하여 모든 업무의 진행과정과 결과의 투명성에서 이루어져야 한다. 부지환경특성모델링 업무의 특성을 정리하면 다음과 같다.

- 자연환경 특성의 단순화: 공간적 불균질성 및 이방성, 규모 종속성, 시간적 변화성
- 자연환경 특성의 이해: 개념적 접근 및 다양한 개념모델 설정
- 정량적 정보도출 및 정성적 자료의 적용: 지질환경의 이해도 제고
- 다양한 분야의 자료를 종합 해석 및 평가
- 미확인 또는 확인 불가능한 특성에 대한 외삽·내삽으로 추정
- 시간 종속적인 특성 변화에 대한 예측

표 1 단계별 부지환경특성모델링(site descriptive modeling)

후보부지 특성평가 단계	주요 기본방향	대상범위	부지지질환경특성 모델
사전 후보부지조사	· 타당성검토 및 부지지정 · 기존·문헌·자료 의존, 개략적인 현지조사 병행	· 우선검토대상 부지에 대한 광역적 및 지자체 주변의 환경 특성	· 개략적인 개념모델, 광역규모(v.0).
지정고시 단계	· 개괄적인 조사: 기상, 지표, 및 천부 지하환경 · 정밀부지조사	· 대상지역 및 후보부지 (광역 및 국지규모)	· 부지규모 영역의 선정 · 개념모델 (v.1.1)
	· 지표 및 심부지질환경에 대한 조사	· 우선검토대상 부지역역 (광역 환경)	· 광역 및 국지규모의 예비 개념 모델 (v.1.2) · 후보부지의 예비 지질환경 특성모델
후보부지 특성평가 단계	· 심부지질환경특성 조사 (일부 천부영역 포함)	· 광역 및 부지 환경	· 광역·국지·부지규모의 지질환경모델(v.2.1)
	· 단계별, 보완적 개념의 부지조사 증대 및 평가 (심부영역 중심, 일부 천부 영역 포함)	· 광역 및 부지 환경	· 광역·국지·부지규모의 수정·보완된 지질환경모델 (v.2.2)
	· 부지특성조사 추가 항목 수행 (현안문제 평가·해결 여부에 따라 추가 업무 결정)	· 광역 및 부지 환경	· 광역·국지·부지규모의 최종 부지지질환경특성 모델(v.2.n) 완성

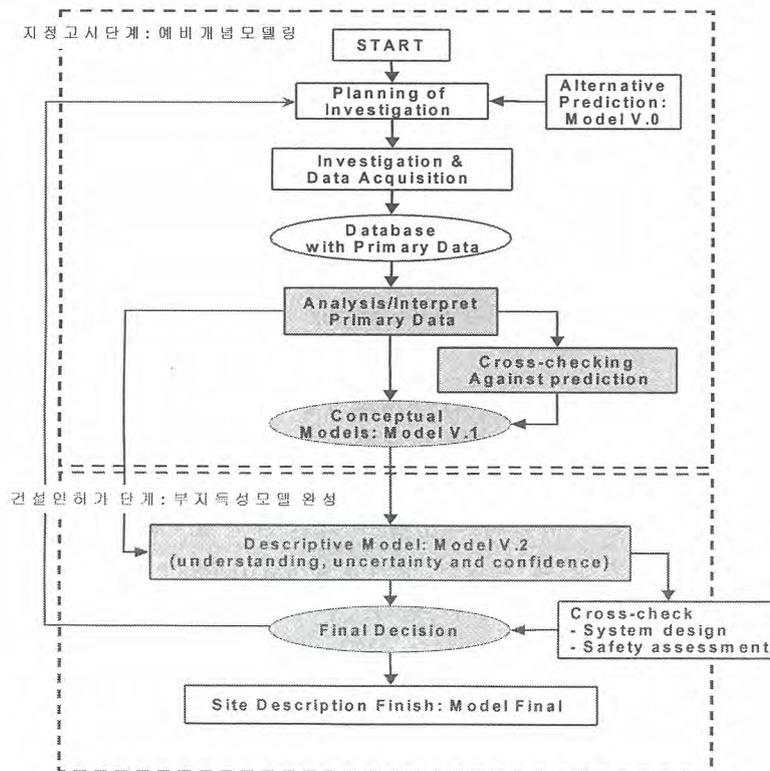


그림 2 Flow diagram of Site Description [6]

4. 처분안전성 평가를 위한 주요부지특성

4.1 투수성구조

천연방벽(geosphere)의 격리기능은 장기적 지질안정성, 처분모암, 지질구조, 역학적특성, 지하수 유동체계, 지하화학적조건 등이 종합적으로 평가되어야하나, 그중 근간을 이루는 것은 처분장에서 생태계에 발달한 투수성구조가 천연방벽의 격리특성을 대표하게 된다. 스웨덴의 지하시험시설에서 관찰된 가상 처분공에서 지표까지의 지하수 유동로는 규모가 다른 투수성구조로 구성된 유동로 개념이 제시되고 있다[7]. 공학적방벽을 통과한 방사성물질은 투수성이 적은 제한된 크기의 투수성구조를 접하게 되며, 이들은 용이한 단열들의 연결망에 의하여 점차 큰 규모의 투수성이 높은 단열체계로 이동하게 된다. 이들의 특성은 다음과 같이 분류된다.

- 소규모 단열: 주로 background fracture로 구성되며, 크기는 수 센티미터에서 수 미터의 범위
- 소규모 단열망내에 발달된 단열군(fracture cluster)
- 터널규모의 투수성구조: 중규모(mesoscopic)단열망, **High Permeable Features**
- 광역규모 단열대: Regional and Local major fracture zones

단열대는 단열의 빈도가 m당 10개 이상의 경우로 SKB [7]는 정의하고 있으며, 시추공간에 단열의 연장성이 확인되면 이를 fracture cluster로 구분하고 있다. 수리적 연결성이 확인되지 않은 단열들은 암반의 background fracture로 분류하며 이의 특성은 통계학적으로 분석되고 있다. 투수성구조의 특성중 하나는 단열의 기하학적 분포와 역학적 특성은 규모에 따라 self-similar하지 않다는 특징이다. 이는 단열들 간에는 유사한점이 있으나 규모에 따라 기하학적으로 상이한점을 갖고 있는 것으로 해석하고 있다. 대부분 큰 규모의 투수성구조는 단층으로 이루어 졌으며, 단층비지(fault gouge)는 흔히 단층을 채우고 있고 주기적으로 지하수의 유동로 역할을 한 것으로 해석하고 있다. 광역규모 단열은 대체적으로 선형이며 수 km이상이 추적된다. 중규모의 단층들은 주단층대와 분기된 단열들로 구성되나, 소규모의 암반단열(background fracture)들은 중규모 단층에서 관찰되는 형태를 전혀 보이지 않는다. 또한 소규모 단열들은 일정한 형태 없이 불규칙하게 구성되어 다소 규칙적인 큰 규모 단열들과 대조를 이루고 있다.

원전수거물을 처분공동(deposition chamber)에 적치하는 경우는 상기 기술된 투수성구조에서 처분공동을 교차하는 중규모의 단열들과 광역규모 단열대가 투수성구조의 주 평가대상이 되며, 처분모암의 투수성은 소규모 암반단열특성으로 정의 된다 (표 2).

표 2. 규모별 단열체계특성 [7]

구분	내 용	비 고
광역 규모 단열대	<ul style="list-style-type: none"> ● Regional lineament, interpreted as a fault or fracture zone. Length >5 km. ● Local major lineament, interpreted as a fault or fracture zone. Length 1-5 km. ● Local major lineament indicated in connection with magnetic data. ● Local major lineament of uncertain character, Length 1-2 km. ● Local lineament, connected. Length <1 km. ● Local lineament, fragmented. Length <1 km. 	
터널 규모	<ul style="list-style-type: none"> ● Single fault ● Swarm of single faults ● Fault zone ● Fault zone with rounded geometries ● Parallel fault zones with long connecting splays. 	
소규모 단열	<ul style="list-style-type: none"> ● Open fractures ● Open fractures with fault gouge 	

체계	<ul style="list-style-type: none"> ● Tight fractures ● Zones of open fractures ● Zones of tight fractures ● Zones of open fractures with fault gouge 	
----	--	--

4.2 처분장주변 암반의 지하수유동 인자

스웨덴의 모든 고준위폐기물처분후보지역에서 도출된 지표하 500m 암반의 지하수유동량(Darcy velocity)은 $10^{-5} \sim 0.1\text{m/y}$ 범위로 나타나며, 안전성예비평가에서 계산된 결과는 지하수의 Darcy 유속이 약 0.01m/y 보다 클 때 완충재와 암반경계에서 지연작용은 미미한 것으로 발표된 바 있다[8]. 이는 핵종이동 관점에서 암반의 지연기능은 처분장주변 지하수유동량의 제한적인 범위 내에서 지연작용을 하며, 처분장주변 지하수의 Darcy 유속은 지연효과에 상한값으로 0.01m/y ($3 \times 10^{-10}\text{m/s}$)가 제시될 수 있다. 이러한 지하수유동량은 수리경사가 1%, flow wetted surface을 $1\text{m}^2/\text{m}^3$ 로 가정할 때, 30m 규모암반의 수리전도도는 약 10^{-8}m/s 보다 낮게 계산된다. 스웨덴의 현장조사에서 측정된 수리전도도의 통계학적 분석결과는 파쇄대의 수리전도도(30m규모)는 $1.5 \times 10^{-5} \sim 2 \times 10^{-10}\text{m/s}$ 이고, 암반의 수리전도도(30m규모)는 $10^{-6} \sim 10^{-12}\text{m/s}$ 의 범위를 갖고 있다. 현재 국내에서 수행되는 구간별(10~30m) 정압주입시험결과 도출된 모든 암반의 수리전도도값은 상기범위에 속하는 것으로 나타나고 있다.

따라서 원전수거물 처분장에서 천연방벽의 효율적인 지연효과를 위해서는 처분공동 주변암반의 수리전도도를 $10^{-8} \sim 10^{-9}\text{m/s}$ 이하로 유지시켜야 할 것이다. 또한 지하수의 Darcy 유속은 부지적합성평가인자로 사용될 수 있으나, 시추공에 의한 조사단계(surface based investigation stage)에서는 지하수유속자료 도출이 매우 어렵기 때문에 처분장 모암으로의 적합성 판단에 제한적으로 적용하게 된다.

참 고 문 헌

- [1] IAEA, Geological Disposal of Radioactive Waste: Draft Safety Requirements, IAEA safety standards series DS154 (2003)
- [2] 과학기술부고시 제2002-24호, 중·저준위방사성폐기물 천층처분시설의 위치에 관한 기술기준, 과학기술부 (2002)
- [3] 과학기술처고시 제91-8호, 사용후핵연료 중간저장시설의 위치기준, 과학기술처 (1991)
- [4] 과학기술처고시 제94-4호, 중·저준위방사성폐기물 처분장 부지특성보고서 작성지침, 과학기술처(1994)
- [5] 과학기술처고시 제96-12호, 사용후핵연료 중간저장시설의 부지특성보고서 작성지침, 과학기술처(1996)
- [6] SKB, Site descriptive modeling - strategy for integrated evaluation, SKB R-03-05, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co., Stockholm, Sweden (2003)
- [7] SKB, Aspö Hard Rock Laboratory: Analysis of fracture networks based on the integration of structural and hydrogeological observation on different scales; SKB TR-01-21, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co., Stockholm, Sweden (2001)
- [8] SKB, What requirements does the KBS-3 repository make on the host rock; SKB TR-00-12, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co., Stockholm, Sweden (2000)

중·저준위방사성폐기물처분시설 인허가심사 방안

Licensing Review Scheme for Low and Intermediate Level Radioactive Waste Disposal Facility

전제근, 정승영, 장재권, 이관희, 박원재, 박상훈
한국원자력안전기술원

요 약

중·저준위방사성폐기물관리시설의 안전심사체계의 확보를 위하여 미국, 일본, 프랑스 등 국의 방사성폐기물관리 안전심사체계와 국내 인허가 심사체계 및 기술기준의 개발현황을 살펴보았다. 국내 방사성폐기물관리시설의 인허가는 원자력 관계법령에 따라 전체 5-6단계에 걸쳐 이행되며, 원자력법규와 기존의 원자력발전소 건설허가 심사기간을 참조할 때 건설·운영허가에 소요되는 기간은 총 32개월로 추정된다. 방사성폐기물의 안전관리를 위해 현재까지 전체 15건의 과기부고시를 개발하여 운용하고 있으며, 2005년까지 5건의 기술기준을 신규 개발 완료할 예정이다.

Abstract

In order to establish the licensing review system for LILW disposal facility, we have studied the licensing review structure of oversea's countries, including United State, Japan, and France. We have also reviewed the domestic licensing review structure and the current status of development of safety standards for LILW management. A licensing review for LILW disposal facility can be implemented in 5-6 steps according to Atomic Energy Act. It is estimated to take 32 months for the CP and the OL review for LILW disposal facility referencing to the licensing review practice of the nuclear power plant. To date, a total of 15 MOST Notices have been developed to apply to the safe management of radwaste and 5 more MOST Notices will be developed by 2005.

1. 서 론

원자력시설의 이용과 더불어 부수적으로 발생하는 방사성폐기물은 현재까지 누적 발생량이 지속적인 증가를 보이고 있으며, 2002년 12월말 기준 원자력발전소에서 발생하는 중·저준위 방사성폐기물은 200리터 용량 드럼으로 약 60,387드럼이 각 원전 부지내에 저장되어 있다[1]. 또한 의료용 및 산업용 방사성동위원소 이용기관에서도 방사성폐기물이 발생하는데, 방사성동위원소 사용기관에서 발생하여 수거된 동위원소폐기물은 한국수력원자력(주) 부설 원자력환경기술원에 저장되고 있으며, 그 양은 2002년 12월말 기준으로 개봉선원 4,536드럼(200ℓ 드럼기준)과 밀봉선원 176드럼(200ℓ 드럼기준) 이다[1]. 이러한 폐기물을 더욱 더 안전하고 효율적으로 관리하기 위하여 과거에 수차례 방사성폐기물 관리시설의 부지 확보에 노력하였으나 실패하여 오늘에 이르게 되었다.

한편 원자력시설의 증가에 따라 폐기물발생 누적량도 증가하여 방사성폐기물을 종합 관리할 처분시설이 시급하게 요구되고 있으며, 이에 따라 최근 7월 24일 전북 부안군 위도를 방사성폐기물관리시설의 후보부지로 산업자원부에서 확정함에 따라 한국수력원자력(주)는 2008년까지 중저준위 방사성폐기물 처분시설을 건설할 계획이다. 따라서 방사성폐기물관리시설의 안전심사체계의 확보가 요구되므로, 본 연구에서는 국외 방사성폐기물관리 안전심사체계를 살펴보고, 국내 인허가 심사체계 및 기술기준의 개발현황을 알아보았다.

2. 외국의 중·저준위 방사성폐기물처분시설의 규제 체계

가. 미국[4,5]

미국의 방사성폐기물에 대한 규제는 원자력법, 에너지정책법, 저준위방사성폐기물정책법 및 개정법, 원자력폐기물정책법 및 개정법 등의 법률과 연방규정(CFR), 규제지침(Reg. Guide) 등에 의해 이루어진다. 에너지정책법에 따르면, 저준위폐기물에 대한 책임은 주정부 또는 지역에 부여되며, 저준위방사성폐기물정책법은 주정부의 관할권내에서 발생한 저준위방사성폐기물의 처분책임은 해당주에 있음을 규정한다. 저준위방사성폐기물 천층처분시설의 인허가 및 안전규제 요건은 10 CFR Part 61 (Licensing Requirements for Land Disposal of Radioactive Waste)에 명시하고 있으며, 일반규정(목적 및 범위, 정의, 허가대상, 개념등), 허가(일반 및 기술적사항, 기술분석, 허가기준 등), 성능목표(일반요건, 일반공중보호, 무단침입방지, 운전중 인명보호, 폐쇄후 안정성), 천층처분기술요건(처분부지 설계, 운영 및 폐쇄 등), 재정보증, 주정부 및 인디언부족의 참여, 기록·보고·시험·검사 등 7개 부문으로 구성되어 있다.

저준위방사성폐기물 천층처분시설의 인허가절차는 다음과 같은 건설운영허가/주기적운영허가/폐쇄허가/폐쇄후관리이전 등 4단계로 구분되어 있다.

- 처분(건설·운영)허가 : 인허가신청서류는 일반정보, 특수기술정보, 제도적정보, 재정정보 등 4종의 정보로 구성되며, 특수기술정보는 Subpart C의 성능목표 및 Subpart D의 해당 기술요건에 부합됨을 입증하는 자료로서 사업자는 선정된 부지의 부지특성조사를 실시하여 안전성분석보고서 및 방사선환경영향평가를 규제기관(NRC)에 제출함.
- 주기적 운영연장허가 (periodical license renewal) : 운전이력의 검토 및 계속운영 여부를 결정함.
- 폐쇄 허가 (site closure) : 부지의 폐쇄를 위해서는 폐쇄허가를 신청하고 허가를 받아야 하며, 폐쇄허가신청시에는 처분허가시 제출자료와 처분시설 부지 폐쇄계획서의 최종개정본 및 상세자료를 제출함.
- 폐쇄 후 관리이전 (license transfer): 폐쇄허가 후 5년 동안 안전성을 확인한 후 제도적 관리를 위해 시설의 주 정부나 연방정부로 관리를 이전함.

나. 일본[4,6]

일본의 방사성폐기물에 대한 안전규제는 방사성폐기물매설사업과 관리사업으로 구분되며, 매설사업은 원자로등규제법에 규정하고 있다. 이의 구체적인 규제요건은 원자로등규제법 시행령(정령)과 핵연료물질 및 핵연료물질에 의하여 오염된 물질의 폐기물매설사업에 관한 규칙(총리부령)으로 규정하고 있다.

일본의 중·저준위 방사성폐기물 인허가 체계는 건설전 단계, 건설 단계, 처분개시 단계로 구분하고 있다. 일본의 중·저준위 방사성 폐기물 처분시설사업자는 폐기물 매설 사업허가를 신청하여 매설 사업허가를 득한 후 건설에 착수 할 수 있으며, 건설 단계에서는 매설 확인 신청서, 보안규정 등을 제출하여 이를 승인 받고, 실제 처분시설 운영개시는 폐기물 취급주임자선임과 사업 개시 신고를 하고 기록유지 및 보안조치에 대한 보고를 하도록 되어있다.

사업허가 신청서에 포함되어야할 사항은 처분시설의 위치(부지조건), 처분대상방사성 폐기물의

특성, 구조적 특성, 시설설치 및 처분방법, 폐기물 처분의 단계적인 안전조치 시행계획 등이 포함 되어야 한다. 그리고 건설단계에서는 폐기물 매설 확인 신청서, 보안규정 등을 정부로부터 승인 받도록 되어있으며 처분시설운영개시신고를 통하여 폐기물을 처분하는 운영단계에 들어가도록 되어 있다. 각 단계별 인·허가 체계 및 제출서류를 다음 표 1에 요약해서 기술하였다.

다. 프랑스[4,7]

원자력 시설의 안전을 주관하는 원자력 및 방사선 안전국(DGSNR)은 일반적인 기술규제요건 적용의 입안 및 감시를 담당하고 있고 기본 원자력시설(BNI)에 대한 인허가 심사 및 검사 업무, 방사선 방호 업무를 담당한다. 방사성폐기물 처분시설은 시행령(Decree No 63-1228)에 의해 원자력발전소와 같이 기본원자력시설로 분류되어 건설허가와 운영허가의 단계로 인허가절차가 수립되어 있다.

○부지 선정

사업자는 시설인허가(authorization decree) 신청 전에 규제기관에 예정부지와 시설의 안전성에 대한 사전심의를 요청하여 사회경제학적 측면과 안전성측면에서 부지특성을 조기분석할 수 있도록 하고 있음.

○건설허가

예비안전성분석보고서(preliminary safety analysis report)를 첨부하여 환경성 장관과 산업성 장관에게 제출함. 시설이 건설될 지역의 지방자치단체장은 공청회(Public Inquiry)를 실시하며, 보건성 등 관계부처 및 자문위원회의 자문을 얻어 DGSNR에서 신청서를 평가한 후 보건성 장관의 동의를 얻어 시설인허가를 승인함.

○운영허가

방사성폐기물관리시설의 운영허가는 2단계로 구분할 수 있는데, 첫 번째는 운영허가신청시 중간안전성분석보고서(ISAR)와 함께 설비에 대한 일반적 운영규칙과 부지의 비상계획서를 제출하며, 두 번째 단계는 운영허가전에 앞서 제출한 중간안전성보고서를 개정한 최종안전성분석보고서(FSAR)를 제출하여야 함.

3. 국내 방사성폐기물관리시설 인허가 절차 및 기술기준 현황

가. 인허가 심사절차 및 소요기간

처분시설의 안전성 확인을 위하여 관리시설의 인허가는 그림 2에서와 같이 원자력 관계법령에 따라 다음과 같은 전체 5-6단계에 걸쳐 이행된다[2].

○부지사전승인 :

부지사전승인심사는 사업자가 건설허가 신청 전에 부지사전승인을 신청한 경우에 이루어지게 되며, 지질, 지진, 지하수이동 등을 조사 평가한 부지조사보고서와 기상, 수문, 방사선학적 영향 평가 등을 기재한 방사선환경영향평가서를 분석 평가하여 확인함.

○건설·운영허가 :

부지사전승인후 건설·운영허가를 위하여 안전성분석보고서, 안전관리규정, 건설 및 공사방법에 관한 설명서, 품질보증계획서, 환경영향평가서 등의 제반서류를 제출하여야 함. 건설운영허가신청은 부지사전승인 없이 직접 신청할 수 있도록 사업자의 의사에 따라 선택할 수 있게 되어 있음.

○사용전 검사 :

사용전 검사는 시설 설치공사 이후 수행하며 심사 시에 평가한 내용대로 시설이 설치되어 그 성능을 발휘할 수 있는 지를 확인하는 검사이며 합격 시에 시설 운영이 가능함.

○처분검사 :

운영허가이후 처분검사를 사업자로부터 신청 받아 실시하게 되는데 사업자는 처분시설에 폐

기물을 처분하고자 할 때 당해 처분사항을 신청하여 검사를 받아 모든 안전성을 확인한 후에 처분하도록 하고 있음. 처분검사가 수행된 해당 용량이 초과되어 또 다른 처분이 필요할 경우 당해 동일 처분부지라 할지라도 사업자는 다시 그 다음에 수행할 처분에 대하여 다시 처분검사를 신청하여 처분검사를 받아야 함.

○ 정기검사 :

방사성 폐기물 관리시설의 운영 중 안전성 확인은 매년 정기적으로 시설의 성능확보를 확인하는 정기검사를 통하여 점검함.

○ 품질보증검사 :

각 건설 및 운영 단계별로 품질보증검사를 수행하는데 이는 사업자의 업무수행이 품질보증계획에 따라 품질보증이 이루어지고 있는지를 확인함.

나. 인허가 소요기간 추정

처분시설의 인·허가 체계는 원자력발전소의 인·허가 체계와 유사하기 때문에 관련 원자력법규(원자력법시행령 제21조의 2와 3항)와 기존의 원자력발전소 건설허가 심사기간을 참조할 때, 건설·운영허가에 소요되는 기간은 총 32개월로 추정된다. 세부 소요기간을 살펴보면, 신청서류의 적합성 검토 기간으로 2개월 정도가 소요되며, 부지특성조사보고서, 안전성분석보고서, 방사선환경영향평가서 등 주요서류의 심사기간이 25개월, 사용전 검사기간은 5개월 정도가 소요될 것으로 예측된다. 이러한 소요기간은 사업자의 준비가 충분하여 제출된 서류를 보완 없이 검토할 수 있는 여건이라는 가정 하에 추정한 기간이며, 인 허가에 필요한 실질적인 소요기간은 사업자의 인허가 준비 상황 등에 따라 달라질 수 있다. 표 2에 방사성폐기물관리 시설 인허가 심사내용 및 추정기간이 기술되어 있다.

다. 방사성폐기물 관련 기술기준개발 및 현황

방사성폐기물의 안전관리를 위해 현재까지 전체 15건의 과기부고시를 개발하여 운용하고 있으며, 이중 6건은 보완중에 있다. 향후 2005년까지 5건의 기술기준을 신규 개발 완료할 예정이며, 방사성폐기물관리시설 관련 기술기준 개발 현황은 표 3과 같다[1,2,3].

기술기준의 세부사항으로 2002년도에는 방사선방호 등에 관한 규정과 중·저준위 방사성폐기물 천층처분시설 위치기준 등 2건이 개정고시 되었으며, 중·저준위방사성폐기물처분시설 및 사용후핵연료중간저장시설의 안전성분석보고서 작성지침 초안이 개발 완료되었다. 또한 사용후핵연료중간저장시설 및 천층처분시설의 구조 및 설비기준은 현재 보완중에 있다. 그리고 처분방법, 저장방법 및 부지특성 등을 고려한 과기부고시의 체계적인 재정립을 통해 중·저준위방사성폐기물 영구처분시설, 사용후핵연료중간저장시설 및 고준위폐기물 처분시설에 대한 기술기준을 년차적으로 개발하여 방사성폐기물관리사업의 원활한 수행을 제고하고 있다.

4. 결 론

지난 7월 24일 전북 부안군 위도를 방사성폐기물관리시설의 후보부지로 산업자원부에서 확정함에 따라 방사성폐기물관리시설의 안전성확보는 해당시설이 건설될 지역주민뿐만 아니라 전국민의 지대한 관심사가 되고 있다. 이러한 제반시설의 안전성 확보를 위하여 미국, 일본, 프랑스 등국의 방사성폐기물관리 안전심사체계와 국내 인허가 심사체계 및 기술기준의 개발현황을 살펴보았다.

국내 방사성폐기물관리시설의 인허가는 원자력 관계법령에 따라 부지사전승인, 건설·운영허가, 사용전검사, 처분검사, 정기검사, 품질보증검사 등 전체 5-6단계로 구분되어 이행되며, 원자력법규와 기존의 원자력발전소 건설허가 심사기간을 참조할 때 건설·운영허가에 소요되는 기간은 총 32개월로 추정될 수 있다.

그리고 방사성폐기물의 안전관리를 위해 현재까지 전체 15건의 방사성폐기물 관련 고시가 개

발 운용되고 있으며, 안전정보고서 작성지침 등 세부안전성 검토를 위한 규제지침도 적극적으로 개발중에 있고, 최근 국제규범 및 안전요건 등을 반영하여 고시 및 규제지침의 개발 및 보완도 지속적으로 추진될 예정이다.

참 고 문 헌

1. 과학기술부, 원자력안전백서, 2003.
2. 원자력관계법령집, 원자력안전기술원, 2001.
3. 원자력관계고시집, 원자력안전기술원, 2001.
4. 김효정 외, 원자력 안전규제 기술요건 체계 분석, KINS/RR-107
5. Code of Federal Regulation, the Office of the Federal Register National Archives and Records.
6. 일본 원자력법령집, KAERI/TS-1/91, 한국원자력연구소, 1991.
7. French Report for the First Review Meeting on the Contracting Parties to the Joint Convention on the Safety of Spent Fuel management and on the Safety of Radioactive Waste management, Government of France, 2003.

표 1. 일본의 인·허가 절차 및 제출서류

단계	인허가 절차	제출서류	제출서류내용
건설전 단계	· 사업허가	· 사업허가 신청서	· 폐기물의 특성 · 매설시설의 위치, 구조 및 설비 · 폐기 방법 · 시설의 공사 계획 등
건설단계	· 폐기물 매설확인 승인 · 보안조치	· 폐기물매설에 관한 확인신청서 · 보안규정	· 시설의 설계도, 구조도 및 설계 계산서 · 매설지의 지형, 지질 및 지하수의 상황을 설명하는 자료 · 매설시설 부근의 개략도 · 공사공정표 및 설계계획 · 시설보안 · 폐기물의 운반, 폐기 · 관련사항
사업개시 단계	· 폐기물 취급 주입자 선임신고 · 사업개시신고	· 폐기물취급 주입자선임신고서 · 사업개시신고서	· 핵연료취급 주입자 또는 총리령에서 정하는 자격자

표 2. 방사성폐기물관리 시설 인·허가 심사내용 및 추정기간

주요 심·검사 항목	소요기간(개월)	수행방법
1. 서류의 적합성검토, 심사계획 통보	2	○ 서류의 적합성검토, 심사계획 통보
2. 부지사전승인 심사 - 부지조사 보고서 - 방사선환경영향평가서	13	○ 질의 및 응답 ○ 인·허가회의 개최 - 내부실무검토회의 - 대 사업자회의 - 안전심의회 개최
3. 건설·운영허가 심사 - 안전성분석보고서 - 방사선환경영향평가서 - 안전관리규정 - 설계/공사방법 설명서 - 품질보증계획서 - 기타 관계서류	12	○ 국내의 전문가활용 ○ 안전성검토 후 심사보고서 작성 ○ 정부활동지원 ○ 안전심사 중간현황 및 최종결과통보
4. 사용전검사, 품질보증검사	5	○ 건설의 시작부터 건설 일정에 따라 단계별로 현장 중심 검사 ○ 주기별로 각 전문분야가 종합적으로 참여하는 합동검사 수행
총 계	32	

표 3. 안전규제 기술기준 개발 현황 및 계획

구분	기술 기준 명	고시 번호	개발현황			
			완료	보완	계획	비고*
부지선정	○ 중저준위 위치기준	02-24		○		'03
	○ 사용후핵연료 위치기준	91-08		○		'03
	○ 방사선환경영향평가 규정	01-25	○			준용
	○ 방사선환경영향평가 작성 규정	01-24	○			준용
	○ 중저준위 부지특성보고서 지침	94-04	○			
	○ 사용후핵연료 부지특성보고서 지침	96-12	○			
설계	○ 천층시설 구조 및 설비기준	91-09		○		'03
	○ 사용후핵연료 구조 및 설비 기준	-			○	'04
	○ 폐기물처리 설비기준	-			○	'04
건설 및 운영	○ 안전성분석보고서 작성지침	-			○	'03
운영 및 폐쇄	○ 방사선방호 등에 관한 기준	02-23	○			
	○ 포장 및 운반 규정	01-23	○			
	○ 소각기준	01-31	○			
	○ 자체처분	01-30	○			
	○ 중저준위 인도규정	01-32		○		'03
	○ 사용후핵연료 인도규정	01-33		○		'04
	○ 품질보증	01-47	○			준용
	○ 방사선위해방지 기준	96-11		○		'03
	○ 저장,처리 및 설비기준	-			○	'04
	○ 처분검사 규정	-			○	'05

※ 비고는 고시화 추진연도 및 원자력이용시설 준용고시 임

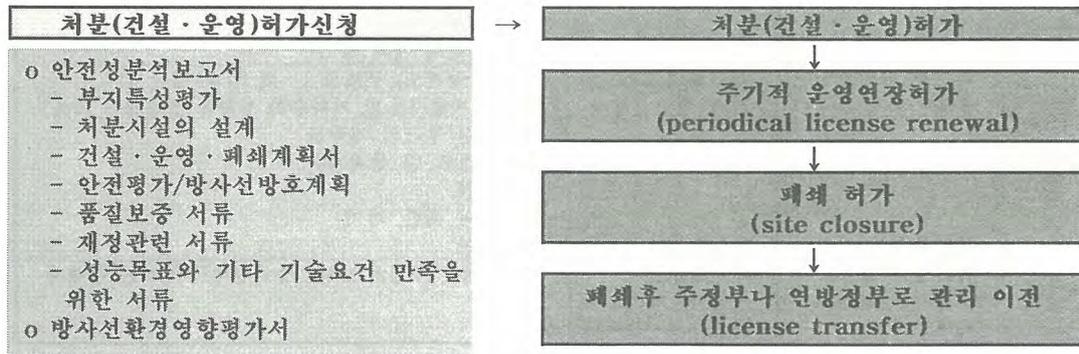


그림 1. 미국 처분시설의 인·허가체계

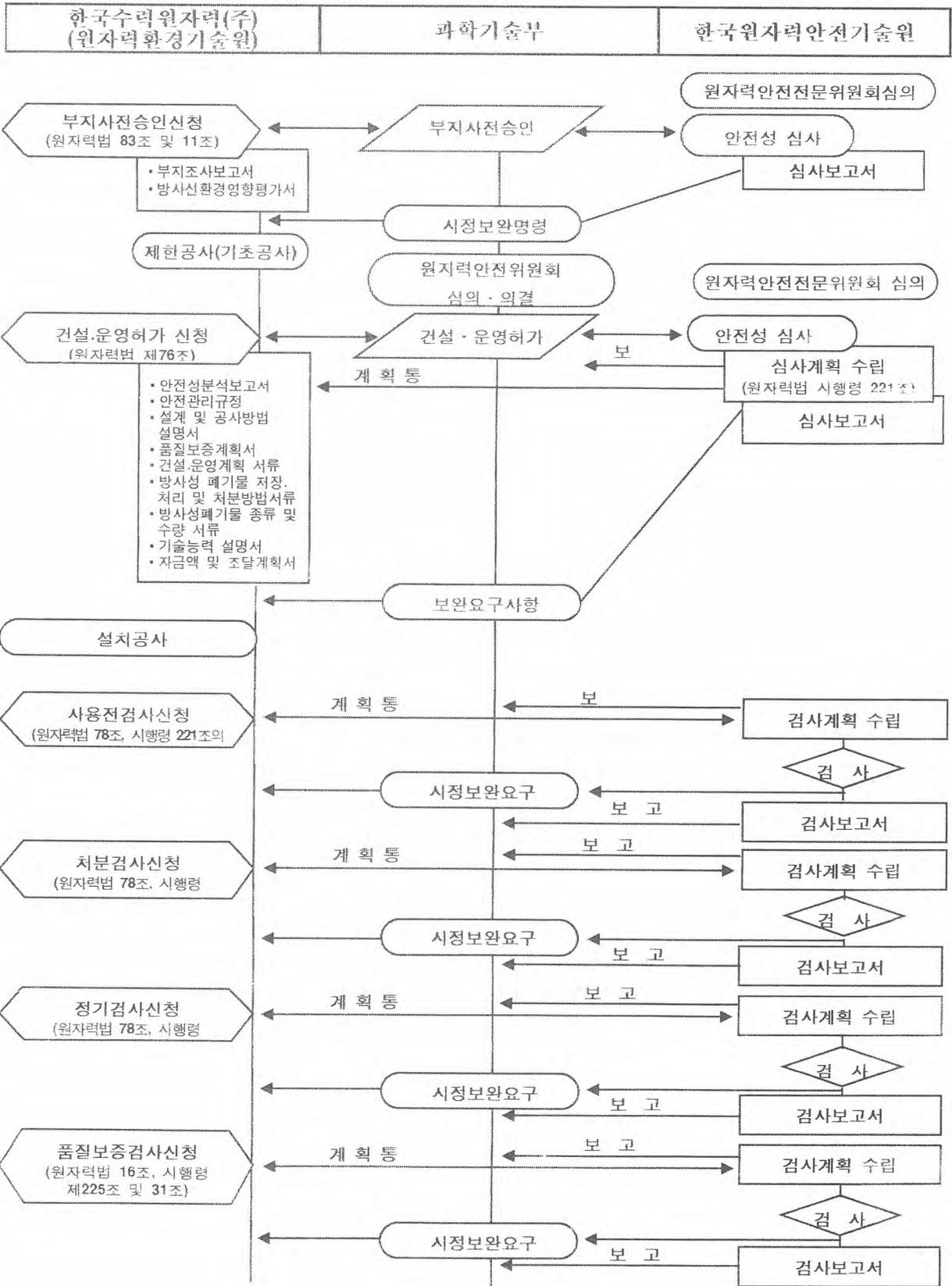


그림 2. 방사성폐기물관리사업 안전규제 절차

한국형 처분 시스템에 대한 생태계 평가의 한 예시

이연명, 황용수, 강철형
한국원자력연구소

요 약

고준위 방사성 폐기물 처분장으로부터 유출된 핵종이 인간 생태계에 도달하여 어느 정도의 선량률로서 피폭을 일으키는가를 보이기 위한 생태계 피폭 모델링 및 평가 연구는 처분안전성 평가의 최종 단계로서 핵종 유출의 결과가 인간에게 어느 정도의 방사선 피폭을 주는가를 보이는 것이 그 주요한 내용이 된다. 이 연구를 통하여 도출된 시나리오 중에서 가장 기본이 될 수 있는 생태계에 대하여 AMBER를 사용하여 피폭 계산을 수행하여 선량 환산 인자 평가를 계산해 보았다. AMBER 코드는 핵종 이동 계산을 위해 여러 개의 구획을 설정하고 구획간의 핵종 이동은 핵종 전이 계수(mass transfer coefficient)를 이용하여 계산한다.

1. 서 론

사용후 핵연료의 처분을 위한 고준위 방사성 폐기물 처분장으로부터 유출된 핵종이 인간 생태계에 도달하여 어느 정도의 선량률로서 피폭을 일으키는가를 보이기 위한 생태계 피폭 모델링 및 평가 연구는 처분안전성 평가의 최종 단계로서 핵종 유출의 결과가 인간에게 어느 정도의 방사선 피폭을 주는가를 보이는 것이 그 주요한 내용이 된다.

생태계에서의 방사성 핵종의 이동 및 확산에 관한 연구는 원자력 발전소의 경우에서도 같은 방법론으로 접근되어 건설 및 운영에 따른 인허가 과정을 통해 수행되어 온 사례가 있지만 평가 대상의 핵종이나 이동 환경과 메커니즘 등이 달라 가령 원자력발전소의 경우 대기와 해양을 통한 이동이 주요한 대상이 될 때 처분장의 경우는 심부 지질환경과 천부 및 지표 환경 등에서의 지하수에 의한 핵종 이동이 그 주요한 메커니즘으로 되어 차이를 보이게도 되지만 대상 핵종의 반감기나 이동에 걸리는 속도의 차이 등 본질적으로 전혀 다른 평가모델과 방법론을 요구하게 되는 것이다.

이 연구를 통해서 생태계 평가를 위한 대상으로서 고준위 방사성 폐기물 처분장을 상정하고 이 처분 시스템에 대하여 여러가지 발생가능한 핵종의 전이 및 이동 경로를 도출해 본 후 이에 대한 정량적 평가를 수행해 봄으로서 생태계 평가의 한 방법론을 제시 하여 보고자 한다.

2. 평가대상생태계와RES

생태계내의 방사성 물질의 전이와 이동을 정량적으로 평가하기 위해서는 대상 생태계의 각 구획이나 모듈들이 어떻게 상호 반응을 하는지 파악하는 것이 중요하다.

생태계 평가를 위해 주요한 생태계를 우선 크게 우물과 강과 같은 지표수와 여기에 바다를 포함

시켜 핵종이 최종적으로 심부로부터 유출되어 도달하게 될 목표지점으로 보고 이들 기본 생태계를 다시 일부 세분화하여 이들 사이의 전이와 이동을 고찰하는 것으로 하였다.

아래 그림 1은 이들 생태계내의 상호 반응을 도시한 RES (Rock Engineering System) [1]으로서 이러한 행렬을 통하여 생태계 평가를 위한 기본 개념이 설정될 수 있다.

source term (GW release)	GW_Release2DW			GW_Release2RW				
	Irrigation_Well2SS			NonIrrNonDrink_Well2RW				
		Infiltration_SS2VadoseSurfaceSoil		Erosion_SS2RW				
			Erosion_Vadose2ss	Erosion_Vadose2RW/Recharge_Vadose2RW				
		Irrigation_RW2SS/Flood_RW2SS			Sed_RW2RS	Flow_River2MW		
		Dredged_RS2SS		Resus_RS2RW	RiverSediment		BedLoad_RS2MS	
						MarineWater	Sed_MW2MS	MarineDispersion
						Res_MS2MW	MarineSediment	Net_Sediment
								FinalSink

그림 1. 평가 대상 기준 생태계에 대한 RES

이 그림을 통하여 각 LDE (Leading Diagonal Element)사이의 반응을 ODE (Off Diagonal Element)로서 나타내어 볼 수 있게 되는데 본 연구에서는 생태계에서 다루어야 할 주요 LDE를 9개로 정도로 하여 생태계로 유입되는 선원향으로서 우물과 강물을 고려하고 이 곳에서 Surface soil이나 표토나 가변 충전층(Vadose zone), 그리고 침적층(sediment)으로 상호 반응하여 이동해가는 것으로 모델링하였다. 이 후 이들 각 구획에서 다양한 섭생경로와 대기층 또는 식물군 등을 통하여 피폭을 정량적으로 평가하는 것으로 하였다.

3. 생태계 평가를 위한 기본 개념과 가정

생태계 평가는 안전성 평가의 최종 단계로서 지하매질을 빠져 나온 핵종의 생태환경에 대한 영향 평가이지만 평가 대상으로서 이러한 생태계는 지하매질에 비해 그 자체로 변동이 심하고 예측하기 힘들어 기준 생태계 (Reference Biosphere)라는 개념의 도입이 필요하게 된다.

이는 이전의 BIOMOV5 II [6]를 통해 도출된 생태계 FEP 리스트, 국제방사선방호위원회 (ICRP)의 처분장에 관련된 제원칙 등을 고려한 방법론 [7,8]으로서 1999년 BIOMASS 에서 제안된 Reference Biosphere Methodology를 H12 보고서 [9]등 여러 나라에서 사용하고 있다.

이 연구에서는 H12에서 도입한 대로 3가지의 피폭 그룹 (Farming, Freshwater Fishing, Marine Fishing)을 상정하여 이들 각각에 대한 피폭 선량을 계산하고자 한다.

결국 생태계 조건들의 변화는 시간에 따르게 되지만 일본의 H12 연구에서와 마찬가지로 현재의 조건 및 환경들이 변화하지 않는다고 가정하는 것이 정확한 입력 지료가 없는 현 시점에서는 가장 타당할 수 있다.

그리고 기준 생태계에서 방사성 핵종의 붕괴와 대수층에서 발생하는 흡착 등에 의한 이동 지연

효과는 무시하였으며, 그림 2에서의 같이 대수층으로 유출된 모든 핵종들이 보수적으로 강이나 우물로 도달한다고 가정하였다.

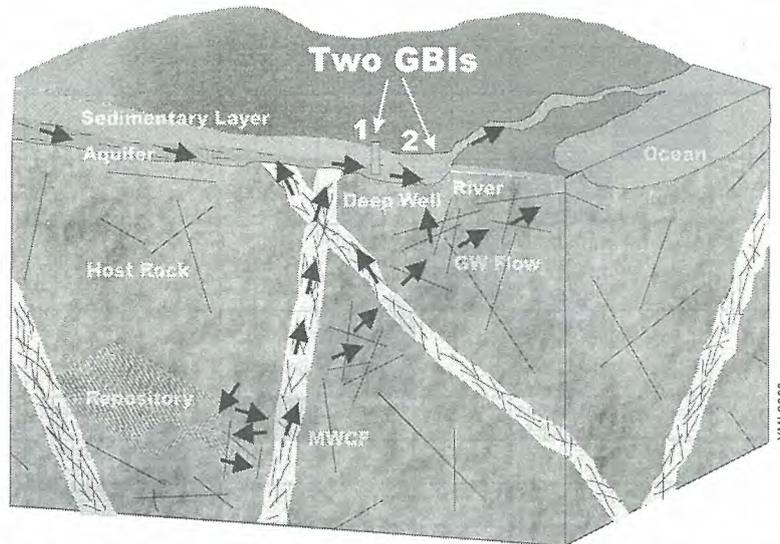


그림 2. 처분장에서 생태계로 이동하는 방사성 핵종 유동 개념도(기준 생태계)

4. FEP 상호 관계 및 생태계 개념 모델링

기준 생태계에 대한 상호 반응 행렬의 작성을 위해 주요 항목들을 행렬의 대각선(LDE-Leading Diagonal Element)에 배열하고, 비 대각선 지역(ODE-Off Diagonal Element)에는 이들 항목들의 상호 반응을 할당하는데, 지표토양(surface soil)과 같은 생태계의 주요한 부분들을 LDE로 선택하여 이들 각각을 구획(compartment)으로 취급하였다. 방사성 핵종의 이동은 결국 이러한 구획들 간의 상호 반응에 의한 이동으로 설명되며, 이때 대기(atmosphere), 식물(plant), 그리고 동물(animal)의 경우 지표 토양, 강과 해양에 존재하는 핵종들의 농도로 농도평형에 도달하였다고 가정하였다. 핵종이 주로 최종적으로 도달하게 될 지표수(surface fresh water)는 강과 우물을 나타내고 다시 강에서는 강물(river water compartment)과 강 저면의 침전 지역(river sediment compartment)으로 구획되며, 우물의 경우에서도 관개를 통해 표토층으로, 또는 다시 표토층에서 가변 토양층으로 이동하게 된다고 볼 수 있다. 결국 기준 생태계에서는 핵종들은 강물과 우물을 통해 유출된다고 가정하였다. 이 때 강 구획들에서 일어나는 핵종 붕괴와 흡착에 의한 핵종 이동 지연은 무시하였다.

세 개의 피폭 그룹(농업, 지표수 수산물, 해양수산물)들이 국지적 농어산물의 섭취 방식의 분류에 따라 정의될 수 있는데 각 피폭 그룹에 대한 섭취 경로들은 아래 표 1에 요약하였다.

표 1. 피폭 그룹별 섭취 경로

Intake Pathway		Farming	Freshwater Fishing	Marine Fishing
Ingestion	Crops	Grains Rice Green Veges Root Veges Fruit		
	Animal products/ Aquatic foodstuffs	Beef, Cow liver, Cow milk Pork Mutton Chicken, Chick liver, Chick eggs	FW fish FW crustaceans	Marine Fishing Marine crustaceans Marine molluscs Seaweed
	Others	Water Soil	Water Sediment	Sediment
Inhalation		Dust	Dust	Dust Aerosol
External Irradiation		Water Soil	Water Sediment	Water Sediment

이미 언급한 상호 반응 행렬로부터 도출된 핵종 이동 경로들이 그림 3에 도시되었으며, 이에 따라 각 구획으로부터 인간환경으로의 세부 피폭 경로들은 그림 4에 도시되었다. 이러한 구획 모델링 방법은 캐나다 AECL의 EIS[10], 스웨덴 SKB-91[11], SITE-94[12] 그리고 미국 EPRI[13]의 생태계 평가 등에 사용되었던 접근론이다.

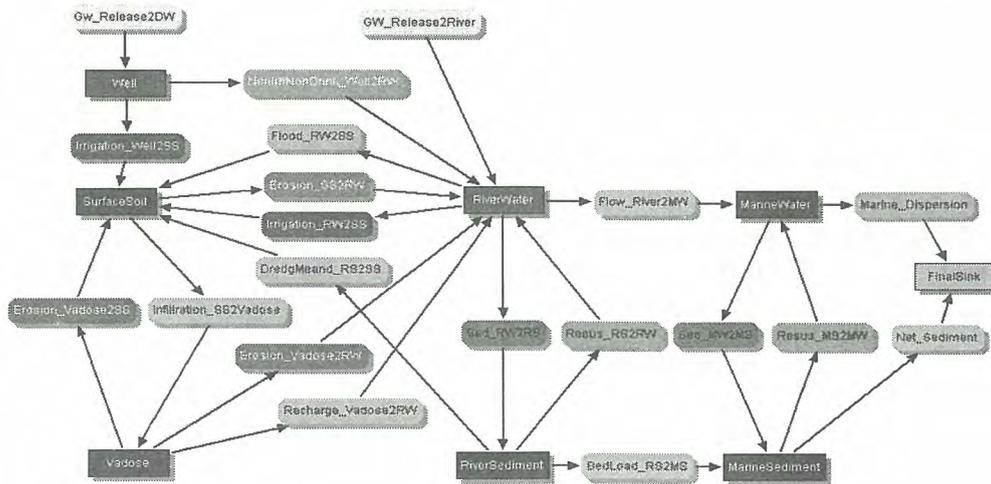


그림 3. 기준 생태계 평가를 위한 핵종 이동 개념 모델

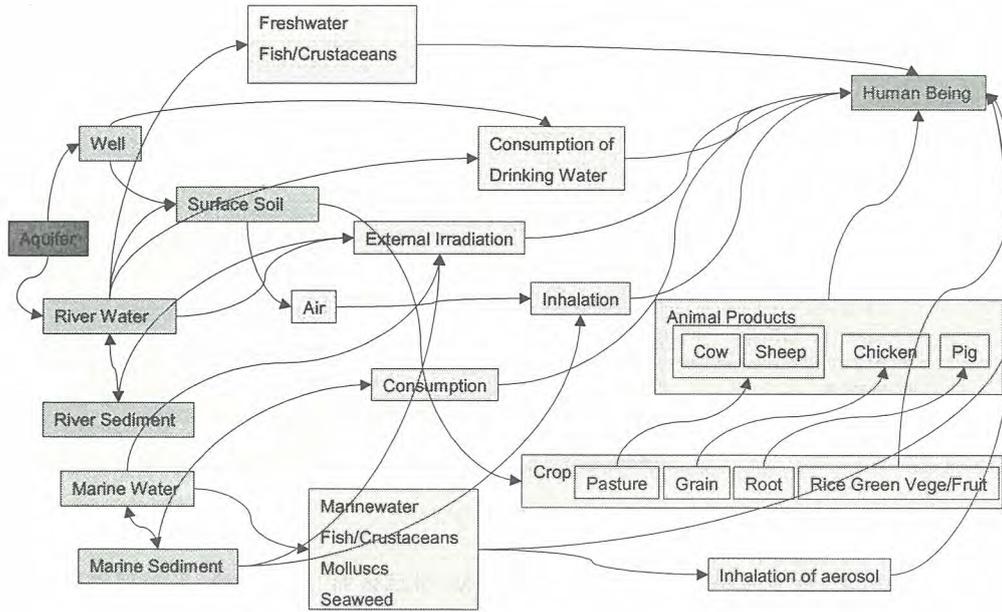


그림 4. 기존 생태계의 노출 경로(Exposure Pathway)

5. 수학적 모델링

기존 생태계의 핵종 이동을 도시한 그림 3을 수학적으로 모델링하기 위해서는 구획간의 물질 이동을 기술하는 물질 이동 상수(mass transfer coefficient) 뿐 아니라 구획 내 피폭 경로를 통한 물질 이동을 표현하는 수식들이 도출되어야 한다. 이러한 수학적 모델은 구획간의 물질 수지식에 따라 이루어지며 피폭 경로에 대한 수식들은 한 구획 또는 구획내 대상에 대한 핵종 농도에 대하여 관련 구획과 핵종 농도 평형에 있다고 가정하여 작성한다.

도출된 수식들을 사용한 실제 평가는 AMBER[14] 프로그램을 이용하여 수행되었는데, 이는 일본 H12 연구에서 적용된 AMBER 프로그램은 영국, 스페인 그리고 미국에서 사용되며 국제 공동연구 BIOMOVs II에서 다른 생태계 평가 코드들을 이용하여 검증된 것이다.

그림 5는 구획 모델링에서 사용하는, 물질 수지를 이용한 수학적 모델링 개념을 도시한 것이다.

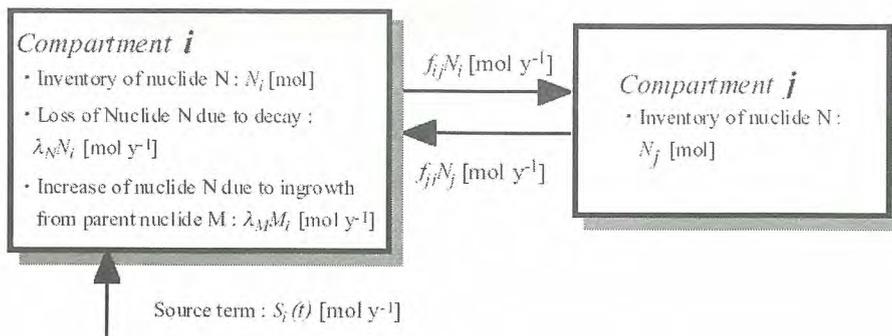


그림 5. 구획간 물질 수지를 이용한 수학적 모델링 개념

구획 모델링에서 구획 i 에 존재하는 방사성 핵종에 대한 질량 [mol] (N_i) 보존방정식은 아래와 같이 정의된다.

$$\frac{dN_i}{dt} = [\sum_{j \neq i} f_{ji} N_j + \lambda_M M_i + S_i(t)] - [\sum_{j \neq i} f_{ij} N_i + \lambda_N N_i]$$

각 구획에서 핵종들의 농도는 위 식을 각 구획 별로 연립한 다음 주어진 부대 조건들을 이용하여 행렬식을 풀어 구할 수 있다.

6. 생태계 영향 평가

국내 기준 생태계 평가를 위하여 처분장이 연안에 위치한다고 가정하고, 그림 3에 도시된 바와 같이 주요 구획들을 설정하였다. 대수대를 따라 이동하던 방사성 핵종들은 GBI에서 일부는 해양으로 직접 유입되고, 일부는 천부 불포화대로 이동한다. 천부 지하수대로 유입된 핵종들은 풍화작용 등에 의해 지표 표토층으로 유입된 후 풍화작용을 따라 강물이나 우물로 유입된다. 또한 강물로 유입된 핵종들은 강물 흐름에 따라 이동하여 궁극적으로 해양으로 이동하거나 침전작용에 따라 하저에 침전되다가 Bed loading과정을 거쳐 해양으로 유입된다. 이와는 별도로 심부 지하수에 섞여 양수된 핵종들은 관개수 혹은 비관개수로 이용되어 다시 지표 표토층과 강물 구획으로 유입된다.

GBI로부터 유출된 핵종들은, 지표 토양층, 연안 해수층 그리고 연안 침전층 과 같은 구획을 따라 이동하여 그림 4와 같은 경로를 따라 섭취, 호흡, 외부 피복을 통해 인간에게 전달된다. 특히 곡류와 동물류는 먹이사슬을 형성하고 있으므로 정확한 피폭 경로 설정 및 그에 따른 피폭 선량 평가를 위해서는 핵종 이동 경로에 대한 정확한 이해와 데이터가 요구된다.

그림 6은 농업에 종사하는 피폭 그룹을 대상으로 연간 단위 방사능이 방사성원이 생태계로 유입될 경우 모든 피폭 경로를 고려한 선량 환산인자이다.

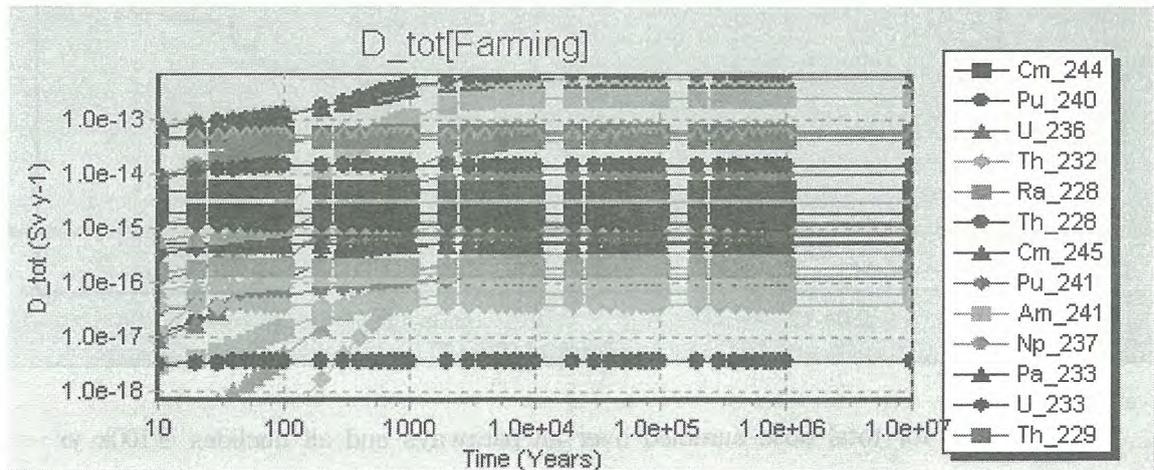


그림 6. 농경집단에 대한 핵종별 연간 피폭량

지하매질에서 강물이 아닌 우물로만 연간 단위 방사능만큼 유입되었을 때 Farming exposure group이 받는 핵종별 총선량률을 나타내게 되는데, 이 결과로 보면 어느 핵종의 경우에도 연간

1Bq의 방사능에 대해 연간 10^{-12} Sv의 선량률을 넘지는 않는 것으로 나타나고 있다. 한편 아래 그림 7에서 보면 모든 피폭 그룹, 모든 pathway에 대하여 모든 핵종을 합한 경우에 대한 연간 선량률 1 Bq/yr의 핵종이 GBI를 통해 생태계로 유입되었을 때 어느 경우든 10^{-8} Sv/yr의 선량률을 넘지지는 않음을 알 수 있다.

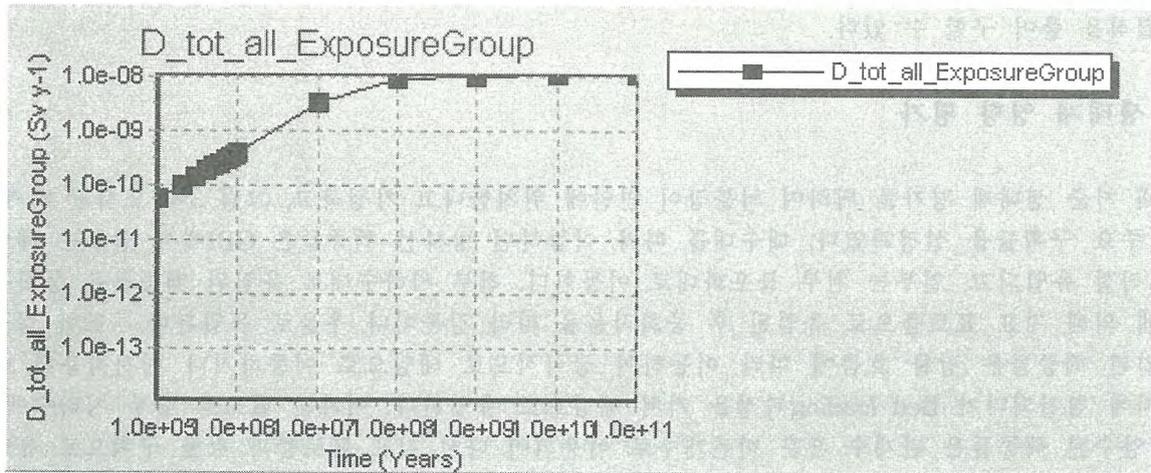


그림 7. Total dose to a member summed over all exposure group, all pathways, and all nuclides

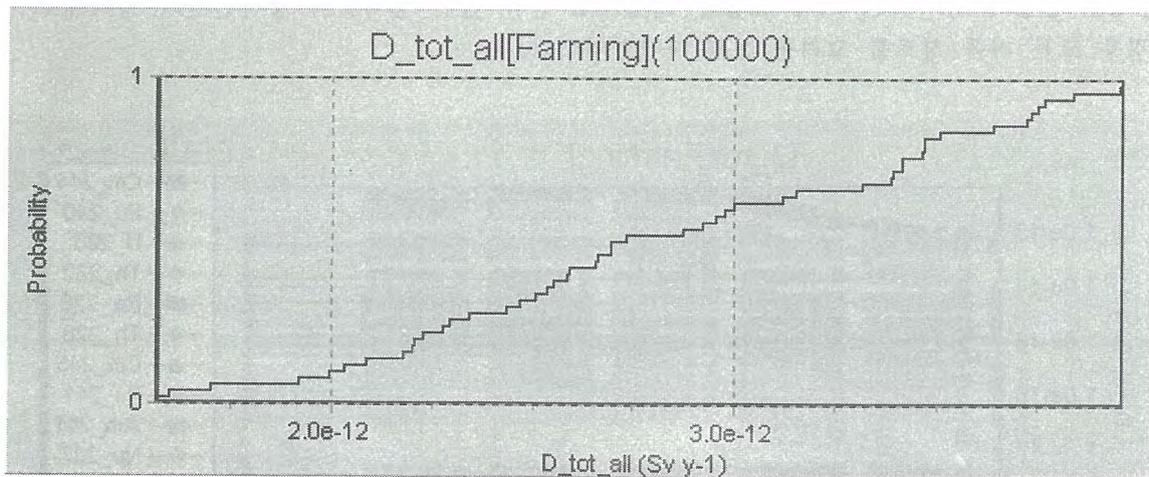


그림 8. CDF for total dose summed over all pathways and all nuclides @100k yr

10만년이 되는 시점에서 우물에서 표토층으로의 관개용의 분포에 따 Farming exposure group에 대한 선량률 CDF를 나타내는 그림 8에서 볼 때, 가령 Farming Exposure group에 대하여 연간 총 선량률이 1×10^{-12} Sv/yr을 넘길 확률은 1.0이지만 2×10^{-12} Sv/yr가 될 확률은 0.9정도가 된다고 볼 수 있으며 4×10^{-12} Sv/yr가 될 확률은 어느 경우라도 일어나지 않는다고 볼 수 있다.

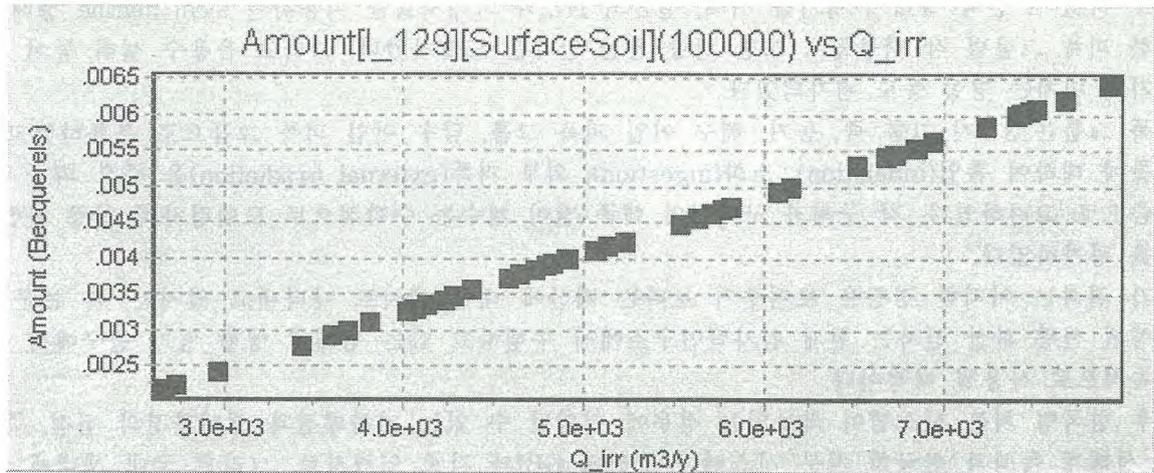


그림 9. Sensitivity of $Q_{irr} \sim \text{Tri}[2200, 4400, 8800\text{m}^3 \text{ y}^{-1}]$ to Concentration on Surface Soil due to ^{129}I @100k yr

참고로 10만년 시점에서의 관개율에 대한 핵종 농도 결과의 민감도를 보이는 그림9 에서 보면 관개율의 증가에 따라 표토층에서의 I-129의 농도의 상관관계로 당연히 관개율의 증가에 따라 선형적으로 표토의 핵종의 방사능량이 증가하고 있음을 알 수 있다.

위에서 평가된 각 핵종별 단위 방사능 량 유입에 따른 연간 개인 피폭 선량 값은 일본 H12이나 스웨덴 SR97 기준 생태계에 대한 값은 매우 유사한 바 이는 대부분의 입력 데이터 값이 외국 문헌 조사로부터 도출되었기 때문이다. 또한 국내 생태계 모델링 방법론 수준이 외국 수준과 비슷하기 때문이기도 하다.

본 연구를 통해 평가된 각 핵종별 연간 피폭 선량치들은 차기 단계에서 활용될 예정이다.

9. 결 론

이 연구를 통하여 성능 평가 시간대에서 생태계와 관련된 발생 가능한 시나리오의 도출을 위해 RES(Rock Engineering System) 기법을 사용하여 도출된 시나리오 중에서 가장 기본이 될 수 있는 생태계에 대한 선량 환산 인자 평가를 수행하여 보았다.

주요 입력 데이터는 일본의 H12와 국내 보건 복지부의 통계자료를 활용하였다. H12에서도 생태계 평가에 필요한 입력 자료를 해외 문헌에서 많이 참조한 만큼 이러한 평가에 대한 입력자료는 필요한 양에 비해 절대적으로 부족한 형편이다. 우리 환경에 맞는 데이터 즉, 쌀 소비량이나 육류와 해조류 섭취량 또는 식품이나 과일 등은 국내 보건 복지부 데이터를 활용하였으며, 기타 입력자료는 H12 등에서 사용한 데이터를 활용하였다.

피폭 계산을 위한 평가코드는 AMBER를 사용하였다. AMBER 코드는 핵종 이동 계산을 위해 여러 개의 구획을 설정하고 구획간의 핵종 이동은 핵종 전이 계수(mass transfer coefficient)를 이용하여 계산한다. 이러한 구획 모델 접근 방법은 핵종 이동 분석을 위하여 영국, 스페인, 미국 등에서 많이 사용하고 있으며, 1993년 OECD/NEA에서 다른 코드와 비교를 통해 검증되었고, 1996년에는 BIOMASS II라는 국제 공동 연구를 통하여 코드의 유용성이 확인되었다.

본 논문에서는 해외 선형 연구 결과를 참고로 하여 국내 생태계에 관한 선량 환산 인자를 도출하

려고 하였다. 먼저 생태계 평가를 위해, 일본의 H12와 국내자료를 이용하여 local marine 생태계에 대한 피폭 그룹별 각 핵종들에 대한 선량 환산 인자를 도출하였다. 그리고 음용수 섭취 등이 선량 증가에 미치는 영향 등도 평가되었다.

피폭 그룹은 3가지 그룹 즉, 농가, 해수 어업 피폭 그룹, 담수 어업 피폭 그룹으로 분류하였고, 각 그룹에 대하여 흡입(inhalation), 소화(ingestion), 외부 피폭(external irradiation)을 주요 피폭 메카니즘으로 고려하였다. 각 구획과 구획내의 핵종 전이 계수는 수학적으로 모델링하여 선량 환산 인자를 평가하였다.

평가 결과는 어떠한 경향을 보여주기 보다는 계산에 대한 예시로 나타내고 있지만, 본 논문에서 생성된 선량 환산 인자는 현재 원자력연구소에서 수행하고 있는 생태계 영향 평가 연구에서 추후 계속적으로 사용될 예정이다.

향후 한국형 처분 시스템이 확보되는 경우에 정의될 수 있는 지하매질과 생태환경의 접점, 즉 국내 생태계 특성과 한국형 처분 시스템이 고려된 GBI와 각종 입력자료, 그리고 국내 생태계 특성을 고려한 평가모델의 확보를 위하여 H12 등 외국의 사례 연구와 국내 섭생자료 분석 등을 통하여 예비 생태계 평가를 통하여 단위 방사능 유입당 선량률을 구할 수 있는 template를 확보해 볼 수 있는 접근 방법을 제시하는 것이 본 연구의 주요한 연구 내용으로 볼 수 있을 것으로 사료된다.

참 고 문 헌

1. Hudson, J., Rock Engineering Systems: Theory and Practice, Ellis Horwood, Chichester, 1992.
2. IAEA, International Programme on Biosphere Modelling and Assessment Methods (BIOMASS) Themes for a New Co-ordinated Research Programme on Environmental Model Testing and Improvement, Theme 1: Radioactive Waste Disposal, Theme 2: Environmental Releases, Theme 3: Biospheric Processes, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, 1996.
3. BIOMASS, Alternative Assessment Contexts: Implications for Development of Reference Biospheres and Biosphere Modelling, BIOMASS Theme 1 Working Document: BIOMASS/T1/WD02, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1999a.
4. BIOMASS, Long-term Releases from Solid Waste Disposal Facilities: The Reference Biosphere Concept, BIOMASS Theme 1 Working Document: BIOMASS/T1/WD01, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1999b.
5. BIOMASS, Biosphere System Identification and Justification, BIOMASS Theme 1 Working Document: BIOMASS/T1/WD06, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1999c.
6. BIOMOVs II, Biosphere Modelling for Dose Assessments of Radioactive Waste Repositories, BIOMOVs II Technical Report No.12, Swedish
7. ICRP, Recommendations of the International Commission on Radiological Protection (adopted January 17, 1977), ICRP Publication 26, Pergamon Press, Oxford, 1977.
8. ICRP, Radiation Protection Principles for the Disposal of Solid Radioactive Waste, 2-5 Annals of the ICRP, 15, No.4, ICRP Publication 46, Pergamon Press, Oxford, 1985.
9. H12, Project to Establish Technical Basis for HLW Disposal in Japan, JNC, 1999.
10. Davis, P.A., Zach, R., Stephens, M.E., Amiro, B.D., Bird, G.A., Reid, J.A.K., Sheppard, M.I.,

- Sheppard, S.C. and Stephenson, M., The Biosphere Model, BIOTRAC, for Postclosure Assessment, Atomic Energy of Canada Limited Report, AECL-10720, COG-93-10, 1993.
11. SKB, SKB 91 - Final Disposal of Spent Nuclear Fuel; Importance of the Bedrock for Safety, SKB Technical Report 92-20, 1992.
 12. SKI, SKI SITE-94 Deep Repository Performance Assessment Project, SKI Report 96:36, Swedish Nuclear Power Inspectorate, Stockholm, 1996.
 13. Smith, G.M., Watkins, B.M., Little, R.H., Jones, H.M. and Mortimer, A.M., Biosphere Modeling and Dose Assessment for Yucca Mountain, EPRI Report TR-107190 3294-18, Electric Power Research Institute, California, 1996.
 14. QuantiSci, AMBER 4.0 Reference Guide, QuantiSci Limited, Henley-on-Thames, United Kingdom, 1998.
 15. 보건복지부, 2002 국민건강 영양 조사 영양 조사 부문, 2002.
 16. 보건복지부, 2002 국민건강 영양 조사 계절별 영양 조사, 2002.

One-Step Outflow Method를 이용한 불포화 수리전도도 측정

The Measurement of Unsaturated Hydraulic Conductivity from One-Step Outflow Method

이수홍, 황주호

경희대학교

이재민

고려공업검사

김창락

한국수력원자력(주)원자력환경기술원

요 약

방사성폐기물 처분장의 건설에 가장 중요한 부분 중의 하나는 처분안전성의 확보이다. 처분시스템의 기본적인 기능은 처분된 폐기물을 인간 환경으로부터 완벽하게 고립시켜 처분장 내에 영구적으로 격리시키는 것이다. 토양에서 수리전도도는 핵종의 이동과 밀접한 관련이 있다. 그러나 아직까지 국내에서 불포화 토양에 대한 수리 특성 연구는 많이 부족한 상황이다. 이에 본 연구에서는 빠르고 간단하게 불포화 수리 인자값을 산출하는 방법을 제시한다. 토양수분특성곡선과 수리전도도의 산출은 One-Step Outflow Method를 이용하였다.

Abstract

One of the most important parts in constructing radioactive waste repository may be its safety aspect. The fundamental function of the repository is to isolate completely and forever the radioactive wastes disposed of in it. However, since either normally or abnormally nuclides are to be released from the repository with a certain causes. The hydraulic conductivity is related to transportation of nuclide in soil. However, hydraulic characteristics research in unsaturated soil is not enough at present time. A fast and easy procedure for estimating unsaturated flow parameters is presented. The estimation is based on direct measurement of the retention characteristics combined with inverse estimation of the hydraulic conductivity characteristics from one-step outflow experiment.

1. 서 론

방사성폐기물 처분장의 건설에 가장 중요한 부분 중의 하나는 처분안전성의 확보이다. 처분안전성을 평가하기 위해서는 처분부지에 대한 정확한 특성 평가가 필요하다. 국내의 처분시설 성능평가 관련 규정⁽¹⁾⁽²⁾에는 불포화대의 해석을 요구하고 있으나 많은 연구에서 방사성폐기물 주변 토양을 포화상태로 가정하여 환경영향 평가를 수행하였다. 그러나 실제 토양은 지표에서 지하수대까지 불포화대로 구성되어 있다. 이에 국외의 경우 불포화대 특성 자료의 데이터베이스를 개발하여 활

용하는 상태이나⁽³⁾ 현재 국내의 경우 포화대의 연구는 많이 수행된 반면 불포화대 연구는 미흡한 실정이다. 이에 따라 불포화대 매질 특성 실험을 통한 자료의 확보가 필요하다. 특히, 현재 방사성 폐기물 처분사업이 가시화됨에 따라 국내 환경에 맞는 자료 개발 및 국내 기술력 확보가 절실히 요구된다.

이에 따라 국내 특성에 맞는 대표적인 불포화대에서의 이동특성자료의 실험법을 정립하고 특성 실험을 통하여 불포화 매질 특성자료를 분석을 통해 확보할 필요가 있다.

현재 원자력환경기술원에서는 천층처분 실증시설을 건설하여 처분장 성능에 관한 실증 시험을 하고 있으며, 처분장의 불포화 매질에서 핵종 이동 특성에 관한 연구를 진행하고 있다. 본 연구에서는 처분장 실증 시설의 모래 매질을 사용하여 불포화 매질의 토양수분특성곡선 및 불포화 수리전도도 측정을 하고 국외의 관련 문헌값과 비교해 보고자 한다.

2. 본 론

(1) 토양 특성 및 핵종 이동

지표아래의 모든 물을 통칭하여 지하수라 하며, 지표 위의 물을 지표수라 한다. 지하수는 2개의 지역에서 산출된다. 하나는 지표 바로 아래에서 지하수대까지의 부분으로 물과 공기를 포함하고 있으며 불포화대라고 한다. 불포화대 아래는 모든 공극이 물로 가득한 포화대가 있다.⁽⁴⁾

토양에서 핵종의 이동은 주로 물의 흐름과 밀접한 관계가 있는데 불포화 토양에서는 포화 토양에 비해 물의 흐름 속도가 늦고 이에 따라서 핵종의 이동 속도도 늦어지게 된다. 방사성 핵종의 이동을 나타내는 방정식은 식①과 같다.⁽¹⁰⁾

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{D}{Rd} \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \frac{V}{Rd} \frac{\partial C}{\partial x} - \lambda C \quad \text{-----} \quad \text{①}$$

C : 핵종의 농도, D : 분산계수, Rd : 지연인자,
 V : 지하수의 이동속도, λ : 핵종의 붕괴상수

지하수의 이동속도 외에도 토양에 대한 흡착성 등이 핵종 이동 속도와 연관성을 가지게 되나 토양은 항상 수분을 함유하고 있는 것을 고려했을 경우 물의 흐름이 토양에서 핵종의 이동 속도와 밀접하게 연관을 가질 수 있다.

처분 시설의 방사성폐기물 고화체로부터 침출되어 나온 방사성핵종은 처분시설 하부의 불포화대를 통과하여 지하수대에 도달, 지하수를 통하여 이동한다. 따라서 지하수대에 도달하기 전까지 불포화대에서 방사성 핵종의 이동 특성은 처분안전성 평가에 중요한 자료이며, 이는 불포화대에서 수리특성과 밀접한 관계가 있다.

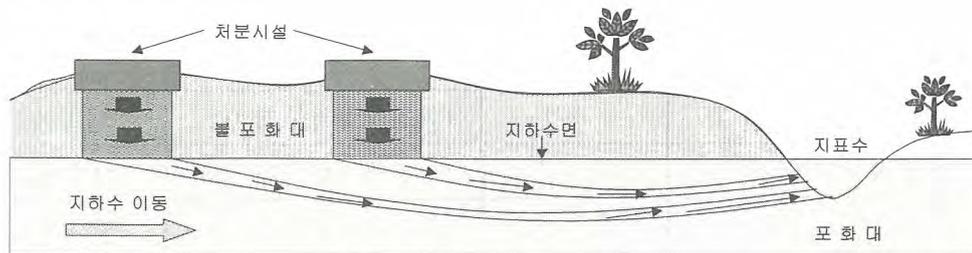


그림 1. 처분장 토양에서 핵종 이동 경로

(2) 불포화 수리전도도 실험

Kool 등은(1985년) one-step outflow method을 위한 Richard 방정식의 수치해석을 통해 역해

기법을 처음으로 적용하였다. 그리고 Parker 등은(1985년) 네가지 종류의 토양에 대한 one-step outflow method 실험을 수행하였으며 포화도에 따른 토양의 수리전도도 함수와 토양수분 특성 곡선에 대한 평가를 하였다⁽⁵⁾.

본 실험에서 one-step outflow method를 이용한 불포화 수리전도도 실험장치의 구성은 다음 그림과 같다.

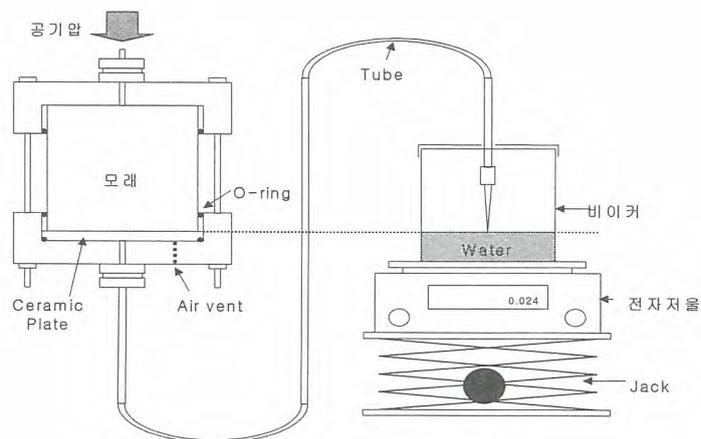


그림 2. 불포화 수리전도도 실험장비 구성도

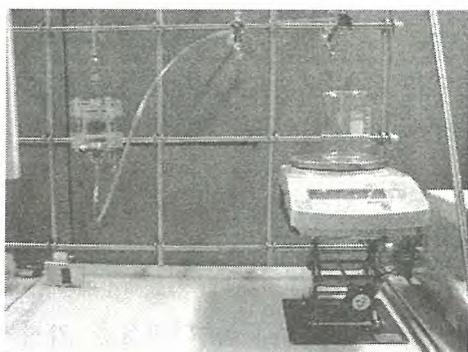


그림 3. 불포화 수리전도도 실험장치

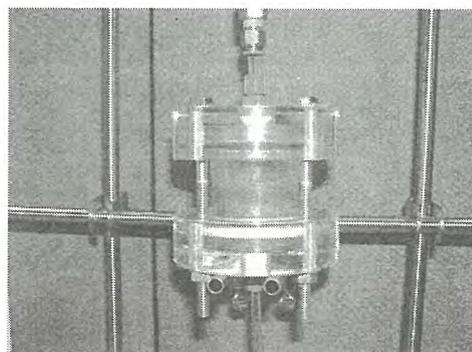


그림 4. 실험장치 중 셀럼

매질의 기본적인 특성값은 KS토질시험규격에 의거해서 산출하였으며, KS토질시험규격에 제시가 안 된 부분에서는 ASTM을 적용하였다. 본 실험의 매질로 사용된 모래의 기본 특성 및 기본 실험값은 다음 표1과 같다. 본 실험에 사용한 매질은 천층처분장 실증시설에 사용된 모래로서 현장 시료 실험 방법에 의거하여 #200번 체에 체질하여 얻은 것을 사용하였다⁽⁶⁾.

항목	모래	항목	모래
겉보기밀도 (g/cm^3)	1.571	실험전매질의무게 (g)	913.02
매질 부피 (cm^3)	64.935	실험후매질의무게 (g)	897.86
매질 높이 (cm)	4.083	실험 전 함수비	0.385
건조 무게 (g)	102.03	실험 후 함수비	0.151
압력 (kPa)	100		

표 1. 모래의 기본 토질 특성 및 실험값

포화수리전도도를 통하여 불포화 수리전도도 이론값을 산출하기 위한 식은 일반적으로 Mualem-van Genuchten model (MVG model)을 사용한다. 다음은 수리전도도를 구하기 위한 MVG Model 식이다. 식④는 포화수리전도도를 통하여 계산하는 불포화 수리전도도 식이며, 식②, ③은 함수량을 통하여 토양수분특성곡선을 구하는 식이다. 각 식에서 사용하고 있는 인자들은 실험에 의한 경험값이며, K_s 는 포화수리전도도이다⁽⁷⁾.

$$S_e = (\theta - \theta_r) / (\theta_s - \theta_r) \quad \text{-----} \text{②}$$

$$h(S_e) = [(S_e^{-1/m} - 1)^{1/n}] / \alpha \quad \text{-----} \text{③}$$

$$K(S_e) = K_s S_e^\lambda [1 - (1 - S_e^{1/m})^m]^2 \quad \text{-----} \text{④}$$

$$m = 1 - 1/n$$

다음 그림 5의 “MVG Model”에서 제시한 모래의 토양수분 특성곡선이며, “실험 1”은 One-Step Outflow Method를 통하여 얻은 토양 특성값을 식 ③, ④에 적용하여 계산한 토양수분 특성곡선이다. “실험 2”는 suction 실험에 의해 구한 토양 수분 특성곡선이다. 토양수분곡선은 함수비에 따라 매질이 대기압 이하의 압력을 가지는 것을 나타낸 것으로 불포화 수리전도도를 계산하는데 있어 기본적으로 필요한 값을 제시한다.

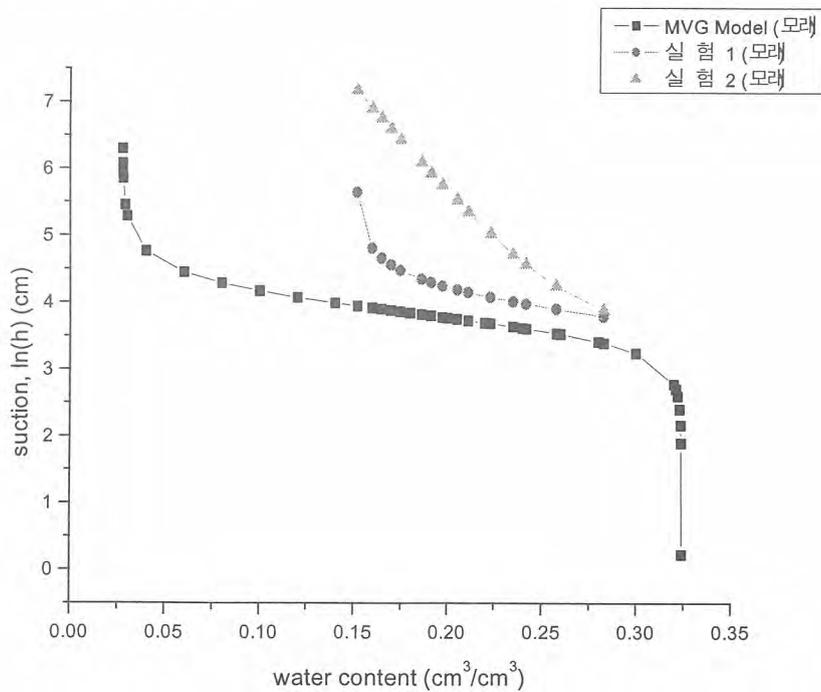


그림 5. 함수비에 따른 토양수분 특성곡선

그림 6은 MVG Model을 적용하여 포화수리전도도로부터 계산한 불포화 수리전도도와 실험을 통하여 얻은 실험값을 MVG Model에 적용(실험 1)하여 계산한 불포화 수리전도도, 그리고 One-Step Outflow Method의 결과를 suction 실험을 통하여 얻은 토양수분 특성곡선에 적용하여 불포화수리전도도(실험 2)를 계산한 그래프이다.

외국의 관련 연구⁽⁸⁾에서 토양특성에 따라 토양수분 특성곡선과 수리전도도 값이 큰 차이가 나타

내는 것을 보여주고 있다. 모래 매질의 경우 모래 입자의 크기나 입도에 따라서 결과값이 큰 차이를 나타낸다. 본 실험의 결과를 외국 문헌에서 제시하는 모래의 불포화 수리전도도와 비교하였을 때 결과값의 차이가 약간 나타나 이는 각 실험별로 사용하는 매질의 차이에 기인한 것으로 판단된다. 본 실험의 경우 천층처분 실증시설의 모래 매질을 사용하여 현장시험방법을 적용하였지만 외국 문헌의 경우 순수 모래만으로 실험을 하였다. 본 실험의 모래 매질은 현장 시료로 소량의 다른 토양이 섞여 있을 수 있으며, 이것이 토양수분 특성곡선과 수리전도도 측정에 있어서 오차를 만들어 냈다고 판단된다.

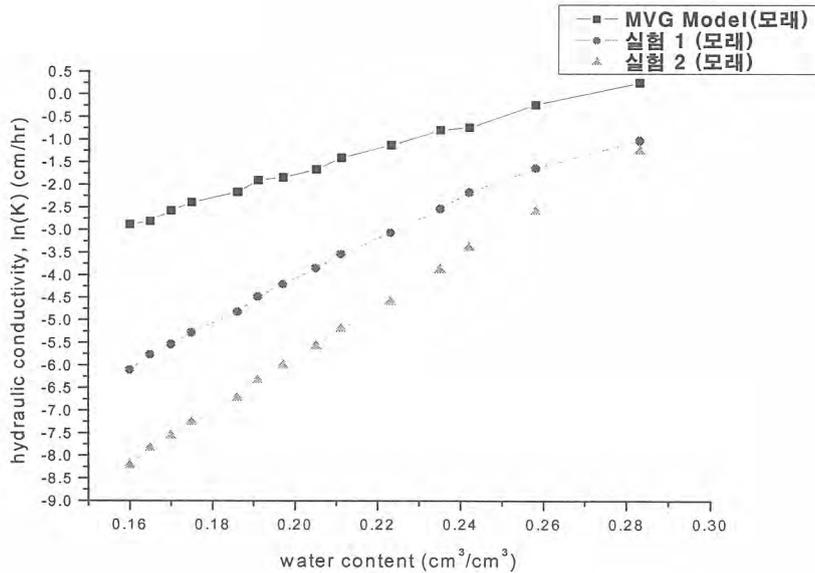


그림 6. 함수비에 따른 불포화 수리전도도

3. 결론 및 향후연구

본 실험에서는 불포화 매질에서의 수리전도도 측정을 위하여 One-step outflow method를 사용하였다. 이 방법은 가압된 공기를 통하여 인공적으로 불포화 조건을 만들 수 있어 기존 실험 방법에 비해 실험시간을 단축시키면서도 만족할만한 결과를 얻을 수 있다. MVG method과 실험값의 결과를 비교했을 때 보이는 차이는, 같은 모래라도 약간씩 매질의 특성이 다른 것에 기인한 것으로 판단된다. 수학적 모델링을 통한 실험식은 많은 불포화 수리 특성 연구를 통하여 만들었지만, 이는 실제 매질 실험을 통하여 얻은 값과 차이를 나타낸다. 특히, 같은 매질에서도 약간의 매질 특성 차이가 결과값에 큰 영향을 주기 때문에 수학적 모델링은 예측과 참고의 자료로 활용이 가능하나 정확한 데이터를 얻기에는 무리가 있다.

본 실험에서는 One-step outflow method를 적용하여 불포화 수리전도도를 측정하였으나 최근 들어 기존 방법의 단점을 보완한 Multi-step outflow method⁽⁹⁾가 많이 사용되고 있다. One-step outflow method는 실험초기에 매질 내의 물이 급격히 빠져나오는 경향이 크며 이는 실험의 전반적인 결과에 영향을 미치게 된다. 그러나 Multi-step outflow method는 그러한 단점을 보완하면서도 기존 실험 방법의 장점은 가지고 있다. 이에 추후 Multi-step outflow method를 본 실험에 적용하여 두 method 사이에서 결과값의 차이를 분석하고자 한다. 또한 반복된 많은 실험을 통하여 평균화된 적정값을 제시하고자 한다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부에서 주관하는 2003년도 원자력연구개발 중장기 연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

참 고 문 헌

1. "10 CFR 60. Disposal of high level radioactive waste in geologic repositories" , NRC, USA
2. "중·저준위 방사성폐기물 처분장 부지특성보고서 작성지침" 과학기술부 고시 제 94-4호
3. M.G. Schaap, P.J. Shouse, P.D. Meyer, "Laboratory Measurements of the Unsaturated Hydraulic Properties at the Vadose Zone Transport Field Study Site", 2003, PNNL-14284, DOE
4. Jan W.Hopmans, Graham E.Foqq "Soil Water Flow Under Saturated Conditions" University of California Davis
5. T.W.Green, Z.Paydar, H.P.Cresswell, R.J.Drinkwater, " Laboratory Outflow Technique for Measurement of Soil Water Diffusivity and Hydraulic Conductivity", 1998, CSIRO,AUSTRALIA
6. 이송, "(실용)토질시험법 및 해설", 2001, 청운문화사
7. J.C.van Dam, J.N.M.Stricker, Droogers, "Inverse Method for Determining Soil Hydraulic Functions from One-Step Outflow Experiments" ,1992, SOIL SCI.SOC.AM.J.,VOL.56
8. D.Wildenschild 외 5, "Unsaturated Hydraulic Parameters Combining Direct and Indirect Measurement. II . Hydraulic Conductivity", Technical University of Denmark
9. J.C.van Dam, J.N.M.Stricker, Droogers, "Inverse Method for Determining Soil Hydraulic Functions from Multi-Step Outflow Experiments" ,1992, SOIL SCI.SOC.AM.J.,VOL.56
10. 김필성, 황주호, "벤토나이트-모래 혼합 뒷채움재에서의 핵종 이동 민감도 분석" 경희대학교, '92추계원자력학회학술발표회논문집

Artificial Rainfall Test of the Engineered Cover Barriers for Near Surface Disposal of LILW

Jin Beak Park, Se Moon Park and Chang Lak Kim
Nuclear Environmental Technology Institute
Korea Hydro & Nuclear Power Co., LTD.

ABSTRACT

Engineered barrier test facility is specially designed to demonstrate the performance of engineered barrier system for the near-surface disposal facility under the domestic environmental conditions. Comprehensive measurement systems for the water content, temperature, matric potential are installed within each test cell. In this study, short-term monitoring of the behavior of multi-layered cover system is implemented with artificial rainfall system. The periodic measurement data are collected and analyzed by a dedicated database management system, and provide a basis for performance verification of the disposal cover design.

1. Introduction

Former simple trench type of near surface disposal facility showed many problems regard to radiological safety aspect. To overcome these safety problems, multiple layered landfill cover systems which can limit surface water infiltration into the radioactive waste package were suggested and included in regulatory requirement from 1980's [1] .

Specifically designed landfill cover systems are adjusted for near surface radioactive disposal facility at several nations such as England, France and Spain. These cover systems are designed focused on the domestic environmental conditions of each nation.

In Korea, conceptual design of the engineered barrier cover system for the near surface disposal facility was implemented [2]. As an experimental validation purpose of our previous conceptual design works [2], construction of the engineered barrier test facility is recently completed and performance tests of the disposal cover system are being actively conducted.

The work scope of this engineered barrier test facility can be summarized as: (1) detailed engineering design and construction of facility, (2) analysis of the cover system performance by preliminary computer simulation and (3) long- and short-term validation experiments of

the cover system and data analysis.

Artificial rainfall test was started from Oct. 21 2003 to the end of Nov. 2003. In this paper, procedures of short-term artificial rainfall test will be described and the test result will be discussed.

2. Conceptual Design of Near Surface Disposal Facility

The conceptual design of vault type disposal facility was conducted at NETEC from 1998 to 2000 along with a preliminary safety assessment of the near surface disposal facility. Fig. 1 shows the conceptual design of multi-layer disposal cover for the LILW disposal facility.

The cover material type and functions of each layer in the conceptual repository design are as follows:

- (1) The function of top soil layer is to support the growth of vegetation and thereby promote evapotranspiration, to prevent soil erosion, and to temporarily intercept and store moisture for later removal by evapotranspiration.
- (2) Protective layer 1 is gravelly sand layer designed to function as top soil layer, except that this layer acts as a filter to prevent migration of top soil into underlying gravel.
- (3) Protective layer 2 is the protective layer made of a pea gravel. Its function is to protect underlying layers from degradation through repeated freeze/thaw cycle, repeated excessive wetting/drying, and plant roots or animal intrusion.
- (4) Drainage layer 1 and 2 are designed to facilitate the lateral drainage and prevent head build up over the underlying asphalt and geosynthetic membrane.
- (5) Asphalt and geosynthetic membrane layers, respectively, are designed to act as an artificial barrier to minimize water infiltration into the underlying materials. High density polyethylene was assumed as geomembrane material.
- (6) Finally, barrier layer is consisted of clay of mixture of 20%-bentonite and 80%-sand to limit the water infiltration flux to be very low.

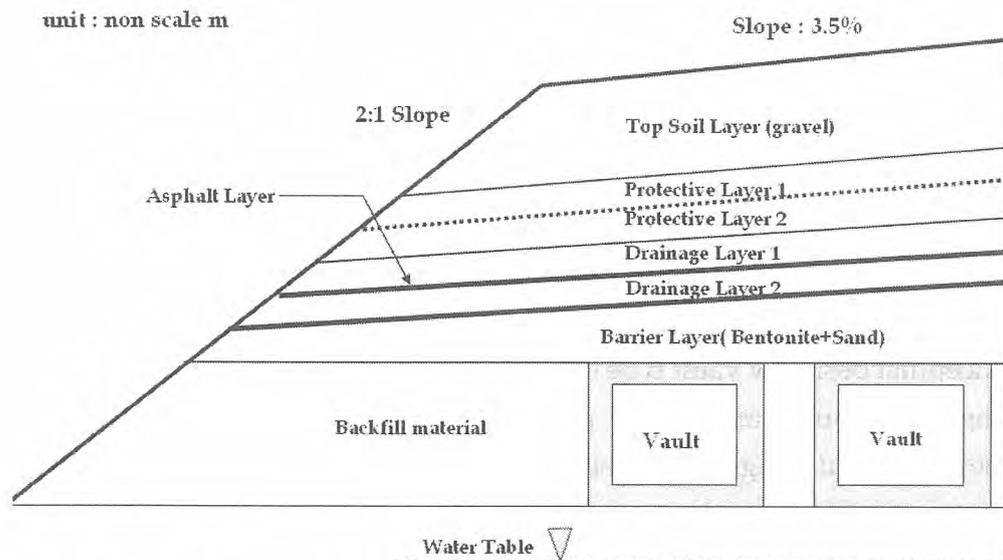


Figure 1 Conceptual design of multi-layered disposal cover for the LILW disposal facility

3. Engineered Barrier Test Facility

A. Disposal Test Cell

Disposal test facility has two floors. Facility has six test cells in which multipurpose working space and a corridor are in the upper floor and disposal information space for PR center assuring the safety of LILW disposal in the lower floor. Layout of this test facility is depicted in Fig. 2.

Two types of test cells are installed to simulate the degradation of the asphalt and geomembrane and denoted, respectively, as T1 (Type 1-with asphalt and geomembrane) and T2 (Type 2-without asphalt and geomembrane). Detailed configurations of T1 and T2 cells are shown in Fig. 3.

Fig. 2 shows that symmetrical allocation of T1 (T1w and T1n) with destructive sampling cell (denoted as Ds) in left hand side and T2 (T2w and T2n) cell with In-situ test cell (denoted as Is) in right hand side. This division is to test abnormal and normal rainfall (precipitation) situation for each test cell. Abnormal wetting test can be simulated in short-term experiment with artificial rainfall system which is installed with motor driven pump and water storage tanks.

B. Detection system

Soil water contents and temperature of each cover layer are measured with Time Domain Reflectometry (TDR). Total 108 numbers of TDR sensors are installed and 72 tensiometers measure the matric potential of each cover layer. All TDRs and

tensiometers are connected to the multiplexer for collecting the detected data. Datalogger system of CR10X (measurement and control system) is installed in wiring panel and is connected to personal computer, at which management software (i.e. PC208W) is installed and control the result data processing.

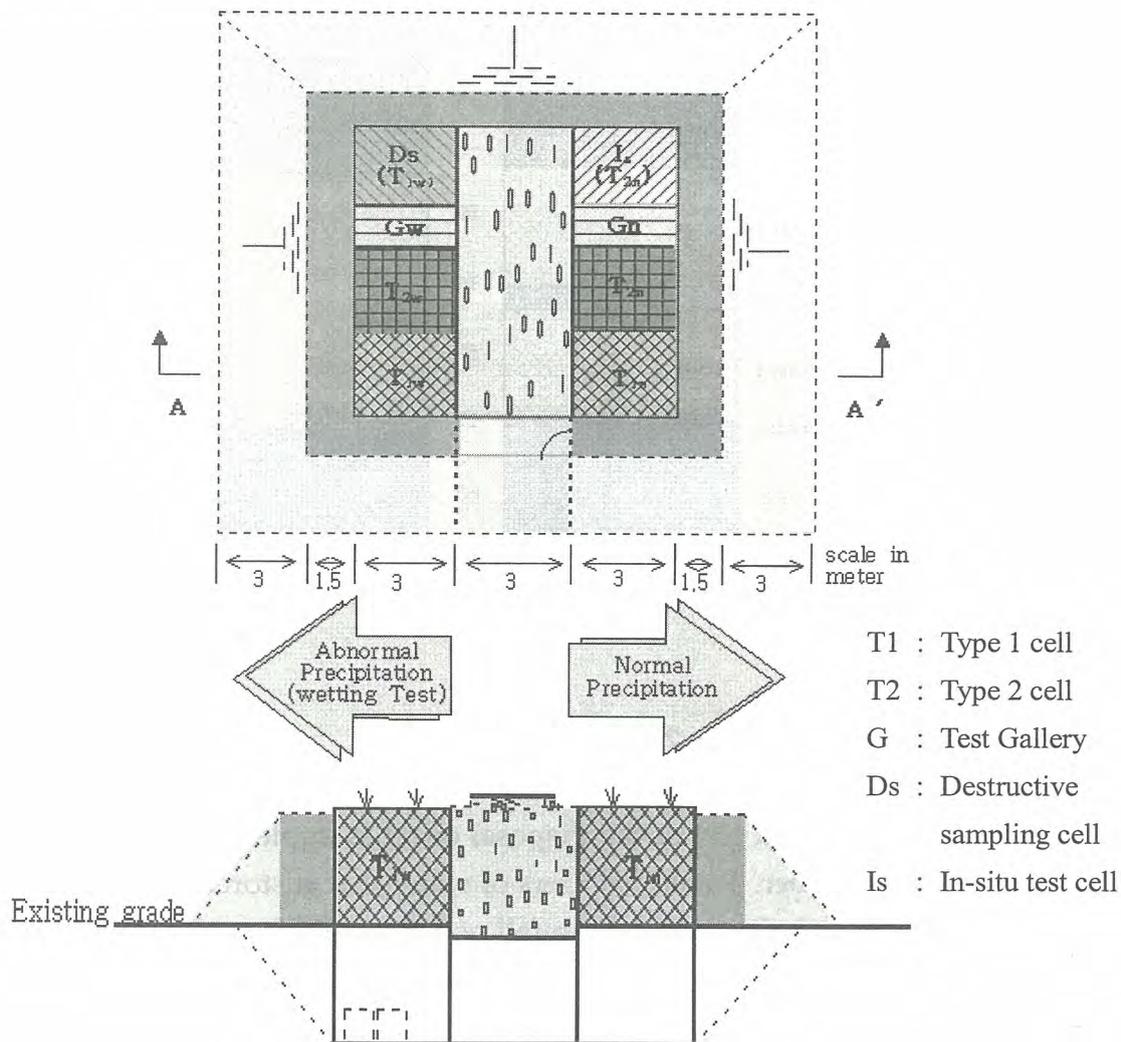


Figure 2 Layout of disposal test facility

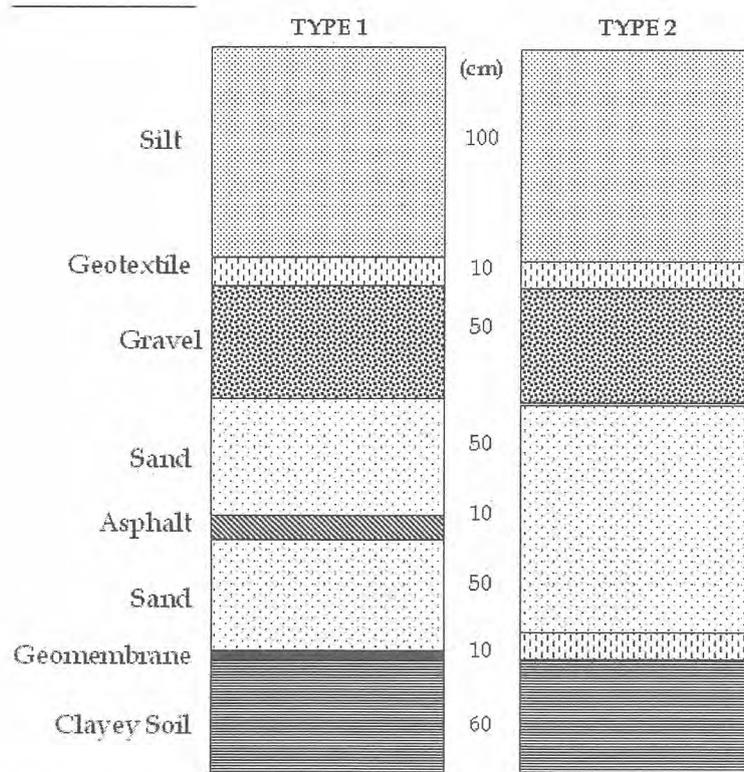


Figure 3 Cross section of Type 1 and Type 2 test cell

4. Artificial rainfall test of Type 2 Cell

Short-term artificial rainfall test of the disposal cover is implemented from 21 Oct. 2003 to the end of November. Total 1800 liters of water that is stored in water storage tank is poured out through the artificial rainfall nozzles into T2w cell during 5 hours. Fig. 4 shows the variation of measured water content of this short-term rainfall test.

In this experiment, initial water content in % of top soil layer is measured about 43% (at 290 cm) and 48% (at 310 cm). After the artificial rainfall system start to rain at 3.0 day in Fig. 4, peak value of water contents reaches rapidly to 68 % (at 310 cm) and 55% (at 290 cm) within a day and then water content profile decreases slowly.

Upper drainage layer (sand) at 150 cm and low drainage layer(sand) at 90 shows relatively small peak. Initial water content of upper layer is initially very low indicating at 37%. After the artificial rainfall, profile of upper sand, 150 cm, starts to increase to reach at maximum value, 43%, and then decreases more slowly. By contrary to upper drainage layer, low drainage layer shows initially high water content. This is due to the clay barrier layer just beneath the low drainage layer. Clay layer shows its water content to be close to full-saturation value. Lower drainage profile shows small peak of water content and then return to previous value within

several hours.

Drainage layer shows the satisfactory performance as intended in the design stage. It is investigated in Fig. 4 that no more increase of water content in barrier layer and prompt return to previous value in low drainage layer.

Table 1 shows the accumulation of lateral drainage from upper and lower part of drainage layer. Table 1 shows the prompt increase of water volume initially and then reaches to its plateau. This means that a half of artificial rainfall water (about 900 l) flows to lateral drainage system and another half of rainfall water is used to increase the water content of top soil material mainly. Volume of top soil is more than 1400 liters (1.2m x 1.2m x 1.0m(H)). Small portion of rainfall water is supposed to stay in sand drainage layer.

Fig. 5 indicates that there is no relation between the rainfall and temperature of layers. From Fig. 6, higher variations of matric potential within top soil layer are observed than within the drainage layer. This is due to 1) water infiltration of top soil is dominant during the test and 2) lateral drain within lateral drainage layer is dominant than the downward infiltration.

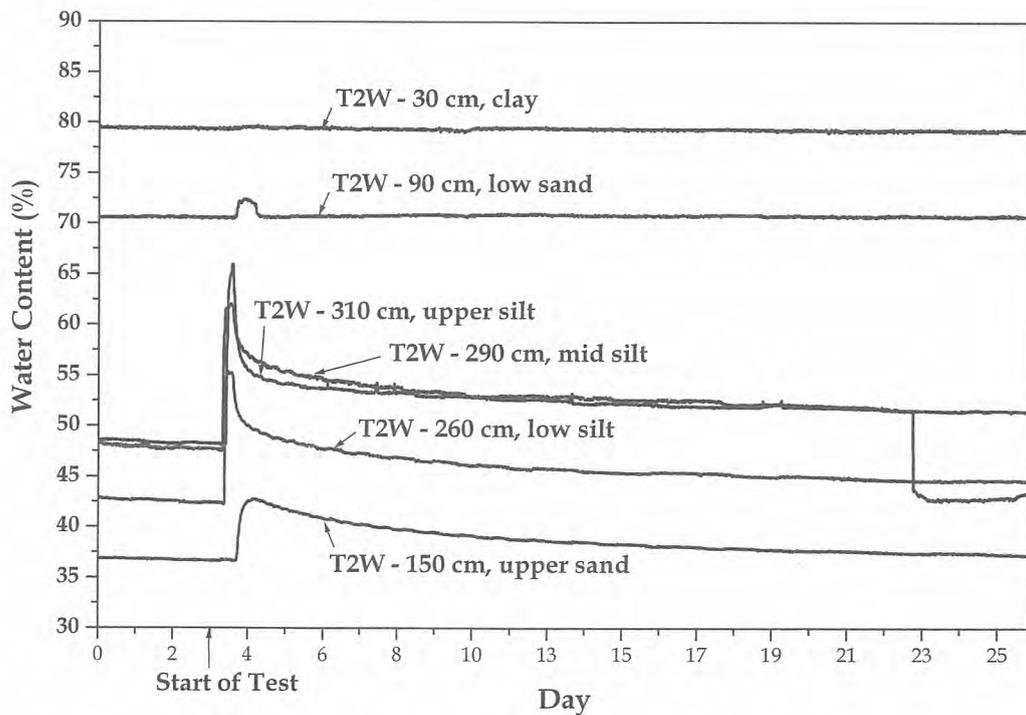


Figure 4 Variations of water content within engineered barriers

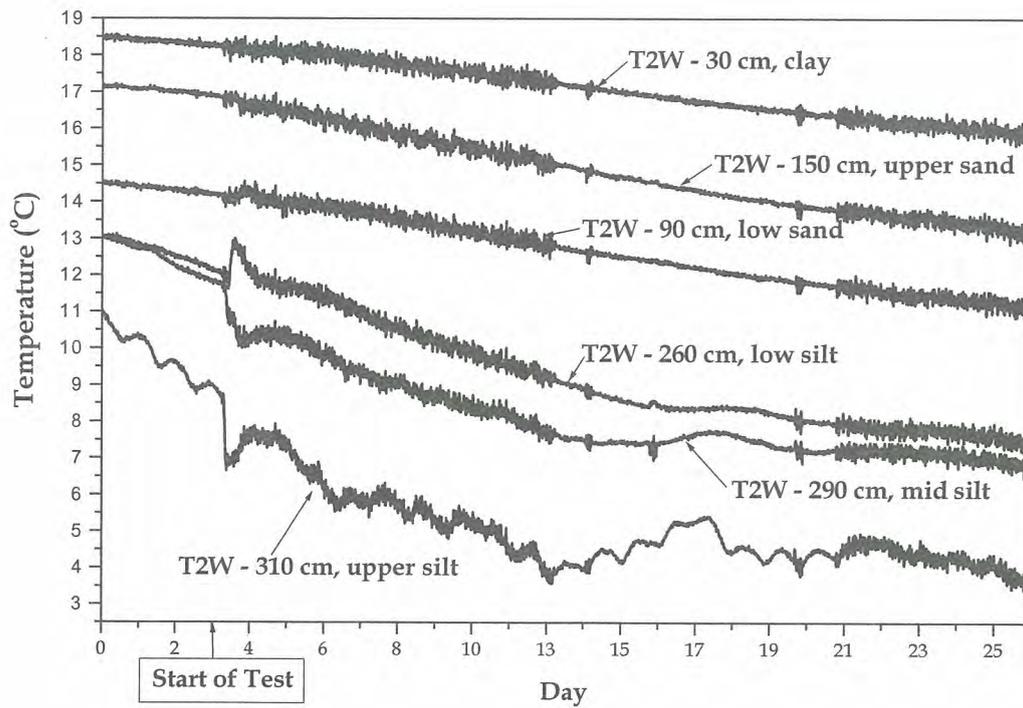


Figure 5 Variations of temperature within engineered barriers

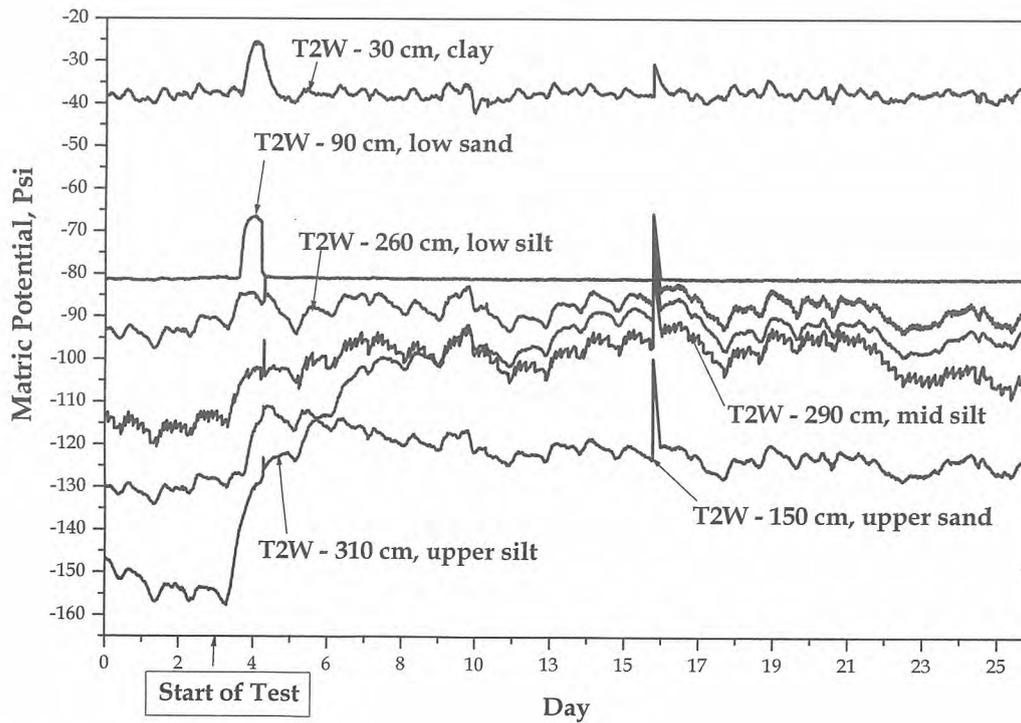


Figure 6 Variations of matric potential within engineered barriers

Table 1 Results of accumulated lateral drainage water volume

Measurement Time	Accumulated drainage water volume (liter)
2003-10-22 (11:30)	237.6
2003-10-23 (16:00)	511.2
2003-10-25 (10:00)	648.0
2003-10-25 (15:00)	662.4
2003-10-26 (17:00)	720.0
2003-10-27 (09:00)	748.8

5. Conclusions and Further Study

Engineered barrier test facility is prepared for the validation purpose of the conceptual design of near surface disposal of LILW in KOREA. This facility is composed of 6 test cells which are to demonstrate the ability of each cover layer under the natural domestic rainfall and artificial rainfall. Comprehensive measurement systems for the water content, temperature, matric potential are installed within each test cell.

During the artificial rainfall test, it is found that 1) drainage layer shows the satisfactory performance as intended in the design stage, 2) there is no relation between the rainfall and temperature of cover layers, 3) a half of artificial rainfall water (about 900 l) flows to lateral drainage system and another half of rainfall water is used to increase the water content of top soil material mainly, 4) Higher variations of matric potential within top soil layer are observed than within the drainage layer.

Similar artificial rainfall tests with Type 1 cell are scheduled. Comparison of test results between type 1 and type 2 cells will be reported.

6. Acknowledgements

This work has been carried out as a part of National Research Laboratory (NRL) program financially supported by the Ministry of Science and Technology (MOST), Korea

7. References

- [1] Hakonson, T.E., *Capping as an Alternative for Landfill Closure-Perspectives and Approaches in the United States*. 1998, IAEA: Advisory Group Meeting Report.
- [2] Kim, C.L., *Conceptual Design of the Disposal Facility for Low and Intermediated*

- Radioactive Waste*. 2000, Nuclear Environment Technology Institute (NETEC).
- [3] Schroeder, P.R., et al., *The Hydrologic Evaluation of Landfill Performance (HELP) Model: User's Guide for Version 3*. 1994, U.S. EPA: Washington, DC.
- [4] Kim, C.L., et al. *Research Plan for LILW Near Surface Disposal Test Facility*. in *1st Workshop on Safety and Performance Validation of LILW Near Surface Disposal Facility*. 2001. Nuclear Environment Technology Institute (NETEC).

심지층 처분시설 설계를 위한 처분터널 및 처분공 간격 분석

Analysis of the Disposal Tunnel Spacing and Disposal Pit Pitch for the HLW Repository Design

이종열, 김성기, 김진용, 최종원, 한필수
한국원자력연구소

요 약

본 연구에서는 고준위 방사성폐기물 심지층 처분시설의 규모 및 layout 설정에 필요한 요소인 처분터널 및 처분공 간격에 대한 분석을 수행하였다. 이를 위하여, 기존 처분개념 및 공학적 방벽 개념을 바탕으로 처분터널 및 처분공 단면을 설정하고, 단층 및 복층 개념에 따른 처분동굴의 구조적, 열적 안정성을 분석하였다. 분석 결과를 바탕으로 설계에 있어서 주요한 인자 중의 하나인 굴착량을 최소화할 수 있는 처분동굴 및 처분공 간격을 제안하였다. 향후, 부지에 대한 불확실성을 줄이기 위하여 정확한 부지특성 자료를 통한 상세한 분석이 필요하다.

Abstract

In this study, analysis of the disposal tunnel spacing and disposal pit pitch was carried out, as a factor of the design to estimate the scale and layout of the repository. To do this, based on the reference repository concept and the engineered barrier concept, the cross section of the disposal tunnel and disposal pit are established and the mechanical and thermal stabilities of the tunnels are analyzed. Also, the optimized disposal tunnel spacing and the disposal pit pitch which minimize the excavation volume was proposed. The detailed analyses by the exact site characteristics data are needed to reduce the uncertainty of the site in the future.

1. 서 론

고준위 방사성폐기물 처분의 목표는 일정 기간동안 인간 생활권으로부터 고준위폐기물을 완전 격리하는 것이며, 이러한 목표를 달성하기 위하여 우리나라를 비롯한 세계 각 국에서 심지층 처분시스템 개발 연구가 활발하게 진행되고 있다. 고준위폐기물은 핵연료주기에 따라 다르게 표현될 수 있는데, 사용후핵연료 재활용주기의 경우 고준위폐기물은 사용후핵연료를 재처리하는 과정에서 발생하는 악티나이드/핵분열 생성물 등을 함유하는 폐기물을 말하며, 직접 처분주기의 경우는 사용후핵연료 자체가 처분대상 고준위폐기물이 된다.

본 연구에서는 방사선원항 및 열원항 관점에서 보다 보수적일 것으로 판단되는 사용후핵연료를 처분대상으로 고려하여, 이를 심지층에 처분할 경우 시설 규모 및 lay-out 개념을 추정하기 위한 처분터널 및 처분공의 간격을 설정하였으며, 이에 필요한 근거 자료를 얻기 위하여, 지하 터널의

구조적, 열적 안정성 분석을 수행하였다. 분석에 필요한 자료로는, 기준 처분개념 및 공학적 방벽 개념에 따라 지하시설 각 터널에 대한 단면을 설정하고 단층 또는 복층 처분개념을 도입한 처분 터널 및 처분공 간격을 설정하여 분석의 입력자료로 활용하였다. 또한, 분석된 결과를 바탕으로 하여 지하시설 설계 주요인자 중의 하나인 경제성 관점에서 굴착량을 최소화하는 처분터널 및 처분공 간격을 제안하였다.

2. 기준 처분 개념 및 터널 단면 설정

2.1 기준처분 및 공학적 방벽 개념

지하 처분시설 배치개념 설정시 폐기물 거치 간격과 터널 간격을 적절하게 조합하는 것이 필요하며, 그림 1.은 처분 터널의 사양 및 폐기물 포장물 거치 간격을 결정하는 절차를 나타내고 있다.

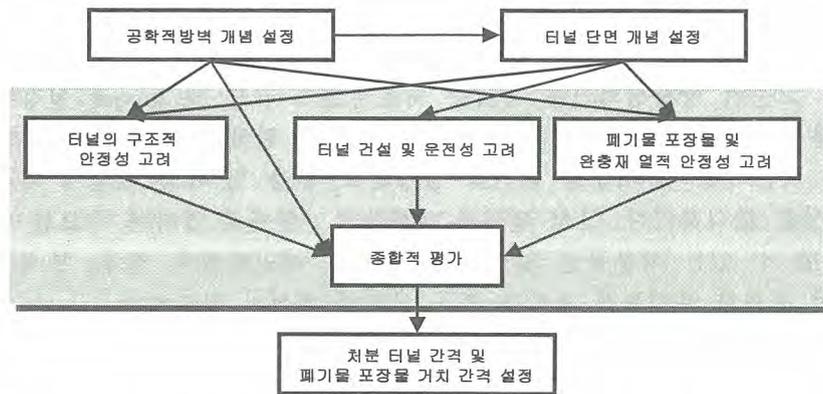


그림 1. 처분터널 사양 및 폐기물 포장물 거치 간격 결정절차

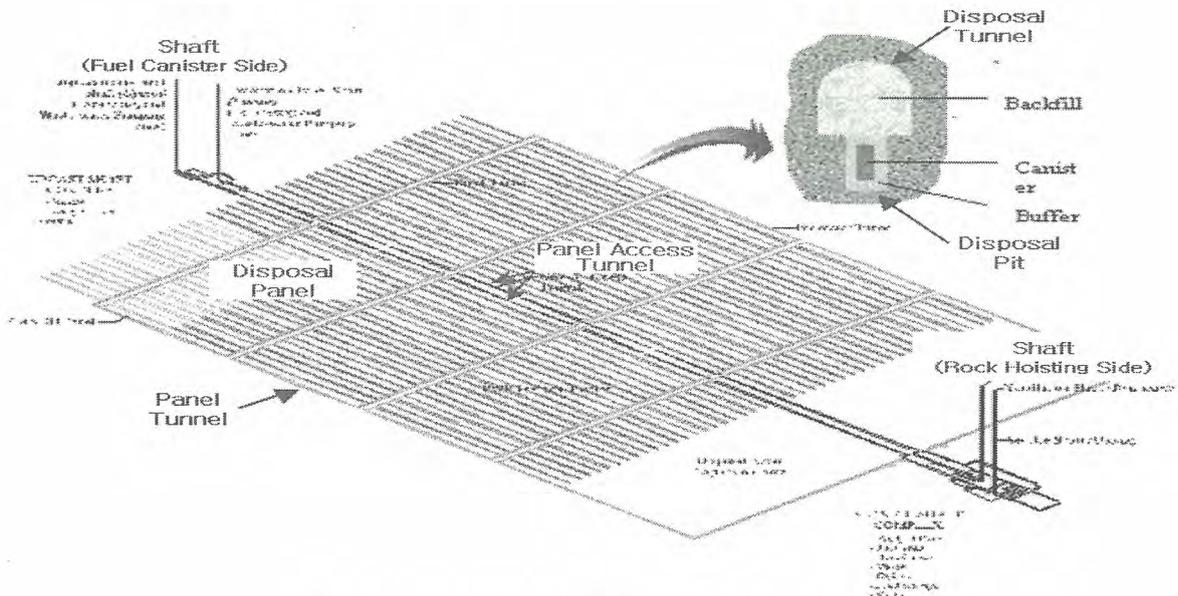


그림 2. 기준 처분시스템 및 공학적 방벽 개념

처분 터널 간격과 폐기물 포장물 거치 간격은 처분 터널 또는 처분 피트의 단면을 근거로 설정

되며, 형상과 규모는 공학적 방벽 개념을 고려하여야 한다. 그림 2.는 사용후핵연료 심지층처분을 위한 기준 처분개념을 나타내고 있으며, 진입 샤프트, 접근 터널, 파넬터널, 처분터널 및 처분공으로 구성된다. 또한, 공학적 방벽 개념은 그림에서 보여주는 바와 같이 처분용기, 버퍼물질, 되메움 물질 등으로 구성된다.

2.2. 터널 단면 설정

지하 처분시설은 수행하는 기능에 따라 접근터널, 파넬터널, 처분 터널 및 처분 피트로 구성되며, 각 터널의 단면은 형상과 요구되는 기능을 수행하기 위해 필요한 크기로 구성된다. 터널 형상에 영향을 주는 인자는 구조적 안정성, 건설/운전/폐쇄 용이성 및 경제성이다. 다음 요건이 고려되어야 한다.

- 구조적 안정성 : 지하시설 굴착은 구조적으로 안정하고 굴착으로 인한 변형이 최소화 하도록 하여야 함.
- 작업용이성 : 건설, 운전 및 폐쇄가 안전하고 용이하게 수행되어야 함.
- 경제성 : 요구되는 단면은 굴착량을 가능한한 최소화하도록 하여야 함.

표 1은 지하처분시설을 구성하는 터널별 기능 및 크기를 나타내며, 그림 3.은 위의 요건을 고려하여 설정한 처분 터널의 단면 예를 나타내고 있다.

표 1. 처분시설 터널별 기능 및 크기

구 분	기능	Size	비 고
진입 샤프트	지상시설에서 지하시설로의 진입 (폐기물, 버력, 작업자, 환기 등)	3 m(Φ) ~ 6 m(Φ)	
접근 터널	처분 파넬로의 접근	7 m(W) x 7 m(H)	
파넬 터널	처분 파넬 주변 터널	6 m(W) x 7 m(H)	
처분 터널	처분공이 굴착되는	5 m(W) x 6 m(H)	
처분 피트	사용후핵연료가 정치되는 처분공	2.22 m(Φ) x 6.837 m(H)	

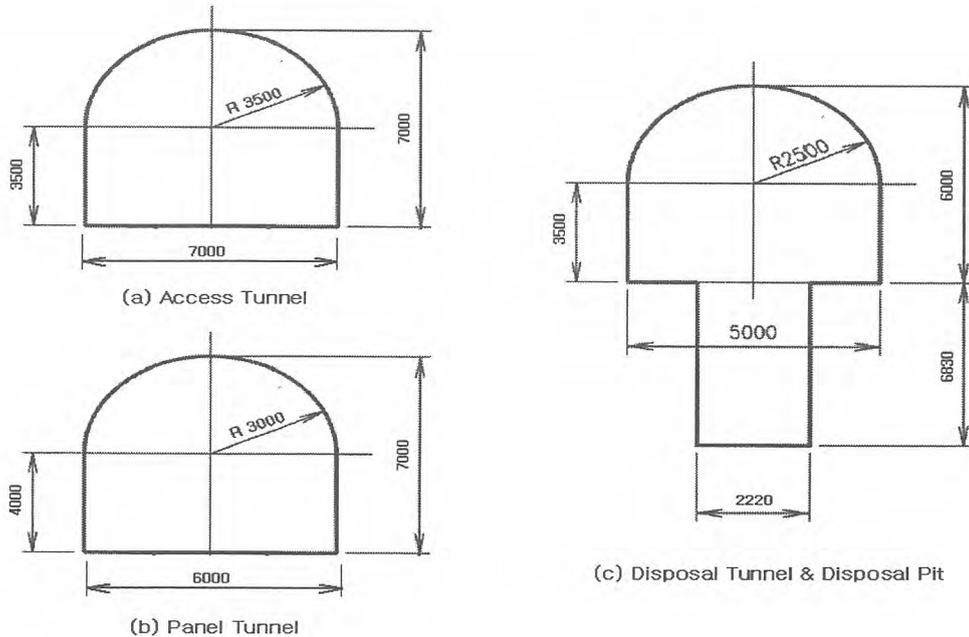


그림 3. 처분시설 주요터널 형상 및 단면

3. 폐기물 당 점유면적 및 구조적/열적 안정성 분석

3.1. 폐기물 당 점유면적

폐기물 거치 간격과 터널 간격의 적절한 조합에 필요한 분석 및 처분시설 규모 추정을 위하여, 그림 4.에서 보여주는 바와 같이 터널 간격과 폐기물 거치 간격간의 면적을 고려한 폐기물 포장물 당 점유면적 개념을 설정하였다. 고준위폐기물 처분을 위한 지하시설의 개략적인 규모는 폐기물 당 점유면적과 처분될 총 폐기물 포장물의 수를 곱하여 추정할 수 있다. 또한, 개략적인 처분 터널의 총 길이는 처분될 폐기물 포장물의 수와 폐기물 포장물 거치 간격의 곱으로 추산이 가능하다. 경제성 관점에서 볼 때, 지하 처분시설의 면적을 최소화 할 수 있도록 처분 터널 간격과 폐기물 포장물 거치 간격을 설정하는 것이 바람직하다.

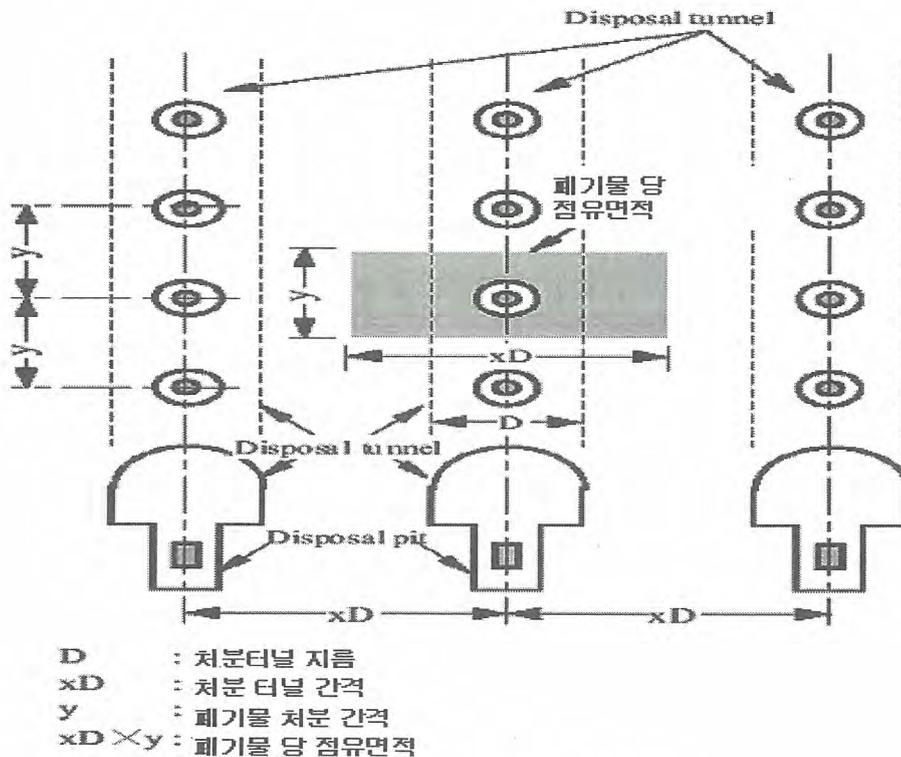


그림 4. 폐기물 당 점유면적 개념

지하 처분시설 면적을 최소화하기 위한 적절한 터널 간격과 폐기물 거치 간격의 조합은 터널의 구조적 안정성에 대한 분석뿐만 아니라 열적 안정성 등 다양한 분석 결과를 고려하여야 한다. 공학적 방벽의 사양, 터널 건설 및 처분시설 운전 기술 등은 이러한 조합 결정에 제한 사항을 주는 인자이며, 이러한 인자에 대한 철저한 분석이 필요하다. 그러나, 가장 중요하고 민감한 요소는 고준위폐기물로부터 발생하는 붕괴열에 의한 완충재의 온도를 100 °C 이하로 유지하여야 하는 것이다.

버퍼물질의 최대온도가 100 °C 이하가 되도록 하는 폐기물 포장물 거치 및 처분터널 간격 분석에 필요한 연구를 수행하였으며, 사용후핵연료의 붕괴열 방출에 의한 시간 변화에 따른 공학적 방벽 및 주변 암반의 온도변화에 대한 분석을 수행하였다. 처분 터널과 포장물 거치 간격의 다양한 조합 및 단층배열과 복층배열을 고려하여 구조적 안정성과 열적 안정성을 분석하였다.

3.2 처분 터널 및 처분공 간격에 따른 구조적, 열적 안정성 분석

처분 터널의 배치는 단층 배치와 복층 배치를 고려하여 다음 4가지 경우에 대한 구조적, 열적 안정성을 분석하여, 각 경우에서의 구조적 안정성이 유지되고 버퍼의 열적 요건과 일치하는 적절한 처분터널 간격 및 처분 피트 간격을 정하였다.

3.2.1 단층 배열

단층 배열의 경우 기준 처분시스템에서 고려하고 있는 처분 터널간격 40 m 와 처분공 간격 6 m를 기준으로 분석하였으며, 아래 표에서 나타내고 있는 바와 같이 처분심도에 관계없이 요건에 만족됨을 알 수 있었다.

표 2. 단층 배열의 경우 분석

처분터널 및 처분공 간격	처분심도 (m)	최대온도 (°C)	최대응력 (MPa)	비고
처분터널간격 : 40 m 처분 공 간격 : 6 m	200	72.6	-59.1	요건 만족
	300	75.6	-64.5	요건 만족
	400	78.6	-68.7	요건 만족
	500	81.6	-73.8	요건 만족

3.2.2 복층 배열

처분 부지의 조건에 따라, 단층으로 배열이 불가능한 경우 처분 심도를 달리한 복층배열을 고려하여 처분부지 면적을 최소화 할 필요가 있다. 복층배열은 다양하게 수행할 수가 있으며, 본 연구에서는 다음과 같은 경우에 대해 분석하였다.

- 심도 500 m에 처분 후 일정기간이 지난 뒤 심도 400 m에 처분하는 경우
- 심도 400 m에 처분 후 일정기간이 지난 뒤 심도 500 m에 처분하는 경우

심도 500 m에 사용후핵연료를 처분한 후 약 30년이 지난 후 심도 400 m에 처분하는 경우 처분 터널 간격을 40 m로 설정하면 구조적 열적 안정성 요건을 만족시키기 위해서는 처분공 간격을 최소 8 m로 하여야 한다. 그리고, 이 경우에 있어서 처분 터널간격을 30 m 로 설정하면, 요건을 만족시키기 위한 최소 처분공 간격은 10 m가 된다(표 3).

표 3. 복층 배열(지하 2층 처분 후 지하 1층 처분개념)의 경우 분석

처분터널 간격(m)	처분공 간격(m)	최대온도(°C)	최대응력(MPa)	비고
40	6	111.0	-106.6	온도/응력 초과
40	8	91.6	-92.5	요건 만족
30	9	97.3	-108.4	온도/응력 초과
30	10	91.8	-91.8	요건 만족

심도 400 m에 처분한 다음 일정기간이 지난 후 심도 500 m에 처분하게 되는 경우에는 처분 터널간격을 40 m로 설정하면, 처분공 간격이 10 m 이상이 되어야 하며, 표 4에 보이는 바와 같이 이때의 지하층간 간격이 50 m 인 경우에 요건에 만족하게 된다.

표 4. 복층 배열(지하 1층 처분 후 지하 2층 처분개념)의 경우 분석

처분터널 및 처분공 간격	처분장 층간 간격(m)	최대온도(°C)	최대응력(MPa)	비고
처분터널 : 40 m 처분 공 : 10 m	50	93.7	-92.0	요건 만족
	100	95.0	-91.3	온도 초과
	150	99.0	-126.5	온도/응력 초과

4. 굴착량 비교

구조적, 열적 안정성에 대해 수행한 해석 결과에 따라 처분 터널 및 처분공 간격은 단층 배열인 경우 각각 40 m와 6 m(A)가 적절한 것으로 판단된다. 그리고, 복층 배열의 경우 지하 2층 처분 후 지하 1층 처분인 경우 층간 간격이 100 m (지하 2층-500m, 지하 1층-400m)로 설정하면, 처분 터널과 처분공 간격은 각각 40 m 와 8 m(B), 30 m와 10 m(C)일 때 구조적 열적 안정성 요건에 만족하게 된다. 또한, 지하 1층에 먼저 처분하고 지하 2층에 처분하는 경우는 층간 간격을 50 m로 설정하고, 처분터널과 처분공 간격을 각각 40 m와 10 m(D)일 때, 요건에 만족한다.

이상에서 도출된 처분터널과 처분공 간격의 조합에 대하여, 주요한 설계인자인 경제성 관점에서 평가를 위하여 굴착량을 산출하였으며, 표 5.에 나타낸 바와 같다. 산출된 굴착량 총량은 조합된 각각의 처분 동굴 및 처분공 간격에 대한 접근터널, 파넬터널 및 처분터널에 대한 굴착량을 산출한 것이다. 처분 파넬은 정사각 형태를 가진다고 가정하였으며, 폐기물 량은 사용후핵연료 36,000 tHM을 기준으로 한 처분용기 수인 15,000 개를 기준으로 하였다.

표 5. 각 경우별 폐기물당 점유면적 및 굴착량

구 분	Disposal Tunnel Spacing (m)	Disposal Pit Pitch (m)	Occupied area (m ² /Wase package)	Excavation Volume (x 1,000 m ³)
A(단층배열)	40	6	240	2,500 (0.61)
B(지하 2층 후 1층배열)	40	8	320	3,290 (0.81)
C(지하 2층 후 1층배열)	30	10	300	4,020 (0.98)
D(지하 1층 후 2층 배열)	40	10	400	4,070 (1.00)

표 5에 나타난 바와 같이 구조적, 열적 안정성 요건을 만족하는 처분 터널과 처분공 간격의 조합에 대하여, 경제성 측면인 굴착량을 기준으로 하였을 경우 단층 배열일 때는 40 m와 6 m로, 복층 배열일 때는 지하 2층에 먼저 처분하고 지하 1 층에 처분하는 것이 바람직하며, 이 경우 처분 터널과 처분공 간격은 각각 40 m와 8 m로 설정하는 것이 경제성 측면에서 바람직할 것으로 판단 된다.

5. 결론 및 향후 계획

본 연구에서는 사용후핵연료를 대상으로 하는 고준위 방사성폐기물 심지층 처분시설의 규모 및

layout 설정에 필요한 요소인 처분터널 및 처분공 간격에 대한 분석을 수행하였다. 이를 위하여, 기존 처분개념 및 공학적 방벽 개념을 바탕으로 터널 형상 및 단면 설정에 영향을 주는 인자를 고려하여 처분터널 및 처분공 단면을 설정하고, 단층 배열 및 복층 배열 개념에 따른 처분동굴의 구조적, 열적 안정성을 분석하였다. 또한, 분석 결과를 바탕으로 설계에 있어서 주요한 인자 중의 하나인 경제성 측면에서, 굴착량을 최소화할 수 있는 처분동굴 및 처분공 간격을 제안하였다. 향후, 부지에 대한 불확실성을 줄이기 위하여 정확한 부지특성 자료를 통한 상세한 분석이 필요하다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력중장기 연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

참 고 문 헌

1. JNC, H12 Project to Establish Technical Basis for HLW Disposal in Japan, Japan Nuclear Cycle Development Institute, (1999).
2. 최중원 등 “Reference Spent Fuel and Its Characteristics for a Deep Geological Repository Concept Development,” J. KNS, Vol.31. No.6 (Dec. 1999).
3. 최중원 등 “고준위폐기물 심지층 처분시스템 예비 개념 선정을 위한 기술성 평가,” 한국원자력 연구소, KAERI/TR-1361/99, 1999.
4. 강철형 등 “심지층 처분시스템 개발,” 한국원자력연구소, KAERI/RR-2336/2002, 2003.
5. T. Kukkola, T. Saanio, J. Choi, C. Kang, “KAERI’s spent fuel repository Design evaluation and cost estimation,” Posiva Oy, R&D Report 2003-02.

Quantitative Comparison of Activity Calculation Methods for the Selection of Most Reliable Radionuclide Inventory Estimation

Kiha Hwang, Sangchul Lee and Kun Jai Lee
Korea Advanced Institute of Science and Technology (KAIST)

Chanwoo Jeong and Sangmyeon Ahn
Korea Institute of Nuclear Safety (KINS)

Taewook Kim, Kyoungdoek Kim and Y.H. HERR
Nuclear Environment Technology Institute (NETEC)

Abstract

It is important to know the accurate radionuclide inventory of radioactive waste for the reliable management. However, estimation of radionuclide concentrations in drummed radioactive waste is difficult and unreliable because of difficulties of direct detection, high cost, and radiation exposure of sampling personnel. In order to overcome these difficulties, scaling factors (SFs) have been used to assess the activities of radionuclides that could not be directly analyzed. A radionuclide assay system has been operated at KORI site since 1996 and consolidated scaling factor method has played a dominant role in determination of radionuclides concentrations. However, some problems are still remained such as uncertainty of estimated scaling factor values, inaccuracy of analyzed sample values, and disparity between the actual and ideal correlation pairs and the others. Therefore, it needs to improve the accuracy of scaling factor values. The scope of this paper is focused on the improvement of accuracy and representativeness of calculated scaling factor values based on statistical techniques. For the selection of reliable activity determination method, the accuracy of estimated SF values for each activity determination method is compared. From the comparison of each activity determination methods, it is recommended that SF determination method should be changed from the arithmetic mean to the geometrical mean for more reliable estimation of radionuclide activity. Arithmetic mean method and geometric mean method are compared based on the data set in KORI system.

1. Introduction

The measurement of radionuclide inventory contained in radwaste drum is very important for the

reliable management of radioactive waste in NPP. However, many radionuclides of which the declaration is required do not emit gamma radiation and must be analyzed by complicated radiochemical analysis. An established waste characterization program in KORI site measures the concentrations of gamma-emitting nuclides directly and estimates the concentrations of other relevant nuclides indirectly by relating Difficult-To-Measure (DTM) radionuclides to other Easy-To-Measure (ETM) radionuclides. Scaling factors are generated by use of sample data that are gathered from the radiochemical analysis of waste samples collected from different waste stream. The activity is determined by radionuclide assay system and scaling factor method.

However, it needs to collect the more number of samplings and to use reliable sampling procedures for the improvement of reliability. Furthermore, it needs to improve the accuracy of estimated SF values based on proper selection of activity calculation method. For that reason, research is in progress to improve the scaling factors for updating the radionuclide assay system, based on the statistical approach. Accuracy of each applicable activity determination method is compared using a foreign data set, and then the most reliable activity determination method is selected. The selected method and previous method used in KORI system is compared by the use of the sample-analyzed data set in KORI system.

2. Activity Determination Methods

Applicable activity determination methods are summarized in Table 1. Statistical techniques are used in these methods such as the arithmetical mean, geometrical mean, linear regression, and logarithmic regression [1, 2, and 3]. However, there is not any definition for the most reliable activity determination method. For that reason, each country uses its own preferred scaling factor method. In general, arithmetic mean is not used for the calculation of SF value in the activity determination method. However, arithmetical mean was used for the activity determination methods in KORI site because it has a little sample-analyzed data. In this study, two set of input data were used for the comparison of each method. At first, foreign data set is used for the comparison of four activity determination methods [3]. Next, KORI sample-analyzed data set is used for the comparison of arithmetic mean method and selected most reliable method [4]. For the comparison of each method, proper data set of key/ DTM nuclides in a specific waste type or all waste type was used. Detailed information of data set is summarized in Table 2.

Table. 1. Activity determination methods using key nuclides

Method		Mathematical expression	Coefficient	Activity determination
Arithmetic mean	Linear relation	$A_{RN}=a \cdot A_{KN}$	a= Average ratio [SF]	Arithmetic mean of SFs
Linear regression		$A_{RN}=a+b \cdot A_{KN}$	a, b=const.	Linear Regression of key & DTM nuclides

Geometric mean	Linear relation of Logarithm	$A_{RN}=c \cdot A_{KN}$	c=Average ratio [SF]	Geometric mean of SFs
Linear regression of logarithms		$\text{Log}(A_{RN})=c'+d \cdot \text{log}(A_{KN})$ $A_{RN}=c \cdot (A_{KN})^d$	c, c', d =const.	Logarithmic linear regression of Key & DTM nuclides

Table. 2. Information of the input data set

Data set	(1) EPRI-5077	(2) KORI data set
Waste type (# of data set)	Spent Resin (139) (Excluding 7 extreme data)	A) Spent filter (4) B) Concentrate bottom (4) C) Spent resin (4) D) DAW (12)
Key nuclide	Co-60	Co-60, Cs-137
DTM nuclide	Ni-63	H-3, C-14, Ni-63 Sr-90, Tc-99, Gross alpha

3. Results and Discussion

The resulting plots of measured and estimated concentrations for each activity determination methods are shown in Figure 1. In arithmetic mean method, each activity and total activity are overestimated. Linear regression method is not proper for activity determination because it shows large disparity between the measured and estimated activities. The linear regression of logarithms has a characteristic to underestimate the total activity. The reason is that it overestimates the activities in low activity region and underestimates the activities in high activity region. Therefore, this method is under-conservative. In the geometric mean method, the estimated activity is very close to the measured one and total activity is conservatively estimated at the reasonable level. These comments could be confirmed through the comparison of measured and estimated concentrations of each activity determination method in Figure 1. More detailed comparison results of each activity determination method are summarized in Table 3. From the ideal case (ideal regression = reference line), we can establish the conservative conditions such as the following.

a) Individual activity

(Ideal case: A=1, B=0)

- 1) Estimated concentration \geq Measured concentration
- 2) $A \geq 1$ & $B \geq 0$

b) Ratio of total radioactivity

(Ideal case: Ratio=1; Estimated total activity = Measured total activity)

1) Ratio ≥ 1 (Estimated total activity \geq Measured total activity)

From the overall comparison of activity determination methods, it is concluded that geometric mean method is the most reliable activity determination method. Geometric mean and arithmetic mean are evaluated and compared by the use of the sample-analyzed data set in KORI system. The ratio values of arithmetic mean and geometric mean for each waste type and radionuclide are illustrated in Figure 2. The ratio values are higher than 1 for all waste types and pairs of DTM/Key radionuclides, which are corresponding to the viewpoint of statistics. This is particularly high in resin and DAW.

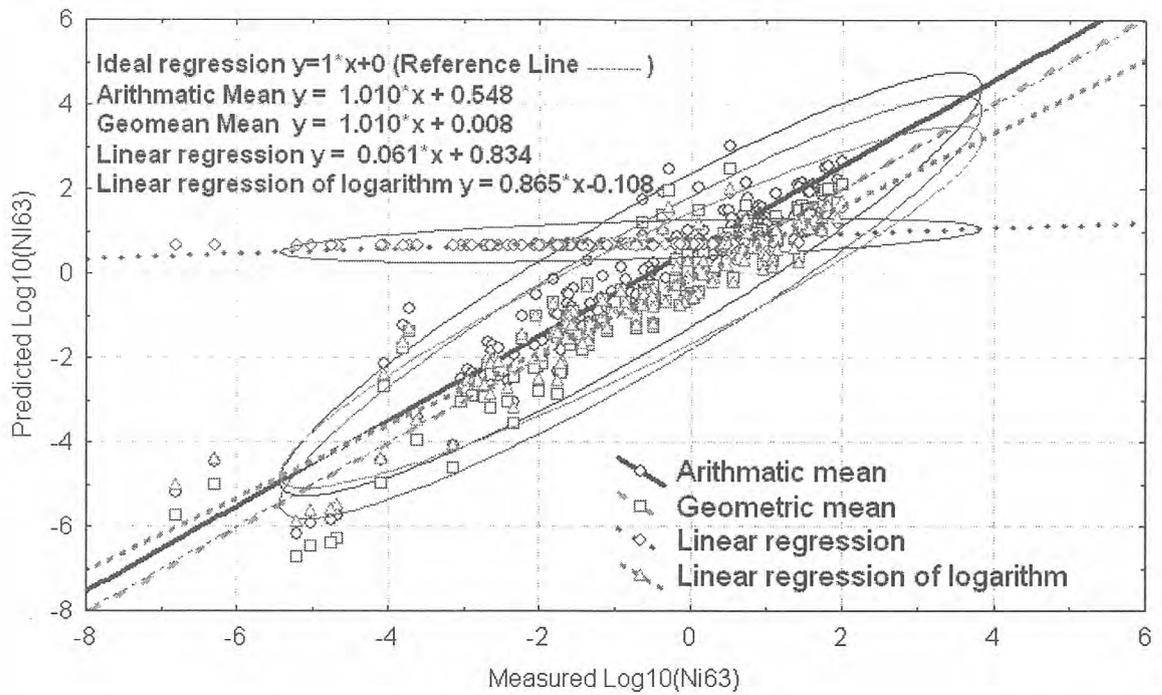


Fig. 1. Comparison of measured and estimated concentrations for each activity determination method

Table. 3. Comparison results of each activity determination methods

Method	Estimated (Y) Vs Measured (X) $Y=A*X+B$	Ratio of total radioactivity [Estimated /Measured]	Accuracy of estimation
Arithmetic mean	A=1.0101 B=0.5481	5.20	Overestimation of each activity and total activity
Linear regression	A=0.0607 B=0.8343	1.00	Large disparity between measured activity and estimated activity

Geometric mean	A=1.0101 B=0.0081	1.50	Proximity of each activity Conservative estimation of total activity
Linear regression of logarithms	A=0.8648 B=- 0.1080	0.65	In a low activity region : Overestimation In a high activity region : Underestimation Underestimation of total activity (Under-conservative)

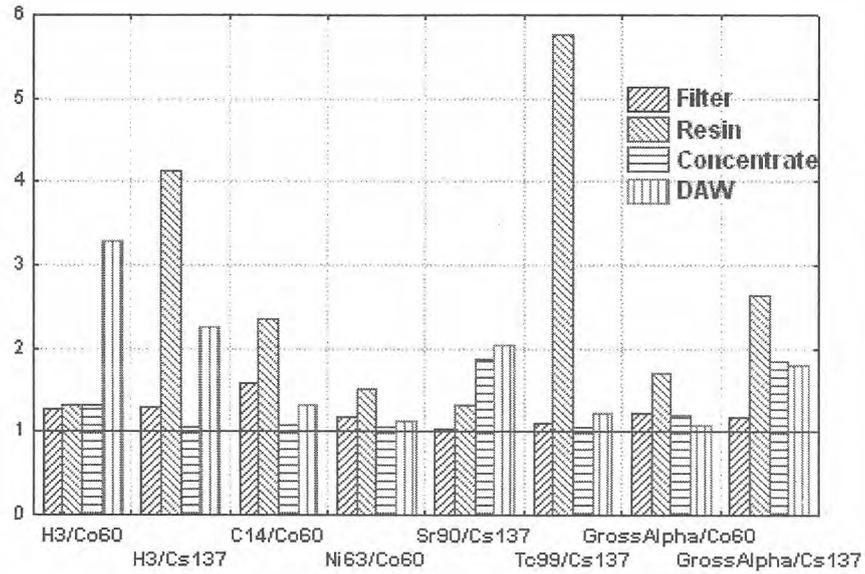


Fig. 2. Ratios of arithmetic mean to geometric mean for each waste type and pairs of radionuclides

4. Conclusion

For the evaluation of accuracy for each activity determination method, foreign and KORI data set were used. Inter-comparison was conducted in a viewpoint of accuracy and conservation of estimation. From the comparison of each activity determination method, it is concluded that geometric mean method is the most reliable activity determination method. Also, it is recommended that SF determination method should be changed from the arithmetic mean to the geometrical mean for the improvement of accuracy and reasonable conservation in activity determination. From the comparison of geometric and arithmetic means based on the sample-analyzed data set in KORI system, arithmetic mean is higher than geometric mean for all waste types and pairs of DTM/Key radionuclides. This is corresponded to a viewpoint of statistics. In particular, SF values in resin and DAW is higher than ones in other waste types.

An additional and frequent sampling procedure is in progress to update the performance of Korean nuclear waste management. As this study goes on, it is possible to get more accurate and reliable predictions for the information of radioactive waste based upon Korean analyzed database.

Acknowledgement

This work was performed by the financial support from the Korea Institute of Nuclear Safety (KINS) and "Mid-and-Long-term Nuclear R&D Program"

References

- [1] Makoto Kashiwagi, Hirokazu Ozaki et al, "Low-level radioactive waste radioactivity evaluation practice in Japan and Suggestion for rationalization", International workshop on "Determination and declaration of nuclide specific activity inventories in Radioactive waste", Cologne, Germany, Sep 26-28, 2001 (2001)
- [2] W, Muller, "Activity Determination and declaration- An overview", International workshop on "Determination and declaration of nuclide specific activity inventories in radioactive wastes", Cologne, Germany, Sep 26-27, 2001 (2001)
- [3] EPRI NP-5077 " Updated Scaling Factors in Low-Level Radwaste" (1987)
- [4] Kang, D. W. et al, "Development of a radioactive waste assay system", KEPRI-92N-J03, KEPRI, Daejeon, Korea (1996)

빈 면

제2분과(C)

사용후 핵연료 및 핵연료 주기

빈 면

사용후핵연료 차세대관리 종합공정 실증시설

Hot Cell Facility for Demonstration of Advanced Spent Fuel Conditioning Process

정원명, 구정희, 조일제, 국동학, 이은표, 백상열, 이규일, 유길성, 박성원
한국원자력연구소

요 약

국내 경수로형 사용후핵연료의 효율적인 관리를 위하여 현재 건식처리공정으로 개발 중에 있는 차세대관리 종합공정의 실증시험이 계획되어 있다. 실증시험의 수행을 위해서는 기밀성이 유지되는 α - γ type 핫셀시설과 시설의 안전성 확보가 필수적이다. 핫셀시설 확보에 필요한 재원을 최소화하기 위하여 기존 β - γ type 핫셀을 개조하여 활용하기로 하였으며, 차세대관리 종합공정의 특성을 고려하여 실증시설의 보수적 안전성 확보와 핫셀 내 효율적인 공정운전을 위한 분야별 설계요건을 확립하였다. 또한 이를 기준으로 실증공정의 공정조건과 상세한 작업흐름을 분석하여 핫셀 및 부대설비와 공정기기들의 구성과 배치를 최적화하였으며, 실증공정 및 핫셀 개조를 위한 기본설계와 상세설계, 안전성분석과 환경영향평가를 완료하였다.

Abstract

The advanced spent fuel conditioning process(ACP) was proposed to reduce considerably the overall volume and radioactivity for effective management of the PWR spent fuel in respects on safety and economy. The ACP is under research and development, and have scheduled to perform hot test for demonstration of the ACP after several years. For hot test, hot cell facility of α - γ type possess conservative safety is required essentially. A existing hot cell of β - γ type will be refurbished to minimize construction expenditures of hot cell facility. In this study, the design requirements are established, and the process detail work flow was analysed for the optimum arrangement to ensure effective process operation in hot cell. And also, the basic and detail design of hot cell facility and process and safety analysis was performed to secure conservative safety of hot cell facility and process.

1. 서 론

현재 국내에서 원자력에 의한 월간 발전실적이 112,133 백만kWh로서 전체 발전실적의 약 40%를 차지하고 있으며, 장기 발전계획에 의하면 2015년까지는 원자력에 의한 발전실적이 약 45%에 이르게 됨으로 원자력 발전이 국내 전력 공급의 가장 중요한 역할을 담당하고 있다. 그러나 원자

력 발전소에서는 필수적으로 사용후핵연료가 발생하게 되며, 현재 국내 각 원자력 발전소에서 보관 중에 있는 사용후핵연료의 누적량은 2000년 기준으로 경수로용 사용후핵연료의 경우는 2,376 MtU, 중수로용 사용후핵연료의 경우는 2,256 MtU이며, 2020년에는 사용후핵연료의 누적예상량이 경수로용 사용후핵연료가 9,497 MtU에 이르고, 중수로용 사용후핵연료는 9,118 MtU에 이를 것으로 예측하고 있다[1]. 따라서 2010년 이후에는 사용후핵연료 저장 및 처분장의 확보가 지속적인 원자력 발전을 위하여 시급히 해결해야 될 과제이나 현실적으로 처분장의 확보에 어려움을 겪고 있다.

차세대관리 종합공정(ACP)은 사용후핵연료의 안전하고 효율적인 관리를 위하여 제시된 공정으로 이 공정을 이용하여 사용후핵연료를 금속으로 전환하고, 고발열성 핵종(Cs, Sr)을 효율적으로 제거하여 사용후핵연료의 부피, 발열량 및 방사선의 세기를 최대 1/4까지 감소시키고, 처분용기의 소요량과 처분장의 소요면적을 1/2 이상으로 축소함으로써 처분 안전성과 경제성을 높일 수 있다. 그리고 환경 친화적인 기술로서 핵확산 관련 저항성이 높으며, 미래 지향적인 건식 핵연료주기 시스템의 연구개발에 기여할 수 있는 기술적인 장점으로 인하여 현재 연구개발이 진행 중에 있으며, 수년 내로 공정의 실증시험을 계획하고 있다.

그러나 ACP 공정 실증을 위해서는 공정특성을 고려한 α -v type의 핫셀시설이 필요하나 신규로 핫셀시설 확보하기 위해서는 많은 재원과 인력 및 시간이 소요되므로 기존 β -v type 핫셀을 공정의 특성 및 용도에 맞게 개조하여 활용되어야 한다. 특히, ACP 공정의 경우는 방사선 준위가 매우 높은 사용후핵연료를 고온의 조건에서 LiCl-Li₂O 용융염 매질 하에서 취급하게 되므로 일반 핫셀에 비해 강화된 기밀성이 요구될 뿐 아니라 일부 공정은 엄격히 관리되는 불활성 분위기(Ar) 하에서 취급해야 된다. 그러나 현재까지 국내에서 사용후핵연료의 연소후 조사특성을 분석하기 위한 소규모 시험들은 수행되었으나 ACP 공정과 유사한 고온의 용융염 매질 하에서의 화학처리 공정의 설계 또는 실증시험의 경험이 없는 형편이다.

따라서 실증을 위한 핫셀시설의 확보를 위하여 ACP 공정의 기능 및 특성을 고려하여 실증시설 설계요건을 확립하고, 이를 기준으로 실증시험을 수행할 공정조건, 공정장치별 특성, work flow를 상세히 분석하여 핫셀 및 부대설비와 공정기기들의 구성과 배치를 최적화하였으며, 실증공정 및 핫셀 개조를 위해 분야별로 기본설계와 상세설계, 안전성분석과 환경영향평가를 완료하였다.

2. 연구 내용 및 결과

2.1. 실증시설 설계요건

2.1.1. 실증공정 기준요건

ACP 공정의 실증시험을 위한 적정 공정규모를 결정하는 것은 매우 중요하며, 공정장치의 구조 및 공정성능이 실제 공정규모에 따라 상이한 결과를 나타낼 수 있고, 또한 공정규모에 따라서 주변 부대시설의 규모도 결정되게 된다. 실증공정의 규모는 실증시험에서 얻는 공정 data의 공학적 측면에서의 신뢰성과 상용화를 위한 기초 설계자료 확보, 기존시설 여건 등을 고려하여 사용후핵연료 20 kg-HM/batch를 처리하는 규모로 설정되었으며, 설정된 공정 규모를 기준으로 핫셀 내에서 실증공정의 범위를 Fig. 1에 표기된 공정의 Block Diagram 내용으로 설정하고, 실증시험에 사용할 PWR 사용후핵연료의 기준사양을 원자로 조사조건 및 현실적으로 사용이 가능한 사용후핵연료 여건 등을 고려하여 아래와 같이 설정하였다.

- 사용후핵연료 취급량 : 20 kg-HM/batch
- U-235 농축도 : 3.5 wt%
- 연소도 : 43,000 MWD/MTU

- 냉각기간 : 10 년

2.1.2. 기준방사선원

ACP 공정 실증시험을 위한 핫셀시설의 기준 방사선원을 결정하기 위해서 먼저 실증시설 내 공정의 운전개념을 설정하는 것이 중요하다. 가능한 실증시설 내 기준 방사선원을 최소화하는 것이 시설의 건설비용 절감 측면과 안전성 확보 측면에서 유리하다.

먼저 실증시설 핫셀에서 수행될 차세대관리 종합공정의 실증시험의 횟수를 공정 data의 검증을 위한 최소 횟수로 제한하여 5 batch를 수행하는 것을 기준하였으며, 폐 LiCl 용융염을 저장용이하도록 bead 형태로 성형하는 공정은 그 타당성을 확인하기 위하여 실증시험을 2회 수행하는 것을 기준하였다. 따라서 실증시설 hot cell 내 기준 방사선원은 앞에서 제시된 사용후핵연료 조사 조건을 기준으로 ORIGEN-2 전산프로그램으로 계산하여 Table 1에 표기된 내용과 같이 기준 방사선원을 설정하였다. 그리고 제조된 금속전환체와 폐용융염을 차폐셀 내에 별도의 차폐공간(storage vault) 내에 임시보관 할 수 있도록 하였다.

2.1.3. 핫셀 설계요건

ACP 공정의 실증시설로 활용 예정인 기존 핫셀은 당초 β -v type 핫셀로 설계되었으나 ACP 공정의 경우 사용후핵연료 분말을 취급하게 되고, 고온의 용융염 매질에서 반응을 수행하므로 α -v type의 air 분위기에 반응기 내부는 inert(Ar) 분위기 유지가 가능하여야 한다.

차폐체 설계를 위한 원자력법 상에 제시된 설계기준은 주당 1 mSv이며[2], 이 경우 주당 작업 시간을 40시간으로 가정할 경우 0.025 mSv/hr이나 실증시설의 보수적 안전성 확보를 위하여 상시 운전구역(7000 zone)에서는 선량기준을 0.01 mSv/hr를 기준으로 하고, 유지·보수 수행을 위한 일시 출입구역인 작업구역(8000 zone)에서의 선량기준은 0.15 mSv/hr를 기준으로 설정하였다.

그리고 핫셀의 기밀성 유지를 위한 leakage rate는 외국의 사례들을 조사하여 -30 mmAq 조건에서 4 vol. %/day로 설정하였다[3].

2.1.4. 핫셀 부대설비 요건

차폐셀 내 공정운전 및 유지보수를 위해 필요한 주요 장비로는 공정운전을 위한 MSM 과 차폐창, 중량물 취급을 위한 Power manipulator와 In-cell crane, Rear door, Padirac cask 운반 및 접속장치 등이 고려되어야 한다. 실증시설 핫셀이 α -v type이므로 핫셀에 부착되는 부대설비들은 이중 sealing 구조를 가지며, MSM의 취급용량은 9 kg, Crane은 1 ton 용량을 기준으로 설정하였다. 그리고 핫셀의 핵물질 반입, 반출은 취급용량, 차폐능, 안전성 등을 고려하여 Padirac RD-15 type으로 단일화하여 단순화함으로써 시설 운영의 효율성을 높일 수 있도록 설계요건을 설정하였다.

핫셀의 환기설비의 설계요건은 기존 시설여건과 외국 시설의 설계기준을 고려하여 부압조건은 최대 -25~-35 mmAq, 환기회수는 20회를 기준으로 하고 핫셀 내에 추가로 설치되는 1차 filter bank(PRE+ HEPA)를 거쳐 조사재시험시설의 기존 배기 duct에 연결되어 2차 filter bank(MOD+HEPA)를 거친 후 배기되도록 하였다.

2.2. 핫셀 및 공정설비 배치

ACP 공정 실증시험을 위한 핫셀 활용 예정인 기존 차폐시설의 내부 크기는 길이 11 m, 폭 2 m, 높이 4.5 m이며, 실증공정의 효율적이고 안전한 운전 및 유지, 보수를 고려하여 공정용과 유지 보수용의 2개의 차폐셀로 분리하여 설치되도록 하였다. 각 차폐셀에는 rear door가 설치되며, 공정용 차폐셀의 rear door에는 Padirac adapter가 설치되어 사용후핵연료 rod cut, 우라늄 ingot는 물론 폐용융염 등 모든 방사성 물질을 동일한 Padirac cask를 이용하여 운반하게 된다. 그리고 rear door 주변에는 isolation room을 설치하여 오염지역의 확산을 방지하는데 용이하도록 하였다.

공정설비의 배치는 차폐셀 내 핵물질 및 폐기물의 flow-path, 시약류의 투입, 운전 및 유지보수, safe guard 측면 등을 고려하여 one-through flow가 유지되도록 개념을 정립하였다. 그리고 공정 설비에 공급되는 LiCl, Li₂O 등 시료의 경우는 inert 분위기에서 준비되고 공급되어야 하므로 Ar 분위기 glove box와 운전 및 감시를 위한 control panel과 MCC 및 전원공급 panel을 핫셀 전면의 조업지역에 설치하여 운전자가 항상 확인할 수 있도록 하였다.

핫셀 및 공정설비의 배치도는 Fig.2에 표기된 내용과 같다.

2.3. 공정 및 핫셀시설 설계

2.3.1. 공정설계

공정설계를 통하여 ACP 실증공정의 process flow diagram, P.& I. diagram, mass & heat balance를 확정 작성하고, 공정작업 step별 mechanical work-flow 분석과 공정운전 중 예상되는 fault에 대한 상세분석을 수행하여 이를 공정의 상세설계에 반영되도록 하였다. 그리고 공정에서 취급되는 고온 용융염(LiCl-Li₂O) 및 U 금속, 공정시약의 안전한 취급을 위하여 inert 분위기 유지와 고온으로 운전되는 반응기의 외부 jacket의 냉각을 Ar 가스를 적정 조건으로 제어하여 공급되도록 설계하였다. 우라늄 산화물 분말취급장치는 분말 누출 및 비산 방지를 위해 장치 내, 외부에 이중 sintered metal filter 장착하고 반응기 내부 압력이 기준치 이상 상승하는 경우 경고와 함께 공급되는 air 즉시 차단함으로써 더 이상 압력이 상승되지 않아 사고로의 진전을 예방하도록 설계에 반영하였다. 각 공정장치의 배기 line에 filter를 이중 설치하고, 압력 및 차압이 감시되며, 기준치 초과시 경고와 함께 공급되는 Ar 가스의 공급 및 가열로의 전원이 차단되도록 하였으며, 고온에서 운전되는 반응기는 온도 및 압력이 서로 연계되어 작동하도록 sequence를 구성하고, 감시 및 제어 장비는 서로 다른 type으로 이중 설치하여 공정 운전에 따른 보수적 안전성이 확보되도록 설계하였다.

2.3.2. 차폐보강 및 구조설계

실증시설 핫셀의 기준방사선원을 기준으로 차폐계산 결과 기준선량(0.1 mSv/hr)을 만족하는 차폐체 두께가 중콘크리트 90 cm에 해당하며, 개조할 기존 핫셀의 차폐설계가 중콘크리트 80 cm로 되어 있어 차폐보강이 불가피하다. 따라서 기존 핫셀의 구조와 차폐보강을 위한 시공성을 고려하여 현재 개방된 형태로 되어 있는 전면(차폐창과 MSM이 설치되는 면)은 중콘크리트 90 cm, 기존의 차폐벽이 설치된 측면과 뒷면은 steel 4 cm 두께로 차폐를 보강하는 것으로 설계하였다.

이와 같이 차폐 보강체와 차폐창 등의 중량물 추가와 핫셀의 rear door 및 각종 penetration을 위한 개구부들이 추가로 설치되어야 하므로 이에 따른 구조해석(내진 1등급 기준)을 수행하였으며, SAP 2000 프로그램을 이용한 3D dynamic analysis 결과 절점의 변위가 2.94 mm로서 현재 확보된 seismic gap 50 mm 보다 적어 구조적 안전성이 입증되었으며, 구조계획에 따른 구조설계를 수행하였다.

2.3.3. 핫셀 부대설비 설계

실증시설에 설치되는 부대설비로는 환기설비, 유틸리티(전기, 압축공기, Ar) 공급설비, 방사성물질의 취급/운반설비, 화재감시 및 방호설비, 방사선 안전관리장비 등이 설치되도록 설계에 반영하였다.

핫셀 환기설비는 핫셀 전체 급기량 1770 CMH, 배기량 2110 CMH이 되도록 설계하였으며, 배기 팬은 추가로 설치하지 않고 기존장비를 사용하도록 하였다. 핫셀 환기설비는 급기는 핫셀 외부에 설치되는 filter unit를 거쳐 차폐능 확보를 위한 protection screw를 통해 핫셀 내부 닥트로 연결되며, 핫셀 상부에서 공급되고, 핫셀 working table 하부에 배기 filter unit를 거쳐 protection

screw를 통해 핫셀 외부의 기존 배기덕트에 연결되도록 설계되었다.

실증시설의 전력공급은 기존시설의 460V Load Center spare feeder에 기존 설비와 호환 가능한 차단기를 설치하여 주전원으로 하는 계통으로 구성하며, 전체 기준용량을 400 A를 기준으로 460V MCC 20 KVA, 220V MCC 150 KVA 용량으로, 비상전원은 220V 30A, 120V UPS 50A 용량으로 설계되었다.

유틸리티 공급설비 중 압축공기는 기존배관으로부터 분기하여 실증시설의 요건에 맞도록 압력 및 유량을 조절하여 핫셀 차폐벽 penetration을 통해 공급되며, Ar 가스 공급설비는 고순도 Ar (99.9999 %)과 저순도 Ar(99.999 %)로 구분하여 공급되며, 핫셀 내 공정장치로 공급되는 Ar 가스는 one-through로 공급되고, 반응기 내부로 공급되는 Ar 가스는 공정 폐가스 처리장치를 거쳐 핫셀 배기구로 배출되도록 설계하였다. 그리고 핫셀 외부에 설치되는 공정에서 사용하는 시약(LiCl, Li₂O)의 준비를 위한 glove box로 공급되는 Ar 가스는 정제시스템에 거쳐 순환공급 되도록 설계하였다.

핫셀 운전을 위해 기밀성이 보장된 MSM(9 kg 용량) 및 차폐창이 각각 5조씩 설치되며, 방사성 물질의 취급운반을 위한 설비로는 핫셀 외부에 Padirac cask 운반을 위한 rail 및 대차, Jib-crane(1톤 용량)이 설치되고, 핫셀 내부에 Over-head crane(1.0톤 용량)과 고하중조작기(50 kg 용량)가 설치되도록 설계하였다.

핫셀 내의 화재감지설비는 thermal detector와 smoke detector가 설치되어 기존의 경보설비 및 Halon 1301 소화설비와 연계하여 작동되도록 설계되었다.

그리고 실증시설에 설치되는 방사선 안전관리 장비로는 area monitor 및 room air monitor가 핫셀 인접 작업구역과 서비스 구역에 설치되고, rear door monitor가 설치되어 핫셀 내부의 방사선량 준위가 2.5 mSv/hr 이상이 되면 핫셀의 rear door가 열리지 않도록 연계되며, 실증시설 핫셀 배기덕트에 배기가스의 monitoring 장비가 설치된다. 설치되는 모든 RMS 장비는 추가로 설치되는 RMS server에서 모든 상태를 감시 관리할 수 있도록 설계하였다.

2.4. 핫셀시설 안전성분석

핫셀의 차폐해석결과 선량율이 설계기준 선량의 20~65 % 정도인 것으로 나타났으며, 계산의 보수성 등을 고려하면, 실제 선량율은 이 보다 훨씬 낮을 것으로 예상된다.

실증시설의 가동으로 인한 주변 환경에 대한 영향평가를 정상운전시와 사고시로 구분하여 수행되었으며, 평가 결과는 정상운전시 선량평가 결과가 기준선량의 0.8~25 %, 사고시 피폭선량 평가 결과는 설계기준치의 1/10 이하인 것으로 나타나 본 시설의 가동으로 인한 환경영향평가 결과도 충분한 안전성이 확보되도록 설계되었음을 확인할 수 있었다.

감사의 글

이 연구는 과학기술부 주관으로 추진중인 원자력중장기사업의 일환으로 수행된 연구결과입니다.

참 고 문 헌

1. 2002 전력분야 통계, 산업자원부, 2003.
2. 한국방사성동위원소협회, 원자력관련고시집, 2001.
3. ANS, Design Guides for Radioactive Material Handling Facilities and Equipment,1988.

Table 1. Inventory Basis of Radioactivity

구 분	Activity (Ci)
PWR 사용후핵연료 1회분(20kg-HM)	9,930
금속전환체 4회분(임시저장)	14,737
장반감기 Volatile FP(^3H , ^{85}Kr) 4회분	543
폐용융염 2회분(임시저장)	12,220
계	37,430

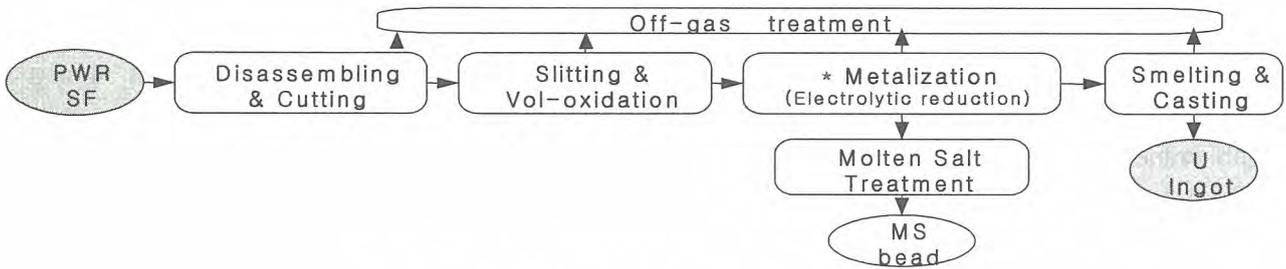


Fig.1. Process Block Diagram for ACP.

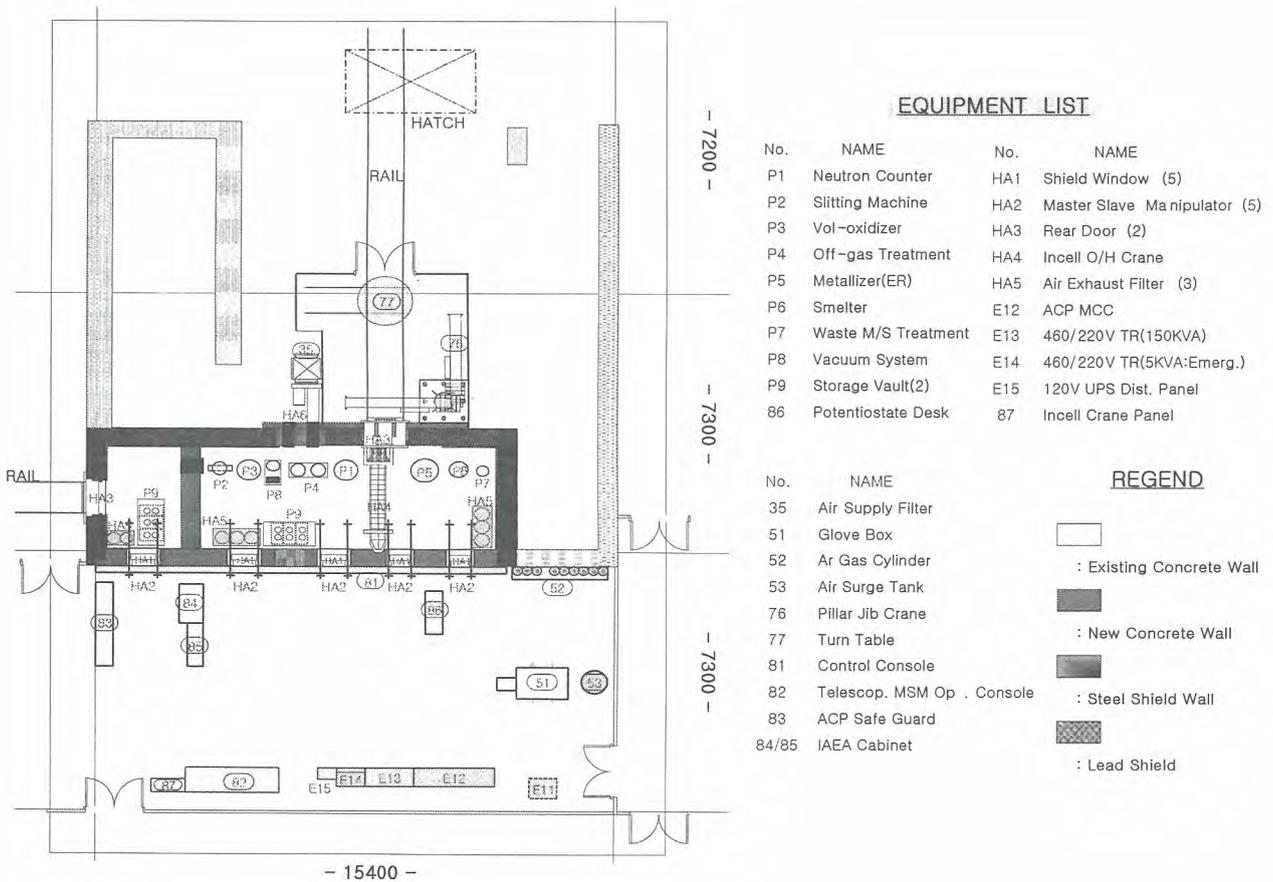


Fig. 2. Overall Lay-out of Hot Cell Facility and Process Equipments.

소형 고하중 조작기를 이용한 사각지역 내 장치부품 보수공정 개발

Development of the Maintenance Process by the Servo Manipulator for the Parts of the Equipment outside the MSM's Workspace in a Hot Cell

이종열, 김성현, 송태길, 박병석, 윤지섭
한국원자력연구소

요 약

고방사성물질을 취급하는 핫셀내 원격취급장치인 MSM의 작업영역을 벗어나는 경우의 공정장치 부품 유지보수공정을 개발하였다. 이를 위하여 핫셀 공정에 대한 가상 목업을 구축하였으며, 이를 이용하여 MSM 작업영역, 작업자 시각영역을 분석하고, 그래픽 가상목업의 충돌감지 기능을 이용한 서보 조작기의 경로계획을 수립하였다. 또한, 분석한 결과를 토대로 서보조작기에 의한 사각지역 내 부품 유지보수 공정을 설정하였으며, 설정된 공정은 그래픽 전산모사를 통하여 검증하였다. 제안된 유지보수 공정은 실제 핫셀공정 수행시 유용하게 활용될 것이며, 그래픽 가상목업은 다양한 핫셀 공정에 대한 분석 및 훈련 시스템으로 활용하여, 작업 효율성 및 안전성 향상에 기여할 것으로 기대된다.

ABSTRACT

In this study, the maintenance process by the servo manipulator for the parts of the equipment that cannot be reached by MSM in the hot cell was developed. To do this, the virtual mock up is implemented using virtual prototyping technology. And, Using this mock-up, the workspace of the manipulators in the hot cell and the operator's view through the wall-mounted lead glass are analyzed. And the path planning of the servo manipulator using the collision detection of the virtual mockup is established. Also, the maintenance process for the parts of the equipment that are located out area of the MSM's workspace by the servo manipulator is proposed and verified through the graphic simulation. The proposed remote maintenance process of the equipment can be effectively used in the real hot cell operation. Also, the implemented virtual mock-up of the hot cell can be effectively used in analyzing the various hot cell operation and in enhancing the reliability and safety of the spent fuel management.

1. 서 론

사용후핵연료와 같은 고준위 방사성물질은 높은 방사능으로부터 작업자를 보호하기 위하여 핫셀이라는 차폐된 시설에서 원격취급장치를 사용하여 취급한다. 따라서, 이러한 물질을 취급하는 공정장비는 효율적인 운전과 원활한 유지보수를 통한 운전성 및 안전성을 고도화하기 위하여, 원격취급장비에 의한 적절한 유지보수방안이 설정되어야 한다. 핫셀에서 주로 사용하는 원격취급장

비로는 마스터-슬레이브 조작기(M-S Manipulator; MSM)가 있으며, 핫셀에 설치되는 공정장비는 핫셀 벽에 부착된 MSM 슬레이브 조작기의 작업범위 내에 적절하게 설치되어야 한다. 그러나, 공정장치, 유틸리티 설비 등 핫셀 내부의 복잡성으로 인하여 공정장치의 일부 부품은 MSM에 의한 접근이 불가능한 사각지역이 발생하는 경우가 있다.

컴퓨터 그래픽 기술을 이용한 가상모형 기술은 이의 기반인 컴퓨터기술의 비약적인 발전에 따라 모든 산업의 다양한 분야에 적용되고 있는 기술로서, 비주얼 환경(Visual Environment)에서 사용자가 원하는 행위를 모사함으로써, 그 과정 및 결과를 사전에 가시화하는 것이 가능하다. 뿐만 아니라, 실제 시스템에서 발생할 수 있는 예기치 않은 상황이나 문제점을 발견하고 해결 방법을 모색할 수가 있기 때문에, 시스템의 설계와 해석, 개발을 위한 툴로서 중요한 비중을 차지하고 있다.

본 연구에서는 이러한 MSM의 접근이 불가능한 부품의 유지보수 공정개발을 위한 그래픽 가상모형을 구축하였다. 또한, 가상 모형을 이용하여, 원격취급 장비의 작업범위, 작업자의 시각 영역 분석 등 다양한 분석을 수행하고, 이를 바탕으로 servo 조작기를 이용하여 사각지역내 부품에 대한 유지보수 방안을 도출하였으며, 도출된 방안의 검증에 위한 전산모사를 수행하였다. 이러한 가상 모형을 구축은 상용의 공학적 시뮬레이션 도구인 IGRIP 을 이용하였다.

2. 핫셀 가상모형

2.1 핫셀공정 개요

본 연구에서는 핫셀공정으로서 사용후핵연료를 효율적이고 경제적이며 안전한 관리를 위하여 원자력연구소에서 수행 중인 사용후핵연료 차세대 관리공정(Advanced spent fuel Conditioning Process ; ACP)을 고려하였다. 이 공정의 목적은 사용후핵연료를 리튬 용융염에서 반응시켜 고열의 핵분열성 물질을 제거하고, 처분이 용이하도록 우라늄 금속형태로 변환시키는 것이다.

이 공정은 원자력연구소에 위치한 조사재시험시설의 핫셀에서 수행되며, 사용후핵연료는 방사능이 매우 높으므로 차세대관리공정과 유지보수 공정을 포함하는 모든 공정은 원격으로 이루어지게 된다.

2.2 핫셀 내 공정장치 배치 및 가상 모형

차세대관리공정 실증시험은 조사재시험시설에 위치한 핫셀에서 수행할 예정이며, 이 시설에서의 시험을 위한 공정 흐름도는 Fig. 1.에서 보는 바와 같다.

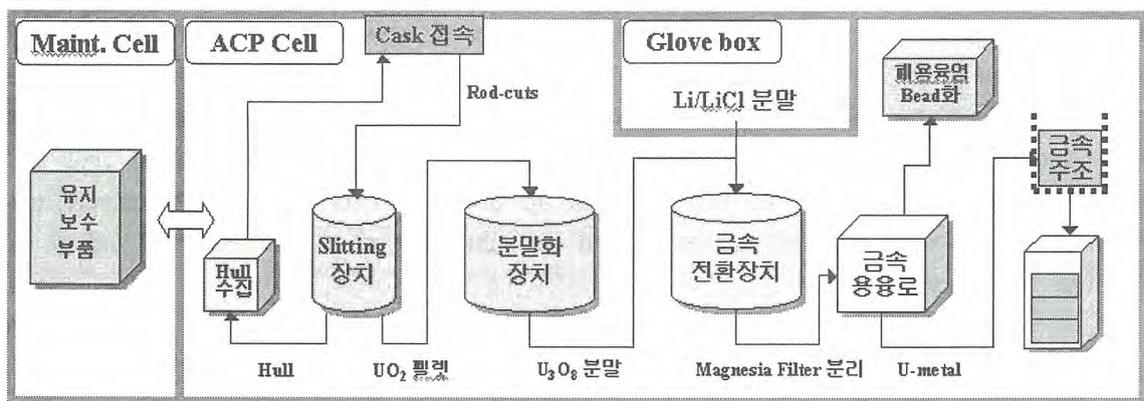


Fig. 1. The process flow of ACP.

핫셀은 2개의 핫셀 구역으로 분류되는데, 하나는 공정셀(ACP cell)이고 다른 하나는 유지보수셀이다. 공정셀에서는 탈피복, 분말화, 금속전환 등 주공정이 수행되고, 유지보수셀에서는 공정 중

발생하는 고장부품을 운반하여 보수하는 셀이다. 또한, 핫셀 벽에는 MSM이 설치되고 핫셀 내에는 서보 조작기가 장착된다. 차세대관리공정 흐름에 따른 효율적이고 안전한 운전을 위한 최적의 공정 장치배치를 위해서는 원격 취급 및 유지보수 시스템의 작업범위에 대한 분석이 필수적이다.

사용후핵연료를 취급하는 핫셀 공정 가상목업은 상용의 공학적 그래픽 전산모사 툴인 IGRIP을 이용하여 구축하였다. 따라서, 비용이 많이 들고 시간 소요가 많은 실제 목업을 활용하는 대신, 구축된 가상 목업을 이용하여 핫셀 장치에 대한 유지보수 공정 분석 및 유지보수 절차를 설정하였다. 이러한 가상 목업 구축을 위하여, 공정 장비뿐만 아니라 MSM 및 서보 조작기와 같은 유지보수장비들에 대하여 3차원으로 그래픽 모델링하였으며, 모델링 디바이스에 실제 장치와 동일한 구동이 가능하도록 운동학을 부여하였다. 또한, 실제 핫셀과 동일한 가상 핫셀환경을 구축하여, 모델링된 장치를 가상 핫셀에 설치하였다. Fig. 2는 차세대관리공정의 가상목업을 보여주고 있으며, 이 목업은 조작기의 작업영역 분석, 충돌 감지, 최적의 경로계획 수립 및 공정 전산모사와 같은 다양한 분석 및 검증기능을 수행한다.

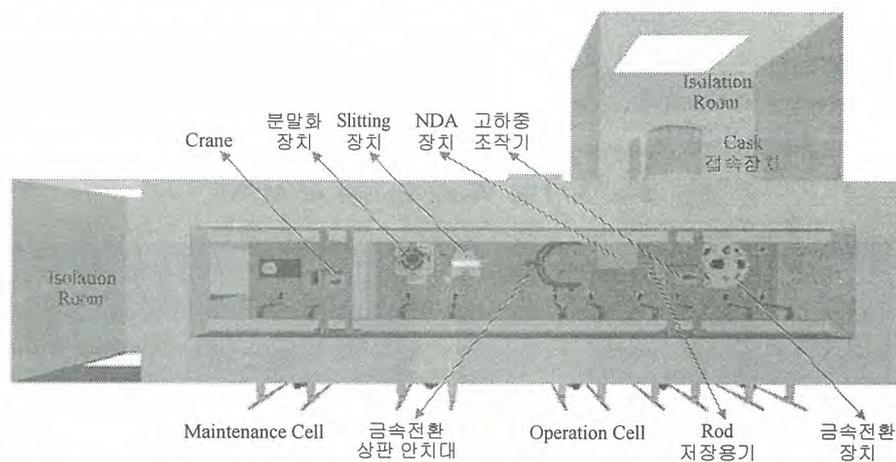


Fig. 2. The virtual mock-up of the ACP.

2.3. 가상목업을 이용한 분석

2.3.1 MSM 작업영역 분석

구축된 가상목업을 이용하여 MSM 작업영역에 대한 다양한 분석을 수행하며, MSM 슬레이브 조작기의 위치와 자세에 따른 end effector의 상세 작업영역에 대한 분석도 수행하였다. 그리고, 이러한 분석을 통하여 MSM 작업영역범위 밖에 위치하게되는 공정장치 부품을 설정하였다.

작업자세 및 공구 장착여부에 따른 MSM의 작업영역은 Fig. 3에 나타내고 있다. 장치 부품이 MSM의 작업영역 범위에 속하더라도, Fig. 4에서 보이고 있는 바와 같이 어떤 부품의 경우는 핫셀 내부가 너무 복잡하여 MSM의 관절 구동한계를 벗어나는 경우가 있게된다. 또한, MSM의 작업영역 범위 내에 있는 부품일 경우에도 MSM의 접근을 위한 자세와 end effector의 방향에 따라 접근이 가능하기도 하고, 접근이 불가능하게 되기도 한다. 이렇게 유지보수를 위한 MSM의 접근이 불가능한 경우, 서보 조작기와 같은 다른 유지보수 장비를 이용한 유지보수방안이 수립되어야 한다.

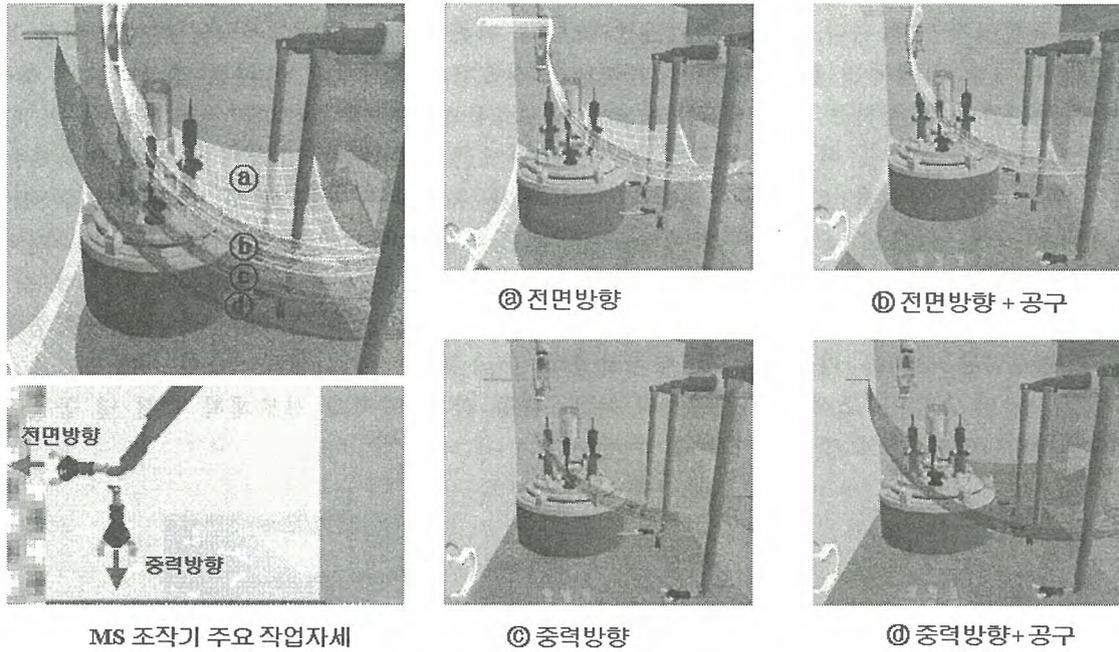


Fig. 3. The Work Range of MSM.

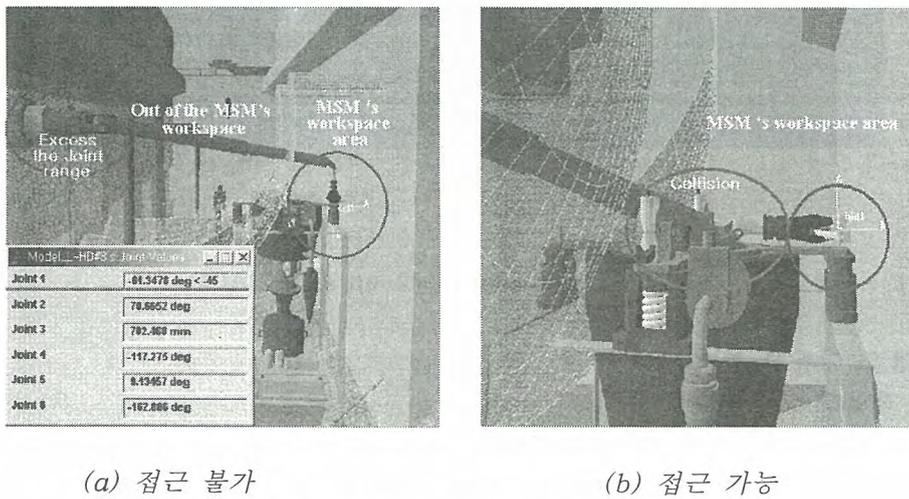


Fig. 4. The analyses of the MSM's workspace.

2.3.2 작업자 시야범위 분석

핫셀 공정의 원격 운전을 안전하게 수행하기 위해서는 작업자의 시각을 명확하게 확보하여야 한다. 본 연구에서는 가상 목업을 이용하여 핫셀에 설치된 납차폐 유리를 통한 작업자의 시각범위를 분석하였다. Fig. 5.은 가상 핫셀에서 설치된 납차폐 유리를 통한 작업자의 정상(normal) 시야범위를 나타내며, 핫셀의 일부 지역은 작업자의 시각 범위를 벗어나는 영역이 있어, 이러한 부분에 대한 공정감시를 위해서는 핫셀 내에 카메라를 설치하는 등의 추가적인 공정감시 장비가 필요하다.

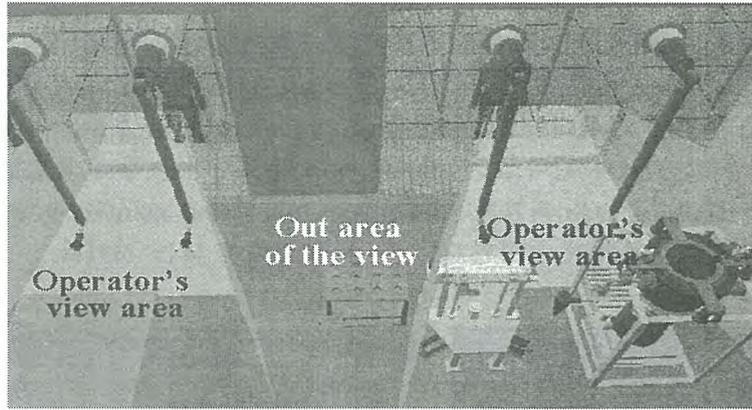


Fig. 5. The view through the shielding windows.

3. 사각지역 내 장치부품 유지보수공정 개발

3.1 서보 조작기 이용

본 연구에서는 MSM으로 접근이 불가능한 장치 부품을 보수하기 위하여, 서보 조작기에 의한 유지보수방안을 제안하였다. 이 서보 조작기는 핫셀 내부에 설치되며, 3개의 주요부로 구성된다; 이송 시스템, 텔리스코픽 튜브시스템 및 조작기. 이 조작기는 핫셀 상부의 브릿지 형태의 수송 시스템에 장착된 텔리스코픽 튜브셋에 부착되어 작업범위를 확보하며, 작업시의 시야확보를 위한 카메라가 장착된다. 이 서보 조작기는 또한 MSM으로 취급이 불가능한 공정물질의 취급 및 운반에도 사용된다.

Fig. 6.은 이 시스템의 그래픽 모델과 부여된 운동학을 보여주고 있다.

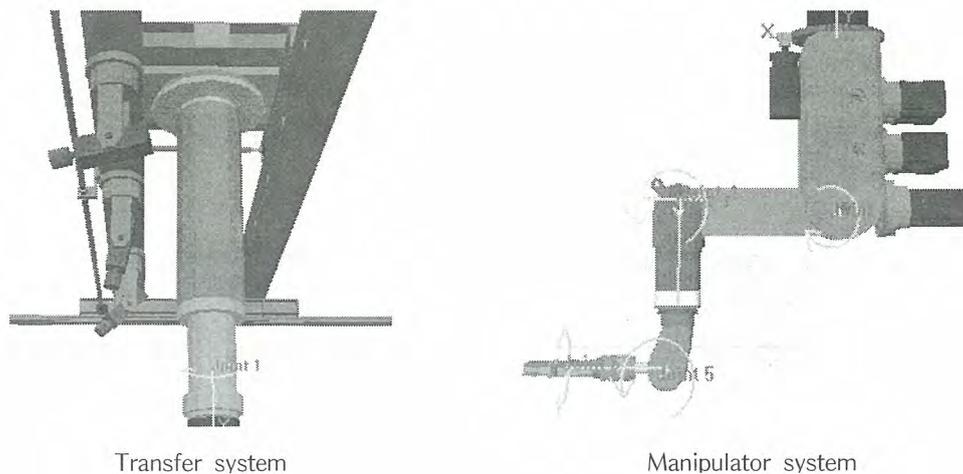


Fig. 6. Graphic model of servo manipulator.

3.2 충돌감지기능을 이용한 조작기 경로계획

조작기의 경로계획과 관련하여 다양한 연구가 수행되고 있으며, 이들 방법에는 각각 고유의 장점과 단점을 포함하고 있어 작업 특성 및 조건에 따라 적절한 방법을 사용하여야 한다. 본 연구에서는 장비 설계 및 공정개발에 광범위하게 이용되고 있는 컴퓨터 그래픽 기술을 활용하여 가상 작업환경을 구축하고, 구축된 그래픽 환경에서의 충돌감지 기능을 이용한 조작기의 최적 작업경로 설정방안을 도출하고자 하였다.

흐름도에서 나타난 바와 같이 조작기가 작업을 수행하기 위하여 목표방향으로 이동시 장애물과 접하게 되면, 이를 회피하는 방향으로 경로를 변경하고, 다시 목표지점으로 이동하는 것을 반복하여 최종적으로 장애물을 회피하여 목표지점에 도달하도록 전산모사함으로써, 최적 경로계획을 설

정하게 되는 것이다.

Fig. 7은 조작기가 공정장치의 유지보수를 위하여 공구를 장착한 상태에서 지점 A에서 이동을 시작한 후 장애물인 장치지지 프레임에 회피하여 B 지점으로 이동하는 경로 설정을 위하여 그래픽 상의 충돌 감지 기능을 이용한 시뮬레이션을 보여주고 있으며, 설정된 경로는 오른쪽 그림에 나타난 궤적과 같다. 그림에서 보는 바와 같이 초기 위치(1)에서 목표지점을 향해 출발한 조작기는 지지 프레임과 충돌을 하게되면(2), 충돌을 회피하는 지점을 지정하여 tag point를 부여하여 경로를 정하며(3), 이러한 시뮬레이션을 반복하여 최적의 경로를 설정(4)하게 되는 것이다.

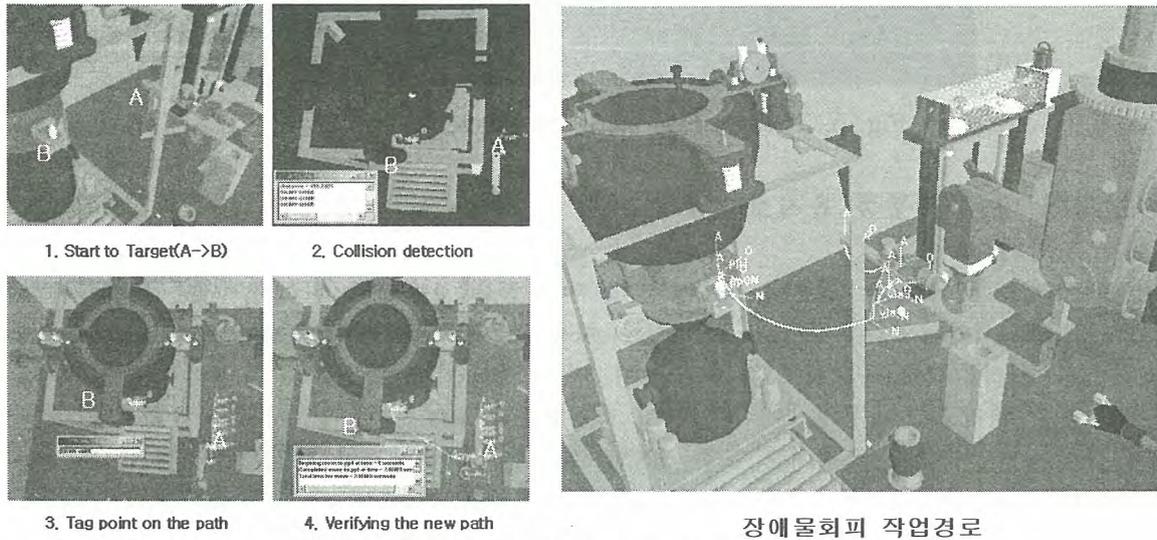


Fig. 7. Graphic simulation for the path planning.

3.3 작업자 시야확보

핫셀 원격 조작에서 작업자의 시야확보는 매우 중요하게 고려하여야 할 요소 중의 하나이다. 본 연구에서는 핫셀 공정을 원격으로 감시하고 작업자의 명확한 시야확보를 위하여 그래픽 환경에서 가상 카메라를 이용한 가상 전시시스템 구축을 제안하였다.

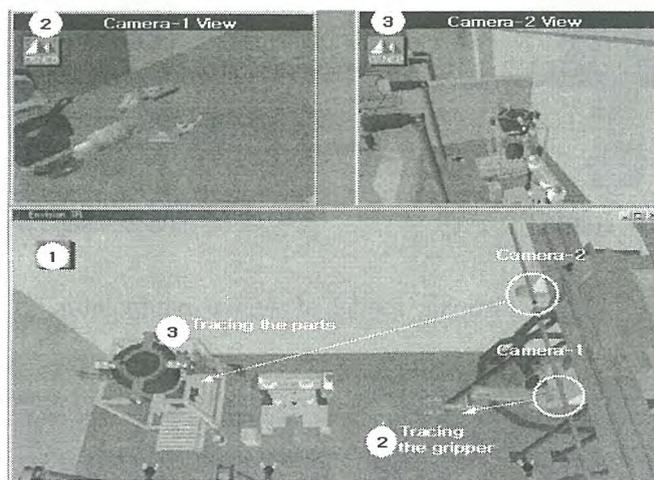


Fig. 8. The virtual display system.

Fig. 8.은 가상목업에서 유지보수공정을 전산모사하면서 공정을 감시하기 위한 가상 전시 시스템을 보여주고 있다. 서보 조작기 주변에 2대의 가상 카메라가 있고, 2대의 카메라는 각각 보수대상 부품과 조작기의 그리퍼를 추종하면서 작업영상을 전시하게 되므로 작업공정을 원격으로 명확하게 감시할 수 있다.

4.3 유지보수공정 그래픽 전산모사

본 연구에서 제안된 유지보수공정과 가상 전시시스템의 검증을 위하여 가상목업을 이용한 그래픽 전산모사를 수행하였다. Fig. 9는 MSM의 사각지역에 위치한 대상 부품을 서보 조작기를 이용하여 교체하는 유지보수공정을 전산모사하는 것으로서, 그림에서 보는 바와 같이 공정 중 충돌이나 기타 다른 문제없이 잘 모사됨을 확인할 수 있다.

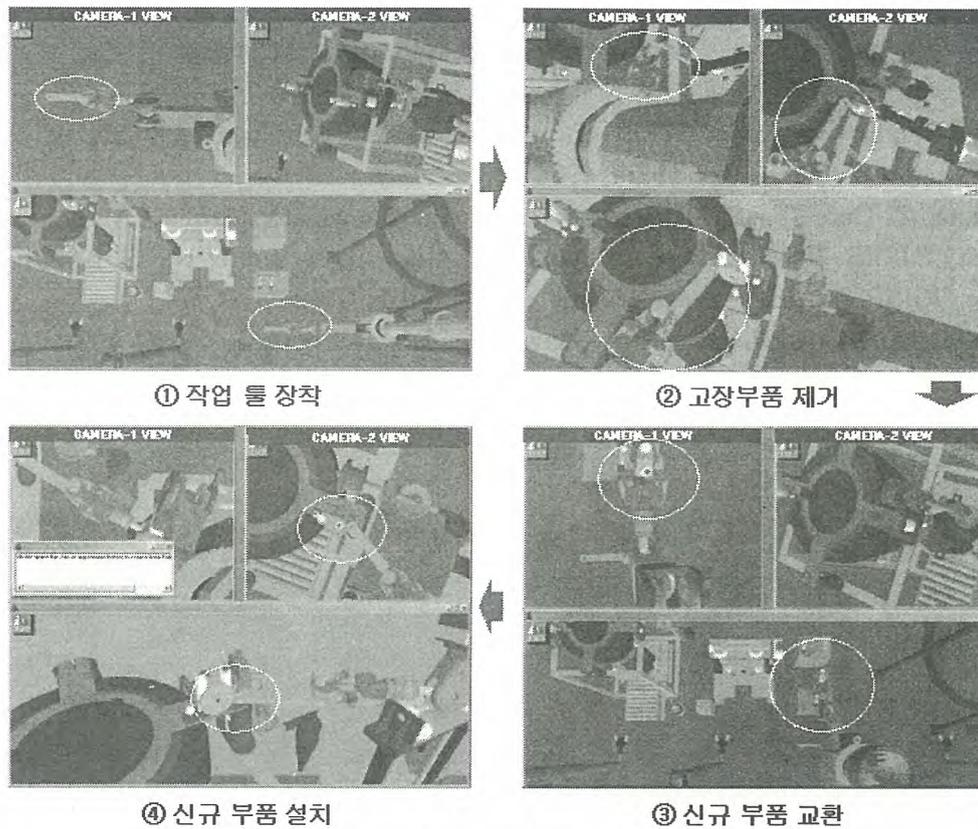


Fig. 9. The graphic simulation of the process.

4. 결론 및 향후 계획

고방사성물질을 취급하는 핫셀 장비는 효율적인 원격조작을 위하여 MSM 작업범위 내에 적절하게 위치시켜야 한다. 그러나, 핫셀의 복잡성으로 인하여, 핫셀 내에 설치된 공정장치의 일부 부품은 이러한 MSM의 작업범위 외 지역인 사각지역에 위치하게 되는 경우가 많다. 본 연구에서는, 이러한 장치 부품의 유지보수공정을 도출하기 위하여, 가상모형기술을 기반으로 하는 가상목업을 구축하였다. 그리고, 이 가상목업을 이용하여 조작기의 작업범위, 납차폐 유리를 통한 작업자의 시각범위 등 다양한 분석을 수행하였다. 또한, 분석 결과를 근거로 핫셀 내에 설치된 서보조작기를 이용한 유지보수공정을 제안하였으며, 제안된 공정의 검증을 위하여 가상목업에서 전산모사를 수행한 결과, 공정 수행 중 충돌이나 기타 다른 문제없이 잘 모사됨을 확인하였다.

본 연구에서 구축된 차세대관리공정 가상 목업은 실제 핫셀 운전에서 다양한 분석과 원격 운전의 안전성 및 신뢰도를 향상시키는데 효율적으로 활용될 수 있다. 또한, 제안된 장치 부품의 유지보수공정은 실제 핫셀 운전에서 유용하게 적용이 가능하며, 추후 실제 핫셀에서의 실질적인 검증을 통한 가상목업의 신뢰도를 향상시킬 필요가 있다.

후 기

본 연구는 과학기술부에서 주관하는 원자력중장기 계획사업의 일환으로 수행하였습니다.

참 고 문 헌

- [1] 신영준, 박성원 외, "Development of Advanced Spent Fuel Management Process", KAERI/RR-2128/2000, 2000.
- [2] 박병석, 윤지섭 외, "A Study on Remote Handling Technology Using Gantry Robot Manipulator," 한국 원자력학회 추계 학술발표회의 논문집, 2000.
- [3] Braun, "Graphic simulation system for product process development," Proc. of the DENEb User Group Conference, pp. 11-14, 1994.
- [4] K. Gupta, Z. Guo, "Fast Collision Avoidance for Manipulator Arms : A sequential Search Strategy," IEEE Transaction on Robotics and Automation, Vol. 6, No. 5, 1990, pp.522-532.
- [5] Deneb, "IGRIP & Axxess User Manual and Tutorials," 1996.
- [6] Central Research Lab. Inc., "Master-Slave Manipulator Installed Ass'y," 1993.

차세대관리 종합공정장치 유지보수용
서보 매니플레이터 시제품 개발

Development of a Servo Manipulator Prototype for Advanced Spent Fuel
Conditioning Process

박병석, 진재현, 안성호, 김성현, 홍동희, 윤지섭
한국원자력연구소

요 약

핫셀내에서 원격작업을 수행할 수 있는 천정 이동 서보 매니플레이터 시스템의 시제품을 소개한다. 핫셀(hot cell)에 기본적으로 설치되는 마스터-슬레이브 매니플레이터 (master-slave manipulator, MSM)는 팔 길이의 제한 때문에 핫셀내 장치의 유지보수를 효과적으로 수행할 수 없다. 따라서, MSM의 결점인 접근 지역의 제한을 극복하기 위해 천정 이동 서보 매니플레이터 (Bridge Transported Servo Manipulator, BTSM) 시스템을 개발하고 있다. 개발한 시제품은 부분적으로 와이어 구동방식을 채택한 단일 팔 형태의 힘반영 마스터-슬레이브 서보 매니플레이터로 중량 및 규모 대비 취급하중이 기존 마스터-슬레이브 서보 매니플레이터 보다 크다. 이는 산업용 로봇 및 일반적인 구동장치의 개발에도 유용하다.

Abstract

The development of a prototype for a Bridge Transported Servo Manipulator (BTSM) system operating in a hot cell is introduced. Mechanical master-slave manipulators (MSMs) which are mounted on the hot cell wall cannot access all the areas for the equipment maintenance due to their reach limitation. The BTSM has been developed to overcome the limitation of access that is a drawback of the MSMs for the equipment maintenance. Wire driven mechanisms have been adopted to increase the handling capacity to weight. This system can be a useful reference for designing other devices in the nuclear industry.

1. 서 론

본 논문은 고방사성 환경에 놓여있는 ACP (Advanced spent fuel Conditioning Process) 장치들의 원격 유지보수를 위해서 개발하고 있는 천정 이동 서보 매니플레이터 (Bridge Transported Servo Manipulator, BTSM) 시스템의 개발 활동에 관하여 기술한다. 한국원자력연구소의 사용후 핵연료 기술개발부에서는 사용후핵연료의 전처리 공정으로서 ACP를 개발하고 있다. ACP 장치는

고방사성 환경의 핫셀(hot cell)에서 운전되기 때문에 매니플레이터로 유지보수 되어야 한다.

핫셀에서는 기본적으로 기계식 마스터-슬레이브 매니플레이터(Mechanical Master-Slave Manipulator, MSM) 들이 널리 사용되고 있다. 그러나, MSM에는 단점이 있다. 즉, 마스터와 슬레이브가 핫셀 벽을 통해서 기구적으로 직결되어 있기 때문에 슬레이브 매니플레이터의 접근 영역에 제한이 따른다. 또한, 슬레이브 매니플레이터가 환경에 접촉할 때 마스터에 전달하는 힘의 비는 1:1이기 때문에, 슬레이브 매니플레이터는 단지 인간 능력 범주 내에서 작업환경에 힘을 가할 수 있다(대략 10 kg 이내).

MSM의 이와 같은 단점 때문에, ACP 장치를 유지보수 하기 위한 장비로서 BTSM 시스템이 효과적인 대안으로 대두되었다. 이는 MSM의 결점인 접근 영역과 슬레이브-마스터 간의 힘 전달비의 제한을 극복할 수 있게 한다. BTSM 시스템을 개발하기 위해서 ACP의 핫셀 크기, 공정장치의 배치, 운전 기간, 환경 조건(방사선, 온도, 및 습도 등), 및 작업내용 등을 분석하여 ACP에 적합한 원격 유지보수 작업용 천정 이동 서보 매니플레이터의 성능 요건을 도출하였으며, 이를 설계 및 제작에 반영하였다. 천정 이동 서보 매니플레이터 시스템은 크게 이송장치(transporter), 슬레이브 매니플레이터(slave manipulator), 마스터 매니플레이터(master manipulator) 및 제어 장치로 구성된다.

2. 설계 요건

ACP의 핫셀 체원은 11m (L) x 2m (W) x 4.3m (H) 이다. 슬레이브 매니플레이터는 이송장치에 부착되어 핫셀내 어떤 곳(X, Y, Z)으로 이동 가능하여야 한다. 이송장치의 구동기는 고장시 유지보수가 쉽지 않기 때문에 이의 신속한 대책으로서 그들은 여유 구동기를 가져야 한다. 또한, 구동기들은 10 m/min 속도 이내에서 연속적으로 제어 되어야 한다. 이송장치의 브릿지 레일(bridge rail)과 작업대(working table) 사이의 높이(2.47 m), 작업대에 설치되는 ACP 장치의 최대 높이(1.2 m) 및 설계되는 매니플레이터의 높이를 고려하여, 텔리스코핑 튜브가 완전히 펼쳐졌을 때와 접혀졌을 때의 높이가 적절히 결정되어야 한다. 텔리스코핑 튜브의 취급 용량은 100 kg 이상은 되어야 한다. 슬레이브 매니플레이터를 유지보수 하기 위하여, MSM을 사용하여 이를 탈착할 수 있어야 한다. 마스터와 슬레이브 매니플레이터는 6자유도와 파지 동작을 가져야 한다. 협소한 핫셀 공간을 고려하여 매니플레이터 팔의 펼친 거리는 1 m 이내야 하고, 작업자의 손목 동작에 신속하게 추종하기 위해 엔드 이펙터(end-effector)의 끝 속도는 1 m/sec 이상이어야 한다. 매니플레이터는 유지보수를 고려하여 모듈화 및 탈착이 가능한 구조여야 한다. 취급 및 운반의 용이성을 고려하여 매니플레이터 자체 무게는 40 kg 이내여야 하고, 모듈의 무게는 10 kg 이내여야 한다. 또한, 취급 하중은 10 kg 이상이어야 한다. ACP 핫셀의 공간 제한을 고려하여, 핫셀 안에 있는 BTSM 시스템은 소형이어야 한다. 또한, 핫셀 내의 시각 정보를 주는 카메라의 위치도 공간 제한을 고려하여 최적으로 결정되어야 한다. 핫셀 안에 있는 BTSM 시스템은 10^8 rad 까지의 방사선 흡수량에도 견디어야 한다. 핫셀 안의 BTSM 시스템 제어는 힘반향 기능을 갖는 마스터 매니플레이터와 제어반을 통해서 수행되어야 한다.

3. 서보 매니플레이터 시스템 개발

3.1 서보 매니플레이터 시스템 개요

그림 1은 접근이 불가능한 지역에 대한 작업을 수행하기 위해 설계한 BTSM 시스템을 보여준다. BTSM 시스템의 설계에는 3차원 CAD인 Solid Edge를 사용하였다. BTSM 시스템은 이송장치, 슬레이브 매니플레이터, 마스터 매니플레이터 및 원격 제어장치로 구성된다. Mockup cell 내 상부에 이송장치가 놓여지며, 이송장치의 텔레스코픽 튜브 하단에 슬레이브 매니플레이터가 장착된다. Mockup cell의 크기는 가로, 세로, 높이가 각각 3.4 m, 2 m, 3.37 m 이다. Mockup cell은 가로 크기를 제외하고, 실제 ACP 핫셀의 크기와 같다. 작업자가 마스터 매니플레이터를 움직일 때, 슬레이브 매니플레이터는 실시간으로 마스터의 동작을 추종한다. 설계된 매니플레이터는 힘 반향 기능을 갖는 서보 매니플레이터이다. BTSM 시스템은 양방향 위치제어(bilateral-positioning control)를 통해서, 힘 센서를 사용하지 않고 접촉 힘을 피드백 한다. 작업자는 슬레이브 매니플레이터에 발생하는 힘을 마스터 매니플레이터를 통해서 얻는다. 힘 반향은 작업자에게 마치 작업자가 직접 작업하는 것과 같은 촉감을 느끼게 한다. 이를 통해서, 툴 혹은 물체를 파괴하거나 손상시키지 않고 복잡한 작업을 수행할 수 있게 된다. 작업자는 4대의 카메라 모니터를 보면서 작업 현장을 시각적으로 인식한다. BTSM 시스템은 인간 작업자에 의해서 운전되기 때문에, 인간-기계 접속이 성공의 중요한 요소가 된다.

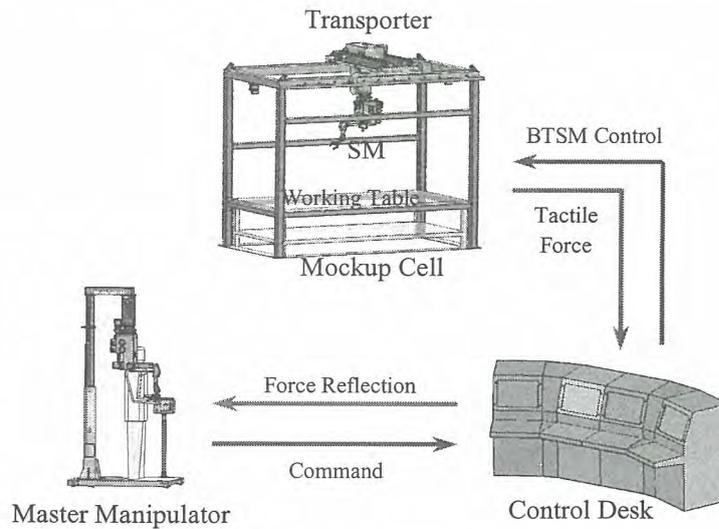


그림 1. 천정 이동 서보 매니플레이터 시스템.

3.2 서보 매니플레이터 시스템 시제품

3.2.1 기계장치

그림 1에서 보여주는 이송장치는 거더와 트롤리의 X-Y 운동과 텔레스코픽 튜브의 Z 운동 기능을 갖추고 있다. 이들의 구동모터는 모두 이중화하였다. X-Y 구동모터는 브레이크가 없으며, Z 구동모터는 브레이크가 있다. 모터는 Tamagawa社의 TBL-iII시리즈를 선정하였다. 이송장치 하부에는 카메라를 설치하여 슬레이브 매니플레이터의 작업상황을 모니터링 할 수 있도록 하였다. 텔레스코픽 튜브는 고정 1단, 미끄럼 3단으로 구성하였으며, 최하단은 체인으로 연결되어 있다. 튜브 내부에는 슬레이브 매니플레이터에 접속되는 4개의 케이블이 통과한다. 텔레스코픽 튜브 하단에는 슬레이브 매니플레이터와 접속하기 위한 인터페이스 장치를 장착하였다. 슬레이브 매니플레

이터를 필요에 따라 탈착 및 부착하기 위한 장치이며, 기계적인 연결장치를 갖추고 있으며 전기적인 연결을 위해서 커넥터를 설치하였다. 접속을 위해서 6개의 핀을 설치하였다. 이중 하판의 세 개(Support pin)는 대략적인 맞춤을 위한 것이고 나머지 상판의 세 개(Guide pin)는 정밀한 맞춤을 위한 것이다. 결합은 상하판이 붙은 상태에서 회전판을 돌려서 Support pin이 빠지지 않도록 한다. 텔레스코픽 튜브가 상하로 움직임에 따라 케이블 또한 같이 움직여야 한하며, 내부에서 꼬임이나 이완되는 현상이 없도록 해야한다. 이를 위해 별도의 수납장치를 마련하였다. 움직 도르래를 이용해서 튜브가 올라오면 움직 도르래의 무게를 이용해서 케이블을 당겨주게 된다.

그림 2에서 보여주는 슬레이브 매니플레이터는 6자유도의 운동과 1개의 그리핑 운동이 가능하다. 각각의 운동은 서보모터를 통해 제어된다. 1, 2, 3 축은 기어 구동방식이고, 4, 5, 6, 7 축은 와이어 구동방식이다. 1, 2, 3 축은 상대적으로 많은 토크를 필요로 하기 때문에 강성이 충분한 기어 구동방식을 택하였으며, 4, 5, 6, 7 축은 모터의 위치를 몸체부분에 배치하여 취급하중 대비 중량을 키울 수 있는 와이어 구동방식을 채택하였다. 그리퍼는 탈착이 가능하도록 설계하여 필요에 따라 다른 톨로 바꿔 작업할 수 있도록 하였다.

그림 3에서 보는 바와 같이 마스터 매니플레이터는 슬레이브와 동일한 형상을 갖추고 있다. 즉, 마스터와 슬레이브의 각 축은 일대일 대응한다. 또한 힘반영을 위해 서보 모터를 장착하였다. 끝단은 그리퍼 대신에 핸들을 장착하여 조종이 쉽도록 하였다. 마스터 매니플레이터는 2단 step의 텔레스코픽 튜브를 갖는 지지대에 장착되며, 작업자의 키에 따라 기준 높이를 조절할 수 있게 하였다.

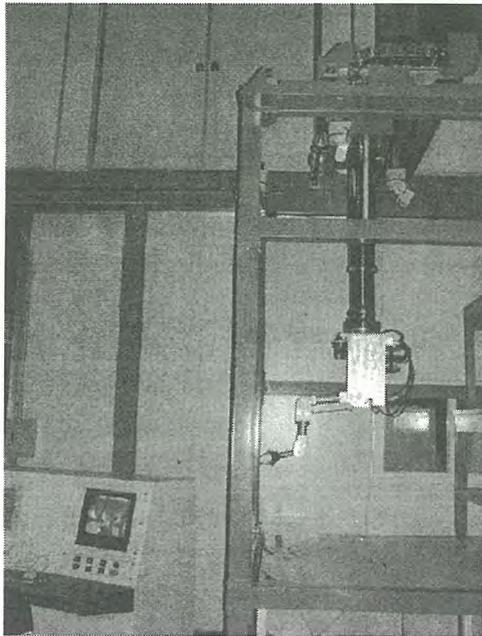


그림 2. 이송장치와 슬레이브 매니플레이터.

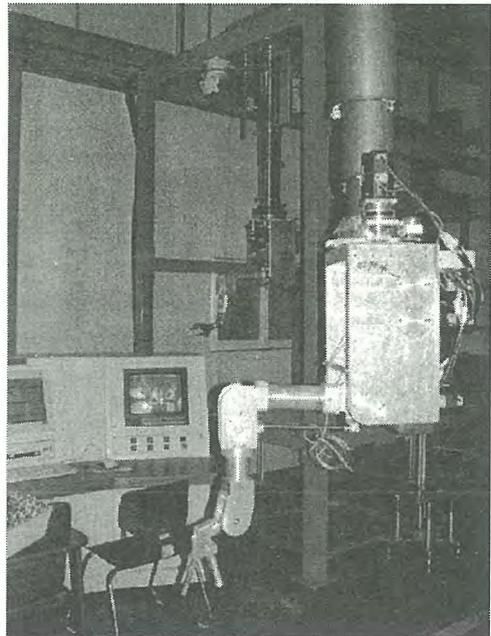


그림 3. 마스터 매니플레이터.

3.2.2 제어 장치

그림 4에서 보는 바와 같이 제어 시스템은 사용자가 조작기의 상태 및 작업상황을 쉽게 파악할 수 있도록 통합적으로 구성하였다. 컴퓨터 모니터를 통해서 는 조작기의 상태를 파악할 수 있으며 카메라 모니터를 통해서 는 작업상황을 파악할 수 있다. 내부에는 슬레이브 및 마스터 매니플레이

터를 구동하는 모터 드라이버 및 제어용 입출력 보드를 장착하였다.

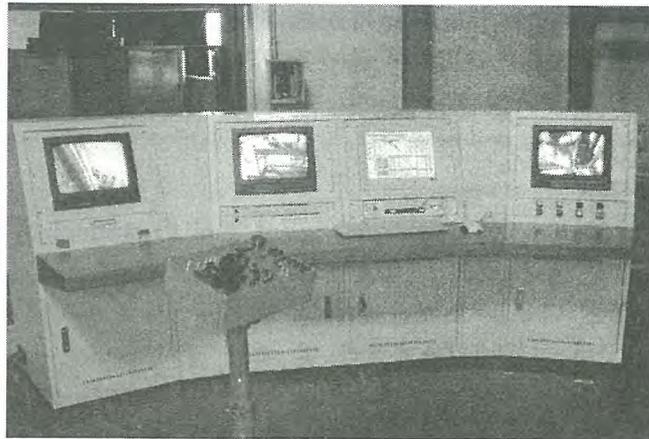


그림 4. 제어 시스템.

그림 5에서 보는 바와 같은 GUI 운전 프로그램은 시스템 파라미터를 설정하고, 마스터의 지령 신호를 처리하여 슬레이브 매니플레이터를 제어하며, 조작기의 상태에 대한 정보를 제공한다.

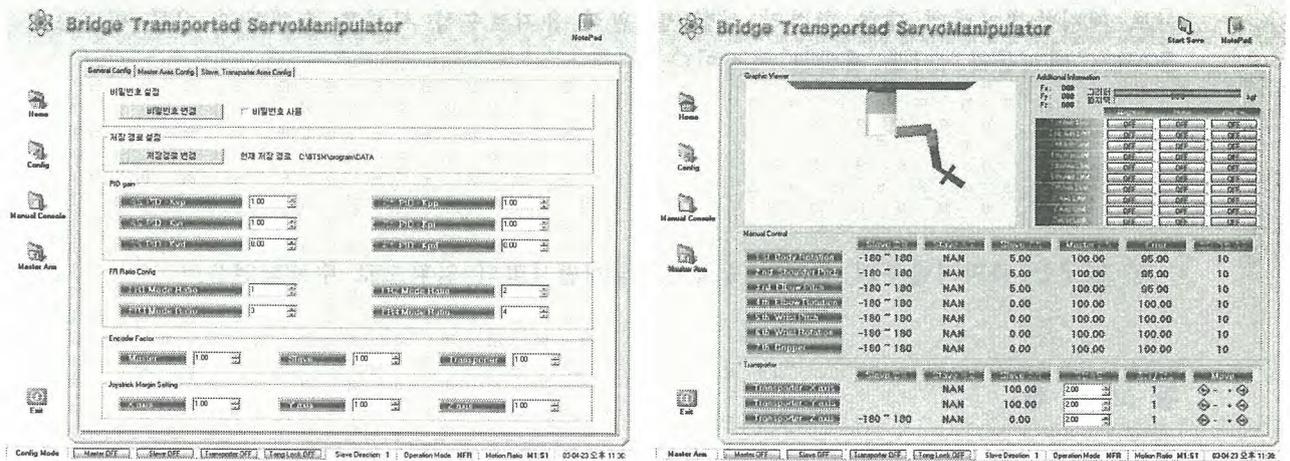


그림 5. 천정 이동 서보 매니플레이터 시스템 운전프로그램.

마스터 매니플레이터 옆에는 매뉴얼 콘솔을 설치하여, 작업자가 이송장치와 슬레이브의 각축을 제어하거나, 카메라를 제어할 수 있도록 하여 작업을 쉽게 할 수 있도록 하였다. 매뉴얼 콘솔은 다음과 같은 다양한 기능을 갖는다.

- Joystick으로 이송장치를 X-Y-Z 운전한다.
- 매니플레이터의 운전 모드(Jog, 위치제어, 힘반영 제어 및 힘반영 비)를 설정한다. Jog는 마스터와 슬레이브 매니플레이터의 위치가 서로 일치하지 않을 때 사용(속도조절 가능)하며, 위치제어는 마스터에 힘반영을 하지 않을 때 사용한다. 힘반영 제어시에는 힘반영 비를 조절하여 작업자에게 피로를 주지 않는 최적의 힘을 느끼게 한다.
- 마스터의 구동범위는 슬레이브의 구동범위의 0.5~2 배로 scale할 수 있도록 하여 고하중 작업 또는 섬세한 작업별로 적절히 선택할 수 있도록 한다.

- 마스터는 ± 90 도 범위에서 움직이지만 슬레이브는 ± 360 도 영역을 움직이기 때문에 슬레이브 매니플레이터를 90도 간격으로 offset 시킬 수 있다.
- 카메라 4 대를 각각 Pan/Tilt/Zoom/Focus 조절 할 수 있다.
- 마스터, 슬레이브 매니플레이터 및 운반장치의 운전/이상 상태를 표시한다.

4.결 론

고 방사선 환경하에 있는 ACP (Advanced spent fuel Conditioning Process) 장치를 원격으로 유지보수 하기 위한 천정 이동 서보 매니플레이터(Bridge Transported Servo Manipulator) 시스템의 시제품 개발에 대한 내용을 소개하였다. 천정 이동 서보 매니플레이터 시스템은 이송장치, 슬레이브 매니플레이터, 마스터 매니플레이터 및 제어 장치로 구성된다. 이송장치는 슬레이브 매니플레이터를 핫셀내 3차원 공간상 임의의 위치로 이동시키는 기능을 한다. 마스터와 슬레이브 매니플레이터는 핸들(handle)과 그리퍼(gripper)를 제외하고 기구적으로 같다. 매니플레이터는 핸들(또는 그리퍼)을 포함하여 7 자유도를 가진다. 서보 매니플레이터는 현존하는 마스터-슬레이브 서보 매니플레이터와 비교하여 크기가 가장 작으며, 중량 대비 취급용량은 가장 크다. 유지보수가 어려운 이송장치의 구동기는 이중화하였으며, 슬레이브 매니플레이터의 구동부는 MSM으로 탈착이 가능하도록 모듈화 구조로 설계하였다. 힘반향 민감도를 높이기 위하여 매니플레이터의 4, 5, 6, 및 7축의 동력 전달은 와이어로 실현되도록 하여 역구동성을 높이도록 하였다. 향후, 천정 이동 서보 매니플레이터에 대한 힘반향 시험 및 원격 유지보수성 시험을 수행하고 이를 바탕으로 실증용 서보 매니플레이터를 개발할 예정이다.

후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력 중장기연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

참 고 문 헌

- [1] L.W. Ricketts, 1972, "Fundamentals of Nuclear Hardening of Electronic Equipment", John & Wiley & Sons.
- [2] D. P. Kuban and H. L. Martin, "An Advanced Remotely Maintainable Force-Reflecting Servomanipulator Concept," Proc. of the 1984 National Topical Meeting on Robotics and Remote Handling in Hostile Environments, pp. 407-415, 1984.
- [3] J. N. Herndon, H. L. Martin, and P. E. Satterlee, Jr., "The State-Of-The-Art Model M-2 Maintenance System," Proc. of the 1984 National Topical Meeting on Robotics and Remote Handling in Hostile Environments, pp. 147-154, 1984.
- [4] T. W. Burgess, "The Remote Operation and Maintenance Demonstration Facility at the Oak Ridge National Laboratory," Proc. of Spectrum '86 Int'l Topical Meeting on Waste Management and Decontamination and Decommissioning, pp. 2089-2100, 1986.
- [5] Eugene I. Rivine, Mechanical Design of Robots, McGraw-Hill Book Company, 1988.

원전발생 방사성폐기물 시료 중 초우란원소의 정량

Determination of Transuranic Elements in Radwaste Samples from Nuclear Power Plant

조기수, *김태현, 전영신, 지광용, 김원호,
한국원자력연구소, *주식회사 액트

요 약

원전발생 방사성폐기물 시료 중 TRU를 정량하기위해 모의 사용후핵연료 시료 용액중 Pu, Am 및 Cm 을 이온교환수지 및 HDEHP 추출크로마토그래피로 분리한 다음 알파분광분석법으로 각 핵종의 함량을 정량하였다. Dowex AG1 음이온수지에서 12M HCl-0.1MHI 용리액으로 Pu 를 분리하고 이차분리관인 HDEHP 흡착 분리관에서

DTPA-Lactic Acid 용리액으로 Am과 Cm을 군분리하였다. 분리된 Pu, Am 및 Cm은 0.1M NaHSO₄-0.53M Na₂SO₄ 매질에서 전착한 다음 알파분광분석법으로 ²³⁹Pu, ²⁴¹Am 및 ²⁴⁴Cm 의 알파에너지의 방사능을 측정하여 회수율을 구하였다. 비방사성 금속원소 및 우라늄을 포함하는 합성 용액 시료중 ²³⁹Pu, ²⁴¹Am 및 ²⁴⁴Cm 을 측정한 결과 각각 83.8%, 85.2% 및 86.3% 의 회수율을 나타내었다.

Abstract

Transuranic elements such as Pu, Am and Cm in synthetic solution of spent nuclear fuel samples were determined by electrodeposition followed by alpha-spectrometry after separation using anion exchange and extraction chromatography in order to determine the transuranic elements in radwaste samples from nuclear power plants. Plutonium was separated by 12M HCl-0.1M HI as an eluent on anion exchange column. As a second step Am and Cm were separated in a group by DTPA-Lactic acid as the eluent on HDEHP coated column. The nuclides of ²³⁹Pu, ²⁴¹Am and ²⁴⁴Cm separated were determined by alpha-spectrometry after electrodeposition in 0.1M NaHSO₄-0.53M Na₂SO₄ buffer solution as an electrolyte. The recovery yields of ²³⁹Pu, ²⁴¹Am and ²⁴⁴Cm were 83.8%, 85.2% and 86.3%, respectively, from the synthetic solution containing uranium and non-radioactive metal elements.

1. 서 론

방사성폐기물 시료중 핵분열생성 물질 및 악티늄족원소의 함량을 정량하는 것은 방사성폐기물의 이력을 정확히 이해할 뿐 만 아니라 이를 통하여 방사성폐기물의 처리처분관련 공정설계 등 방사성폐기물사업 전반에 중요한 자료를 제공하는데 활용될 수 있다. 이와같이 방사성 폐기물 사업을 효율적으로 수행하기 위해서는 우선 방사성폐기물 시료 중 각 핵종을 정확히 분석할 필요가 있으며 이를 위해서는 원전에서 발생하는 각종 폐기물에 대한 핵종분포 및 농도를 구하는 업무가 수행되어야 한다. 일차 핵종분포 및 그 농도가 구해지면 이를 토대로 하여 향후 비파괴적 방법으로 각 핵종을 분석할 수 있는 각 핵종별 측도인자(scaling factor)를 구하는 것이 필요하다. 따라서, 본 연구에서는 이들 핵종 중 알파선 방출핵종인 Am, Cm, Pu 등의 초우란원소 및 그 동위원소의 함량을 구하는 화학적 파괴분석법을 확립하고자 한다. 이들 초우란원소 들은 알파방사선을 방출하므로 취급시 체내흡입이 되지 않도록 유의하여야 하며, 따라서 분석방법이 비방사성시료에 비하여 매우 제한적이다. 일반적으로 용매추출이나 이온교환법으로 개별분리 또는 군분리를 거친후 해당 원소를 전착하여 알파분광분석법(alpha-spectrometry)으로 정량하는 것이 널리 알려져 있다. 또는 분리과정을 거친후 질량분석법(thermoionization mass spectrometry)으로 동위원소비를 측정하거나 유도상플라즈마 질량분석법(inductively coupled plasma mass spectrometry)으로 개별핵종을 정량하고 있다[1,2]. 본 연구에서는 방사성폐기물 시료중 Pu, Am 및 Cm 을 음이온교환수지[3]와 추출크로마토그래피[4]를 차례로 사용하여 분리한 후 알파분광분석법으로 ^{239}Pu , ^{241}Am 및 ^{244}Cm 의 개별 핵종을 정량하고자 하였다. 12M HCl 매질에서 Pu(VI)를 음이온교환수지에 흡착시키고 요드 이온에 의해 Pu는 Pu(III)로 환원하여 용리하고 있으며 또한 Am과 Cm 의 경우는 2-(di-ethylhexyl)phosphoric acid (HDEHP) 흡착분리관에서 Am과 Cm이 흡착되고 DTPA-lactic acid 용리제로 이를 용리하여 분리한다. 특히 알파분광분석법으로 ^{241}Am 및 ^{244}Cm 을 정량할 경우에는 검출효율을 높이고 또한 검출기 오염방지를 위하여 전기전착을 한 다음 각 핵종의 알파 에너지를 측정하여 정량하였다. 악티늄족원소에 대한 전착방법으로는 ammonium sulfate 매질을 사용하는 Talvitie 법[5]이 일찌기 알려져 있으며, 그외 mixed oxalate-chloride 매질, $\text{NaHSO}_4\text{-H}_2\text{SO}_4\text{-NH}_4$ buffer system, ammonium oxalate-ammonium sulfate, organic matrix 및 $\text{NaHSO}_4\text{-Na}_2\text{SO}_4$ 매질 등을 이용하는 방법이 보고되고 있다[6-9]. 이들 방법중 $\text{NaHSO}_4\text{-Na}_2\text{SO}_4$ 매질[9]을 이용하는 경우 전착율에 중요한 변수로 작용하는 전착매질의 pH 조절이 매우 용이하다는 장점이 있다. 특히 본 전착방법은 방사성시료를 차폐시설 내에서 원격으로 조작하여 전착하는 경우 최종적인 pH 조절이 용이하므로 취급이 매우 간편하다. 따라서, 본 연구에서는 방사성폐기물 시료중 Am, Cm 및 Pu을 군분리 또는 개별분리하여 $\text{NaHSO}_4\text{-Na}_2\text{SO}_4$ 매질에서 전착한 후 알파분광분석법으로 ^{239}Pu , ^{241}Am 및 ^{244}Cm 의 함량을 정량하고자 하였다.

2. 실 험

기기 및 시약

TRU 분리를 위해 Dowex AG1x8, 100-200 mesh size 의 음이온교환 수지를 채운 분리관(4 mm Φ x 45mm H)과 Amberlite XAD XVI 지지체에 2-(di-ethylhexyl)phosphoric acid (HDEHP)를 흡착한 분리관(4 mm Φ x 48mm H, 350 mg)을 연속으로 사용하여 Pu, Am 및 Cm를 각각 분리하였다. 알파에너지 측정에 사용된 α -Spectrometer는 EG&G/ORTEC 사의 제품이며 300mm² silicon surface barrier detector 가 부착된 Alpha-King module 이었다. 전착장치는 polyethylene 전착셀

(inner dia 2cm x height 8cm)과 SS 재질의 전착 planchet(dia 1 inch x thickness 0.5m)을 금속 재질의 받침대에 부착한 후 Pt 전극을 Cell 속에 넣어서 구성하였다. HDEHP 흡착용 지지체는 Amberlite XAD XVI(Aldrich Chemical Co, 50 mesh)를 분쇄한 후 100~200 mesh 크기로 만들었으며 TRU 분리에 용리액으로 Diethylenetriaminepentaacetic acid(DTPA, Aldrich Chem. Co, 97%)와 lactic acid (85~90%, Tedia Co., U.S.A.)를 혼합하여 사용하였다. 0.1M NaHSO₄-0.53M Na₂SO₄의 전착매질을 제조하기 위해서 사용한 NaHSO₄는 Junsei Co의 extra pure 급 이었고 Na₂SO₄는 Merck GR 급 이었다. 시료중 유기물을 파괴하는 전처리 과정에서 Merck GR 급의 H₂SO₄ 과 HClO₄ 및 HNO₃을 각각 사용하였다. 전착 종료시 산성매질을 중화하기 위해 전착셀에 주입한 NH₃는 Merck GR 급 이었다. 그리고 ²⁴¹Am 과 ²⁴⁴Cm 의 표준용액은 모두 North America Scientific Inc. 의 제품으로 각각 11.27 μ ci/5.0379 g 과 10 μ ci/5.0297 g 의 방사능을 갖는 원용액을 약 20 dps/mL 되도록 희석하여 사용하였다. 전착된 핵종의 알파선 측정에 사용한 표준 알파선원 (Amersham Co, UK)은 ²³⁹Pu, ²⁴¹Am 및 ²⁴⁴Cm 이 거의 같은 비율로 혼합된 것으로 방사능이 3.28x10⁵ dps 였으며 이 표준선원을 사용하여 계측기의 계측효율을 측정하였다. 이때 Cm-244 표준용액 및 표준알파선원의 방사능은 Cm-244의 반감기(18.1y)을 고려하여 보정한 후 사용하였다.

TRU 분리 및 정량

TRU 의 분리는 그림 1의 과정에 따라 합성용액 일정량을 취하여 증발건조 시킨 다음 12M HCl 매질에서 Pu를 음이온교환수지관에 흡착시키고 0.1M HI-12M HCl 용리액으로 Pu를 분하였다. Pu 흡착시 용출된 Am과 Cm은 0.1M HNO₃ 질에서 HDEHP extraction column에 흡착시킨다. 다시 0.05M DTPA-0.5M Lactic Acid 용리액으로 Am과 Cm을 분리하였으며 이들 분리된 Pu, Am 및 Cm은 전기전착을 하여 알파분광분석법으로 방사능을 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

음이온교환수지 및 HDEHP 추출크로마토그래피에 의한 TRU 분리

방사성폐기물 시료중 미량으로 존재하는 TRU를 분리하기 위해서는 시료매질인 우라늄을

Separation of Pu, Am and Cm from U matrix sample solutions

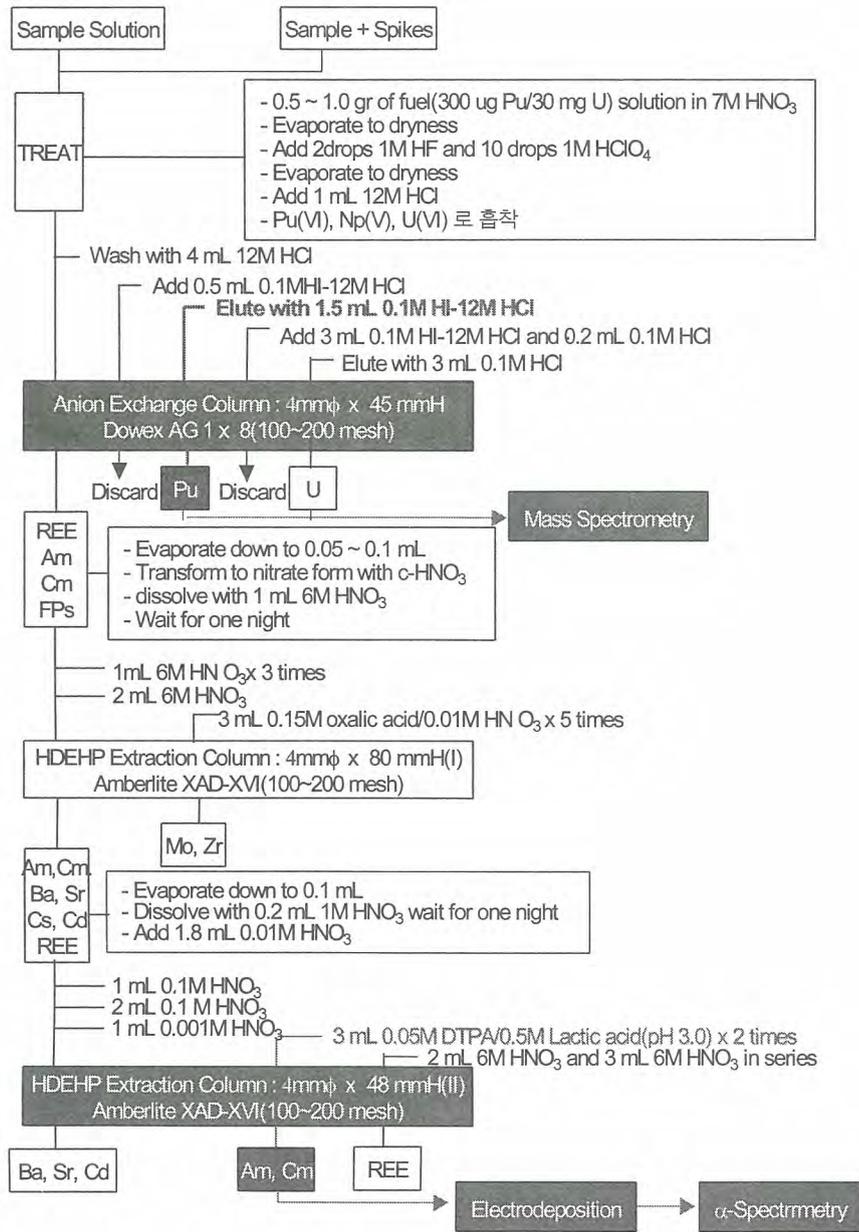


Fig 1. Separation scheme of Pu, Am and Cm by anion exchange and extraction chromatography

포함하는 핵분열생성물질의 분리거동을 동시에 검토하여야 한다. 즉, 이들 원소들이 TRU와 함께 포함될 경우 전착과정에 함께 전착이 되어 알파에너지 측정에 간섭영향을 줄 수 있다. 핵분열생성물질의 비방사성 금속원소들의 용리거동을 검토한 결과 Pu 용리부분에 Ba와 Zr 이 Am과 Cm 용리부분에 Zr이 소량 용출되었다. 그러나 이들 원소들은 TRU의 알파에너지를 측정하는데 방해효과는 발견되지 않았다. ²³⁹Pu 1.6 Bq, ²⁴¹Am 1.7 Bq 및 ²⁴⁴Cm 2.7 Bq를 합성용액에 각각 주입하여 분리한 후 액체섬광계수기(LSC) 로 각 핵종의 방사능을 측정하여 회수율을 구한 결과 각각 72%,

98%, 78% 로 나타났다. 그리고 원전폐기물 시료와 유사한 우라늄 및 금속불순물이 함유된 매질에 Pu, Am 및 Cm을 일정량을 가한 합성시료로 부터 TRU를 분리하여 전기전착한 후 ^{239}Pu , ^{241}Am 및 ^{244}Cm 를 정량한 결과 Pu의 경우 평균 87.8%의 회수율을 나타내었으며 재현성도 매우 높았다.

그러나 Am과 Cm의 경우는 회수율이 상대적으로 낮고 재현성 또한 좋지 않았다. 이것은 Am과 Cm의 경우 용리된 시료 중에 많은 양의 유기물이 함유되어 있어 이것을 파괴하는 시료 전처리 과정에서 손실히 있는 것으로 판단된다. 따라서 향후 이와같은 시료에 대해서는 유기물 파괴방법에 대한 연구가 요구된다. 본 분리과정에서 TRU의 흡착거동을 보면 Pu은 12M HCl 매질에서 $[\text{PuO}_2\text{Cl}_4]^{-2}$ 상태의 음의 착물로서 음이온교환수지에 흡착되고 I^- 에 의해 Pu(III) 상태로 환원될 때 용리된다. 또한 Am과 Cm의 경우는 0.1M HNO_3 매질에서 HDEHP 흡착 분리관에 흡착되며 DTPA-Lactic acid 착화제에 의해 용리된다.

알파분광분석법에 의한 ^{239}Pu , ^{241}Am 및 ^{244}Cm 정량

TRU 정량법으로는 개별분리 또는 균분리를 거친후 질량분석법을 사용하거나 알파분광분석법을 사용하는 것이 가장 널리 알려져 있다. 알파분광분석을 적용하기 위해서는 분리된 핵종을 사전에 전기전착을 하는 것이 필수적으로 요구된다. 전착방법으로는 앞에서 언급한 여러 방법 중 sodium sulfate 전해질(0.1M NaHSO_4 -0.53M Na_2SO_4)을 사용하는 것이 가장 효과적이라고 판단되어 본 방법을 이용하였다. 우선 Am과 Cm을 분리할 때 용리액으로 사용된 DTPA-Lactic Acid와 같은 유기물을 파괴하여 전착매질과 동일한 매질로 변화시켜야 한다. 시료 전처리 방법은 이미 알려진 방법[9]으로써 NaHSO_4 와 H_2SO_4 를 가하고 서서히 가열하여 유기물을 파괴하였으며 최종적으로 탄소성분을 제거하기 위해서 질산과 과염소산을 가한 후 고온으로 가열하였다. 본 전처리 과정을 거치면 최종적으로 0.1M NaHSO_4 -0.53M Na_2SO_4 의 완충용액이 된다. 따라서, 전처리 과정이 요구되지 않는 단순한 매질의 시료일 경우 직접 0.1M NaHSO_4 -0.53M Na_2SO_4 용액 10 mL만 가하여 전착을 하였다. 특히 본 연구에서 우라늄을 포함한 합성용액의 경우 TRU 양이 매우 낮으므로 용리된 전체 용액을 전처리하여 전착하고자 하였다. 따라서 많은 양의 용리액(0.05M DTPA-0.5M Lactic Acid)을 전처리 하여야 하며 시료 중 함유된 유기물을 파괴하기 위해서 많은 양의 질산과 과염소산을 여러번 반복하여 사용하였다. 이 경우 TRU의 손실이 발생할 위험성이 매우 높았다. 향후에는 많은 양의 유기물시료는 일차 건조한 다음 furnace 내에서 회화시킨 다음 산처리 하는 것이 바람직 할 것으로 생각된다. Pu의 경우는 용리된 12M HCl-0.1M HI 용액을 hot plate에서 서서히 가열하여 증발 건조한 다음 진한 질산을 소량 가하여 다시 건조하여 질산염으로 변환시켰다. 최종적으로 시료에 전착매질(0.1M NaHSO_4 -0.53M Na_2SO_4)을 소량 가하여 황산염 매질로 변환시킨 후 전착셀에 옮겨 전착하였다. Am과 Cm이 동시에 전착된 planchet을 알파분광 분석기로 각 핵종의 알파에너지(^{239}Pu ; 5.16 Mev, ^{241}Am ; 5.48 Mev, ^{244}Cm ; 5.81 Mev)를 측정하여 방사능을 구하고 다시 비방사능 (specific activity)을 적용하여 해당핵종의 함량을 구하였다. Pu의 경우는 Pu의 동위원소 간에 알파에너지가 겹쳐지므로 알파분광분석법과 질량분석법을 동시에 적용하여 각 동위원소의 함량을 구할 수 있다. 그러나 본 연구에서는 ^{239}Pu 만 사용하여 5.16 Mev의 알파에너지를 측정하여 회수율을 구하였다. 그림 2에 ^{241}Am 및 ^{244}Cm 의 알파스펙트럼을 대표적으로 나타내었으며 각 핵종피크의 분해능(FWHM)은 모두 23~25 Kev 범위에 있었다.

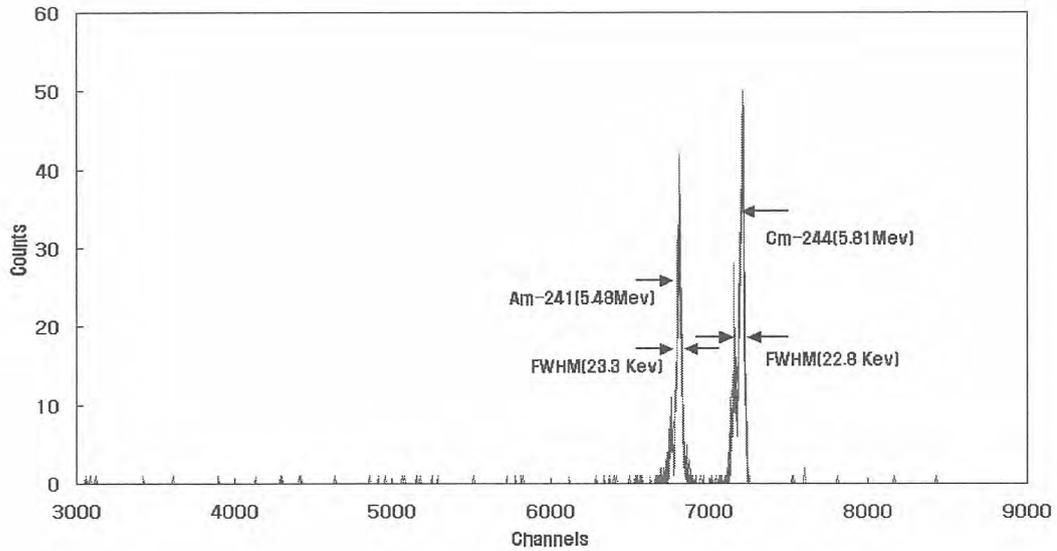


Fig 2 Alpha spectrum of ^{241}Am and ^{244}Cm in synthetic solution after electrodeposition, ^{241}Am 8.3 Bq, ^{244}Cm 9.6Bq, Counting time ; 3000 sec

3. 결 론

우라늄 및 핵분열생성물질의 매질에 TRU(Pu, Am, Cm) 가 미량 함유된 합성용액 시료를 사용하여 음이온교환수지 및 HDEHP 추출크로마토그래피로 TRU 를 우수하게 분리할 수 있었다. 분리된 각 원소들을 황산염 전해질에서 전기전착을 한 후 알파분광분석법으로 각 핵종을 정량하였다. ^{239}Pu , ^{241}Am 및 ^{244}Cm 의 평균 회수율이 각각 83.8%, 85.2% 및 86.3% 로 나타났으며, 이때 금속불순물 원소들은 TRU 용리시 미량으로 포함되었지만 알파에너지 측정에 간섭영향을 주지 않는 것으로 나타났다. 향후 본 방법에 대한 회수율 및 정밀도를 보다 높여 원전폐기물시료 분석에 적용하고자 한다.

참 고 문 헌

1. 이창현, 서무열, 최계천, 박양순, 지광용, 김원호. “유도결합 플라즈마 원자방출분광기/차폐시스템의 특성 및 방사성 물질 분석에 대한 적용성 평가”, *J. Analytical Science & Technology*, **13**, 474(2000).
2. J. M. Barrero Moreno, M.Betti and J. I. Garcio Alonso, *J. Analytical Atomic Spectrometry*, **12**, 355-361(1997).
3. ASTM E 321-75, Part 45(1975).
4. Chang Heon Lee, Moo Yul Suh, Kwang Soon Choi, Jung Suk Kim, Byong Chul Song, Kwang Yong Jee, Won Ho Kim, *Analytica Chimica Acta*, **428**, 133(2001).
5. N. A. Talvitie, *Analytical Chem.*, **44**(2), 280-283(1972).
6. Kenneth W. Puphal and Donald R. Olsen, *Anal. Chem.*, **44**(2), 284-289(1972).
7. S. E. Glover, R. H. Filby, S. B. Clark and S. P. Crytdal, *J. of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **234**(1), 213-218(1998).

8. M. H. Lee and C. W. Lee, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 447, 593-600(2000).
9. S. Bajo, J. Eikenberg, J. of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 242(3), 745-751 (1999).

사용후핵연료의 전기화학적 금속전환을 위한
5kg U₃O₈/Batch 규모의 Mock-up 시험

5kg U₃O₈/Batch Scale Mock-up Test
for the Electrochemical Reduction of Spent Oxide Fuel

오승철, 허진목, 홍순석, 이원경, 서중석, 박성원
한국원자력연구소

요 약

산화물 형태의 사용후핵연료를 용융염에서 금속 형태로 전환하여, 발열량, 부피 및 방사능을 1/4로 감소시킬 수 있는 전기화학적 금속전환 공정을 개발하고, 5 kg U₃O₈/batch 규모의 mock-up 실험을 수행하였다. 본 연구에서는 전해 셀의 운전변수를 해석하였으며, 아울러 hot test 를 위한 장치개발 연구도 병행하였다. 전기화학적 금속전환 공정을 이용하여 U₃O₈ 형태의 천연우라늄 분말을 99 % 이상 금속전환할 수 있었으며, 또한 20 kg U₃O₈/batch 규모 장치의 설계자료를 산출할 수 있었다.

Abstract

An electrochemical reduction technology which can reduce the decay heat, volume, and radioactivity of spent fuel by a factor of quarter by converting oxide type spent fuel to a metallic form in a molten salt was developed and mock-up test in a 5 kg U₃O₈/batch scale was carried out. The electrochemical reaction was analyzed regarding the operational factors. The research efforts was also concentrated on the apparatus development for a hot test. Fresh U₃O₈ powder was metallized with a more than 99 % yield via this electrochemical technology and design data for the 20 kg U₃O₈/batch scale apparatus were also obtained.

1. 서 론

고방사성 물질인 사용후핵연료는 원자력발전 과정에서 필연적으로 발생하는 부산물이다. 그러므로, 원자력발전의 경제성 제고, 에너지 자원활용의 극대화 및 환경친화성 증진 측면에서 사용후핵연료의 효과적인 관리 이용기술의 개발은 중요하다. 현재 핵확산 저항성이 큰 건식 처리기술을 이용해서 사용후핵연료로부터 초우란 원소를 포함한 장수명 핵종을 분리하여 고속로나 소멸로에서 이를 단수명 핵종으로 전환함과 동시에 에너지를 생산하고, 단수명 핵종만을 심지층에 처분하는 핵연료주기 기술에 대한 연구들이 전 세계적으로 활발히 진행되고 있다.¹⁻³⁾

한국원자력연구소에서는 1997년 이래로 사용후핵연료 관리·이용 기술개발(Advanced Spent

Fuel Conditioning Process(ACP))에 대한 연구를 수행하고 있다. 공정의 개념은 사용후핵연료를 고온 용융염에서 금속전환시키는 한편 이 과정에서 Cs, Sr 등의 고방열 핵종을 제거함으로써 사용후핵연료의 발열량, 부피 및 방사능을 1/4로 감소시키는 것이다. 기존의 기준공정은 사용후핵연료의 air voloxidation, 650 °C LiCl-Li 용융염에서 산화물 형태 연료분말의 금속으로의 전환(Li 환원), 그리고 electrowinning에 의한 폐용융염으로부터의 Li 회수의 3 단계 단위공정으로 이루어져 있었다. 그러나 2001년 이후, 한국원자력연구소에서는 금속전환공정과 Li 회수공정을 LiCl-Li₂O 용융염계에서의 일단계 전해환원 공정으로 통합한 전기화학적 금속전환 공정을 개발하였다.⁴⁾ 본 전기화학적 금속전환 공정은 기존 공정에 비해서 활성 금속인 Li 대신에 Li₂O를 사용함으로써 공정의 안정성을 증진함과 함께 Li 사용시 hot-cell의 분위기를 inert 분위기로 유지해야만 했던 제약성을 극복함으로써 경제적 측면에서도 장점을 가지고 있다. 또한 Li 환원공정과 회수공정의 통합에 의한 반응시간 단축과 아울러 공정산출량을 증대시킬 수 있다.

본 연구에서는 전기화학적 금속전환 반응의 5 kg U₃O₈/batch 규모의 mock-up test를 수행하여, 전해반응의 운전변수를 분석하고 hot test를 위한 20 kg U₃O₈/batch 규모 장치의 설계자료를 산출하고자 하였다.

2. 실험 장치 및 방법

가. 실험장치

LiCl-Li₂O 용융염계로부터 우라늄 산화물을 금속으로 전환시키기 위한 전해장치는 저항식 가열로, K-type 열전대, 이중으로 구성된 반응기, 산화전극, 환원전극 및 기준전극, 아르곤 기체 및 시료 공급장치 등으로 구성하였다. 전해 반응기는 내부와 외부 반응기 사이에 알루미늄 도가니를 설치하여 절연시켰으며, 내부반응기의 경우에는 LiCl 용융염계에서 비교적 내부식 특성이 있는 S.S 304로 제작하였다. 반응기 상단에는 반응기 냉각과 용융염의 휘발, 배출을 막기 위해서 냉각 재킷을 설치하였다. 전기화학 셀의 환원전극부는 S.S 재질의 conductor와 U₃O₈ 분말을 충전한 다공성 마그네시아 용기로 구성하였다. ø20 mm의 백금 튜브와 S.S conductor가 산화전극으로 사용되었으며, 중앙에 위치한 환원전극을 중심으로 72° 간격으로 다섯 개를 설치하였다. 기준전극으로는 LiCl 용융염계에 비교적 안정한 백금 기준전극을 사용하였으며, ø6 mm의 백금 막대와 S.S conductor로 구성하였다.

나. 실험방법

전기화학적 금속전환반응은 650 °C LiCl-Li₂O 용융염계에서 불활성 분위기 유지를 위해서 아르곤 기체를 흘리면서 수행하였다. 용융염의 원료물질인 LiCl(Alpha, 99 %)은 상온에서 내부반응기에 공급하였다. 수분과의 반응에 의한 LiOH 생성을 방지하기 위해서 Li₂O (Cerac, 99.5 %)는 글로브박스에서 LiCl에 대해서 3 wt%가 되게끔 포장한 다음, 밀폐된 불활성 분위기를 유지하면서 LiCl과 함께 내부반응기에 공급하여 LiCl-Li₂O 복합염을 제조하였다. 반응물을 공급한 다음, 전해반응을 수행하기 전에 상온, 300 °C 및 650 °C에서 0.5 기압의 아르곤 기체로 반응기를 각각 20회 purge하여 반응기 내부에 존재하는 수분을 제거하였다. 전기화학적 실험기법으로는 chronopotentiometry를 사용하였다. 전해반응 중의 LiCl-Li₂O 용융염에서 Li₂O 농도변화는, 일정 시간 간격으로 1.5 g 정도의 용융염 시료를 석영 샘플관을 이용하여 샘플링하고 페놀프탈레인 지시약과 0.1 N HCl 용액으로 적정하여 분석하였다. 전해반응이 종결된 후 환원전극부를 용융염 액위 이상으로 상승시켜 금속전환체와 용융염을 분리하고 세척한 다음, Thermogravimetry(TG) 분석에 의해 금속전환율을 계산하였다.

3. 결과 및 고찰

한국원자력연구소에서는 사용후핵연료의 전기화학적 금속전환공정 개발을 위하여 g 규모 (3 g U_3O_8 /batch 또는 40 g U_3O_8 /batch)로 기초실험을 수행하고 있다. 그런데 목표로 하고 있는 20 kg U_3O_8 /batch 규모 핫셀 운전을 위해서는 kg 규모로 mock-up test를 하여 전해 셀의 운전변수를 최적화하고 이에 의해서 20 kg U_3O_8 /batch 규모 장치의 설계 자료를 산출할 필요성이 제기되었다. 본 연구에서는 전기화학적 금속전환 장치를 5 kg U_3O_8 /batch 규모 (실제 U_3O_8 공급량은 3.5 kg)로 설계 제작하고, mock-up test를 운전조건 최적화를 중심으로 수행하였으며, 이를 g 규모 기초실험에서 얻은 자료와의 상호비교를 통하여 20 kg U_3O_8 /batch 규모 장치의 설계에 응용하고자 하였다.

전해반응의 속도를 조절할 목적으로 정전류 공급기법인 chronopotentiometry를 전해기법으로 이용하였다. 이때 전해전위에 영향을 미치는 인자로 우라늄 산화물 층과 마그네시아 용기의 두께, 용융염 속의 Li_2O 농도, 산화전극과 환원전극간 거리에 따른 용융염에서의 저항, 전해반응의 구동력으로서의 산화전극과 환원전극에서의 과전압 등을 설정하고 그 영향을 규명하였다.

Fig. 1에 전해과정에서의 전압변화를 가해진 전류변화와 함께 도시하였다. 일정 전류 공급조건에서 quasi 기준전극인 백금전극을 기준으로 전위변화를 측정하였을 때 반응의 진행과 함께 셀 전위는 음의 값으로, 산화전극 전위는 양의 값으로 각각 증가하는 경향을 나타내었다. 이는 산화리튬의 분해전압이 용융염 중의 산화리튬 activity의 함수라는 사실로 설명할 수 있다. 즉, 반응이 진행됨에 따라, Li의 생성과 함께 용융염 중의 산화리튬 농도는 감소하고, 이에 따라서 그 activity도 감소하게 되어 산화전극 전위는 양의 값으로 셀 전위는 음의 값으로 변화시키게 되는 것이다.

환원전극의 전위를 인가된 전류의 함수로 도시하였는데, 선형 비례관계가 관찰되었다 (Fig. 2). 이는 반응의 진행과 함께 본 연구에서 사용한 다공성 마그네시아 용기 내부가 금속 Li와 우라늄 금속으로 채워지고 결국 전극면적이 이들 금속이 전극으로 작용하게 됨에 따라 증가하게 되고 이에 의해서 아주 낮은 과전압 상태에서 Li^+ 가 Li로 환원되는 반응이 환원전극에서 일어남을 의미한다. 선형관계식에 의해서 전류를 인가하지 않았을 때의 값을 외삽해서 구하면 환원전극 전위는 -2.308 V이다. 그리고 반응시간 850 분에서 공급된 전류가 24.58 A이었을 때, 환원전극 전위와 셀 전위는 -2.839 V와 -3.078 V이었다. 본 연구에서 사용한 장치의 경우, 산화전극과 환원전극부의 S.S conductor간의 거리는 23.3 cm이었다. $LiCl$ 의 541 °C에서의 저항치 $0.20 \Omega \cdot cm$ 와 20 A의 전류가 공급된 경우에 산화전극에 인가되는 전류밀도 $80 mA/cm^2$ 를 이용해서 전해질에 의한 전압강하를 계산하면 0.37 V이다. 용융염 속의 Li_2O 농도가 각각 0.79 wt%와 2.2 wt%일 때 그 activity는 각각 0.11와 0.30이고, Nernst 식에 의해서 구한 평형전위값은 각각 -2.56 V와 -2.52 V가 된다. 이 수치를 표준 상태에서 구한 Li_2O 의 분해전압 -2.47 V와 상기한 5 kg U_3O_8 /batch 규모 장치의 운전에서 관찰된 환원전극 전위 -2.839 V와 셀전위 -3.078 V와 비교하면 순수하게 농도에 의해 발생하는 전압강하 값은 미미하다는 것을 알 수 있다. 또한 g 규모 전해 셀과 kg 규모 전해 셀의 운전에서 얻은 전위 값의 비교에서 우라늄 산화층과 마그네시아 용기의 두께가 전압강하에 미치는 영향도 본 연구의 실험조건에서는 미미하다는 것을 관찰할 수 있었다. 이상에서 전류통과에 소모되는 전압강하(전해질, 격막, 전극, 도체의 저항에 기인)가 전해반응의 구동력(이론분해전압, 산화전극 과전압, 환원전극 과전압)에 기인하는 전압강하에 비해서 상대적으로 작다는 것을 확인할 수 있었으며, 특히 앞으로 전해반응의 속도를 높일 때, 즉 전류밀도를 증가시킬 때, 산화전극 과전압 증가에 의해서 전체 셀의 운전 전위가 결정될 것임을 확인할 수 있었다. U_3O_8 의 금속전환은 Li_2O 의 분해전압보다 환원방향으로 큰 셀 전위에서는 Li_2O 의 촉매작용에 의해서 진행된다. 즉, Li_2O 의 전해 생성물 중 환원전극에서 생성된 Li는 마그네시아 용기 내의 우라늄 산화물과 화학적

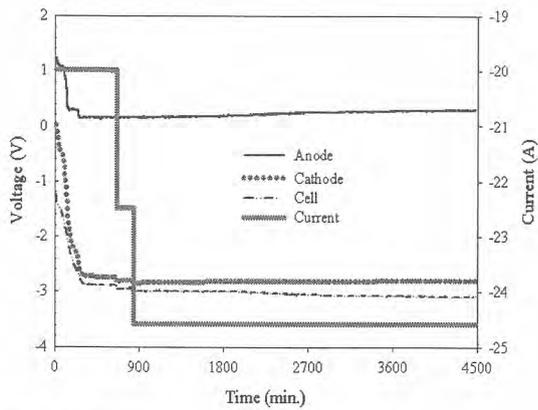


Fig. 1. Voltage and current variations during electrochemical reduction reaction.

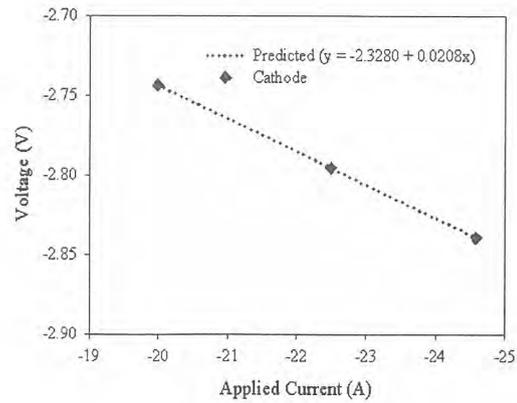


Fig. 2. Cathode voltage vs. applied current during electrochemical reduction reaction.

으로 반응하여 이를 금속으로 전환시키면서 Li^+ 가 되고, 이 Li^+ 는 다시 전기적으로 Li로 전환되어 다음 사이클의 반응에 사용되는 것이다. 산화전극에서는 초반에는 용융염 내의 Li_2O 에 기인하는 O^{2-} 가 산소기체로 산화되어 배출되는 반응만이 일어나지만, 반응이 진행됨에 따라서 우라늄 산화물에 기인하는 O^{2-} 가 환원전극부로부터 산화전극으로 이동해와 산소기체로 배출되게 된다. 이러한 반응경로에 의해서 본 연구에서는 마그네시아 용기 내에 담긴 우라늄 산화물을 99 % 이상 금속 전환시킬 수 있었다. 그런데, 마그네시아 용기 내에 담긴 금속전환체를 위치별로 XRD로 분석한 결과, S.S conductor와 인접하였던 부위에서는 FeU_6 구조의 생성이 관찰되었다. 문헌에 의하면 Fe와 U의 공융점은 $721\text{ }^\circ\text{C}$ 이다.⁵⁾ 본 연구에서는 LiCl의 녹는점 $613\text{ }^\circ\text{C}$ 를 고려하여 전해반응을 $650\text{ }^\circ\text{C}$ 의 온도에서 수행하였다. 따라서, 환원전극부의 마그네시아 용기 내에서 일어나는 Li와 우라늄 산화물의 발열적 화학반응에 의해서 국부적으로 온도가 상승되는 것으로 유추할 수 있었다. 백금 재질의 산화전극의 경우 장시간 반응에도 안정성을 나타냄을 산화전극 전위에서 관찰할 수 있었다. 그러나, 반응종료 후 전극 표면을 분석한 결과 Li_2PtO_3 피막이 생성되었음을 XRD를 통해서 확인할 수 있었다.

4. 결 론

기존의 Li 금속환원공정과 electrowinning에 의한 Li 회수공정을 일단계로 통합한 사용후핵연료의 전기화학적 금속전환 공정을 개발하고 5 kg U_3O_8 /batch 규모 전해장치를 이용한 mock-up test를 수행하였다. 셀 전위에 영향을 미치는 운전변수를 선정하고 그 영향을 규명하였으며 향후 장치용량과 전류밀도를 증대시킬 경우 산화전극 과전압이 전해 셀 운전전위의 주요 결정인자임을 확인하였다. 5 kg U_3O_8 /batch 규모(실제 U_3O_8 공급량은 3.5 kg) 장치 운전에 의해서 우라늄 산화물을 99 % 이상 금속전환되었으며, 이에 의해서 전기화학적 금속전환 공정의 실험적 검증을 달성하였다.

감사의 글

본 논문은 과학기술부의 원자력 중장기 연구개발 사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. E. J. Karell, R. D. Pierce, and T. P. Mulcahey, ANL/CMT/CP-89562 (1996).
2. M. Fujie, Y. Shoji, and T. Kobayashi, Proc. of GLOBAL'95, 1448 (1995).
3. T. Usami, M. Iizuka, and T. Koyama, Proc. of GLOBAL'95, 1472 (1995).
4. J. M. Hur, C. S. Seo, I. S. Kim, S. S. Hong, D. S. Kang, and Seong-Won Park, Proc. of WM'03 Conference (2003).
5. L. Leibowitz and R. A. Blomquist, J. of Nucl. Mater., 184, 47 (1991).

AM, AEM 산화물들의 용융 LiCl에서의 분리 물성 측정

Measurements of Separation Properties of AM, AEM Oxides in Molten LiCl

오승철, 박병홍, 강대승, 서중석, 박성원
한국원자력연구소

요 약

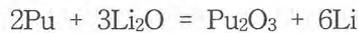
우라늄 산화물의 금속전환을 위해 고온 용융염 중에서 전기화학적 환원공정에 대한 관심이 고조되고 있다. 본 공정은 우라늄 산화물뿐만 아니라 다른 악티늄족 원소 산화물 및 일부 희토류원소 산화물 역시 금속으로 환원되는 장점을 가지고 있다. 이러한 금속산화물들은 독창적으로 고안된 일체형 음극 및 불활성 양극을 이용하여 금속으로 환원되며, 음극에서 발생된 산소 이온은 양극으로 전달되어 산화됨으로서 산소기체를 발생시킨다. 용융염 중에서 알칼리 및 알칼리토류 산화물에 대한 전기화학적 거동은 아직 완전히 밝혀지지 않았으며, 후행핵연료주기의 단위공정으로서 개발 중에 있다. 사용후핵연료의 열 부하는 주로 세슘 및 스트론튬에 의한 것으로, LiCl 용융염 중에서 세슘, 스트론튬 및 바륨 산화물에 대한 용해 속도 및 환원전위를 고찰하였다.

Abstract

Much attention has been given to an electrochemical reduction process for converting uranium oxide to uranium metal in molten salt. The process has the versatility of being adopted for reducing other actinide and rare-earth metals from their oxides. Using the metal oxide to be reduced as a integrated cathode designed originally and inert conductors as anodes, oxygen anions are removed from the cathode and oxidized at the surface of the anodes in a molten salt cell. However, the electrochemical properties of alkali and alkali-earth metal oxides in molten salt have not been investigated thoroughly, which made the process incomplete when it is considered as a unit process in a back-end fuel cycle. It is well known that cesium and strontium isotopes in spent fuel are main contributors for head load. The properties of cesium, strontium, and barium oxides such as the dissolution rates and reduction potentials in molten LiCl dissolving Li_2O are examined.

1. 서 론

고온 LiCl 용융염계를 이용한 대표적인 금속전환기술은 미국의 ANL 연구소에서 개발된 리튬공정으로, 650 °C의 LiCl 용융염계에서 산화물 핵연료와 Li 금속과의 환원반응을 이용하여 우라늄, 초우라늄 원소, 귀금속 원소들을 금속으로 전환하여 회수하고, 알칼리 및 알칼리토류 산화물은 LiCl과 반응하여 염화물 형태로 전환되어 용융염 내에 용해되며, 이 때 생성되는 Li₂O 역시 용융염 내에 용해된다. 650 °C의 LiCl 용융염 중의 Li₂O 용해도는 8.7 wt%이나¹⁾, 효율적으로 플루토늄을 환원하기 위해서는 Li₂O 농도를 3 wt% 이하로 유지해야 한다고 보고하고 있으며²⁾, Li₂O가 일정 농도 이상의 경우에는 다음과 같은 화학평형에 의해 환원되었던 플루토늄이 다시 산화되는 것으로 설명하고 있다.



이와 같은 이유로 LiCl 용융염 중의 Li₂O 농도를 허용치 이하로 유지하기 위하여 후속공정으로 Li₂O의 전기분해 공정이 추가되어야 하며, 회수된 Li 및 처리된 염은 다음 공정에서 재 사용한다. 그러나 LiCl 용융염 중의 핵분열생성물의 농도가 어느 수준에 도달하면 새로운 염으로 교체하고 사용한 염은 유리 및 제올라이트와 혼합하여 세라믹 형태로 만들어 폐기한다.

최근에 미국의 ANL과³⁾ 한국원자력연구소(KAERI)에서⁴⁾ 고온의 LiCl-Li₂O 용융염계에서 우라늄 산화물의 금속전환과 Li₂O의 전해반응이 동시에 진행되는 통합 반응메카니즘을 기초로 한 전기화학적 환원공정이 연구된 바 있으며, 기본 개념은 같으나 음극의 형태가 ANL에서는 스테인레스 스틸 망 내부에 UO₂ 펠렛을 충전한 개념이며, KAERI에서는 다공성 마그네시아 필터 내부에 U₃O₈ 분말을 충전한 개념이다. 그러나 지금까지 알칼리 및 알칼리토류 산화물에 대한 전기화학적 거동이 알려진 바 없어 본 연구에서는 대표적인 고방열 핵종인 세슘, 스트론튬 및 바륨 산화물에 대한 용해속도 및 환원전위를 고찰하였다.

2. 실 험

가. 실험 장치

본 실험장치는 그림 1과 같이 저항식 가열로, 2중 반응기로 구성된 금속전환 반응관, cathode 및 anode 전극, 아르곤 가스 공급장치로 구성된다. 금속전환 반응관은 내.외부 반응기 사이에 세라믹 도가니를 설치하여 외부의 전기적 노이즈를 차단하도록 하였다. 특히 내부 반응기는 LiCl 용융염계에서 비교적 내부식 특성이 있는 고밀도 마그네시아 도가니를 사용하였고, 흡수성이 큰 LiCl과 Li₂O는 불활성 분위기의 밀폐된 조건에서 내부 반응기로 공급이 가능하도록 하였다. 금속전환 반응장치의 상단 부분에는 증발된 LiCl의 응축과 반응기의 냉각을 위해 cooling jacket을 설치하였다. 금속전환 셀은 다공성(pore size: 6 μm) 마그네시아 필터, 우라늄 및 알칼리 산화물과 스테인레스 스틸 재질의 conductor로 구성된 일체형 cathode 전극, ø6 mm 백금튜브의 anode 전극 및 ø3 mm 백금봉의 reference 전극으로 구성된다. anode 전극은 중앙 cathode 전극으로부터 20 mm 지점에 180°간격으로 2 개의 전극을 설치하였다. 그리고 금속전환 셀의 상단 플랜지에는 K type의 열전대, 산화전극에서 발생된 산소가스를 외부로 동반 배출하기 위한 아르곤 가스 공급 및 배출장치와 반응단계에서 발생된 산소의 농도를 측정하기 위한 장치를 설치하였다. 금속전환 셀은 반응 종료 단계에서 생성된 우라늄 금속의 산화방지와 용융염 계면으로부터 열전대와 anode, cathode 전극을 밀폐조건에서 분리가 가능한 connector를 사용함으로써 불활성 분위기를 유지하도록 하였다.

나. 실험방법

본 실험은 크게 두 가지 내용으로 수행되었다. 먼저 각 산화물들의 용융염에 대한 물리화학적 특성을 측정하기 위해 전류가 흐르지 않는 조건에서 산화물의 용해도 및 용해 속도를 측정하였으며 이 후 동일한 조건에서의 전기화학적 물성 측정을 위한 cyclic voltammetry를 수행하였다. 알칼리 및 알칼리토류 산화물과 U_3O_8 분말은 아르곤 분위기의 글로브박스 내에서 무게를 측정하고 혼합한 후 다공성 마그네시아 필터에 충전하였으며, 내부반응기에 충전된 LiCl은 상온, 300 °C 및 650 °C의 온도 조건에서 불활성가스인 아르곤 가스의 충전 및 배출 과정을 통해 흡착된 수분 및 수화물을 완전히 제거하였다. 그리고 LiCl-Li₂O 복합용융염은 650 °C의 LiCl 용융염에 일정량의 Li₂O를 투입, 일정 시간 용해하여 제조하였다. 알칼리 및 알칼리토류 산화물이 LiCl과 반응하여 마그네시아 필터의 기공을 통해 용융염 매질로 용해되는 속도를 측정하기 위해 양극 및 음극에 전원을 공급하지 않고 5 시간 간격으로 시료를 채취하였다. 채취된 시료의 일부는 증류수에 용해하여 페놀프탈레인 지시약과 0.1 N HCl 용액으로 적정하여 Li₂O 농도를 측정하였으며, 금속원소의 농도 변화는 AAS 및 ICP를 이용하여 원소분석을 통해 측정하였다. 10 mV/s의 cyclic voltammetry 방법을 사용하여 알칼리 및 알칼리토류 산화물의 환원 전위를 측정하여 Li 환원 전위와의 상대적인 위치를 확인하였다.

3. 실험결과 및 고찰

세슘, 스트론튬 및 바륨의 산화물과 지지전해질인 LiCl은 650 °C에서 다음과 같이 반응함으로써 각각의 염화물과 산화리튬을 생성하는 것으로 알려져 있다.



스트론튬 산화물의 경우 지지전해질인 LiCl이 과량으로 존재하므로 실제 사용후핵연료에 포함되어 있는 스트론튬 산화물은 평형 이동에 의해 대부분 용융염 속으로 용해되어 나오는 것으로 알려져 있다.

세슘, 스트론튬 및 바륨 산화물의 용해도를 측정하기 위하여 순수한 각각의 산화물을 마그네시아 필터에 충전하여 용융염 내에서의 농도 변화를 관찰하였다. 그림 2에서는 용해도 표시에 사용되는 몰랄 농도로 환산된 변화 추이를 표시한 것으로 세슘과 바륨 산화물은 약 20 시간에 포화 농도에 도달하였으며 이 때 각각의 몰랄 농도는 0.092 m과 0.128 m로 나타났다. 반면 스트론튬 산화물은 약 40 시간 경과 후 0.191 m의 용해도를 나타내었다.

세슘, 스트론튬 및 바륨 산화물이 LiCl과 반응하여 용융염 매질로 용해되는 속도 및 반응 생성물인 Li₂O 농도의 영향을 평가하기 위해 LiCl-3 wt% Li₂O 및 순수한 LiCl 용융염 중에서 실험을 수행하였다. 마그네시아 필터는 U_3O_8 5 g과 각 산화물 0.5 g으로 충전하였으며 이는 실제 사용후핵연료의 조성비에 대해 상당히 과량의 알칼리, 알칼리토 금속으로 혼합산화물을 구성한 것이다. Cs_2O 의 경우에는 그림 3(a)에서 보인 바와 같이 Li₂O의 존재 여부에 관계없이 약 30 시간 이후에 농도 변화가 없었으며, 이 때의 금속이온의 농도는 0.26 wt%였다. 이는 큰 음의 값인 반응 Gibbs 자유에너지 계산 결과를 실험적으로 확인한 것이다. SrO 및 BaO의 경우에는 그림 3(b), 3(c)에서 보인 바와 같이 Li₂O를 첨가한 경우에는 50 시간이 경과한 후에도 지속적으로 증가하는 추세를 보이나 3 wt% Li₂O의 경우에 BaO는 약 40 시간이 경과한 후 농도가 일정하게 되었으며, Li₂O 농

도의 영향으로 용융염 내로의 용출 속도가 현저히 떨어지는 것을 알 수 있었다. 실제 전기화학적 환원 공정은 50 시간 보다 더 빠른 시간에 종료됨으로 본 실험에서는 이 후 농도 변화의 측정은 수행하지 않았다.

전기화학적 환원 공정은 Li 이온의 환원과 생성된 Li 금속과 산화 우라늄의 화학적 환원의 연속 반응으로 알려져 있으며 앞 선 실험에서 측정된 바와 같이 각 산화물은 용해되어 이온으로 존재하며 용융염 내로 용출된 Cs^+ , Sr^{2+} 및 Ba^{2+} 들은 Li^+ 와 경쟁적으로 환원을 하게 되므로 공정 효율을 떨어뜨릴 개연성이 있다. 그러므로 cyclic voltammetry 실험을 통해 각 Li 이온에 대한 각 금속 이온의 상대적 환원 전위를 측정하였다. 용융염 내의 Li_2O 농도는 동일한 3 wt% 조건에서 각각의 cathode를 구성하여 10 mV/s의 주사속도로 실험을 수행하였으며 결과를 그림 4에 나타내었다. 그림 4에서 1과 2로 이어지는 환원 곡선은 각 물질에 대해 정확히 구분하기 어려웠으나 상대 산화 곡선인 1'과 2'을 통해 각 금속의 환원 전위를 유추할 수 있었다. 전압-전류 곡선은 1'에서 U_3O_8 - Cs_2O 및 U_3O_8 - SrO 계에서만 큰 봉우리를 보이며 이는 Cs^+ 와 Sr^{2+} 의 환원 전위가 1에 위치함을 나타낸다. 반면 용융염 내에 공통적으로 포함되어 있는 Li의 산화는 2'에서 모든 곡선에 나타났다. 또한 U_3O_8 - BaO 계의 경우 U_3O_8 특성곡선과 유사한 거동을 보이며 이는 Ba^{2+} 와 Li^+ 의 환원전위가 서로 근접하여 2에 표시되기 때문인 것으로 생각된다. 실제 공정 운전 조건은 2의 전위 보다 더 cathodic한 조건에서 이루어지며 이 때 각 이온들의 거동에 대한 연구는 본 연구에 이어 수행될 예정이다.

감사의 글

본 논문은 과학기술부의 원자력 중장기 연구개발 사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. J. E. Battles et al., ANL-94/15 (1994).
2. E. J. Karell et al., CONF-9606116-12 (1996).
3. K. Gourishankar et al., Electrochemical Reduction of Metal Oxides in Molten Salts in Light Metals 2002, ed., W. A. Schneider, (Warrendale, PA: The Minerals, Metals, and Materials Society, February 2002), 1075-1082.
4. J. M. Hur et al., Proc. of WM'03 Conference (2003).

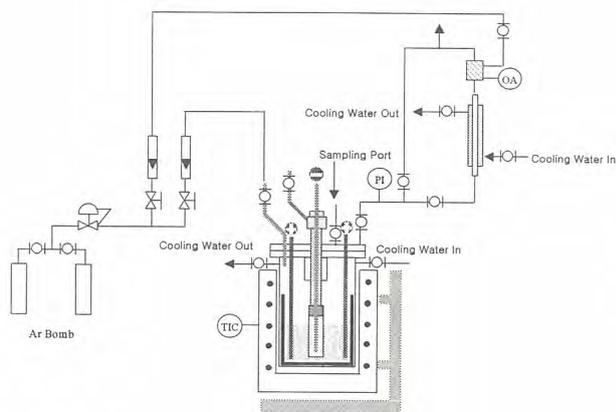


Fig. 1. Experimental apparatus.

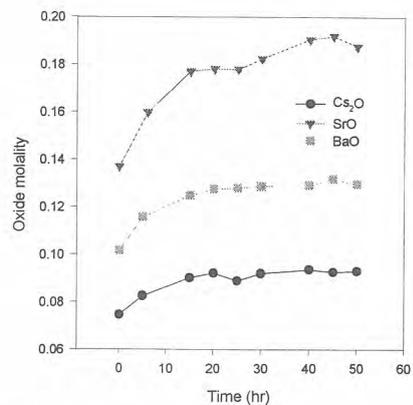


Fig. 2. Change of oxide molalities in molten LiCl.

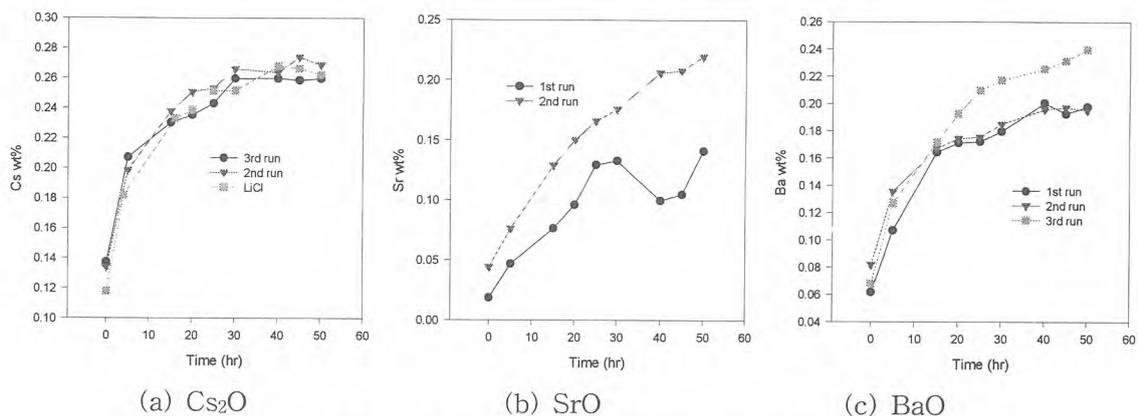


Fig. 3. Concentration change in molten LiCl.

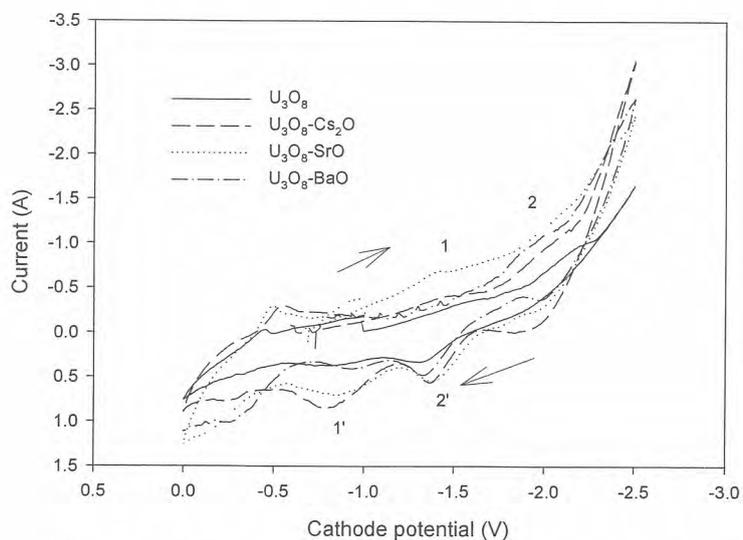


Fig. 4. CV diagram of U₃O₈-M_xO cathode in molten LiCl.

우라늄의 건식전해정련 연구

A Study on the Electrorefining of Uranium

강영호, 황성찬, 김응호, 유재형
한국원자력연구소

요 약

본 연구는 건식 용융염 전해정련실험에서 고체음극에 순수 우라늄금속 전착되는 최적조건을 얻기 위한 내용이다. 실험 결과, 용융염(LiCl-KCl)중 UCl_3 의 농도가 2wt%이상이 존재할 때 고체음극에 순수한 우라늄이 전착됨을 알았다. 또한, 전착물중 전류밀도와 용융염중 U의 함량이 미치는 영향과 우라늄의 형태에 관한 연구가 수행되었다.

Abstract

The present study focused on obtaining the optimum conditions for depositing pure uranium onto a solid cathode. As for the results of the experiments, it was conformed that when the concentration of UCl_3 in the molten salt(LiCl-KCl) is more than 2wt%, pure uranium could be deposited onto a solid cathode. In addition, the effect of both the current density and the U contents in the molten salt or th ratio of uranium to salt was examined and the uranium morphology was also investigated.

1. 서 론

비 핵확산성 핵연료주기를 개발하기 위한 고온건식공정은 1997년 이래 지속되어 왔다. 고온건식공정을 구성하는 공정중 사용후 산화물핵연료로부터 우라늄과 TRU를 회수하기 위한 전해정련은 가장 중요한 공정이다. 일반적으로 전해정련은 알곤 분위기에서 500°C로 용해되어 있는 액체카드뮴위에 위치한 용융염화물(LiCl-KCl) 전해질을 포함하는 전해조에서 수행된다[1,2]. Figure 1에서 볼 수 있는바와 같이 다공성 basket에 절단된 사용후 연료를 담아 양극으로 하면 사용후 핵연료에 함유되어 있는 우라늄, 플루토늄과 기타 악티나이드류가 산화된다. 그러면 산화된 우라늄은 고체음극으로, U-TRU혼합물은 액체카드뮴으로 전기적으로 이동된다. 이 경우 산화된 알칼리금속, 알칼리토금속과 같은 비금속 핵분열물질은 용융염전해질에 남게 되고, 루테튬, 팔라듐같은 귀금속은 양극 basket에 남게 되거나 카드뮴욕으로 떨어진다. 전해정련에서 우라늄은 사용후 핵연료에 95wt%이상 함유되어 있기 때 문에 매우 중요한 의미를 가진다.

본 연구에서는 고체음극에 우라늄을 효과적으로 전착시킬 수 있는 조건에 대한 연구가 수행되었다.

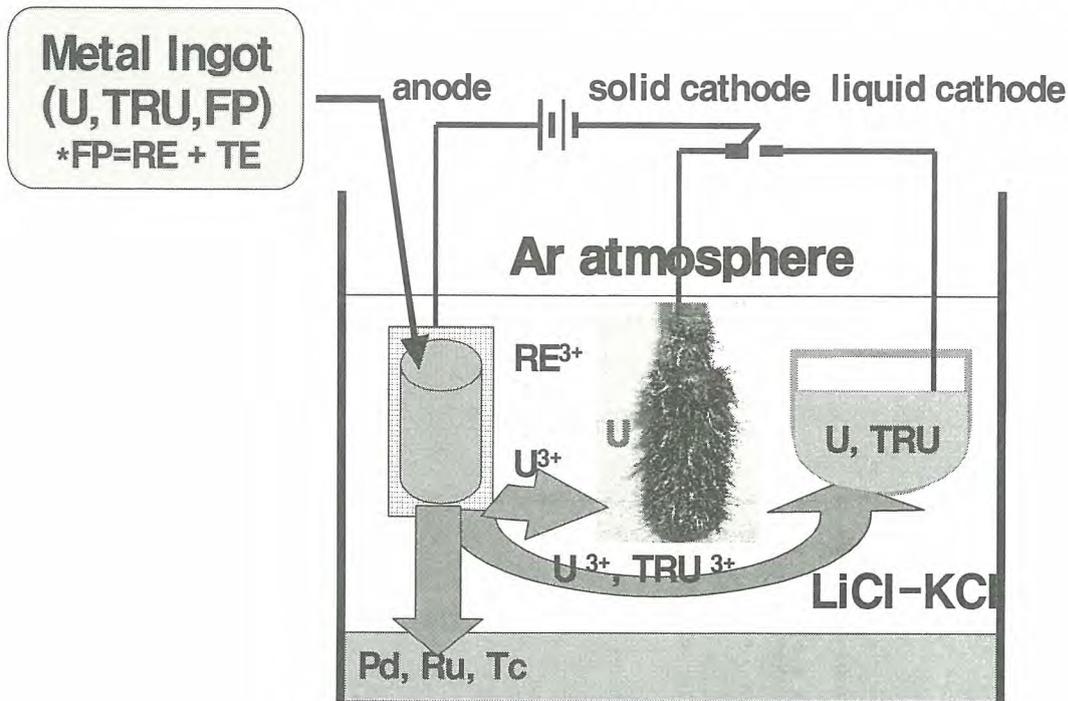


Figure 1. Schematic Diagram of Electrorefiner

2. 실험

전해정련실험장치는 내경 15cm, 높이 20cm의 크기이며, 저 탄소강으로 제작되었다. 장치는 Figure 1과 같이 500℃의 LiCl-KCl공용염과 용융액체카드뮴이 담겨져 있다. 전해정련실험중 용융염을 균일하게 유지시켜 주기 위하여 약 70rpm정도로 교 반하여 주었으며 고체음극은 최적 전착 조건을 알아내기 위하여 0~30rpm 범위내에서 회전시켜 주었다. 우라늄의 전착을 위해서는 전해 실험을 수행하기 전해 일정한 농도의 UCl₃가 포함되게 해주어야 한다. 용융염에 UCl₃가 용해되어 있게 하기 위해서는 용융염에 CdCl₂를 넣어 우라늄 금속을 산화(염화)시켜 주어야 한다.

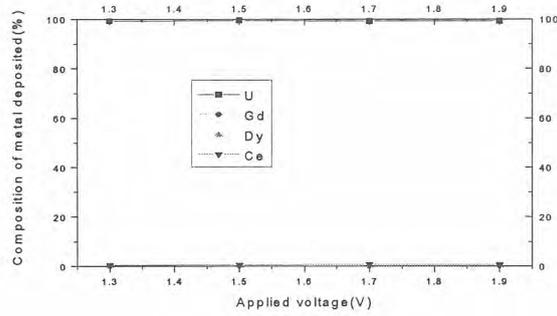


용융염중 UCl₃의 농도는 용융염에 가하는 CdCl₂의 양으로 조절하여 2wt%~9wt%로 하였으며 Gadolinium, Dysprosium, Cerium의 염화물도 같은 방법으로 산화시켜 총 3wt%가 되게 하였다. 상기의 반응에 의해 생성된 카드뮴은 반응기의 하부에 담겨 있는 Cd욕에 떨어진다.

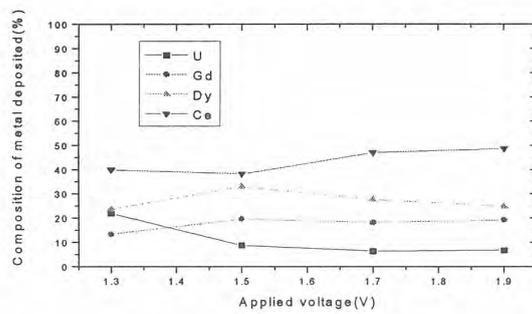
3. 결과 및 토의

Figure 2에는 용융염중 UCl₃의 농도 변화에 따라 고체음극의 전착물의 조성을 나타냈다. 그림의 윗 그림은 용융염중 높은 우라늄의 농도에서는 전 인가전압범위에서 고체음극에 전착된 금속 성분중 대부분 순수한 금속우라늄인 반면 아래 그림의 낮은 우라늄 농도(0.3wt%)에서는 Gd, Dy,

Ce등이 우라늄과 같이 전착되었다.



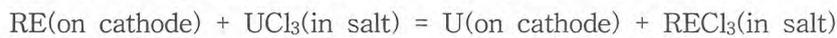
(5.6 wt%U)



(0.3 wt%U)

Figure 2. Concentration of Metals deposited on the Solid Cathode

따라서 고체음극에 순수한 우라늄만 전착시키기 위해서는 용융염중 우라늄의 농도가 일정한 농도이상을 유지해 주어야 한다. Figure 3은 우라늄의 농도변화에 따른 희토류와의 분리계수를 계산한 것으로 금속우라늄의 함량이 99wt%이상인 전착물을 얻기 위해서는 우라늄의 농도가 2wt%이상 이 되도록 유지시켜 주어야 한다는 것을 알 수 있었다. 이러한 현상은 다음의 식에서 설명이 가능하다.



즉, 염화희토류의 분해전압이 염화우라늄보다 높기 때문에 희토류성분이 고체음극에 전착된다 할지라도 용융염중의 우라늄에 의해서 쉽게 치환되기 때문이다.

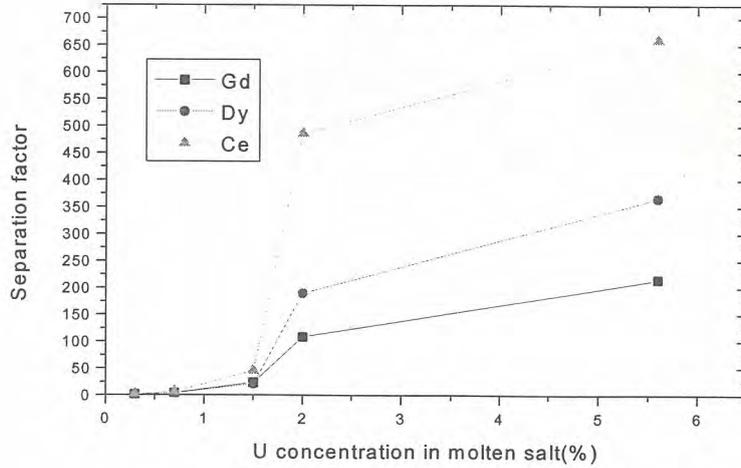


Figure 3. Separation factor of each element with uranium

Figure 4는 전류밀도 변화에 따라서 우라늄금속과 더불어 붙은 염의 함량을 보여 주고 있다. 전류 밀도가 증가하고, 용융염중 우라늄의 농도가 감소함에 따라 고체음극에 달라붙은 염의 함량은 증가하였다. 또한 우라늄의 형태도 이러한 전류밀도의 변화에 의해 변화하였는데, 고체음극에 전착되는 우라늄 금속의 크기는 Figure 5와 같이 전류밀도가 증가함에 따라 감소하는 경향을 나타내었다.

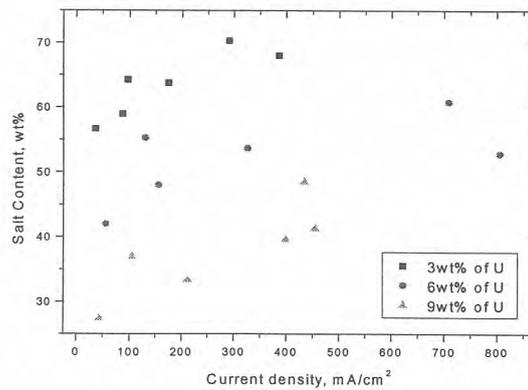


Figure 4. Salt concentration in the deposits with a variation of operation condition

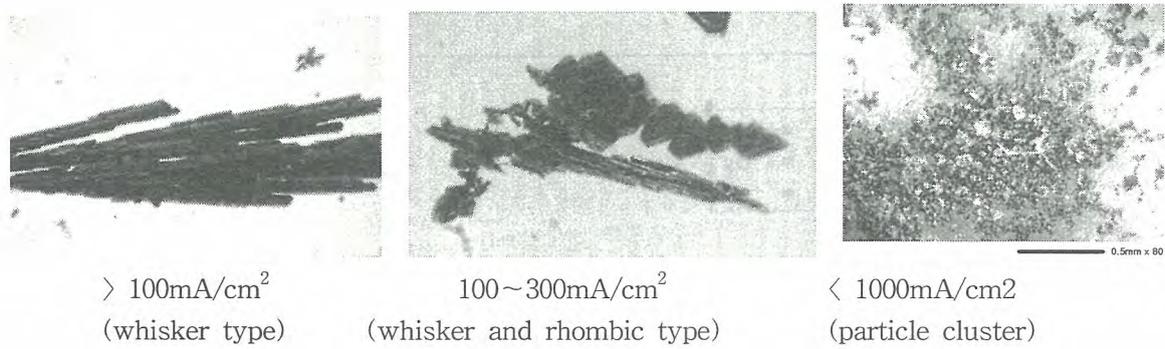


Figure 5. Typical dendrite structure with current density

그러한 우라늄 전착물 구조의 금속형태의 변화는 밀도에 큰 영향을 주어 우라늄 금속을 회수하는 장치의 설계등에 큰 영향을 미칠 것이다.

1. Z. Tomczuk, J. P. Ackerman, R. D. Wolson and W. E. Miller, J. Electrochem. Soc., 139(12), 3523(1992)
2. T. Koyama, R. Fujita, M. Iizuka, Y. Sumida, Nucl. Tech. 110, 357(1995).

LiCl-Li₂O-O₂ 용융염계에서 오스테나이트계 합금의 부식거동

Corrosion Behavior of Austenitic Alloys in the Molten Salts of LiCl-Li₂O-O₂

오승철 · 윤기석 · 임종호 · 조수행 · 박성원
한국원자력연구소

요 약

LiCl-Li₂O-O₂ 용융염계에서 용융염 취급장치의 구조재료를 위한 평가의 일환으로 오스테나이트 합금인 Fe-base 및 Ni-base 합금의 부식거동을 분위기온도; 650 ~ 725°C, 부식시간; 24 ~ 168h, Li₂O농도; 3wt%, 혼합가스농도; Ar-10%O₂에서 조사하였다. LiCl-Li₂O-O₂ 용융염계에서 Ni-base 합금이 Fe-base 합금보다 높은 내부식성을 나타내었으며, 또한 Fe-base 합금에서 Fe의 함량이 낮고 Ni의 함량이 높은 경우 부식저항성이 증가하였다. 아울러 Fe-base 합금의 부식생성물은 Cr₂O₃, FeCr₂O₄, Ni-base 합금에서는 Cr₂O₃, NiFe₂O₄로 나타났다.

Abstract

As a part of assessment of the structural material for the molten salt handling system, corrosion behavior of austenitic alloys, Fe-base and Ni-base in the molten salt of LiCl-Li₂O-O₂ was investigated in the range of temperature; 650 ~ 725°C, time; 24 ~ 168h, Li₂O; 3wt%, mixed gas; Ar-10%O₂. In the molten salt of LiCl-Li₂O-O₂, Ni-base alloys showed higher corrosion resistance than Fe-base alloys. Fe-base alloy with low Fe and high Ni contents exhibited better corrosion resistance. The scales of Cr₂O₃, FeCr₂O₄ on Fe-base alloys were showed, and Cr₂O₃, NiFe₂O₄ on Ni-base alloys were also showed.

1. 서 론

용융염 취급기술은 용융염 그 자체가 갖는 물리·화학적 특성, 즉 높은 전기전도성, 고밀집 취급성, 유체특성 등으로 인하여 여러 산업기술에 응용되어 왔으나, 특히 최근에 와서는 제트엔진, 연료전지, 축매, 태양에너지 그리고 금속정제 등의 기술분야에서 관심의 대상이 되고 있다. 따라서 이러한 고온 용융염을 취급하는 기기 및 구조재료의 부식에 대한 연구도 지속적으로 진행되어 왔다. 그 중 제트엔진이나 공업용엔진의 가스터빈에서 발생하는 용융황산염 Na₂SO₄에 의한 Ni기 초합금의 가속산화(accelerated oxidation)에 대한 연구가 많이 진행되었다¹⁻³⁾. 이러한 가속산화는 용융염이 고온부품의 합금표면에 필름상으로 부착되었을 때 발생하는 현상으로 산화속도가 대기 중에서보다 훨씬 빠르고 다공성 산화피막이 합금내부로 성장하는 특징을 가지고 있다. 사용후핵

연료 차세대 관리공정은 LiCl-Li₂O 용융염계에서 산화우라늄이 우라늄 메탈로 환원되는 공정이며, 또한 anode에서 산소가 발생하는 산화성분위기이기 때문에 이러한 공정운전조건에서 용융염 취급 장치재료로서의 최적 재료 도출의 일환으로 기존의 오스테나이트 합금을 선정하여 용융염 LiCl-Li₂O계 산화성분위기에서 부식시험을 수행하였다.

2. 실험방법

본 연구에 사용한 부식시험재료는 기존 Fe-base 합금; Type 321, 316LN S.S., Incoloy 800H, Ni-base 합금; Inconel 600, 601, 690이며, 이들의 화학조성을 Table 1에 나타내었다. 부식시험 시편은 내부결함 제거와 탄화물 분해를 위해 1,150°C에서 1 시간동안 열처리 후 수냉 한 판상을 15(W) x 70(H) x 2.0 mm(T)의 크기로 절단한 후 950°C에서 1 시간동안 안정화 처리를 행하였다. 부식시험은 고온 전기로내에 혼합용융염 LiCl-Li₂O를 MgO 도가니에 넣고 시편을 침적시켜 Ar-10%O₂를 주입하는 분위기에서 부식시험을 행하였다. 시편은 부식시험 직전에 에머리 페이퍼 2000까지 연마하여 증류수와 아세톤으로 탈지시킨 후 건조시켜 사용하였다. 부식환경온도는 650 ~ 725°C를 선택하였으며, 부식시간은 24 ~ 168시간, Li₂O의 농도는 3% 무게중량, 혼합가스의 농도는 Ar-10%O₂로 부식시험을 행하였다. 부식시험 후 시편은 ASTM에 의해 만들어진 세척액으로 초음파 세척하여 부식물을 제거하였으며, 또한 시험 후 scale과 시편의 표면과 단면을 광학현미경, 전자현미경, X선 회절분석기 및 EPMA를 사용하여 관찰·분석하였다.

Table 1. Chemical composition of alloys

Alloy	Fe	Cr	Ni	C	Si	Mn	P	S	N	Mo	Al	Cu	Ti
Inconel 600	8.15	16.30	73.66	0.07	0.210	0.321	0.02	0.002				0.05	
Inconel 601	13.00	22.5	60.30	0.03	0.300	0.300	0.02	0.002			1.30	0.03	
Inconel 690	10.00	29.82	56.30	0.079	0.530	0.280	0.008	0.002			0.32	0.01	0.320
Incoloy 800H	43.70	21.00	34.00	0.03	0.400	0.500	0.02	0.020				0.73	0.600
316LN S.S	67.10	17.17	12.40	0.021	0.650	0.098	0.019	0.005	0.120	2.370			
321S.S	71.00	17.10	9.10	0.040	0.570	1.170	0.031	0.001	0.011				

3. 결과 및 고찰

3.1 부식 생성물

부식실험 후 무게손실을 알기 위하여 시편들을 산세척하여 스케일을 제거⁴⁾한 다음 무게감량을 측정하여 Fig. 1에 나타내었다. Fig. 1에서 보는 바와 같이 Fe-base 합금들이 Ni-base 합금들에 비하여 무게감소율이 큰 것으로 나타났으며, Inconel 600이 가장 작은 무게감량을 보이는 것으로 보아 내부식성이 가장 좋은 것을 알 수 있다. Fig. 2에는 시편표면에서 박리된 부식침전물의 X-선 회절분석 결과를 나타내었다. Fig. 2에서 보는 바와 같이 Fe-base인 Type 321, 316LN, Incoloy 800H 시편들의 부식침전물은 Cr₂O₃, FeCr₂O₄, Ni-base인 Inconel 600, 601은 Cr₂O₃, NiFe₂O₄, Inconel 690은 Cr₂O₃으로 나타났다. Fe-Cr-Ni계 합금에서 열역학적으로 가장 안정한 산화물은 Cr₂O₃이므로 시편의 가장 바깥층에 생성되는 산화물 즉, 표면층 산화물은 Cr₂O₃를 예상되나⁵⁾, 바깥층의 산화물이 Cr₂O₃ 이외에 FeCr₂O₄ 및 NiFe₂O₄로 나타나는 것은 산화피막을 통한 Fe이온 및 Ni 이온의 외부확산이 Cr이온보다 빠르기 때문이며 가장 바깥쪽에 Fe산화물 또는 Ni산화물이 생성된다고 판단된다. 특히 Inconel 690의 경우 부식생성물이 Cr₂O₃ 단상으로 나타났는데, 이는 기지 금속의 Cr의 함량이 25wt% 이상이면 나타나는 부식생성물과 일치한다⁶⁾. 결국 Fe-base 및

Ni-base 합금의 부식반응기구는 각 성분원소의 산화에 따른 열역학적 안정성에 의존하기보다는 각 성분원소의 확산속도에 울속받는 것으로 생각된다.

3.2 Fe-base 합금의 부식 거동

Fig. 3에는 725°C, 72시간 부식시험 후 Fe-base 합금 시편들의 염침지부분의 단면 SEM 조직과 원소 mapping 결과를 나타내었다. Fig. 3에서 보는 바와 같이 Fe-base 합금들 모두 scale내에 Cr과 Fe의 고갈 및 Ni의 농축 현상을 관찰할 수 있다. 즉, Cr 및 Fe계 산화물은 용융염쪽으로 용출된 부분 주위에 Ni가 농축되어 있는 것으로 해석할 수 있다. 또한 이러한 결과를 Fig. 2(a)의 X선 회절결과와 연계해 보면 부식물이 Cr₂O₃ 및 FeCr₂O₄임을 알 수 있다. 아울러 Type 321, 316LN의 부식형태는 입계부식, Incoloy 800H는 전면부식으로 나타났다.

3.3 Ni-base 합금의 부식거동

Fig. 4에는 Inconel 600의 SEM 조직 및 원소 분석결과를 나타내었다. Fig. 4에서 보는 바와 같이 스케일 내부에 국부부식형태의 양상을 보이고 있으며, Fig. 3의 Fe-base 합금에서와 마찬가지로 스케일 내에는 Cr 및 Fe 고갈과 Ni의 농축현상을 관찰할 수 있다. 한편 Inconel 601은 산소활성원소인 Al을 약 1.5% 함유한 Ni-base 합금으로 Fig. 5에서 보는 바와 같이 전면부식형태를 보이며, 스케일 내에 Cr 고갈 현상을 관찰할 수 있다. Al은 스케일/금속 계면에 농축되어 스케일 바깥쪽에 산소가 농축된 것으로 보아 Al산화물은 산소이온의 내부확산을 저지하는 보호역할을 하는 것으로 보인다. 한편 Ni 원소에 대한 mapping 결과에서 스케일 내에 Ni 성분이 소량 용출되어 고갈된 형태를 보이는데, 이것은 Inconel 601이 Inconel 600보다 큰 무게감소율을 보이는 결과와 비교해 보면 Inconel 601은 내부식성 영향에 미치는 Ni 원소의 함유량이 적은 것에 기인한 것으로 판단된다. 따라서 내용융염부식성을 향상시키기 위해서는 일정량 이상의 Ni를 첨가해야 할 것으로 판단된다. 이러한 결과는 Fig. 6에 나타난 725°C, 168시간 부식시험 한 Inconel 690에서도 확인되었으며, 이는 Inconel 690이 다른 Inconel 합금에 비해 Cr 함량은 높고, Ni의 함량은 낮은 합금인 것에 기인된다고 생각된다. Fig. 6에서 보는 바와 같이 상당량의 Cr고갈 현상이 관찰되며 균열현상을 볼 수 있다. 이것은 산화막/금속계면에서 산화물의 응력 증가로 인한 것으로 판단되며, 아울러 Fig. 2(b)에서 나타난 단상의 Cr₂O₃는 효과적인 보호피막의 역할을 하지 못하는 것으로 생각된다. 따라서 Cr 및 Ni 함량이 내부식성의 영향을 미치는 중요한 인자일 것으로 판단된다.

4. 결 론

이상과 같은 본 연구의 결과 다음의 몇 가지 결론을 얻을 수 있었다.

1. Ni-base 합금들이 Fe-base 합금들에 비해 우수한 내부식성을 보였으며, Fe-base 합금들 중에서는 Ni 함량이 상대적으로 높은 Incoloy 800H가 우수한 내부식성을 보였으며, Ni-base 합금들 중에서는 Inconel 600이 가장 우수한 내부식성을 나타내었다.

2. Fe-base 합금의 부식생성물은 Cr₂O₃, FeCr₂O₄, Ni-base 합금에서는 Cr₂O₃, NiFe₂O₄으로 나타났다.

3. Type 321, 316LN의 부식형태는 입계부식, Incoloy 800H, Inconel 601, 690의 부식형태는 전면부식, Inconel 600은 국부부식형태로 나타났다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. F. J. Kohl, G. J. Santoro, C. A. Stearns, G. C. Fryburg and D. E. Rosner, *J. Electrochem. Soc.*, 126, 1054 (1979)
2. S. Kameswari, *Oxid. Met.*, 26, 33 (1973)
3. A. Rahmel and H. J. Engell, *Corrosion*, 18, 320 (1969)
4. *ASTM G1-90*
5. R. K. Johnston, *The oxide handbook*(IFI/Plenum, Samsonov) (1973)
6. Y. Harada, *溶射*, 33, 128 (1996)

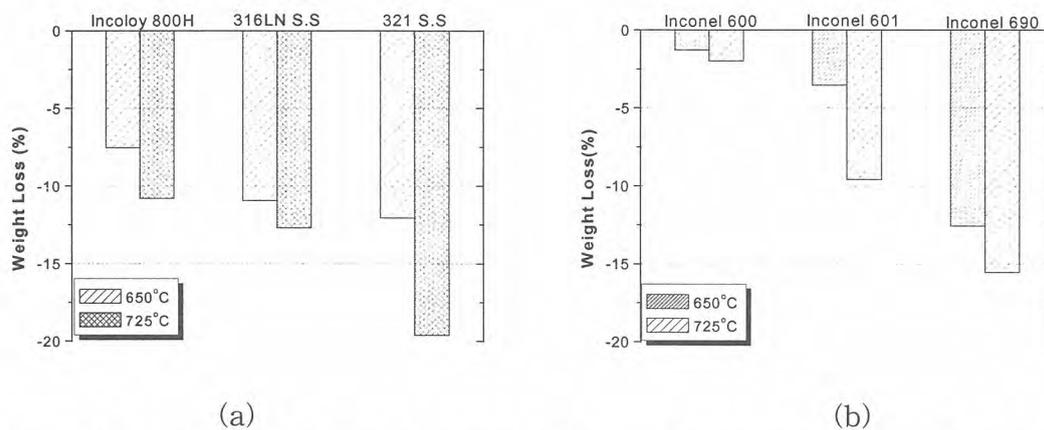


Fig. 1. Weigh loss of Fe-base alloys(a), Ni-base alloys(b) corroded in the molten salt of LiCl-3%Li₂O for 168 hours.

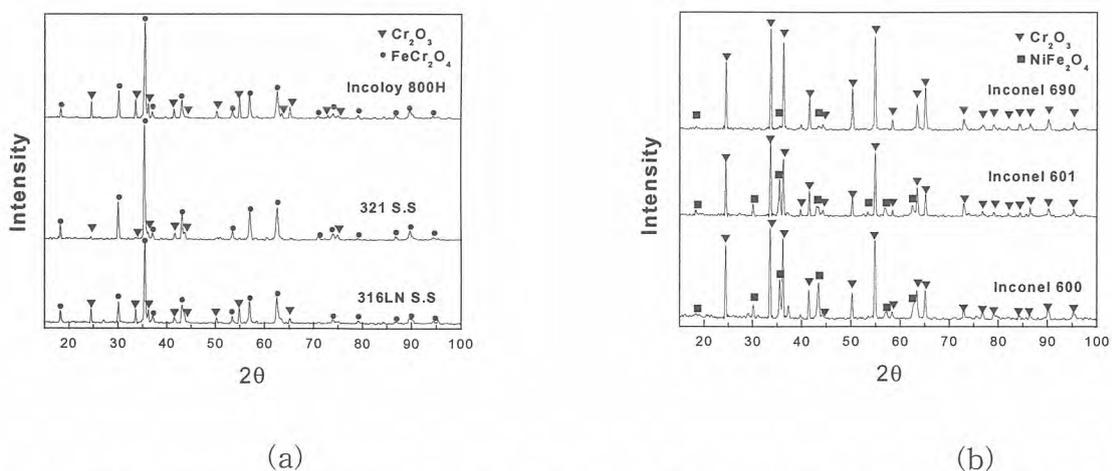


Fig. 2. X-ray diffraction patterns of the scales of Fe-base alloys(a) and Ni-base alloys(b) corroded in the molten salt of LiCl-3%Li₂O at 725°C for 72 hours.

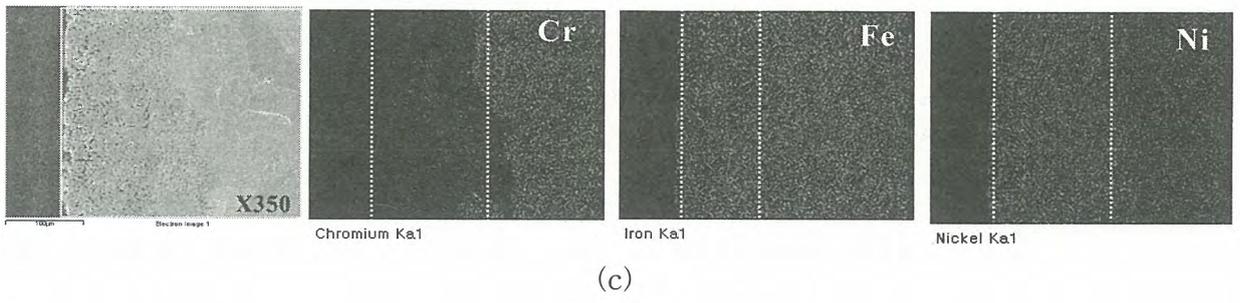
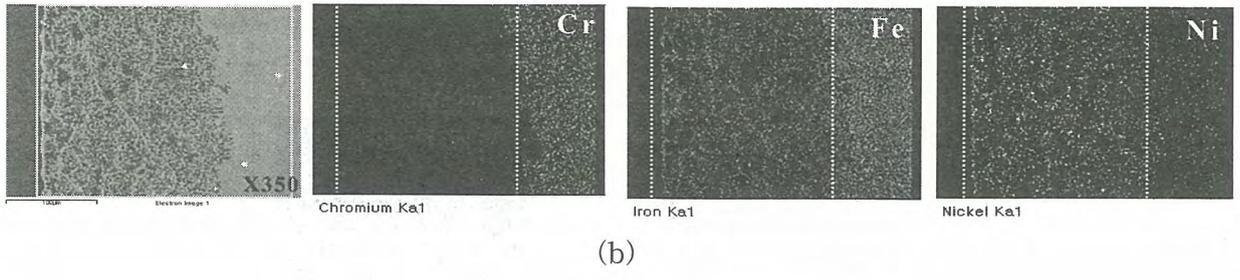
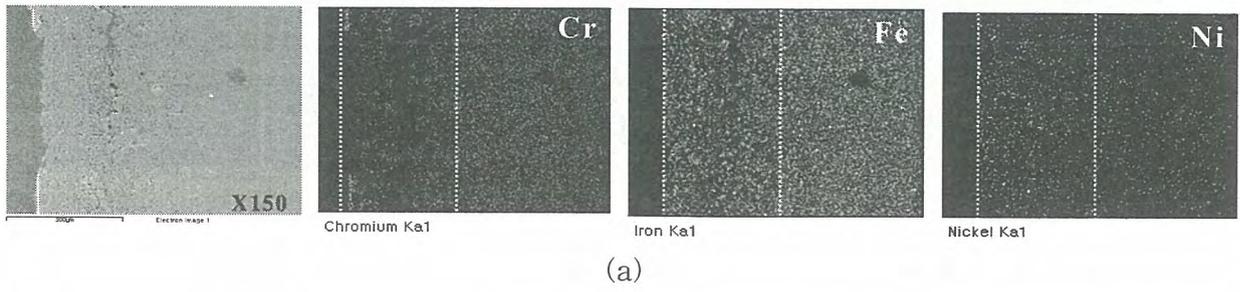


Fig. 3. SEM and elemental distributions on 321 S.S.(a), 316LN S.S.(b) and Incoloy 800H(c) corroded in the molten salt of LiCl-3%Li₂O at 650°C for 72 hours.

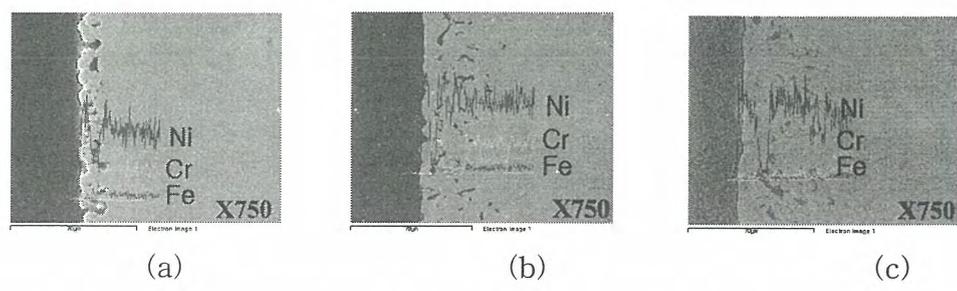


Fig. 4. SEM and Line scan of Inconel 600 corroded at 650°C for 24 hours(a), for 72 hours(b), and at 725°C for 72 hours(c).

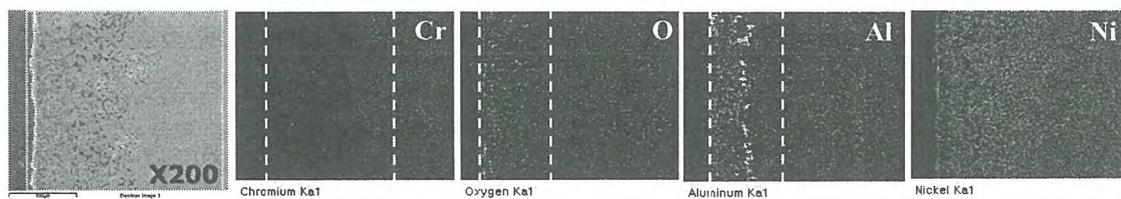


Fig. 5. SEM and elemental distributions on 601 corroded in the molten salt of LiCl-3%Li₂O at 725°C for 168 hours.

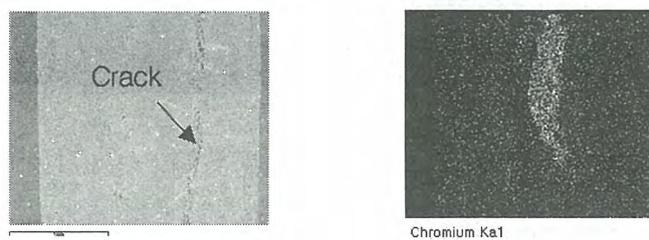


Fig. 6. SEM and elemental distributions on 690 corroded in the molten salt of LiCl-3%Li₂O at 725°C for 168 hours.

제2분과(C)

사용후 핵연료 및 핵연료 주기(Poster)

빈 면

경수로사용후핵연료
폐피복관의 방사능 저감방안

The Study on Radioactivity Reduction of
Spent PWR Cladding Hull

정인하, 김종호, 박창제, 정양홍, 송기찬, 이정원, 박장진, 양명승
한국원자력연구소

요 약

가압 경수로 사용후핵연료봉을 재처리하는 과정에서 발생하는 hull은 고준위 방사성폐기물로 분류되고 있다. 본 논문에서는 연소도 32,000MWd/tU, 냉각기간 15년(고리 1호기 cycle 4~7)인 PWR 사용후핵연료의 건식처리 공정에서 발생한 hull에 대하여 방사능적 특성 실험을 수행하였고, 문헌 조사 및 관련 코드의 계산을 통하여 가압 경수로 사용후핵연료 hull에 대한 방사화학적 특성을 조사하였다. 이를 토대로 hull에 부착되어 있는 핵물질을 레이저 또는 플라즈마 등의 건식방법으로 제거함으로써 hull의 방사능을 저감시켜 중저준위 폐기물화하는 방안을 제시하였다.

Abstract

Hull arising from the spent PWR fuel elements is classified as a high-level radioactive waste. This report describes the radio-chemical characteristics of the hull -from PWR spent fuel of 32,000MWd/tU burn-up and 15 years cooling, discharged from Gori Unit I cycled 4~7- by examination and literature survey. On the basis of the results, a method of degradation to middle and low-level radio active waste was proposed by dry process such as laser or plasma technique with removing the nuclides deposited on the surface of the hull.

1. 서 론

미국의 방사성폐기물 분류 규정에 따르면 "TRU 폐기물은 원자번호 92번 이상이고 반감기 20년 이상인 α -방출 물질을 함유하고 있으며 그 방사능량이 100nCi/g(=0.1 mCi/kg-Zry) 이상이고 열발생율이 2kW/m³ 이상인 폐기물"이라고 정의되어 있다. 습식 재처리공정에서 발생하는 폐피복관(hull)에는 핵연료 용해과정에서 미용해된 핵연료 잔재가 묻어 나오게 되는데, 이 양은 원래 핵연료양의 약 0.1% 정도인 것으로 알려져 있다[1]. 또한 이 hull에는 우라늄이나 플루토늄 외에도 피복관 원료금속 중에 포함되어 있는 원소의 방사화(예컨대, Sb-125, Co-60, Mn-54 등)로 생성되는 방사화생성물 및 핵분열생성물 등이 다량 포함되어 있어 고준위 방사성 폐기물로 분류되고 있다.

지금까지 hull의 처리방법으로 1) encapsulation and storage or disposal, 2) compaction and encapsulation, 3) matrix formation(with or without compaction) and encapsulation, 4) melting(with or without cleaning), 5) chemical reaction to chloride, fluoride, oxide, or sulfate and encapsulation, 6) conversion into an absorbent for high level waste and encapsulation 등이 알려져 있다[2]. 이러한 방법 들은 각각 장단점을 가지고 있지만 이 중 hull을 압축하거나 용융 등의 방법으로 감용시킨 후 이를 매트릭스에 고정화시켜 처분하는 방식이 널리 사용되고 있다.

그러나, 핵연료 용해조로부터 인출한 hull을 제염하지 않고 그대로 압축 또는 용융시키면 함유되어 있는 지르코늄, 철, 니켈, 우라늄 등의 산화물, 핵분열생성물 및 방사화생성물 등으로 인하여 장기처분 중에 지르코늄 합금의 연성, 경도, 내부식성 등의 변화가 생긴다.

이와 관련하여 1970년대 Griggs[3], Jenkins[4] 등은 hull에 부착되어 있는 TRU 등의 핵물질을 제거하는 연구를 수행한 바 있다. 그러나 당시에는 지르코늄 산화물을 제거하는 화학적인 방법이 잘 알려지지 않았고, 무엇보다도 hull 자체에 대한 방사화학적 특성자료가 빈약하였다. 1990년대 들어서면서, 사용후핵연료의 재처리공정에서 발생하는 hull의 방사화학적 특성에 대한 data가 상당히 확보되었다.

Hull의 내면에는 조사과정에서 우라늄으로부터 분리된 산소로 인하여 산화층이 형성된다. Pu 등과 같은 α -핵종은 산화층 내부에 침투될 수 있지만 이들은 hull 표면으로부터 깊이에 따라 농도가 지수적으로 감소하며 침투될 수 있는 깊이는 최대 1 μ m정도로 알려져 있다[5].

본 논문에서는 SEM 및 EPMA를 통하여 건식공정에서 발생한 hull의 방사화학적 특성과 레이저 혹은 플라즈마 기술 등의 건식방법으로 hull 표면에 침투되어 있는 TRU, 핵분열생성물 등을 제거하여 현재 고준위폐기물로 분류되고 있는 hull의 방사능을 중저준위 폐기물의 수준으로 저감시키는 방안을 제시하고자 하였다.

2. Hull의 발생

습식재처리 공정에서는 핵연료 피복관을 일정한 길이로 짧게 절단한 후 질산용액에 핵연료를 녹이는 이른바 chop and leach 과정을 통하여 짧게 절단된 폐피복관의 형태로 발생된다[6-7]. DUPIC 건식 핵연료제조 공정에서는 경수로 사용후핵연료봉을 20cm 내외의 길이로 절단하여 slitting한 후 고온 산화분위기에서 우라늄 분말과 폐피복관을 분리시킨다. 이때 slit되고 남은 폐피복관 hull은 고준위 고체 폐기물 상태로 남게 된다.

3. 습식재처리 공정에서 발생하는 Hull의 방사화학적 특성

습식 재처리 후 hull에 잔류하는 방사능은 hull 단위 질량을 기준으로 할 때 Table 1과 같다[5]. 이에 의하면 hull 단위 질량당 총 방사능은 2,087mCi/kg-Zry이며, 이중 고준위폐기물의 분류기준에 해당하는 TRU의 방사능은 6.65mCi/kg-Zry로서 TRU 폐기물 기준인 100nCi/g (=0.1mCi/kg-Zry)을 훨씬 초과하는 고방사성 물질에 해당된다.

Restani[5] 등이 연구한 연소도 30,000 MWd/tU 냉각기간 5년인 PWR 사용후핵연료의 습식재처리 공정에서 발생한 hull에 대한 방사능적 특성은 다음과 같다.

(1) 선량을 및 감마핵종의 방사능적 특성

5년의 냉각기간을 가진 지르칼로이 hull의 경우, 0.5m 떨어진 지점에서의 감마 선량을(dose rate)은 약 10~50mR/hr(평균 25 \pm 8mR/hr)를 나타내었다. 지르칼로이 hull로부터의 방사능은

Table 1에 나타난 바와 같이 핵분열생성물에 의한 것과 방사화생성물 중 Sb-125로부터의 방사능이 주를 이루고 있다.

(2) 지르칼로이-4 hull의 액티나이드 핵종 특성

지르칼로이-4 hull 시편을 3M-질산/2M-불화수소 용액에 녹여 동위원소희석법(isotope dilution analysis method)으로 분석하여 얻은 우라늄 및 플루토늄 동위원소 함량은 Table 2에 나타난 바와 같다. 또, α -spectrometry 기술을 이용하여 측정된 결과, 냉각기가 5년인 hull에 존재하는 총 α -방사능 양은 6.7mCi/kg-Zry이었고 이중에서 Pu는 4.5mCi/kg-Zry, Am-241은 0.9mCi/kg-Zry, Cm-244는 1.25mCi/kg-Zry로서 각각 67%, 14%, 19%를 나타내었다. Cm-242의 방사능은 항상 0.1mCi/kg-Zry 이하의 방사능을 나타내었다.

(3) SIMS에 의한 hull 표면상태 분석

Restani[5] 등은 hull 내부 산화층의 두께를 측정하였는데, 핵분열생성물중 가장 가벼운 원소인 Sr-88이 recoil 등의 현상으로 표면으로부터 가장 깊은 곳 (약 12 μ m)까지 침투하며, Cs-137은 약 10 μ m까지 침투된다고 하였다. Cs-133과 Cs-137의 분포 경향은 상당히 유사하여 이들 핵종의 확산 거동이 핵종의 분포에 많은 영향을 미친다는 결과를 얻었다. 또, hull의 내부표면에서 우라늄 농도가 급격하게 감소하는 결과로부터 우라늄의 대부분이 산화층 위에 침적되어 있거나 또는 산화층 안에 포획되어 있다는 사실을 확인하였으며, 다른 actinide들의 거동도 비슷할 것으로 판단하였다.

4. 실험 방법

건식처리 공정에서 발생한 연소도 32,000 MWd/tU, 냉각기간 15년(고리 1호기 cycle 4~7)인 PWR 사용후핵연료의 hull 6개를 샘플링하여 약 1cm 크기로 절단하고, 절단한 시료 3개씩을 에폭시 레진으로 마운팅한 후 EPMA로 내부표면에서부터 깊이에 따른 핵물질의 농도를 측정하였다. 측정깊이는 10~35 μ m로 하였으며 핵연료가 피복관 내면에 접촉되어 있는 경우를 고려하여 서로 마주보는 방향에서 각각 측정하였다.

5. 건식처리 공정에서 발생하는 폐피복관의 방사화학적 특성

(1) 산화층 두께

Hull 내부에 존재하는 산화층의 두께를 측정하기 위하여 산소포텐셜을 측정하였으며, 이를 Fig. 1에 나타내었다. Fig. 1에서 플루토늄이 최대치를 나타내는 지점으로부터 약 3 μ m까지 산소포텐셜이 증가하고 있으므로, 이 거리 내에서 지르칼로이 또는 핵분열생성물이 산화물형태로 존재하고 있는 것으로 판단되며 산소와 친화력이 큰 Zr이 주로 산화물을 형성하고 있을 것으로 판단되었다.

(2) Hull 내부 표면의 방사화학적 특성

Hull 내부표면을 EPMA로 분석한 예를 Fig. 2에 나타내었다. 시료 내면에는 우라늄이 부착되어 있는 부분도 있었고, 부착되어 있지 않은 부분도 관찰되었다. 우라늄이 부착되어 있는 경우에는 전체 약 0.1~1wt.% (Zr 97~98.9wt.%)를 나타내었으며, 이는 피복관 표면에만 국한되어 측정되었다. 핵분열생성물의 침투 두께는 모든 시료에서 약 10 μ m 이내의 두께를 나타내었으며, 이 두께에 침투된 핵종의 총 농도는 1~2wt.%로 관찰되었다. 주요 핵종은 Mo가 0.2~0.3wt.%, Pd, Ru, Nd, Ce 및 Cd 등이 0.1~0.2wt.%를 나타내었으며 미량의 Y, La, Ba 등도 관찰되었다.

(3) 계산코드에 의한 PWR 폐피복관의 열 및 방사능적 특성

지르칼로이-4 피복관은 주성분인 Zr 이외에도 Sn, Fe, Nb 및 O의 첨가물질이 1.9~2.6%가 함유되어 있으며, Ta, C, Cr, Hf, Pb, W 등 불순물이 각각 100~200ppm 정도, 또 100ppm 이하 미량으로 Ni, Ca, Cl, Cu, P 및 U 등 약 24종의 불순물이 함유되어 있다. 이들 첨가 또는 불순물 중에서, 허용농도가 3.5ppm인 U는 조사과정에서 TRU를 생성시킬 수 있기 때문에, 이들 핵종의 방사능을 중수로용 노심해석 코드인 WIMS-AECL과 핵종붕괴 계산코드인 ORIGEN-II를 이용하여 계산하고, 이 중 ORIGEN-II의 결과를 원자로 방출 후 냉각기간에 대하여 Table 3에 나타내었다. 계산은 3.2wt.% 농축 PWR 핵연료를 연소도 32,000MWd/tU으로 3cycle 연소시킨 후 50년까지 냉각시킨 과정을 모사한 결과이며, 계산 결과의 값은 피복관 1ton을 기준하여 Ci/ton-Zry로 나타내었다. 계산결과에 의하면 방출 후 30년이 경과했을 때 초기 불순물로 함유된 U로 인하여 방사화된 총 TRU의 방사능은 0.003Ci/ton ~ 0.008Ci/ton (=3 ~ 8nCi/g)의 범위를 나타내었다. 이는 TRU 폐기물 기준인 100nCi/g 이하의 값에 해당되므로 피복관 재료 불순물 U로 인한 방사능은 TRU 분류 기준치 이하임을 나타낸다.

Table 4는 동일한 조건으로 조사시킨 피복관내에 생성된 방사화생성물, 불순물인 U로 인한 TRU 및 핵분열생성물 등으로 인하여 발생하는 열을 ORIGEN-II로 계산한 결과이다. 폐피복관으로부터 발생하는 열은 방출 후 5년이 지나면 TRU의 기준을 이미 벗어나게 되며, 발전소 내 풀에 보관하는 기간인 30년 후에 폐피복관에서 발생하는 총 열량은 약 0.0005W/kg-Zry로서 TRU 분류 기준인 0.31W/kg-Zry(=2kW/m³)의 1/10,000이하에 해당되는 값이 되므로 TRU로 분류되지 않는다.

6. Hull의 중저준위 폐기물화 방안

(1) 방사능 양의 저감

관련 문헌 및 본 실험에서의 결과와 같이 연소도 32,000MWd/tU의 폐피복관에 존재하는 핵분열 생성물의 경우는 hull 표면으로부터 10 μ m 내외의 두께에 존재하며, U, Pu 등과 같은 α -핵종은 99.5%가 hull 표면에 존재한다. 따라서 hull 표면으로부터 약 15~20 μ m 정도를 제거하면, hull에 존재하는 핵분열생성물 및 α -핵종으로부터 발생하는 방사능을 대폭 감소시킬 수 있다. 계산상으로 참고문헌[5]의 방사능 양을 기준으로 한다면, hull로부터 방출되는 총 방사능 양(Total Radioactivity, TR) = 핵분열생성물의 방사능 + α -핵종의 방사능이므로, TR= 0.000000 + 6.65 x 0.005 = 0.03325mci/kg-Zry로 된다. 이 값은 GTCC 기준인 100nCi/g(=0.1mCi/kg)이하에 해당된다.

(2) 지르칼로이-4 피복관의 표면제거 방안

현재 레이저는 용접, 재료표면 및 생체박막 제거 등의 분야에 활용하고 있다. 레이저를 이용하면 폐피복관 내면을 원하는 깊이까지 제거할 수 있다. 레이저를 이용하여 조사하지 않은 지르칼로이-4 피복관의 표면을 약 50 μ m 정도 제거한 표면사진을 Fig. 3에 나타내었다. 또, 플라즈마 기술의 경우 반도체 표면식각, TEM 시편 가공(plasma ion milling) 등에 활용되고 있는데, 이 기술도 폐피복관 표면에 침적된 핵종을 제거하는 하나의 방안으로 활용될 수 있을 것으로 판단된다.

7. 결 론

건식처리 공정에서 발생하는 연소도 30,000~35,000MWd/tU인 PWR 폐피복관의 표면을 15~20 μ m정도 제거한다면, 열 및 방사능적 기준에서 TRU 폐기물 이하의 조건으로 만들 수 있다.

감 사

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었음.

참 고 문 헌

- [1] T. D. Reilly, "The Measurement of Leached Hulls", Los Alamos Scientific Lab.,LA-7784-MS(1979)
- [2] B. Griggs and G.H. Bryan, "Cladding Hull Decontamination Process-Preliminary Development Studies", Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington, PNL-2985(1979)
- [3] B. Griggs, "Feasibility Studies for Decontamination and Densification of Chop-leach Cladding Residues", BNWL-1820, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington, (1974)
- [4] I. L. Jenkins and R.F. Taylor, "Treatment of Stainless Steel and Zircaloy Cladding Hulls", Proceedings of the NEA/IAEA Technical Seminar on the Treatment, Conditioning of Solid α Bearing Waste and Cladding Hulls, Paris(1977)
- [5] R.Restani et. al., "Characterization of PWR Cladding Hulls from Commercial Reprocessing", NAGRA Technical Report 92-13(1992)
- [6] F.Fukudome, "Mechanical Decladding by Rolling Straightener, Kobe Steel Ltd.(1997)
- [7] M.S.Yang et.al,"A study on the Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors,KAERI/RR-1744/96(1996)

Table 1 Mean activities of fission and activation products and α -nuclides in Zircaloy-4 hulls from reprocessing of a spent fuel element.

(cooling period: 5years, burn-up: 30,000MWd/tU)

핵분열생성물			방사화생성물			α 핵종	
핵종	방사능 (mci/kg-Zry)	반감기	핵종	방사능 (mci/kg-Zry)	반감기	핵종	방사능 (mci/kg-Zry)
Cs-137	542	30.1 년	Sb-125	760	2.70 년	Pu(t)	4.51
Ru-106	458	372 일	Co-60	64	5.27 년	Cm-244	1.24
Cs-134	162	2.10 년	Mn-54	3.4	312 일	Am-241	0.90
Ce-144	70	285 일					
Eu-154	21	8.80 년					
합계	1253		합계	827.4		합계	6.65

Table 2 Uranium, Plutonium concentrations and isotopic compositions in Zircaloy-4 hull

Uranium		1,132 mgU/kg-Zry	Plutonium		13.6 mgPu/kg-Zry
Uranium Isotopes	U-234	0.025 wt%	Plutonium Isotopes	Pu-238	1.33 wt%
	U-235	1.19 wt%		Pu-239	61.01 wt%
	U-236	0.38 wt%		Pu-240	23.12 wt%
	U-238	98.41 wt%		Pu-241	10.08 wt%
	-	-		Pu-242	4.46 wt%
	total	100wt%		total	100 wt%

Table 3 ORIGEN-II 코드에 의한 폐피복관에 함유된 TRU의 방사능 (Ci/ton-Zry)

ASSY	DISCHARGE	5.0YR	10.0YR	15.0YR	20.0YR	25.0YR	30.0YR	35.0YR	40.0YR	45.0YR	50.0YR
U	1.49E+00	2.16E-07	1.79E-07	1.50E-07	1.28E-07	1.11E-07	9.73E-08	8.69E-08	7.89E-08	7.28E-08	6.81E-08
NP	1.48E+00	1.50E-06									
PU	3.98E-02	7.33E-03	5.78E-03	4.57E-03	3.62E-03	2.86E-03	2.27E-03	1.81E-03	1.44E-03	1.16E-03	9.28E-04
AM	1.58E-02	7.76E-05	1.28E-04	1.67E-04	1.97E-04	2.21E-04	2.38E-04	2.52E-04	2.62E-04	2.69E-04	2.74E-04
CM	3.49E-03	1.48E-04	1.21E-04	1.00E-04	8.29E-05	6.87E-05	5.69E-05	4.71E-05	3.91E-05	3.24E-05	2.69E-05
BK	2.54E-10	1.08E-12	2.07E-14	3.97E-16	7.61E-18	1.30E-19	2.13E-22	2.13E-22	2.13E-22	2.13E-22	2.13E-22
CF	1.68E-12	9.83E-13	6.85E-13	5.32E-13	4.35E-13	3.67E-13	3.15E-13	2.76E-13	2.45E-13	2.21E-13	2.03E-13
SUM(d)	3.03E+00	7.55E-03	6.03E-03	4.84E-03	3.90E-03	3.15E-03	2.57E-03	2.11E-03	1.75E-03	1.46E-03	1.23E-03
Weight(g)	3.18E+05	3.18E+05	3.18E+05	3.18E+05	3.18E+05	3.18E+05	3.18E+05	3.18E+05	3.18E+05	3.18E+05	3.18E+05
Ci/ton	9.53E+00	2.37E-02	1.89E-02	1.52E-02	1.22E-02	9.91E-03	8.07E-03	6.63E-03	5.48E-03	4.58E-03	3.87E-03

Table 4 ORIGEN-II 코드에 의한 폐피복관 발생열 (W/kg-Zry)

ASSY	DISCHARGE	5.0YR	10.0YR	15.0YR	20.0YR	25.0YR	30.0YR	35.0YR	40.0YR	45.0YR	50.0YR
AP+ACT+F	8.162688	0.019246	0.008439	0.003948	0.001924	0.000964	0.000491	0.000253	0.000132	6.98E-05	3.76E-05

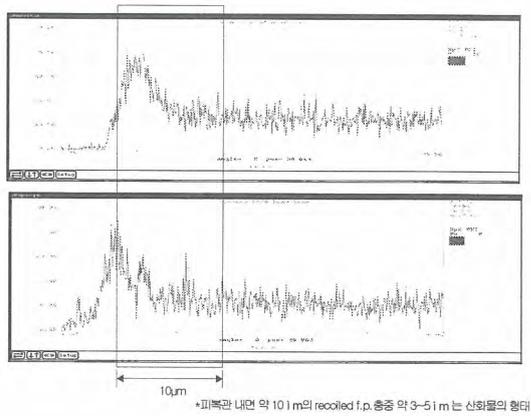


Fig. 1 Oxygen potential on the inside of a Zircaloy hull.

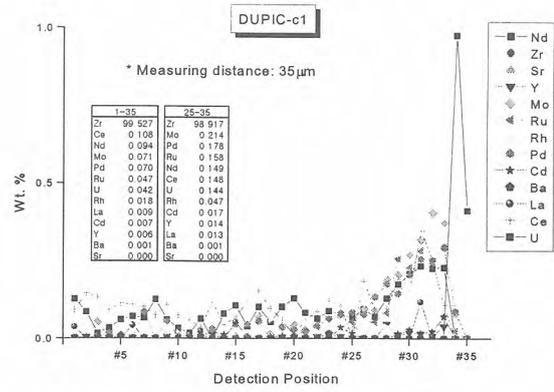


Fig.2 EPMA results of the inside of a Zircaloy hull

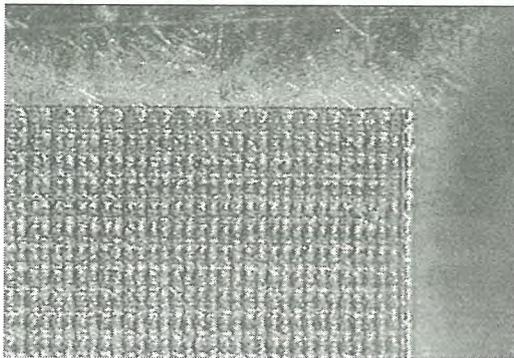


Fig. 3 Peeling-off of a Zircaloy hull by Laser.

주 입력장치를 이용한 가상 슬레이브 매니플레이터의 시각화

Visualization of Virtual Slave Manipulator Using the Master Input Device

김성현, 송태길, 이종열, 윤지섭
한국원자력연구소

요 약

밀폐 및 차폐 공간을 갖는 핫셀에서 사용후핵연료와 같은 고방사선 물질을 취급하고 있으며, 핵주기시설에서 마스터-슬레이브 매니플레이터는 원격취급장비로서 널리 사용되고 있다. 본 연구에서는 차세대관리공정의 디지털 목업을 구축하고 원격유지보수를 위한 매니플레이터의 작업영역 및 작업분석을 수행하였다. 실제 환경과 동일한 가상 작업환경을 갖는 디지털 목업은 3차원 그래픽으로 모델링된 공정장치 및 원격 취급장비들로 구성된다. 모델링된 매니플레이터는 기구학 및 동작범위에 대한 속성을 부여되고 외부 입력장치는 space ball을 사용하여 매니플레이터의 동작을 구현하였다. 또한, Tele-operation 인터페이스를 사용하여 6축 외부 입력장치와 연계한 시스템을 개발하였으며 외부 입력에 따른 매니플레이터의 동작에 대한 동기는 만족할 만한 응답을 보였다. 이는 가상환경에서 작업자 교육을 위한 시스템 개발에 유용할 것이다.

Abstract

To handle the high level radioactive materials such a spent fuel, the master-slave manipulators (MSM) are widely used as a remote handling device in nuclear facilities such as the hot cell with sealed and shielded space. In this paper, the Digital Mockup which simulates the remote operation of the Advanced Conditioning Process(ACP) is developed. Also, the workspace and the motion of the slave manipulator, as well as, the remote operation task should be analyzed. The process equipment of ACP and Maintenance/Handling Device are drawn in 3D CAD models using IGRIP. Modeling device of manipulator is assigned with various mobile attributes such as a relative position, kinematics constraints, and a range of mobility. The 3D graphic simulator using the external input device of space ball displays the movement of manipulator. To connect the external input device to the graphic simulator, the interface program of external input device with 6 DOF is deigned using the Low Level Tele-operation Interface(LLTI). The experimental result shows that the developed simulation system gives much-improved human interface characteristics and shows satisfactory response characteristics in terms of synchronization speed. This should be useful for the development of work's education system in the virtual environment.

1. 서 론

컴퓨터를 이용한 CAD 설계 기술의 발전에 따라 3차원 그래픽 기술을 이용한 Virtual prototyping 기술은 실제 시제품을 제작하지 않고 진보된 컴퓨터 시뮬레이션 기술을 사용하여 새로운 기계의 설계 타당성을 검증하는 공정을 말한다. 즉, 컴퓨터내의 가상환경에서 운전되는 것과 같이 현실감 있게 3차원 그래픽으로 전산모사 하며 장치의 동작경로와 구성 장치간의 간섭현상을 분석함으로써 장치의 설계를 검증할 수 있다. 이와 같이 디지털 설계 기술은 개발하고자 하는 제품의 신뢰도를 제작전에 검증할 수 있어서 장치의 신뢰도를 중요시 하는 원자력분야에서 활발하게 적용되고 있다. 특히, 일본의 JNC는 FR 핵연료주기 시험시설인 RETF 시설의 건축 및 원격 취급 장비의 설계에 3차원 그래픽 설계기술을 적용한 바 있다. 차세대관리공정은 핫셀이라는 폐쇄된 환경에서 모든 작업은 원격으로 이루어지기 때문에 그래픽 설계기술을 이용한 원격작업에 대한 철저한 분석을 요구한다. 본 연구에서는 핫셀내 원격 유지보수작업 및 공정운전의 작업을 분석하기 위해 그래픽 시뮬레이터를 이용하여 가상환경에서 마스터-슬레이브 매니플레이터의 작업영역의 타당성 검증하고자 하며 외부 입력 장치를 연계한 그래픽시뮬레이터를 개발하였다.^{1,2,3)}

2. 마스터-슬레이브매니플레이터의모델링

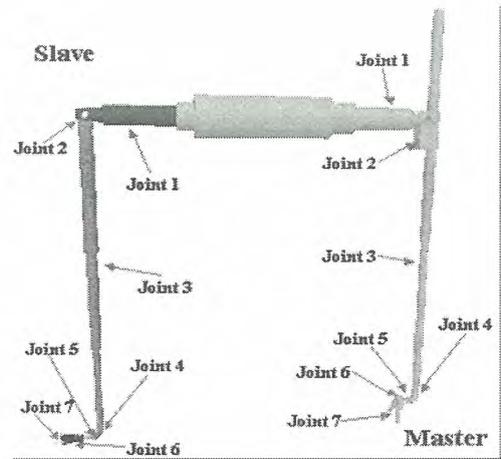
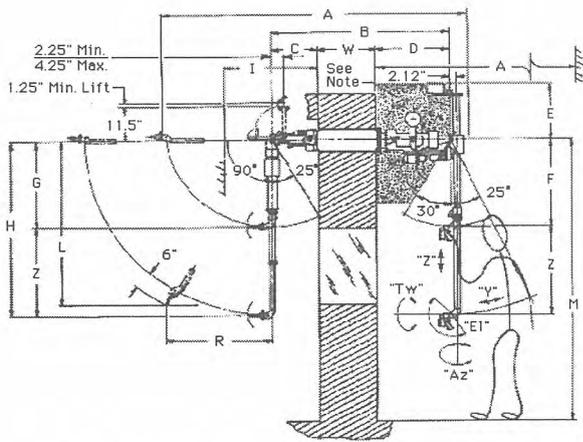
2.1 그래픽 모델링 및 workcell 구축

그래픽 전산모사를 수행하기 위해서는 모든 장치들을 3차원 그래픽으로 모델링을 해야 한다. 3차원 모델링 과정은 장치들의 part를 모델링하고 부분적으로 part들을 조립하고 조립된 part의 assembly를 다시 조립하여 device를 생성한다. 또한 device를 만들 때에 장치의 구동부분을 고려하여 part를 조립하여 device를 구성해야 한다. 구동하는 장치들은 구동특성에 따라 기구학(kinematics) 특성 및 운동 범위에 대한 정의를 부여함으로써 전산모사 시에 장치들의 구동 모습의 구현할 수 있다. 차세대관리 공정의 장치 및 핫셀의 모델링 자료를 이용하여 컴퓨터의 가상환경에 장치를 배치하여 workcell을 구성하여 digital mockup을 구축하게 된다. 그래픽 시뮬레이터는 workcell을 구축한 후에 전산모사를 위한 프로그램을 작성하거나 사용자 인터페이스를 구축하여 시뮬레이터를 구축하게 된다. 본 연구에서는 시뮬레이터 구축을 위한 툴(Tool)로 DELMIA사의 IGRIP(Interactive Graphic Robot Instruction Program)을 이용하였다.⁴⁾

핫셀내에 설치되는 마스터-슬레이브 매니플레이터는 차폐벽 외부에서 사용후핵연료 등과 같은 고방사성 핵물질 취급 및 각종 시험장치의 시험을 원격으로 조작하는 장치이며 작업자가 차폐벽 외부에서 차폐창을 통해 작업함으로써 작업자의 피폭을 최소화하기 위한 원격조작장치이다. 차세대관리공정에서 마스터-슬레이브 매니플레이터 취급하중을 고려하여 그림 1의 a와 같이 CRL사의 L-HD 모델을 선정하여 모델링 자료로 사용하였다. 그림 1의 b는 마스터-슬레이브 매니플레이터의 3차원으로 part를 모델링하여 각 구동축을 정의한 디바이스로 생성한 그래픽 모델이다. 모델링한 슬레이브 매니플레이터의 6개축에 대한 구동특성과 구동범위를 표 1과 같이 정의하였다.

2.2 마스터-슬레이브 매니플레이터의 작업영역 분석

차세대관리 공정은 모든 장치들은 모델링하여 가상 핫셀이란 작업공간에 배치되고 마스터-슬레이브 매니플레이터를 이용하여 각종 장치의 조작 및 원격 유지보수 작업을 수행하게 된다. 유지보수장치의 작업영역분석은 핫셀내 공정장치의 유지보수 부품으로의 접근성과 관련하여 가장 기본적인 분석이다. 공정장치의 조작 및 유지보수측면에서의 접근성 및 핫셀내 공정장치 배치는 매니플레이터의 작업영역 분석을 통하여 가능하다.



a) Schematic Diagram of MSM Kinematics b) Graphic Model of MSM kinematics
 Fig . 1 LH-D model of Master-Slave Manipulator

Table 1. Motion Characteristics and Value of Slave

구동축	구동 특성	구동 범위
Joint 1	Rotate	$\pm 45^\circ$
Joint 2	Rotate	$+90^\circ \sim -30^\circ$
Joint 3	Translate	1122 mm
Joint 4	Rotate	$\pm 164^\circ$
Joint 5	Rotate	Up: 40° / Down: 116°
Joint 6	Rotate	$\pm 180^\circ$

그림 2는 매니플레이터의 작업영역 범위와 공정장치의 배치와의 관계를 보여준다. 이와 같이 매니플레이터의 접근영역일지라도 조작기의 작업에 따라 매니플레이터와 공정장치간의 충돌과 같은 작업이 불가능한 경우 등을 사전에 파악할 수 있다. 따라서 사전에 그래픽 시뮬레이터 상에서 이와 같은 분석을 통해 문제점을 파악하고, 이와 같은 오류발생을 최소화 할 수 있도록 핫셀 내에 공정장치를 적절히 배치할 수 있다.

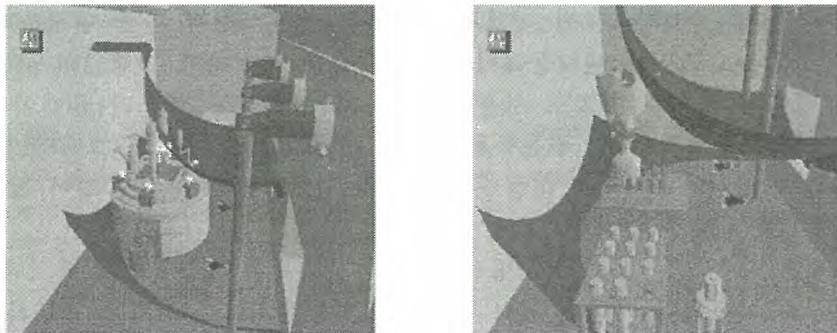


Fig . 2 Workspace of Master-Slave Manipulator.

3. 그래픽시뮬레이터의 입력장치설계및구현

3.1 LLTI(Low Level Tele-Operation Interface)의 기능

IGRIP.환경에서 원거리의 장치와의 통신에 의한 인터페이스를 할 수 있는 LLTI 모듈을 보유하고 있다. 이 기능은 원거리 및 양방향의 통신을 할 수 있고 고속 및 유연한 인터페이스를 제공한다. 이러한 기능은 원거리에서의 작업환경에서 변화되는 환경을 실시간으로 반영할 수 있어 원격 운전이 많이 활용된다. LLTI의 기능은 두가지 형태를 갖고 있으며, 첫째는 소켓을 생성하여 TCP/IP 네트워크 상에서 두 시스템 간의 연결을 수행하는 방식이며, 두 번째 기능은 공유 라이브러리에서 사용자 I/O방식을 설정하는 방식이다. 본 연구에서는 TCP/IP 네트워크 상에서 소켓에 의한 접속하는 방법을 사용하였으며, 6축 입력장치에서 표2와 같은 데이터 패킷을 자동 생성하여 시뮬레이터에 데이터가 전송될 수 있도록 LLTI 모듈을 포함하는 프로그램을 개발하였다.⁵⁾

Table 2. LLTI Data Structure

OPCODE		Data Parts	
Code	Contents	Word	Data
10.0	Joint Value Info. (All)	1	# of joints to be updated
		2	Joint 1 data
		3	Joint 2 data
		4	Joint 3 data
		..	Joint # data
OPCODE		Data Parts	
Code	Contents	Word	Data
20.0	Joint Value Info. (Single)	1	Joint # to update (1 dof)
		2	Joint Data
30.0	T6 Information	1	Configuration
		2-17	4x4(row x column) data
40.0	Part transform Info. (All)	1	# of parts to be updated
		2-17	First 4x4 data
		18-33	Second 4x4 data
70.0	Device Display Mode Info.	1	Display Mode Index
			- Invisible: 0.0
			- Wireframe: 1.0
			- Hidden Line: 2.0
131.0	Multiple CLI command	1 2-n	Length of CLI command set including tildes(~)
			CLI commands seperated by tildes(~)

3.2 외부 입력장치와 슬레이브 매니플레이터의 기구학적 매핑

외부 입력장치로는 그림 3에서 보는바와 같이 Spacotec IMC 사의 Space ball 2003 모델을 사용하였고, 그림 3과 같이 손으로 PowerSensor Ball을 밀고 당기고 비틀음에 따라 Tx, Ty, Tz, Rx, Ry, Rz 등 6개축에 대한 값이 생성되어 PC 프로그램을 통하여 값을 얻을 수 있다.

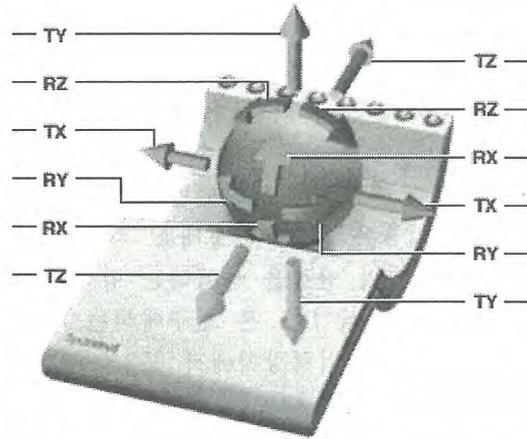


Fig. 3 6 DOF Movement of Space Ball.

마스터 매니퓰레이터의 동작에 따라 슬레이브 매니퓰레이터의 동작이 이루어지는 것과 같이 마스터 매니퓰레이터로 사용되는 space ball은 슬레이브 매니퓰레이터와 매핑된다. space ball과 슬레이브 매니퓰레이터 간의 기구학적인 불일치를 개선하기 위해 슬레이브 매니퓰레이터의 각 joint는 식 1에서 보는바와 같이 space ball의 움직임과 일치한다고 정의한다. 매핑 이득은 슬레이브 매니퓰레이터의 조인트 동작 범위와 space ball의 출력값 범위의 비로 얻어진다.

$$\begin{bmatrix} \theta_1 \\ \theta_2 \\ \theta_3 \\ \theta_4 \\ \theta_5 \\ \theta_6 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 3.33 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 3.33 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0.54 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2.44 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 2.56 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1.67 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} Tx \\ Ty \\ Tz \\ Rx \\ Ry \\ Rz \end{bmatrix} \quad (1)$$

3.3 원격 운전인터페이스 구조 및 구현

그림 4와 같이 외부 입력장치의 입력 값을 받을 수 있는 PC와 그래픽 시뮬레이션을 수행하는 컴퓨터로 이루어져 있으며, TCP/IP 네트워크를 통하여 두 컴퓨터간의 데이터를 전달하는 원격 운전 인터페이스를 갖는 시스템이다.

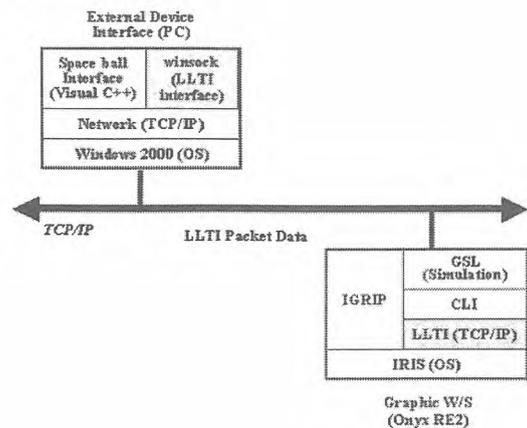


Fig. 4 Schematic Diagram of Interface System.

외부 입력장치와 그래픽 시뮬레이터와의 연계를 위해 Fig 5와 같이 Visual C++을 이용하여 인터페이스 프로그램을 개발하였으며 현재 상태의 space ball에 대한 정보를 획득 및 TCP/IP를 이용한 LLTI연결 등으로 구현되어 있다.

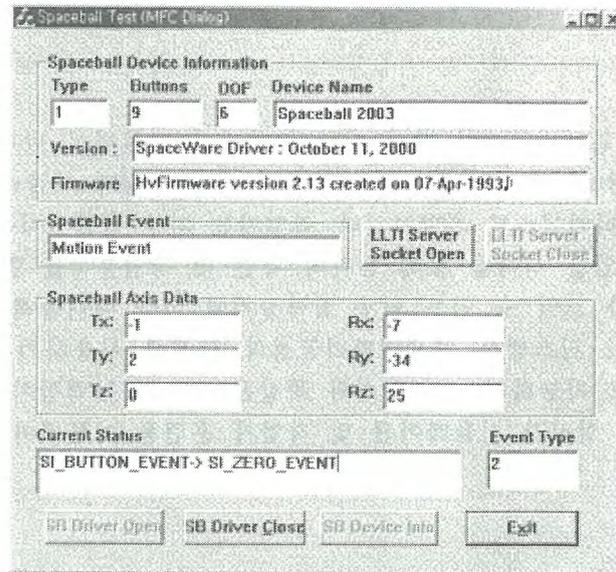


Fig. 5 External Device Interface Screen.

Fig 5 는 GUI(Graphic User Interface Program)을 보여주며, 이 프로그램은 다음과 같은 기능을 갖는다.

- 외부 장치의 드라이버를 열고 초기화 기능
- 외부장치로부터 6축 신호의 수신 기능.
- LLTI 포트를 그래픽서버에 연결 기능
- 그래픽서버에 표2에서 보여준 LLTI 데이터패킷 구조로 신호를 변환 및 전달 기능

외부장치 인터페이스 프로그램은 space ball 로부터 6축 신호를 받아 슬레이브 매니플레이터의 동일 joint 값으로 변환된다. 변환된 데이터는 LLTI 포트를 통해 그래픽서버에 전달되고 이 데이터와 일치된 매니플레이터의 동작을 모사한다.



Fig. 6 Graphic Simulator Screen Connected to External Input Device.

그림 6 은 LLTI 포트를 통해 외부장치 인터페이스 프로그램으로 연결된 그래픽 시뮬레이터를 보여주며, 그래픽 시뮬레이터 상에서의 LLTI 연결 및 슬레이브 매니퓰레이터의 움직임을 보여준다. 그래픽 시뮬레이션 언어를 사용한 소켓 프로그램과 비교하여 볼 때에 외부장치와 연결된 슬레이브 매니퓰레이터의 움직임은 연속적인 이동 모습을 보여주고 있다.

4.결 론

본 연구에서는 차세대관리공정에서 뿐만 아니라 원자력 시설에서 원격조작장치로 사용하고 있는 마스터-슬레이브 매니퓰레이터의 구동을 분석하기 위해 그래픽 시뮬레이터를 구축하였으며, 외부 6축 입력장치와의 인터페이스를 개발하였다. 작업자는 외부 입력장치를 움직이면서 가상환경에서 매니퓰레이터의 움직임을 시각을 통해 동작의 확인 및 작업분석을 할 수 있도록 시스템을 구축하였다. 또한, 작업자가 느낄 수 있는 외부 입력장치에 의한 매니퓰레이터의 움직임에 대한 응답성도 만족스러웠다. 이 시스템은 차세대관리공정의 핫셀에 사용하기 위해 제작된 Telescopic Manipulator 에도 적용도 가능하며, 실제장치와 똑같은 구조의 입력장치가 사용된다면 이를 통해 유지보수 장치와 연계한 실시간 시뮬레이션 및 작업자 훈련용 시뮬레이터의 개발에도 활용될 수 있을 것이다.

참 고 문 헌

1. Yudaka Omura, etc., "Virtual prototyping for canister receiving devices of high level waste storage facility", Proc. of '99 DENEb User Meeting for Korean Users, 1999
2. W. Walischmiller, etc., "Application of the Telbot Robot in Hazardous Environments", Proceedings of the 27th International Symposium on Industrial Robots(Robots Toward 2000), pp. 219-223, 2000.
3. Y, J. Shin, etc., "Development of Advanced Spent Fuel Management Process", KAERI/RR-2128/2000, 2000.
4. Deneb, "IGRIP User Manual and Tutorials", 1995.
5. M. Salminen, R. Tuokko, J Sulkanen, "Development, Experiments and Experience in Telerobotics and VR Using the TELEGRIP Software", Proceeding of the DENEb User Group Conference, pp. 55-64, 1995.

본 연구는 과학기술부의 원자력 중장기연구개발사업의 일환으로 수행되었음

U-2wt%Nb, Ti, Ni 합금의 공기중 산화거동

Oxidation Behavior of U-2wt%Nb, Ti, and Ni Alloys in Air

주준식, 유길성, 조일제, 국동학, 서항석, 이은표, 방경식, 김호동
한국원자력연구소

요 약

사용후핵연료 금속전환체의 장기저장 안정성 확보를 위해 금속전환체의 주성분인 금속우라늄과 산화 안정화 후보물질인 Nb, Ti, Ni, Zr, Hf 등을 첨가한 모의금속전환체 합금을 제작하여 200 °C ~ 300 °C 온도구간에서 순수 산소분위기로 산화시험을 수행하였다. U-Nb, U-Zr, U-Ti 합금은 순수 금속우라늄보다 무게증가 측면에서의 산화저항성이 높았으나, U-Hf, U-Ni 합금의 경우에는 오히려 순수 금속우라늄보다 산화 저항성이 낮게 나타났다. 시편에 대한 미세성분 및 조직을 광학 현미경, SEM, EPMA 등을 통해 분석하였다. 각 합금의 산화율 및 활성화에너지를 구한 결과 U-Nb 합금의 활성화에너지가 높고 산화 저항성이 가장 양호한 것으로 나타나 산화 저항성 후보 물질로 선정하였다.

Abstract

For the long term storage safety study of the metallic spent fuel, U-Nb, U-Ti, U-Ni, U-Zr, and U-Hf simulated metallic uranium alloys, known as corrosion resistant alloys, were fabricated and oxidized in oxygen gas at 200 °C ~ 300 °C. Simulated metallic uranium alloys were more corrosion resistant than pure uranium metal, and corrosion resistance increases Nb, Ni, Ti in that order. The oxidation rates of uranium alloys determined and activation energy was calculated for each alloy. The matrix microstructure of the test specimens were analyzed using OM, SEM, and EPMA. It was concluded that Nb was the best acceptable alloying elements for reducing corrosion of uranium metal considered to suitable as candidate.

1. 서 론

한국원자력연구소 사용후핵연료기술개발부에서는 사용후핵연료를 안전하고 경제적으로 저장 관리하기 위하여 “사용후핵연료 차세대관리 종합공정개발”이라는 연구과제를 수행¹⁾해 오고 있다. 이 공정은 기존의 세라믹형 사용후핵연료를 금속전환하여 부피를 줄이고 고방열성핵종들을 선별적으로 분리하여 냉각부하를 줄일 수 있다. 이러한 사용후핵연료 차세대관리 공정개발을 통해 사용후핵연료로부터 생산된 금속전환체는 핵물질 및 핵분열생성물과의 혼합체로 그 구성 성분의 대부분이 금속 우라늄이며, 이 외에도 플루토늄 및 다양한 종류의 핵분열생성물이 존재한다. 이들 핵분열생성물들이 함유된 금속전환체는 고방사성물질이기 때문에 산화 안전성 시험을 직접 수행하기에는 많은 어려움이 있다. 금속전환체에 대한 산화거동 실험은 실제에 가까운 모의 금속전환체에 대한 산화 거동을 연구하므로써 앞으로 수행될 실제 금속전환체에 대한 산화거동을 현 단계에서

예측할 수 있고, 핵분열 원소 함유에 따른 산화 특성을 정확히 분별할 수 있어 산화 억제 및 그 안전성 연구에 기여할 수 있을 것이다.

국내의 기술개발 현황은 사용후핵연료 차세대관리 공정개발과제의 연구내용 중 안전해석 시험 분야의 일부분으로 우라늄 잉고트와 합금의 산화속도에 관한 분야의 연구가 있으며, 이 연구의 내용은 사용후핵연료를 금속전환하여 발생된 금속전환체에 대한 저장 안전성을 위해서 고려하여야 하는 몇가지 중요한 인자들 중에서, 특히 주위 분위기에 의한 산화 안정성이 확보되어야 하는 점을 연구한 사례로서, 이러한 금속전환체의 안전성 확보를 위한 산화 시험은 주로 금속전환체의 대부분을 차지하는 금속우라늄에 대한 산화거동 연구를 수행하였고, 국외 기술개발 현황으로는 세라믹형 핵연료를 금속전환한 형태의 모의 금속전환체와 같은 재료의 산화 안정성 시험은 아직까지 수행된 바 없으므로, 금속우라늄에 대한 산화 연구들^{2~5)}은 주로 수분이 함유된 상태에서 수분과 우라늄과의 반응에 그 연구방향이 집중되었다. 또한 핵분열생성물이 함유된 우라늄 합금에 관한 연구들^{6~7)}도 주로 고속증식로용 핵연료에 활용하기 위한 연구들로 구성되어 있어 본 연구내용의 결과와 비교하여 활용하기에는 한계가 있다.

본 연구에서는 사용후핵연료 금속전환체의 저장 안정성 확보를 위해 금속전환체의 대부분을 차지하고 있는 금속우라늄에 Nb, Ti, Ni, Zr, Hf 등의 산화 저항성 재료들을 첨가한 합금을 제조하여 산화 거동시험을 수행하여 각 합금에 대한 산화율 및 활성화에너지를 구하고, 이 시험결과를 토대로 사용후핵연료 금속전환체의 산화 안정화물질을 선정하는 기초자료로 활용코자 한다.

2. 시편 제작 및 시험방법

시편의 제작은 금속우라늄의 산화특성과 높은 용융점을 가진 첨가원소들 때문에 고진공 Arc Melting Furnace의 Chamber내에 시료를 넣은 후 10^{-4} Torr 이하까지 충분한 진공을 유지하였고, Chamber 내부는 시료 제작도중 고열에 의한 시료의 산화방지를 위하여 아르곤 개스 분위기에서 작업을 수행하였다. 잉곳 제작시 잉곳의 균일한 용융을 위해 수냉중인 구리 hearth에 놓인 잉곳을 아래, 윗부분을 뒤집은 상태에서 세차례 용융을 반복하였다. 제작된 잉곳은 납작한 원형으로 다이아몬드 절단기를 이용하여 먼저 모서리 부분을 절단해 낸 뒤 중간 부위를 직사각형 형태로 절단하였고, 다시 다이아몬드 정밀 절단기로 약 350~450 mg 정도의 크기로 절단하여 아세톤으로 세척한 후 건조하여 시편으로 준비하였다.

산화 및 산화시 무게이득에 대한 특성 시험은 TA Instrument 사의 TA-2050 TGA를 사용하여 수행하였다. TGA의 분위기 공급은 정밀 Gas Flow Meter로 구성된 별도의 Gas Flow System을 사용하였으며, 사용한 기체는 순도 99.999 %인 순수 산소기체를 사용하여 다른 불순물에 의한 실험변수를 최대한 줄였다.

3. 시험 결과 및 토의

3.1 산화거동 분석

제조된 시편에 대한 산화거동시험은 200, 250 및 300 °C 까지 3단계의 온도구간에서 수행하였다. 그림 1은 200 °C에서 산화시험을 수행한 결과이다. 이 그림은 순수금속우라늄과 Nb, Ti, Ni, Zr, Hf 등의 재료를 2wt% 첨가한 합금의 산화무게 증가 거동을 보여주고 있는데, 20시간 시험 후 금속우라늄의 무게증가율은 6.21 μ g, U-Hf 합금의 경우에는 6.68 μ g, U-Zr 합금의 경우에는 2.72 μ g, U-Ni 합금의 경우에는 3.21 μ g, U-Ti 합금의 경우에는 2.87 μ g, U-Nb 합금의 경우에는 0.79 μ g 으로 나타났다. 그림에서 보는바와 같이 순수금속우라늄의 경우보다 Hf을 첨가한 합금의 경우를 제외하고는 모두 산화 저항성이 양호하게 나타났으며, Ni, Zr, Ti을 첨가한 합금의 경우 무게증가 경향이 유사하였고, 특히 U-Nb합금의 경우에는 거의 무게증가가 일어나지 않으므로 매우 안정적인 산화거동을 보여주고 있다. 저장 사고시 초기 단계의 산화거동에 대한 안정성 확보가 매우 중요하

므로 시험시간을 48시간으로 짧게 잡아 충분한 무게증가가 일어나지는 않았으나 산화 안정화물질을 첨가한 각 합금시료의 200 °C에서의 산화특성은 비교적 안정적임을 알 수 있다.

그림 2는 250 °C에서 모의금속전환체 합금의 산화거동을 나타내고 있는데, 20시간 시험 후 금속우라늄의 무게증가율은 24.17μg, U-Hf 합금의 경우에는 27.39μg, U-Zr 합금의 경우에는 19.44μg, U-Ni 합금의 경우에는 29.45μg, U-Ti 합금의 경우에는 26.1μg, U-Nb 합금의 경우에는 4.95μg 으로 나타났다. 온도가 상승하면서 순수금속우라늄보다 Ni, Ti을 첨가한 합금의 산화 저항성은 오히려 감소하였는데, 이러한 원인은 금속우라늄에 첨가한 재료의 양이 적은(2wt%이하) 희박합금(dilute alloy)의 경우에는 시험온도가 상승되면서 모재인 금속우라늄의 재료특성을 보완하지 못하는 것으로 판단되며, U-Zr 합금의 경우에는 금속우라늄에 비해 온도상승에 크게 좌우되지 않고 산화경향을 유지하였으며, U-2wt%Nb합금의 경우에는 200 °C에서의 산화경향보다 약간 상승하였으나 다른 합금에 비해 안정적인 결과를 나타내고 있다.

그림 3은 300 °C에서 산화거동으로 20시간 시험 후 금속우라늄의 무게증가율은 100.93μg, U-Hf 합금의 경우에는 103.81μg, U-Zr 합금의 경우에는 94.23μg, U-Ni 합금의 경우에는 129.81μg, U-Ti 합금의 경우에는 119.2μg, U-Nb 합금의 경우에는 34.39μg 으로 나타났다. 300 °C에서는 250 °C 시험에서 보다 2wt%Ni 합금의 산화 경향이 가장 빠르게 나타났고 2wt%Hf합금의 경우에는 온도가 상승할수록 산화경향은 Ni, Ti합금보다 산화 저항성이 오히려 향상되었다. U-Hf 합금의 이러한 결과는 시편의 제작이력의 차이에 의한 산화경향의 차이로 볼 수 있으며, 이에 대한 확인은 앞으로의 연구에서 수행되어야 할 것으로 판단된다. 또한 2wt%Zr 합금의 경우에는 250 °C 보다 산화 경향이 증가되었고 U-2wt%Nb 합금의 경우에도 온도가 상승할수록 산화 저항성이 감소되는 것을 알 수 있다.

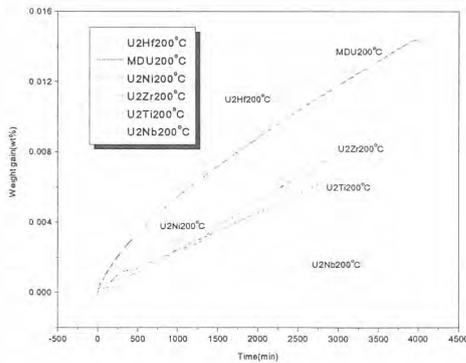


그림 1. U과 합금의 200°C에서의 산화거동

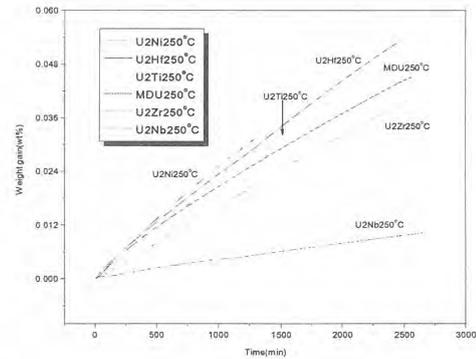


그림 2. U과 합금의 250°C에서의 산화거동

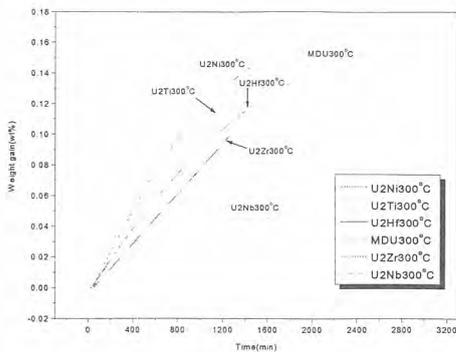


그림 3. U과 합금의 300°C에서의 산화거동

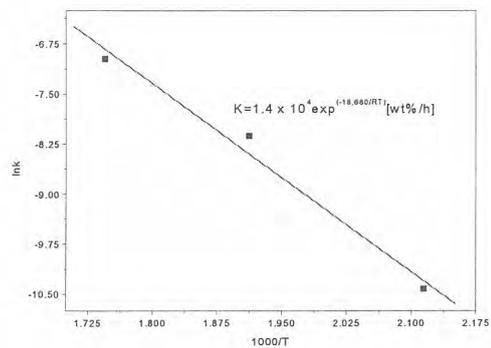


그림 4. U-Nb 합금의 Arrhenius plot

각 시험결과에 대한 산화이득곡선에 대해 초기 산화율은 모두 선형(linear)인 것으로 가정하여 역온도에 대한 지수함수의 산화실험식인 Arrhenius plot 형태를 구하였으며, 그림 4에 U-Nb합금에 대한 Arrhenius plot 나타내었고, 이 plot으로부터 각각의 시편에 대한 산화율 및 활성화에너지를 구하여 표 1과 2에 나타내었다.

$$\begin{aligned} \text{DU metal} & : \text{산화율}(k) = 7.0 \times 10^3 \exp(-16,100/RT) & [\text{wt\%/h}] \\ & \text{활성화에너지(A.E)} = 16.10 [\text{kcal/mol}] \\ \text{U-2wt\%Nb} & : \text{산화율}(k) = 1.4 \times 10^4 \exp(-18,680/RT) & [\text{wt\%/h}] \\ & \text{활성화에너지(A.E)} = 18.68 [\text{kcal/mol}] \end{aligned}$$

다음 그림 5에 구해진 산화속도식을 이용하여 200 °C ~ 300 °C 까지 온도 영역을 5 °C 간격으로 구한 산화율 증가경향을 나타내었다.

3.2 금속우라늄합금의 미세조직 시험

그림 6에 고순도 산소분위기에서 200 °C로 40시간 시험한 U-2wt%Nb합금의 단면조직과 산화막의 구조 및 U, Nb, 산소성분에 대한 선분석 결과를 나타내었다. 시편 표면에 U양이 줄고 산소의 양이 많아지며, Nb의 량은 변화가 거의 없는 것으로 보아 Nb보다는 U과 산소의 반응이 이루어져 산화막을 형성하는 것으로 보인다. 본 연구에서는 산화막이 연속적으로 형성되지 않고 부분적으로 떨어져 나간 형태를 보여 주어 매우 불안정해 보이나, Nb성분은 비교적 matrix에 고르게 분포되어 순수 금속우라늄의 산화를 억제하는 것으로 판단된다.

그림 7에 U-2wt%Nb합금의 점분석 결과를 나타내었다. Nb은 matrix에 고르게 분포되어 있으나, 일부 Nb이 U에 충분히 고용되지 않고 방사형으로 분포되어 있는 부분도 볼 수 있다. U-2Nb 합금의 산화막은 U과 O의 화합물로 다른 합금의 산화막에 비해 치밀하고 안정적으로 형성되며, Nb이 첨가됨으로서 금속우라늄의 산화를 억제해 주는 것으로 나타났다.

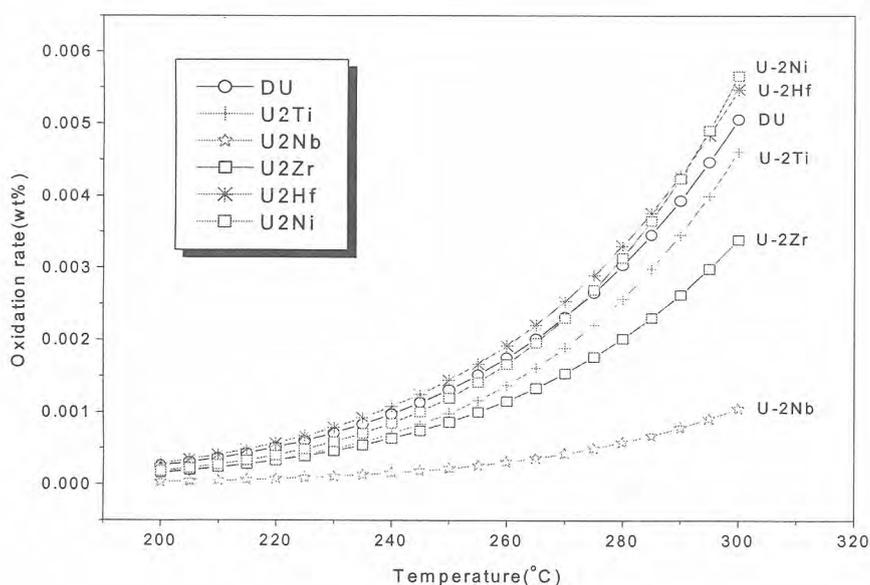


그림 5. U metal 과 U 합금의 산화율 비교

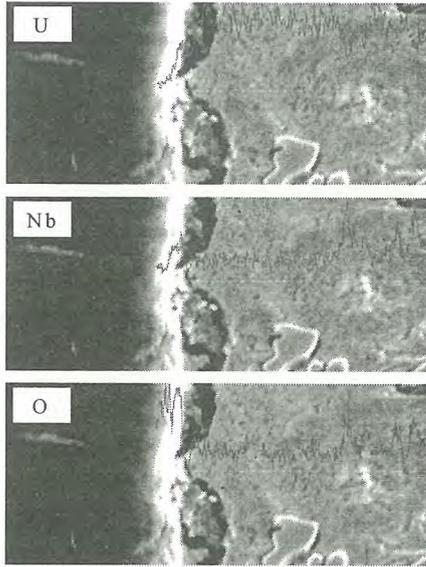
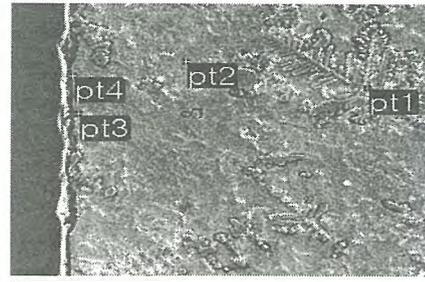


그림 6. U-Nb 합금의 선분석 결과



	U	Nb
Pt1	91.22	8.78
Pt2	98.36	1.64
Pt3	98.36	1.64
Pt4	90.72	9.28

그림 7. U-Nb 합금의 점분석 결과

표 1. U metal 과 U 합금의 20시간 산화 반응후 온도에 따른 무게 증가율

Alloy	Weight Gain (μg)		
	200 °C	250 °C	300 °C
U	6.21	24.17	100.93
U-2Hf	6.68	27.39	103.81
U-2Zr	2.72	19.44	94.23
U-2Ni	3.21	29.45	129.81
U-2Ti	2.87	26.10	119.20
U-2Nb	0.79	4.95	34.39

표 2. 각 연구자들과의 활성화에너지 비교

Researcher	Temp.(°C)	Materials	Activation Energy(kcal/mol)
McGillivray	40~350	U metal	16.0
Bennett	50~100	U metal	18.5
Bennett	100~300	U metal	20.2
Ritchie	40~300	U metal	18.3
Baker	98.5~200	U metal	22.5
Colmenares	117~177	U metal	21.86
G.S.You	150~340	U metal	14.2
G.S.You	183~250	U-Nd alloy	18.6
G.S.You	183~250	U-Nd-Pd alloy	19.9
Matsui	150~230	U-Zr alloy	23.97
Rama Rao	350~527	U-Zr alloy	34.80
G.S.You	200~350	U-Zr alloy	23.34
J.S.Ju	200~300	U metal	16.1
(This study)	200~300	U-Nb alloy	18.68

4. 결 론

본 연구결과를 통해 다음과 같은 결론을 도출할 수 있었다.

- 금속우라늄에 Hf, Zr, Ni, Ti, Nb 2wt%를 첨가한 합금의 200 °C~300 °C 온도 구간에서의 산화율 및 활성화에너지를 구하였다.
- U-Nb, U-Zr, U-Ti 합금은 순수 금속우라늄보다 무게증가 측면에서의 산화이득율이 낮았으나, U-Hf, U-Ni 합금의 경우에는 오히려 순수 금속우라늄보다 산화이득율이 높게 나타났다.
- U-Nb 합금의 활성화에너지가 높았으며, 산화저항성이 가장 양호하므로 산화저항성 안정화 후보물질로 선정키로 하고 향후 U-Ni, U-Ti 합금등에 대한 추가적인 산화거동시험을 수행한 후 최종 안정화물질을 선정할 예정이다.

감사의 글

이 연구는 과학기술부 주관으로 추진중인 원자력중장기사업의 일환으로 추진하였으며, 관계자 여러분께 감사 드립니다.

참고문헌

- [1] 노성기 외, "사용후핵연료 차세대관리 공정개발", KAERI/TR-994/98 (1998).
- [2] M.J. Bennett, B.L. Myatt and J.E. Antill, "The oxidation behaviour of highly irradiated uranium in dry carbon dioxide at 375~500 °C and in dry air at 200~300 °C", J. Nucl. Mater. 50, 2 (1974).
- [3] M.J. Bennett, B.L. Myatt, D.R.V. Silvester and J.E. Antill, "The oxidation behaviour of uranium in air at 50~300 °C", J. Nucl. Mater. 57, 221 (1975).
- [4] A.G. Ritchie, "A review of the rates of reaction of uranium with oxygen and water vapour at temperatures up to 300 °C", J. Nucl. Mater. 102, 170 (1981).
- [5] G.W. McGillivray, D.A. Geeson and R.C. Greenwood, "Studies of the kinetics and mechanism of the oxidation of uranium by dry and moist air", J. Nucl. Mater. 208, 81 (1994).
- [6] Tsuneo Matsui, Takanobu Yamada, Yasushi Ikai and Keiji Naito, "Oxidation of U-20at% Zr alloy in air at 423K-1063K", J. Nucl. Mater. 199, 143 (1993).
- [7] G.A. Rama Rao, V. Venugopal, D.D. Sood, "Oxidation studies on U-Zr alloys", J. Nucl. Mater. 209, 161 (1994).

The MUF of a Pilot-Scaled ACP Facility and Its Sensitivity

W.I. Ko, D.Y. Song, S.Y. Lee, H.D. Kim and S.W. Park
Korea Atomic Energy Research Institute

Abstract

The Advanced Spent Fuel Conditioning Process (ACP) have been developed at the Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI) as an alternative for the effective conditioning of spent fuel for long-term storage or/and eventual disposal. This paper addresses the safeguardability of a pilot-scaled ACP facility and its sensitivity analysis. For this, a conceptual process and its material flow are analyzed using experiences from conventional fuel cycles, and measurement methods and their uncertainties are assumed for calculating MUF (Material Uncounted For) standard deviation (SD). We concluded from the preliminary analysis of the MUF SD that the pilot-scaled ACP facility with capacity of 30 MTHM/year can meet the International Atomic Energy Agency (IAEA) safeguards goals.

1. Introduction

Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI) has been developing the Advanced Spent Fuel Conditioning Process (ACP), so-called the electrolytic reduction process, which involves the process of the reduction of uranium oxide by lithium metal in a high temperature molten salt bath. In order to support the program, the safeguardability study of the ACP concept has been carried out as the joint research project by KAERI and the Los Alamos National Laboratory (LANL) since the year 2002.

This study deals with the safeguardability of the ACP and their sensitivities. Especially, the effects of facility throughput and MB (Material Balance) period on the MUF (Material Uncounted For) standard deviation are examined. The approach for safeguardability and its sensitivity analysis employed in this study is shown in Fig. 1. First reference facility such as throughput, availability and batch size and the characteristics of the reference fuel such as burnup and cooling time are assumed. Second, MBAs (Material Balance Areas) and KMPs (Key Measurement Points) of the pilot-scaled ACP facility are defined considering the general domestic and IAEA (International Atomic Energy Agency) safeguarding principles. With those parameters, material flow for each sub-process and KMP is estimated. And then the MUF SD for the reference facility is calculated with assumption of measurement methods and their measurement uncertainties in order to see if the reference facility can meet the IAEA target value. Finally, the sensitivities for facility throughput and MB period are examined.

2. Reference Facility Concept

The reference facility concept consists of six major sub-processes. They include dismantling of the fuel assemblies, and decladding of the Zircaloy cladding, thermal oxidation of UO_2 to the form of U_3O_8 , reduction of the oxide fuel to metals using a suitable reductant in a molten salt, smelting of metallized fuel and casting of metallized fuel in a form that is suitable for

interim storage and deposition. The key process of the facility, electrolytic reduction process, is well described in other reference [1].

It is assumed that a pilot scale ACP facility has a capacity of 30 MTHM/year and batch size of 100 kgHM. The facility is a physically stand-alone facility, and administratively isolated from the reactors and interim spent-fuel storage facilities. A basic specification of the conceptual ACP facility to be evaluated is summarized in Table 1. The facility availability is assumed as 60 %, which is equivalent to 219 full operating calendar days per year. The facility consists mainly of three parts: spent fuel handling area (spent fuel disassembling and rod extraction), main hot cell (decladding, reduction, smelting, casting etc.), and a metal ingot handling area (loading metal rods into storage cask and temporary storage).

The reference spent fuel used in the ACP facility is Yong-Gwang Unit 1 & 2's 17×17 standard PWR spent fuel assemblies with burnup of 45,000 MWd/MTU and a minimum 10 years of cooling time after discharge from the reactor. The reduction rate of the fuel is assumed to be 99.8% for all actinide. It is also assumed that this facility operates 220 days/calendar year and closes the material balances once every 3 months (or once after 54 days of operation).

3. Material Control and Accountability

This facility is considered as three MBAs: spent fuel handling area, main processing area (bulk handling area) and metal storage area. The facility operator does material accounting based on some declared values for feed materials; destructive chemical analyses for mixed oxides; and NDA measurements for U metals, recyclable scraps, and disposable waste streams. The IAEA verification is preceded by a shutdown and cleanout of the bulk handling area and all the fuel material to be verified should be stored in storage KMPs. The facility closes material balances once every three months and plans to have the IAEA inspections coincide with this schedule for plant shutdown, cleanout, and material balance closing.

Material accountancy requires quantitative knowledge of the material, 1) present in the material balance area at the beginning and ending of the accountancy period and, 2) transferred into and out of the area during the period. Concrete results require characterization of the process operations and related material flows. It is also necessary to characterize the accounting system, facility measurement procedures, and related uncertainties.

Inventory for the bulk-handling area and their measurement methods assumed in this study are shown in Table 2. The destructive assay (DA) and Non-Destructive Assay (NDA) measurements for plutonium concentration are used on a batch basis. Their measurement uncertainties are referred to ITV (International Target Value) 2000 recommended by IAEA [2].

4. Results

The MUF is defined as the difference between the measured inventory and what is expected to be in the inventory based on the previous inventory and measured flows into and out of the process. The MUF SD can be calculated from general error propagation theory. The probability of detecting the loss of a given quantity of material, which is associated with MUF SD, depends on the measurement and sampling uncertainty. The IAEA detection goal for Pu is to detect a loss of one SQ (Significant Quantity) with 95% detection probability and a 5% false alarm probability. To achieve this goal, σ_{MUF} must satisfy $3.3\sigma_{MUF} < 8kgPu$, $\sigma_{MUF} < 2.424kgPu$.

From the MUF SD analysis, it was indicated that the σ_{MUF} of the reference case is 1.29kg of plutonium. This means that our reference facility can meet the typical IAEA detection goals because the MUF standard deviation is much less than the IAEA limit. From the results of the sensitivity analysis, as shown in Fig. 2 and Fig. 3, we found out that the facility throughput and material balance period are directly proportional to total facility MUF. These figures also shows that break-even values to meet the IAEA target goal for capacity and MB period are about 57 MTHM and 5.7 months, respectively.

At this research stage, most of the process data cannot be clearly defined. Therefore, a preliminary conceptual design to examine the safeguardability of the ACP facility is based on the open literatures for a similar process. Some modifications will be needed as more reliable information on the technical parameters becomes available.

References

- [1] C.S.Seo et. al., "A Study on the Electrolytic Reduction of Uranium Oxide in a LiCl-Li2O Molten Salt", Korean Nuclear Society Spring Meeting, Gyeong Ju, May 2003.
- [2] Aigner, H., et al. (2001), International Target Values 2000 for Measurement Uncertainties in Safeguarding Nuclear Materials, STR-327, IAEA.

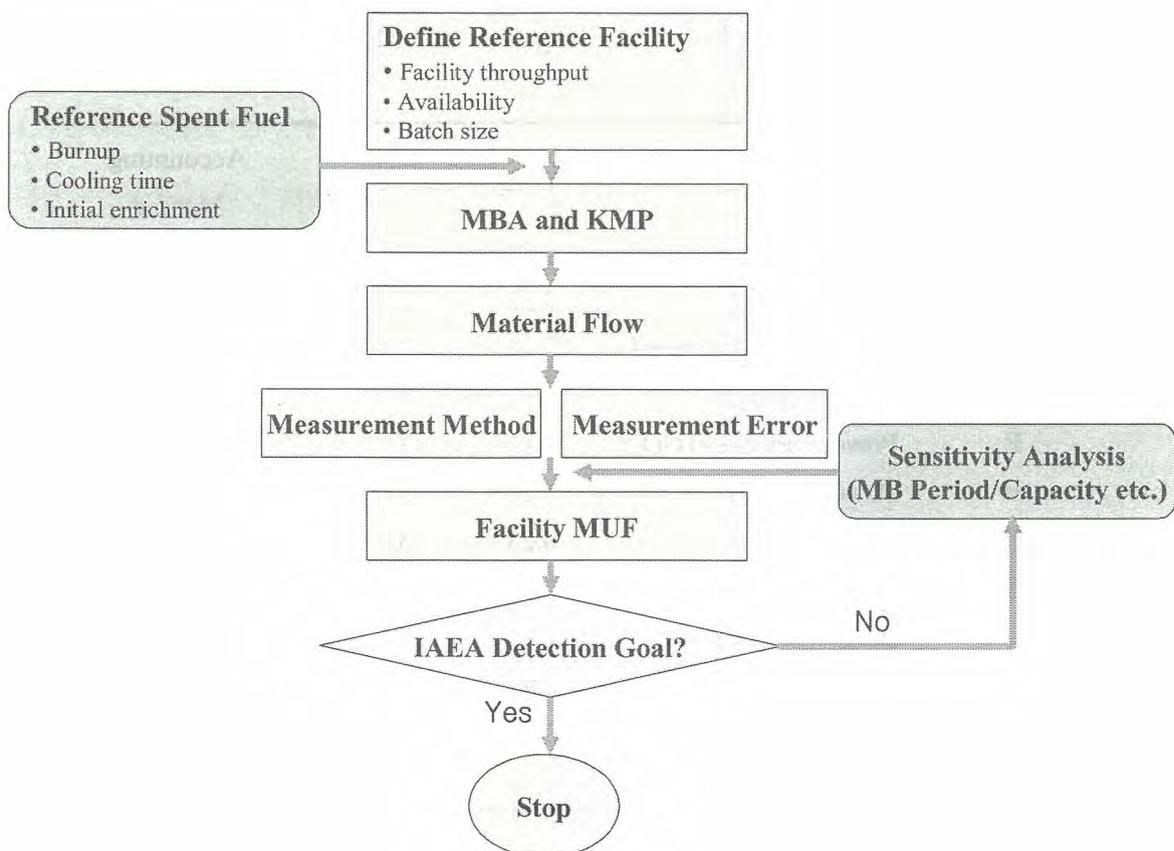


Fig. 1. Approach for Safeguardability Analysis

Table 1 Basic Specifications of Pilot Scale ACP Facility

Target fuel	Korean Yong-Gwang Unit 1 & 2's 17x17 standard PWR spent fuel assemblies with a minimum of 10 years of cooling time after discharge from the reactor.
Facility throughput	30 MTHM/y (approximately 0.45 MT-Pu/y)
Facility availability	60% plant production availability (i.e., equivalent 220 full operating calendar days/year)
Impurities in product	2 wt% of products (low decontamination product)
Main process of the facility	Electrolytic reduction process (reduction rate: 99.8% for all actinides)

Table 2 Inventory for the Bulk-Handling Area and Measurement Methods

Inventory KMP	Material Form	Pu(kg)	No. of Item	Accounting Method
A	Fuel Rods	0.91	60	Burnup, NDA
B	Powder (UO ₂)	0.23	2	DA + weight
C	Cladding hull material	0.11	1	NDA
D	Powder (UO ₂)	0.91	5	DA + weight
E	Powder residues (UO ₂)	0.11	1	DA + weight
F	Powder (U ₃ O ₈)	0.91	5	DA + weight
G	Salt waste	0.23	5	NDA
H	U ingot	0.91	5	NDA
I	Magnesia filter waste	0.11	1	NDA
J	U metal	0.91	5	NDA
K	Dirty metal scrap	0.23	2	NDA
Total		4.30	92	

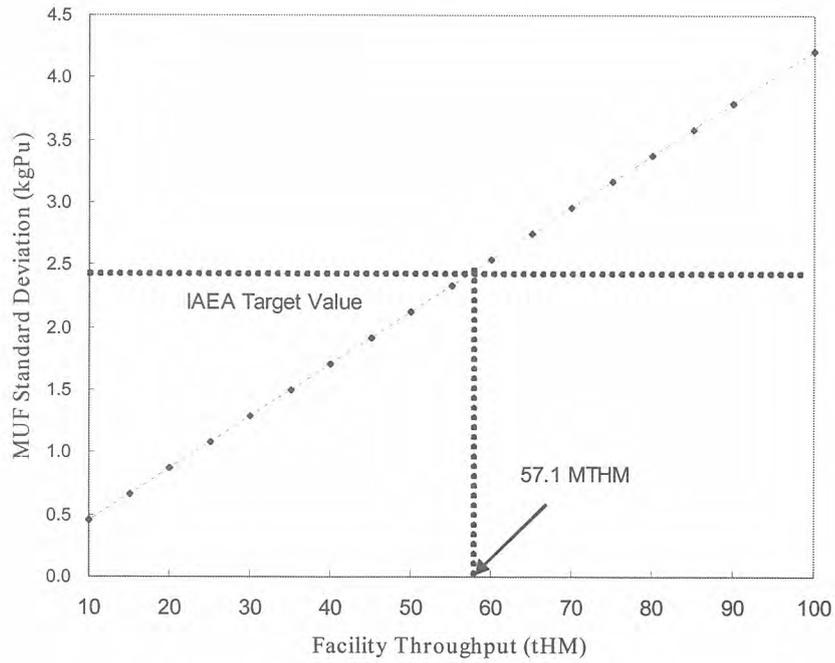


Fig. 2. Sensitivity Analysis for Facility Throughput
(batch size of 100kgHM, MB period of 3 months)

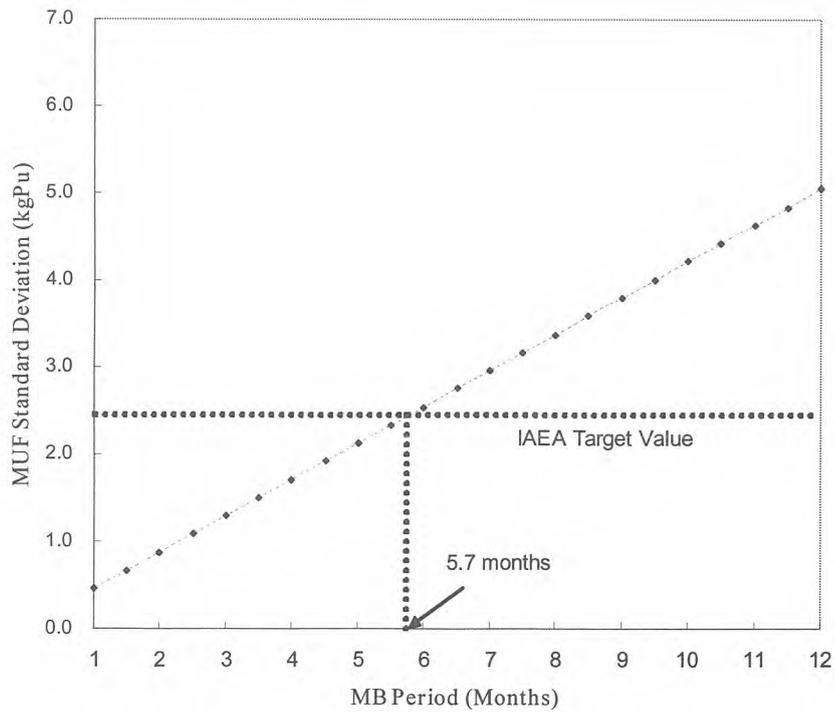


Fig. 3. Sensitivity Analysis for MB Period
(batch size of 100kgHM, throughput of 30 MTHM)

DUPIC 시설의 지능형 핵물질 감시시스템

Intelligent Nuclear Material Surveillance System for DUPIC Facility

송대용, 이상윤, 하장호, 고원일, 김호동
한국원자력연구소

요 약

DUPIC 핵연료 제조시설은 PWR 사용후핵연료를 건식 재가공하여 CANDU 형 핵연료를 제조하는 시설이다. DUPIC 시설과 같이 사용후핵연료를 취급하는 시설에서 핵물질 안전조치를 위해 적용되는 연속 무인 감시시스템은 많은 양의 영상 및 방사선 감시 데이터를 생산하게 되며, 이러한 자료로부터 핵물질의 전용 여부를 분석하기 위해서는 상당한 시간과 인력이 소요된다. 따라서 핵물질 취급시설에서의 감시시스템은 시설로부터 취득한 감시 데이터를 자동적으로 검토·분석하여 비정상적인 상황을 추출해 낼 수 있는 기능이 요구된다. 이 연구에서는 이러한 관점에서 영상 및 방사선 데이터를 자동 분석할 수 있는 신경망을 이용한 지능형 핵물질 감시시스템을 개발하였다. DUPIC 시설의 안전조치를 위해 개발한 동 핵물질 감시시스템은 수차례의 성능 시험을 거쳐, 현재 시설에 설치되어 정상적으로 운영 중에 있다.

Abstract

DUPIC Fuel Development Facility(DFDF) is the facility to fabricate CANDU-type fuel from spent PWR fuel material without any separation of fissile elements and fission products. Unattended continuous surveillance systems for safeguards of nuclear facility result in large amounts of image and radiation data, which require much time and effort to inspect. Therefore, it is necessary to develop system that automatically pinpoints and diagnoses the anomalies from data. In this regards, this paper presents a novel concept of the continuous surveillance system that integrates visual image and radiation data by the use of neural networks. This surveillance system is operating for safeguards of the DFDF in KAERI.

1. 서 론

경·중수로 연계 핵연료주기(DUPIC) 연구개발 사업은 국내 경수로에서 발생되고 있는 사용후연료를 재가공하여 중수로에서 재사용할 수 있는 CANDU 형 핵연료를 개발하기 위한 핵연료 주기 연구사업이다. 이 연구 사업은 한국원자력연구소의 조사재시험시설(IMEF)내 여러 핫셀중에서 M6 핫셀만을 따로 구분한 DUPIC 핵연료 제조시설(DUPIC Fuel Development Facility; DFDF)에서 수행되고 있다.

DUPIC 시설과 같이 핵물질을 취급하는 시설에서의 핵물질 안전조치(핵물질 계량관리 및 격납 및 감시 등)는 매우 중요한 의미가 있다. 즉 시설 차원에서 스스로 핵물질의 보유, 취급 및 이동

등 제반 활동에 대한 기록을 정확하고 철저하게 관리하여 대외적인 신뢰도를 제고하고, 이를 통해 국가의 원자력 활동에 대한 제약요인을 최소화하여 원자력 기술의 자립 기반을 조성할 수 있기 때문이다. DUPIC 시설의 핵물질 감시시스템의 개발도 DUPIC 핵연료 연구개발 활동이 보다 원활히 이루어질 수 있도록 핵 투명성의 확보 및 대외 신뢰도를 제고하는 데에 그 목적이 있다.

일반적으로 DUPIC 시설과 같은 핵물질 취급시설의 안전조치를 위해 적용되는 연속 무인 감시시스템은 많은 양의 영상 및 방사선 감시 데이터를 생산하게 되며, 이러한 자료로부터 핵물질의 전용 여부를 분석하기 위해서는 상당한 시간과 인력이 소요된다. 따라서 핵물질 감시시스템은 시설로부터 취득한 감시 데이터를 자동적으로 검토·분석하여 비정상적인 상황(또는 핵물질 전용 상황)을 추출해 낼 수 있는 기능을 가지고 있어야 한다[5,6].

이와 같은 요구에 부응하기 위해 한국원자력연구소에서는 DUPIC 시설의 핵물질 거동을 감시하기 위해 핵물질이 이동 가능한 모든 경로에 중성자 모니터(DUPIC Safeguards Neutron Monitor; DSNM)와 CCD 카메라를 설치하고, 이들로부터 실시간으로 방사선 데이터와 영상 데이터를 취득하고, 이를 검토, 분석하여 핵물질의 거동을 진단할 수 있는 지능형 핵물질 감시시스템을 구축하여 운영하고 있다.

2. DUPIC 시설의 감시시스템 구성

2.1 핵물질 감시시스템의 구성

핵물질 감시시스템의 대상 시설인, DFDF에는 핵물질의 출입이 가능한 2개의 경로, 즉 모든 핵물질의 반입 및 반출이 이루어지는 출입구(rear door)와 폐기물의 반출을 위한 출구가 있다. 이들 출입구로의 접근을 감시하기 위해 카메라를 설치하고, 핵물질의 출입을 확인하기 위해 중성자 모니터를 설치하였다. 중성자 모니터는 DUPIC 핵물질인 사용후핵연료에서 방출되는 중성자를 검출하여 핵물질의 움직임을 감시하는 장비이다.

핵물질 감시시스템의 구성은 그림 1에 제시된 바와 같으며, 3대의 CCD 카메라와 2대의 중성자 모니터 및 DAQ 서버 시스템으로 구성되어 있다. 중성자 계측장비(DSNC)는 DUPIC 핵연료 제조시설의 핵물질 계량관리에 사용되는 장비로서 감시시스템에서도 데이터를 취득하고 있다[1].

영상 및 방사선 신호는 PC를 기반으로 한 데이터 취득장비(DAQ)에 의해 CCD 카메라 및 DSNM으로부터 실시간으로 동시에(time-synchronized) 취득되고, 취득된 데이터는 소프트웨어에 의해 처리되어 핵물질의 움직임을 자동으로 진단한다[2].

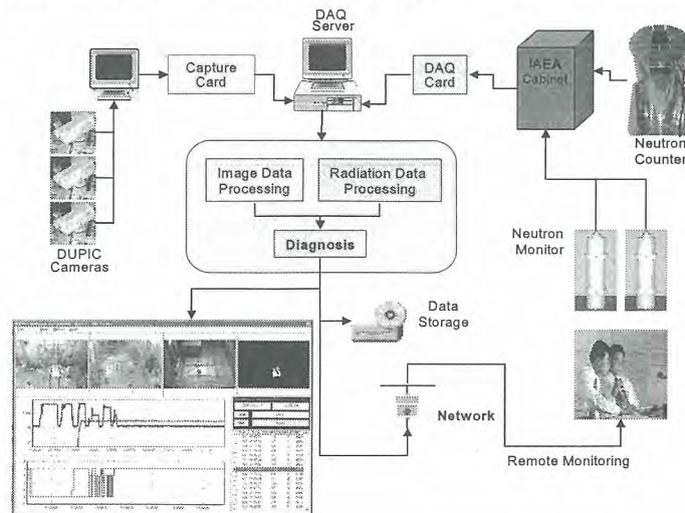


그림 1. 핵물질 감시 시스템의 구성도.

2.2 소프트웨어의 구성

감시시스템의 소프트웨어는 Windows XP를 기반으로 개발하였으며, 프로그램은 Borland C++ Builder를 이용하여 개발하였다. 시스템의 주 화면은 그림 2와 같으며, DSNM의 데이터를 그래프로 그려 보여주는 창, 현재 영상을 보여주는 창, 데이터의 값을 보여주는 창, 핵물질 거동진단을 보여주는 창과 그래프 등으로 구성되어 있다[3,4].

감시시스템 서버의 구성은 크게 “DAQ”와 “Review” mode로 구분될 수 있으며, 주 메뉴에서의 “New” 및 “Open”이 여기에 해당된다. “DAQ”와 “Review”는 내부적으로는 거의 동일하며, 차이점은 DAQ는 데이터를 하드웨어로부터 직접 취득, 진단, 저장하는 반면, Review는 데이터를 저장된 파일로부터 읽어 들인다는 점이다. 또한, “Review” mode에서는 단순히 데이터를 점검하는 mode와 인공지능망의 학습 자료 생성을 위한 data extraction mode로 선택할 수 있도록 하였다.

기능적인 관점에서의 시스템 구성은 사용자 인터페이스, 원격제어처리, 데이터취득, 데이터 처리, 판단부로 나눌 수 있다. 데이터의 취득은 DAQ카드 및 영상보드를 제어해 방사선데이터 및 영상데이터를 취득하는 곳이다. 데이터처리부는 영상데이터를 분석하여 움직임이 있는 영역을 찾아내고 방사선데이터를 분석하여 방사능의 변화를 알아낸다. 마지막으로 판단부는 인공지능망 등을 사용하여 거동진단을 하고 데이터의 저장, 원격감시자에게 통보, 자체 사운드를 사용한 경고 등의 판단을 하게 된다. 원격제어처리부는 인터넷을 통해 원격감시 및 DAQ서버의 원격제어를 할 수 있도록 하며, 이러한 각각의 모듈별 기능에서 데이터처리 모듈 및 진단 모듈이 감시시스템에서 가장 핵심적인 부분이다.

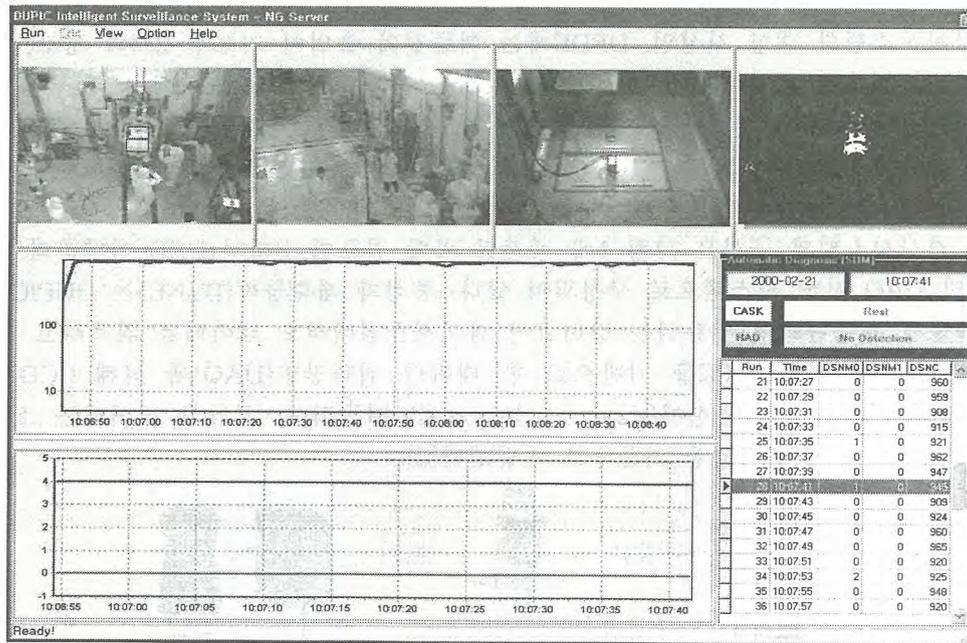


그림 2. 핵물질 감시 시스템의 주화면.

3. 핵물질의 거동 진단

3.1 방사선 데이터 분석 및 핵물질 거동 진단

핵물질 감시시스템의 목적은 핵물질 제조 공정에 전혀 영향을 주지 않으면서 실시간으로 핵물질의 거동을 감시하는 것이다. 이러한 상황에서는 핵물질의 종류를 알아내거나 성분을 분석하는 것은 거의 불가능하므로, 이 연구에서는 핵물질의 양과 위치의 변화만을 고려하였다.

자동으로 핵물질의 거동을 진단하기 위해서는 방사선 데이터의 시간 변화율을 분석하면 된다. 즉, 검출되는 방사선의 수가 "0" 이라면 핵물질이 없는 것이고, 그 변화율이 0에 가깝다면 핵물질이 정지한 상태이고, 변화율이 "+" 값이라면 중성자 모니터 쪽으로 핵물질이 이동하고 있는 상태이며, "-" 이면 모니터로부터 멀어지는 방향으로 이동하는 것이다. 이 연구에서는 방사선 데이터의 시간변화를 알기 위해 최근 5개의 데이터로부터 그 기울기를 계산하도록 하였다.

3.2 영상데이터 분석 및 핵물질 운반용기의 거동진단

핵물질 감시 시스템에서의 영상처리는 다른 과정에 비해 처리시간이 비교적 많이 소요되며, 능형 거동 진단 기능의 구현을 위해서도 중요한 단계이다. 방사선 데이터는 핵물질 자체의 거동을 진단하는 반면, 카메라로부터 캡처된 영상은 분석된 후, cask로 추측되는 Object의 위치가 추출되고 그로부터 Object의 이동상황을 진단한다.

영상분석의 첫 과정은 기본영상과의 비교이다. 영상 취득은 매 10초에 한번씩 3대의 카메라에서 획득된 영상을 메모리에 저장한 후 이를 이전의 영상과 비교하며, 영상의 변화가 설정된 수준 이상인 경우 파일로 저장하고 그렇지 않은 경우는 버려진다. 영상의 저장 단계와 검토(review) 단계는 분리되어 있으며, 신경망에 의한 거동진단은 데이터 취득(DAQ)과 검토(review) 단계에서 시행될 수 있다. 따라서 review 단계에서 나타나는 영상들은 특정한 영역에서 일정한 수준 이상의 변화가 진행 중인 상태이므로, 이 영상에서 cask의 위치를 추출하게 된다. DUPIC 핵물질 감시시스템에서 사용하는 영상은 640×480 픽셀의 크기이고 24bit 이다.

영상처리 루틴은 기본 영상의 gray scale을 설정하고 현재 영상과 비교해서 object를 추출하는 대신, 현재 취득되는 영상에서 cask의 이진 영상을 직접 추출하기 위해 RGB 임계값을 적용하였다. 현재 DFDF의 정상적인 조명 상태 하에서의 cask의 RGB 값은 그림 3과 같은 분포를 가지며, 이 값을 적용하면 획득된 영상에서의 cask object를 거의 완벽히 추출할 수 있다(그림 4). 또한, Bitmap image로부터 특정한 RGB 임계값을 적용하기 위해 한 픽셀이 0-255의 값을 갖는 8-bit gray Bitmap으로 변환하여 사용하도록 하였다[4].

이와 같이 영상처리 루틴을 구성함으로써 부적절한 object에 대한 cask 오인 오류는 거의 나타나지 않게 되었다. 다만, 현재의 RGB 임계값 적용 기법은 시설의 정상적인 조명 상태에 한해 적용 가능하며, 조명이 상실되는 경우에 대한 보완 대책이 요구된다.

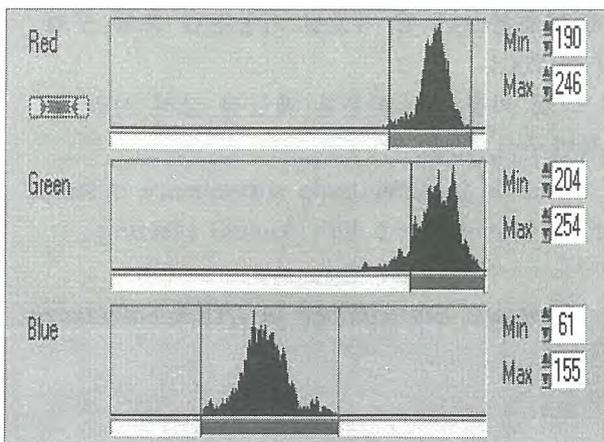


그림 3. Cask의 RGB 분포.

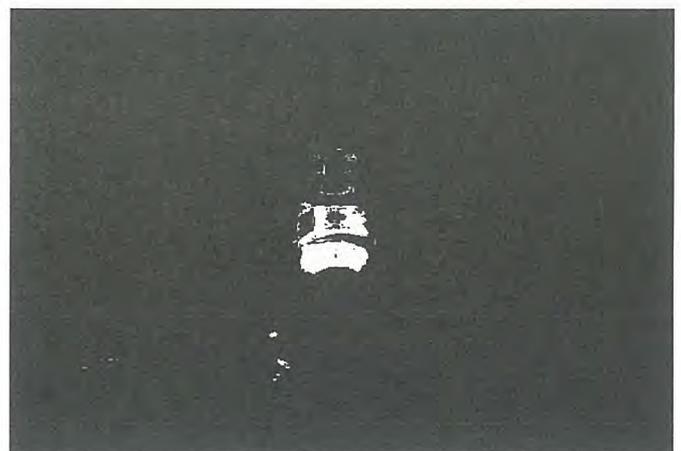


그림 4. RGB 임계 값에 의한 cask 이진 영상.

4. 결론 및 향후계획

DUPIC 시설의 안전조치를 위해 개발한 핵물질 감시시스템은 수 차례의 성능 시험을 거쳐, 시설에 설치되어 정상적으로 운영 중에 있다. 동 시스템에서 방사선데이터를 이용한 핵물질 거동진단은 핵물질의 양 또는 위치 변화만을 고려하였고, 영상 데이터를 이용한 수송용기의 거동진단은 영상을 분석하여 수송용기(cask)로 추측되는 Object의 위치를 추출하고 그로부터 Object의 이동상황을 진단하도록 하였다. 영상으로부터 cask를 직접 추출하기 위해 RGB 임계값을 적용하였다. 이러한 RGB 임계값 적용 기법은 정상적인 조명 상태에 한해 적용이 가능하다.

한국원자력연구소에서는 국내의 독자 기술로 개발된 이 시스템을 IAEA의 설계기준에 적합하면서 일반적인 원자력 시설에도 적용 가능한 차세대 지능형 연속 무인감시시스템으로 개발하기 위한 연구를 진행하고 있다. 그러나, 이와 같은 연구목적을 달성되기 위해, 동 시스템에서 해결해야 할 몇 가지 문제점이 있다.

우선, 이 시스템에서는 영상 데이터 분석을 통한 핵물질 수송용기의 거동진단을 위해 RGB 임계값을 이용하고 있으나, 이는 정상적인 조명상태에 한해 적용 가능하며, 조명이 흐리거나 상실될 경우의 오진 가능성에 대한 보완이 필요하다. 또한, 현재의 시스템은 내부 통신망을 이용한 원격 감시 기능이 구현되어 있으나 인터넷을 이용한 원격감시 체계를 구축하기 위해서는 자료 전송 보안 문제 등을 해결해야 한다. 따라서 향후 연구에서는 이들 문제점을 해결하기 위한 연구를 추가로 수행할 계획이다.

후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 중장기계획사업의 일환으로 수행되었음.

참 고 문 헌

- [1] 김호동 외 15인, 「DUPIC 핵물질 안전조치 기술개발」, 한국원자력연구소, KAERI/RR-2231/2001, 2002.
- [2] 김동영 외, DUPIC 시설 감시시스템 설치 및 성능검사, KAERI/TR-1617/00, 한국원자력연구소, 2000.
- [3] 이상윤, 송대용 외 3인 「컴포넌트 객체 모델에 기초한 지능형 핵물질 거동진단 모듈 구현 기술」, KAERI/TR-2560/2003, 한국원자력연구소, 2003.
- [4] 이상윤, 송대용 외 3인 「디지털 영상 캡처 카드 및 카운터를 이용한 핵물질 감시 시스템 구현 기술」, KAERI/TR-2552/2003, 한국원자력연구소, 2003.
- [5] Ondrik, M., S. Kadner, and J. Backes, "New demands in safeguards surveillance system," Proceedings of the Institute of Nuclear Materials Management 40th Annual Meeting, Phoenix, Arizona USA, 1999.
- [6] Shea, T. and Tolchenkov, D., *Role of Containment and Surveillance in IAEA Safeguards*, IAEA-SM-231/110, IAEA, Vienna., 1978.

차세대관리 종합공정 실증시설의 구조해석

Structural Analysis of Advanced Spent Fuel Conditioning Process Facility

구정희, 정원명, 조일제, 국동학, 유길성
한국원자력연구소

요 약

원자력발전소 운전과 함께 국내 원전에서 계속 발생, 저장하고 있는 사용후핵연료를 안전하고도 효율적으로 관리하기 위하여 차세대관리 종합공정을 개발하고 있으며, 이를 실증하기 위한 시설을 설계 중에 있다. 이 실증시설은 조사재시험시설에 마련된 예비 핫셀을 차세대관리 종합공정의 특성을 고려하여 개조하여 사용할 예정이다. 이 연구에서는 실증시설에 대한 기존 시설 및 부대시설의 개조방안 등 기본 건축구조 설계에 대한 기준과 설계내용을 제시하였으며, 건축구조물의 안전성을 입증하기 위한 해석을 수행하고 그 결과를 제시하였다. 본 연구결과는 차세대관리 종합공정 실증시설의 상세설계를 위한 자료로 사용될 것이며, 시설의 인허가를 위한 자료로 활용될 것이다.

Abstract

An advanced spent fuel conditioning process (ACP) is developing for the safe and effective management of spent fuels which arising from the domestic nuclear power plants. And its demonstration facility is under design. This facility will be prepared by modifying IMEF's reserve hot cell facility which reserved for future usage by considering the characteristics of ACP. This study presents a basic structural architecture design and analysis results of ACP hot cell including modification of the IMEF. The results of this study will be used for the detail design of ACP demonstration facility, and utilized as basic data for the licensing of the ACP facility.

1. 서 론

고리 원자력발전소의 가동 이래 현재 국내에는 16기의 원자력발전소가 가동중에 있으며, 이들 원자력발전소에서는 사용후핵연료가 필수적으로 발생하게 된다. 현재 국내 원자력발전에 있어서 발전용량문제뿐만 아니라 계속 발생되고 있는 사용후핵연료의 안전한 관리와 저장이 심각한 상태에 있다. 특히 아직까지 부지를 확보하지 못해 중저준위 폐기물을 비롯한 고준위 폐기물을 저장할 폐기물 처분장과 사용후핵연료를 저장할 수 있는 중간저장시설 등을 확보하지 못하고 있는 실정이다. 이에 따라 지금까지 사용후핵연료의 저장은 국내 원자력발전소의 호기간 이송·저장, 조밀저

장랙(high density rack) 설치, 또는 발전소 사이트 내에 콘크리트 사일로(concrete silo) 등 건식 저장시설 건설 등의 임시적 방편으로 해결하고 있으나, 사용후핵연료의 저장 및 처분장의 확보는 시급히 해결되어야만 한다.

차세대관리 종합공정(ACP: Advanced spent fuel conditioning process)은 사용후핵연료를 안전하고도 효율적으로 관리하기 위하여 개발된 공정으로, 이 공정에서는 사용후핵연료를 금속전환체로 전환하고, Cs, Sr 등의 고발열성 핵종을 효율적으로 제거하여 사용후핵연료의 부피와 발열량 및 방사선량을 최대 1/4까지 감소시키고, 처분용기의 소요량과 처분장의 소요면적을 1/2 이상 축소함으로써 안전성과 경제성을 높이는 획기적인 방법이다. 또한, 핵확산 관련 저항성이 높은 환경친화적 기술로서 미래지향적인 건식 핵연료주기 기술에 중추적인 역할을 하는 기술로 관련된 많은 연구개발이 진행중이다[1,2].

차세대관리 종합공정의 실증을 위한 실증시설을 설계 중에 있다. 차세대관리 종합공정에서는 방사선준위가 매우 높은 사용후핵연료를 고온의 조건에서 LiCl 용융염 매질 하에서 취급하게 되므로, 실증시설은 기존의 핫셀 보다는 더욱 더 높은 기밀성을 유지하여야 하며, 일부 공정에는 Ar등 엄격한 불활성 분위기를 만족시켜야만 한다. 따라서 차세대관리 종합공정 실증 시설에는 a-v type의 핫셀이 필요하다. 그러나 신규 시설의 확보에는 많은 재원과 인력, 시간 등이 소요되므로 실증시설은 기존의 시설을 활용하여 공정의 특성 및 용도에 맞게 개조하는 방안을 선택하였다.

본 연구에서는 차세대관리 종합공정 실증시설의 용도에 맞도록 기존의 IMEF 시설에 마련된 예비 핫셀을 개조하고, 보완하며, 시설의 안전성을 유지하면서도 효율적인 실증시험을 수행할 수 있도록 건축구조의 개념을 세운 후에 구체적 시공방안을 검토하고, 구조적 안전성을 검토하였다. 본 연구에서 얻어진 자료는 실증시설의 상세설계를 위한 자료와 시설 및 공정의 인허가에 필수적인 안전성분석의 기초자료로 활용될 것이다. 본 연구에서는 차세대관리 종합공정의 기본개념만 제시하고 공정특성, 공정장치의 설치 및 구성 등 공정에 관련된 부분에 대해서는 취급하지 않았으며, 주로 실증시설의 건축구조의 설계개념과 구조적 건전성 평가부분에 대해서 다루었다.

2. 실증시설의 설계기준

2.1 실증시설의 설계기준 및 취급물질 규모

차세대관리 종합공정(ACP) 실증시설에서는 공정데이터의 신뢰성과 상용화 및 시설의 여건 등을 고려하여 사용후핵연료 20 kg-HM/batch를 처리하도록 취급물질 규모를 설정하였다. 따라서 공정장치 및 공정에 필요한 부대시설의 규모 또한 이 취급물질 규모를 기준으로 설계하였다. ACP 핫셀은 절단 핵연료를 반입하고, 공정을 수행하기 위한 공정셀(process cell)과 in-cell crane이나 공정기기 등의 유지보수에 사용하기 위한 유지보수셀(maintenance cell)로 구성되는데, Table 1과 같은 설계기준을 적용하였다.

실증시설에서는 1 batch에 10개의 핵연료봉을 사용하게 되는데 PWR 사용후핵연료봉 1개의 우라늄 질량이 1 kg이므로 연료봉을 25 cm 길이로 절단하여 Padirac 수송용기에 담아 취급하게 되므로 20 cm 길이의 절단 사용후핵연료 봉(rod cut) 160개를 1 batch에 사용하게 된다. 이 공정에서 사용할 기준 사용후핵연료는 연소도 43,000 MWD/MTU, U-235 농축도 3.5 wt%, 냉각기간 10년으로서 총방사능량이 9,950 Ci이다[2].

2.2 실증시설의 구조설계

차세대관리 종합공정 실증시설에서는 Fig. 1과 같이 기존 IMEF 시설의 예비 핫셀을 개조·보완하는 개념으로 설계를 하는 개념을 적용하였다. 따라서 IMEF 시설의 예비 핫셀의 기본구조 및

여건을 활용하고, 차세대관리 종합공정의 특성에 맞도록 방사선 차폐기능 등 성능을 보완하도록 하였으며, 기존의 IMEF 시설의 설계에 적용했던 설계기준을 그대로 적용하였다[3-5]. 또한 건축 구조의 설계에 있어서 기존 콘크리트 구조물의 구조적 강도가 약화되지 않도록 하여 기존 SAR의 내용을 유지토록 하였다.

IMEF 시설은 조사재시험을 수행하는 핫셀 구조물 및 주변 건축구조물로 이루어져 있으며, 핫셀구역은 서비스 구역과 운전구역으로 구분되어 있다. 이 건물은 내진범주 1급 콘크리트 구조물로서 구조물을 비롯하여 각종 계통 및 부품은 안전정지지진(SSE: safe shutdown earthquake), 설계 기준지진(DBE: design base earthquake) 및 부지설계지진(SDE: site design earthquake) 및 기타 부하에서도 그 기능이 손상되지 않도록 설계되었다. 이 건물의 구조물, 계통 및 부품은 안전등급, 내진등급 및 품질등급 등의 분류기준에 따라 Table 2와 같이 분류된다. 원자력시설의 안전등급은 SC(Safety Class), NNS(Non Nuclear Safety), NA(Non Application) 등으로 구분된다. SC는 원자로와 같이 어떠한 경우에도 설계된 개념 그대로의 안전성이 유지되어야만 하는 시설로 원자로 및 원자로 1차 계통 설비에만 적용되고 있으며, 핵주기 시설에는 사용후핵연료를 직접 취급하는 시설 외에는 적용되지 않는다. NNS는 ANSI 안전등급 분류기준에 의한 구조 및 설비로서 고장이 발생하더라도 규정된 사고시 작업 종사자 및 주민에 대한 최대허용피폭선량을 초과하지 않으나 방사성물질을 함유한 경우이며, NA는 안전등급 분류기준을 적용할 수 없는 대상으로 별도의 산업 규격 또는 표준을 적용한다.

차세대관리 종합공정 실증시설의 차폐설계에는 1 batch의 사용후핵연료(20 kg-HM)의 방사능량 9,930 Ci외에도 핵분열생성물 5 batch와 폐용융염 2 batch를 함께 고려하여 총 방사능량을 22,830 Ci로 가정하였다. 따라서 새로 신설되는 전면 차폐벽은 900 mm의 두께를 갖는 중콘크리트(heavy concrete)로 차폐벽을 구성하였으며, 후면에는 기존에 설치된 800 mm 두께의 일반콘크리트 벽에 두께 300 mm의 중콘크리트로 차폐를 보강하였으며, 기타 부분에는 내부에 80 mm 두께의 납차폐체로 차폐를 보강하였다.

ACP 핫셀에서는 차폐 및 구조적 강도를 유지하도록 기존의 콘크리트 벽에 anchor bolt를 시공한 후 중콘크리트(heavy concrete)를 시공하여 기존의 벽과 보강되는 차폐벽간의 결합성을 높였다. 또한 내부에 보강되는 납 차폐블록을 고정하는 라이닝의 고정부도 차폐효율이 떨어지지 않고 지진하중 등에서도 구조적 건전성을 유지할 수 있도록 설계하였다.

ACP 핫셀은 Fig. 1과 같이 공정셀과 유지보수셀의 두 개의 셀로 나뉘어지는데 공정셀에는 4개의 납유리(lead glass)와 4조의 원격조종기(manipulator)가 설치되며, 유지보수셀에는 1개의 납유리와 1조의 원격조종기가 설치된다. Fig. 2는 ACP 핫셀의 차폐보강부의 접측면의 차폐 및 구조적 강도의 효율을 높이기 위해 chipping 및 anchoring 처리한 설계를 나타내며, Fig. 3에는 이들 중량 콘크리트 차폐보강벽의 철근 배근계획을 나타내고 있다.

3. 실증시설의 구조해석

본 연구에서 수행한 구조해석은 Fig. 1과 같이 상자형골조 전단벽 시스템(box frame shear wall system) 구조물인 IMEF 건물의 핫셀 구조물 가운데 일부 변경된 부분의 차폐벽 보강 설치에 따른 구조물의 건전성 평가를 위한 구조해석이다. 따라서, 구조해석시 각 기준은 기 적용된 기준으로 구조해석 하여 구조물의 건전성을 평가하였다[3-5].

3.1 설계하중

차세대관리 종합공정 실증시설의 구조해석에서는 시설의 정상가동 및 사고시 구조물에 작용하

는 자중 등의 고정하중(D: dead load), 활하중(L: live load), 풍하중(W: wind load) 및 지진하중(E&E': seismic load) 등을 적용한다.

고정하중(D)은 구조물 및 기기, 배관, 케이블 선반(cable tray)등의 자중을 포함하는 것으로 구조물에 장착된 기기에 대하여 기본적으로 배관이나 케이블 선반의 고정하중 $0.8t/m^2$ 을 가산하여 고려하였으며 Table 3과 같이 공정장치의 자중을 고려하였다. 활하중(L)은 사용후핵연료를 운반하는 Padirac cask 등 기타 이동 가능한 기기 및 구조물에 대한 하중을 해당 층에 대하여 적용하였다. 설계에 적용한 최소 활하중으로는 레일하중을 $0.01 t/m^2$ 으로 가정하였으며, 핫셀 작업구역은 $5.0 t/m^2$, 핫셀 서비스 구역은 $2.0 t/m^2$ 으로 가정하였다. 풍하중(W)은 실증시설이 IMEF 시설의 지하에 추가로 보완되는 것이기 때문에 바람의 영향이 전혀 없으므로 고려하지 않았다.

IMEF 시설은 내진 1등급 구조물로서 지진하중은 안전정지 지진하중(E')과 운전기준 지진하중(E)의 두 가지에 대하여 고려하였는데, 안전정지 지진하중(E')은 안전정지 지진(SSE: safe shutdown earthquake)에 의해서 발생하는 최대부지 가속도(maximum ground acceleration)를 의미하며 수평 방향으로 $0.2g$, 수직 방향으로 $0.13g$ 이다. 운전기준 지진하중(E)은 운전기준 지진(OBE: operation base earthquake)에 의해서 발생하는 최대부지 가속도를 의미하며 수평 방향으로 $0.1g$, 수직 방향으로 $0.067g$ 이다.

철근 콘크리트 구조물의 구조설계에서는 탄성설계시 요구되는 철구조물의 단면 강성 S를 사용하는 강도설계와 극한강 설계시 요구되는 철근 콘크리트 단면 강성 U를 사용하는 탄성설계로 구분하는데 이들은 Table 4와 같은 하중조합을 적용하며, 이들 하중조합 가운데 가장 큰 값을 사용한다. 여기서 E는 OBE에 의한 하중을 나타내며, E'는 SSE에 의한 하중을 나타낸다[6].

3.2 구조해석

차세대관리 종합공정 실증시설의 구조해석에서는 SAP2000 코드를 사용한 3차원 해석을 수행하였다. 구조해석모델은 Fig. 4와 같이 1,754개의 삼각형 및 사각형의 plate element, 9개의 beam element를 가지며, 총 1,629개의 절점(node)으로 구성하였다. Fig. 4는 ACP 핫셀을 포함한 IMEF 시설 전체에 대한 해석모델로서 그 내부에는 Fig. 5와 같이 ACP 핫셀을 부분적으로 모델링한 부분이 기존의 IMEF 모델에 추가로 삽입되어 있다.

시설의 출입문, 원격조정기나 납유리 등을 설치하는 벽면의 관통부 등의 벽면에 있는 관통부는 모델링에서 무시하고 모델을 단순화하였다. 그 대신에 벽면의 강도가 등가의 강도를 갖도록 요소의 두께를 조정하였으며, 벽면의 요소에 납유리와 원격조정기 등의 무게를 더하여 등가의 하중이 벽체에 전달되도록 하였다.

해석에 사용된 재료의 물성치로는 일반콘크리트는 $f_c = 240 kg/m^2$, 중콘크리트는 $f_c = 350 kg/m^2$ 로 하였고, 철근 가운데 주근과 배근 모두 $f_y = 4,000 kg/m^2$ 를 고려하였고, 구조용 강재의 경우 일반콘크리트는 $f_y = 2,400 kg/m^2$ 으로 고려하였다. 내진해석 방법은 응답 스펙트라해석(response spectra stress analysis)을 사용하였다.

구조해석결과 최대 벽체전단력 $V_{yy} = 39.1 ton/m$ 로 계산되었으며, 최대 벽체 축력 $F_{yy} = 431.4 ton/m$ 로 계산되어 벽체 전단력에 의한 영향보다는 벽체 축력이 훨씬 크게 발생함을 알 수 있으며, 최대 벽체 모멘트 $M_{yy} = 29.5 ton \cdot m/m$ 로 계산되었으며, 슬라브의 최대 모멘트 $M_{yy} = 22.6 ton \cdot m/m$ 로 계산되어 모멘트에 의한 영향을 거의 없는 것으로 판단되었다. Fig. 6~9는 각각 차세대 종합공정 실증시설 핫셀의 벽과 슬라브에 작용하는 전단력, 모멘트, 축력 등의 분포를 나타내고 있다.

Fig. 10은 내진해석 결과 ACP 핫셀을 포함한 IMEF 시설 전체에 발생하는 x-방향으로의 변위를 나타내는데 시설의 x-방향 최대변위는 $1.634e-1$ mm로 나타났으며, Fig. 11은 y-방향의 최대변위로서 최대값이 $6.97e-2$ mm으로 변위가 거의 발생하지 않는 것을 알 수 있다. Fig. 12, 13은 mode shape 해석 결과에서 mode-1과 mode-5의 결과를 보여주고 있다. Mode-1의 경우 $f_n = 5.318$ cycle/s로 계산되었고, 주기는 $T=0.1880$ s로 계산되었으며, Mode-5의 경우 $f_n = 9.618$ cycle/s로 계산되었고, 주기는 $T=0.10397$ s로 계산되었다. 변위해석 결과에서 보듯이 최대변위량이 0.16 mm로 거의 변형이 발생하지 않는 것을 알 수 있으며, Mode 해석결과 최대주기가 0.188 s로 강체구조물(rigid structure)의 기준인 $T \leq 0.3$ s로 IMEF 시설이 지진에 강한 구조물임을 알 수 있다[7].

이와 같이 해석결과 변위나 응력값이 작게 발생하는 이유는 Fig. 1에서 제시된 바와 같이 IMEF 시설 자체가 지진하중 등에 잘 견딜 수 있는 상자형골조 전단벽 시스템(box frame shear wall system) 구조물인데다가 차세대 종합공정 실증시설인 ACP 핫셀 자체가 IMEF 시설의 무게 중심의 하단부에 위치한 지하에 설치되기 때문에 전도모멘트나 지진하중 등에 안정성을 오히려 증가시키므로 건물의 구조적 안전성을 향상시키는 역할을 한다. 또한 압축강도가 240 kg/cm^2 인 일반콘크리트보다 압축강도가 350 kg/cm^2 으로 약 46%의 높은 압축강도를 갖는 중콘크리트 차폐벽이 기존의 IMEF 예비핫셀에 더해지게 되므로 구조적 강도는 더욱 증가하게 되는 것이다.

또한 IMEF 예비핫셀의 기본 콘크리트 벽면에 함께 설치되는 T-형 모양을 가진 중콘크리트 구조물은 anchored stud bolt를 설치하고 시공하여 anchor bolt의 전단강도를 이용하며, T-형 자체가 갖는 굽힘강성을 함께 이용하기 때문에 시설의 구조적 건전성 확보에 큰 도움이 되는 것으로 판단된다.

4. 결 론

차세대관리 종합공정 실증시설에 대한 설계요건을 확인하고, 기존의 IMEF 시설에 적용된 기술 기준과 규정에 따라 실시한 구조해석 결과 기존 벽체에 중콘크리트 구조물로 차폐를 보강하는 ACP 핫셀의 구조적 건전성이 유지됨을 알 수 있다. 특히, 원자력 관련 내진 1등급의 지진해석 결과 ACP 핫셀의 벽체 및 슬라브에 대한 부재의 구조적 안전성뿐만 아니라 기존 시설 전체에도 구조적 안전성을 함께 유지함을 알 수 있다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 주관으로 추진중인 원자력중장기사업의 일환으로 수행되었음.

참 고 문 헌

- [1] KAERI/RR-2128/2000, 사용후핵연료 차세대관리 공정개발, 2000.
- [2] KAERI/TR-2004/2002, 유길성의 8인, 차세대관리종합공정실증시설 설계요건서, 2002.
- [3] Dynamic and Static Analysis for IMEF Building (Doc. No. EF-E-2420-DC-H101, H102)
- [4] KAERI/TR-710/96, 하나로 안전성분석보고서, 제11장 조사재시험시설, 2000.
- [5] "Building code Requirements for Reinforced Concrete", ACI1318-83, 1983.
- [6] "Code Requirements for Nuclear Safety Related Concrete Structure", ACI349-80

[7] J. Ambrose and D. Vergun, "Simplified Building Design For Wind and Earthquake Forces", 2nd Ed, John Wiley & Sons.

Table 1. Design Requirements of ACP Hot Cell.

Item	Design Requirements
Hot Cell Type	α -v Cell, Sealing, Inner lining
Radiation Shielding	<ul style="list-style-type: none"> · 0.01 mSv/hr(1 mrem/hr) · 0.15 mSv/hr(15 mrem/hr)
Seismic Design	안전정지지진(SSE)에 대한 안전성 확보
Operation Condition	<ul style="list-style-type: none"> · Temperature: 25~35℃ · Pesssure: -27~30 mmAq
In-Cell Circumstance	<ul style="list-style-type: none"> · Air in Cell, Ar in some Equipments · One-through ventilation
Radiation Monitoring	Automatic door-lock of rear door if dose exceeds 2.5 mSv/hr
Process Material&Waste Handling	RD-15 Padirac transfer syetem

Table 2. Load Combinations of Steel Concrete Structure

Required Strength	Elastic Design
$U = 1.4D + 1.7L$	$S = D + L$
$U = 1.4D + 1.7L + 1.9E$	$S = D + L + W$
$U = 1.4D + 1.7L + 1.7W$	$S = D + L + E$
$U = D + L + E'$	$1.6S = D + L + E'$
$U = 1.4D + 1.7L + T$	$S = D + L + T$
$U = 1.4D + 1.7L + 1.9E + T$	$S = D + L + E + T$
$U = D + L + E' + T$	$1.6S = D + L + E' + T$

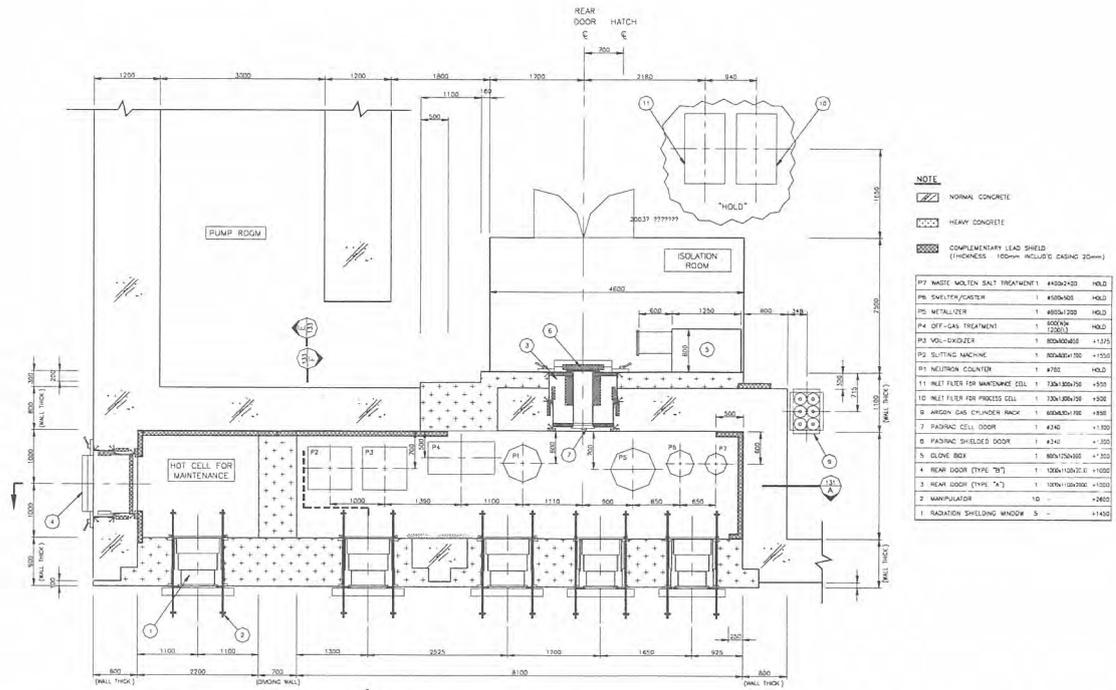


Fig. 1 Plan View and General Lay-out of Process Equipments of ACP Hot Cell.

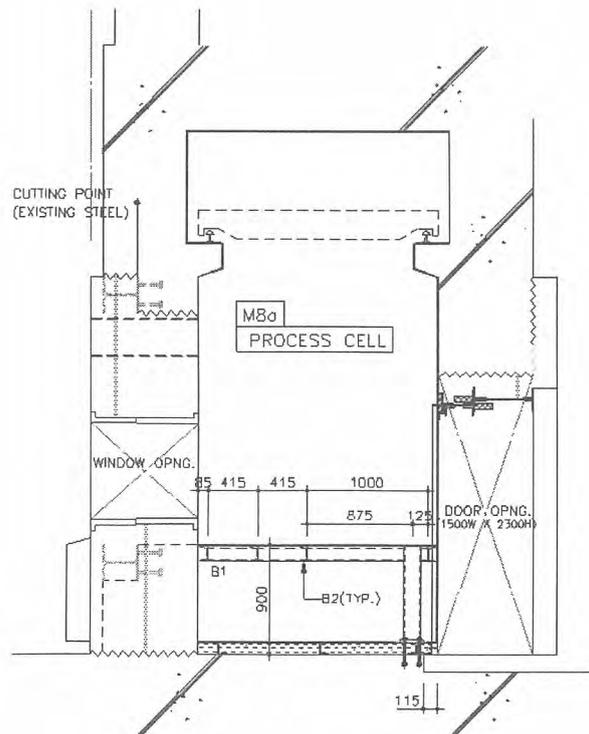


Fig. 2. Reinforcement of radiation shielding.

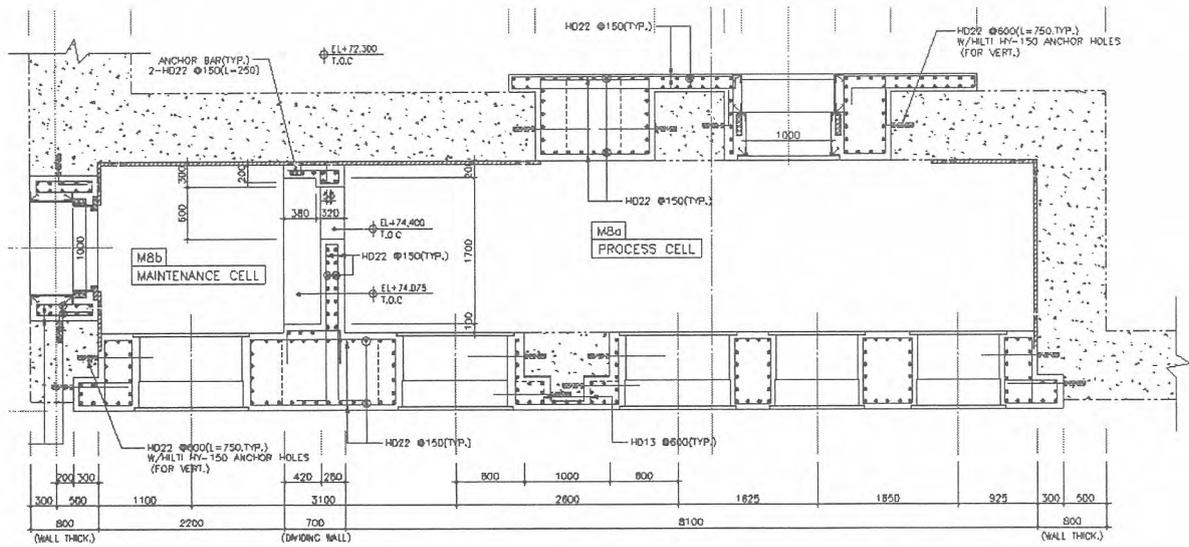


Fig. 3. Reinforcement of radiation shielding wall.

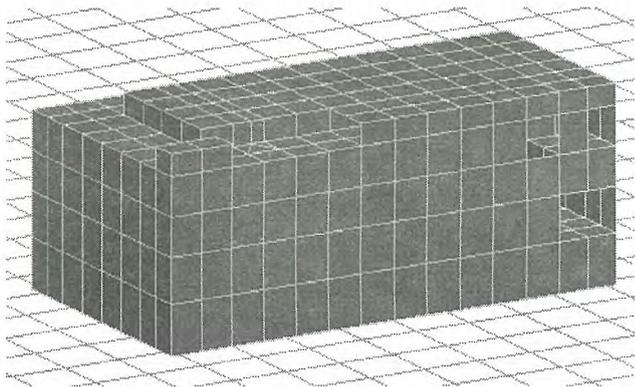


Fig. 4. Iso-View of IMEF 3D Model.

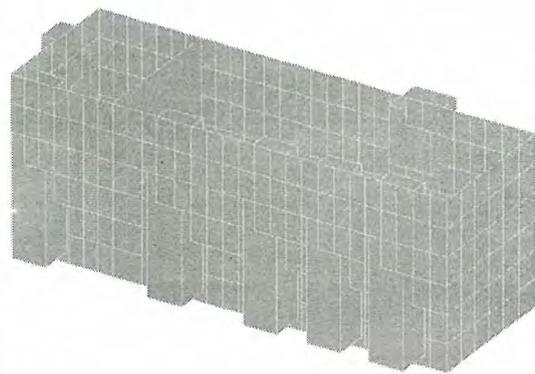


Fig. 5. Additional Model for ACP Hot Cell.

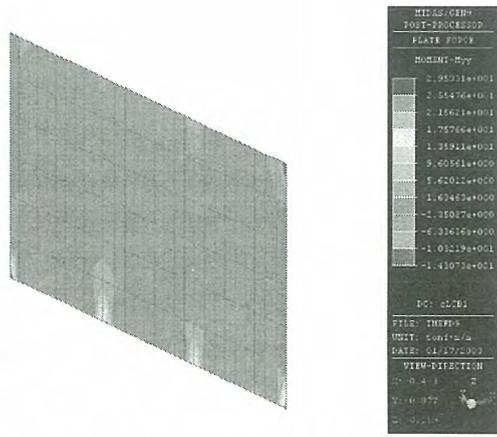


Fig. 6. Shear Force of ACP hot Cell Wall.

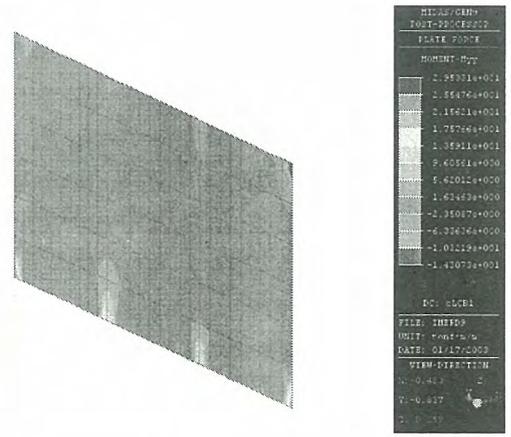


Fig. 7. Moment of ACP Hot Cell Wall.

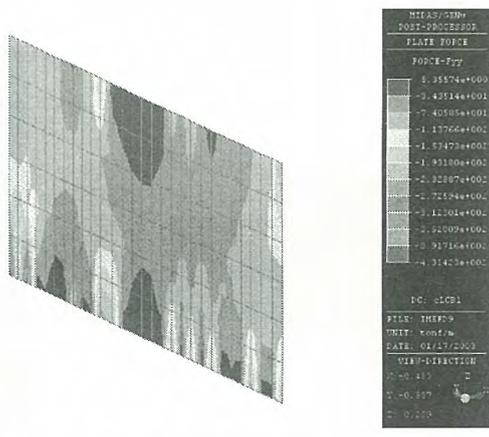


Fig. 8. Axial Force of ACP Hot Cell Wall.

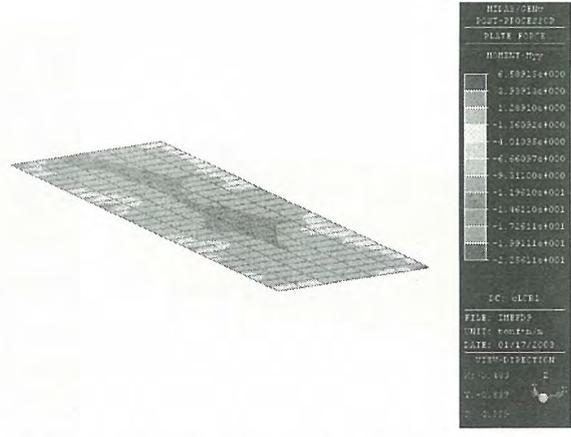


Fig. 9. Moment of ACP Hot Cell Slab.

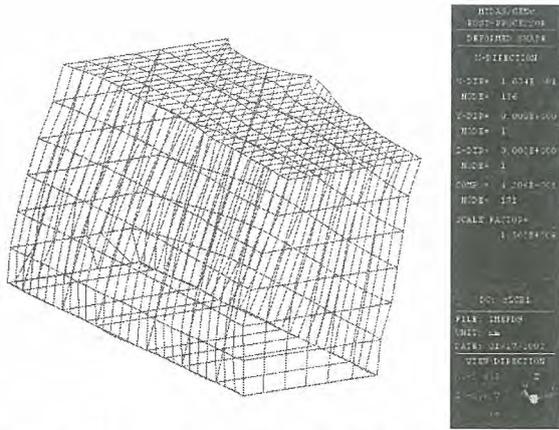


Fig. 10. Max. Disp. of ACP Hot Cell(x-dir).

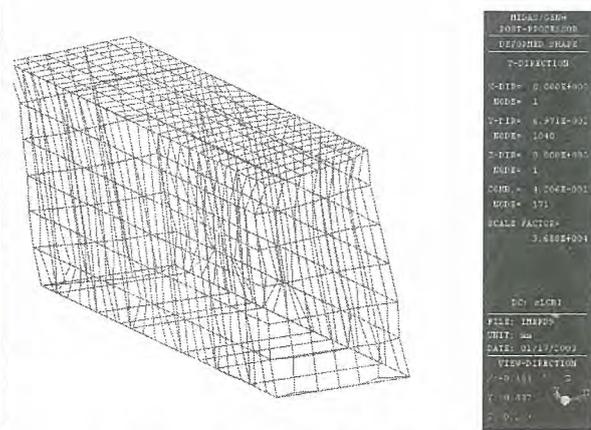


Fig. 11. Max. Disp. of ACP Hot Cell(y-dir).

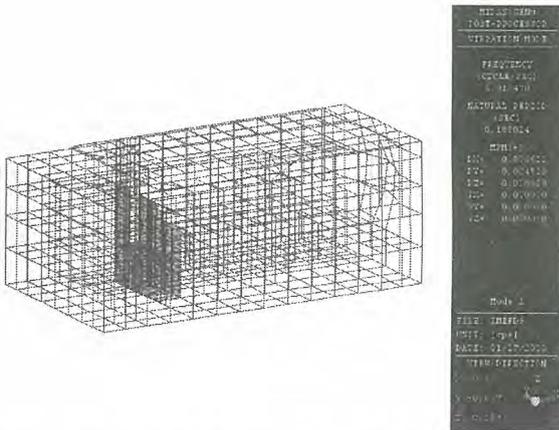


Fig. 12. Mode-1 Shape of ACP Hot Cell.

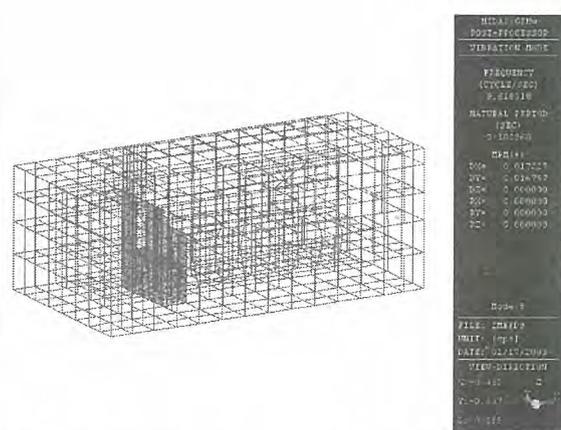


Fig. 13. Mode-5 Shape of ACP Hot Cell.

환원추출에 의한 장수명핵종과 희토류 원소의 분리 연구

A Study on the Separation of Long-lived Radionuclides and Rare Earth Elements by a Reductive Extraction Process

권상운, 안병길, 김응호, 유제형
한국원자력연구소

요 약

환원추출 공정은 소멸처리로의 연료를 제조하는 과정에서 전해분리된 TRU 성분을 추가로 정제하기 위해 이용된다. 본 연구에서는 용융염과 Bi 금속사이의 환원추출 되는 과정에 대하여 조사하였다. TRU의 대체연구물인 지르코늄과 희토류 원소들이 용질로 이용되었으며, 환원제인 Li은 Bi와 미리 합금을 만들어 사용하였다. 모든 실험은 아르곤 가스가 채워진 글로브박스내에서 수행되었으며, 분석을 위해 ICP, XRD 및 EPMA 등이 이용되었다. Li 투입 후 3시간 이내에 환원추출 반응이 평형에 도달하였다. 세가지 용융염 시스템의 비교실험에서 3가지 용융염 시스템 모두에서 지르코늄이 희토류 원소들로부터 잘 분리되었다.

Abstract

The reductive extraction process is an important step to refine the TRU product from the electrorefining process for the preparation of transmutation reactor fuel. In this study, it was studied on the reductive extraction between the eutectic salt and Bi metal phases. The solutes were zirconium and the rare earth elements, where zirconium was used as a surrogate for the transuranic(TRU) elements. All the experiments were performed in a glove box filled with an argon gas. Li-Bi alloy was used as a reducing agent to reduce the high chemical activity of Li. The reductive extraction characteristics were examined using ICP, XRD and EPMA analysis. The reduction reaction was equilibrated within 3 hours after the Li addition. Three eutectic salt systems were compared and Zr was successfully separated from the rare earth elements in all the three salt systems.

1. 서 론

장수명핵종의 소멸처리를 위해서는 장수명핵종을 분리한 뒤 연료로 제조하여야 하며, 분리 공정은 습식공정과 건식공정으로 크게 나누어진다. 용융염을 사용하는 건식공정 (pyrochemical process 혹은 pyroprocessing)은 습식공정에 비해 2차 방사성폐기물의 발생량이 적고 공정이 간단

하고, 핵확산에 대한 저항성이 매우 크다는 장점 때문에 미래의 핵주기 기술로서 주목받고 있다 [1,2].

소멸처리를 위해서는 사용후 핵연료 내에 존재하는 장수명 핵종군 원소들을 분리하고 소멸처리용 연료에 적합한 형태의 물리 화학적 형태로 전환시켜야 한다. 이를 위해 먼저 사용후 핵연료 원소들 중에서 소멸처리용 연료에 필요한 원소만 분리되어야 하며, 전기화학적 방법(전해분리)이 검토되고 있다. 소멸처리용 연료를 제조하기 위해서는 분리된 장수명핵종들을 추가로 정제하는 과정이 필요하며, 전해분리된 TRU 성분을 추가로 정제하기 위해 환원추출 공정이 이용된다.

본 연구에서는 지르코늄(TRU대체물질)과 희토류(Rare Earth; RE) 원소를 환원추출에 의해 분리하는 현상에 대해 조사하였으며, 세 가지 용융염 시스템이 비교되었다.

2. 실험

환원추출 실험장치는 그림1에 나타내었으며, 반응기 상부에 글로브 박스를 설치하고 글로브 박스 내부의 기체를 연속적으로 정제할 수 있는 purifier system을 설치하였다. 반응기는 cover gas를 이용하여, 불활성 분위기를 유지하면서 교반 속도 조절(20~200rpm)이 가능하며, 환원제 투입을 위한 guide tube와 시료 채취구, 온도측정용 sensor로 구성되었다. 반응기 chamber는 스테인레스 스틸로 제작하였고, 용융염이 담기는 crucible은 내경 40mm, 높이 120mm의 크기이며, graphite 재질로 제작하였다. Crucible이 들어 있는 반응기 chamber는 tubular furnace를 이용하여 약 1000℃까지 유지할 수 있도록 설계하였다.

실험에 사용한 공정염으로는 비교적 활발히 연구되고 있고 상용화 가능성이 높은 불소 및 염소계 용융염 중에서 LiF-NaF-KF, LiCl-NaCl 및 LiCl-KCl를 선정하였다. 용융염 시료의 조성은 eutectic point에 해당하는 비율로 혼합하였으며, 용질은 TRU의 대체물질인 Zr과 희토류 원소인 Nd, Ce, La 및 Eu을 선정하였으며, 용질의 농도는 Zr의 경우 0.8 mole% 그리고 희토류 원소는 각각 0.2 mole%가 되도록 첨가하였다. 환원제로 사용하기 위한 Li은 metal 상태로는 보관 및 취급이 극히 어려워 환원 공정의 금속상인 Bi와 합금을 제조하여 사용하였다. 반응 용기는 pyro-coated graphite 혹은 알루미늄 도가니를 사용하였으며, 교반기를 이용하여 60 rpm 으로 교반하였다.

실험순서는 먼저 solute가 함유된 공정염을 분말 상태에서 10분 이상 잘 혼합 후 crucible에 넣고, 150℃에서 24시간 이상 Ar gas를 통과시키면서 건조시켰다. 건조된 공정염에 Bi를 넣고 공융점 보다 200℃ 이상의 온도에서 5시간 정도 용융시켰다. 추출실험은 용융된 염과 금속을 용융염의 공융온도 보다 100℃ 정도 높은 온도로 냉각 후 수행하였다. 환원제인 Li-Bi alloy는 일정한 시간 간격으로 일정량씩 투입하였으며, 환원제가 투입된 후 일정시간 간격으로 시료를 채취하였으며, 환원제의 투입을 반복하여 solute를 이론적으로 모두 환원시킬 수 있는 양만큼 투입하였다. Li-Bi 합금 일정량을 crucible 내에 투입 후 평형에 이르면 saline phase 및 metal phase의 시료를 채취하여, 1 N 질산 10ml에 녹인 후 ICP 및 AA로 금속의 농도를 분석하였다.

환원추출에 의한 장수명핵종과 희토류 원소의 분리 연구

A Study on the Separation of Long-lived Radionuclides and Rare Earth Elements by a Reductive Extraction Process

권상운, 안병길, 김응호, 유재형
한국원자력연구소

요 약

환원추출 공정은 소멸처리로의 연료를 제조하는 과정에서 전해분리된 TRU 성분을 추가로 정제하기 위해 이용된다. 본 연구에서는 용융염과 Bi 금속사이의 환원추출 되는 과정에 대하여 조사하였다. TRU의 대체연구물인 지르코늄과 희토류 원소들이 용질로 이용되었으며, 환원제인 Li은 Bi와 미리 합금을 만들어 사용하였다. 모든 실험은 아르곤 가스가 채워진 글로브박스내에서 수행되었으며, 분석을 위해 ICP, XRD 및 EPMA 등이 이용되었다. Li 투입 후 3시간 이내에 환원추출 반응이 평형에 도달하였다. 세가지 용융염 시스템의 비교실험에서 3가지 용융염 시스템 모두에서 지르코늄이 희토류 원소들로부터 잘 분리되었다.

Abstract

The reductive extraction process is an important step to refine the TRU product from the electrorefining process for the preparation of transmutation reactor fuel. In this study, it was studied on the reductive extraction between the eutectic salt and Bi metal phases. The solutes were zirconium and the rare earth elements, where zirconium was used as a surrogate for the transuranic(TRU) elements. All the experiments were performed in a glove box filled with an argon gas. Li-Bi alloy was used as a reducing agent to reduce the high chemical activity of Li. The reductive extraction characteristics were examined using ICP, XRD and EPMA analysis. The reduction reaction was equilibrated within 3 hours after the Li addition. Three eutectic salt systems were compared and Zr was successfully separated from the rare earth elements in all the three salt systems.

1. 서 론

장수명핵종의 소멸처리를 위해서는 장수명핵종을 분리한 뒤 연료로 제조하여야 하며, 분리 공정은 습식공정과 건식공정으로 크게 나뉘어진다. 용융염을 사용하는 건식공정 (pyrochemical process 혹은 pyroprocessing)은 습식공정에 비해 2차 방사성폐기물의 발생량이 적고 공정이 간단

하고, 핵확산에 대한 저항성이 매우 크다는 장점 때문에 미래의 핵주기 기술로서 주목받고 있다 [1,2].

소멸처리를 위해서는 사용후 핵연료 내에 존재하는 장수명 핵종군 원소들을 분리하고 소멸처리용 연료에 적합한 형태의 물리 화학적 형태로 전환시켜야 한다. 이를 위해 먼저 사용후 핵연료 원소들 중에서 소멸처리용 연료에 필요한 원소만 분리되어야 하며, 전기화학적 방법(전해분리)이 검토되고 있다. 소멸처리용 연료를 제조하기 위해서는 분리된 장수명핵종들을 추가로 정제하는 과정이 필요하며, 전해분리된 TRU 성분을 추가로 정제하기 위해 환원추출 공정이 이용된다.

본 연구에서는 지르코늄(TRU대체물질)과 희토류(Rare Earth; RE) 원소를 환원추출에 의해 분리하는 현상에 대해 조사하였으며, 세 가지 용융염 시스템이 비교되었다.

2. 실험

환원추출 실험장치는 그림1에 나타내었으며, 반응기 상부에 글로브 박스를 설치하고 글로브 박스 내부의 기체를 연속적으로 정제할 수 있는 purifier system을 설치하였다. 반응기는 cover gas를 이용하여, 불활성 분위기를 유지하면서 교반 속도 조절(20~200rpm)이 가능하며, 환원제 투입을 위한 guide tube와 시료 채취구, 온도측정용 sensor로 구성되었다. 반응기 chamber는 스테인레스 스틸로 제작하였고, 용융염이 담기는 crucible은 내경 40mm, 높이 120mm의 크기이며, graphite 재질로 제작하였다. Crucible이 들어 있는 반응기 chamber는 tubular furnace를 이용하여 약 1000℃까지 유지할 수 있도록 설계하였다.

실험에 사용한 공정염으로는 비교적 활발히 연구되고 있고 상용화 가능성이 높은 불소 및 염소계 용융염 중에서 LiF-NaF-KF, LiCl-NaCl 및 LiCl-KCl를 선정하였다. 용융염 시료의 조성은 eutectic point에 해당하는 비율로 혼합하였으며, 용질은 TRU의 대체물질인 Zr과 희토류 원소인 Nd, Ce, La 및 Eu을 선정하였으며, 용질의 농도는 Zr의 경우 0.8 mole% 그리고 희토류 원소는 각각 0.2 mole%가 되도록 첨가하였다. 환원제로 사용하기 위한 Li은 metal 상태로는 보관 및 취급이 극히 어려워 환원 공정의 금속상인 Bi와 합금을 제조하여 사용하였다. 반응 용기는 pyro-coated graphite 혹은 알루미늄 도가니를 사용하였으며, 교반기를 이용하여 60 rpm 으로 교반하였다.

실험순서는 먼저 solute가 함유된 공정염을 분말 상태에서 10분 이상 잘 혼합 후 crucible에 넣고, 150℃에서 24시간 이상 Ar gas를 통과시키면서 건조시켰다. 건조된 공융염에 Bi를 넣고 공융점 보다 200℃ 이상의 온도에서 5시간 정도 용융시켰다. 추출실험은 용융된 염과 금속을 용융염의 공융온도 보다 100℃ 정도 높은 온도로 냉각 후 수행하였다. 환원제인 Li-Bi alloy는 일정한 시간 간격으로 일정량씩 투입하였으며, 환원제가 투입된 후 일정시간 간격으로 시료를 채취하였으며, 환원제의 투입을 반복하여 solute를 이론적으로 모두 환원시킬 수 있는 양만큼 투입하였다. Li-Bi 합금 일정량을 crucible 내에 투입 후 평형에 이르면 saline phase 및 metal phase의 시료를 채취하여, 1 N 질산 10ml에 녹인 후 ICP 및 AA로 금속의 농도를 분석하였다.

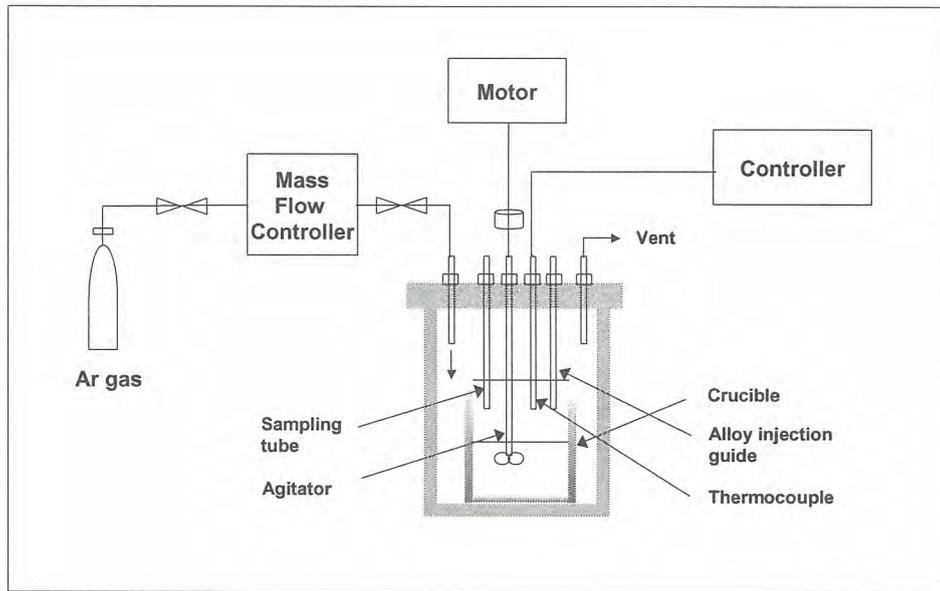


Figure 1. Schematic drawing of experimental set-up for reductive extraction experiment.

3. 결과 및 고찰

환원추출은 수 일 이상 장시간이 소요되며, 실험이 끝난 후 도가니가 들어있는 chamber 상부가 증발된 용융염이 고착됨으로써 백색으로 코팅되는 현상이 관찰되었다. 이에 따라 환원추출 본 실험에 앞서 용융염의 실제 감량이 얼마나 되는지 파악하기 위해 다음과 같은 실험을 수행하였다. 시간에 따른 정확한 감량을 측정하기 위해 LiCl-KCl 공융염 약 10g을 소형 alumina crucible에 넣고, 450°C에서 일정시간을 가열한 후 냉각되면 무게를 측정하여 감소량을 alumina crucible과 함께 측정하였다. 실험결과 실제 무게 감소는 표 1에서처럼 미량이며, 따라서 salt의 증발이 실험에 미치는 영향은 크지 않을 것으로 판단된다.

Table 1 Weight loss of molten salt during heating.

가열 시간		22 hrs	48hrs	72hrs
시료 I	78.92g (salt 10.07 g)	78.90g	78.88g	78.87g
시료 II	79.76 (salt 15.29 g)	79.75g	79.72g	79.70g

환원추출 반응전과 후의 용융염의 색상을 비교해보면, 용질이 환원되기 전에는 용질의 색상인 열은 푸른색이었다가 반응이 완료되면 백색에 가깝게 변하는 것을 볼 수 있었다. LiCl-NaCl/Bi 시스템에 대한 환원추출 실험 결과 Fig. 2에서처럼 환원제인 Li의 양이 증가하면 TRU의 대체 연구 물질인 Zr의 경우 금속상인 Bi층으로 쉽게 이동하였으며, RE 원소들의 경우 Li 투입량이 늘어도

어느 정도까지는 금속상으로의 이동이 거의 없었다. 즉 TRU와 RE 성분의 환원추출 선택성에 대한 차이가 크고 이 차이를 이용하여 분리가 가능하다. 특히 용융염중에서는 2가원소로 알려진 Eu의 경우 환원이 매우 어려우며, 따라서 TRU 원소들과 분리가 다른 RE 원소들에 비해 훨씬 쉽다는 결론을 얻을 수 있다. 또 대부분의 Eu를 환원시키려면 이론적으로 필요한 Li의 양보다 훨씬 많은 양을 투입하여야 함을 알 수 있었으며, Zr의 Ce에 대한 분리계수의 값은 약 14이었다.

한편 LiCl-NaCl/Bi 시스템에서는 용융염의 원소인 Na이 환원되어 Bi상으로 옮겨오는 현상이 관찰되었으며, 그 농도는 최고 0.1 mole%이었다. 이는 LiCl과 NaCl의 Gibbs의 자유 에너지 값이 큰 차이가 나지 않지만, NaCl의 경우가 절대값이 약간 적어서 환원될 수는 있으며, 공용염상의 Na 농도가 solute 성분 에 비하면 훨씬 높기 때문에 Bi 상으로 상당량이 빠져 나온 것으로 추정된다.

LiCl-KCl/Bi 시스템의 경우에도 LiCl-NaCl/Bi 시스템의 경우에서처럼, 환원제인 Li의 양이 증가하면 TRU의 대체 연구 물질인 Zr의 경우 금속상인 Bi층으로 쉽게 이동하였으며, RE원소들의 경우 Li 투입량이 늘어도 어느 정도까지는 금속상으로의 이동이 거의 없었다. Zr의 Ce에 대한 분리계수의 값은 LiCl-NaCl/Bi 시스템의 경우 보다 큰 약 90이었다. 또 LiCl-NaCl/Bi 시스템의 경우에서처럼 공용염 성분이 금속상으로 환원되는 현상이 발견되지 않았으며, 환원추출 공정에 적합한 공용염의 후보로 사료된다.

대표적인 불소계 용융염인 LiF-NaF-KF의 경우에도 환원 특성은 염소계와 유사하지만, 분리계수의 값은 비교적 커서 Zr의 Ce에 대한 값이 약 600이었다. 이 값은 염소계 용융염인 LiCl-KCl/Bi 시스템의 경우 보다 크지만, 용융온도 및 부식성 등에서는 불리하다고 볼 수 있다.

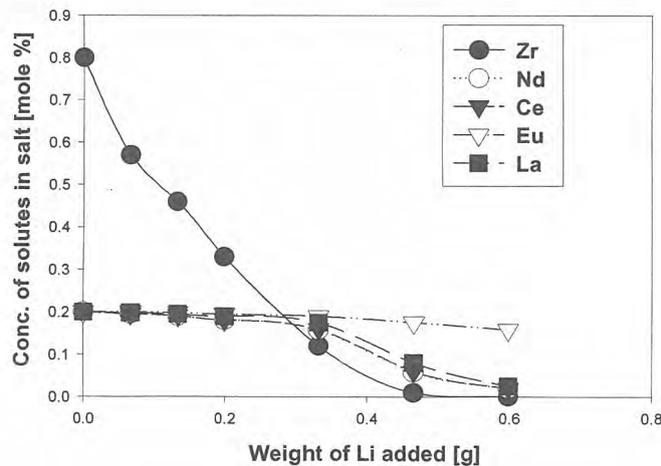


Figure 2 Variation of solute concentrations in salt phase with the increasing Li amount (LiCl-NaCl/Bi system).

4. 결 론

- 3가지 용융염/ Bi 상간의 환원추출 연구를 수행하였으며, 다음의 결과를 얻었다.
- 증발에 의한 용융염의 감량은 무시할 만 하였다.

- 염소계 용융염중 LiCl-KCl/Bi 시스템이 LiCl-NaCl/Bi 시스템에 비해 분리계수가 크고, 용융염 성분의 환원이 되지 않아 더 안정하였다.
- 불소계 용융염인 LiF-NaF-KF의 경우 분리계수가 염소계 용융염 보다 컸으나, 용융온도 및 부식성 등에서는 염소계 용융염에 비해 불리하였다.

참 고 문 헌

- [1] H. J. Dewey, "The Accelerator Transmutation of Waste Concept Overview", Report LA-UR-93-2895, Los Alamos National Laboratory, USA (1993).
- [2] L. M. Ferris, J. C. Mailen, J. J. Lawrence, F. J. Smith and E. D. Nogueira, Trans. Am. Nucl. Soc. 12,26 (1969)

LiF-BeF₂ 용융염계에서 전해제련에 의한 우라늄 회수

우문식*, 김응호, 유재형
한국원자력연구소

Recovery of Uranium in LiF-BeF₂ Molten Salt System by Electrowinning

Mun-Sik Woo*, Eung Ho Kim, Jae-Hyung Yoo
Korea Atomic Energy Research Institute

요 약

장수명핵종 소멸처리를 위한 건식분리공정에서 핵분열성물질인 우라늄을 장수명핵종과 분리할 필요가 있다. 본 실험은 LiF-BeF₂-UF₄ 용융염에서 전해제련에 의한 우라늄 금속을 분리하기 위하여 분해전압 측정하였고, 인가전압에 따른 전해특성 파악 및 반응속도를 측정하였다. 측정결과 500°C에서 UF₄와 LiF-BeF₂의 분해전압은 각각 -1.4volt와 -1.55volt이었다. 우라늄의 전착속도는 우라늄 농도가 높을수록 증가하였다.

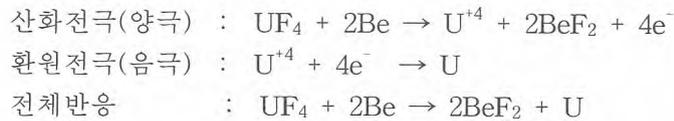
Abstract

Fissionable uranium will be separated from long-lived nuclear materials in pyroprocess for transmutation. This study was measured decomposition voltage and deposition rate on cathode of uranium in LiF-BeF₂-UF₄ molten salt by electrowinning. The result of experimental is that decomposition voltage of UF₄ and LiF-BeF₂ molten salt is -1.4 and -1.5 volt at 500°C. Deposition rate of uranium on cathode increases with increase of uranium concentration in molten salt.

1. 서 론

원자력 발전후 발생하는 장수명핵종(long-lived nuclide)을 단수명핵종(short-lived nuclide)으로 소멸처리(transmutation)하기 위하여 장수명핵종을 소멸처리료에 용융염연료(molten salt fuel) 혹은 금속연료형태로 공급하여야 한다. 이때 핵분열성 물질인 우라늄은 소멸처리과정에서 핵반응에 의한 새로운 장수명핵종을 발생시키기 때문에 소멸처리료에 공급되는 장수명핵종과 분리할 필요가 있다. 본 실험은 전해정련(electrorefining)으로 다량의 우라늄을 제거한후 장수명핵종에 존재하는 소량의 우라늄을 제거하기 위하여, 분리공정이 간단하고 2차 폐기물 발생을 최소화시킬 수 있는 전해제련(electrowinning)법을 이용하여 장수명핵종과 우라늄을 분리하였다¹⁾. 전해제련은 고온용융 상태인 용융염욕(molten salt bath)에 용융되어 있는 금속을 전극반응으로 분리하는 것이다. 본 실

험은 LiF-BeF₂ 용융염속에 UF₄를 용융시킨 용융염에 베릴륨 양극(beryllium anode)과 니켈 음극(nickel cathode)을 사용하여 음극에 U 금속을 전착(electro-deposit)시켜 분리하였다. 전극 반응은 다음과 같이 예측할 수 있다²⁾.



본 실험은 LiF-BeF₂-UF₄ 용융염에서 전해제련에 의한 우라늄 금속을 분리하기 위하여 분해전압 측정하였고, 인가전압에 따른 전해특성 파악 및 반응속도를 측정하였다.

2. 실험

본 실험에 사용한 시약 LiF, BeF₂, UF₄는 순도 99.95%인 Aldrich사 제품을 사용하였다. 그리고 초기 시약 및 반응기에 존재할 수 있는 산화물을 불소화 반응시켜 제거하기 위하여 순도 95%인 Shinyo Pure Chemical사의 NH₄F를 사용하였다. 또한 반응기 내부의 수분 및 반응 후 생성 기체를 배출시키고, 반응기 외부에서 수분 및 산소의 유입을 방지하기 위하여 순도 99.999%인 아르곤(Ar) 가스를 사용하였다. 본 실험에서 사용한 전해제련 장치의 주요 구성부분으로는 전기로와 반응기, 아르곤 가스공급장치, 배출가스 포집장치, 진공펌프, potentiostat, PC 및 recorder등으로 구성되어 있으며, 그림 1과 같다. 외부 반응기는 type 310 S 강을 사용하였고, 내부 반응기는 고온에서 불소화합물에 내부식성이 강한 100mL nickel 용기를 사용하였다. 전극은 양극의 경우 Be 금속을 nickel basket(OD 15 x H 30mm)에 넣어 사용하였고, 음극과 기준전극은 1/4" nickel 봉(rod)을 사용하였다. Ar 가스 공급은 flowmeter를 이용하여 정량적으로 공급하였다. 외부 반응기의 온도 조절은 R-type의 열전대(thermocouple)를 사용하였고, 반응기 내부온도는 K-type Pt-100Ω 열전대를 사용하였다.

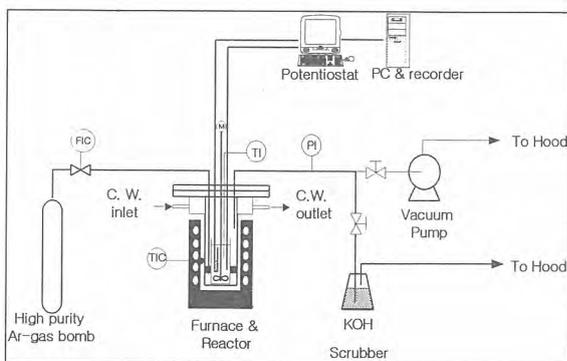


Fig.1 Schematic diagram of apparatus used in electrowinning.

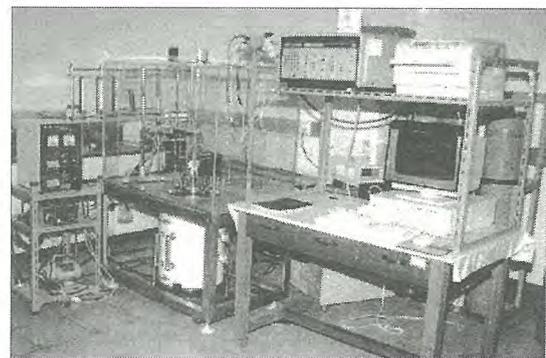


Fig.2. Photography of apparatus used in electrowinning

3. 실험방법

본 실험에서 분해전압 및 인가전압에 따른 전착특성을 파악하기 위하여 시료 조성은

LiF-BeF₂-UF₄ (70.8-28.4-0.8 mol%)이며, 시료량은 91g/batch씩 사용하였다. 용융염 제조는 내부 반응기에 용융염 시약과 NH₄F 시약을 혼합하여 넣고, 외부 반응기를 완전히 잠근 다음 350ml/min의 유량으로 Ar 가스를 공급하여 수분 및 반응가스를 배출시켰다. 그리고 전기로를 이용하여 3°C/min 속도로 500°C까지 외부 반응기를 가열하였다. 500°C까지 가열 후 1시간정도 열 속성시킨 다음 용융염에 양극을 넣었다. 그리고 1시간 후 용융염의 분해전압을 측정하였다. 이때 전극의 위치를 고정시켜 전극간의 거리는 1cm를 유지하였고 용융염에 잠기는 음극의 표면적을 4cm²가 되도록 유지하였다. 본 실험에서 분해전압을 측정하기 위하여 Perkin Elmer사의 model-273A인 potentiostat를 이용하여 순환 전압-전류법(cyclic voltammetry)으로 측정하였다. 이때 주사전위 범위; 0~-2volt, 주사 속도; 20mV/sec로 측정하였다. LiF-BeF₂-UF₄ 용융염의 전착(electrodeposition)특성을 파악하기 위하여 500°C에서 환원 전위인 인가전압(applied voltage)을 -0.8, -1.2, -1.4, -1.55, -1.6, -1.8volt로 변화시켜 5시간동안 전착시켰다. 그리고 우라늄의 전착속도를 측정하기 위하여 600°C에서 -1.0volt에서 24시간동안 전착 시켰고, 매 시간마다 시료를 채취하였다. 이때 시료에 포함되어 있는 리튬(Lithium)금속 농도를 측정하기 위하여 Perkin Elmer사의 model AAS-3100인 원자 흡수분광분석기(AAS)를 사용하였다. 그리고 Be, U 금속을 분석하기 위하여 Jobin Yvon(프)사의 model JY-38 plus인 유도결합 플라즈마 분광분석기(ICP)를 사용하였다.

4. 실험 결과

-분해전압 측정

LiF-BeF₂ 용융염과 LiF-BeF₂-UF₄ 용융염의 분해전압측정을 측정한 결과 Fig.3과 같다.

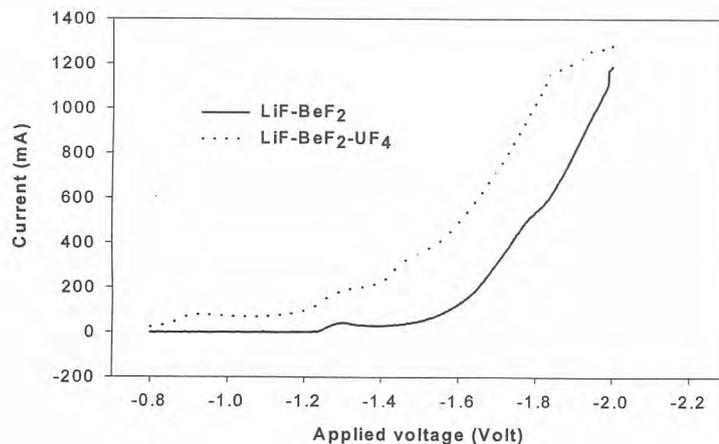


Fig.3 Voltammetric scanning of the molten salt; 20mv/sec, 500°C.

Fig.3에서 용융염육인 LiF-BeF₂와 LiF-BeF₂-UF₄의 분해전압은 각각 -1.55volt와 -1.4volt부근으로 LiF-BeF₂ 용융염의 환원전위가 더 높았다. 따라서 이론적으로 전해제련에 의한 우라늄 회수는 가능함을 알 수 있다.

-우라늄 전착특성

그리고 측정된 분해전압을 기준으로 하여 인가전압을 변화시켜 우라늄 회수실험을 한 결과는 Fig.4, 5와 같다.

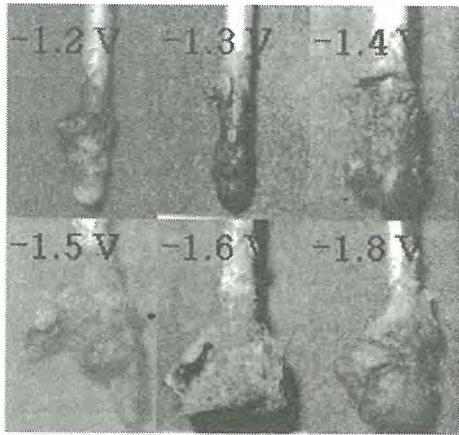


Fig.4 Deposition of salt with applied voltage.

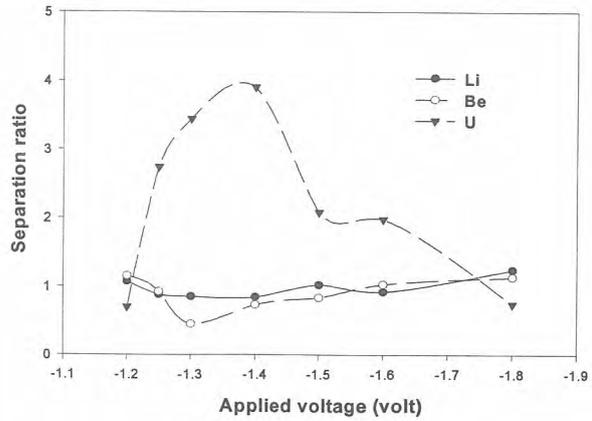


Fig.5 Separation ratio with applied voltage; 500°C.

Fig.3에서 우라늄 분해전압인 -1.4volt부터 전착되고 있다. 즉 -1.4volt이하에서는 전극에 전착되는 전착량이 적었다. 그러나 -1.4volt부터는 전착량이 증가함을 알 수 있다. 이러한 현상은 Fig.4에서 알 수 있듯이 우라늄과 함께 용융염 욱인 LiF-BeF₂ 혼합물이 전착되고 있기 때문이다. 즉 우라늄을 효율적으로 분리하기 위하여 용융염 욱의 분해전압 이하에서 우라늄을 전착시킬 필요가 있다. 이때 분리비는 음극에 전착된 전착물의 원소를 분석하여 초기시료의 조성비와 비교한 값이다.

-우라늄 전착속도

Fig.6은 LiF-BeF₂-UF₄ 용융염을 600°C에서 -1.0volt로 24시간 동안 시키며 측정된 전착속도이다. 전착속도 측정은 반응기의 용융염을 매시간 채취하여 농도를 분석한 다음 초기농도와 비교하였다.

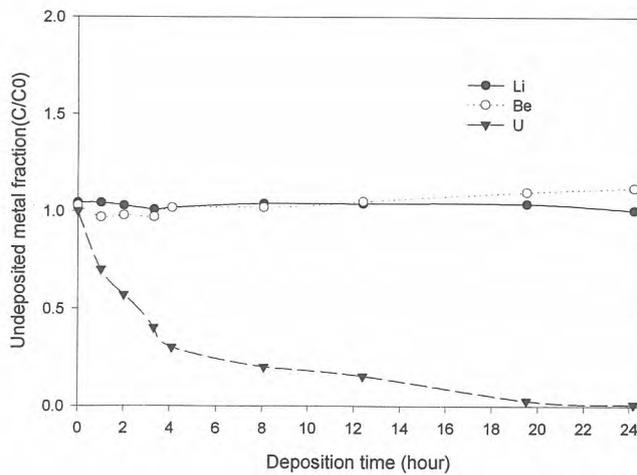


Fig.6 Variation of uranium concentration in molten salt with electrodeposition time.

Fig.6에서 우라늄의 경우 전착시간이 증가할수록 우라늄 농도는 초기농도와 비교하여 감소하고 있다. 즉 초기(0~4시간) 우라늄 농도가 높을 경우 전착속도(0.043 UF₄-g/min)는 빠르다. 그러나 전착시간이 증가할수록(16~24시간) 우라늄 농도가 감소하면 전착속도(0.0095 UF₄-g/min)가 감소함을 알 수 있다. 리튬(Li)의 경우 전착속도는 전착시간에 관계없이 거의 일정하였다. 그러나 베릴륨(Be)의 경우 양극에서 용융된 베릴륨 때문에 베릴륨의 농도가 증가하였다.

5. 결 론

본 실험은 전해제련법으로 LiF-BeF₂-UF₄ 용융염에서 우라늄을 제거하기 위하여 분해전압을 측정하고, 전착특성 및 전착속도를 측정하였다. 측정결과 500℃에서 UF₄와 LiF-BeF₂의 분해전압은 각각 -1.4volt와 -1.55volt이었다. 그리고 인가전압에 따른 우라늄의 전착특성은 분해전압 부근에서 효율이 가장 양호하였고, 분해전압보다 높을 경우 용융염욕이 동시에 전착되어 전착효율을 감소시킨다. 우라늄의 전착속도는 우라늄 농도가 높을수록 증가하였다.

참 고 문 헌

1. 강영호, 황성찬, 유재형, “초우라늄 원소에 대한 건식분리요소 기술의 개발과 효율적 분리공정” KAERI/TS-114/99, 7-9(1999).
2. R. D. Piper, R. F. Leifield, I&EC process design and development, 1(3), 208-212 (1962).

그래픽 전산모사를 이용한 차세대관리공정 원격운반취급 분석

Analysis of Transportation and Handling System of Advanced Spent Fuel Management Process Using Graphic Simulator

홍동희, 윤지섭, 김성현, 송태길, 진재현

한국원자력연구소

요 약

본 연구에서는 공정운전에 필요한 물질 및 운전중 고장에 의한 유지보수를 위한 부품 등을 운반하고 취급 할 경우에 발생 할 수 있는 여러 문제점을 사전에 그래픽 시뮬레이터를 이용하여 검토하고, 공정운전의 핵심물질인 사용후핵연료 분말을 핫셀에 비산 시키지 않고 안전하게 운반 취급하는 방안과 취급에 필요한 장치를 도출하였다. 공정장치 및 유지보수 장비의 사전 검증은 일반적으로 실제 규모의 Mockup을 이용하지만 비용 및 시간적인 측면에서 제약을 받는 본 과제에서는 그래픽 시뮬레이션 기술을 활용하였다. 본 연구를 통하여 분석된 결과는 핫셀에 설치되는 실증 장치의 설계에 반영하여 실증시험을 수행하면서 검증 할 예정이다.

Abstract

The graphic simulator has been used to analyze the problems that can occur during transporting and handling radioactive materials, and to derive necessary devices that can transport and handle spent fuel powder without scattering in a hot cell. The graphic simulator has advantages over the real scale physical mockup with respect to cost and schedule. The process equipment and maintenance devices can be verified in advance with less cost and reduced schedule. The derived results are being reflected in the design of equipment for demonstration and are being verified during demonstration.

1. 서 론

본 과제에서는 사용후핵연료의 효율적이고 안전한 관리를 위한 차세대관리공정 실증시험을 조사재시험시설(IMEF) 예비 핫셀에서 수행 할 예정이다. 실증시험을 수행 하고자하는 예비 핫셀은 공간이 협소하여 공정에 필요한 장치들을 모두 설치 할 경우 핫셀이 대단히 복잡해지며, 공정운전에 필요한 물질을 이송하고 취급 할 경우와 운전중 장치의 고장으로 인하여 유지보수를 위한 부품 등을 이송 할 경우에 각 공정장치 및 주변에 설치된 설치물과의 간섭으로 이송에 많은 어려움이 예상된다. 본 연구에서는 이러한 문제점을 사전에 그래픽 시뮬레이터를 이용하여 각 공정별로

운반 및 취급 방안을 검토하고 분석하였으며, 공정운전의 핵심물질인 사용후핵연료 분말을 핫셀에 비산 시키지 않고 안전하게 운반/취급하는 방안과 운반/취급에 필요한 장비를 도출하였다. 공정장치 및 유지보수 장비의 사전 검증은 일반적으로 실제 규모의 Mockup을 이용하지만, 과제 수행을 위한 예산이 제한되어 있고 제한된 기간 내에 실증시험을 수행 하여야 하는 본 과제에서는 그래픽 시뮬레이션 기술을 활용하였다.

2. 공정 및 운반취급물질

2.1 차세대관리 공정 및 핵물질의 이송

차세대관리공정의 수행에 필요한 물질 이송 현황을 작업 특성별로 살펴보면 공정 운전을 위한 물질의 이송, 공정 운전 중 발생한 경미한 고장으로 인하여 공정장치의 유지보수를 위한 이송으로 분류 할 수 있으나, 본 연구에서는 정상적인 공정 운전을 위한 물질 이송에 대하여 기술하였으며 이송 과정은 다음과 같다.

조사후시험시설에서 사용후핵연료 집합체에서 핵연료봉을 인출하여 25 Cm 크기로 절단한 후에 연료봉을 Padirac 캐스크에 담아 조사재시험시설로 운반한다. Padirac 캐스크가 조사재시험시설 예비셀의 리어도어에 접속되면 캐스크 접속부와 연결된 핫셀의 내부 도어를 매니플레이트를 이용하여 개방하고, 절단 연료봉들이 포함된 캡슐과 Rod-cut을 하역하여 Slitting장치로 이송한다. Slitting장치에서는 사용후핵연료를 탈피복((펠릿과 Clad로 분리)하며, 이때 사용후핵연료 펠릿의 수집을 위하여 수집용기를 분말화 장치에 장착하고 분말을 수집하며, 핵물질의 핫셀내의 비산 방지를 위하여 수집용기의 뚜껑을 닫는다. Slitting장치에서 Slitting이 완료되면 펠릿 수집용기를 장치로부터 분리하여 분말화 장치로 이송한다. 이송한 사용후핵연료 펠릿을 분말화 장치에 투입하기 위하여 분말화장치의 뚜껑을 개방한 후에, 펠릿 수집용기의 뚜껑을 열어 분말화장치에 사용후핵연료 펠릿을 주입한다. 분말화장치에서는 사용후핵연료의 펠릿을 U_3O_8 으로 전환하며, 전환된 사용후핵연료 산화분말은 분말용기로 수집하고 분말용기를 금속전환장치로 이송하여 분말을 장치에 주입한다. 금속전환장치에서는 U_3O_8 분말에서 U 금속으로 전환하고 금속용융장치에서 Ingot 화하여 냉각한 후에 핵물질관리 절차에 따라 관리한다.

2.2 운반/취급 대상물질

공정에 필요한 운반/취급 대상물질 및 대상물질을 취급하는 장비는 Table 1 과 같으며, Table 에서 보는바와 같이 공정운전 전후의 대부분 운반 물질은 M/S Manipulator 나 크레인을 이용하여 이송이 가능하나 M/S Manipulator의 취급 용량(9 Kg)을 초과하는 사용후핵연료 산화분말(U_3O_8)은 분말의 비산 방지를 위하여 별도의 분말 이송 용기가 필요하다. 크레인을 이용하여 분말용기를 이송할 경우에는 이송 중에 크레인 로프의 흔들림이 발생 하므로 흔들림을 방지할 수 있는 대책이 필요하다. 또한 폐 용융염 및 Ingot는 크레인, M/S Manipulator 및 천정 이동형 조작기 등을 활용하면 별도의 이송장치 없이 이송이 가능하다

Table 1. 공정별 운반물질 및 취급장비

공정	운반/취급업무	취급용량	취급장비
Capsule 및 Rod cut 인출	Capsule Unloading	Capsule 1개	MSM, CR
	Capsule 계량	Capsule 1개	MSM, CR
	Capsule 이송 및 저장	Capsule 1개	MSM, CR
	Rod cut 인출 및 이송	Rod cut	MSM
	Empty Capsule 반출	Capsule 1개	MSM
탈피복(Slitting) 장치	Slitting 장치 주입	Rod cut	MSM
	Pellet 회수	5 kg	MSM
	Pellet 및 Hull 계량	5 kg	MSM
	S/F연료봉 Hull 이송	수집용기	MSM, CR
건식분말화/혼합장치	U ₃ O ₈ 분말 수집 및 계량	30 kg (용기포함)	고하중조작기, 크레인
	U ₃ O ₈ 분말용기 이송	“	“
금속전환장치	U ₃ O ₈ 전환로 주입	“	“
	폐용융염 및 수집용기	수집용기	MSM, CR
금속 용융로	U 분말 용융로 주입	20 kgHM	TM
	Ingot 계량 및 이송	20 kgHM	TM

※ MSM : Master slave

TM : Telescopic manipulator, CR : Crane

3. 차세대관리공정의시물레이션

3.1 주요장치 및 유지보수 장비의 그래픽 모델

공정 수행을 위한 주요 공정장치는 Table 2에서 보는 바와 같이 탈피복장치, 건식분말화장치, 금속전환장치 및 용융로(Smelter) 등이 있다. 또한 물질의 이송과 유지보수 작업을 위한 원격 취급 장비로는 크레인, 기계식 마스터-슬레이브(M/S) 조작기 및 고하중 조작기 등이 있다. Fig 1. (b)의 고하중 조작기는 협소한 핫셀 내에서 M/S 조작기로 작업할 수 없는 영역을 대상으로 원격 작업을 수행하기 위해 특별히 고안한 소형의 고하중 조작기이다. 핵물질 안전조치를 위한 Safeguard 장비 등 기타의 장치는 공정 분석에 크게 영향을 미치지 않으므로 본 과제의 시물레이터 구성에서는 제외하였다. 이러한 공정장치 및 원격취급 장비의 모델링에 있어서 구동부는 운동 특성(kinematics)을 부여할 부분을 고려하여야 하고, 볼트 및 저장용기 등 분리하여야 할 부분은 별도의 모델로 구성하여 조립하여야 한다.

Table 2. 사용후핵연료 차세대관리공정 주요장치

구분	장치명	기능
공정장치	탈피복 장치	절단 연료봉의 pellet 과 hull 분리
	건식 분말화/혼합장치	사용후핵연료 펠렛의 산화에 의한 분말화
	금속전환장치	U ₃ O ₈ 분말로부터 U-metal 추출
	Smelter	U-metal을 용융시켜 ingot 생성
원격취급/유지보수 장비	M/S 매니플레이터	소용량 공정물질 운반/유지보수
	고하중 조작기	공정물질 운반 및 사각지역 내 부품의 유지보수
	In-cell crane	대용량 공정물질 및 유지보수 부품 운반

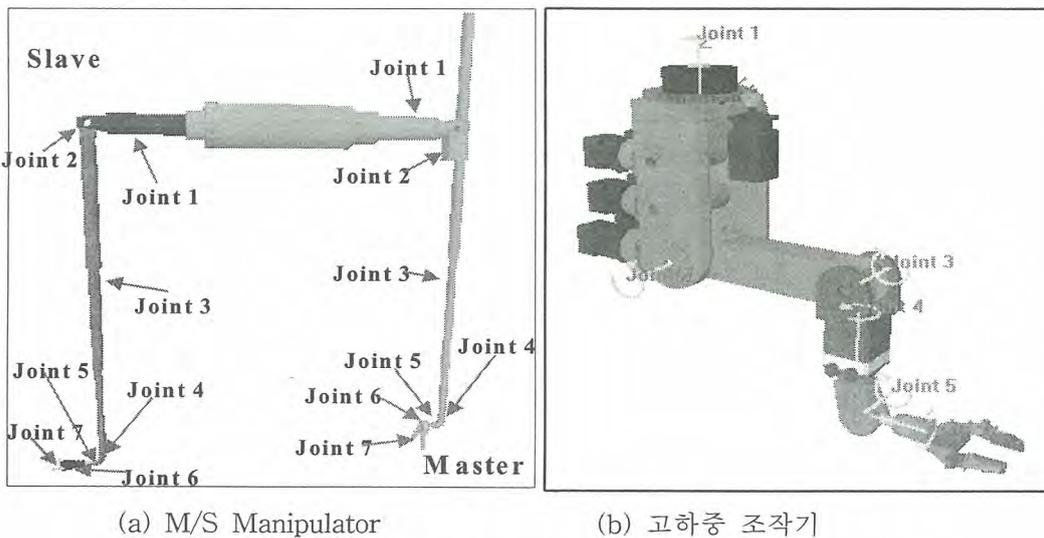


Fig. 1 3D Graphic Model of Remote Handling Device.

3.2 차세대관리공정의 3차원 그래픽 시뮬레이션

그래픽 시뮬레이터를 구축하기 위해서는 먼저 대상들에 대한 3차원 그래픽 모델링을 하여야 한다. 그리고 시뮬레이션의 대상이 되는 디바이스를 구축하여 구동특성에 맞게 운동특성(kinematics)을 설정한 후 가상의 작업공간인 workcell을 구축하게 된다. workcell이 구축되면 시뮬레이션을 위한 프로그램을 작성하거나 사용자 인터페이스를 구축하여 시뮬레이터를 구축한다. 본 연구에서는 시뮬레이터 구축을 위한 툴로 IGRIP(Interactive Graphic Robot Instruction Program)을 이용하였으며, 공정을 위하여 구축한 3차원 그래픽 시뮬레이터는 Fig. 2와 같다. 이러한 3차원 그래픽 시뮬레이터는 실제 작업환경을 그대로 반영한 것으로 사전에 장치의 배치, 공정의 타당성 및 원격작업 등 다양한 분석과 검토를 수행할 수 있으며, 장치나 공정 개념 등의 변경을 빠르게 반영하여 검토할 수 있다.

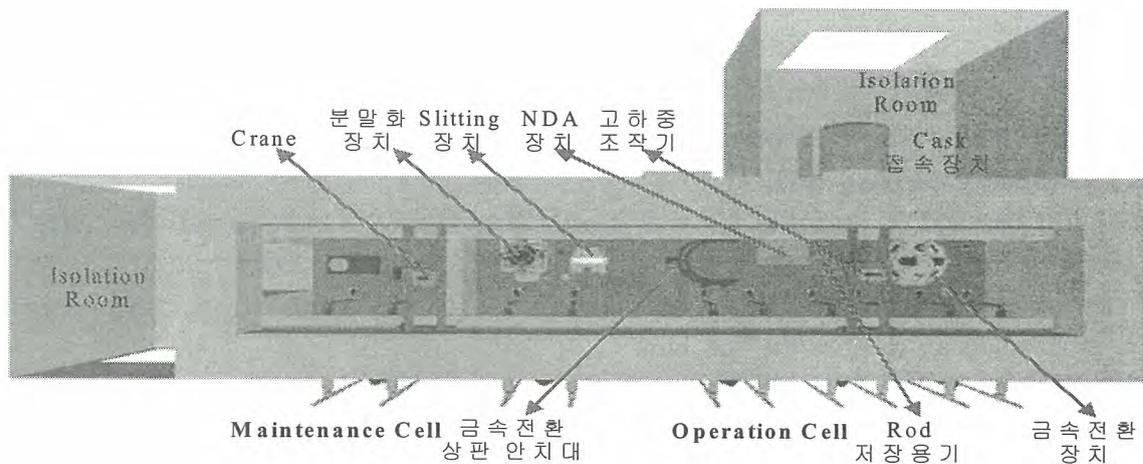


Fig. 2 Graphic Simulator for ACP.

3차원 그래픽 시뮬레이터의 또 다른 목적은 사전에 공정에 대한 3차원 그래픽 시뮬레이션을 통해 공정의 개념을 시각화(visualization)할 수 있다는 것이다. 이러한 시뮬레이션은 가상의 장치(device)에 기구학적 특성(kinematics)을 반영한 것으로 애니메이션이 아닌 엔지니어링 측면에서 수행하게 된다. 따라서 이러한 3차원 시뮬레이션을 통해 공정의 문제점을 사전에 분석할 수 있다. Fig.3은 사용후핵연료 차세대관리공정의 주요공정인 절단 연료봉의 핫셀 내 반입으로부터 금속전환 공정까지를 시뮬레이션 한 결과이다.

4. 결 론

본 연구에서는 고방사성 물질인 사용후핵연료 분말을 공간이 협소한 조사재시험시설 예비핫셀에서 안전하게 운반하고 취급하기 위하여 공정에 필요한 이송물질 및 취급 장비를 분석하고 차세대관리공정을 대상으로 구축한 가상 작업공간인 3차원 그래픽 시뮬레이터를 이용하여 원격 이송 및 취급 작업을 분석하였다. 분석한 결과를 활용하여 모의 운반용기 및 취급장치를 설계/제작하여 안전 이송시험, 분말용기 파지시험 등을 수행하여 핫셀의 실증시설에 활용할 운반 및 취급계통 장비의 설계 요건을 분석하였다. 본 연구에서 활용한 그래픽 시뮬레이터는 다양한 분석에 활용될 수 있으며, 실제 mockup 시설을 구축하는 것보다 시간적 경제적 측면에서 매우 효과적이다. 또한 분석된 설계요건은 차세대관리 실증시설의 설계자료 및 이와 유사한 핫셀의 운반/취급장치의 설계자료로 유용하게 활용 할 수 있다.

참 고 문 헌

1. Y, J. Shin, etc., "Development of Advanced Spent Fuel Management Process", KAERI/RR-2128/2000, 2000
2. S. Glasstone and A. sesonske, Nuclear Reactor Engineering, Van Nostrand, New York, 1997.
3. 김영환, "중합공정장치 모듈화 요건설정", KAERI/ TR-2060/2002, 2002.
4. American Robotics, "Pipe Rehabilitation Systems", [http://www.thomasregister.com/olc/american robotics/the bot. htm](http://www.thomasregister.com/olc/american%20robotics/the%20bot.htm).
5. Yudaka Omura, etc., "Virtual prototyping for canister receiving devices of high level waste storage facility", Proc. of '99 DENEb User Meeting for Korean Users, 1999
6. Deneb, "IGRIP User Manual and Tutorials", 1995.

후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력 중장기연구개발사업의 일환으로 수행되었음

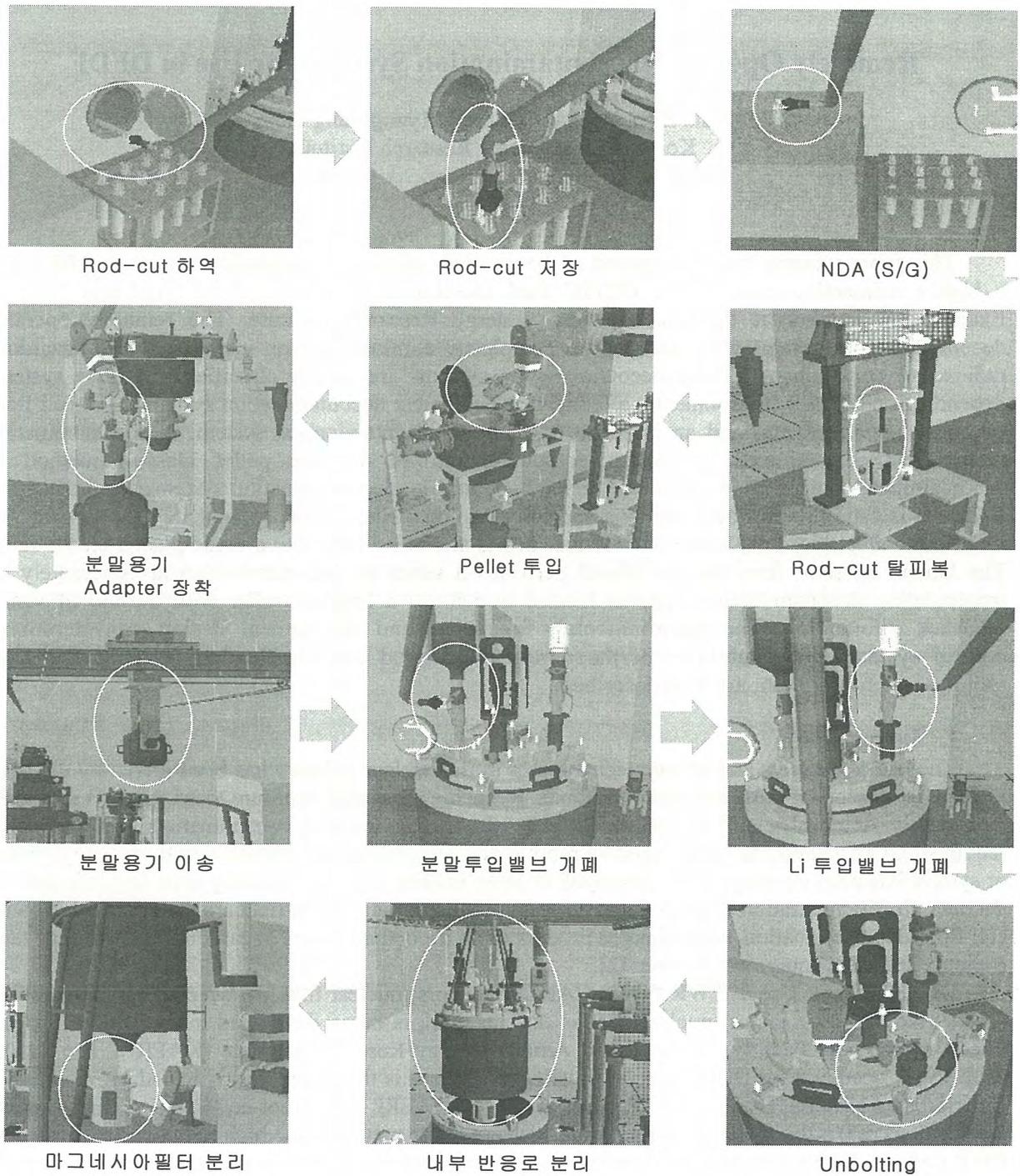


Fig.3 3D Graphic Simulation for Main Process of ACP.

Remotely Operated Decontamination Systems for Use in DFDF

Kiho Kim, Jangjin Park, and Myungseung Yang
Korea Atomic Energy Research Institute

Abstract

This paper presents the development of the remotely operated decontamination systems for use in a highly radioactive zone of the DUPIC Fuel Development Facility of the Irradiated Material Examination Facility at the Korea Atomic Energy Research Institute. The remotely operated decontamination systems were designed to completely eliminate human interaction with hazardous radioactive contaminants. These decontamination systems are mainly classified into three systems depending on the task environment – a fabrication equipment decontamination system, a hot-cell floor decontamination system, and an isolation room floor decontamination system. A decontamination system for contaminated fabrication equipment utilizes dry ice pellet blasting method to decontaminate contaminated surface of the equipment. The decontamination systems for the hot-cell floor and isolation room floor employ a vacuum cleaning method to decontaminate the contaminated floor and collect loose dry spent nuclear fuel debris and other radioactive waste placed on the floor. The human operator from the out-of-cell performs a series of decontamination tasks remotely by manipulating decontamination systems located in-cell via a handcontroller with the aid of vision feedback information. The environmental, functional and mechanical design considerations, control system and capabilities of the remotely operated decontamination systems at a high radioactive environment are also described.

1. Introduction

The use of robotics and remote technologies in the nuclear industry has been driven by the need to decrease personnel radiation exposure limits. Reducing personnel exposure to ALARA (As Low As Reasonably Achievable) [1] in radiation fields where radiation and contamination levels are high requires human workers to be replaced by robotic devices or other remote devices. Remote equipment or system has been developed and employed at many nuclear material handling sites. In particular, for decontamination operations, tasks of remote systems at high radioactive field are mainly involved with cell floor decontamination, contaminated process room decontamination, hazardous waste storage tank cleanup, and aged equipment cleanup [2].

DUPIC (Direct Use of PWR fuel in CANDU reactors) nuclear fuel [3], which reuses spent PWR (Pressurized Water Reactor) nuclear fuel as raw material, is being developed in the DFDF (DUPIC Fuel Development Facility) at the Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI). The DFDF, exclusively occupied for DUPIC nuclear fuel development, is the completely shielded M6 hot-cell of the Irradiated Material Examination Facility (IMEF) of KAERI. As the hot-cell is active, direct human workers' access to the in-cell is not possible because of the nature of the high radiation level of spent PWR fuel. All DUPIC nuclear fuel fabrication processes and equipment operations, therefore, are fully conducted by means of master-slave manipulators or other auxiliary tools in a remote manner.

Undesirable products such as spent nuclear fuel powder debris and contaminated wastes are inevitably created during the DUPIC nuclear fuel development processes. They are placed on the DUPIC fuel fabrication equipment, the inside floor and wall of the DFDF, thereby contaminating the interior of the DFDF. Such radioactive waste is required to be cleaned and disposed of to prevent the contamination from spreading inside the DFDF, and also, it should be collected in order to measure its quantity before it is put into the waste drum and leaves the in-cell for disposal. Therefore, emphasis from a remote system viewpoint is placed on a remote decontamination of the contaminated in-cell floor and wall and the fabrication equipment without human workers being exposed to the radioactive environment.

The objective of this paper was to develop the decontamination systems that could be operated remotely from the out-of-cell to decontaminate the contaminated floor surface and fabrication equipment and collect the high radioactive waste and without endangering the human operators.

2. Overall Design Considerations

The decontamination operations of contaminated floor and equipment surface where, as the hot-cell is active, direct human access, even with protection, to the in-cell is not possible due to high radioactivity must be performed by means of remote equipment or devices in a remote manner. The successful development, in-cell installation and operation of the decontamination systems involve three mutually dependent design elements –

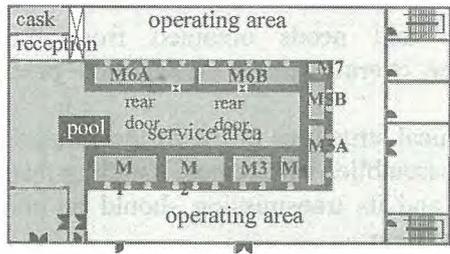


Fig. 1 The layout of the IMEF at KAERI.

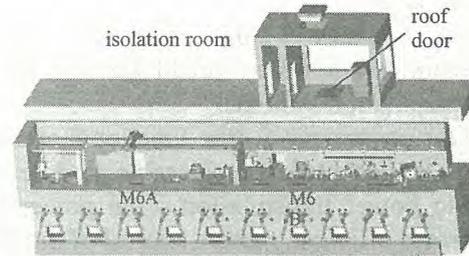
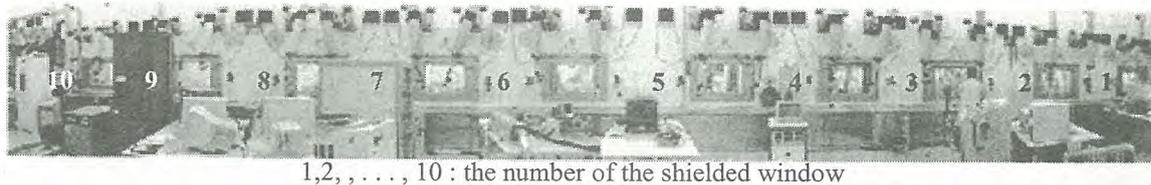


Fig. 2 The graphic model of the M6 hot-cell – DFDF.



1,2, , . . . , 10 : the number of the shielded window
Fig. 3 The M6 hot-cell seen from the operating area (out-of-cell).

the DFDF and DUPIC fuel fabrication equipment's arrangement, and the remote operation and maintenance of the decontamination systems. In the design processes, a compromise should be made between these elements. The design concept, therefore, must include all the mechanical, electrical, and system integration elements required to produce fully functional decontamination systems for the DFDF applications.

2.1 DFDF and In-Cell Fabrication Equipment's Arrangement

The IMEF mainly consists of seven cells – M1 through M7 cells, as shown in Fig. 1. These cell walls were made of a heavy duty concrete with a thickness of 1.1m. The M1 through M5 and M7 cells have been being used for the experimentation of nuclear fuels and reactor materials. The M6 cell, DFDF, has been exclusively occupied for DUPIC nuclear fuel fabrication since 2000. As shown in Fig. 2, this M6 cell is divided into two rooms by a stainless steel wall – the M6A cell for fuel powder and pellet fabrication and M6B cell for fuel rod fabrication. Each cell has a configuration of 10x2x4 (LxWxH) m. The interior of each cell lined with a continuous stainless steel sheet metal liner provides the reliable integrity of the compartment. One overhead crane mounted on the tracks is used to handle the heavy fabrication equipment or devices traversing the length of the two cells. Each cell has five shielding windows, which provide in-cell information or situations, and each window workstation is equipped with two pairs of master-slave manipulators, as shown in Fig. 3. The motions of a human operator via a master manipulator (out-of-cell) are reproduced at the slave manipulator (in-cell). Utilities such as water, gas, compressed air, and electricity are provided from the out-of-cell to the in-cell through penetrations. The DUPIC fuel fabrication equipment or other auxiliary devices [4] can be remotely connected to the outlets of such utilities. The in-cell utility lines of water, gas, air, and electricity for fabrication equipment are installed on the in-cell floor and wall. The size, mobile means, and cleanup and collection tools of the

decontamination systems should be determined based on the environmental and spatial limitations of the M6 in-cell facility, geometrical constraints of the fabrication equipment, accessibility to targets to be decontaminated overcoming obstacles, and availability and location of utilities necessary for operation.

2.2 Remote Operation and Maintenance

The design of the decontamination systems for use in the DFDF should take into account remote manipulation strategies, remote repair procedures, and the capabilities and limitations of the remote maintenance handling devices that are available at the DFDF. In addition, all the decontamination operations conducted within the cell should be viewed and monitored by the human operators located at the out-of-cell. Hence, the design of the decontamination systems should include the following considerations [5]:

- Human operator - the operator's experience and needs obtained from the previous decontamination tasks should be reflected in the overall system design and process of the decontamination systems.
- Modular construction - the functional and mechanical structures of the decontamination systems need to be designed in replaceable modules or subassemblies with remote handling features.
- Electric power transmission - the power source and its transmission should be considered to implement efficient, remote control of the desired system.
- Decontamination - the decontamination strategies should be included in the design of the modules or subassemblies.
- Radiation effects - the radiation effects on materials and mechanical and electrical components should be considered in the design.

3. Decontamination Systems

Based on the design considerations described in the previous section, the remotely operated decontamination systems developed are divided into three systems – FEDS (Fabrication Equipment Decontamination System), ROCCS (Remotely Operated Contamination Collection System) -I, and ROCCS-II. FEDS and ROCCS-I were developed for use in the in-cell of the DFDF. ROCCS-II was developed for use in the isolation room of the DFDF.

3.1 FEDS

FEDS was developed to decontaminate contaminated surface of equipment and other devices used for DUPIC fuel fabrication inside the M6 hot-cell - DFDF. FEDS consists of an in-cell chamber and dry ice blasting system, which are operated out-of-cell in a remote manner.

3.1.1 In-Cell Chamber

The in-cell chamber [6] is a separate closed room constructed inside the hot-cell. This chamber provides a means of preventing the contamination from spreading inside the hot-cell during decontamination operation. It was designed to allow remote operation to be effected using a master-slave manipulator and other auxiliary tools installed inside the cell.

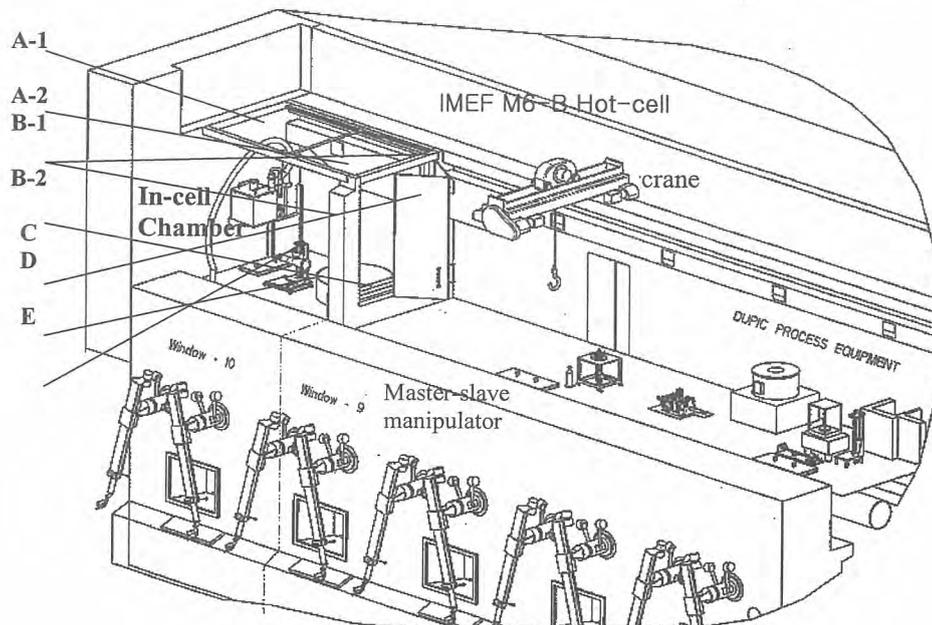
The in-cell chamber comprises horizontal, vertical, and auxiliary modules for forming into a closed room and rotary and grasping modules for improving decontamination tasks. Fig. 4 shows the schematic of the in-cell chamber including all the modules. All motions of these modules are generated by compressed air in a remote manner, and no electricity was used inside the chamber. As shown in Figs. 4 and 5, the in-cell chamber is located in the most left side of the M6B hot-cell by partitioning the middle of the 9th shielded window and 10th. The horizontal module (A) forms a ceiling of the chamber in a telescopic shape, which was designed not to block the mobility of the crane. The vertical module (B) is a main entrance to import equipment or devices required for decontamination into the chamber and to export them outside the chamber after decontamination. The vertical module has a folding slat mechanism of which several slats are connected in series each other. The vertical module has upward and downward motions to close and open the vertical side of the in-cell chamber. The auxiliary module (C) is a second door to secure a sealing of the chamber when closed. This chamber was also designed to be used as an additional room for other use by keeping both the vertical module and auxiliary module open when it is not in use. The rotary module (D) allows

equipment or devices to be decontaminated to rotate in all directions relative to the decontaminating tools, thereby improving the degree of the decontamination. The grasping module (E) can hold the decontaminating tools and allows the decontamination tasks to be semi-autonomous, thereby reducing the operator's mental and physical burdens.

3.1.2 Dry Ice Blasting System

The Dry Ice (solid carbon dioxide) Blasting System [6] that utilizes dry ice pellets as blasting media was developed to remove the contaminants placed or fixed on equipment and other devices used for DUPIC fuel fabrication. Dry ice blasting method was employed in the DFDF because it does not produce second contaminants after decontamination. The Dry Ice Blasting System largely consists of an air cleaner, a blasting body, a dry ice and air feeding lines, a blasting head, and a simultaneous suction device. This system is fully operated by compressed air, and no electricity is needed. The air cleaner and the blasting body are located in the operating area, and the blasting head and the simultaneous suction device installed inside the in-cell chamber. The dry ice and air feeding lines provide a passage between the blasting body and the blasting head.

The air cleaner consists of pre-filter, line filter, and coalescent filter. This cleaner is used to remove such contaminants as water, oil, fine hard particles, etc., which are contained into compressed air supplied from the IMEF. The cleaned compressed air with 8.0 bar produced from the air cleaner is supplied to the blasting body. The blasting body as a core of the Dry Ice Blasting System is two hose system and consists of several mechanical parts of hopper, dry ice hose, compressed air hose, filters, air vibrator, and pneumatic control parts of a number of control valves, ball valves, and regulators. Dry ice pellets are supplied to the blasting body through the hopper. The dry ice and air feeding lines supply, via own line, the dry ice pellets and necessary compressed air from the blasting body to the blasting head. Dry ice pellets and compressed air left from the blasting body are joined at the blasting head. Dry ice pellets are blasted to targets to be decontaminated through a nozzle attached to the blasting head with high-pressurized speed. A purge system is also added to the blasting body in order to prevent the contamination inside the chamber from flowing back to the operating area through the dry ice and air feeding lines. Fig. 6 shows the developed blasting body of the Dry Ice Blasting System and FEDS installed in the DFDF. The operator located in the operating area can control, monitor, and supervise,

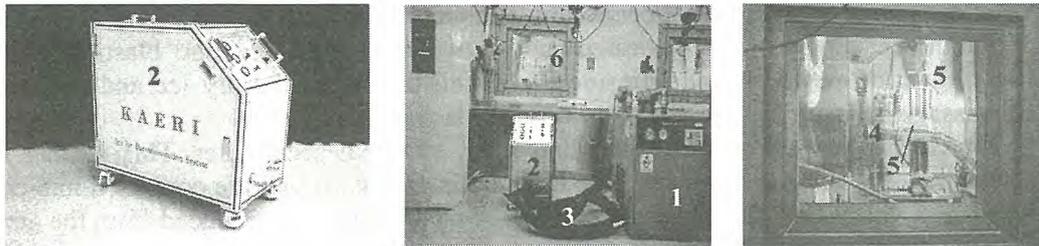


A-1: Fixed, A-2: Movable, B-1: U guide, B-2: Folder slats

Fig. 4. The schematic of the in-cell chamber.



Fig. 5 The in-cell chamber constructed inside the DFDF.



a) The developed blasting body b) The Dry Ice Blasting System installed in the DFDF
 1: air cleaner, 2: blasting body, 3: dry ice and compressed air feeding lines, 4: blasting head, 5: simultaneous suction device
 Fig. 6 FEDS installed in the DFDF.

from the front of the 10th shielded window, the decontamination processes performed inside the chamber.

3.2 ROCCS-I

3.2.1 System Overview

ROCCS-I [7] was developed to decontaminate the contaminated in-cell floor of the DFDF, M6 hot-cell of the IMEF, and collect loose spent nuclear fuel debris and other radioactive waste. As shown in Fig. 7, the ROCCS-I was designed and developed to allow remote operation and maintenance to be effected using master-slave manipulators and other auxiliary tools located in the hot-cell. ROCCS-I mainly consists of an electrically driven, tracked mobile platform, a rotary brush tool, and a vacuum unit, which were constructed in modules to facilitate maintenance. They can be separated and assembled easily by remote manipulation. ROCCS-I has a small and compact configuration of 300x400x400 (LxWxH) mm, a maximum speed of 0.2 m/sec, a small turning radius and forward and reserve motions, and an ability to collect contaminated particles of up to 0.3 μm .

The vacuum unit installed above the mobile platform consists of a base frame, an electrical blower, and two filters. All modular components of the vacuum unit can also be remotely exchanged or maintained. A ceramic filter is connected to the brush tool preceding a HEPA (High-Efficiency Particulate Air) filter. A ceramic filter can collect contaminated particles bigger than 1.0 μm mobilized by the brush, and particles as small as 0.3 μm are captured by the HEPA filter. By remote manipulation, the ceramic filter box that is reusable is designed to be able to transfer the collected material to another container using master/slave manipulators, while the entire HEPA filter box is designed to be disposed of.

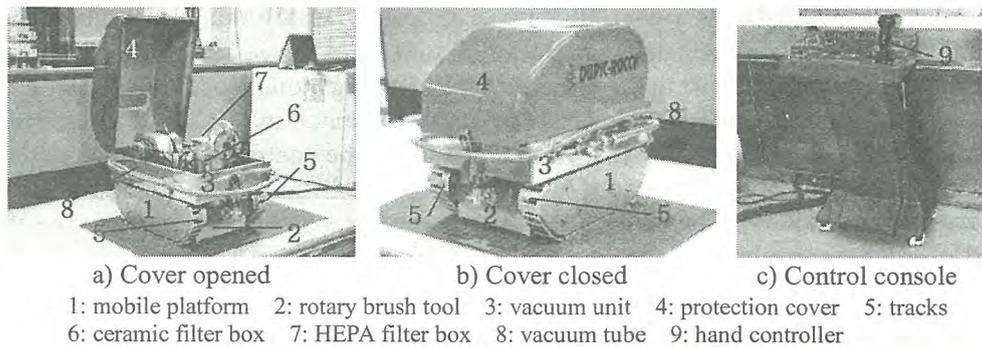


Fig. 7 The developed ROCCS-I.

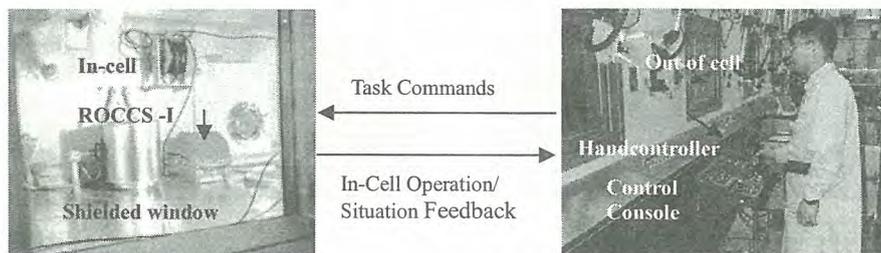


Fig. 8 The human operator, via a handcontroller, manipulating the in-cell ROCCS-I.

3.2.2 Remote Operation

ROCCS-I is powered and controlled via a tether in the manual control mode. This form of power and control was selected because powering ROCCS-I via a tether allows for reliable operations of unlimited duration and eliminates the needs for batteries. Transmission of the control and power signals through a tether ensures reliable control of ROCCS-I, regardless of the remote distance or barrier between the operated ROCCS-I and the operator. The handcontroller is a man-machine interface device that allows interaction between the human operator and the in-cell ROCCS-I. The handcontroller enables the operator to manipulate ROCCS-I throughout the workenvelope simply by moving it.

As shown in Fig. 8, the operator located out-of-cell controls, via a handcontroller, ROCCS-I in order to move it into the desired work location in-cell. The operator then controls the control knobs attached on the console panel to operate both the brush and vacuum unit. In addition, cleanup and collection in an area where ROCCS-I is inaccessible or on surfaces of the in-cell process equipment can be done by a flexible stainless vacuum tube mounted on ROCCS-I. After guiding ROCCS-I to a given target nearby, the operator manipulates the slave manipulator to grasp the vacuum tube via a master manipulator, and then move it to the target to be cleaned. The operator then drives the vacuum for cleaning. The operator out-of-cell supervises all cleanup and collection operations in-cell through shielding windows. The ROCCS-I described in this paper has been installed in the M6 hot-cell of the IMEF at KAERI after tests at the mock-up and is now under hot-cell operation.

3.3 ROCCS-II

3.3.1 System Overview

ROCCS-II [8] was developed to decontaminate the contaminated floor surface of the isolation room of the DFDF and collect loose spent nuclear fuel debris and other radioactive waste. ROCCS-II has more intelligence compared to ROCCS-I in terms of autonomous navigation, omnidirectional cleanup and added vision information. As shown in Fig. 9, ROCCS-II mainly consists of five replaceable submodules - a mobile module for navigation, a cleaning module for dislodging and sucking the contaminated waste, a sensing module for obstacle avoidance, a collection module for storing acquired waste, and a cover module for protecting the collection module. Such modular construction facilitates remote maintenance when necessary. Each submodule can be easily separated and assembled by remote manipulation, using a crane and a master-slave manipulator installed at the isolation room. The used filter box can also be remotely exchanged for new one using a master-slave

manipulator in situ. ROCCS-II has a configuration of 465x465 (HxD) mm, a maximum speed of 10 cm/sec, an ability to collect contaminated particles of up to 0.3 μm , as well as an ability to clean up the floor surface in all directions relative to the bottom of the cleaning module of ROCCS-II.

The control console is the interface device between the operator and ROCCS-II located at a remote site. All functions for controlling ROCCS-II are contained in it. The control console includes a two-axis handcontroller for navigation, control knobs for cleanup and collection, and a graphic simulator for monitoring and path generation. The controller, circuitry, power supplies, and necessary software are also installed within the console.

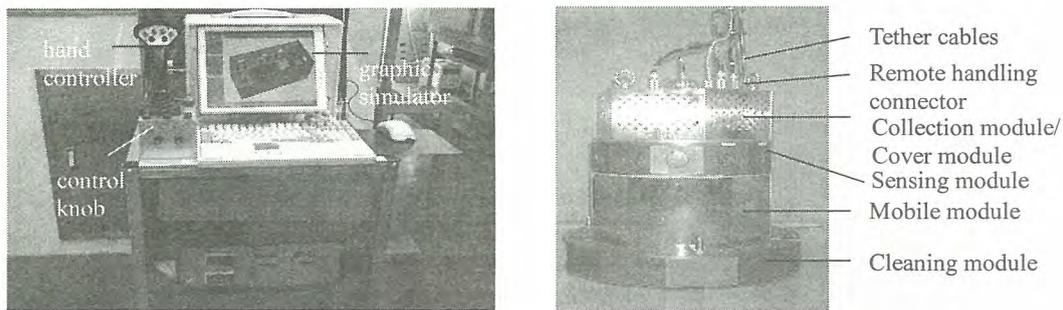


Fig. 9. The developed ROCCS-II.

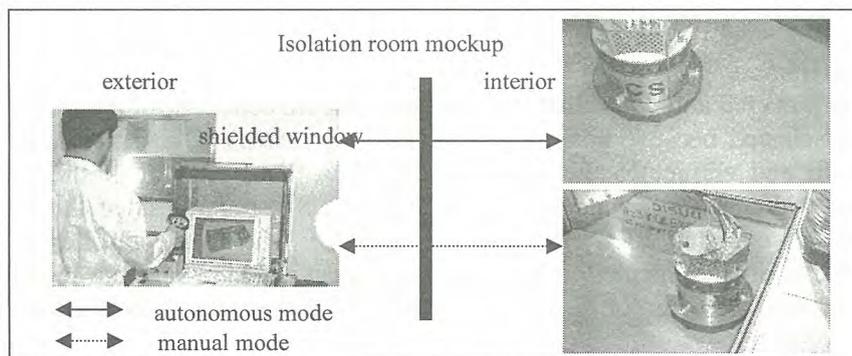
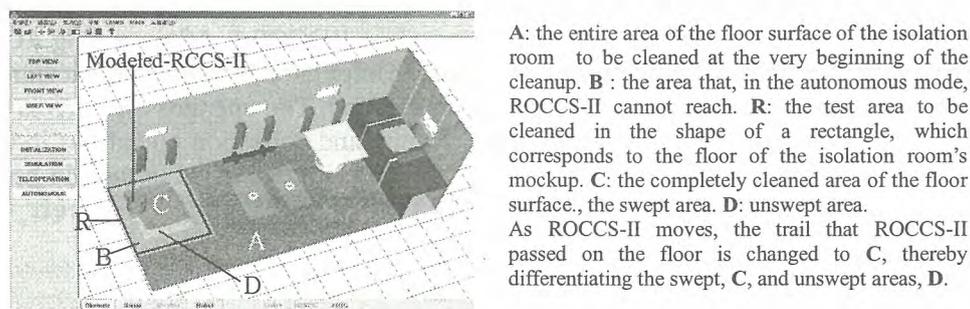


Fig. 10 The mockup test environment of ROCCS-II for decontamination operations.



A: the entire area of the floor surface of the isolation room to be cleaned at the very beginning of the cleanup. B: the area that, in the autonomous mode, ROCCS-II cannot reach. R: the test area to be cleaned in the shape of a rectangle, which corresponds to the floor of the isolation room's mockup. C: the completely cleaned area of the floor surface., the swept area. D: unswept area. As ROCCS-II moves, the trail that ROCCS-II passed on the floor is changed to C, thereby differentiating the swept, C, and unswept areas, D.

Fig. 11 The cleanup status of ROCCS-II displayed on the graphic simulator.

3.3.2 Graphic Simulator

A graphic simulator was developed to provide the operator with added vision information and a more useful means for developing an improved ability to simulate and control ROCCS-II. The graphic simulator largely consists of a graphical model of ROCCS-II and a graphical model of the isolation room (refer to Fig. 11). This simulator allows the operator to simulate any desired decontamination task that ROCCS-II will perform inside the isolation room. In addition the

graphic simulator interfaces with the control system of ROCCS-II, thereby providing the operator with the additional vision information during operation. The cleaning paths generated from the graphic simulator are used as a command input to operate ROCCS-II. The decontamination processes of ROCCS-II are displayed in real-time on the graphic simulator. The operator can supervise and intervene the decontamination operations of ROCCS-II through the graphic simulator without seeing the interior of the isolation room through the shielded windows, thereby reducing the operator's physical and mental burdens.

3.3.3 Remote Operation at Mockup

ROCCS-II developed has been tested to verify its performance and capabilities in the mockup of the isolation room at the DUPIC test facility. Fig. 10 shows the mockup test environment of ROCCS-II for a decontamination operation. The human operator and control console are located outside of the mockup of the isolation room, and ROCCS-II located inside it. As the same as in a real application, ROCCS-II is powered and controlled via a tether.

ROCCS-II is operated either by the manual control or by the autonomous control. The graphic simulator is activated both in the manual and autonomous control mode. In the manual control mode the operator manipulates, via the handcontroller, ROCCS-II to move it into the desired locations for decontamination. The operator then controls the control knobs to activate both the cleaning and collection modules. In the autonomous mode ROCCS-II, at the initial stage, identifies its current position and steering direction before it moves. The robot then moves to clean the floor following the path generated from the graphic simulator. In the autonomous mode ROCCS-II, however, has limitations of the cleaning area in terms of mobility because of the nature of the ultrasonic sensors installed on ROCCS-II. Such an inaccessible area around the inside wall in the autonomous mode can be cleaned by switching the control mode to the manual and, via a handcontroller, controlling ROCCS-II to move close to the wall edge. For both the manual and autonomous operations the decontamination status of ROCCS-II is always displayed on the graphic simulator in real-time. Fig. 11 shows the cleanup status of the floor performed by ROCCS-II, which is displayed on the graphic simulator. The swept and unswept area can be clearly identified from the graphical simulator. In both the manual and autonomous modes, the operator can monitor all the cleanup and collection operations of ROCCS-II both through the shielded windows and the graphic simulator.

3.4 Other Research Activities

Currently, our research efforts are putting into the development of mopping systems to be used in the DFDF - TOMS (TeleOperated Mopping System) and TOSS (TeleOperated Swabbing System). TOMS was designed to remotely mop the contaminated floor surface of the M6 hot-cell with specially designed tool after, using ROCCS-I and -II, contaminated dust or dirt placed on the floor was removed. TOMS, employing a bilateral control scheme, has the capability of reflecting a mopping force occurring between the mopping tool of the mobile mopping slave and the floor surface to the human operator through the master, thereby improving the efficiency of remote surface decontamination. The construction of TOMS was completed, and currently, we focus on the performance tests of TOMS in order to acquire its reliability and stability before it is put into service.

TOSS is also being developed to remotely clean the contaminated M6 in-cell wall. A conceptual design of a swabbing system was completed, and its detailed design development has been undertaken.

4. Conclusions

Remotely Operated Decontamination Systems developed in this work demonstrated the remote systems applications for performing decontamination tasks in a high-radiation field where direct human access to the in-cell is strictly limited. The significance of this development is in providing Remotely Operated Decontamination System that can decontaminate a contaminated in-cell floor and fabrication equipment and auxiliary devices, and collect dry radioactive waste, completely eliminating human interaction with hazardous contaminants. The decontamination operations in a contaminated DFDF using Remotely Operated Decontamination Systems have the benefits of improved worker safety, increased facility soundness and reduced personnel exposure dose rate.

5. Acknowledgements

This work was performed under the Long-term Nuclear R&D program sponsored by the Korean Ministry of Science and Technology.

6. References

- [1] T. Khan and J. Xie, "The Robotic Future: Aiding ALARA and Reducing Costs," *Nuclear Engineering International, Remote Technology Report*, pp. 2-4, 1995.
- [2] W. Zollinger, "Surface Decontamination Using a Teleoperated Vehicle & Kelly Spray/Vacuum System," *Nuclear Waste Management IV*, pp. 529-536, 1991.
- [3] M. S. Yang, *et al.*, "Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors – DUPIC Manufacturing and Process Technology," *KAERI/RR-2022/99*, Korea Atomic Energy Research Institute, 2000.
- [4] K. Kim, *et al.*, "Equipment Arrangements for DUPIC Nuclear Fuel Fabrication and their Remote Operation and Maintenance in Hot-Cell," *J. Nuclear Science and Technology*, supplement 3, p. 799-802, 2002.
- [5] T. Burgess, *et al.*, "Design Guidelines for Remotely Maintained Equipment" *ORNL/TM-10864*, Oak Ridge National Laboratory, 1988.
- [6] J. Park, *et al.*, "Development of Maintenance Equipment for Nuclear Material Fabrication Equipment in a Highly Active Hot Cell", *KAERI/RR-2062/99*, Korea Atomic Energy Research Institute, 2000.
- [7] K. Kim, *et al.*, "Radioactive Waste Collection Vehicle for Hot-Cell Applications," *Proc. 32th Int'l Symp. on Robotics*, pp 1271 – 1275, Korea, 2001.
- [8] K. Kim, *et al.*, "Robotic Contamination Cleaning System," *Proc. IEEE/RSJ, Int'l Con. Intelligent Robots and Systems*, pp. 1874-1879, Switzerland, 2002.

LiCl 용융염 중에서 희토류 산화물과 산화리튬의 반응특성에 관한 연구

A Study on the Reaction Characteristics of Rare Earth Oxides with Lithium Oxide in LiCl Molten Salt

오승철, 박성빈, 김상수, 도재범, 박성원
한국원자력연구소

요 약

산화물 핵연료의 리튬환원공정에서 생성되는 Li_2O 와 희토류원소 산화물(RE_2O_3)의 화학적 반응을 밝혔다. 스칸듐, 이트륨, 프라세오디뮴, 네오디뮴, 사마륨, 유러븀, 가돌리늄, 이테르븀 및 루테튬의 산화물은 각각 어떤 Li_2O 의 임계농도 이상에서 Li_2O 와 반응하여 복합산화물(LiREO_2)을 형성하고, 이들 산화물이 복합산화물을 형성하는 각각의 Li_2O 임계농도는 0.1 wt%, 1.9 wt%, 5.3 wt%, 5.0 wt%, 3.0 wt%, 3.9 wt%, 2.9 wt%, 2.6 wt% 및 0.3 wt%로 나타났다. CeO_2 및 란타넘 산화물은 Li_2O 와 반응하지 않는 것으로 나타났다. 실험에서 얻은 이들 희토류원소 복합산화물의 LiCl 용융염에 대한 용해도는 매우 작았다.

Abstract

We had clarified the reactions of the rare earth oxides(RE_2O_3) with lithium oxide produced in lithium reduction process of oxide fuels. Oxides of scandium, yttrium, praseodymium, neodymium, samarium, europium, gadolinium, ytterbium and lutetium reacted with lithium oxide in the higher concentration than the respective certain critical concentration of lithium oxide and formed complex oxides(LiREO_2). The critical lithium oxide concentrations for the formation of complex oxides of scandium, yttrium, praseodymium, neodymium, samarium, europium, gadolinium, ytterbium and lutetium oxide were respectively 0.1 wt%, 1.9 wt%, 5.3 wt%, 5.0 wt%, 3.0 wt%, 3.9 wt%, 2.9 wt%, 2.6 wt% and 0.3 wt%. Cerium and lanthanum oxide did not react with lithium oxide. These complex oxides obtained from experiments have limited solubility in lithium chloride at 650 °C.

1. 서 론

리튬환원공정은 650 °C의 LiCl 용융염 중에서 Li 금속을 사용하여 사용후 산화물핵연료를 금속으로 환원하는 공정으로 이 때 생성되는 Li_2O 는 용융염에 용해되고 생성된 금속은 염과 분리된다.

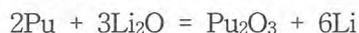
희토류원소 산화물은 생성 자유에너지(ΔG_f)가 산화리튬의 생성자유에너지에 비하여 작기 때문에 환원되지 않는 것으로 알려져 있다¹⁾. 이에 대하여 미국 알곤국립연구소와²⁾ 일본 전력중앙연구소에서는³⁾ 희토류원소 산화물(RE_2O_3)은 Li_2O 와 다음과 같이 반응하여 복합산화물을 형성하고 일

부가 염에 용해되는 것으로 보고하고 있다.



용해되지 않는 희토류원소 산화물은 리튬환원공정에서 생성되는 금속제품 속으로 혼입될 수 있고, 이 때 혼입된 산화물은 금속제품을 장기 저장할 때에 건전성에 영향을 미칠 수 있으며 또한 금속제품을 전해정제할 때에 염 중의 UCl_3 를 UO_2 로 산화시켜, 전환된 UO_2 는 전기분해에 의하여 회수할 수 없을 것으로 예상된다.

또한 미국 알콘 국립연구소에서는 효율적으로 플루토늄을 환원하기 위해서는 Li_2O 농도를 3 wt% 이하로 유지해야 한다고 보고하고 그 이유를 다음과 같은 화학평형으로 설명하고 있다⁴⁾.



지금까지 Li_2O 농도에 따른 Li_2O 와 희토류원소 산화물의 반응이나 반응속도 등이 알려진 바 없어 본 연구에서는 리튬환원공정에서 Li_2O 농도에 따른 희토류원소 산화물의 반응을 조사하였다.

2. 실험

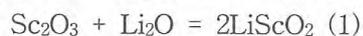
용융염을 사용한 실험은 모두 고 순도 아르곤 글로브박스 중에서 수행하였다. 글로브박스 중의 분위기는 산소 10 ppm 이하, 수분 20 ppm 이하로 유지되었다. 반응용기는 용량 75 mL의 니켈 도가니를 사용하였으며, 교반봉 역시 니켈 재질을 사용하였다. 처음에 탄탈륨 도가니를 사용하였으나 부식이 심하게 일어나 니켈 도가니를 사용하여 반응실험을 수행하였다. 희토류원소의 산화물과 Li_2O 의 반응실험은 LiCl 40 g과 Li_2O 1.4~3.5 g(3~8 wt%)을 도가니에 넣고 650 °C로 온도를 올린 다음 3 시간 교반 후에 Li_2O 농도를 측정하기 위하여 염의 샘플을 채취하고 이어서 희토류원소 산화물을 가하고 교반하면서 반응시켰다. 일정시간 마다 샘플을 채취하여 Li_2O 농도변화를 측정하였으며, Li_2O 농도를 측정하기 위한 샘플은 직경 4 mm인 석영관으로 약 1 mL를 채취하여 100 mL 정량 플라스크에서 증류수에 녹여 25 mL씩 취하여 페놀프탈레인 지시약을 사용하여 0.1 N HCl로 3회 적정하여 Li_2O 농도를 측정하였다. 반응이 끝난 후에 채취하여 물에 용해한 샘플의 일부는 ICP로 희토류원소 금속을 분석하였다. 반응이 끝난 후 도가니 중의 반응생성물은 증류수로 LiCl 을 녹여낸 후에 여과하면서 충분히 증류수로 세척하여 상온에서 진공 건조한 후에 XRD 분석을 하고, ICP에 의하여 희토류원소 및 리튬을 분석하였다.

실험에서 얻은 희토류원소의 복합산화물의 용해도는 650 °C에서 20 시간 동안 교반(180 rpm)하고, 4 시간 동안 정지한 후에 샘플을 채취하여 ICP로 희토류원소 금속을 분석하여 측정하였다. 샘플은 2 µm 스테인리스 스틸 frit을 용접한 1/4 inch 스테인리스 스틸 관을 사용하여 채취하였다.

3. 실험결과 및 고찰

Sc_2O_3 , Y_2O_3 , Pr_2O_3 , Nd_2O_3 , Sm_2O_3 , Eu_2O_3 , Gd_2O_3 , Yb_2O_3 , Lu_2O_3 , La_2O_3 및 CeO_2 와 Li_2O 의 반응시간에 따른 Li_2O 농도변화는 그림 1과 같으며, Li_2O 와의 반응생성물의 XRD에 의한 분석결과는 그림 2-12와 같고, 반응생성물의 원소분석 결과는 표 2와 같다. 실험에서 얻은 희토류원소 복합산화물의 용해도를 측정한 결과는 표 1과 같다. 희토류원소 산화물의 반응생성물은 물에 용해되지 않았다. 이것은 반응생성물의 수용액중의 희토류원소 분석으로 확인하였다.

Sc_2O_3 와 Li_2O 의 반응 생성물의 XRD 분석결과(그림 2) 및 원소분석결과(표 2)에서 Sc_2O_3 는 Li_2O 와 반응하여 다음과 같이 복합산화물을 형성하는 것으로 나타났다.



반응시간에 따른 Li_2O 농도변화(그림 1)에 의하면 Li_2O 의 농도는 감소하다가 약 3 시간 이후에는 변하지 않고 일정한 값(0.1 wt%)을 유지하는 것으로 나타났다. 이때 반응생성물의 XRD 분석

으로 Sc_2O_3 와 LiScO_2 가 고상으로 공존하고 있음을 확인하였고, 또한 반응한 Li_2O 의 양으로부터 계산한 결과에서도 약 1.3 g의 Sc_2O_3 가 남아 있음을 확인하였다. 일정한 온도에서 고상의 Sc_2O_3 와 LiScO_2 가 존재하는 한, 용해한 Sc_2O_3 및 LiScO_2 의 농도는 일정한 것으로 볼 수 있다. 따라서 반응식 (1)에서 이 때의 Li_2O 의 농도는 평형농도임을 알 수 있고, 이로부터 이 반응이 일어나기 위해서는 Li_2O 농도가 평형농도 이상이 되어야 하며 이 평형농도가 반응이 일어날 수 있는 Li_2O 의 임계농도임을 알 수 있다.

Y_2O_3 와 Li_2O 의 반응은 약 3 시간 이후에 끝나고 이 때의 Li_2O 농도가 약 1.9 wt%로 나타났다(그림 1). 이 때 반응한 Li_2O 의 양으로부터 계산한 결과 반응하지 않고 남아있는 Y_2O_3 가 약 0.4 g 임을 확인하였다. 따라서 Li_2O 의 임계농도는 1.9 wt%로 볼 수 있다. 반응생성물의 XRD 분석결과(그림 3) 및 원소분석결과(표 2)에서 Y_2O_3 와 Li_2O 의 반응생성물은 복합산화물(LiYO_2)임을 확인하였다.

Pr_2O_3 와 Li_2O 의 반응은 약 1.5 시간 이후에 끝나고(그림 1), 이 때 반응한 Li_2O 의 양으로부터 계산한 결과 반응하지 않고 남아있는 Pr_2O_3 가 약 7.7 g 임을 확인하였다. 따라서 Li_2O 의 임계농도는 5.3 wt%로 볼 수 있다. 반응생성물의 XRD 분석결과(그림 4) 및 원소분석결과(표 2)에서 Pr_2O_3 와 Li_2O 의 반응생성물은 복합산화물(LiPrO_2)임을 확인하였다.

Nd_2O_3 와 Li_2O 의 반응은 약 3 시간 이후에 끝나고(그림 1), 이 때 반응한 Li_2O 의 양으로부터 계산한 결과 반응하지 않고 남아있는 Nd_2O_3 가 약 1.6 g 임을 확인하였다. 따라서 Li_2O 의 임계농도는 5.0 wt%로 볼 수 있다. 생성물의 XRD 분석결과(그림 5) 및 원소분석결과(표 2)에서 Nd_2O_3 와 Li_2O 의 반응생성물은 복합산화물(LiNdO_2)임을 확인하였다.

Sm_2O_3 와 Li_2O 의 반응은 약 6 시간 이후에 끝나고(그림 1), 이 때 반응한 Li_2O 의 양으로부터 계산한 결과 반응하지 않고 남아있는 Sm_2O_3 가 약 7.3 g 임을 확인하였다. 따라서 Li_2O 의 임계농도는 3.0 wt%로 볼 수 있다. 생성물의 XRD 분석결과(그림 6)에서 Sm_2O_3 와 Li_2O 의 반응생성물은 복합산화물(LiSmO_2)임을 확인하였다.

Eu_2O_3 와 Li_2O 의 반응은 약 9 시간 이후에 끝나고(그림 1), 이 때 반응한 Li_2O 의 양으로부터 계산한 결과 반응하지 않고 남아있는 Eu_2O_3 가 약 1.7 g 임을 확인하였다. 따라서 Li_2O 의 임계농도는 3.9 wt%로 볼 수 있다. 생성물의 XRD 분석결과(그림 7) 및 원소분석결과(표 2)에서 Eu_2O_3 와 Li_2O 의 반응생성물은 복합산화물(LiEuO_2)임을 확인하였다.

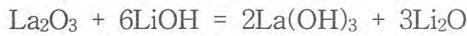
Gd_2O_3 와 Li_2O 의 반응은 약 12 시간 이후에 끝나고(그림 1), 이 때 반응한 Li_2O 의 양으로부터 계산한 결과 반응하지 않고 남아있는 Gd_2O_3 가 약 2.8 g 임을 확인하였다. 따라서 Li_2O 의 임계농도는 2.9 wt%로 볼 수 있다. 생성물의 XRD 분석결과(그림 8) 및 원소분석결과(표 2)에서 Gd_2O_3 와 Li_2O 의 반응생성물은 복합산화물(LiGdO_2)임을 확인하였다.

Yb_2O_3 와 Li_2O 의 반응은 약 6 시간 이후에 끝나고(그림 1). 이 때 반응한 Li_2O 의 양으로부터 계산한 결과 반응하지 않고 남아있는 Yb_2O_3 가 약 0.3 g 임을 확인하였다. 따라서 Li_2O 의 임계농도는 2.6 wt%로 볼 수 있다. 생성물의 XRD 분석결과(그림 9) 및 원소분석결과(표 2)에서 Yb_2O_3 와 Li_2O 의 반응생성물은 복합산화물(LiYbO_2)임을 확인하였다.

Lu_2O_3 와 Li_2O 의 반응은 약 9 시간 이후에 끝나고(그림 1). 이 때 반응한 Li_2O 의 양으로부터 계산한 결과 반응하지 않고 남아있는 Lu_2O_3 가 약 2.4 g 임을 확인하였다. 따라서 Li_2O 의 임계농도는 0.3 wt%로 볼 수 있다. 한편 Lu_2O_3 모두가 반응하는 조건에서의 반응생성물의 XRD 분석결과(그림 10)에서 LiLuO_2 파일이 없어 확인 할 수 없었으나 Lu_2O_3 , LuOCl , LuCl_3 의 피크가 존재하지 않고 또한 원소분석결과(표 2)에서 Lu_2O_3 와 Li_2O 의 반응생성물은 복합산화물(LiLuO_2)로 추정되었다.

세륨 산화물의 경우에는 Ce_2O_3 는 산화되기 쉬워 시판되지 않기 때문에 4가의 CeO_2 를 사용하였다. Li_2O 의 농도변화(그림 1), XRD 분석결과(그림 11) 및 원소분석결과(표 2)로부터 CeO_2 와 Li_2O 의 반응은 일어나지 않는 것으로 나타났다.

La₂O₃와 Li₂O의 반응 역시 일어나지 않는 것으로 나타났으며(그림 1), 반응생성물의 XRD 분석(그림 12) 및 원소분석결과(표 2)에서 La(OH)₃로 확인되었다. 이것은 반응생성물로부터 LiCl을 물로 녹여내는 과정에서 다음과 같은 반응이 일어난 결과로 추정되었다.



이것을 확인하기 위하여 같은 비율의 La₂O₃, Li₂O 및 LiCl을 혼합하고 물을 가한 후 약 3시간 교반 후에 고체를 여과하고 상온에서 진공 건조하여 XRD 분석을 하였더니 같은 결과가 얻어졌다. 따라서 La₂O₃는 용융염 LiCl중에서 Li₂O와 반응하지 않는 것으로 판단된다.

Li₂O의 임계농도 이하에서는 복합산화물 LiREO₂이 분해되어 Li₂O 및 RE₂O₃가 생성됨을 분석에 의하여 확인하였으며, Li₂O의 임계농도 이상에서 측정된 복합산화물의 용해도를 표 1에 수록하였다.

이상의 결과들로부터 희토류원소 산화물이 리튬환원공정에서 생성된 Li₂O와 반응하여 복합산화물을 형성하기 위해서는 Li₂O 농도가 각각의 임계농도 이상이 되어야 하며 반응시간은 1.5 - 12 시간이고, 실제 리튬환원공정에서 희토류원소는 산화물 혹은 복합산화물로 침전될 것으로 생각된다.

감사의 글

본 논문은 과학기술부의 원자력 중장기 연구개발 사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. Japan Calorimetry Society, "Thermodynamic Data Base MALT-II." Kagaku-gijutsusya (1992).
2. J. P. Ackerman and C. C. McPheeters, "Advanced Waste Forms from Spent Nuclear Fuel," CONF-950919-11 (1995).
3. T. Usami, M. Kurata et al., "Reactions of Rare Earth Oxides in Li Reduction Process and Properties of Products," 日本電力中央研究所 報告書 T99088 (1999).
4. E. J. Karell, R. D. Pierce et al., "Treatment of Oxide Spent Fuel Using the Lithium Reduction Process," CONF-9606116-12(1996).

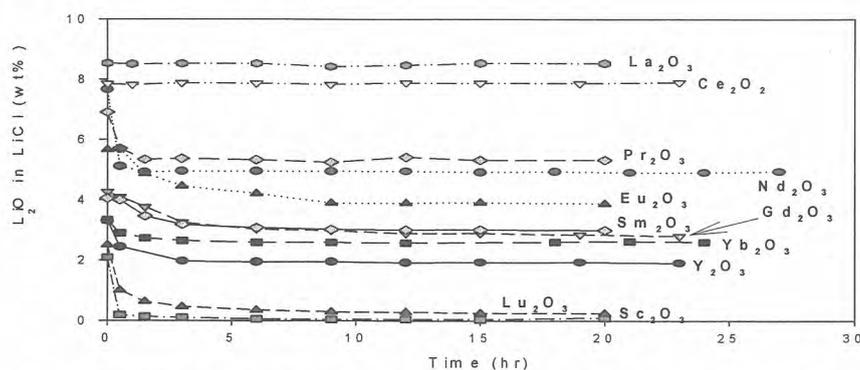


Fig. 1. Change of [Li₂O] in LiCl vs. RE₂O₃-Li₂O reaction time.

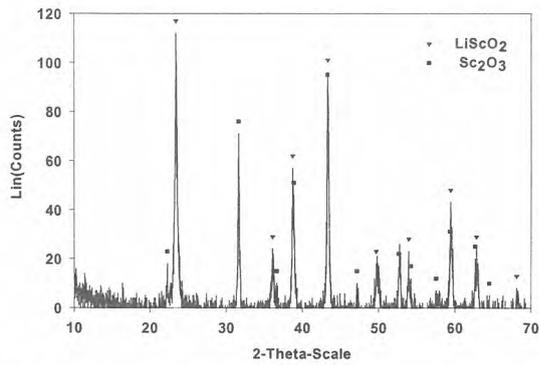


Fig. 2. XRD of $\text{Sc}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$ reaction product.

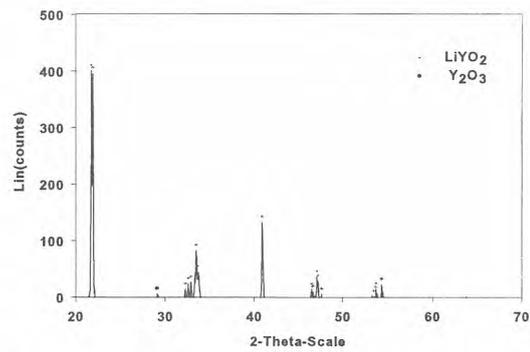


Fig. 3. XRD of $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$ reaction product.

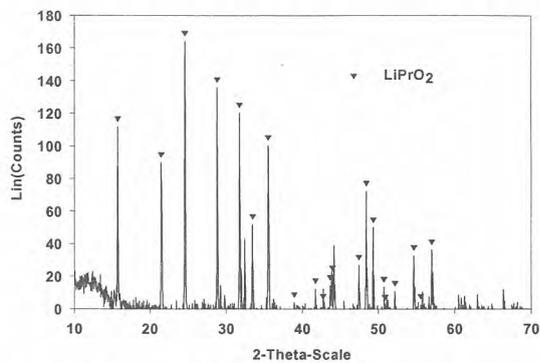


Fig. 4. XRD of $\text{Pr}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$ reaction product.

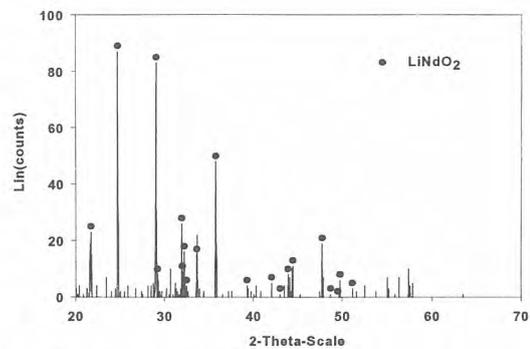


Fig. 5. XRD of $\text{Nd}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$ reaction product.

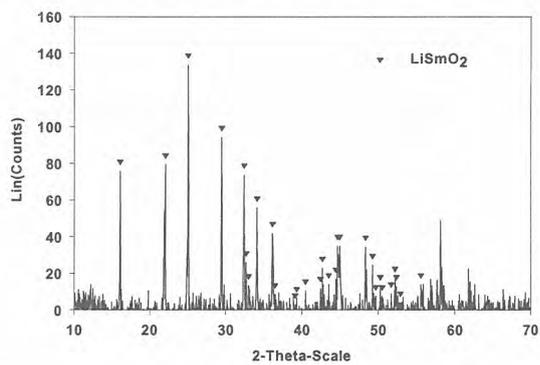


Fig. 6. XRD of $\text{Sm}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$ reaction product.

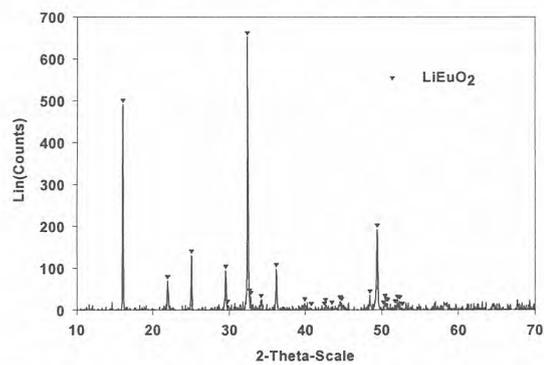


Fig. 7. XRD of $\text{Eu}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$ reaction product.

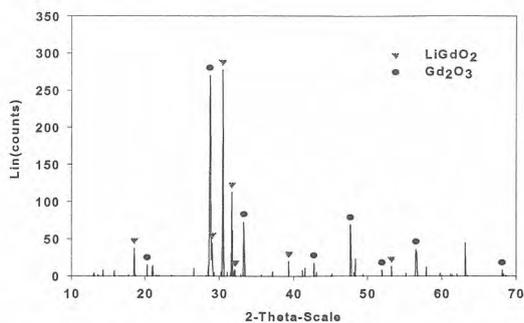


Fig. 8. XRD of $\text{Gd}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$ reaction product.

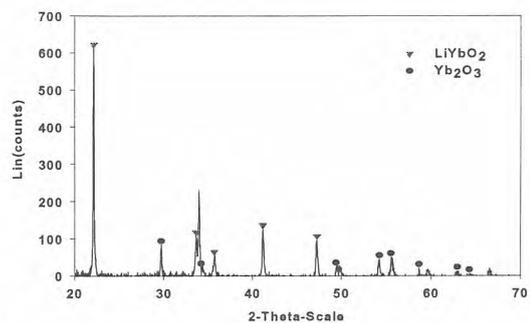


Fig. 9. XRD of $\text{Yb}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$ reaction product.

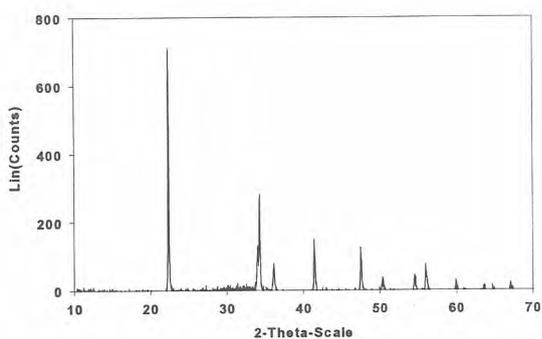


Fig. 10. XRD of $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$ reaction product.

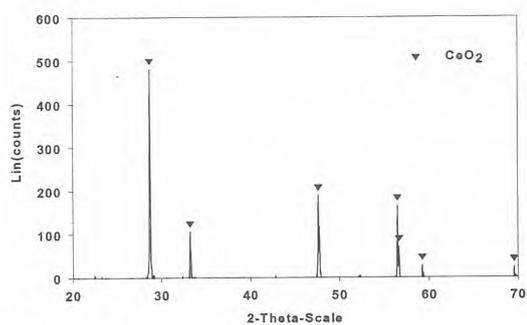


Fig. 11. XRD of $\text{CeO}_2\text{-Li}_2\text{O}$ reaction product.

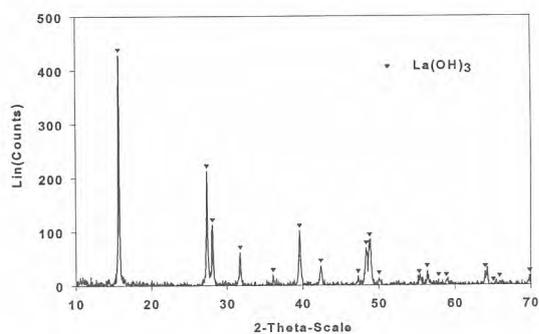


Fig. 12. XRD of $\text{La}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$ reaction product.

Table 1. Solubility of LiREO_2 in LiCl

Compound	Solubility (ppm)	Conc. of Li_2O (wt%)	Critical conc. of Li_2O (wt%)
LiYO_2	10	3.0	1.9
LiPrO_2	19	6.0	5.3
LiNdO_2	457	5.8	5.0
LiSmO_2	198	4.4	3.0
LiEuO_2	1,446	6.7	3.9
LiGdO_2	81	3.5	2.9
LiYbO_2	<9.8	3.0	2.6

Table 2. Analytical Results of Reaction Products by ICP

Reactants	Li wt%(mol/g)	RE element wt%(mol/g)	Calculated O wt%(mol/g)	Expected composition
$\text{Sc}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$	7.5(1.081)	52.1(1.159)	40.4(2.525)	LiScO_2
$\text{Y}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$	5.4(0.806)	71.7(0.778)	22.9(1.431)	LiYO_2
$\text{Pr}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$	3.9(0.562)	76.1(0.540)	20.0(1.250)	LiPrO_2
$\text{Nd}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$	3.9(0.562)	78.0(0.541)	18.1(1.131)	LiNdO_2
$\text{Eu}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$	3.7(0.533)	78.7(0.518)	17.6(1.100)	LiEuO_2
$\text{Gd}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$	3.5(0.498)	79.6(0.506)	16.9(1.059)	LiGdO_2
$\text{Yb}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$	3.3(0.475)	81.2(0.469)	15.5(0.969)	LiYbO_2
$\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$	3.3(0.475)	73.1(0.418)	23.6(1.475)	LiLuO_2
$\text{CeO}_2\text{-Li}_2\text{O}$	Negligible	78.0(0.557)	22.0(1.375)	CeO_2
$\text{La}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$	Negligible	69.0(0.497)	31.0(1.938)	La(OH)_3

제3분과(D)

방사선안전 및 환경

빈 면

월성 1호기 주기적안전성평가
- 기체 및 액체 방사성폐기물에 의한 환경영향

Periodic Safety Review of Wolsong Unit 1
- Environmental Impact as gaseous and liquid effluents

김성민, 이은미, 김미자, 이갑복, 정양근, 엄희문
전력연구원

요 약

원자력법에 의해 국내 모든 가동원전은 10년마다 주기적안전성평가를 이행하고 있다. 원자력법 시행규칙 제19조의 2에 제시된 환경영향 분야의 평가는 원자로시설의 환경영향 감시계획이 적절히 수립되어 이행되고 있는지를 확인하는 것이다. 평가결과 월성 1호기 가동에 따른 환경영향은 전반적으로 기술기준을 만족하였으며, 평가기준일까지 월성 1호기 운영으로 인해 주변 주민이 받는 방사선량은 제한치 이내에서 안전하게 관리되는 것으로 확인하였다.

ABSTRACT

According to Korean nuclear code requires Periodic Safety Review(PSR) every 10 years should be perform for operating reactor, and selects the eleven PSR safety factors. Among them the review objective of the environmental impact is to determine whether the operator has an adequate programme for surveillance of the environmental impact of the nuclear power plant based on current safety standards. In this paper, the environmental impact in PSR of Wolsong Unit 1 was reflected current safety standards as of the evaluation date. As a result, all items generally satisfied the standards, and the staff also verified that the population dose due to the operation of Wolsong Unit 1 was controlled safely as of the evaluation date.

1. 서 론

주기적안전성평가는 가동 중인 원자력발전소에 대해 발전소 노화, 변경, 운전 경험, 기술 개발 등의 누적된 영향을 다루고 운전 기간에 걸쳐 높은 수준의 안전성을 보장하기 위해 규칙적인 주기로 수행되는 체계적인 안전성 재평가를 의미하며, 그 목적은 가동 중 원전에 대한 종합적인 평가를 통하여 발전소가 해당호기에 대한 유효한 기술기준에 비추어 안전한지, 그리고 발전소의 안전성을 유지하기 위한 적절한 방법들이 취해지고 있는지를 확인하는 것이다.

원자력법시행규칙 제19조의 2에는 환경영향 분야의 평가항목으로 '방사능으로 오염될 가능성이 있는 모든 유출경로에 대한 방출제한치 및 방출기록', '발전소내로부터 계획되지 아니한 유출물 방

출에 대한 경보장치’, ‘원자로시설의 주변 주민에 대한 피폭방사선량’, ‘발전소의 지역에 대한 방사선 환경감시’, ‘환경감시자료의 발간 및 배포’ 등을 규정하였다.

본 논문에서는 월성 1호기에 대한 환경영향 분야의 주기적안전성평가에 적용된 평가방법 및 평가결과를 제시하였다.

2. 평가방법

2.1 방사능으로 오염될 가능성이 있는 모든 유출경로에 대한 방출제한치 및 방출기록

“원자력발전소 방사선 관리 연보[1]”와 “원자력발전소 주변 환경방사선 조사보고서[2]”를 통해 핵종별 배출량을 파악한 후 과학기술부고시 제2002-23호 제6조에 제시된 배출관리기준과 기체 및 액체 방사성물질의 제한구역 경계에서의 농도를 비교한다. 핵종별 제한구역 경계에서의 농도(TBq/m³)를 구하는 방법은 기체 방사성물질의 경우, 핵종별 연간 배출량(TBq/yr)과 그 해의 최대 대기확산인자(x/Q)값을 곱하여 계산한다. 액체 방사성물질의 경우에는 핵종별 연간 배출량(TBq/yr)에 대해 희석률을 곱하여 구한다.

2.2 발전소내로부터 계획되지 아니한 유출물 방출에 대한 경보장치

배기구, 배수구 및 방사선관리구역에 방사선감시기를 설치하여 운영하고 있으며, 이러한 방사선 감시기에는 제한치를 초과하는 방사성물질의 발전소로부터 외부로 유출되는 것을 방지하기 위한 경보장치의 기능이 적절히 유지되고 있는지를 확인한다. 또한 방사선관리구역에서의 방사선량을 측정하기 위한 지역방사선감시에 대한 선원점검, 선원교정 결과 등 경보장치의 기능이 적절히 유지되고 있는지 확인한다.

2.3 원자로시설의 주변 주민에 대한 피폭방사선량

평가기준일 이전의 선량 평가값이 과학기술부고시 제2002-23호의 기준치를 만족하고 있는가를 K-DOSE60 코드로 재평가한다. 핵종별 배출량, 대기확산인자 등은 방사선 관리연보와 환경방사선 조사보고서의 해당연도의 자료를 이용하며, 희석률은 “제한구역 경계에서의 농도 계산”에 적용한 수치를 적용한다. 향후 월성 1~4호기 및 신월성 1,2호기의 동시 가동으로 인한 주민의 예상 개인 최대피폭선량은 신월성 1,2호기 건설사업 방사선환경영향평가서[3]의 내용을 토대로 평가한다.

2.4 발전소의 지역에 대한 방사선 환경감시

“원자력발전소 주변 환경방사선조사보고서”를 이용하여 환경방사선(능) 현황과 원자력발전소 가동 전·후 핵종별 농도 변화 추이를 비교하며, 매년 수행되는 환경방사선 조사와는 별도로 5년 주기로 수행하여 발간되는 “원전주변 해양방사능 종합조사보고서[4]”도 상기의 평가에 활용한다. 또한 원자력발전소 주변에서 측정된 인공방사능 분석결과를 한국원자력안전기술원에서 측정한 전국 환경방사선(능) 변동범위[5]와 비교하여 원자력발전소의 영향여부를 평가한다.

2.5 환경감시 자료의 발간 및 배포

발간주기 및 발간내용이 과학기술부고시 제2001-25호 제10조(보고)의 기준을 만족하는지 여부를 평가한다.

3. 결과 및 고찰

3.1 방사능으로 오염될 가능성이 있는 모든 유출경로에 대한 방출제한치 및 방출기록

1983년부터 2001년까지 배출된 기체 방사성물질의 주요핵종 중 배출량 및 선량기여도가 상대적으로 큰 핵종(삼중수소, C-14 및 Xe-133)에 대해 연도별 배출량과 제한구역 경계에서의 농도 계산결과를 표 1에 제시하였다. 각 핵종의 제한구역 경계에서의 농도는 배출관리기준에 비해 삼중수소는 1986년에 최대 0.23%, Xe-133은 1996년에 최대 0.15% 정도였으며, 그리고 C-14는 0.01%에도 미치지 못하는 것으로 나타났다.

액체 방사성물질의 경우에는 삼중수소와 발전소 제한구역내 취·배수구 인근 일부 해저토 시료에서 극미량 검출되고 있는 Co-60에 대해 연도별 배출량과 제한구역 경계에서의 농도 계산결과를 표 2에 제시하였다. 각 핵종의 제한구역 경계에서의 농도는 배출관리기준에 비해 삼중수소는 최대값이 1999년도에 0.08% 정도이며, Co-60은 최대값이 0.01% 이하의 매우 미미한 수준으로 나타났다. 따라서 기체 및 액체 방사성물질 방출에 의한 제한구역 경계에서의 농도는 고시에 규정된 배출관리기준을 만족하였으며, 그 값도 기준치에 비해 매우 낮게 관리되고 있었다.

3.2 발전소내로부터 계획되지 아니한 유출물 방출에 대한 경보장치

배기구, 배수구 및 방사선 관리구역에서의 모든 액체 공정방사선감시기, 액체 유출물방사선감시기, 기체 공정방사선감시기, 기체 유출물방사선감시기들은 모두 설치개수, 위치, 기능, 고정보설장치 등이 해당 기준을 만족하였으며, 방사선 관리구역에서의 방사선량률을 측정하기 위한 지역방사선감시기 또한 경보장치의 기능을 적절히 유지하였다.

3.3 원자로시설의 주변 주민에 대한 피폭방사선량

평가기준일 이전 10년간(1992 ~ 2001년)의 선량평가 값이 과학기술부고시 제2002-23호의 기준치를 만족하고 있는가를 재평가하였다. 연도별로 선량을 계산하여 각 항목별 최대값을 표 3에 제시하였으며, 평가결과 모든 항목에서 과학기술부고시 제2002-23호의 호기당 설계에 적용할 기준치의 5% 미만으로 나타났다.

향후 월성 1~4호기 및 신월성 1,2호기의 동시 가동으로 인한 주민의 예상 개인 최대피폭선량평가 결과를 표 4와 같이 과학기술부고시 제2002-23호에서 제시하고 있는 다수의 원자력관계시설을 운영하는 경우에 적용할 선량 기준치와 비교하였다. 그 결과 유효선량은 기준치의 40.4%, 갑상선 증가선량은 기준치의 29.1%로 향후 다수호기가 동시에 가동되더라도 주변 주민이 받는 방사선량은 상기 고시의 기준치를 만족할 것으로 예측하였다.

3.4 발전소의 지역에 대한 방사선 환경감시

월성 1호기 가동후 공기중 공간감마선량률은 63.5~106.7 nGy/hr의 분포를 보이고 있는데, 이는 2001년 한국원자력안전기술원이 전국 13개 환경방사선 감시 지점에서 측정한 연평균 공간감마선량률 67~124 nGy/hr 이내로, 원전 이외의 지역과 비슷한 준위로 나타났다. 발전소내 빗물시료에서 검출된 삼중수소의 최대검출농도 398.5 Bq/l 는 과학기술부고시 제2002-23호의 배수중의 배출관리기준 40,000 Bq/l와 비교할 때 약 1% 정도의 매우 낮은 준위였다. 배수구의 해수시료에서 검출된 삼중수소의 최대검출농도 1189.6 Bq/l 는 과학기술부고시 제2002-23호의 배수중의 배출관리기준 40,000 Bq/l와 비교할 때 2.97%에 해당하였다. 월성원전 주변 환경시료중 삼중수소의 농도와 월성 1호기 및 전체호기의 기체상 삼중수소 배출량과의 추이를 그림 1에 제시하였다. 원전

주변 환경시료 중 삼중수소 농도는 월성원전 전체호기에서 배출되는 방사능의 영향을 받는다. 즉, 월성 1호기의 배출량과 전체호기의 배출량 추세가 서로 상이할 경우, 월성 1호기의 기체 배출량의 추세와 환경시료중 삼중수소의 농도추세가 일치하지 않는 경우가 발생할 수 있다. 삼중수소 농도의 분석방법이 개선되어 농도 측정값의 일관성이 유지되는 1991년 이후의 추세는 전체호기 배출량과 빗물의 삼중수소 농도 추세가 유사하게 나타났다. C-14 농도는 전반적으로 일반지역에서 검출되는 0.25 Bq/g-C 수준에서 검출되었다. 공기시료에서 검출된 최대검출농도 0.43 Bq/g-C는 과학기술부고시 제2002-23호의 배기중의 배출관리기준 10,000 Bq/m³과 비교할 때 0.01 % 이하의 매우 낮은 준위였다. 월성 1호기 가동후 발전소의 지역에서 삼중수소 이외에 검출된 주요 인공방사능 핵종을 표 5에 제시하였다. Cs-137 및 Sr-90은 과거 핵실험, 체르노빌 원전사고 등에 의한 영향으로 세계적으로 검출되고 있는 핵종으로 Cs-137의 식품중 농도는 우리나라 잠정허용농도 378 Bq/kg의 0.01%에도 미치지 못하고 있다. Co-60은 검출된 지점이 모두 취수구나 배수구 부근으로 제한구역 이내에서만 검출이 되었다.

1995년도에 실시한 월성원전 주변 해양방사능 종합조사에서는 일부 해조류시료에서 Co-60이 1.73 Bq/kg-dry로 검출되었다. 해조류의 섭취에 따른 Co-60에 대한 주민의 연간 피폭선량을 최대 검출농도인 1.73 Bq/kg-dry를 기준으로 계산하면 약 2.5×10^{-5} mSv/yr가 된다. 이 값은 주민의 연간 선량제한치인 1 mSv의 1/40,000에 해당하는 값이다.

3.5 환경감시 자료의 발간 및 배포

1985년부터 환경조사와 주민선량평가를 상반기 및 연간 보고서로 구분하여 연간 총 2회에 걸쳐 보고서로 발간하고 있으며, 주변주민을 대상으로 정기적으로 환경감시결과에 대한 설명회를 개최하고 있다.

4. 결 론

월성 1호기 주기적안전성평가의 환경영향에 대한 평가결과를 종합하면 다음과 같다.

- 1) 방사능으로부터 오염될 가능성이 있는 유출경로에 대한 방출제한치 및 방출기록에 대해 평가한 결과 핵종별 기체 및 액체 방사성물질의 제한구역 경계에서의 농도가 과학기술부고시의 배출관리기준을 만족하였으며, 그 값은 기준치의 1% 이하로 매우 낮게 관리되고 있었다. 또한 발전소내로부터 계획되지 아니한 유출물 방출에 대한 경보장치도 적절하였다.
- 2) 발전소 주변 주민에 대한 피폭 방사선량은 과학기술부고시 제2002-23호에서 제시하고 있는 호기당 및 부지당 기준치를 만족하였으며, 또한 향후 신고리 원전을 포함한 다수 호기 동시 가동시에도 주민에 미치는 방사선 영향은 기준치를 만족할 것으로 예측하였다.
- 3) 환경감시 계획은 과학기술부고시 제2001-25호에 의거하여 적절히 수립, 이행되고 있었으며, 환경방사선(능) 감시결과도 가동전 감시결과와 자연적인 환경방사선 준위에 비교하여 월성 1호기의 영향이 낮은 것으로 확인하였다. 또한 환경감시 자료로 매년 환경방사선 조사보고서를 발간 및 배포하고 있으며, 지역주민을 대상으로 정기적으로 환경감시 결과에 대해 설명회를 개최하고 있었다.

결론적으로 월성 1호기의 가동으로 인해 방출되는 기체 및 액체 방사성폐기물이 발전소 주변 환경에 미치는 영향은 미미한 수준인 것으로 나타났다.

참 고 문 헌

- [1] 한수원(주), 원자력발전소 방사선관리 연보, 1983~2001.
- [2] 한수원(주), 원자력발전소 주변 환경방사선조사보고서, 1983~2001.
- [3] 한수원(주), 신월성 1, 2호기 건설사업 방사선환경영향평가서 초안, 2002.
- [4] 한수원(주), 월성원전 주변 해양방사능 종합조사, 1995.
- [5] 한국원자력안전기술원, 원자력시설 주변 환경조사 및 평가보고서, 1998~2001.

표 1. 기체상 주요 핵종의 연도별 배출량과 제한구역 경계에서의 농도

연도	삼중수소			Xe-133			C-14		
	월성1호기 배출량 (TBq/yr)	제한구역 경계 농도 (TBq/m ³)	배출관리 기준대비 (%)	월성1호기 배출량 (TBq/yr)	제한구역 경계 농도 (TBq/m ³)	배출관리 기준대비 (%)	월성1호기 배출량 (TBq/yr)	제한구역 경계 농도 (TBq/m ³)	배출관리 기준대비 (%)
1983	4.82E+01	1.38E-12	4.59E-02	LLD미만	-	-	-	-	-
1984	9.97E+01	2.85E-12	9.48E-02	2.13E+02	6.08E-12	3.04E-02	-	-	-
1985	8.95E+01	2.55E-12	8.51E-02	1.32E+02	3.77E-12	1.88E-02	-	-	-
1986	2.42E+02	6.91E-12	<u>2.30E-01</u>	1.25E+02	3.57E-12	1.78E-02	-	-	-
1987	3.13E+02	5.38E-12	1.79E-01	1.51E+02	2.60E-12	1.30E-02	-	-	-
1988	2.99E+02	2.34E-12	7.81E-02	1.64E+02	1.28E-12	6.42E-03	-	-	-
1989	2.26E+02	1.56E-12	5.21E-02	8.45E+01	5.84E-13	2.92E-03	-	-	-
1990	2.31E+02	2.78E-12	9.28E-02	1.01E+02	1.22E-12	6.09E-03	-	-	-
1991	2.57E+02	2.62E-12	8.75E-02	1.07E+02	1.09E-12	5.46E-03	-	-	-
1992	3.88E+02	2.50E-12	8.33E-02	5.60E+01	3.60E-13	1.80E-03	-	-	-
1993	3.68E+02	2.10E-12	7.00E-02	2.01E+02	1.15E-12	5.74E-03	-	-	-
1994	4.83E+02	3.22E-12	1.07E-01	1.15E+02	7.66E-13	3.83E-03	-	-	-
1995	4.43E+02	4.78E-12	1.59E-01	7.40E+02	7.98E-12	3.99E-02	-	-	-
1996	3.09E+02	2.94E-12	9.80E-02	3.15E+03	3.00E-11	<u>1.50E-01</u>	-	-	-
1997	3.12E+02	1.58E-12	5.28E-02	2.68E+01	1.36E-13	6.79E-04	-	-	-
1998	2.03E+02	1.01E-12	3.36E-02	4.49E+01	2.23E-13	1.12E-03	4.38E-01	2.18E-15	2.18E-05
1999	1.34E+02	5.00E-13	1.67E-02	2.72E+01	1.02E-13	5.09E-04	1.38E+00	5.16E-15	<u>5.16E-05</u>
2000	9.50E+01	1.01E-12	3.36E-02	1.84E+01	1.95E-13	9.75E-04	1.75E-01	1.85E-15	1.85E-05
2001	9.15E+01	1.03E-12	3.43E-02	7.30E+00	8.22E-14	4.11E-04	4.41E-02	4.96E-16	4.96E-06

표 2. 액체상 주요 핵종의 연도별 배출량과 제한구역 경계에서의 농도

연도	삼중수소			Co-60		
	월성1호기 배출량 (TBq/yr)	제한구역 경계 농도 (TBq/m ³)	배출관리기준 대비 (%)	월성1호기 배출량 (TBq/yr)	제한구역 경계에서의 농도 (TBq/m ³)	배출관리기준 대비 (%)
1983	LLD미만	-	-	-	-	-
1984	6.55E+00	1.21E-09	3.03E-03	-	-	-
1985	1.20E+01	2.22E-09	5.56E-03	-	-	-
1986	3.68E+01	6.82E-09	1.70E-02	6.98E-05	1.29E-14	6.47E-06
1987	5.08E+01	9.41E-09	2.35E-02	9.67E-04	1.79E-13	<u>8.96E-05</u>
1988	7.45E+01	1.38E-08	3.45E-02	3.42E-04	6.34E-14	3.17E-05
1989	6.04E+01	1.12E-08	2.80E-02	2.02E-05	3.74E-15	1.87E-06
1990	5.17E+01	9.58E-09	2.40E-02	1.78E-05	3.30E-15	1.65E-06
1991	9.32E+01	1.73E-08	4.32E-02	2.56E-05	4.74E-15	2.37E-06
1992	4.20E+01	7.78E-09	1.95E-02	1.12E-05	2.08E-15	1.04E-06
1993	4.63E+01	8.58E-09	2.14E-02	8.32E-05	1.54E-14	7.71E-06
1994	1.80E+02	3.34E-08	<u>8.34E-02</u>	1.39E-04	2.58E-14	1.29E-05
1995	1.68E+02	3.11E-08	7.78E-02	9.10E-06	1.69E-15	8.43E-07
1996	5.06E+01	9.38E-09	2.34E-02	LLD미만	-	-
1997	4.74E+01	8.78E-09	2.20E-02	LLD미만	-	-
1998	5.05E+01	9.36E-09	2.34E-02	LLD미만	-	-
1999	6.20E+01	1.15E-08	2.87E-02	LLD미만	-	-
2000	5.05E+01	9.36E-09	2.34E-02	1.11E-05	2.05E-15	1.02E-06
2001	2.46E+01	4.56E-09	1.14E-02	3.20E-05	5.93E-15	2.96E-06

표 3. 과거 10년간의 선량평가 항목별 재평가 결과

항 목		제한치	최대값	제한치 대비 비율(%)	년도	
해당 시설의 설계에 적용할 기준	기체상태의 방출물에 의한 제한구역 경계에서의 연간선량	감마선에 의한 공기의 흡수선량(mGy/yr)	0.1	2.14E-3	2.14	1996
		베타선에 의한 공기의 흡수선량(mGy/yr)	0.2	6.12E-3	3.06	1996
		외부피폭에 의한 유효선량(mSv/yr)	0.05	9.76E-4	1.95	1996
		외부피폭에 의한 피부등가선량(mSv/yr)	0.15	3.55E-3	2.37	1996
		입자상물질, 3H, 14C 및 방사성옥소에 의한 인체 장기등가선량(mSv/yr)	0.15	3.59E-3 ¹⁾	2.39	1995
	액체상태의 방출물에 의한 제한구역 경계에서의 연간선량	유효선량(mSv/yr)	0.03	1.56E-4 ²⁾	0.52	1994
		인체 장기등가선량(mSv/yr)	0.1	1.66E-3 ³⁾	1.66	1995

주) 1) 5세, 갑상선 등가선량 기준, 2) 5세 기준, 3) 5세, 갑상선 등가선량 기준

표 4. 다수호기 가동시 개인 피폭선량 계산결과와 선량기준과의 비교

장 기	최대 등가선량(mSv/yr)			선량제한치 (mSv/yr)	비 율 (%)
	기체방출물	액체방출물	계		
유효선량	9.96E-2 ¹⁾	1.40E-3 ²⁾	1.01E-1	0.25	40.4
감상선등가선량	2.02E-1 ¹⁾	1.57E-2 ³⁾	2.18E-1	0.75	29.1

주) 1) 1세 연령군, 2) 10세 연령군, 3) 5세 연령군

표 5. 발전소의 지역에서 검출된 Cs-137과 Sr-90 및 Co-60 농도 범위

핵 종	항 목	부지주변 (나산, 기구 등)	비교지점 (울산, 경주, 구룡포)	비 고
Cs-137 (Bq/kg)	토양	N.D~25.28	N.D~18.13	- 전국 토양 : N.D~156.0 Bq/kg-dry (1997년) ¹⁾
	하천토	N.D~2.20	N.D~1.17	
	해저토	N.D~2.76	N.D	
	해수	N.D~0.004	N.D~0.0026	- 일본연근해 N.D~0.21 ²⁾ - 동해(최근5년) 0.00199~0.00627 ²⁾
	어류	N.D~0.138	N.D~0.009	- 방사능 잠정허용기준(식품공전,1999) 370Bq/kg
	해조류	N.D~0.42	N.D	
	우유	N.D~0.046	N.D~0.036	
Sr-90 (Bq/kg)	토양	N.D~1.88	0.23~0.29	- 국내 일반지역 0.24~2.42 ³⁾
	솔잎	1.83~7.88	1.01~3.93	- 일본 환경 2.1~20 ⁴⁾
	해수	0.0016~0.0023	N.D~0.0020	- 일본연근해 N.D~0.10 ²⁾ - 동해(최근4년) N.D~0.00606 ²⁾
	해저토	N.D~0.27	0.31~0.32	
	어·패류	N.D~0.10	N.D~0.009	
	해조류	N.D~0.052	N.D~0.11	
	우유	N.D~0.015	N.D~0.015	
	농작물	N.D~0.433	N.D~0.54	
Co-60 (Bq/kg)	해저토	N.D~4.95	-	- 검출된 지점은 모두 제한구역 이내임

주) 1) 한국원자력안전기술원, KINS/AR-409, 1997

2) 과학기술부, 원자력안전백서, 2002

3) 과학기술부, 원자력안전백서, 1996~1997

4) National Institute of Radiological Science Chiba, Radioactive Survey in Japan, 1987~1992

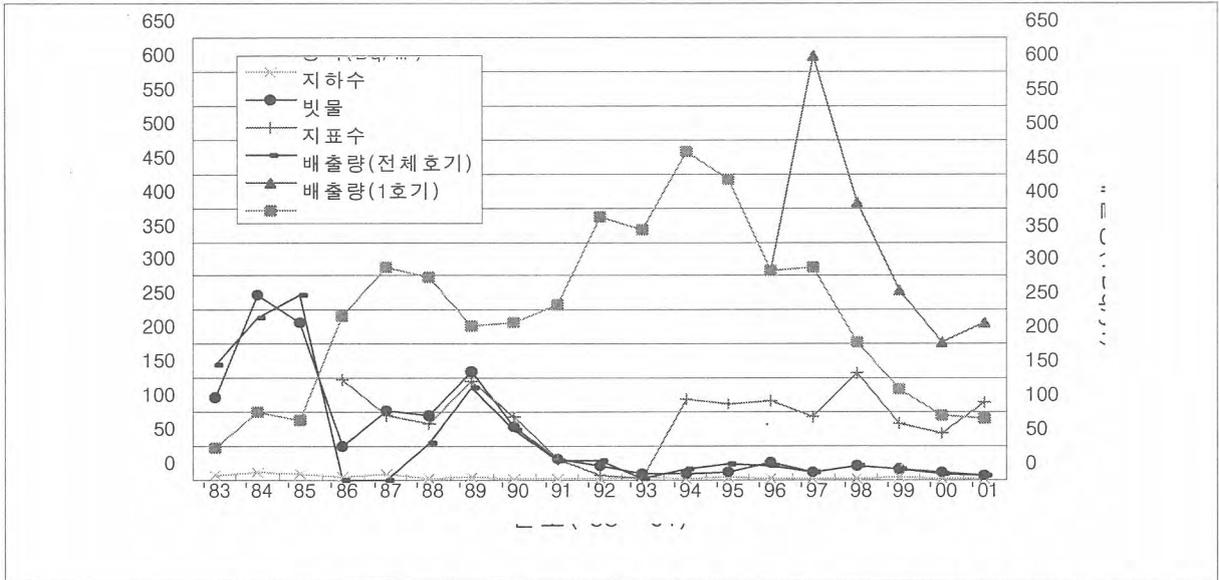


그림 1. 기체상 삼중수소 배출량 및 환경시료(육상 물시료) 중 삼중수소 농도

KSNP의 보조건물 설계특성을 반영한 옥소방사능 예상배출량 평가방법의 개선

Improvement of Evaluation Method for Anticipated Radio-Iodine Release Considering Design Characteristics of KSNP's Auxiliary Building

이관희, 정재학, 박원재
한국원자력안전기술원

요 약

2개의 보조건물(PAB와 SAB)이 있는 KSNP의 경우, 단일 보조건물만을 고려하고 있는 PWR-GALE 코드를 이용하여 기체배출량을 평가하기에는 한계가 있다. 본 논문에서는 기존 PWR-GALE 코드는 그대로 이용하면서 KSNP의 설계특성을 반영하기 위하여 일부 입력변수를 수정해서 보조건물 옥소방사능 배출량을 사실적으로 평가할 수 있는 방법론을 개발했다. 울진 5,6 호기의 설계자료를 이용하여 기존 평가방법론과 개선된 평가방법론을 적용해 사례연구를 실시하였다. 기존 평가방법으로 보조건물 옥소의 유효제거효율을 산출한 결과 42%가 나왔으나 PAB와 SAB의 옥소핵종 농도가 동일하다고 가정을 만족하지 못하는 단점이 있다. 개선된 평가방법으로 옥소의 유효제거효율을 산출한 결과 88%가 나왔다.

Abstract

PWR-GALE Code is a computerized mathematical model for calculating the releases of radioactive material in gaseous and liquid effluents from PWRs. In PWR-GALE Code, Auxiliary building iodine removal efficiency, one of the code input data, did not reflect adequately the new design of KSNP which has two auxiliary buildings(PAB and SAB). In this study, we developed a revised method how to correct iodine removal efficiency in KSNP. And newly proposed methodology through case study using Ul-Jin 5,6 design data was verified.

1. 서 론

예상 방사선원항은 주어진 원자력발전소가 정상적으로 운전될 때, 해당 원자로 냉각재 및 기타계통에 존재할 것으로 예상되는 방사능과 이러한 계통들로부터 누출되어 액체 및 기체 방사성폐기물계통을 통해 처리된 후 환경으로 방출될 것으로 예상되는 방사능에 관한 자세한 정보를 말한다. 정상운전시 발전소로부터 환경으로 방출되는 방사성 기체와 액체의 예상되는 방출량은 궁극적으로 과기부고시 2002-23호 제 16조 등에서 규정된 설계목표(Design Objective)선량 만족여부를 입증하기 위한 목적으로 사용된다.

가압 경수로(Pressurized Water Reactor)형 원전의 예상 방사선원형을 평가하는 대표적인 방법은 NUREG-0017(Rev.1, 1985)[1] 및 PWR-GALE 코드를 이용하는 것이다.

NUREG-0017 방법은 정상운전시 원자로냉각재와 2차냉각재의 방사능 농도를 예측하는 데에는 ANSI/ANS-18.1[2] 방법론을 사용하고, 액체 및 기체 방사성폐기물의 환경방출에 관한 선원형을 산출하기 위한 별도의 평가모델을 포함하고 있다.

한편, PWR-GALE 코드는 NUREG-0017의 방법론에 따라 정상운전 및 예상과도운전시 PWR에서 환경으로 배출될 것으로 예상되는 방사능을 평가하기 위해서 개발된 평가도구이다. 현재 PWR-GALE 코드는 국내원전의 설계 및 인허가 과정에서 시설별 설계목표선량 만족여부를 입증하기 위해서 활용되고 있다.

그러나, 기체 방사성폐기물 예상배출량 계산에 있어서 PWR-GALE 코드는 대다수 미국 원전의 설계에 근거하여 단일 보조건물만을 고려하고 있어 보조건물을 PAB(Primary Auxiliary Building)와 SAB(Secondary Auxiliary Building)로 분리한 KSNP(Korea Standard Nuclear Power Plant)의 설계를 충분히 반영하지 못하고 있다. 이에 본 논문에서는 기존에 사용되어 왔던 평가방법과 이를 개선한 평가방법을 소개하고자 한다.

2. 평가방법

2.1 PWR-GALE 코드 개요

PWR-GALE 코드에서는 ANSI/ANS-18.1[2]에 의하여 냉각재 핵종 농도를 계산하고, 발전소 계통 내 방사성 물질이 기체 방사성폐기물로 방출되기까지의 유출 및 이동 메커니즘과 방사성 물질의 환경 방출량을 감소시키기 위한 원전의 설계특성, 실제 원전의 운전자료로부터 획득한 정보 등과 같은 사항을 기초로 하여 연간 기체 방사성폐기물을 평가하고 있다.

기체 유출물에 동반된 방사성 물질의 방출은 기체폐기물처리계통으로부터의 방출과 여러 환기경로들을 통한 방출을 포함한다. PWR에서 주요한 기체방사능 방출점은 기체폐기물처리계통, 증기발생기 취출계통, 복수기 공기추출기 배기, 격납건물 퍼지 배기, 보조건물/ 터빈건물/사용후 핵연료 저장지역의 환기계통 배기, 2차계통으로부터 증기 누설 등이다.

PWR-GALE 코드는 격납건물과 보조건물 대기로 불활성기체 및 방사성 옥소의 누출률을 해당 건물로의 1차냉각재 누설률에 기초하여 계산하며, 입자 누출률은 운전중인 PWR들에서 측정된 자료에 근거하여 고려한다.

2.2 미국원전과 KSNP의 설계상의 차이점

PWR-GALE 코드는 미국 원전의 설계에 따라 단일 보조건물만을 고려하고 있다. 그러나 영광3호기 이후의 KSNP는 2개의 보조건물(PAB와 SAB)에서 기체유출물이 각각 배출되며, 정상운전시 SAB 배기체는 옥소제거용 활성탄여과기(제거효율 90%)를 거쳐 배출되나, PAB 배기체는 활성탄여과기를 거치지 않고 배출된다(그림 1참조).

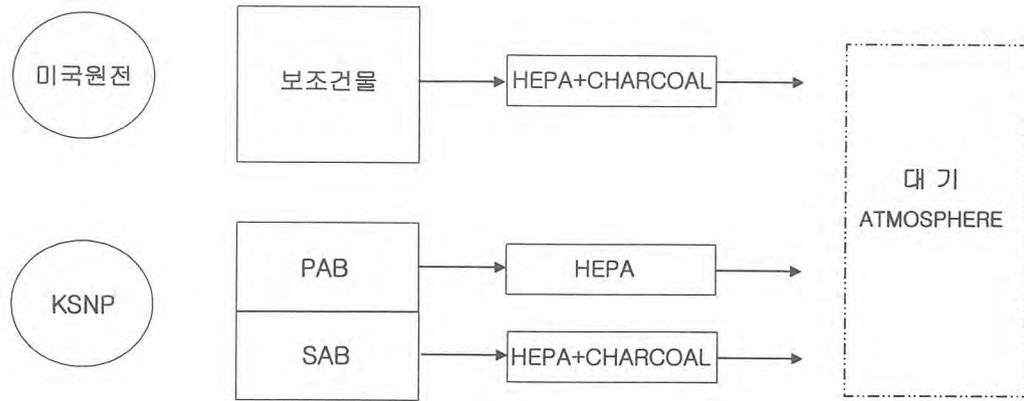


그림 1. 정상운전시 보조건물 공기조화계를 통한 기체폐기물 배출설계

2.3 보조건물 옥소방사능 배출량의 보정

2.3.1 기존 평가방법

PAB와 SAB의 옥소핵종 농도가 동일하다고 가정하여 건물 배기유량을 가중 평균하여 보조건물 옥소의 유효제거효율을 산출하였다.

$$\epsilon(\text{유효제거효율}) = \frac{(\text{PAB 유량률} \times \text{제거효율}) + (\text{SAB 유량률} \times \text{제거효율})}{\text{총 유량률}} \quad (1)$$

정상운전시 SAB 배기체는 제거효율 90%인 활성탄 여과기를 통해 환경으로 배출되고, PAB 배기체는 활성탄 여과기 없이 배출된다면 위식은 다음과 같이 된다.

$$\epsilon = \frac{(\text{PAB 유량률} \times 0) + (\text{SAB 유량률} \times 0.9)}{\text{총 유량률}} \quad (2)$$

2.3.2 개선된 평가방법

PAB와 SAB의 옥소 예상방사능 비율에 근거하여 보조건물 옥소의 유효제거효율을 산출한다. 각 기기의 방사능농도가 평형상태를 이루는 것으로 가정할 경우 PAB와 SAB의 HVAC(Heating, Ventilating and Air Conditioning system) 전단으로 유입되는 연간 옥소의 방사능은 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$A_{\text{inp, PAB}} = \sum_{i=1}^{N_{\text{PAB}}} [C_{\text{P},i} \cdot V_{\text{P},i} \cdot \nu_{\text{P},i}] \cdot t \quad (3a)$$

$$A_{\text{inp, SAB}} = \sum_{i=1}^{N_{\text{SAB}}} [C_{\text{S},i} \cdot V_{\text{S},i} \cdot \nu_{\text{S},i}] \cdot t \quad (3b)$$

여기서,

$A_{\text{inp,PAB(SAB)}}$ = 연간 PAB(SAB) HVAC 전단으로 유입되는 옥소의 방사능 [Bq],

$N_{\text{PAB(SAB)}}$ = PAB(SAB)에 설치된 방사성기기 개수,

$C_{P(S),i}$ = PAB(SAB) 방사성기기 i의 옥소방사능 농도 [Bq/m³],
 $V_{P(S),i}$ = PAB(SAB) 방사성기기 i에 함유된 유체의 체적 [m³],
 $v_{P(S),i}$ = PAB(SAB) 방사성기기 i의 방사성옥소 누설률 [sec⁻¹],
 t = 고려기간 = 1yr.

각 기기의 옥소 방사능 누설률이 일정하다고 가정하면, PAB와 SAB에서 HVAC 전단으로 유입되는 연간 옥소 방사능의 비율은 다음과 같이 계산할 수 있다.

$$R_{P/S} = \frac{A_{\text{inp, PAB}}}{A_{\text{inp, SAB}}} = \frac{\sum_{i=1}^{N_{\text{PAB}}} [C_{P,i} \cdot V_{P,i}]}{\sum_{i=1}^{N_{\text{SAB}}} [C_{S,i} \cdot V_{S,i}]} = \frac{N_{\text{PAB}} \cdot C_{P,AVG} \cdot V_{P,AVG}}{N_{\text{SAB}} \cdot C_{S,AVG} \cdot V_{S,AVG}} \quad (4)$$

여기서,

$R_{P/S}$ = PAB와 SAB의 HVAC 전단으로 연간 유입되는 옥소 방사능의 비율,

$C_{P(S),AVG}$ = PAB(SAB) 방사성기기들의 평균 옥소방사능 농도 [Bq/m³],

$V_{P(S),AVG}$ = PAB(SAB) 방사성기기들에 함유된 유체의 평균 체적 [m³].

SAB 배기체의 제거효율이 90%인 활성탄 여과기를 통해 환경으로 배출되고, PAB 배기체는 활성탄 여과기 없이 배출된다면 각 건물의 HVAC 전단 및 후단의 방사능은 다음과 같은 관계를 갖는다.

$$A_{\text{out, PAB}} = A_{\text{inp, PAB}} \quad (5)$$

$$A_{\text{out, SAB}} = (0.1) \cdot A_{\text{inp, SAB}} \quad (6)$$

따라서, PAB와 SAB의 설계를 반영하여 보정된 보조건물 활성탄여과기 제거효율은 수식 (5) 및 (6)으로부터 다음과 같이 계산할 수 있다.

$$\begin{aligned} \epsilon_{AD} &= \frac{\text{유입방사능} - \text{유출방사능}}{\text{유입방사능}} \\ &= \frac{[A_{\text{inp, PAB}} + A_{\text{inp, SAB}}] - [A_{\text{out, PAB}} + A_{\text{out, SAB}}]}{A_{\text{inp, PAB}} + A_{\text{inp, SAB}}} \\ &= \frac{A_{\text{inp, SAB}} - A_{\text{out, SAB}}}{A_{\text{inp, PAB}} + A_{\text{inp, SAB}}} \end{aligned} \quad (7)$$

$$= \frac{A_{\text{inp, SAB}} - (0.1) \cdot A_{\text{inp, SAB}}}{R_{P/S} \cdot A_{\text{inp, SAB}} + A_{\text{inp, SAB}}}$$

$$= \frac{0.9}{1 + R_{P/S}}$$

한편, 식 (4)에서,

$$\frac{C_{P,AVG} \cdot V_{P,AVG}}{C_{S,AVG} \cdot V_{S,AVG}} \leq 1 \quad (8)$$

이 성립한다면 보수적으로 다음식이 성립한다.

$$R_{P/S} \simeq \frac{N_{PAB}}{N_{SAB}} \quad (9)$$

따라서 개별기기의 누설률이 동일하다고 가정하고, PAB의 옥소방사능 함이 SAB의 옥소방사능 함보다 작거나 같다는 가정이 성립하면, PAB와 SAB 옥소 선원항의 비율을 각 건물에 설치된 주요 방사성기기의 대수 비율로 가정할 수 있다.

3. 사례연구

KSNP의 하나인 울진 5,6호기의 설계를 바탕으로 기존 평가방법과 개선된 평가방법으로 활성탄 여과기 제거효율을 계산하면 다음과 같다.

3.1 기존 평가방법 이용

기존 평가방법에서는 PAB와 SAB의 옥소핵종 농도가 동일하다고 가정하였는데, PAB와 SAB에 설치된 주요 방사성기기의 옥소 방사선원항 설계자료를 검토한 결과, SAB 관련 기기의 옥소 방사능농도가 PAB에 비해서 높은 것으로 확인되었다(표 1 참조).

표 2에 제시되어 있는 유량률을 이용하여 활성탄여과기 제거효율을 계산하면(식 2이용) 다음과 같다.

$$\epsilon = \frac{(40,000 \times 0) + (35,200 \times 0.9)}{75,200} = 0.42 = 42\%$$

울진 5,6호기의 경우 기존 평가방법론은 옥소핵종농도가 동일하다는 가정을 만족하지 못하는 한계가 있다.

표 1. PAB와 SAB 주요 기기의 방사능농도 비교[5]

핵종	SAB 추출수 열교환기(A) (Bq/cc)	PAB 충진펌프(B) (Bq/cc)	비율 (A/B)	PAB 정지냉각계통 열교환기(C) (Bq/cc)	비율(A/C)
I-131	1.43E+03	1.38E+01	1.03E+02	7.25E+02	1.97E+00
I-132	7.31E+03	6.00E+01	1.22E+02	3.67E+03	1.99E+00
I-133	4.53E+03	4.44E+01	1.02E+02	2.36E+03	1.91E+00
I-134	1.18E+04	8.41E+01	1.41E+02	6.03E+03	1.96E+00
I-135	8.70E+03	8.41E+01	1.04E+02	4.48E+03	1.94E+00

표 2. 울진 5,6호기의 PAB와 SAB의 배기 유량률[5]

건물	제거효율	유량률
PAB	0 %	40,000cfm
SAB	90 %	35,200cfm

3.2 개선된 평가방법 이용

표 3은 PAB와 SAB의 주요계통내에 존재할 것으로 예상되는 옥소 동위원소의 방사능 평가결과를 나타낸 것이다. 이로부터 PAB의 HVAC 전단으로 유입되는 옥소 방사능의 비율이 SAB에 비해 0.019 수준임을 알 수 있다. 따라서 개선된 평가방법에 의한 보조건물 활성화탄여과기 제거효율은 다음과 같다(식 7이용).

$$\epsilon_{AD} = \frac{0.9}{1 + R_{p/s}} = \frac{0.9}{1 + 0.019} = 0.88 = 88\%$$

한편, 표 3의 자료에서 알 수 있듯이 PAB의 HVAC 전단으로 유입되는 옥소 방사능의 비율이 SAB에 비해 매우 낮은 수준이므로 식 (8)의 가정이 충족된다. 따라서 보수적으로 다음식이 성립한다(표 4참조).

$$R_{P/S} \approx \frac{N_{PAB}}{N_{SAB}} = \frac{8}{27} = 0.296$$

위의 값을 이용하여 제거효율을 계산하면 다음과 같다.

$$\epsilon_{AD} = \frac{0.9}{1 + R_{p/s}} = \frac{0.9}{1 + 0.296} = 0.69 = 69\%$$

표 3. PAB와 SAB 옥소방사능 재고량 비교

건 물	I-131	I-132	I-133	I-134	I-135	옥소방사능 합계
PAB	1.78E+10	9.01E+10	5.81E+10	1.48E+11	1.10E+11	4.24E+11
SAB	1.34E+13	8.07E+11	4.62E+12	5.07E+11	2.82E+12	2.22E+13

표 4. 방사성 기기의 건물별 배치 현황[5]

계 통	기 기	PAB(대수)	SAB(대수)
화학 및 체적 제어계통	Tank	-	2
	Package	-	11
	Ion Exchanger	-	5
	Filter	-	5
	Pump	3	2
	Heat Exchanger	1	2
정지냉각계통	Pump	2	-
	Heat Exchanger	2	-
합 계		8	27

4. 결 론

2개의 보조건물(PAB와 SAB)이 있는 KSNP의 경우, 단일 보조건물만을 고려하고 있는 PWR-GALE 코드를 이용하여 기체배출량을 평가하기에는 한계가 있다. 본 논문에서는 기존 PWR-GALE 코드는 그대로 이용하면서 KSNP의 설계특성을 반영하여 일부입력변수를 수정해서

보조건물 옥소방사능 배출량을 사실적으로 평가할 수 있는 방법론을 개발했다. 중장기적으로는 국내 원전특성을 고려한 평가도구의 개발이 필요하다.

울진 5,6호기의 설계자료를 이용하여 기존 평가방법론과 개선된 평가방법론을 적용해 사례연구를 실시하였다. 기존 평가방법으로 보조건물 옥소의 유효제거효율을 산출한 결과 42%가 나왔으나 PAB와 SAB의 옥소핵종 농도가 동일하다고 가정을 만족하지 못하는 단점이 있다. 개선된 평가방법으로 옥소의 유효제거효율을 산출한 결과 88%가 나왔다. 그러나 개선된 평가방법은 옥소의 유효제거효율을 사실적으로 평가한다는 장점이 있으나 주요기기별로 옥소의 방사능을 계산해야 하므로 많은 계산이 필요하다는 단점이 있다. 계산을 단순화하기 위하여 PAB와 SAB 옥소 선원항의 비율을 각 건물에 설치된 주요 방사성기기의 대수 비율로 가정하여 평가한 결과 제거효율은 69%로 사실적으로 평가한 결과보다 낮게 나왔다.

감사의 글

본 연구의 수행에 사용된 울진 5,6호기 설계자료를 제공해 주신 한국전력기술(주) 담당자분께 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. NUREG-0017, Rev.1, Calculation of Release of Radioactive Materials in Gaseous and Liquid Effluents from Pressurized Water Reactors, 1985
2. ANSI/ANS-18.1, American National Standard : Radioactive Source Term for Normal Operation of Light Water Reactors, 1984
3. 한국원자력안전기술원/한반도에너지개발기구, 방사선 및 폐기물 안전성 평가, 개정1판, 2002.
4. 한국원자력안전기술원, 방사선방호 및 폐기물 전문과정, 2001.
5. 울진 5,6호기 설계자료

방사성폐기물 안전관리 데이터베이스 기본설계

Database Basic Design for Safe Management Radioactive Waste

손동찬, 안경일, 정덕진, 조용백,
대상정보기술(주)

요 약

국내 방사성폐기물의 발생·누적량이 증가되고 결과적으로 관리해야 할 정보의 수량 또한 일부 기관에서는 방사성폐기물 안전관리 관련 업무의 전산화가 추진하고 있거나 추진할 예정이다. 방사성폐기물 안전관리 관련 정보는 국가 방사성폐기물 관리사업과 연계되어 활용되어야 함을 고려할 때, 국가 차원의 통합적인 방사성폐기물 안전관리 데이터베이스의 구축을 위한 데이터 형식 및 프로토콜 (Protocol)의 표준화가 요구된다. 원자력안전기술원(KINS)에서는 방대한 종류 및 수량의 국내 방사성폐기물 안전관리 관련 정보를 효율적으로 관리하기 위하여, 최신 정보통신 기술 (IT) 을 적용한 국가 차원의 종합적인 데이터베이스 (DB)를 구축 운용하고자 한다. 국내 방사성폐기물 안전관리 통합정보시스템의 구축을 통하여 발생·저장중인 폐기물의 이력을 체계적으로 추적·관리 할 수 있을 뿐만 아니라 기간별/기관별 발생추이 분석 및 향후 발생·누적 예상량에 대한 신뢰도 있는 추이분석 결과를 생산함으로써, 정부의 국가 방사성폐기물 관리정책 수립 및 관련 산업계의 사업 계획단계에 필수정보를 제공할 수 있다. 이에 본 논문은 정보제공의 주요 요소인 데이터베이스 설계 내용을 소개한다.

Abstract

As the amount of radioactive waste and related information to be managed are increasing, some organizations are trying or planning to computerize the management on radioactive waste. When we consider that information on safe management of radioactive waste should be used in association with national radioactive waste management project, standardization of data form and its protocol is required. Korea Institute of Nuclear Safety(KINS) will establish and operate nationwide integrated database in order to effectively manage a large amount of information on national radioactive waste. This database allows not only to trace and manage the trend of radioactive waste occurrence and in storage but also to produce reliable analysis results for the quantity accumulated. Consequently, we can provide necessary information for national radioactive waste management policy and related industry's planing. This study explains the database design which is the essential element for information management.

1. 서 론

국내 원자력 산업계에서 관리하고 있는 방사성폐기물의 안전관리 업무를 “정보흐름의 연계성 및 효율성”이라는 차원으로 관련 유사 정보관리 시스템을 통합하여 업무흐름 중심의 안전규제시스템, 위험도 규제기준을 반영한 안전관리시스템 등의 역할을 하는 효율성이 제고된 통합 관리시스템으로 구축하기 위한 DB설계를 하였고, 통합 관리시스템과 기존 관리체계와 연계성을 유도하기 위하여, 유관기관 연계해 유관기관들과 협력방안에 조사 분석하였다. 또한 유관기관 자체적으로 방사성폐기물 관리 정보시스템을 개발 또는 개발 예정인 기관과는 양 기관의 정보관리시스템들 간의 호환성을 높이기 위해 유사한 정보관리 protocol을 사용하도록 사전에 협력하고, 자체 방사성폐기물 관리 정보시스템을 개발할 계획이 없는 유관기관에 대해서는 동 과제를 통해 개발된 독립된 정보관리 모듈을 제공하여 각 기관에서 사용할 수 있도록 하였다. 국내 유관기관의 실정을 감안하고 또한 국민이 요구하는 정보의 종류 및 범위를 조사하여 동 정보관리시스템에서 관리될 모든 자료 및 정보들에 대한 단계적인 보완/수정계획을 작성하여 시스템의 완성도를 높이도록 할 예정이다. 방사성폐기물관리 정보의 국제 Networking을 위해 현재 개발 중인 유사정보시스템을 조사, 분석하여, 동 시스템의 활용성 및 완성도를 제고한다. 통합정보시스템에서 제공하는 정보자료의 신뢰성 확보를 위해 다단계 검증절차를 정립하고 이를 위해 최신 정보기술(인공지능기술)을 활용한다.

방사성폐기물 관리 자료로부터 계산된 중저준위방사성폐기물 및 사용후핵연료 관리실적과 월간 액체 및 기체유출물 정보, 시설정보에 대한 자료를 포함한다. 또한 향후 처분될 폐기물에 대한 자료가 관리되어야 한다. 따라서 통합정보시스템 관리 자료에 발생 폐기물에 대한 정보와 저장이력, 향후 예상되는 운반이력 및 최종 처분이력을 포함하며, 방사성폐기물발생, 저장 및 처리, 처분단계로 구분하여 데이터베이스에서 관리한다. KINS의 기존 정보관리시스템과의 연계운영 방안을 모색하여 기존 시스템의 활용도를 극대화하고, 비용의 효율성을 극대화한다. 통합정보시스템 구축에 있어 관련 유관기관의 적극적인 참여를 유도하고, 동 시스템의 각 모듈별로 유관기관의 활용도를 제고한다. 국제 원자력기관과 방사성폐기물관련 정보관리시스템과의 연계를 위한 기준자료로 활용할 수 있도록 현재 운영 또는 계획 중에 있는 유사 정보관리시스템을 벤치마킹 하여 동 시스템의 활용성을 제고한다. DB 설계에 앞서 현재 국내에서 운영중인 방사성폐기물 처리현황을 분석하고 향후 추가 및 개선되어질 관리업무를 고려하여 확장성이 확보된 DB 구조를 가져야 한다.

2. 이용자 요구분석을 통한 DB설계

방사성폐기물 관련 자료의 정기적인 보고요건은 사업자 자체적으로 동 시설의 운영 실적이 관련 규정 및 요건과 부합함을 확인하여 입증하기 위한 일차적인 목적이 있으며, 규제기관에서는 각 시설의 관련 규제요건 만족여부 및 시설별 변화추이를 사전에 확인할 수 있다. 이 외에도 정기적인 보고 자료는 국가 원자력 산업에 대한 각종 통계자료의 생산, 국내외 자료공개 등의 목적으로 활용될 수 있다. 본 연구에서는 방사성폐기물 관련 정보의 보고에 관한 미국의 규제체계를 조사하였다. 검토 결과, 미국의 원자력사업자는 다음과 같은 방식으로 방사성폐기물 및 관련 운영실적에 대한 보고서를 매년 또는 반기마다 규제기관에 제출하고 있으며, 사전에 정의된 정형화된 보고형식을 적용하고 있는 것으로 확인되었다. IAEA에서는 방사성폐기물관리원칙을 규정한 Safety Series No. 111-F(1995)에서 방사성폐기물에 관한 정보를 다음 세대에 전달할 수 있도록 장기간 기록을 보존해야 한다는 원칙을 제시하였으며, 폐기물 관리에 관한 정보의 추적 및 보존을 위한

기록관리 시스템에 대한 일련의 기술적 요건을 제시한 바 있다.

표 2.1은 본 연구에서 조사/반영한 IAEA의 방사성폐기물 관련 정보관리체계에 대한 요건을 정리한 것이다. 본 연구에서는 IAEA의 방사성폐기물 관련 데이터베이스인 NEWMDB 및 DIRATA 등의 개발 및 운영과정에서 도출된 다양한 현안에 대한 벤치마킹을 통하여 WACID 시스템의 개발과정에서 사전에 고려되어야 할 요건을 도출하였다. 국가 방사성폐기물 통합 체계 구축에 필요한 표준 입출력 요소 및 관리 체계를 도출하기 위해 기관별 방사성폐기물 관리 체계 및 업무를 설문조사를 통해 파악 및 분석하였다. 설문조사를 실시한 기관은 한국수력원자력주식회사, 원자력연구소, 한전원자력연료주식회사, 원자력환경기술원 등 실제 방사성폐기물에 대한 이력관리를 하고 있는 4개 사를 중심으로 실시하였다

표 2.1 방사성폐기물 관련정보의 보존에 관한 국제협약 및 IAEA의 기술요건

항목	관련 내용		
Safety Series No. 111-F(1995)	미래 세대가 활용할 수 있도록 방사성폐기물 관련 기록의 보존		
TECDOC 864(1996)	LILW 포장물의 인수기준에 대한 요건과 방법론 처분시설 인수를 위해 제공되어야 할 포장물별 표준 데이터 목록		
TECDOC 1097(1999)	처분기록의 유지에 관한 기본원칙과 정보전략 RW 기록관리시스템(Record Management System: RMS)의 3단계 구조		
TECDOC 1222(2001)	RW 저장 및 처분기록의 추적관리를 위한 데이터 모델		
Technical Report Series No. 411(2003)	원자력시설의 해체에 따른 기록관리 지침 및 사례		
NEWMDB	회원국의 RW 관련 시설, 재고량, 특성, 법령에 관한 데이터 목록		
방사성폐기물 안전협약	제6조 제13조	제안된 시설의 부지선정	방사성폐기물 및 사용후핵연료 관리시설과 관련하여 안전성에 관한 정보를 일반 국민이 이용 가능하도록 하여야 함을 명시하고 있다. 또한 시설 인근 체약국이 시설에 의해 영향을 받을 수 있는 경우, 시설과 관련된 일반적 자료를 제공하여야 함.
	제17조	폐쇄 후 제도상 조치	처분시설의 폐쇄 후에도 규제기관이 요구하는 시설의 위치, 설계 및 재고량에 대한 기록을 보존하여야 함.
	제19조	입법 및 규제체계	방사성폐기물 및 사용후핵연료의 관리와 관련한 입법 및 규제체계에서 적절한 제도상의 통제, 규제검사, 문서화 및 보고체계를 구축하도록 명시함.
	제23조	품질보증	방사성폐기물 및 사용후핵연료 관리의 안전성에 관한 적절한 품질보증 프로그램의 수립과 이행을 보장하기 위한 조치를 취하도록 명시하고 있으며, 통합정보시스템을 통한 주요 기록의 관리는 상기 조항의 이행을 위한 방안의 일환으로 이해할 수 있음.
	제32조	보고	다음 사항을 국가보고서에 기술하도록 명시함. <ul style="list-style-type: none"> ◦ 방사성폐기물 및 사용후핵연료관리시설의 목록, 위치, 주목적 및 주요특성 ◦ 방사성폐기물 및 사용후핵연료관리시설에 저장중이거나 처분된 폐기물 또는 연료의 재고량 (물질에 대한 설명, 부피 또는 질량, 총방사능 및 특정 핵종에 관한 정보를 포함) ◦ 해체가 진행 중인 원자력시설의 목록과 해체상황

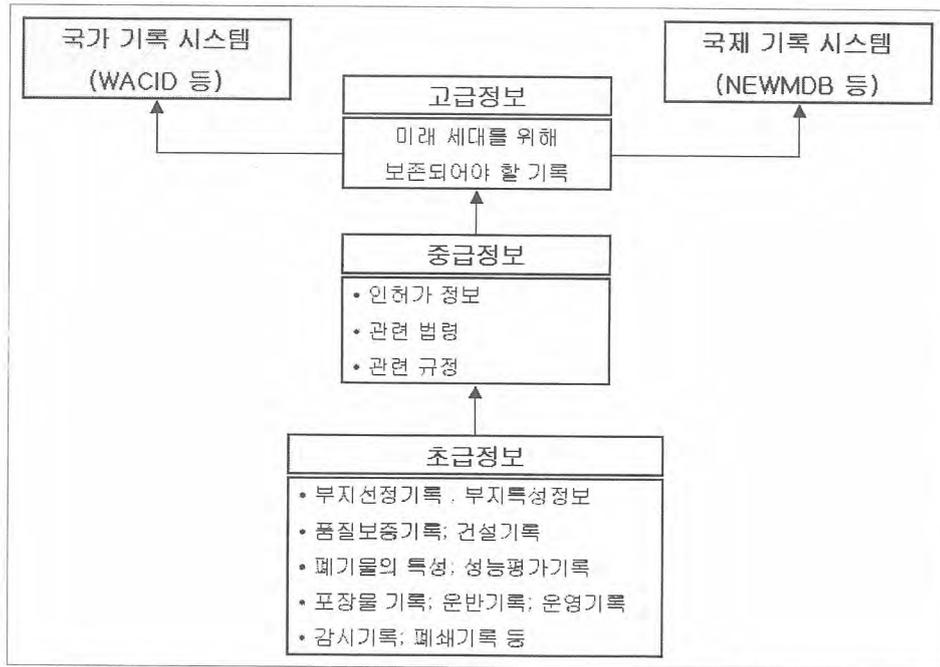


그림 2.1 방사성폐기물 관련 정보의 분류 및 보존체계(TECDOC-1097 발취)

3. 국내의 유사전산시스템 분석 및 벤치마킹

3.1 국내 주요시스템

가. 방사선안전관리통합정보시스템(RASIS)

방사성 동위원소의 사용증가와 더불어 급속히 증가하고 있는 RI 관련 업무의 행정처리 절차를 간소화하고 대민 지원을 극대화하기 위하여 RI관련 정보를 종합적으로 수립, 인터넷을 이용한 체계적이고 종합적인 안전관리를 하기 위한 시스템으로 방사성동위원소 폐기물을 관리하고 있는 바 WACID 데이터베이스 구성에 참고할 부분을 포함하고 있다.

나. 방사능방재대책기술지원전산시스템(CARE)

KINS에서는 원자력 시설의 방사선사고 시 방사능 방호 기술지원을 위한 사고 상황 파악, 대기 확산, 방사선 영향 평가 및 예측자료 등을 이용하여 방사선으로부터 국민을 보호하기 위한 방재 대책기술지원시스템(CARE)을 구축하여 운영중이다. 이 시스템은 다양한 모듈을 가지고 데이터 처리를 하는 시스템으로 각 중 모듈의 다양한 데이터의 흐름이나 연계성을 참고할 수 있다.

다. 한수원 방사성 폐기물 관련 ERP 시스템

(DREAMS: Digital Realtime Enterprise Management System)

한국수력원자력주식회사는 전사적 자원관리시스템(ERP:Enterprise Resource Planning)의 일환으로 DREAMS(Digital Realtime Enterprise Management System)가 2003년 2월부터 본격 가동을 시작하였으며 이 중 원자력 발전소의 방사성폐기물관리(RWM)는 원전에서 발생하는 폐기물 관리를 목적으로 구축되었다. 국내 전체 폐기 발생량의 대부분을 차지하는 기관의 시스템으로 굽 2.2에서 보는 바와 같이 다양한 데이터 요소를 가지고 있어 WACID 데이터베이스의 데이터 요소와 거의 일치한다.

1.0 Vision

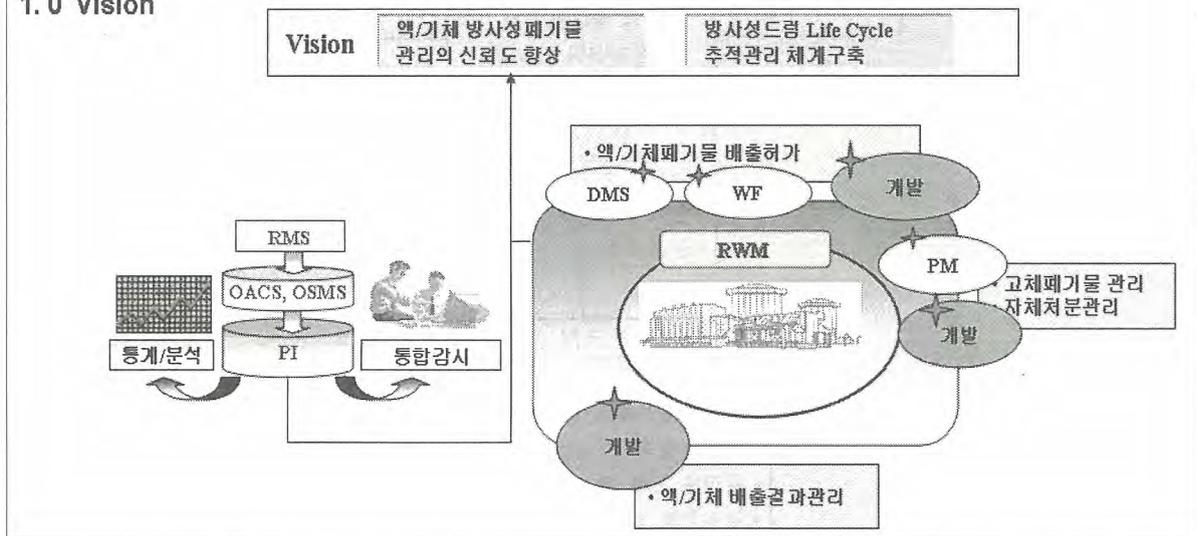


그림 3.1 한국수력원자력주식회사의 방사성폐기물관리시스템 구성도

라. 원자력연구소 방사성폐기물 데이터베이스

(RAWMIS : RAdWaste Management Information System)

한국원자력연구소는 자체의 방사성폐기물 관리를 위한 RAWMIS(Radioactive Wastes Management Integration System)을 2002년 7월부터 구축에 착수하였다. 현재 1단계, 즉 사용자 요구사항과 업무분석을 통한 시스템 및 데이터베이스 설계를 완성하였으며 방사성폐기물 관리 목적 이외에 다음과 같은 목적들이 포함되었다. RAWMIS의 구체적인 구축목적은 첫째, 연구소 발생 방사성폐기물의 관리에 있어서 업무흐름에 입각한 데이터의 확보를 통해 폐기물을 처분이전의 단계까지 추적 관리할 수 있도록 하고 둘째, 폐기물 관리 단계의 데이터 확보로 폐기물 재고량(Inventory)규명에 활용하며 셋째, 폐기물의 처리 공정별 측정데이터를 확보하여 물질수지연구 및 다른 폐기물 관리 및 처리 영역에 대한 연구 수행에 기반을 제공하며 넷째, 확보된 데이터를 국가 차원의 통합 안전관리 정보체계(WACID)와 연계하도록 하기 위함이다. 또한 연구소 폐기물의 다양한 핵종과 발생의 불규칙적인 측면 등의 특성을 고려하여 연구소 폐기물 특성에 적합한 DB설계를 완료하였다

마. 원자력연구소 해체폐기물 관리시스템

서울에 위치한 연구로 1,2호기는 1995년 가동정지 시까지 각종 원자력 연구개발 및 교육, 훈련 등 국내 원자력 분야에 지대하게 이용되었다. 이후 관리의 어려움, 시설의 노후화 및 30MW급 다목적 연구용 원자로인 하나로의 가동에 따라 과학기술부는 연구로 1, 2호기를 폐로하기로 결정하였다. 이에 따라 한국원자력연구소는 1996년 하반기에 연구로 1, 2호기의 폐로를 위한 Engineering 업무를 수행하고 해체계획서를 작성한 후 인허가를 신청하여 2000년 11월에 정부로부터 승인을 얻어 해체 활동을 시작하여 현재 진행 중에 있다. 수년 또는 수십 년 이상 소요되는 해체 작업은 체계적으로 관리하여야 할 다량의 방사성폐기물, 해체 작업자료, 작업자 안전관리 및 피폭관리, 해체 소요비용, 해체 기술 등 수많은 정보가 필연적으로 발생한다. 따라서 이러한 방대

한 양의 정보들을 체계적으로 보존·관리할 수 있는 D/B Structure를 개발하는 것은 필수적인 사항으로 많은 선진국들도 나름대로의 D/B 시스템을 개발하여 활용하고 있다. 특히 정보자료를 D/B화 해 줌으로써 추후 원자력시설 해체 시 매우 유용한 기술 자료로 활용될 수 있을 것이다.

바. 한전원전연료주식회사 ERP System(MES: Material Engineering System)

한전원자력연료주식회사(KNFC)는 21세기 정보화시대의 흐름에 부응하기 위해 방사성폐기물 관련 데이터 및 관리업무를 전산시스템으로 구현함으로써 업무의 종합적인 정보화를 추진하고 있다. 본 연구과제 착수시점인 2002.07월에는 KNFC의 MES 구축계획이 가시화 되지 않은 상태였으나, 2002.10월 시스템 개발사업이 시작됨에 따라 사전에 WACID 시스템과의 연계성 확보를 위한 검토가 적절하게 이루어질 수 있었던 것으로 평가된다. KNFC는 MES 개발사업과 관련하여 2002.04월 현재 방사성폐기물 관리 항목 및 데이터에 대해 1차 개발과 전체 화면 및 공정별 세부화면 검토 및 보완이 완료되었다. WACID에서 도출된 관리항목의 추가 반영작업은 2003.07월까지 완료되어 현재 운영 중에 있다.

3.2 해외 주요시스템

가. Central Internet Database(CID) : MS Windows NT/ORACLE

NRDC와 에너지부가 맺은 PEIS 화해협정을 통해, 수십억 달러가 소요되는 에너지부의 핵무기 제조부지 복원계획에 대하여 일반인들이 이해할 수 있는 가시적인 조치를 취함으로써 더 이상의 법정 소송을 피할 수 있게 되었다. 협정서에 명시되어 있는 에너지부의 조치사항 중의 하나가 에너지부에서 관리하고 있는 방사성폐기물, 시설 및 오염물질 등에 대한 현재의 정보시스템을 종합하는 데이터베이스 시스템을 개발 및 운영하는 것이다. 이 데이터베이스 시스템은 웹 기반 보고서 출력시스템을 가지며 인터넷으로 일반인의 정보 취득이 가능하도록 구성되어야 한다. 1999년 1월부터 에너지부에서 화해협정에 명시된 데이터베이스 시스템을 개발·운영하기 위한 전문 팀을 구성하여, 현재 운영중인 정보관리시스템을 조사 분석하고 각종 정보들을 종합할 새로운 데이터베이스 시스템을 설계하기 시작했으며, 1999년 6월 Central Internet Database (CID) 시스템의 시제품을 개발하여 현재 운영 중에 있다. CID시스템은 일반인의 접속이 가능한 온라인 데이터베이스 시스템으로 수요자의 요건에 맞도록 여러 종류의 보고서를 발행할 수 있도록 구성되어 있다. 동 시스템에서는 방사성폐기물, 비방사성 유해폐기물, 오염물질, 미국 에너지부에서 관리하는 원자력 관련 설비, 사용후핵연료, 방사성물질 함량 및 유해화학물질에 대한 각종 정보를 제공하고 있다. CID 홈페이지의 초기화면은 그림 3.2와 같다.

나. Low-Track : MS Windows Application

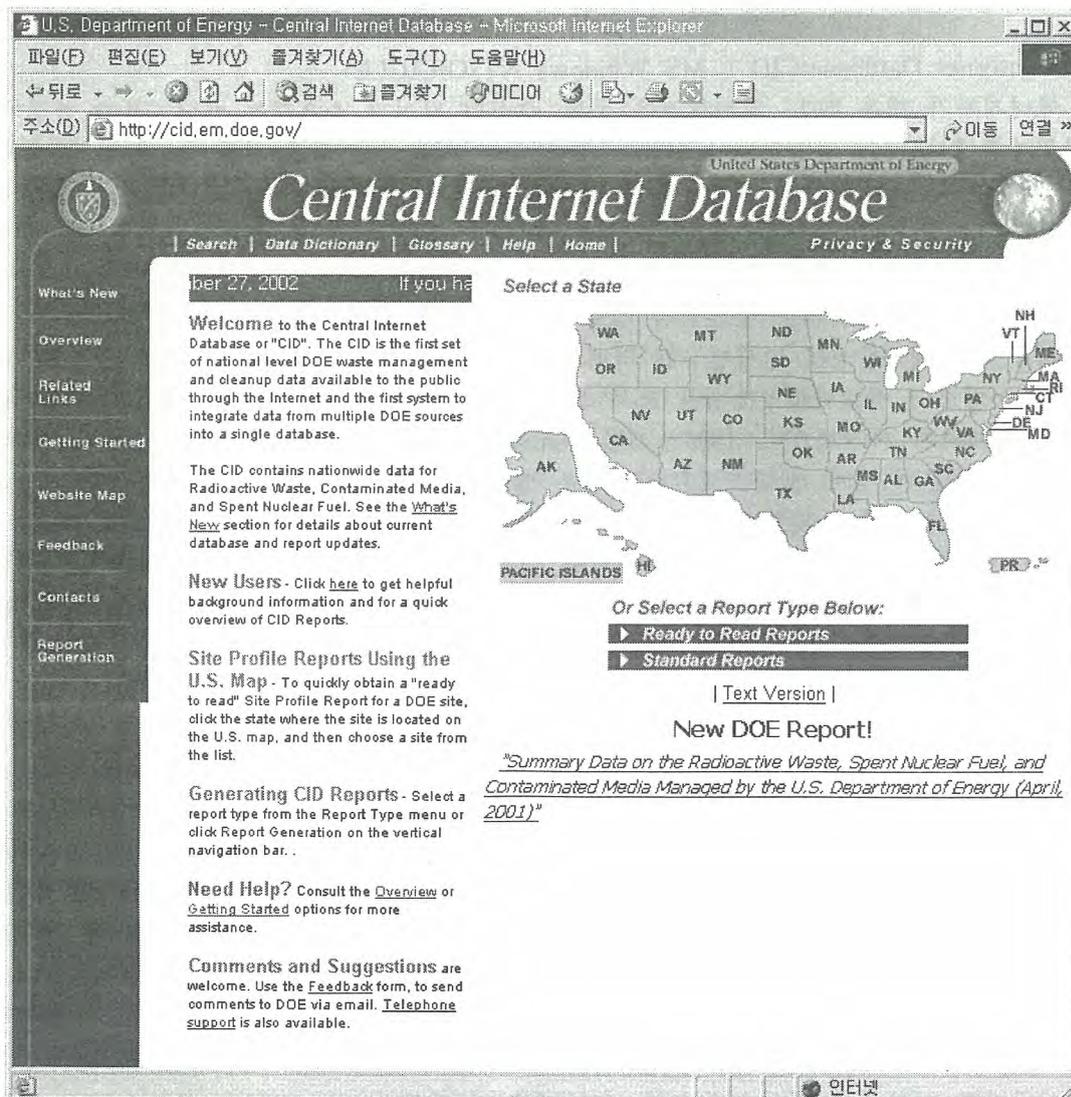
Low-Track(Low-Level Radioactive Waste Inventory Management System)은 미국 INEEL에서 개발하였으며, 방사성폐기물 발생자가 관리이력을 종합적으로 관리할 수 있도록 지원하는 전산도구이다. MS Windows에서 운영되는 Low-Track은 발생기관의 폐기물 생성기록, 처리기록, 반출기록, 용기에 관한 정보 등을 전산 입력하여 관리하도록 지원하기 위해 개발되었으며, 방사성폐기물의 소외운반시 NRC에 제출해야할 일련의 서류를 출력하는 기능을 가지고 있어 국내 방사성폐기물 운반/저장/관리 프로세스에 대한 비교/분석하기 위해 벤치마킹 하였다.

다. NEWMDB : MS Windows NT/MS SQL Server

IAEA는 국가별 방사성폐기물 관리 프로그램, 계획 및 활동, 관련 법 및 규정, 정책 및 폐기물

재고량 등에 관한 정보를 관리하는 WMDB를 1989년부터 개발하여 운영해왔으며, 각 회원국으로부터 정보를 취합 및 WMDB에 저장하여 이를 기준으로 보고서를 작성하였다. 그러나, WMDB를 운영하여 관련정보를 수집하는 데 따르는 문제점과 관련 보고서의 신속성에 대한 문제로 1999년 중반부터 WMDB에 대한 포괄적인 검토가 이루어졌고, 그 결과로 기존의 WMDB의 단점을 보완할 수 있는 NEWMDB 개발에 착수하게 되었다. NEWMDB에 저장되는 정보는 기존의 WMDB와 유사한 형식이기는 하나, WMDB의 단점을 최소화하기 위해 NEWMDB의 양식 및 내용에 대한 개선이 이루어졌다. NEWMDB는 두 개의 요소로 구성되어 있으며, 구조정의(Framework Definition) 요소와 폐기물 자료요소로 구분된다. 구조정의 요소는 회원국이 자국 방사성폐기물관리프로그램에 대한 정보 보고방식(NEWMDB 보고구조)을 설정하는 데 이용되며 국가별 담당자(Country Co-ordinator)에 의해 입력된다. 폐기물자료요소는 국가별 담당자가 저장 및 처분된 폐기물 자료(폐기물 등급별), 폐기물관리 기관별 처리방법 현황(Treatment and/or Conditioning), 및 사용후 밀봉방사선원(SRS)에 대한 상세 현황 등의 자료 입력을 위해 사용된다.

그림 3.2 CID 홈페이지 메인 화면



4. 통합 DB의 모듈화 구성

4.1 DB의 모듈화 구성 방법

WACID 데이터베이스의 개발·운영 및 보수의 효율성을 제고하기 위하여 관리 대상에 따라 개별 DB를 모듈화 하였으며, 이를 통하여 모듈화를 통한 검색 및 관리의 편의성, 관리 대상별 관련 데이터를 독립적인 DB에 저장/관리함으로써 시스템 관리의 용이성, 폐기물 전문가에 대한 NEWMDB 정보입력 및 수정권한 설정, 데이터의 특성 및 기능에 따른 차등화된 관리, WEB을 통해 제공될 정보를 실제 콘텐츠 특성별로 사전에 모듈화 하여 분류함으로써, 신속한 검색 및 유지보수 가능과 같은 목적을 달성하고자 하였다.

가. 방법론 및 선정 절차와 결과

국내 법령, 폐기물안전협약, 국외에서 운영중인 유사DB 분류체계에 따라 모듈을 선정하고 현재 동위원소폐기물 관련 정보는 KINS에서 기 운영중인 RASIS 시스템에서 관리하고 있으며, 폐밀봉선원 등은 중저준위폐기물과 구분하여 관리하는 것이 국제적인 관행임에 따라 별도 모듈로 구성한다. 또한 운반, 소각 등의 정보는 폐기물 데이터의 관리주체 변경 또는 소멸 등과 관련하여 이력추적을 위해 필요한 정보로서 기타 모듈로 분류하였다. 향후 10년 내 예상되는 사업을 고려하여 향후 시스템 활용도 제고를 위하여 방사성폐기물의 처분에 관한 모듈을 별도로 구성하였다. 전체 데이터베이스 모듈의 표기는 표3.1에서와 같은 형태로 분류하였다.

나. 입력등급 부여원칙

- A : WACID 에서 요구하는 필수 기관 입력 정보를 의미
- B : 처분 안전성 관련 향후 필수 항목으로 예상되는 요소 (당분간 필수항목 아니나, 향후 필수항목 가능성이 큰 것)
- C : 특정 기관에 한해 필수정보
- D : 기관별, 상황별 조건에 따라 입력여부를 자체 결정할 사항
- E : 각 기관에서 입력된 정보를 바탕으로 자동 생성되는 요소를 의미
- F : 향후 처분 관련 시설 운영자가 입력할 요소

4.2 DB의 모듈화 구성 결과

표 4.1 WACID 데이터베이스 모듈

모듈명	약자	국외 유사 DB명
중저준위폐기물 모듈	LILW	NEWMDB(IAEA)
동위원소폐기물 모듈	RIRW	SRS Registry(IAEA)
해체폐기물 모듈	DDRW	DRCS(IAEA)
사용후핵연료 모듈	SNFM	Fuel-Trac(미국), ISNFDS(미국)
액체유출물 모듈	LEFF	DIRATA(IAEA)
기체유출물 모듈	GEFF	DIRATA(IAEA)
처분 모듈	DISP	NEWMDB(IAEA)
기타(자체처분, 운반 등) 모듈	MISC	NEWMDB(IAEA)

가. LILW : 중저준위폐기물 모듈

중저준위폐기물 관련 데이터는 WACID의 가장 기본적이고 중요한 정보로서 관리되어야 할 정보의 수량이 가장 많을 것으로 예상되며, 데이터베이스를 설계하기 전에 고려되어야 할 데이터 요소를 사전에 결정할 필요가 있다.

나. SNFM : 사용후핵연료 모듈

현행 법령상 일단 방사성폐기물로 정의된 사용후핵연료의 발생 및 저장현황에 관한 필수적인 데이터를 국가적으로 관리할 필요가 있음에 따라, WACID에서 사용후핵연료 모듈을 별도로 구성할 필요가 있다.

다. LEFF : 액체유출물 모듈

액체유출물은 원자력이용시설이 운영과정에서 액체상태로 환경으로 배출되는 방사성물질의 의미이며, 국민의 건강 및 환경상의 위해방지에 따른 주요 관리항목임. 또한 유출물 관련 데이터는 중저준위폐기물 등과 큰 차이가 있으며 인허가 조건에 따른 시설별 관리항목이 상이하므로, 이러한 특성을 반영하여 액체유출물 관련 데이터를 별도의 모듈에서 관리하는 것이 타당하다.

라. GEFM : 기체유출물 모듈

기체유출물은 원자력이용시설이 운영과정에서 기체상태로 환경으로 배출되는 방사성물질을 의미하며, 국민의 건강 및 환경상의 위해방지에 따른 주요 관리항목임. 또한 유출물 관련 데이터는 중저준위폐기물 등과 큰 차이가 있으며 인허가 조건에 따른 시설별 관리항목이 상이하므로, 이러한 특성을 반영하여 기체유출물 관련 데이터를 별도의 모듈에서 관리하는 것이 타당하다.

마. RIRW : 동위원소폐기물 모듈

동위원소폐기물 관련 데이터는 산업체 및 병원 등에서 사용하는 방사성동위원소중 사용 후 폐기의 대상이 되는 개봉선원 및 밀봉선원 관련 정보로서, 데이터베이스를 설계하기 전에 데이터 요소를 사전에 결정할 필요가 있다.

바. DDRW : 해체폐기물 모듈

원자력이용시설의 해체과정에서 발생하는 폐기물의 상당 부분은 벌크(Bulk) 상태이며, 이후 중저준위폐기물 또는 비방사성폐기물 등으로 분류될 수 있다는 특성이 있음. 또한 향후 발전용원자로의 본격적인 해체에 대비하여 시설의 해체과정에서 발생하는 폐기물에 관한 정보를 별도의 모듈에서 관리할 필요가 있음.

사. DISP : 폐기물 처분 모듈

아직까지 국내에서는 방사성폐기물 처분시설이 운영되지 않고 있으나, 현재 2008년을 목표로 시설 확보사업이 진행 중임. 향후 WACID 시스템의 유지보수 편의성 및 활용성 제고를 위하여, 방사성폐기물 처분과 관련한 필수적인 정보를 관리하기 위한 별도의 데이터 모듈 관리요소를 도출할 필요가 있다.

아. MISC : 기타 (자체처분, 운반, 소각 등) 모듈

기타 모듈은 방사성 폐기물 처리에 대한 데이터 수량이 많지 않은 세부 모듈을 통합하여 개발한 것이며, 폐기물 정보요소의 Life-Cycle(예 소각시 중저준위폐기물 용기정보의 삭제 등)을 추적하기 위해 필수적인 항목이다.

5. 하부 DB 모듈간의 정보 연계성 확보 및 정보처리과정

5.1 데이터 모듈별 ERD 등 설계결과

모듈별로 구성하여 선정된 관리 데이터 요소를 데이터베이스화하기 위하여 유사한 요소끼리의 엔티티(Entity)화, 개별 엔티티간 링크 역할을 하는 주식별자와 보조식별자를 선정하고 논리적/물리적 ERD를 도출하여 WACID 데이터베이스 설계를 진행하였다.

가. 엔티티(Entity) 정의

모듈간 중복되는 요소 및 엔티티는 단일의 엔티티로 통합하였으며 각 모듈의 공통 엔티티로 지정하였다, 각 엔티티(Entity)간의 Primary Key를 선정하여 엔티티간 링크가 가능토록 구조화되었다. 예를 들어 중저준위폐기물 같은 경우에는 용기일련번호를 엔티티간 중복되지 않는 유일한 Key로 선정하여 각기 분산되어 있는 모든 엔티티들의 정보를 용기 일련번호만을 대입한 간단한 질의를 통해서 대부분의 정보를 검색할 수 있게 된다. 유사한 요소로 정렬한 엔티티는 하나이상의 Primary Key를 가지며 하나이상의 관련 속성을 지니게 되며 이러한 엔티티의 설계는 데이터베이스화하기 위한 기초 골격을 형성한다.

표 5.1 모듈 공통 엔티티(Entity) 정의서(일부)

엔티티 타입명	엔티티타입 설명	동의어/유의어	관련 속성
핵종별 방사능	핵종별 방사능정보를 적재한다.		방사능
			방사능평가일자
처리	폐기물 처리방법 종류 정의		처리코드
			처리명칭
			처리구분
용기	방사성폐기물 처리시 사용되는 용기에 대한 정보	드럼	용기코드
			용기명칭
			용기구분
			용기외용적
			용기내용적
			재질
			가연성여부
			형태
발생	폐기물 발생에 대한 원인을 정의		발생코드
			발생명칭
			비고
측정방법	방사능측정방법에 대한 종류를 정의		측정방법
			측정방법설명

나. 주식별자 & 보조 식별자 정의

모듈별 엔티티(Entity) 간의 링크를 위한 고유 식별자와 보조식별자를 각각의 엔티티에 부여하였다. 따라서 분산된 다수의 엔티티는 식별자를 통해 서로 간에 데이터를 참조할 수 있는 구조를 지닐 수 있도록 설계되었다. (표 2.17 주식별자 & 보조식별자 정의 참고)

표 5.2 주식별자 & 보조식별자 정의(일부)

엔티티 타입명	주식별자	보조식별자	외부식별자
시설	시설코드		시설유형코드
시설유형	시설유형코드		
사용자	사용자코드		시설코드, 사용자그룹코드
고체용기	일련번호	발생일자	시설코드, 사용자코드, 내부차폐체코드, 외부차폐체코드, 용기코드
재포장			
폐기물속성	일련번호		일련번호, 화학물질코드, 폐기물코드, 등급코드, 화학물질코드, 발생코드, 처리코드
고체측정	일련번호		일련번호
핵종별 방사능	일련번호, 핵종코드	방사능평가일자	일련번호, 핵종코드
기타자료	일련번호		일련번호
폐기물종류	폐기물코드		물리적형태코드

다. 용어사전

각각의 사용 용어에 대한 동의어, 영문표시 및 용어 정의를 통하여 개별 단어에 대한 명칭의 정의를 통해 데이터베이스 구성 시 이를 활용해 표기한다.

표 5.3 용어사전(일부)

용어	동의어	물리명	축약	용어정의
2차		Second	SECO	
가능성		Possibility	POSS	실제로 이루어질 수 있는 실현성 있는 것
가연성		Combustible	COMB	불에 탈 수 있거나 타기 쉬운 성질
가중		Severity	SEVE	책임이나 부담 등을 더 무겁게 함
감시		Monitoring	MONI	단속하기 위하여 주의 깊게 살핌
갑상선		Thyroid Gland.	T_GLAND	후두(喉頭)의 앞쪽 아랫부분에 있는 내분비선. 신체의 발육 및 신진대사에 관계하는 호르몬인 티록신을 분비한다.
값	수치	Value	VALU	사고파는 물건에 일정하게 매겨진 액수.
강도		Strength	STREN	센 정도.
게시물		Notice	NOTI	여러 사람에게 알리기 위하여 내붙이거나 내걸어 두루 보게 한 물건이나 글.
게시판		Board	BOAR	여러 사람에게 알릴 내용을 내붙이거나 내걸어 두루 보게 붙이는 판

라. 테이블명 정의

각각의 선정된 엔티티(Entity) 는 물리적인 실제 데이터베이스 테이블 형태로 가공되어지며, 영문의 물리명을 축약한 형태의 이름으로 테이블명을 할당하였다. 정의 형태의 엔티티는 테이블명 앞에 'def'를 달아 정의 형태의 테이블임을 알 수 있도록 하였으며, 공통 모듈에서 사용되는 테이블은 'CO'를 달아 모든 모듈에서 공통적으로 사용되어지는 테이블임을 알 수 있도록 구성하였다. 그 외 테이블을 각각의 모듈별 이니셜을 서두에 달아 모듈 고유의 테이블임을 알 수 있도록 지정하였다.

표 5.4 테이블명 정의(일부)

엔티티타입명	동의어	물리명	테이블명
특이사항	특기사항	Peculiar Case	CO_CASE
기타자료	그외자료	Other Document	CO_DOCUMENT
측정	검사	Measure	CO_MEASURE
인증게시판	인증보드	Authentication Board	ct_ABOARD
게시판	보드	Board	ct_BOARD
처분		Disposal	D_DISPOSAL
특이사항구분		Peculiar Case Divide	def_COCASEDIV
등급	레벨	Class	def_COCLASS
시설	설비	Facility	def_COFAC
시설유형	설비유형	Facility Type	def_COFACTYPE
용기	드럼	Container	def_CONTAINER
내부차폐체	내부차단제	Inside Blackout Curtain	def_SIBCURTAIN

마. 논리적 ERD

ERD는 각의 업무분석에서 도출된 엔티티타입과 엔티티타입간의 관계를 이해하기 쉽게 그림으로 표시하는 방법이다. 이에 본 설계에서는 요소의 의미를 직관적으로 판단할 수 있는 개체 관계도를 나타내었다. 도메인을 사용하여 모든 테이블에서 사용되는 도메인의 규칙을 지정하여 다양한 데이터형식을 규격화하였다. (참고 그림 5.1 LILW 논리적 ERD 도면)

6. 결 론

UN의 Agenda 21, IAEA의 방사성폐기물안전협약 및 통합 DBMS (NEWMDB, DIRATA 등)의 운영과 관련하여 국제기구를 중심으로 회원국의 방사성폐기물 안전관리 관련 정보의 통합관리 및 공개가 추진될 것으로 예상되며, 보다 종합적이고 객관적인 데이터의 제공이 요구될 것이다. 방사성폐기물의 발생·저장량이 지속적으로 증가됨에 따라 방대한 관련 정보의 저장 및 관리를 위한 각 기관의 업무부담이 함께 증가될 것으로 예상되며, 이를 보완하기 위한 업무 전산화 및 DB 구축수요가 증대될 것이다. 정부에 대한 정보공개 범위의 확대요구 및 IT의 발달에 따라 방사성폐기물 안전관리 현황정보를 포함한 각종 규제정보의 인터넷 공개가 가속화될 것으로 예상된다. 방사성폐기물 안전관리에 관한 국제협약의 요건이행 및 대내외적 정보공개 요구에 효율적으로 대처하기 위하여, 국가 방사성폐기물에 대한 통합정보시스템을 구축·운영할 필요가 있다. 일부 선진국에서 운영중인 통합정보 DBMS는 자국의 폐기물 특성, 법령 및 요건 등을 반영하여 개발된 것으로,

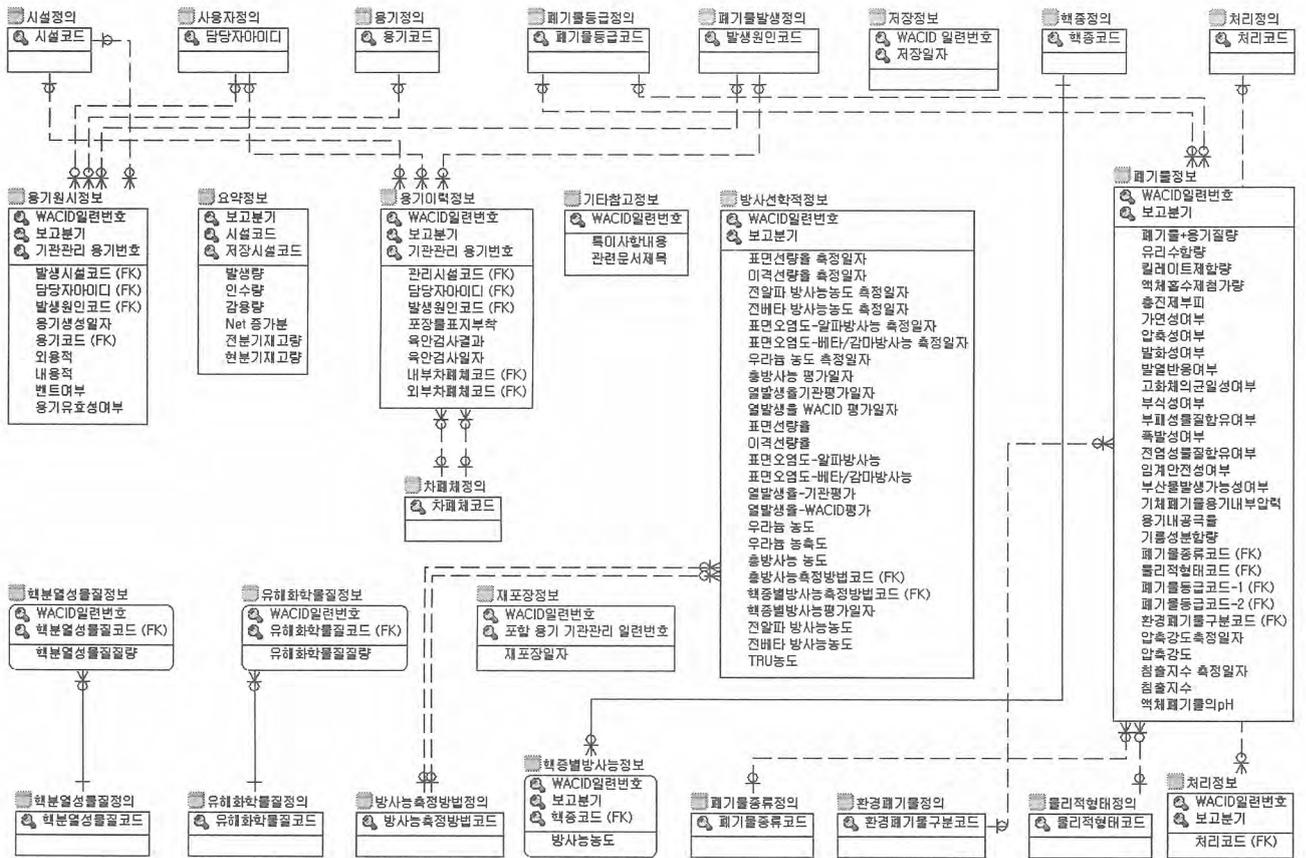


그림 5.1 중저준위 모듈 ERD

이를 도입하여 국내 상황에 직접 적용하는 것은 현실적으로 불가능하다. 현재 일부 선진국에서 운영 중인 방사성폐기물 관리정보 DBMS는 일반적으로 고체 혹은 액/기체로 나누어 운영되므로 통합체계 운영은 극소수이며 일반적으로 D/B 구축은 소프트웨어적 개발이라는 특성에 비추어 볼 때 관련기술 도입 시 많은 기술료의 지불이 예상된다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구기반확충사업 중 "방사성폐기물 안전관리 통합정보시스템의 구축 및 운영" 과제의 일환으로 수행되었습니다.

참 고 문 헌

1. 이춘식, “데이터베이스 설계와 구축” 한빛미디어.
2. George Koch, Kevin Loney “ORACLE8 The Complete Reference” KMK정보산업연구원 편역, 삼각형프레스.
3. “방사성폐기물 및 사용후핵연료 안전관리 통합시스템 최적체계개발” KINS/HR-401, 안전기술원 2001.
4. “방사성폐기물 및 사용후핵연료 안전관리 통합시스템 최적체계개발(2단계)” KINS/HR- 477, 안전기술원, 2002.
5. “Waste inventory record keeping system(WIRKS) for the management and disposal of radioactive waste” IAEA-TECDOC-1222, IAEA, 2001.
6. CID 홈페이지, <http://cid.em.doe.gov>.
7. “Low-track software-1996”, INEEL.
8. 손종식, “연구소 폐기물 관리 및 폐기물 정보관리 시스템 구축”, 원자력연구소, 제 7회 원자력안전기술정보회의, 2002.
9. 설증근, “방사성폐기물 관리시스템 구축”, 한전원자력연료, 제 7회 원자력안전기술정보회의, 2003.
10. 이건행, “방사선 안전정보체계구축”, 한수원(주), 제 8회 원자력안전기술정보회의, 2003.

월성원전 TRF 가동에 따른 삼중수소 방출량 예측

Prediction of Tritium Release from Wolsong Unit during the WTRF Operation

송규민, 이성진, 이숙경, 손순환, 엄희문
한전전력연구원

요 약

WTRF 가동에 따른 월성원전 삼중수소 방출량을 예측하였다. 호기별 WTRF 처리량 변화에 따른 월성원전 감속재와 냉각재 삼중수소 농도변화를 예측하였으며, 이로부터 삼중수소 방출량을 계산하였다. WTRF 가동에 의해 2013년에는 감속재 삼중수소 농도는 적어도 10 Ci/kg-D₂O 이하로 떨어지며, 이때 연간 삼중수소 방출량은 WTRF 가동초기보다 약 25% 정도로 감소하는 것으로 나타났다.

Abstract

The amount of the tritium released from Wolsong units during the WTRF operation is predicted. The profiles of tritium concentration in moderators and PHTs as variation of WTRF service allotment for each Wolsong unit are calculated, and the tritium releases are obtained from these tritium concentration profiles. The tritium concentration in moderator will be decreased down under 10 Ci/kg in 2013 and the yearly tritium release will be reduced below 25% of WTRF start year.

1. 서 론

월성원전 부지에는 중수호형 원전이 4개 호기가 있다. 중수로는 타 경수로형 원전에 비해 삼중수소 생성량이 상대적으로 크다. 대부분의 삼중수소는 중수중의 중수소와 중성자와의 반응에 의해 생성되고, 자연 붕괴 및 중수 손실로 인해 의해 일부 없어지지만, 생성속도가 제거속도에 비해 상대적으로 크므로 중수중의 삼중수소 농도는 운전년수에 따라 증가하게 된다. 이로 인한 삼중수소 환경 방출량이 증가하게 되므로 중수중의 삼중수소를 제거하여 계통내 삼중수소 축적량을 저감화할 필요성이 있다. 이를 위한 장기 대책으로 2005년까지 삼중수소 제거설비인 TRF(Tritium Removal Facility)를 준공할 예정이다. 본 연구에서는 WTRF 가동후 운전방식에 따른 감속재와 냉각재의 삼중수소 농도변화를 모델링하여 월성원전으로부터의 삼중수소 방출량을 예측하였다. 삼중수소 방출량은 월성 1호기에는 기존식을 적용하고, 후속기의 경우 AECL에서 제시한 설비개선 효과가 감안된 삼중수소 방출량 계산식을 따로 적용하여 예측하였다.

2. 본 론

2.1. 이론배경

2.1.1 WTRF 운전 에 따른 삼중수소 농도 변화

WTRF 가동 후 월성원전 계통내 삼중수소 농도는 운전방식에 따라 다음의 두 식으로 표현할 수 있다[1,2].

운전방식 I

$$A_m = \frac{\lambda}{3.7 \times 10^{10}} \cdot N_m = \frac{\lambda}{3.7 \times 10^{10}} \cdot \left[\left(N_m^0 + \frac{g_{1m}}{g_{2m}} \right) e^{\frac{g_{2m}}{M_m} t} - \frac{g_{1m}}{g_{2m}} \right] \quad (1)$$

$$A_c = \frac{\lambda}{3.7 \times 10^{10}} \cdot N_c = \frac{\lambda}{3.7 \times 10^{10}} \cdot \left[\left(N_c^0 + \frac{g_{1c}}{g_{2c}} \right) e^{\frac{g_{2c}}{M_c} t} - \frac{g_{1c}}{g_{2c}} \right] \quad (2)$$

운전방식 II

$$A_m = \frac{\lambda}{3.7 \times 10^{10}} \cdot N_m = \frac{\lambda}{3.7 \times 10^{10}} \cdot \left[g_1 e^{at} + g_2 e^{\beta t} + \left(\frac{c_{12} d_2 - c_{22} d_1}{c_{11} c_{22} - c_{12} c_{21}} \right) \right] \quad (3)$$

$$A_c = \frac{\lambda}{3.7 \times 10^{10}} \cdot N_c = \frac{\lambda}{3.7 \times 10^{10}} \cdot \left[g_1 \frac{a - c_{11}}{c_{12}} e^{at} + g_2 \frac{\beta - c_{11}}{c_{12}} e^{\beta t} + \left(\frac{c_{21} d_1 - c_{11} d_2}{c_{11} c_{22} - c_{12} c_{21}} \right) \right] \quad (4)$$

여기서 운전방식 I은 WTRF에서 처리된 중수의 삼중수소 농도에 상관없이 중수의 흐름이 「감속재 → TRF → 감속재」인 경우이며, 운전방식 II는 운전방식 I의 시나리오를 따르다가 WTRF에서 처리된 중수의 삼중수소 농도가 냉각재의 삼중수소 농도보다 낮아지는 시점에 중수의 흐름이 「감속재 → TRF → 냉각재 → 감속재」로 전환하는 경우이다.

2.1.2. 삼중수소 방출량

월성원전의 연간 삼중수소 방출량은 다음의 두 가지 식으로 나타낼 수 있다[3].

$$\begin{aligned} \text{방출량 I :} \quad & 1\text{호기 방출량} = 3,720 C_{\text{PHT}} + 250 C_{\text{MOD}} \quad (5) \\ & 2,3,4\text{호기 방출량} = 3,720 C_{\text{PHT}} + 125 C_{\text{MOD}} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{방출량 II :} \quad & 1\text{호기 방출량} = 3,720 C_{\text{PHT}} + 250 C_{\text{MOD}} \quad (6) \\ & 2,3,4\text{호기 방출량} = 75 C_{\text{MOD}} \end{aligned}$$

위에서 방출량 I은 월성 2,3,4호기의 설비개선효과로 후속기 감속재 방출량이 월성 1호기의 1/2로 줄어드는 것으로 평가한 것이며, 방출량 II는 캐나다 AECL에서 평가한 월성 2,3,4호기 설비개선효과를 기준으로 평가한 후속기의 삼중수소 방출량이다.

2.2. WTRF 운전 시나리오

본 연구에서의 WTRF 운전 시나리오는 호기별로 할당되는 처리량의 변화측면을 고려하였다. 모든 시나리오의 운전범위는 운전방식 I과 II가 모두 가능한 상태이다. 즉 감속재를 처리한 중수의 삼중수소 농도가 냉각재 삼중수소 농도보다 낮을 경우 WTRF에서 생산되는 중수를 냉각재로 사용할 수 있다.

초기별 할당되는 처리량 변화의 경우 가동률에 의한 실제 WTRF의 처리량 변화부분이 있으며, 이를 각 호기별로 분배하여 할당되는 처리량 변화부분이 있을 수 있다. 호기별 분배되는 처

리량 변화의 경우는 1호기 감속재의 삼중수소 농도가 다른 호기에 비해 높기 때문에 고려한 것으로, WTRF를 가동하면서 1호기와 다른 호기의 감속재 삼중수소 농도변화에 따라 결정된다. WTRF의 가동률의 경우는 원전가동률을 고려하였다. 처리량 배분의 경우 감속재 삼중수소가 높은 1호기를 별도로 취급하였으며, 2~4호기는 동일하게 취급하였다. 즉, WTRF 운전초기부터 4개 호기에 대해 동일한 처리량인 25 kg/hr를 적용한 시나리오와 삼중수소 농도가 높은 1호기를 대상으로 100 kg/hr, 70 kg/hr, 40 kg/hr로 처리하다가 2호기와 삼중수소 농도와 같거나 낮아지는 시점에서 전호기에 대해 동일하게 25 kg/hr로 처리하는 시나리오를 선정하였다.

<표 1>은 본 연구에서 적용한 WTRF의 운전시나리오를 정리한 것이다.

<표 1> WTRF 운전시나리오

변 수	시나리오							D-I	D-II		D-III		D-IV	
	C-I	C-II		C-III		C-IV			- 1	- 2	- 1	- 2	- 1	- 2
처리량 변화 유무 ¹⁾	없음	있음		있음		있음		없음	있음		있음		있음	
호기별 처리량(kg/hr)														
1호기	25	100	25	70	25	40	25	25	100	25	70	25	40	25
2호기	25	0	25	10	25	20	25	25	0	25	10	25	20	25
3호기	25	0	25	10	25	20	25	25	0	25	10	25	20	25
4호기	25	0	25	10	25	20	25	25	0	25	10	25	20	25
가동률(%)	80	80	80	80	80	80	80	64	64	64	64	64	64	64
가동률을 고려한 실제 처리량 합계(kg/hr)	80	80	80	80	80	80	80	64	64	64	64	64	64	64

¹⁾ 시나리오중 -1은 WTRF 운전초기에 1호기를 대상으로 하고, -2는 2호기의 감속재 농도가 1호기의 감속재 농도와 같아지는 시점에 처리량을 변화시키는 경우이다.

2.3. 전산모사 가정

WTRF 가동 후 감속재 삼중수소 농도계산과 삼중수소 방출량 예측을 위해 다음의 가정을 적용하였다.

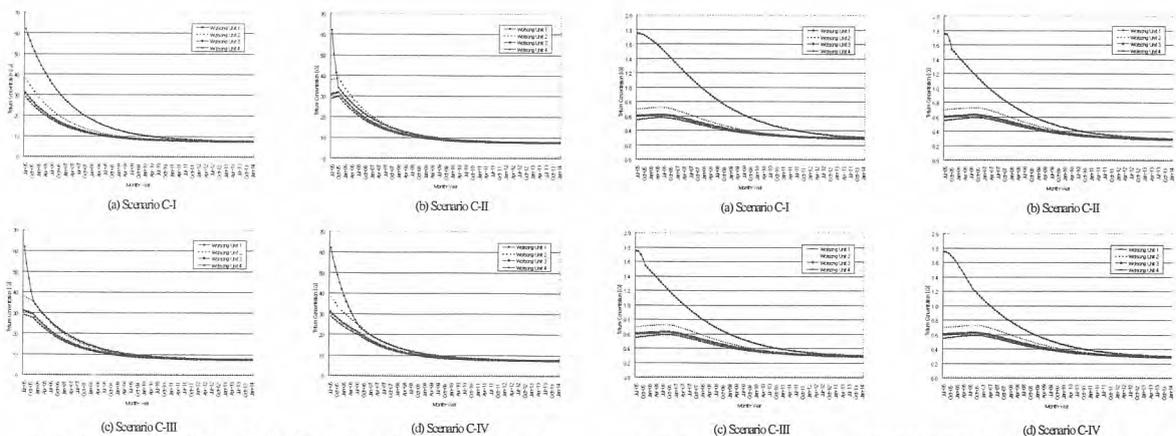
- WTRF 가동은 2005년 7월 1일에 시작한다.
- 이 시점에서 감속재 삼중수소 초기농도는 1호기 62 Ci/kg, 2호기 38 Ci/kg, 3호기 31 Ci/kg, 4호기 29 Ci/kg로 가정한다.
- 삼중수소 농도는 월의 날수를 고려한 1개월 단위로 산출하고, TRF 가동과 운전방식전환 판단여부의 기준으로 삼는다.
- WTRF 처리량(TF)은 100 kg/hr, 탈삼중수소율(DF)은 35로 한다.
- 각 호기간의 중수이동은 없다. 혹은 호기간의 중수이동은 중수의 혼합을 야기하므로 삼중수소의 농도가 일치할 경우에만 가능한 것으로 한다.
- 각 호기의 WTRF 운전방식전환은 TRF 처리후 삼중수소 농도가 그 시점의 냉각재내 삼중수소 농도보다 낮을 경우 행해진다.
- 운전 시나리오에 따라 각 호기에 대한 처리량과 가동률이 달라질 수 있다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 삼중수소 농도변화

월성 1, 2, 3, 4호기를 대상으로 WTRF 가동 후 운전시나리오에 따른 감속재 및 냉각재의 삼중수소 농도를 계산하였다. <그림 1>은 WTRF 운전 시나리오 C 경우, 호기별 감속재내 삼중수소 농도변화를 나타낸 그림이다. 시나리오 C-II의 경우 WTRF 운전초기 월성 1호기만을 대상으로 처리하기 때문에 1호기 감속재 삼중수소 농도가 급격히 감소하는 반면 TRF 서비스 대상이 아닌 다른 2,3,4호기의 감속재 삼중수소 농도는 증가한다. 그러나 일정기간이 경과하여 월성 1호기 감속재 삼중수소 농도가 월성 2호기 감속재 삼중수소 농도와 비슷해지면, 전호기를 대상으로 동일한 처리량으로 WTRF를 가동함에 따라 월성 2,3,4호기의 감속재 농도가 같이 내려간다. 2013년에는 전호기의 감속재 삼중수소 농도가 약 8 Ci/kg 이하로 떨어진다. 시나리오 C-III과 C-IV의 경우는 WTRF 운전초기에 월성 1호기를 대상으로 TRF 총 처리용량의 각각 70%와 40%에 해당되는 70 kg/hr, 40 kg/hr를 적용한 경우로, 시나리오 C-II와는 달리 전호기의 감속재 농도가 모두 떨어지지만, 여전히 처리량이 많은 월성 1호기의 감속재 농도가 급속히 떨어진다. 그리고 일정기간 경과하여 월성 1호기의 감속재 삼중수소 농도가 월성 2호기 감속재 삼중수소 농도와 비슷해지고, 이후 2013년에는 전호기의 감속재 삼중수소 농도가 약 7.5 Ci/kg 근처까지 떨어진다.

<그림 2>는 WTRF 운전 시나리오 C의 경우, 호기별 감속재 삼중수소 농도변화를 나타낸 그림이다. 운전방식 II로 WTRF가 운전될 경우, 감속재의 삼중수소 농도뿐만 아니라 냉각재의 삼중수소 농도도 함께 낮아진다. 그러나 WTRF의 운전 초기부터 운전방식 II에 의해 운전되는 것이 아니라, WTRF에 의해 처리된 중수의 삼중수소 농도가 냉각재의 삼중수소 농도보다 높은 경우는 운전방식 I에 의해 운전된다. 따라서 WTRF 운전 초기에는 운전방식 I에 의해 운전되지만, 감속재 삼중수소 농도가 낮아지면서 TRF에 의해 처리된 중수의 삼중수소 농도가 냉각재 농도보다 낮아지는 시점에서 운전방식 II로 바뀌게 된다. <그림 2>의 시나리오 C-I의 경우 1호기 냉각재의 삼중수소 농도는 가동후 2개월만인 2005년 9월부터 운전방식 II로 전환되며 냉각재의 삼중수소 농도도 감소하기 시작한다. 반면에 2,3,4호기의 냉각재의 경우는 약 1년만인 2006년 5~6월이 되어서 운전방식 II로 전환된다. 월성 1호기를 대상하는 운전방식이 조기에 전환되는 이유는 냉각재 삼중수소 농도가 높아 감속재를 처리하고 난 중수의 삼중수소 농도가 단기간에 낮아지기 때문이다. 월성 1~4호기 모두 최종적으로는 약 0.3 Ci/kg 근처 평형값으로 접근한다.



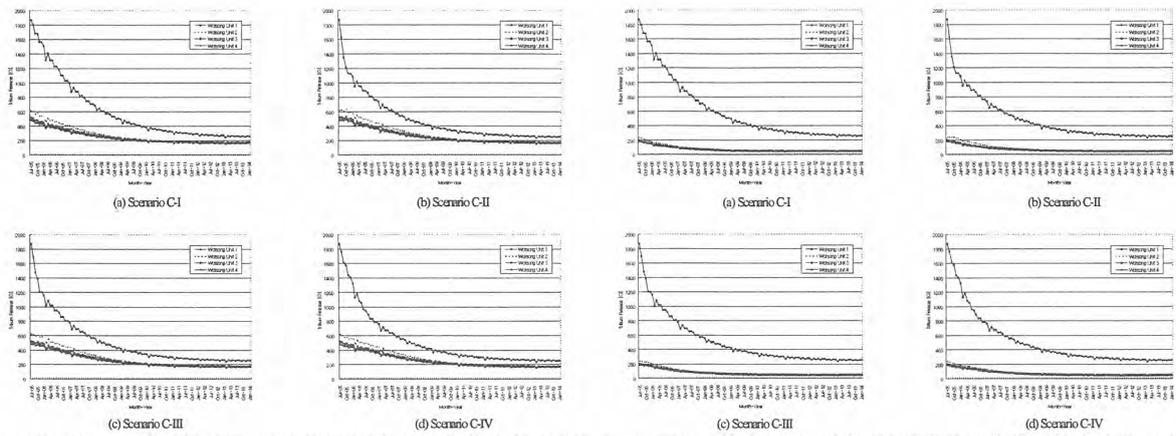
<그림 1> WTRF 운전시나리오에 따른 감속재 삼중수소 농도변화(시나리오 C)

<그림 2> WTRF 운전시나리오에 따른 냉각재 삼중수소 농도변화(시나리오 C)

3.2. 삼중수소 방출량

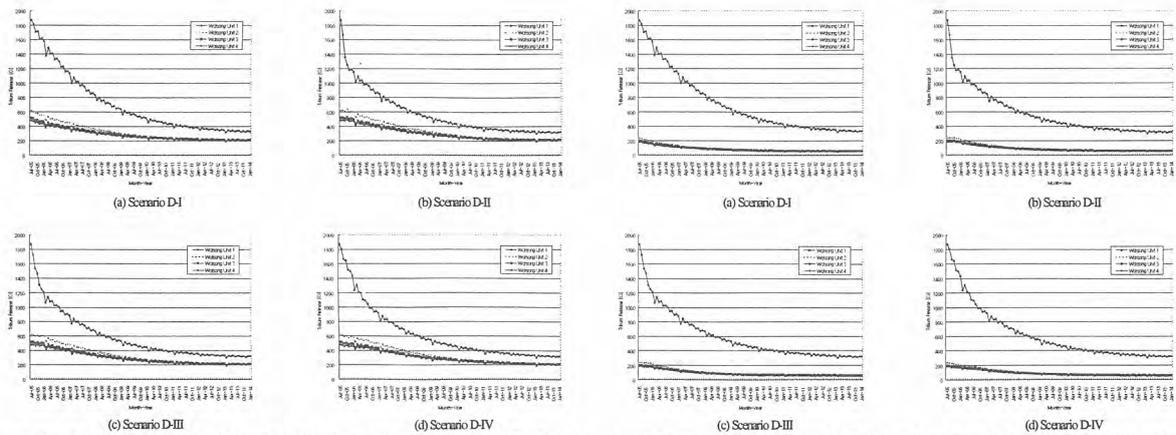
<그림 3~6>에서 WTRF 가동시점인 2005년도 7월부터 2013년 12월까지의 월간 삼중수소 방출

량을 운전시나리오에 따라 호기별로 볼 수 있다. 월성 1호기의 경우 감속재 및 냉각재의 삼중수소 농도가 높아 WTRF 가동초기에는 삼중수소 방출량이 상당히 높은 상태이다. 그러나 월성 2,3,4호기의 경우 삼중수소 농도가 1호기의 절반수준일 뿐만 아니라 AECL의 설비개선효과에 의해 방출량이 상대적으로 적다. 월성 2,3,4호기의 설비개선효과는 월성 1호기의 약 1/2로 평가하고 있다. 캐나다 AECL의 방출량 평가식인 식 (5)를 적용할 경우(<그림 4, 6>) 2,3,4호기의 삼중수소 방출량은 훨씬 떨어진다. WTRF 가동시점인 2005년에는 1호기가 월간 약 1,900 Ci 정도이지만, 2,3,4호기는 200 Ci 정도이다. 그러나 WTRF 가동후 8년이 경과한 2013년에는 1호기가 월간 약 250 Ci 정도이며, 2,3,4호기는 월간 약 50 Ci 정도가 된다. WTRF 가동에 의해 전호기 모두 감속재 삼중수소 농도가 10 Ci/kg-D₂O 이하로 감소하지만, 1호기의 방출량이 여전히 후속기 보다 높은 이유는 설비개선효과 때문이다.



<그림 3> 식 (4)를 적용한 WTRF 운전 시나리오 C에 따른 호기별 월간 삼중수소 방출량

<그림 4> 식 (5)를 적용한 WTRF 운전 시나리오 C에 따른 호기별 월간 삼중수소 방출량



<그림 5> 식 (4)를 적용한 WTRF 운전 시나리오 D에 따른 호기별 월간 삼중수소 방출량

<그림 6> 식 (5)를 적용한 WTRF 운전 시나리오 D에 따른 호기별 월간 삼중수소 방출량

<표 2, 3>에서 WTRF를 가동 시점인 2005년도와 월성 1호기 폐로 예정시점인 2013년의 연간 삼중수소 방출량을 비교할 수 있다. WTRF 가동을 80%의 경우 방출량 I식을 적용하면 1/4 정도로 감소하는 것으로 나타났으면, AECL의 평가방법인 방출량 II식을 적용할 경우 1/5 이상 감소하

는 것으로 나타났다. WTRF 가동율 64%의 경우는, 각각 약 30%와 약 23%까지 감소하는 것으로 나타났다.

<표 2> 식 (4)를 적용한 월성원전 TRF 운전시나리오 C와 D의 연도별 삼중수소 방출량(단위 [Ci])

연도	시나리오	C				D			
		I	II	III	IV	I	II	III	IV
2005*		19,206	17,963	18,280	18,841	19,526	18,183	18,705	19,397
2006		29,491	26,743	27,165	27,443	31,711	28,541	29,094	30,599
2007		21,362	19,842	20,067	19,999	24,797	22,772	23,123	24,057
2008		16,132	15,276	15,397	15,361	19,871	18,599	18,826	19,496
2009		12,992	12,497	12,566	12,534	16,551	15,742	15,887	16,337
2010		11,182	10,892	10,932	10,902	14,395	13,877	13,969	14,260
2011		10,160	9,990	10,013	9,986	13,024	12,692	12,750	12,933
2012		9,591	9,491	9,505	9,481	12,165	11,952	11,988	12,102
2013		9,277	9,220	9,228	9,205	11,632	11,497	11,519	11,589
2005년도 대비 2013년 방출량(%)		24.2	25.7	25.2	24.4	29.8	31.6	30.8	29.9

*2005년도는 하반기 6개월간 삼중수소 환경 방출량임.

<표 3> 식 (5)를 적용한 월성원전 TRF 운전시나리오 C와 D의 연도별 삼중수소 방출량(단위 [Ci])

연도	시나리오	C				D			
		I	II	III	IV	I	II	III	IV
2005*		13,485	12,000	12,394	13,063	13,748	12,207	12,781	13,533
2006		19,360	16,044	16,573	16,882	21,114	17,504	18,052	19,423
2007		13,021	10,913	11,250	11,080	15,398	12,901	13,247	13,883
2008		9,385	8,096	8,302	8,184	11,776	10,095	10,319	10,717
2009		7,268	6,505	6,628	6,548	9,430	8,328	8,470	8,716
2010		6,086	5,641	5,713	5,659	7,975	7,261	7,351	7,504
2011		5,421	5,165	5,206	5,169	7,065	6,607	6,663	6,758
2012		5,062	4,916	4,940	4,913	6,514	6,223	6,258	6,317
2013		4,841	4,758	4,771	4,752	6,143	5,960	5,982	6,018
2005년도 대비 2013년 방출량(%)		17.9	19.8	19.2	18.2	22.3	24.4	23.4	22.3

*2005년도는 하반기 6개월간 삼중수소 환경 방출량임.

4. 결론 및 제언

WTRF 가동후 월성원전의 삼중수소 방출량 변화를 계산하였다. 방출량 계산은 감속재와 냉각재의 삼중수소 농도함수식을 이용하여 수행하였으며, 월성 1호기와 설비개선을 적용한 월성 2,3,4호기를 구분하여 수행하였다. 월성 1호기 폐로예정시점인 2013년경에는 감속재 삼중수소 농도가 10 Ci/kg-D₂O 이하로 떨어지며, AECL의 평가방법에 의한 삼중수소 방출량 감소효과는 WTRF 가동초기보다 약 1/5 수준인 연간 약 4,800 Ci 정도인 것으로 나타났다.

참 고 문 헌

- [1] 송규민, 손순환, 김광신, 이숙경, "월성 TRF 주요 기초설계변수", TM.96NJ18.R1999. 487, KEPRI, 1999
- [2] 송규민, 이성진, 이숙경, 손순환 "WTRF 가동에 따른 월성원전 계통내 삼중수소 농도변화 및 제거량", 대한방사선방어학회 2003년도 추계학술발표회, 11/6~7 (2003).
- [3] 손순환, 김광신, 송규민, 이숙경, 최훈, "삼중수소 제거기술 개발(I) 제1단계 최종보고서", TR.96NJ18.J1998.45, KEPRI, 1998

선량환산인자를 이용한 기체유출물 RMS 경보설정 개선방안

Alarm Setpoint Determination Method of Gaseous Effluent Radiation Monitoring Systems Using Dose Factors Based on ICRP-60 Recommendations

박규준, 김희근, 하각현, 엄희문
한전 전력연구원

요 약

ICRP-60의 방사선방호 신개념이 국내 법령에 도입됨에 따라 원전 방사성유출물 관리의 변경이 불가피한 실정이다. 방사성유출물 관리의 중요한 요소 중의 하나가 원전 방사선감시계통(Radiation Monitoring System)의 적절한 운용이다. RMS는 원자력법에 명시되어 있는 일반인의 선량한도와 배출관리기준을 만족하도록 운용되어야 한다. 방사성유출물을 제한하는 기준에 따른 RMS 경보설정치의 비교·분석을 통해 국내 원전에 적용 가능한 최적의 개선방안을 제시할 수 있다. 본 논문에선 선량한도 기준 중 가능한 모든 피폭경로를 고려하여 예상선량률을 계산한 선행 RMS 경보설정 개선방안과의 비교를 위해 주요 피폭경로만 고려하는 선량환산인자에 의한 예상선량률 계산과 RMS 경보설정 개선방안을 조사하였다.

Abstract

In Korea, the dose limits to the public were reduced according to ICRP-60 recommendations. The secondary quantities, Effluent Concentration Limits (ECLs) were derived and enacted to Korean Atomic Laws based on ICRP-60 recommendations. The Korea atomic laws require assurance that radioactive materials within gaseous effluents do not exceed dose limits and ECLs. This simply means that any effluent that would possibly contain radioactivity must be monitored. There are various methods to monitor the radioactivity of effluent monitor to satisfy the dose limits and the ECLs for gaseous effluents. The many factors (safety margin) should be considered in determining of the setpoint of effluent monitor, following these limits.

In this study, we studied the determination method of alarm setpoint for gaseous effluent Radiation Monitoring Systems using dose factors considered the main pathway of radionuclides to compare the preceding determination method of alarm setpoint for gaseous effluent RMSs using dose assessment program considered all the practicable pathways of radionuclides.

1. 서 론

원전 방사선감시계통(Radiation Monitoring System)은 원전 주변 환경으로 방출되는 유출물을 감시하는 장치로서 원전의 노후와 주변주민에 대한 안전성 확보 차원에서 그 중요성이 더욱 증가하고 있다. 국제방사선방호위원회(ICRP) ICRP-60의 후속조치로서 최대허용농도(MPC)가 연간섭

취한도(ALI)와 유도공기중농도(DAC), 배출관리기준으로 개정되어 과학기술부고시 제2002-23호 「방사선방호 등에 관한 기준」에서 법제화되었다. 이에 따라 RMS 경보설정치는 이를 근거로 변경이 필요한 상황이다[1,2].

RMS는 원전 주변의 환경상 위해방지와 일반대중 및 원전 작업종사자에 대한 방사선방호를 목적으로 방사성유출물 관리의 건전성 확보 차원에서 운용되고 있다. 원전 RMS는 원전 주변 환경으로 방출되는 방사성유출물을 감시하는 유출물(Effluent) RMS와 원전 계통내 방사성물질의 누설 여부를 점검하여 계통의 안전성을 감시하는 공정(Process) RMS, 작업자가 빈번히 출입하는 공간의 방사선량을 감시하고 사고시 방사선 준위의 감시를 위한 지역(Area) RMS, 발전소외의 방사선량을 감시하는 환경(Environmental) RMS 등으로 구성되어 있다[3,4].

원전에서 방출되는 방사성유출물은 원전 주변에 거주하는 일반인에게 미치는 선량(dose)이 1 mSv를 넘지 못하도록 법적으로 제한하고 있다. 과기부고시 제2002-23호에서 규정하고 있는 배기중의 배출관리기준은 일반인이 배출관리기준에 해당하는 농도로 대기 중으로 배기된 방사성물질을 흡입(inhalation)할 경우에 연간 받는 선량이 일반인의 선량한도에 해당하는 유도된 방사능 농도 제한 값이다[5]. 반면에 일반인의 선량한도는 원전으로부터 방출된 방사성물질이 불활성기체(Noble Gas)와 입자(Particulate), 방사성옥소(Iodine)와 같은 화학적 형태에 따라 원전 주변 일반인에게 영향을 주는 가능한 모든 피폭경로를 고려하여 계산한 최대 허용연간선량이므로 방사성물질의 흡입 뿐만 아니라 섭취(ingestion), 피부노출(skin exposure)까지 포함한다.

기체상 방사성유출물이 인체에 미치는 선량을 계산하기 위해서는 원전에서 방출된 기체상 방사성유출물이 인체에 도달하기까지의 경로인 피폭경로와 피폭 대상인 일반대중을 신체적 특성과 생리적 신진대사를 고려한 피폭 연령군, 이들 중 최대로 영향을 많이 받는 연령군의 개인 선량값인 최대개인 선량, 단위 방사성물질의 피폭경로에 따라 각 연령군을 대표하는 가상개인이 받는 유효 및 장기등가선량을 적절한 단위로 정량화한 선량환산인자 등의 주요한 요소들을 고려한다[6].

일반인의 선량한도를 기준으로 원전 기체유출물 RMS 경보설정하는 방법은 피폭경로에 따라 크게 두 가지로 구분할 수 있다. 하나는 기체상 방사성유출물이 인체에 도달하기까지의 가능한 모든 경로를 고려하는 방법과 다른 하나는 이들 피폭경로들 중 특정 경로만을 선정하여 고려하는 방법으로 나뉜다. 전자의 경우는 방사성물질의 흡입과 섭취, 피부노출 등을 모두 고려하는 주민선량 계산 전산프로그램을 이용하여 원전에서 방출되는 기체상 방사성유출물에 의한 선량률을 결정하는 반면, 후자의 경우는 불활성기체에 대해선 주요한 피폭경로인 피부노출만을 고려하고 입자와 방사성옥소는 흡입 경로만을 고려하는 선량환산인자를 이용하여 기체상 방사성유출물에 의한 선량률을 결정한다[7,8].

배출관리기준과 주민선량 계산 전산프로그램인 K-DOSE60을 이용한 선량한도 기준에 따른 원전 기체유출물 RMS 경보설정 개선방안은 선행 연구[9,10]를 통해 수행한 바 있다. 이 논문에선 선량환산인자를 이용한 기체유출물 RMS 경보설정 개선방안과 이를 표본원전에 적용한 결과를 선행 연구결과들과 비교·분석해 보았다.

2. 선량환산인자를 이용한 기체유출물 RMS 경보설정 개선방안

RMS의 경보설정치는 선량한도를 초과하는 방출이 발생한 경우에 울리는 고경보설정치(Alarm Setpoint)와 정상운전 범위를 벗어나는 방출이 발생한 경우에 울리는 경보예고 설정치 (Warn Setpoint)가 있다[11,12]. 고경보는 일반적으로 울림과 동시에 배기구를 통한 기체 방사성유출물의 방출을 자동적으로 차단하도록 운용되며, 경보예고는 운전자가 확인을 할 수 있게 알려주는 역할만 하며 다른 연동장치가 없다. 고경보설정치의 기준이 되는 선량한도는 원자력법 시행령 제2조(정의) 5와 과기부고시 제2002-23호에 제시되어 있다.

선량환산인자를 이용한 경보설정 방법은 주민선량 계산 전산프로그램을 이용하여 일반인 선량한도에 근거한 경보설정 방법과 그 계산 절차는 거의 동일하며 다음과 같다. 기체 유출물 RMS의

고경보설정치 $SP[Alarm]$ 은 최대허용방출률 Q_m ($\mu Ci/sec$)과 방출구의 최대 배기를 F (m^3/sec)로부터 다음과 같이 얻을 수 있다.

$$SP[Alarm] = \frac{Q_m}{F} \quad (1)$$

여기서 방출구에서의 최대허용방출률은 방출원별 핵종들의 연간 예상방출률과 일반인의 최대허용선량률 및 방출원별 연간 예상선량률에 대한 다음과 같은 간단한 비례식으로부터 얻을 수 있다.

$$\text{예상방출률} : \text{최대허용방출률} = \text{예상선량률} : \text{최대허용선량률} \quad (2)$$

이 식으로부터 얻을 수 있는 최대허용방출률은 다음식과 같다.

$$Q_m = \frac{\sum_i Q_i \cdot MPD}{ED} \quad (3)$$

여기서 Q_i 는 핵종 i 의 연간 예상방출률 ($\mu Ci/yr$)이고, MPD 는 전신 또는 피부, 장기별 최대허용선량률($mrem/yr$)이며, ED 는 연간 예상선량률($mrem/yr$)이다.

그러나 원전 방출원별 예상방출량에 의한 부지경계선에서의 최대개인에 대한 연간 예상선량률 ED 는 앞서 언급한 바와 같이 고려하는 피폭경로의 차이로 인해 다른 값을 가진다. 선량환산인자를 이용하는 방법은 미국 원전의 기체유출물 RMS 경보설정방법이며 이는 Reg. Guide 1.109와 NUREG-0133에 그 방법론이 다음과 같이 명시되어 있다.

대기로 방출된 기체 방사성유출물 중 불활성기체에 의해 인체가 받는 선량은 노출($exposure$)에 의한 선량으로 계산한다. 외부피폭에 의한 선량은 불활성기체 이외의 방사성물질의 경우 그 기여하는 정도가 매우 미미하므로 불활성기체만으로 평가하게 된다. 이때 사용된 모델은 반무한구 방사능운 ($semi-infinite cloud$)에 의한 인체의 잠김($immersion$)을 가정하며, 이때 성인이 받는 유효 및 장기별 선량환산인자를 이용한다. 피폭 연령군별 차이가 있을 수 있으나 모든 피폭 연령군에 적용한다. 방사능운의 잠김에 의한 외부피폭 선량환산인자는 미국 Oak Ridge National Lab.의 Eckerman 등이 개발한 DFEXT 코드의 값을 사용한다[6,7,13]. 외부피폭 선량환산인자를 이용한 불활성기체에 의한 예상선량률(Expected Dose rate)은 다음과 같은 관계식으로부터 얻을 수 있다.

$$ED = \overline{\chi/Q} \cdot \sum_i (K_i \cdot Q_i) \quad (4)$$

또는

$$ED = \overline{\chi/Q} \cdot \sum_i [(L_i + 1.1M_i) \cdot Q_i] \quad (5)$$

여기서, $\overline{\chi/Q}$ 는 최대 연평균 대기확산계수(sec/m^3)이며, K_i 는 불활성기체 i 의 감마 방출에 의한 전신 선량환산인자 (total body dose factor) ($mrem/yr$ per $\mu Ci/m^3$)이고, L_i 는 불활성기체 i 의 베타 방출에 의한 피부 선량환산인자 (skin dose factor) ($mrem/yr$ per $\mu Ci/m^3$), M_i 는 불활성기체 i 의 감마 방출에 의한 공기 중 선량환산인자 (air dose factor) ($mrad/yr$ per $\mu Ci/m^3$)이며, Q_i 는 모든 방출원에서의 기체유출물 중 불활성기체 i 의 방출률($\mu Ci/sec$)이다. 또 1.1은 1.1 $mrem/mrad$ 의 변환상수로서 피부선량 1.1 $mrem$ 이 공기 중 선량 (air dose) 1.0 $mrad$ 와 동일함을 의미한다. 위

(4)와 (5)식으로부터 얻은 전신과 피부에 대한 예상선량률 중에서 더 보수적인 값을 선택하여 불활성기체에 대한 최대허용선량률을 (3)식으로부터 얻어낸다. 왜냐하면, 전신과 피부에 대한 일반인의 선량한도를 모두 만족해야 하기 때문이다. 이때 최대허용선량률은 보수적인 값을 가지는 전신 또는 피부에 대한 값을 사용한다.

기체 방사성유출물 중 입자와 방사성옥소에 의해 인체가 받는 선량은 흡입에 의한 선량으로 계산한다. 미국 Indian Point 3의 Offsite Dose Calculation Manual의 Radiological Effluent ControlS의 보고에 따르면 Iodine 131과 Tritium, 8일 이상의 반감기를 가지고 있는 입자 형태의 모든 기체방사성물질이 주요하게 인체에 영향을 미치는 장기는 소아의 갑상선 (child thyroid)으로 보고하고 있다. 이런 가정 하에서 입자와 방사성옥소 형태의 기체 방사성유출물에 의한 예상선량률 (Expected Dose rate)은 다음과 같은 간단한 식으로부터 얻을 수 있다.

$$ED = \overline{x/Q} \cdot \sum_i (P_i \cdot Q_i) \quad (6)$$

여기서, P_i 는 호흡경로에 대한 불활성기체 이외의 방사성핵종 i 에 대한 선량환산인자(mrem/yr per $\mu\text{Ci}/\text{m}^3$), Q_i 는 모든 방출원에서의 불활성기체 이외의 방사성핵종 i 의 방출률($\mu\text{Ci}/\text{sec}$)이다. 특히 선량환산인자 P_i 는 다음의 식으로부터 얻을 수 있다.

$$P_i(\text{inhalation}) = K(BR)DFA_i \quad (7)$$

이 식에서 K 는 변환상수로서 10^6 pCi/ μCi 이며, BR 은 각 연령군의 호흡률(breathing rate) (m^3/yr), DFA_i 는 핵종 i 와 각 연령군 및 장기에 대한 흡입 선량환산계수 (inhalation dose factor) (mrem/pCi)이다. 여기서는 DFA_i 를 Reg. Guide 1.109에서 제시하고 있는 유아(infant)의 흡입경로에 따른 선량환산인자로서 장기별 값 중 제일 큰 값을 적용하고, 유아의 호흡률인 $1400 \text{ m}^3/\text{yr}$ 값을 사용하여 다음과 같은 선량환산인자를 사용한다[14].

$$P_i(\text{inhalation}) = 1.4 \times 10^9 DFA_i \quad (8)$$

3. 원전 적용성 비교 및 분석

선량환산인자를 이용한 기체유출물 RMS 중 불활성기체 감시기의 경보설정을 표본 원전의 1개 호기에 대해 적용한 결과는 Figure 1과 같았다. 선행 연구결과와 비교해 볼 때 불활성기체 감시기의 경보설정치 경우에는 주민선량 계산 전산프로그램인 K-DOSE60에 의한 RMS 경보설정 결과치와 선량환산인자를 이용한 RMS 경보설정 결과치가 거의 같은 값을 나타내었다. 이는 불활성기체에 의한 피폭의 주요 경로가 외부피폭에 의한 것임을 보여준다. 그리고 배출관리기준에 의한 경보설정치에 비해 선량한도를 기준으로 계산한 경보설정치가 약간 낮아지는 경향을 보였다.

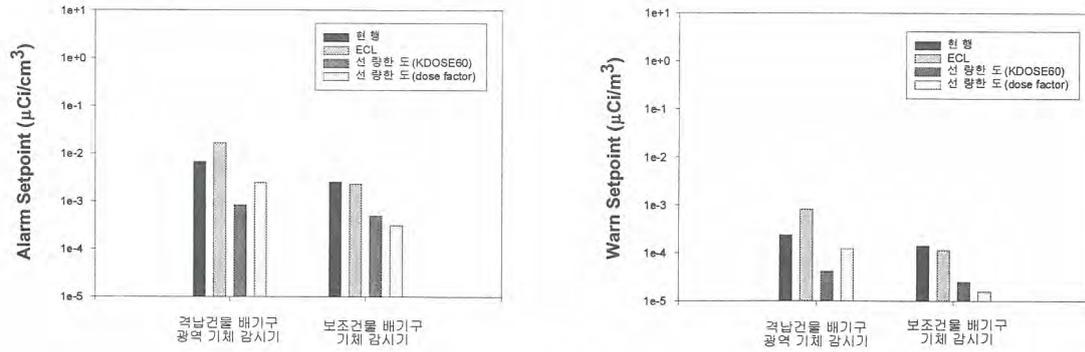


Figure 1. 표본원전의 기체유출물 RMS(G) 경고설정치 비교

4. 결 론

원자력법에서 규정하고 있는 일반인의 선량한도의 하향에 따라 원전 RMS 경고설정값의 변경이 필요하다. 본 논문에서는 선행 연구결과인 배출관리기준과 가능한 모든 피폭경로를 고려한 선량한도 기준에 따른 기체유출물 RMS 경고설정 개선 방안과 병행하여 주요한 피폭경로만 고려한 선량환산인자를 이용한 선량한도 기준의 RMS 경고설정 개선 방안을 살펴보았다. 선량환산인자를 이용한 기체 유출물 RMS 경고설정 개선 방안을 표본원전에 적용한 결과 현행 경고설정치와 배출관리기준에 의한 경고설정치에 비해 다소 감소하는 경향을 보였다. 이 결과를 바탕으로 향후 국내 다수 원전에 적용하여 원전 적용성을 충분히 반영하여 최적의 유출물 RMS 경고설정 개선방안을 제시하고자 한다.

참 고 문 헌

1. 김희근, 홍승열, 김형진, 김예중, 이병일. 원전 방사선 감시시스템의 경고설정 방법론개 한국원자력학회 추계학술발표회 논문집, 1999.
2. 박규준, 양양희, 김희근, 김위수. 원전 방사선 유출물 감시시스템의 경고설정 개선방안 및 적용. 한국원자력학회 춘계학술발표회 논문집, 2003.
3. 김희근, 이승수, 김형진, 김위수. 원전 방사선감시시스템의 경고설정 방법론에 관한 현황조사. KEPRI, 2002.
4. 박규준, 양양희, 김희근, 김위수. 원전 RMS의 경고설정치와 연계한 유출물 관리(차단)방법론 검토보고서(Rev.0). KEPRI, 2003.
5. 과학기술부고시 제2002-23호. 방사선 방호 등에 관한 기준, 2003.
6. 한전 전력연구원. 원자력발전소 주변 주민선량 계산지침서(Rev.2). 한국수력원자력(주) 안전기술처, 2003.
7. Regulatory Guide 1.109. Calculation of Annual Doses to Man from Routine Releases of Reactor Effluents for the Purpose of Evaluating Compliance with 10 CFR Part 50, Appendix I, Revision 1. U.S. Nuclear Regulatory Commission, 1977.
8. Indian Point 3. Offsite Dose Calculation Manual, Rev. 15.
9. 박규준, 양양희, 김희근, 김위수. RMS 경고설정 개선방안 원전 적용성 분석. 대한방사선방어학회 춘계학술발표회 논문집, 2003.
10. 박규준, 김희근, 하각현. 선량한도 기준에 따른 유출물 RMS 경고설정 개선방안. 대한방사선방어학회 추계학술발표회 논문집, 2003.

11. KOrea Power Engineering Company, INC. Radiation Monitor Set Points Calculation, 9-762-N384-001, Younggwang 3&4. 1987.
12. 한국전력기술주식회사(KOPEC). 원전 소내방사선감시기 경보설정치 계산 (고리 1,2호기) - 원전 소내 방사선 감시계통 설비 개선 용역. 한국전력공사, 1994.
13. 한국원자력안전기술원. 방사능 방재 환경 규제기술 개발 - 주민피폭선량 평가지침 및 INDAC 사용자지침서. 과학기술부, 2000.
14. 장시영, 이병수. ICRP-60의 제도화에 따른 유출물감시기의 경보설정 방안 1단계 연구. 한국원자력학회 춘계학술발표회 논문집, 2000.

감사의 글

본 논문은 과학기술부 원자력중장기사업 “원전 비계획유출물 평가 및 주민피폭선량평가 표준 입력 변수 결정”의 일환으로 수행되었습니다.

영광지역 특성자료를 적용한 매립 자체처분 피폭선량 평가

Dose assessment applied with the specific data of Young-gwang area for clearance by landfill

임용규, 이지훈, 양호연, 신상운
원자력환경기술원

요 약

매립은 원자력이용시설에서 발생된 비오염폐기물 또는 오염도가 미미한 폐기물의 규제해제 방법으로 가장 폭넓게 적용될 수 있는 대안으로, 본 연구에서는 영광원자력발전소의 매립장을 대상 지역으로 작업자 및 거주자가 받을 수 있는 피폭선량을 평가하였으며, 구해진 선량을 토대로 규제해제 선량기준치인 $10 \mu\text{Sv}/\text{y}$ 를 만족시키는 핵종별 규제해제농도를 설정하였다. 연령군을 고려한 피폭선량평가 결과 매립층 상부에 거주하는 거주자의 경우 연간 $1.02 \mu\text{Sv}$, 매립부지에서 작업하는 작업자의 경우는 연간 $0.471 \mu\text{Sv}$ 의 피폭선량을 나타내었다. 또한 규제해제농도는 핵종별로 $1.33 \times 10^{-1} \text{Bq}/\text{g}$ 에서 $2.85 \times 10^2 \text{Bq}/\text{g}$ 으로 계산되었다.

Abstract

Landfill is an widely applied alternative for clearance of non-contaminated waste or slightly contaminated waste generated from nuclear facilities. In this study, exposure dose is estimated for a worker and a resident at the landfill area in Young-gwang nuclear power plant. Based on evaluated dose, clearance concentrations of each radionuclide are determined for dose criteria of $10 \mu\text{Sv}/\text{y}$. The results of age-dependent dose are $1.02 \mu\text{Sv}$ per year for resident and $0.471 \mu\text{Sv}$ per year for worker. Clearance concentrations for each radionuclide are evaluated from $1.33 \times 10^{-1} \text{Bq}$ per gram to $2.85 \times 10^2 \text{Bq}$ per gram.

서 론

발전소에서 발생된 잡고체 폐기물중에서 처분제한치 미만의 방사성폐기물은 법적 절차에 따라 재활용, 매립 등의 산업폐기물로 처리가 가능하다. 이러한 잡고체폐기물의 매립 자체처분을 위한 시나리오와 그에 따른 예상 피폭선량 평가 프로그램이 다양하게 개발되고 있다. 그 중에서도 RESRAD 프로그램은 EPA가 부지 복구 관련 법안 작성시 사용하였으며 DOE의 Order 5400.5에 따라 개발된 것으로 NRC의 사용 승인을 받아 현재 원자력시설 해체부지 또는 매립에 의한 자체 처분시 규제해제 요건의 만족여부를 입증하는데 유용하게 활용되고 있다. 그러나 RESRAD(매립) 코드는 ICRP Pub. 26 선량개념을 근거로 한 선량환산인자를 적용하고 있으므로 국내법 개정

에 따른 ICRP Pub. 60의 선량개념을 적용하기 위해서는 이를 ICRP Pub. 68과 72의 선량환산인자로 대체하여야 한다. 또한 코드내 입력인자는 미국의 환경자료로써 국내의 실정에 맞지 않고 과피폭의 우려가 있으므로 환경관련인자를 국내 실정에 적합하도록 수정할 필요가 있다. 따라서, 본 연구에서는 발전용원자로로부터 규제해제된 방사성폐기물의 매립[2]에 따른 피폭선량평가를 위해, 영광 원자력발전소내 매립장을 규제해제대상 매립지역으로 하여, 도출된 입력변수를 사용한 작업자 및 지역주민에 대한 피폭선량평가를 수행하였다. 또한, 이 결과를 토대로 핵종별 규제해제농도를 도출하는 연구를 수행하였다.

재료와 방법

고려대상 핵종의 선정

RESRAD 코드는 92개 핵종 및 53개의 자핵종을 포함하여 총 145개 핵종을 대상 핵종으로 선정하고 있으나 본 연구에서는 지금까지 발전용원자로 운영자가 신청한 자체처분 대상 폐기물에서 검출된 사례가 있는 핵종(32개 핵종)을 우선적으로 선정하였다. 또한 반감기가 긴 핵종은 장기간에 걸쳐 지속적으로 자체처분 하는 경우 규제에서 제외된 핵종의 수량이 누적되어 미래의 특정 시점에서는 집단선량이 자체처분 선량기준을 초과할 가능성을 배제할 수 없으므로 장기간 평가의 불확실성과 생태계 방사능 준위가 장기간 지속될 수 있는 핵종은 제외하였다. 따라서 300년이 경과된 후 초기 방사능의 약 1/1,000 수준으로 감소되는 핵종(즉, 반감기 30년 이하의 핵종)을 자체처분 허용농도 도출을 위한 대상 핵종으로 고려하였다. 또한 반감기가 길고 붕괴 당 방출되는 베타선 및 감마선 방출 자핵종이 많은 알파선 방출핵종과 일정기간 저장을 통하여 방사능을 검출가능한 미만으로 저감할 수 있는 단 반감기 핵종도 고려 대상에서 제외하였다. 위에서 언급한 핵종선정 기준에 따라 분류된 8개 핵종과 실제 고체폐기물의 존재비가 높거나 방사선학적 중요성이 큰 ^{55}Fe , ^{63}Ni , ^{14}C 및 ^{90}Sr 을 추가로 고려하여 총 12개의 핵종을 고려대상 핵종으로 선정하였다.

Table 1. Radionuclides according to dose assessment for clearance

번호	핵종	번호	핵종	번호	핵종
1	^3H	5	^{60}Co	9	^{125}Sb
2	^{14}C	6	^{63}N	10	^{134}Cs
3	^{54}Mn	7	^{65}Zn	11	^{137}Cs
4	^{55}Fe	8	^{90}Sr	12	^{144}Ce

피폭시나리오 및 피폭경로

피폭시나리오는 피폭위치에서 받게 되는 피폭 정도와 오염지역으로부터의 방사능 방출로 영향을 받을 수 있는 인간행위의 형태로써 많은 시나리오가 존재할 수 있다. 부지내 인간에 미치는 환경영향 평가의 기본 시나리오는 발생된 방사성물질을 매립하기 위해 폐기물을 취급 및 운반하는 과정에서 작업자가 받게 되는 작업자 피폭 시나리오와 매립장의 제도적 관리기간이 종료된 후 매립장 상부에 거주하는 거주자가 받는 거주자 시나리오로 분류할 수 있으며 각 시나리오별 피폭경로는 table 2와 같다.

Table 2. Exposure pathway by Scenario in RESRAD program

시나리오 피폭경로	거주자	작업자
External exposure	○	○
Inhalation of dust	○	○
Radon inhalation	×	×
Ingestion of plant foods	○	×
Ingestion of meat	○	×
Ingestion of milk	○	×
Ingestion of fish	○	×
Ingestion of soil	○	○
Ingestion of water	○	×

내부선량환산인자

매립에 의한 피폭 시나리오는 작업자 시나리오와 거주자 시나리오로 분류하였으므로 작업자와 일반인에 대해 각기 다른 선량환산인자를 적용하여야 한다. ICRP Pub. 66[3]의 평가모델에서 작업자에 대해서는 5 μm 의 AMAD(Activity Median Aerodynamic Diameter: 공기 동역학적 방사능 지름) 값을, 일반인에 대해서는 1 μm 의 AMAD 값을 적용하도록 권고하고 있다. 그러므로 작업자에 대해서는 ICRP Pub. 68[4]의 5 μm 의 AMAD 값과 RESRAD 코드 내에서 권장하는 핵종별 화학적 형태의 선량환산인자 값을 적용하였으며 일반인에 대해서는 ICRP Pub. 72[5]의 1 μm AMAD 값과 RESRAD 코드 내에서 권장하는 핵종별 화학적 형태의 선량환산인자 값을 적용하여 작업자 및 일반인에 대한 내부선량환산인자를 구하였다.

주요 입력인자

섭생 자료

음식물 섭취량 조사는 보건복지부에서 발행한 「2001년도 국민영양조사 보고서」 [6]에 수록된 우리나라 국민들의 각 식품에 대한 섭취량을 참조하였다. 식품군중 육상식품은 과일, 채소, 곡류, 육류, 우유 및 유제품이며 해산식품은 어류, 연체·갑각류 및 해조류로 각각 분류하여 개인 섭취량을 조사하였다. 그런데 이들 자료는 ICRP Pub. 66에서 제시하고 있는 6개 연령군, 즉 3개월(~1세 미만), 1세(1세 이상~3세 미만), 5세(3세 이상~7세 미만), 10세(7세 이상~12세 미만), 15세(12세 이상~17세 미만), 성인(17세 이상)으로 구분되어 있지 않기 때문에 이 자료를 수정할 필요가 있다. 따라서 한국인 영양권장량에서 제시하고 있는 “소비단위계수”를 사용하여 각 연령군에 맞는 섭취량을 산정하였다.

Table 3. Consumer unit factor by age-dependent

연령군	3개월	1세	5세	10세	15세	성인
소비단위계수	0.30	0.57	0.67	0.93	1.10	1.00

Table 4. Intakes of food by age-dependent

(unit : kg/y)

섭취량 연령군	곡류,과일, 뿌리채소	엽채류	육류	우유	어류	연체·갑 각류	해조류
3개월	0	0	0	366.4	0	0	0
1세	97.1	35.2	14	14	7.8	3.5	1.8
5세	114.1	41.4	16.5	16.4	9.2	4.1	2.1
10세	158.4	57.4	22.9	22.7	12.7	5.7	2.9
15세	187.3	67.9	27.1	26.8	15.1	6.7	3.43
성인	170.3	61.71	24.6	24.4	13.7	6.1	3.12

환경자료

환경자료에는 절대습도, 강수량, 풍속 등이 있는데 본 연구에서는 영광지역을 대상지역으로 선정하였기에 영광지역의 최근 5년간 평균 강수량, 풍속과 농작물생장기간(4월~9월) 동안의 최근 5년간 평균절대습도 자료를 사용하였다. 도출된 환경자료는 강수량 1.35 m/y, 풍속 3.24 m/s, 절대습도 13.4 g/cm³으로 조사되었다.

평가방법

총 12개의 핵종에 대하여 각각 1Bq/g의 농도를 적용하여 매립에 의한 자체처분 평가를 수행하였다. 연령군을 고려한 피폭선량을 평가하기 위하여 각 연령군별로 피폭선량을 구한 후, 영광군의 연령별 인구비율을 곱함으로써 각 핵종에 대한 연령군별 개인 피폭선량을 산정하였으며, 구해진 연령군별 피폭선량을 더함으로써 연령군을 고려한 집단 피폭선량을 평가하였다.

각 연령군별 피폭선량과 인구비율을 고려한 피폭선량 평가결과를 그래프 상으로 비교함으로써 자체처분 매립에 대한 피폭선량 평가방법의 타당성을 입증하였으며 규제해제 선량제한치[7]인 10 µSv/y을 만족시키는 핵종별 농도를 Bq/g으로 환산하여 규제해제농도를 설정하였다.

결과 및 고찰

피폭선량평가 결과

RESRAD 전산코드를 사용하여 계산된 연령군별 총 선량에 인구비율을 곱한 후 각 연령별 선량을 합산하여 총 선량을 계산하였다.

Table 5. Results of exposure dose for a worker and a resident

	3개월	1세	5세	10세	15세	성인	거주자	작업자
총선량 (mrem/y)	1.29×10^{-2}	1.26×10^{-1}	9.62×10^{-2}	1.64×10^{-1}	2.55×10^{-1}	8.63×10^{-2}	1.02×10^{-1}	4.71×10^{-2}

Table 6. Population and population rate by age-dependent in Young-gwang area (unit : person)

연령군	3개월	1세	5세	10세	15세	성인	합계
인구수	558	1,401	3,244	4,062	3,935	53,855	67,055
인구비율	0.01	0.02	0.05	0.06	0.06	0.80	1.00

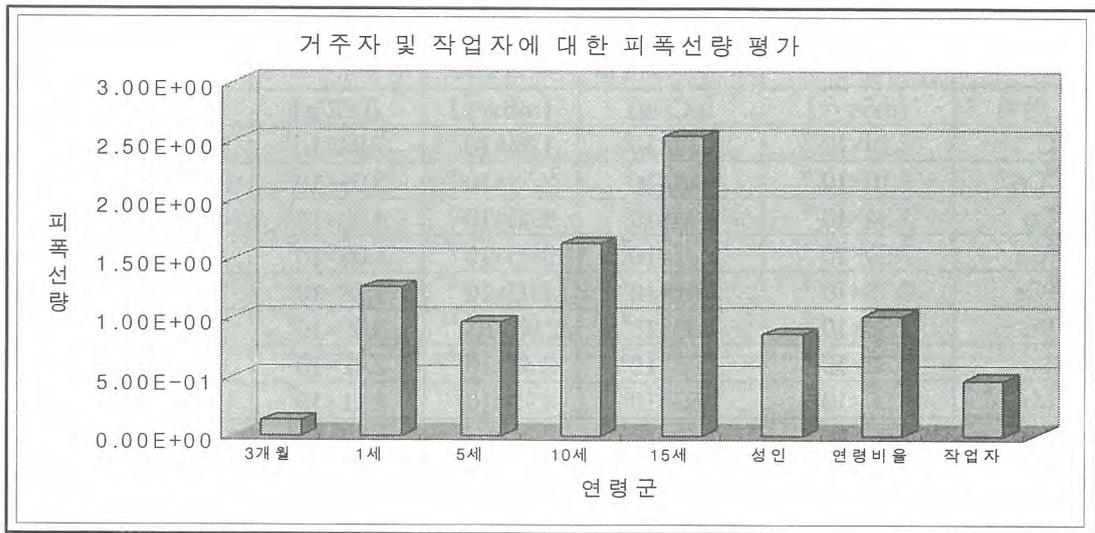


Fig 1. Results of exposure dose for a worker and a resident by age-dependent
Table 7. Results of exposure dose for a worker and a resident by exposure pathway

피폭경로	3개월	1세	5세	10세	15세	성인	거주자	작업자
Ground	6.11×10^{-4}	4.71×10^{-2}						
Inhalation	0.00×10^0	4.72×10^{-7}						
Plant	0.00×10^0	1.24×10^{-1}	9.45×10^{-2}	1.62×10^{-1}	2.52×10^{-1}	8.46×10^{-2}	9.97×10^{-2}	0.00×10^0
Meat	0.00×10^0	8.21×10^{-4}	6.35×10^{-4}	1.04×10^{-3}	1.60×10^{-3}	5.99×10^{-4}	6.86×10^{-4}	0.00×10^0
Milk	1.22×10^{-2}	1.59×10^{-4}	1.22×10^{-4}	2.04×10^{-4}	3.16×10^{-4}	1.20×10^{-4}	2.59×10^{-4}	0.00×10^0
Soil	0.00×10^0	2.63×10^{-8}						
Water	6.63×10^{-5}	9.98×10^{-5}	8.45×10^{-5}	6.37×10^{-5}	4.77×10^{-5}	5.88×10^{-5}	6.06×10^{-5}	0.00×10^0
Fish	0.00×10^0	3.66×10^{-4}	2.67×10^{-4}	2.97×10^{-4}	2.50×10^{-4}	2.32×10^{-4}	2.39×10^{-4}	0.00×10^0

피폭선량평가 결과 연령군을 고려한 매립층 상부에 거주하는 거주자의 경우 1.02 μSv/y, 매립장에서 작업하는 작업자의 경우에는 0.471 μSv/y의 총 선량을 나타내었다. 작업자에 대한 피폭은 대부분 토양으로부터의 직접피폭에 의한 것으로 사료되며 매립층상부에 거주하는 거주자에 대한 피폭은 대부분 음식물 섭취에 의한 피폭인 것으로 사료된다. 특히 매립층상부에서 자란 곡류 및 채소, 과일의 섭취에 의한 피폭이 주를 이루었다. 또한 본 연구는 연령군을 고려한 선량환산인자를 적용하였기에 선량환산인자에 의한 기여분도 무시할 수 없으리라 사료된다.

규제해제 농도 도출

규제해제 선량제한치인 10 μSv/y을 만족시키는 핵종별 농도를 Bq/g으로 환산하여 규제해제 농도를 설정하였다.

Table 8. Clearance concentrations on radionuclides for landfill Scenario

핵종	폐쇄후 거주자 유효선량	폐쇄후 거주자 규제해제농도	매립작업자 유효선량	매립작업자 규제해제농도	규제해제 기준농도	규제해제 기준농도
단위	[mSv/y]	[pCi/g]	[mSv/y]	[pCi/g]	[pCi/g]	[Bq/g]
¹⁴ C	3.19×10^{-4}	3.14×10^1	1.26×10^{-9}	7.94×10^6	3.14×10^1	1.16×10^0
¹⁴⁴ Ce	3.16×10^{-6}	3.16×10^3	2.53×10^{-6}	3.95×10^3	3.16×10^3	1.17×10^2
⁶⁰ Co	1.34×10^{-4}	7.46×10^1	2.45×10^{-4}	4.08×10^1	4.08×10^1	1.51×10^0
¹³⁴ Cs	7.90×10^{-5}	1.27×10^2	9.95×10^{-5}	1.00×10^2	1.00×10^2	3.70×10^0
¹³⁷ Cs	6.22×10^{-5}	1.61×10^2	4.03×10^{-5}	1.78×10^2	1.61×10^2	5.96×10^0
⁵⁵ Fe	1.30×10^{-7}	7.69×10^4	2.95×10^{-12}	3.39×10^9	7.69×10^4	2.85×10^2
³ H	9.52×10^{-6}	1.05×10^3	3.42×10^{-9}	2.42×10^5	1.05×10^3	3.89×10^1
⁵⁴ Mn	3.96×10^{-5}	2.53×10^2	4.73×10^{-5}	2.11×10^2	2.11×10^2	7.81×10^0
⁶³ Ni	2.57×10^{-6}	3.89×10^3	1.62×10^{-12}	6.17×10^9	3.89×10^3	1.44×10^2
¹²⁵ Sb	1.20×10^{-4}	8.33×10^1	1.42×10^{-5}	7.04×10^2	8.33×10^1	3.08×10^0
⁹⁰ Sr	2.78×10^{-3}	3.60×10^0	1.79×10^{-7}	5.59×10^4	3.60×10^0	1.33×10^{-1}
⁶⁵ Zn	4.34×10^{-4}	2.30×10^1	2.21×10^{-5}	4.53×10^2	2.30×10^1	8.50×10^{-1}

¹⁴C, ¹³⁷Cs, ⁵⁵Fe, ³H, ⁶³Ni, ¹²⁵Sb 및 ⁹⁰Sr의 경우에는 폐쇄후 거주자 시나리오에서 예상되는 피폭 방사선량이 매립작업자 시나리오에 비하여 상대적으로 큰 것으로 평가되었으며, 주로감마선을 방출하는 핵종(⁶⁰Co, ¹³⁴Cs, ⁵⁴Mn)은 매립작업자에 대한 선량기여분이 폐쇄후 거주자 시나리오에 비해 상대적으로 큰 것으로 나타났다. 또한, ¹⁴⁴Ce, ⁶⁵Zn 핵종은 작업자와 거주자에 대하여 유사한 값을 보였다.

결 론

영광지역의 특성자료를 적용하여 매립에 따른 피폭선량평가 결과 매립장에서 작업하는 작업자의 경우 연간 0.471 μSv, 매립층상부에 거주하는 거주자의 경우는 연간 1.02 μSv의 피폭선량을 보였으며 주요 피폭경로는 토양으로부터의 직접피폭과 음식물 섭취로 인한 피폭으로 평가되었다. 이 결과를 토대로 선량제한치인 10 μSv/y을 만족시키는 핵종별 규제해제농도는 ¹³³Bq/g(⁹⁰Sr)에서 2.85×10² Bq/g(⁵⁵Fe)의 농도범위임을 알 수 있었다.

참 고 문 헌

- [1] 노병환외 15, “방사성폐기물 규제해제 요건 개발”, 원자력안전기술원, KINS/RR-144, (2002).
- [2] 과학기술부고시 제 2001-30호, “방사성폐기물 자체처분에 관한 기준”, (2001).
- [3] ICRP Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection. Publication 66(Oxford, Pergamon Press), (1994).
- [4] International Commission on Radiological Protection,, “Dose Coefficients for Intakes of Radionuclides by Workers”, ICRP Publication 68, Annals of the ICRP (1994).
- [5] International Commission on Radiological Protection, “Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides”, ICRP Publication 72, Annals of the ICRP (1995).
- [6] 보건복지부, “국민영양조사결과 보고서”, (2001).
- [7] 원자력법 시행규칙 제86조(2001.7.25. 과학기술부령 제29호).

원자력시설의 공기조화 시스템 고찰

Study on HVAC System in Nuclear Facility

백상열, 송응섭, 오연우, 주용선, 홍권표
한국원자력연구소

요 약

원자력 시설의 공기조화 시스템은 일반시설의 공기조화 시스템에 비하여 더 안정되고 여유있게 설치 및 시공되어야 한다. 그 목적은 최적 작업환경유지, 오염 공기로부터의 작업자 보호, 외부배기로 인한 대기오염 방지 등이다. 낮은 공기오염조차 막는 것이 원자력시설의 안전한 운전을 위해 기본적인 것이다. 설계 시 시스템의 융통성을 갖는 설계가 필요한데 이는 나중에 시스템의 수정 보완 등을 고려할 때 중요하다. 본 논문에서는 원자력시설의 공기조화계통 설계에 고려해야 할 내용 및 외국시설에 대하여 검토하였는바, 원자력시설의 공기조화계통 설계에 활용될 수 있겠다.

Abstract

Heating, Ventilation and Air Conditioning (HVAC) system in nuclear facility should be equipped and constructed more stable and allowable than that in common facility. The purpose of HVAC system is the maintenance of optimum working environment, the protection of worker against a contaminated air and the prevention of atmospheric contamination due to a outward ventilation, etc.. The basic scheme of a safety operation of nuclear facility is to prevent the atmospheric contamination even in low level. The adaptability of HVAC system should be taken into account in the design stage so that it is possible to modify the system which is in operation. In this study, the design requirements of HVAC system in nuclear facility and the HVAC systems in foreign countries are reviewed, and the results can be utilized in the design of HVAC system in nuclear facility.

1. 서 론

원자력 시설의 공기조화 시스템은 최적 작업환경유지, 오염 공기로부터의 작업자 보호, 외부배기로 인한 대기오염 방지 등의 목적이 있다. 원자력 시설의 공기조화 시스템의 기능적인 설계는 IAEA (International Atomic Energy Agency)의 Safety Series No. 17, U.S. NRC (Nuclear Regulatory Commission), Nuclear Air Cleaning Handbook 등에서 다루고 있으며, 환기 시스템의 기능적인 설계는 산업용 환기시스템, ASHRAE 핸드북 등 여러 참고서에서 다루어지고 있다. [1,2]

지극히 낮은 공기오염 조차도 막는 것이 원자력시설의 안전한 운전을 위해 기본적인 것이다. 또한 그것은 경제적인 운전에도 중요한 인자가 된다.

원자력시설의 공기 정화 시스템은 공기 중에 방사성물질에 대해서 확립되어 있는 MPC(Maximum Permissible Concentration)를 만족하기 위해 대단히 높은 포집효율로서 이루어진다.

일반 산업에서의 먼지, 화학 흡 등은 어떤 심각한 상태에 도달하기 전에 인간이 감지할 수 있으나, 원자력 시스템에서는 생명에 즉각적인 위협을 주는 레벨에서조차 방사능의 존재에 대하여 인간은 전혀 무감각이기 때문에 상황은 아주 다르다.

공기 중에 대부분의 화학적 오염에 대해 정해진 가장 낮은 허용한계 값(TLV : Threshold Limit Values)은 어떤 방사능 물질의 MPC보다 적어도 100배 이상이 더 높다. 정의에 의하면 이런 형태의 HEPA 필터는 0.3 μm 의 입자에 대하여 최소 99.97% 의 제거 효율을 가져야 한다.[3]

원래 설계 시 시스템의 융통성을 갖는 설계가 필요한데 이는 나중에 시스템의 수정 보완 등을 고려할 때 중요하다. 필터 하우징, 팬 및 댐퍼 등의 위치를 잘 고려해서 설치해야 만 유지 보수에 좋으며, 필터 등의 교체 시에 위험성을 줄일 수 있다.

방사능의 문제 때문에 환기, 정화시스템의 수정, 보완 또는 재건에 드는 비용은 비방사능 시스템에서 수행되는 유사한 작업에 드는 비용의 5-10배가 소요된다. 초기 비용을 작게 하려고 만일 바람직한 이점들이 생략되고 어떤 요소, 장비 및 덕트에 제공되는 공간의 양과 질을 희생시킨다면 많은 운전비용과 유지비용이 든다. 그 시스템의 수명동안 운전 및 서비스 비용은 대개 그 시스템을 건설하기 위한 초기 비용을 훨씬 초과한다. 프리필터, 뱅크 사이즈, 공기 유량 또는 다른 시스템 인자들의 여러 가지 조합에 의해서 HEPA 필터의 수명을 연장할 수 있으며, 그에 따라서 많은 경비를 절감할 수 있다.

2. 시스템 고려사항

가. Zoning

방사능 오염도에 따라 다음과 같은 4개의 Zone 으로 나누어진다.

- 1) Zone 1 : 청정 구역
- 2) Zone 2 : 때로 조금 오염되나 일반적으로 청정한 구역(working area)
- 3) Zone 3 : 자주 오염되는 구역, 접근이 제한됨(maintenance area)
- 4) Zone 4 : 정상적으로는 접근이 금지된 구역(hot cells, shielded enclosures, etc)

나. 실내 공기조건

흡입공기의 정화, 온도, 습도 및 분배가 공기조화의 항목들이다. 흡입공기는 일반 공기조화 시스템에서 안전한 견지에서 설계되는 것보다도 방사성물질 취급시설에서는 더욱 중요한데, 대기 등에 포함된 불순물을 걸러줌으로서 배기필터의 수명을 연장해 줄 수 있다.

방사성 배기가스 필터 시스템의 비용은 입구 공기의 순도에 달려있다. 흡입 공기의 온도, 습도 조절은 작업자에게 안락한 작업 환경을 제공하고, 기구, 장비 등에 좋은 분위기를 제공하기 위해 또한 요구되어진다.

3. 환기 시스템설계

가. 기본적 개념

환기시스템 설계 시 일반적인 두 가지 주요한 접근법은 다음과 같다. 공기 흐름방향은 청정 구역으로부터 공기 오염이 존재하거나 존재할 수 있는 지역으로 이루어져야 한다. 그래서 공기는 정상적으로 복도나 사무실에서 일반적인 실험실 구역, 휴음 후드 및 글러브 박스 또는 높은 방사

능 오염 셀로 흐르며 대개 필터 시스템을 거쳐서 대기로 나가게 된다. 오염 레벨의 차이가 있는 구역들에 대해서 환기 시스템을 분리하여야 한다.

복도와 사무실에서는 약 3 mm W.G. 의 플러스 압으로 유지 한다. 방사성 구역은 약 -3 mm W.G. 로 하며, 높은 오염 지역에서는 -8 ~ -25 mm W.G. 를 유지한다. 그러나 glove 박스와 같은 유량 체적이 작은 곳에서는 압력차를 -50 mm W.G. 까지 유지할 수도 있다. 송풍기는 대개 필터에서의 압력 손실 등을 고려해서 충분한 용량을 갖도록 한다.

나. 환기 구역 공기 변화

작업구역에서의 공기 변화는 기본적으로 요구되는 개인 피폭의 안전한 작업 레벨이 초과되지 않도록 충분히 공기를 바꾸어주는 것이다. 넓은 범위의 환기율이 시간당 회전수로 사용되고 있다. 여러 인자들 즉, 방의 사이즈 및 형상, 흡 벽장(cup boards)의 수와 모양, 사람 수 및 에어본 확산의 형태들이 모두 고려되어야만 한다. 그러나 넓은 범위의 방사능 실험실은 시간당 6 ~ 10 회의 환기 횟수를 갖는다. 방사능이 가장 많은 구역에서는 시간당 20회 이상의 환기 횟수를 갖기도 한다.

또한 중요한 것은 공기 흐름 패턴을 방해하는 요인들을 가능한 한 없도록 해주는데, 이것은 공기 정제 현상의 원인이 된다.

다. 흡입 환기(Inlet Ventilation)

흡입공기 중의 먼지를 줄임으로서 방사능 물질의 배출을 줄이는 것이 여러 면에서 중요하며, 흡입 환기 프랜트 룸은 건물 밖 또는 청정 구역에 위치해야 한다. 기후조건에 따라서 흡입 공기의 조절이 요구된다.

라. 배기 환기(Exhaust Ventilation)

실험실 환기 시스템은 기본적으로 사람을 보호하기 위해 설계되기 때문에 사용자는 흡입 특성보다 배기 특성에 훨씬 많은 고려를 해야 한다. 요구되는 공기량을 계산하는 데 있어 여유를 갖도록 하며, 배기량이 만족되는지를 점검하는 것은 중요하다. 대부분 단순한 뎀퍼에 의해서 밸런스가 이루어진다.

방사능 작업구역의 배기시스템은 예비용 팬 과 모터가 구비되어야 한다. 모든 팬들은 기능이 부적절하거나 멈추었을 때, 불 수 있거나 들 수 있는 경보 시스템을 갖고 있어야 한다. 배기공기 굴뚝은 인접한 건물에 오염을 주지 않고 개인에게 상당한 피폭을 주지 않도록 해야만 한다. 덕트의 모양과 풍량은 덕트 내부에 방사능 먼지의 축적을 막을 수 있어야 한다.

4. 국외 시설의 공기조화 시스템

세계 여러 나라의 원자력시설 공기조화 시스템의 기본개념으로서, 오염정도가 낮은 지역으로부터 오염이 많이 된 지역으로의 부압유지, 흡, 배기 필터의 설치 및 경보장치 등의 개념은 같다. 그러나 환기 횟수, 부압정도 등에는 상당한 차이가 있다.[4,5]

오염방지를 위해서 HEPA 필터(99.97%)와 차콜 필터를 이용해서 방사성 분진과 아이오다인을 제거하고 있다.

핫셀의 프리필터 또는 고효율 필터의 이용에 따른 여러 문제점들 - 필터를 통한 압력손실, 화재시 필터의 파괴와 스모크 입자들에 의한 필터의 막힘, 필터의 방사성 물질로부터 초래되는 문제점들의 처리 등 -을 경감하기 위해 물로 씻는 배기 벤티레이션 시스템이 이용되기도 했다.[6] 또한 원자력시설의 벤티레이션 시스템의 사고 시에 대한 컴퓨터 코드를 개발하는 등 여러 가지 문제점들을 분석 보완해 가고 있다.[7]

가. 미국

1970년에 완성된 웨스팅하우스 프로토늄 연료 개발 연구실(Westinghouse Plutonium Fuels

Development Laboratory)의 경우 사무실은 완전히 분리된 Zone 으로 자체의 에어 핸들링 시스템으로 공급되고 있으며, 에어록(Air Lock)으로 프랜트 지역과 분리하고 있다.

프랜트 지역은 6개의 압력 Zone 으로 나누어져 있으며, 화학공정 실험실이 최고의 부압으로 유지되고 있다. 건물의 중심부로 공기의 흐름이 설계되어 있으며, 공기 유량은 매 시간 거의 8회를 완전히 바꾸어 줄 수 있는 양이다.

시설로부터 배기되는 공기 또는 방으로 다시 재순환 되는 공기는 모두 최소 두 단의 고성능 필터(Absolute Filters)를 통하게 되어있다. 이 필터들은 설치 후에 DOP 테스트를 하며, 글러브박스에는 입구에 고성능 필터가 설치되며 배기 덕트에 또 다른 필터가 설치된다. 필터 교환은 비닐백에 의한 기술(Bagging Technique)에 의해 교환된다.

실험실 입구에 중앙 경보 판넬이 설치되어 있으며, 정상적인 작업시간 동안 작업자에 의해 모니터 된다. 경보 판넬의 축소판이 경비실에 설치되어 있어서 자리를 비울 때나 주말 동안에도 계속적으로 감시된다. 또한 로칼(Local) 경보 판넬들이 설치되어 있는데, 정상 운전 시에는 흐린 불빛을 갖는 일련의 표시가 되어진 진열창으로 구성되어 있다. 어떤 경보 상태에서는 부저가 울리면서 밝은 빛을 발한다. 부저는 끌 수 있으나 불빛은 경보 상태가 고쳐진 후에야 꺼지게 된다.

그 밖에 알곤 국립 연구소에서 운영하고 있는 핵연료 처리시설(FCF)의 알곤 셀의 경우는 부압이 -3 in. W.G.로 유지되고 있으며, HFEF(Hot Fuel Examination Facility)에서는 -0.75 ~ -4 in. W.G.로 유지하고 있다.[9]

나. 캐나다

캐나다의 초크리버 연구소 조사후시험시설의 공기 조화 시스템을 살펴보기로 한다.

셀의 작업구역으로 공기가 공급되며, 공기 흡입 팬이 고장 시 셀의 작업구역에 알람으로 통보해 주고 있으며, 셀의 작업구역과 메인 판넬에 빨간 불빛이 들어온다. 인지버튼으로 알람을 끄며, 불빛은 팬이 다시 가동될 때 까지 켜있게 된다.

각 셀의 공기는 셀 내의 러핑(Roughing)필터에서 1차로 여과되고 팬 직전의 필터 बैं크를 통해서 배출된다. 부압은 -8 ~ -10 mm W.G.로 유지되며 시간당 약 30회의 환기를 하게 되어있다.

다. 일본

일본 원자력 연구소 조사후시험시설은 16개의 배기라인으로 구성된 환기시스템이 최소 2회 이상의 셀 체적을 환기시킨다. 시설의 공기흐름 패턴은 낮은 오염지역에서 높은 오염지역으로 흐르도록 되어있다.

셀 공기는 프리 필터를 통해 서비스 구역에서 들어오며 플레임 트랩(Flame Trap), 프리 필터 및 2단의 고성능 필터로 구성된 셀 배기 필터 유니트를 통하여 배출된다.[10]

각 셀은 -20 mm W.G. 로 유지되며 알파-감마 셀은 -40 mm W.G.의 압력으로 된다.

라. 이탈리아

이탈리아 카사시아(CASACCIA) 원자력 센터의 알파 감마 실험실(ALPHA - GAMMA RADIO METALLURGY LABORATORY)의 경우에도 타 시설과 비슷한 개념이다.

비상시에 세심한 배려를 하고 있는데 3 대의 배기 팬 중 한 대는 노말이고 두 번째 것은 스텐 바이이며, 세 번째 것은 배터리에 의해 공급된다.

첫 번째, 두 번째 팬이 비상 파워 시스템과 연결되어 있다. 그러나 동력 공급을 위해 비상발전기를 가동하는 시간이 50 초가 걸리므로 전기가 나갔을 경우에 연속적인 가동을 보장하기 위하여 세 번째의 배기 팬을 가졌다.

각 구역의 환기횟수와 부압은 표 1 과 같다.

Table 1. Underpressure and Renewals per Hour of Casaccia Hot Laboratory

	Air Changes/h	Pressure in mm of water
Green areas (offices, cold change rooms, etc)	2 to 4	0
Yellow areas (operating areas, radiochemistry and special examination laboratories, assembling room, etc)	5 to 8	-3 to -5
Red areas (hot storage, loading area, etc)	8 to 10	-10 to -15
Red areas (hot cells, decontamination room)	20 to 30	-25 to -40

마. 프랑스

프랑스 LECA 의 경우 전 건물이 공기조화 및 환기가 되는데, 흡·배기 쪽 모두 고성능 필터를 쓰고 있으며 굴뚝의 높이는 30 m 이다. 환기 횟수는 전 층에 대하여 시간당 1회이며 각 셀에 대해서는 50 회로 수행되고 있다. 셀 및 제한구역으로부터의 배기는 메인 필터를 거치기 전에 첫 단의 필터를 통하게 된다.[11]

5. 검토 결과 및 고찰

공기조화 시스템을 이용하는 것은 일반시설이나, 방사능물질 취급 시설이나 모두 같다. 그러나 원자력시설에서는 일반 시설과는 달리 다음과 같은 특징을 갖고 있다.

가. 한번 공기조화 시킨 공기는 다시 이용하지 않는 Once-Through 시스템을 채택하고 있으며, 환기횟수는 시간당 6-10회, 많게는 20회를 갖는다. 각국의 시설의 환기횟수는 표 2와 같다.

Table 2 . Comparison of Underpressure and Renewals per Hour.

	ORNL	JAPAN	FRANCE S.G.N.	KAERI P.I.E	CANADA	ENGLAND
부압	-25 mm W.G.	-5 ~ -30 mm W.G.	-15 ~ -25 mm W.G.	-15 ~ -25 mm W.G.	-8 ~ -10 mm W.G.	-25 mm W.G.
시간당환기횟수	6회	20-40회	10회 이상	28-42회	30회	-

나. 방사능 오염 레벨에 따라서 4개의 구역(청정구역, 관리구역, 제한구역, 금지구역)으로 나누어져 있으며, 각 구역 간에 부압을 유지하여야 한다. 즉 복도와 사무실에서는 약 3 mm W.G.의 양압으로, 방사능구역은 대개 -3 mm W.G. ~ -25 mm W.G.의 부압으로 유지하여야 한다.

다. 대기오염방지를 위하여 0.3 μm 입자에 대해 최소 99.97 %의 효율을 갖는 HAPA필터를 오염정도에 따라서 여러 단으로 설치하여야 하며 아이오다인을 사용하는 곳에서는 적어도 99 %의 효율을 갖는 Charcoal 필터를 사용해야 한다. 각 필터의 성능검사는 제작당시에 실시함은 물론, 사용 전 필터케이싱에 장착 후 누설시험을 실시해야 한다.

라. 방사성물질 취급시설의 공기조화 시스템에는 예비용 팬 및 필터 시스템 등이 구비되어야 한다.

마. 많은 풍량의 처리 등에 따른 운영비가 막대 하므로, 외기량을 줄이는 방안 및 HEAT PIPE 열교환기 설치 등으로 폐열 회수를 통하여 많은 운영비 절감을 기대할 수 있겠다.

참 고 문 헌

1. U.S. NRC, Regulatory Guide 3.12, "General Design for Ventilation System of Plutonium Processing and Fuel Fabrication Plants." (1973.8)
2. U.S. NRC, Regulatory Guide 3.32, "General Design Guide for Ventilation Systems for Fuel Processing Plants." (1975.9)
3. Samuel B. Steinberg, "Control of Airborne Particles." (1985.6)
4. L.T. Corbin et al., "Design and Construction of ORNL High Radiation-Level Analytical Laboratory." 11th Hot Lab Proc., ANS, pp.3-10 (1963)
5. P.E. Brown et al., "A New Chemical α , β , γ Active Handling Facility Conceptual Aspects." UKAEA, U.K.
6. Edward Stearns, "A Water-Washed Exhaust Ventilation System for Hot Cells." Proc. 15th Conf. on Remote Syst. Technol. pp.281-282 (1967)
7. R.W. Andrae et al., "Investigation of Air Cleaning System Response to Accident Conditions." 16th DOE Nuclear Cleaning Conf., pp.1142-1164 (1985)
8. C. Cesarano et al., "The Alpha-gamma Radiometallurgy Laboratory at CASACCIA Nuclear Center-Design and Construction." Proc. 19th Conf. on Remote Syst. Technol., pp.145-152 (1971)
9. E.W. Landow and P.R. Hirsh, "Design of the Hot Fuel Examination Facility Argon System." Proc. 17th Conf. on Remote Syst. Technol. pp.196-200 (1969)
10. W.E. Unger et al., "Transuranium Processing Facility Design." 10th Hot Lab Proc. ANS, pp.3-10 (1962)
11. C. Brebant et al., "LECA-Irradiated Fuel Study Laboratory." 11th Hot Lab Proc. ANS, pp.17-32 (1963.11)

중수로 환경방출 방사성이산화탄소 제거 장치 개발

The Removal of Carbon-14 Scrubber for Removal of Environmental Radioactive Carbon in a Heavy Water Reactor

강덕원, 지준화, 엄희문
한국전력공사 전력연구원

요 약

중수로 원전에서 환경으로 방출되는 방사성탄소는 비록 소량이지만 반감기(5730년)가 길고 에너지(0.156MeV)가 높은 방사선을 내기 때문에 각별한 관리가 요구되는 핵종으로 다른 방사성 화합물보다 각별한 관리와 감시가 요구된다. C-14은 원자로 구조의 특성상 경수로에 비해 6배 정도 많이 발생하며 방출되는 C-14의 약 90%는 감속재 계통이 차지하고 있고 주로 감속재 상층기체의 퍼지 및 배기 방출을 통해 환경으로 빠져나가게 된다. 본 연구는 발전소 계통 운전 및 중수 누설 등으로 인해 방출되는 C-14을 흡착, 제거할 수 있는 장치 개발에 초점을 맞추었으며 시험 운전 결과, C-14 제거 성능이 매우 우수한 것으로 평가되었다.

Abstract

The radioactive Carbon, C-14, although present in small amount, emits a high energy(up to 0.156MeV) β ray and has extremely long half-life(5730years). So special monitoring and management on its generation and discharge is inevitable. A PHWR, due to its own specific designs generates about six times as much C-14 as a PWR does and over 90% of the discharged C-14 comes from the Moderator system and discharged in to the environment through the process of periodic purging of the moderator cover gas system. The present study focussed on the development of effective C-14 scrubber and after production of a test facility and experiments using it, we found that our test facility is very efficient in CO₂ removal.

1. 서 론

원자로를 가동하면서 생성되는 방사성 물질은 대부분 계통 내에 설치되어 있는 이온교환수지에 의해 제거되지만 일부 기체상으로 생성된 방사성 기체들은 극소량이지만 발전소 배기 계통을 통해 배기체 처리설비에서 제거한 다음 환경으로 내보내고 있다. 그러나, 방사성이산화탄소는 제거하기가 용이하지 않은 상태로 존재하기 때문에 별도의 정화처리 설비를 거치지 않고 원자력발전소 배기구를 통해 방출되고 있다. 일단 환경으로 방출되면 방사성탄소인 C-14은 낮은 에너지(0.156MeV)의 β 선을 방출하여 동, 식물에 의한 호흡이나 광합성에 의한 탄소동화작용을 통해 생물체 내에 고정되고 먹이사슬의 경로를 통해 인체내에 쉽게 축적될 확률이 높기 때문에 중수로 원전에서 환경으로 방출되는 C-14은 다른 핵종보다 각별한 관리와 감시가 요구되어 진다. C-14은

경수로와 중수로형 원전 모두에서 생성 및 방출되고 있으나 원자로 구조의 특성상 중수로에서의 생성량이 경수로에 비해 약 6배 정도 많이 발생하고 있다. 중수로형 원전에서 방출되는 C-14의 약 90%는 감속재 계통이 차지하고 있으며, 방출되는 감속재 상층기체 중에는 약 $4 \times 10^{-3} \sim 6.5 \times 10^{-3}$ $\mu\text{Ci/ml}$ 정도의 방사성이산화탄소가 포함되어 있다. 이러한 이유로 중수로 원전에서의 방사성탄소는 삼중수소(H-3)와 더불어 규제기관의 주요 감시 대상 물질로 분류되어 있으며 일부 발전소에서는 C-14 핵종에 대한 관리 및 감시를 보다 강화하도록 권고받고 있다. 본 연구에서는 감속재 상층기체 중에 함유되어 있는 C-14과 중수 누설 등의 비상 사태에 사용가능한 C-14 Scrubber의 제작 기술에 대해 언급하였다.

2. C-14 제거장치의 주요 특성

중수로 감속재계통 상층기체의 대기 방출시 제거효율을 극대화하기 위하여 연돌로 직접 방출시키지 않고 배치(Batch) 개념으로 일단 스테인레스 용기내에 내장시킨 PVC 재질의 포집백에 포집후 4개의 Column을 직, 병렬로 구성한 흡착탑을 통과시켜 원하는 농도까지 낮추도록 순환 제거 처리 후 설정된 농도값에 도달되면 연동된 방출 밸브가 자동으로 열려 발전소 연돌로 방출되도록 구성하였다.

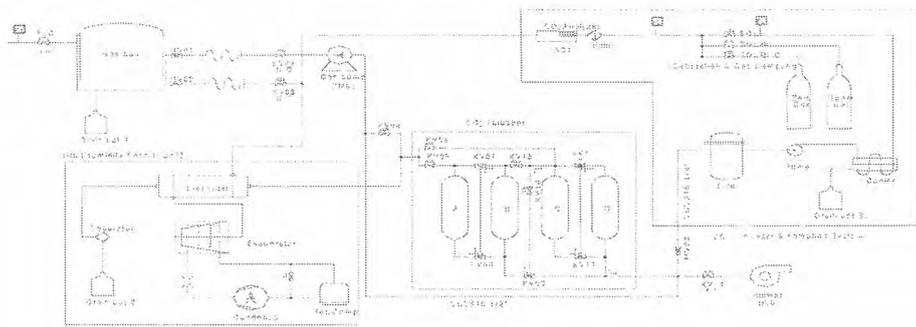


그림 1. 방사성이산화탄소 제거장치의 흐름도

3. 방사성 C-14 제거용 흡착제 개발

C-14이 존재하는 형태인 이산화탄소 분자는 쌍극자 모멘트를 갖지 못하고, 주로 quadrapole를 가지며 표면이 극성인 물질과 상호결합력이 강한 특성을 지니고 있기 때문에 표면이 비극성인 활성탄과 같은 물질에는 흡착능이 낮으며 흡착은 주로 표면관능기와의 화학결합에 의해 이루어진다. 따라서, 최적의 제거 공정을 선택하기 위해서는 대상 공정의 특성(온도, 압력, 습도, 농도, 및 유량)과 향후 장기 처분시 안정성까지 고려하여야 한다.

본 연구에서는 이제까지 개발된 CO₂ 제거 공정에 대한 특성 및 제거 효율과 고정화된 흡착제의 처분시 안정성에 대하여 전반적으로 고찰한 결과, 고체 흡착제를 이용한 공정이 가장 적절한 것으로 평가되어, 주로 기체상 CO₂와의 화학반응에 의한 흡착 제거에 초점을 맞추어 대상 흡착제를 Li(OH)와 Ca(OH)₂로 선정하였다(그림 2참조). Li(OH)의 경우에는 잠수함내에서 CO₂ 제거에 실제 사용되는 제품과 동일한 수준으로 제작하였다. Ca(OH)₂의 경우에는 여러 가지 변수에 대한 실험을 통해 얻어진 최적의 배합비를 이용하여 펠렛형태로 자체 제작하였다. 흡착제 제조에는 Ca(OH)₂ 외에 바인더 물질로 PVA(Poly Vinyl Alcohol)와 PEG(Poly Ethylene Glycol) 및 물을 첨가하였으며 이들 원료를 균일하게 혼합하여 흡착제의 원료로 사용하였다. 흡착제는 혼합기를 이용하여 충분히 배합한 다음에 120 °C에서 3시간 건조시킨 후, 다시 200 °C에서 1시간, 350 °C에서 3시간동안 소성 과정을 거쳐 지름 5 m, 길이 5 mm 크기의 원통형 펠렛으로 제작하였으며 그 형태를 그림 3에 나타내었다.

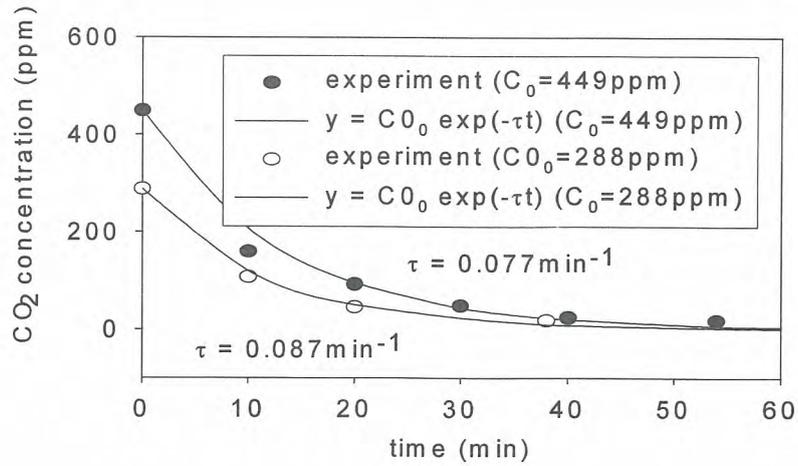


그림 2. 시간 경과에 따른 C-14 제거 성능시험 결과

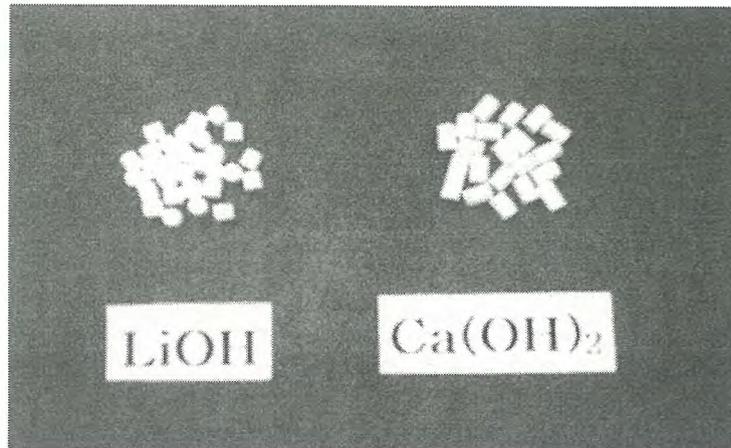


그림 3. 제조된 원통형 펠렛의 실제 사진

4. ¹⁴CO₂ Scrubber 상세 설계 및 제작

4.1 장치개요

그림 4에서 보여준 것처럼 시작품을 제작하여 월성원전에서 시험 운전 중인 C-14 제거설비에는 12개의 카트리지가 장착되었으며 연간 약 10,000 l의 ¹⁴CO₂를 처리할 수 있는 용량으로 제작하였으며 제거성능을 향상시키기 위한 효율적인 유체 흐름을 위해 직사각형 카트리지 대신 4개의 column을 직'병렬로 연결하여 독립적인 MOV(Motor Operated Valve)에 의해 운전할 수 있는 시스템으로 구성하였다.

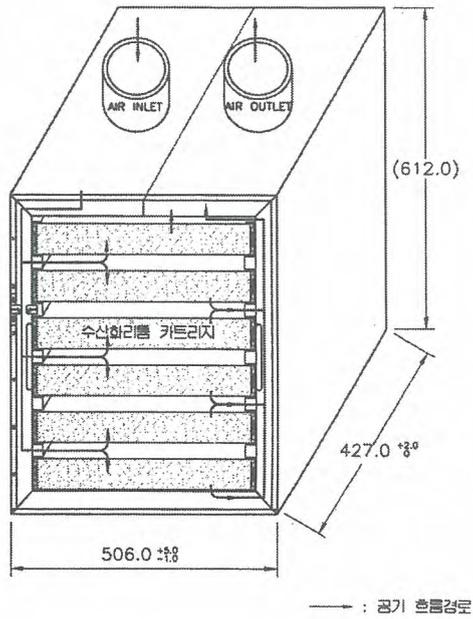


그림 4. C-14 Scrubber 전면 사진(기존형(좌)와 개량형(우))

4.2 Scrubber특징 및 주요기능

C-14 제거장치는 그림 4와 같이 분리 운전이 가능한 Gas 포집용기와 Scrubber로 제작되었으며 기체 포집부는 압력을 상압으로 유지하는 신축성 포집백에 포집백의 누설에 대비해 외장은 Stainless Steel의 원통형 용기로 만들어 이중 포집 기능을 부여 하였다 또한 흡착제의 포집 효율을 극대화하기 위해 흡착 최적반응을 조절할 수 있는 온. 습도 자동조절 (25℃±10%)이 가능한 기능이 내장되어 있다. 운전은 원전원의 피폭 보호를 위해 원격 제어가 가능한 PLC 및 HMI를 이용한 원거리 통신 및 중앙제어용 Software를 개발하였다.

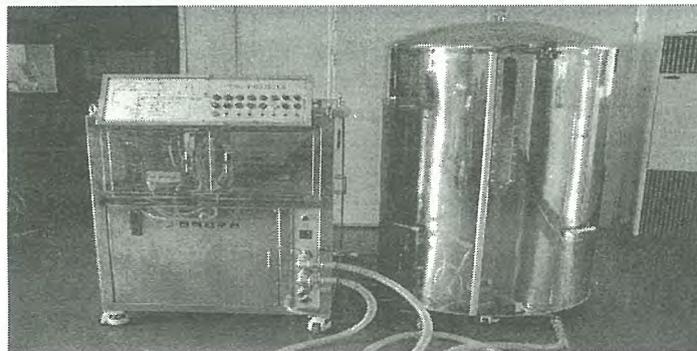


그림 5. C-14 제거 장치 사진

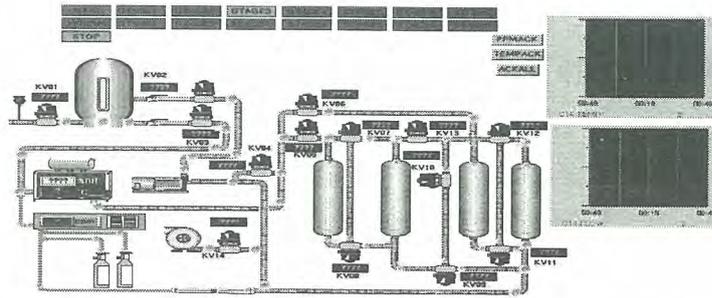


그림 6. C-14 제거 장치 통합 제어 Modelling

5. 결 론

중수로 감속재 계통에서 발전소 밖으로 유출되는 C-14를 제거할 수 있는 장치를 개발하여 성능 시험 운전해 본 결과 약 97% 이상의 Scrubber에 장착된 흡수제는 LiOH 나 Ca(OH)₂를 펠렛형으로 제작하여 사용하였으나 흡착재의 최종 선정은 흡착능 및 처분의 안전성등을 고려하여 추후 선정할 계획이다. 누설에 대비한 이중 포집 기능이 부여된 스테인레스강 포집용기를 운전한 결과 고기밀성이 유지되는 것으로 확인 되었으며, C-14 Scrubber는 운전원의 피폭보호와 원거리 제어 운전이 가능한 중앙제어 S/W를 탑재된 보다 개선된 장치가 개발될 수 있을 것으로 기대된다.

참 고 문 헌

1. 강덕원 외 4명 “중수로 감속재 계통내 C-14 저감기술 개발보고서(00NC02)” 2003.4 한전 전력연구원
2. Experiments with a lime slurry in a stirred tank for the fixation of C-14 ORNL/TM-5757

빈 면

제3분과(D)

방사선안전 및 환경(Poster)

빈 면

PP 재질의 물성에 미치는 방사선의 영향에 대한 이론적 고찰
A Theoretical Consideration about Effects of Radiation on the Physical
Properties of PP

김문수, 강덕원, 엄희문
한국전력공사 전력연구원

요 약

방사선장 하에서의 탈기막 재질의 물성에 미치는 방사선의 영향에 관한 연구를 수행하였다. PP에 미치는 방사선속을 계산하기 위해 MCNP4A Code를 이용하였으며 MCNP4A Code를 이용한 광자선속을 계산하기 위하여 탈기장치와 PP 막을 봉 구조로 규격화하였다. 양단차폐 계통에 사용되는 탈기막 재질인 PP의 변형은 계통수의 방사능이 매우 낮기 때문에 거의 없을 것으로 평가되었으며 작업자의 피폭도 무시할 정도인 것으로 판단되었다. 검토결과, 원자력발전소의 원자로 계통수 처리를 위해 방사선장하에서 노출되는 폴리프로필렌 탈기막의 재질은 건전성이 그대로 유지될수 있음을 평가하였다.

Abstract

The physical properties of polypropylene (PP) membranes under the radiation field were investigated. To calculate radiation flux affecting to PP, it was used MCNP4A Code. The PP membrane and deoxygenation equipment were standardized to bar structure in order to calculate the photon flux with MCNP4A Code. The change in the properties of the PP membrane to be used in deoxygenation equipment was rarely occurred during the usage work because the radiation level of reactor coolant water was very low level and The doses of radiation workers are very low. From the results, it was found that the Physical properties of PP membranes which used for nuclear power plant reactor coolant water disposal were not rarely changed under the simulated radiation field.

1. 서 론

수처리 기술의 발전에 따라 수중에 용존 되어 있는 산소의 제거기술은 날로 발전해 오고 있으며 각국의 원자력발전소에서는 계통수중의 용존산소 제거를 위해 화학약품을 사용하는 대신 촉매수지나 탈기막을 이용하고 있다. 탈기막을 이용한 용존산소 제거기술은 장치의 단순성과 경제성 면에서 월등하기 때문에 날이 갈수록 그 수요가 확대될 전망이다. 용존산소는 냉각수를 사용하는 많은 공장과 배관계통의 부식에 직접적인 원인으로 제공되고 있기에 효과적으로 용존산소를 제거하는 것은 발전소와 플랜트에 있어서 매우 중요한 문제이다. 특히, 원자력발전소의 경우에는 계통내의 용존산소로 인한 부식은 심각한 위협을 초래하기 때문에 용존산소의 효과적인 처리기술의

개발은 더욱 중요한 문제이다.

본 연구에서 용존산소 제거장치에 사용되는 기·액 분리막의 재질은 고분자 물질인 폴리프로필렌 (polypropylene, 이하 PP라 함) 으로 고분자 재질은 대부분 방사선에 약한 것이 단점으로 지적되고 있다. 양단차폐 계통수는 원자로 일차 계통수는 아니지만 계통의 특성상 낮은 방사능을 띄고 있으며, 이 장치를 지속적으로 부착 사용할 경우 적은 양이지만 막(membrane)은 방사선장하에 놓이게 된다. 따라서 본 연구에서는 막이 장기간 방사선장에 놓여 있을 때 방사선에 의한 막의 건전성이 그대로 유지될 수 있는지를 평가하였다.

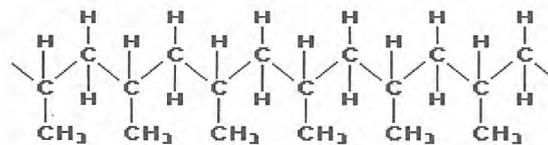
2. 이론적 배경

방사선 조사의 영향으로 폴리머에 발생하는 중요한 화학적 변화는 다음과 같다.

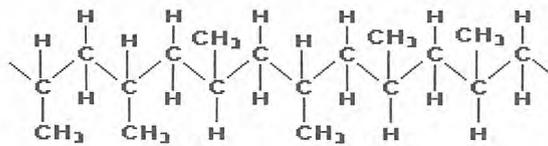
- (1) 가교결합(cross-linking) : 분자간 결합으로 가교 형성
- (2) 분해(degradation) : 주요 폴리머 사슬과 결사슬에서 화학결합이 절단
- (3) 기체 생성 : H₂, CH₄, CO 같은 기체상 생성물을 형성
- (4) 산화(oxidation) : 공기 또는 산소 존재시 폴리머의 산화

2.1 폴리프로필렌의 특성

PP는 가교결합 지배반응인 폴리에틸렌(polyethylene, PE)과 분해 지배반응인 폴리이소부틸렌 (polyisobuthylene) 구조의 중간 구조체로 방사선화학에서 흥미로운 재질이다. PP는 나선형의 같은 측면을 따라 규칙적인 간격으로 나타나는 메틸(-CH₃)기를 가진 나선형 배열로 생성된다. PP는 구조의 입체 규칙성에 기인하여 고결정성이다. 따라서 높은 항복강도(yield strength), 강성도 (stiffness)와 경도(hardness)를 가진다. 또한 PP는 다양한 입체 형태와 결정성을 가진다. PP의 입체특이성 구조로는 isotactic과 atatic 구조가 있다 (그림 1 참조).



Isotactic Polypropylene



Atatic Polypropylene

그림 1. Polypropylene의 입체규칙성 : Isotactic과 atatic

Isotactic PP는 사슬 중에 단지 한가지 대칭성을 가진 단량체 단위만이 존재하게 된다. PP는 일반적으로 적은 양의 불순물을 포함한다. 불순물로서 저농도의 vinylidene 작용기가 폴리머 말단기에 존재하며 제거하기 어려운 다른 불순물로는 -CO-, OH-, -O-O-, 기로써 폴리머에 결합된 수 ppm 정도의 산소이다. 이외에 방사선장(radiation field)에 영향을 주지않는 촉매 잔여물(≈ 100

ppm)과 효과를 줄 수 있는 산화 억제제가 존재한다.

2.2 폴리머의 변형

방사선에 노출된 폴리머 재질은 방사선 변형 생성물을 만든다. 고분자 재질의 물성은 상대적으로 저선량에 조사되어 상당한 변화를 나타내며 고에너지(이온화) 방사선은 폴리머를 변형시킨다. 방사선 조사에 의해 생성되는 생성물의 화학적 수율은 아래의 G 값으로 표현된다. G 값은 방사선 에너지 100 eV(1 eV = 1.6 × 10⁻¹⁹ J)를 매질에서 흡수했을 때 생성되거나 분해되는 화학종의 수로 정의된다.

$$G = \frac{\text{생성 또는 분해된 화학종의 수}}{100 \text{ eV(흡수에너지)}} \quad [\text{molecule/eV}] \dots\dots\dots(1)$$

기호 G(X)는 가교결합 생성 화학종수를 나타내며 G(S)는 분해되는 화학종수를 나타낸다. 폴리머들이 방사선에 조사될 때 발생하는 가장 중요한 반응은 가교결합(cross-linking)이다. 가교결합(cross-linking)과 분해(degradation)는 폴리머 구조와 물리적 특성을 변화시키는 비평형 방사선-화학 과정이다. 방사선 유도결합의 두 유형으로는 가교결합(cross-linking)과 말단결합(end-linking)으로 알려져 있다. 4차 작용기 결합으로 표현되는 가교결합은 4개의 사슬을 포함하고 3차 작용기 결합인 말단결합은 세 개의 사슬을 가진다. 가교결합과 말단결합을 그림 2에 도시하였다.

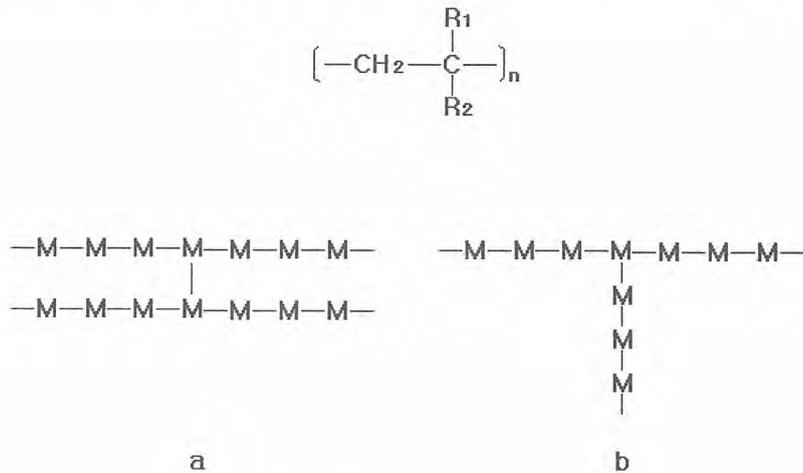


그림 2. 폴리머 사슬의 결합 : (a) 교차결합 ; (b) 말단결합 (M은 단량체 단위)

가교결합은 직선형 폴리머를 3차원 분자로 변형시킨다. 그 결과로 분자량이 증가하고 유기용매에 대한 용해도를 감소시키며 기계적 물성이 향상된다. 반대로 분해는 분자량을 감소시키고 폴리머의 유기용매에 대한 용해도를 증가시키며 기계적 물성이 저하된다.

2.3 기체 화합물의 방출과 불포화도 변화

가교결합과 분해는 조사 결과로 발생하는 폴리머 변형중에서 가장 중요한 반면에 기체와 불포화물의 생성, 이성질체화(isomerization)와 고리화(cyclization) 같은 다른 변화도 발생한다. 이 생성물들은 비슷한 화학적 구조들을 가진 저분자량의 화합물로부터 생성된 생성물들과 비슷하다. PP의 이온화 방사선의 주요 효과 중 하나는 기체 생성이다. 여러 기체 생성물 중에서 수소 생성이 가장 크다. Isotactic PP는 여러 문헌에 의하면 25°C에서 2.78과 2.63의 G(H₂) 값을 가지며 2.63이

더 최근 값이다. 두 번째로 많은 기체 생성물은 메탄이며 생성된 수소 대 메탄의 몰비는 0.026, 0.064, 0.032와 0.14로 다양하게 보고되었다. 이 변화량은 폴리머 또는 조사조건의 차이의 결과이다. 또한 수소와 메탄 이외에 산소를 포함한 작용기를 가진 폴리머들은 CO와 CO₂가 적은 양 생성된다.

2.4 산화

외부로부터 확산되거나 폴리머에 용해되어 있는 산소는 방사선 산화를 발생시킨다. 특히 산화는 용존산소의 영향으로 우선적으로 진행된다. 용존산소가 소모됨에 따라 산소기체의 기여도가 증가한다. 진공, 질소, 공기 조건에서 γ -방사선을 조사하여, PP에 대한 흡수선량 대 사슬절단 수의 그래프를 그림 3에 도시하였다. 조사 초기에 분해가 환경에 적은 영향을 받지만 선량이 증가함에 따라 조건에 따른 차이가 현저히 커진다.

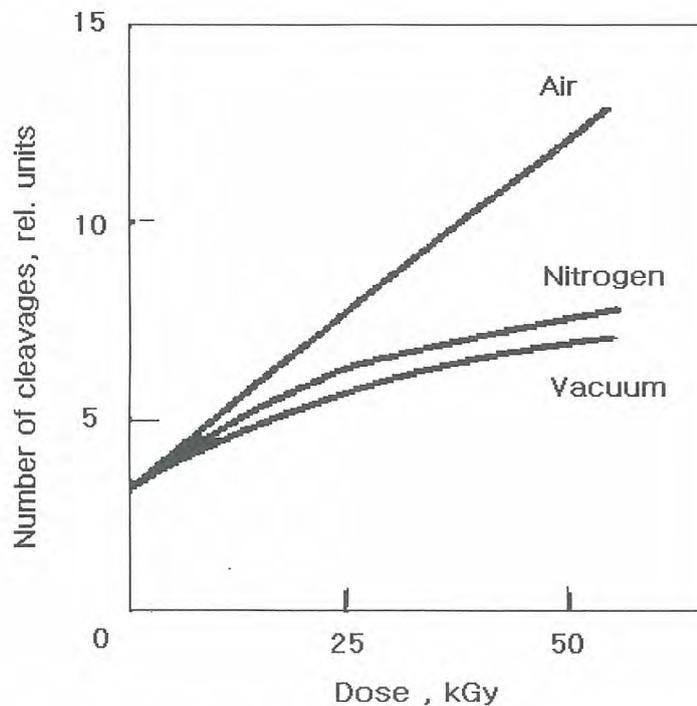


그림 3. 공기, 진공과 질소 환경에서 조사된 polypropylene에서 흡수선량과 방사분해의 정도

3. 실험 및 결과

월성 원전에 설치한 용존산소 제거장치의 주요 핵심 부분인 탈기막의 재질 건전성을 평가하기 위해 계통수의 방사선량으로부터 탈기막(polypropylene, PP)에 흡수되는 흡수선량을 다음과 같이 계산하여 보았다.

표 1. 막을 통과하는 계통수 중의 방사능량

핵종	방사능량(μCi)
Ar-41	0.75
Mn-56	0.91
Co-60	0.26
Zn-65	0.02
Sb-124	0.09
Xe-133	0.04
I-134	1.31
Cs-137	0.11
총 방사능량	3.49

PP에 미치는 방사선속을 계산하기 위해 MCNP4A Code를 이용하였으며 MCNP4A Code를 이용한 Phonton flux를 계산하기 위하여 탈기장치와 PP 막을 봉 구조로 규격화 하였으며 봉 외부에 방사능이 균일하게 분포되어있다고 가정하였다. 봉막의 Geometry 구성은 PP 재질로 된 직경 25cm, 길이 71cm, 총부피 35L 그리고 두께 0.01cm 봉 구조로써, 방사성행종이 물에 균일하게 되어 있다는 가정하여 MCNP4A Code의 F4 tally를 사용하여 Phonton flux를 계산하였다.

표 2. MCNP4 Code로 계산된 진행중별 Energy를 고려한 PP막의 선량을 계산값

Energy* (MeV)	Phnton flux (1/cm ²)	DF(E)* {(rem/hr)/(phonton/cm ² · s)}	Dose Rate (rem/hr)
1.00E-02	0.00E+00	2.78E-06	0.00E+00
1.50E-02	0.00E+00	1.11E-06	0.00E+00
2.00E-02	0.00E+00	5.88E-07	0.00E+00
3.00E-02	1.89E-06	2.56E-07	6.24E-08
4.00E-02	8.06E-06	1.56E-07	1.62E-07
5.00E-02	2.20E-05	1.20E-07	3.40E-07
6.00E-02	2.46E-05	1.11E-07	3.53E-07
8.00E-02	5.38E-05	1.20E-07	8.34E-07
1.00E-01	5.26E-05	1.47E-07	9.98E-07
1.50E-01	1.07E-04	2.38E-07	3.28E-06
2.00E-01	7.33E-05	3.45E-07	3.26E-06
3.00E-01	1.30E-04	5.56E-07	9.33E-06
4.00E-01	5.52E-05	7.69E-07	5.48E-06
5.00E-01	4.79E-05	9.09E-07	5.63E-06
6.00E-01	3.65E-05	1.14E-06	5.37E-06
8.00E-01	8.36E-05	1.47E-06	1.59E-05
1.00E+00	2.59E-04	1.79E-06	5.98E-05
1.50E+00	1.94E-04	2.44E-06	6.10E-05
2.00E+00	4.88E-05	3.03E-06	1.91E-05
3.00E+00	1.50E-05	4.00E-06	7.72E-06
4.00E+00	0.00E+00	4.76E-06	0.00E+00
5.00E+00	0.00E+00	5.56E-06	0.00E+00
6.00E+00	0.00E+00	6.25E-06	0.00E+00

Energy* (MeV)	Phnton flux (1/cm ²)	DF(E)* {(rem/hr)/(phonton/cm ² · s)}	Dose Rate (rem/hr)
8.00E+00	0.00E+00	7.69E-06	0.00E+00
1.00E+01	0.00E+00	9.09E-06	0.00E+00

* : Phnton flux를 Dose Rate로 변환하기 위한 변환인자(Conversion Factors)는ICRS-2의 변환인자를 사용함.

계산인자로 사용된 방사선원의 형상은 실린더 형이고 적분은 Point Kernel로 계산하였다. 축적인자(Buildup Factor)로는 Taylor Method를 사용하였고, 방사선원과 막과의 거리는 근접하게 놓고 계산하였다. Photon flux를 선량율로의 환산은 식 2에 의하여 계산하여 표 2에 나타내었다.

$$\text{Dose rate} = \text{Phnton flux} \times \text{DF(E)} \times \text{총방사능량} \times 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq/Ci} \dots\dots(2)$$

여기서, Dose rate의 단위는 rem/hr, Phnton flux는 1/cm², DF(E) (전환인자)는 (rem/hr)/(phonton/cm² · s)이고 총방사능량은 3.49μCi로 하였으며, 일련의 과정에 따라 계산된 선량율을 표 2에 나타내었다.

4. 결 론

각 에너지별 선량율을 합하여 계산된 총 방사선량율은 1.99×10^{-4} rem/hr로 나타났고, 계통에서 장치의 운전조건과 동일하게 16 m³/h에서 98%의 용존산소 제거효율로 장치를 연속 운전시, 초기 계통수중의 용존산소 농도가 300 ppb이었다. 이를 계통내 용존산소 기준치인 25ppb로 낮추기 위해서는 약 10일(240시간) 정도 장치를 운전해야 하며 그 동안의 현장 운전경험으로 볼 때 2개월에 1회 정도는 운전될 것으로 예상되며 연간 운전 기간은 총 60(1440시간)정도 운전될 것으로 예상된다. 따라서 이를 1년동안 막이 받는 선량으로 계산하면 약 0.29 rem이 되며 선질계수를 1로하여 환산하면 2.9×10^{-3} Gy의 흡수선량 값을 가진다. 이 값은 PP에 피해를 줄 수 있는 안정도 값인 1.2×10^4 Gy 값에 2.4×10^{-5} % 정도로, 미미한 영향을 미치는 것으로 계산되어졌기 때문에 양단차폐 계통수중의 용존산소를 제거하기 위해 이 장치를 지속적으로 사용하여도 PP 막은 계통수내의 방사성물질에 의하여 받는 영향은 거의 없다. 따라서 PP 재질의 방사선 저항성을 높이기 위해 보호재나 반방사선재(antirad)를 사용하지 않아도 될 것으로 여겨진다.

또한, 막의 근처에서 막의 방사화로 인해 작업자가 받을 수 있는 피폭량을 거리 0.5cm 거리에서 길이 170cm 의 가상의 한 면을 잡아 선량당량률을 계산하여 보았다. Geometry와 계산인자는 PP 막의 선량을 계산과 동일한 조건으로 설정하고 MCNP4A Code의 F2 tally를 사용하여 계산하였다.

각 에너지별 선량율을 합하여 계산된 총 선량율은 3.57×10^{-5} rem/hr이며 PP막의 흡수선량 계산과 동일한 용존산소 제거장치 운전 조건인 연간 60일(1440시간)의 운전시간을 적용하면, 연간 탈기막에서 0.5cm 거리의 170cm 길이의 면으로부터 작업자가 받는 선량당량은 51.4 mrem 값을 가진다. 이는 일반인의 연간 허용값인 100 mrem의 51.4%에 해당하며 방사선 작업자의 연간 허용값인 2 rem의 2.57%에 불과하며 운전원과 탈기막과의 실제 거리는 이보다 훨씬 멀게 유지되기 때문에 실제로는 운전시 피폭 영향은 매우 미미한 것으로 평가되었다. 따라서, 양단차폐 계통에 사용되는 탈기막 재질인 PP의 변형은 계통수의 방사능이 매우 낮기 때문에 거의 없을 것으로 평가되었으며 작업자의 피폭도 무시할 정도인 것으로 판단되었다.

5. 참 고 문 헌

1. 강덕원의 1인, 월성 원자로 차폐체 냉각재 계통내 용존산소 제거 연구, TR97NS08.S2000.39, pp.59-82
2. 강덕원의 1인, 고리1호기 원자로 보충수탱크 용존산소 제거장치 개발, TR2001.11, p.10-16

중·저준위 방사성폐기물 유리화 시설의 차폐해석에 관한 연구

A Study on the Shielding Analysis in Vitrification Facility of Low- and Intermediate Level Radioactive Wastes

이창민, 이진재
한국과학기술원
지평국, 박종길, 하중현, 송명재
한수원(주) 원자력 환경기술원

요 약

중·저준위 방사성폐기물의 유리화 기술은 체적감소비, 유리고화체의 기계적 및 화학적 안전성 등으로 그 유용성이 입증되어 현재 울진 5,6호기에 상용시설의 건설이 추진되고 있다. 유리화시설은 대상폐기물의 높은 방사능 준위로 인해 방사선 안전 설계를 위해서는 차폐해석이 수반되어야 한다. 그러나 국내에서는 유리화 시설의 건설 및 운영 경험이 없으므로, 본 연구에서는 유리화 시설의 향후 상세 설계와 운영계획에 도움을 줄 수 있는 자료를 얻고자 유리화 실증시설의 구조를 따라 기존의 방사선원형을 이용하여 기기별 선량계산을 통해 방사선 차폐 해석을 수행하였다. 차폐체로서는 경제성과 열저항성이 뛰어난 콘크리트를 고려하였다.

Abstract

The usefulness of vitrification technology for low- and intermediate- level radioactive wastes was demonstrated because of high volume reduction, mechanical and chemical stability of final waste forms. Thus, a construction of the commercial vitrification plant is currently promoted. Due to the high radiation level of the waste, shielding analysis has to be carried out for safe design in a vitrification facility. Because there has been no experience in the construction and operation of the vitrification facility in Korea, in this study, in order to get some information for help the detailed design and plan for operation in vitrification facility, shielding analysis for each facility in pilot plant is carried out by using source term from established study. For the selection of the shielding material, concrete was chosen compared to the lead because of economic advantage, weight consideration, and thermal resistance.

1. 서 론

환경에 대한 관심 고조와 방사성 폐기물 처분장 선정의 어려움으로 인해 방사선에 의한 환경영향이 거의 없으면서도 방사성 폐기물의 부피를 대폭 감소시켜 처분장 선정의 시급성을 완화시킬

수 있는 새로운 방사성 폐기물 처리기술개발이 필요하게 되었다.[1] 이러한 필요성을 충족시켜 줄 수 있는 기술 중에서 가장 유망한 기술이 방사성 폐기물 유리화 기술이다. 이 기술은 중·저준위 방사성 폐기물의 부피감소와 생성된 유리결정의 용출성이 적다는 장점을 가지고 있어[2], 향후 올진 5, 6호기 중·저준위 방사성 폐기물을 처리할 예정이다. 그러나 현재 국내에서는 유리화 시설의 건설 및 운영 경험이 없으므로, 본 연구에서는 유리화 실증 시설내 각 설비들의 선량을 평가하고, 이를 통하여 시설내 차폐해석을 수행함으로써 향후 기본설계와 운영계획에 도움을 줄 수 있는 자료를 얻고자 하였다.

2. 방사선원형

선량평가를 위한 방사선원형은 기존에 수행된 연구결과를 이용하였으며 다음 표1과 같다.[3]

표 1 대상폐기물 방사선원형 결정

핵종	W1	W2
H-3	2.17E+ 06	1.37E+ 06
C-14	9.47E+ 05	5.99E+ 05
Cs-134	3.67E+ 06	1.33E+ 08
Cs-137	5.44E+ 06	7.83E+ 08
Sr-89	1.17E+ 04	9.47E+ 03
Sr-90	1.06E+ 04	1.49E+ 06
Y-91	1.02E+ 03	6.44E+ 02
Zr-95	3.25E+ 04	4.22E+ 04
Nb-95	2.45E+ 04	1.58E+ 04
Ru-103	6.16E+ 05	4.11E+ 05
Ru-106	7.69E+ 06	8.79E+ 08
Ag-110m	1.11E+ 05	5.99E+ 06
Te-129m	1.55E+ 04	1.95E+ 03
Ce-141	1.22E+ 04	7.82E+ 03
Ce-144	3.40E+ 05	2.38E+ 07
Cr-51	2.53E+ 05	1.60E+ 05
Mn-54	7.16E+ 05	1.60E+ 06
Fe-55	1.03E+ 05	4.69E+ 06
Fe-59	2.47E+ 04	1.58E+ 04
Co-57	2.89E+ 05	1.83E+ 05
Co-58	2.36E+ 06	1.53E+ 06
Co-60	3.51E+ 06	5.87E+ 06
Zn-65	1.19E+ 05	2.33E+ 06
Ni-63	3.39E+ 06	2.14E+ 06
계	3.19E+ 07	1.85E+ 09

대상 방사성폐기물은 고준위 및 저준위 이온 교환수지와 잡고체이며 이들을 적절한 비율로 혼합하여 유리용탕에 투입하게 된다. 이때, 고준위 이온교환수지의 유무에 따라 두가지로 구분하였으며, 이들을 각각 W2과 W1이라 하였다.[3]

3. 시설내 방사선 준위 평가

실증 시설내 각 기기별 내부 구조를 살펴보면 다음 그림 1과 같다. 잡고체와 이온교환수지폐기물

들이 Hopper로 부터 CCM으로 투입되어 연소 되며, 이때 발생하는 배기체들이 HTF를 통해 배출되어 지게 된다. [1]

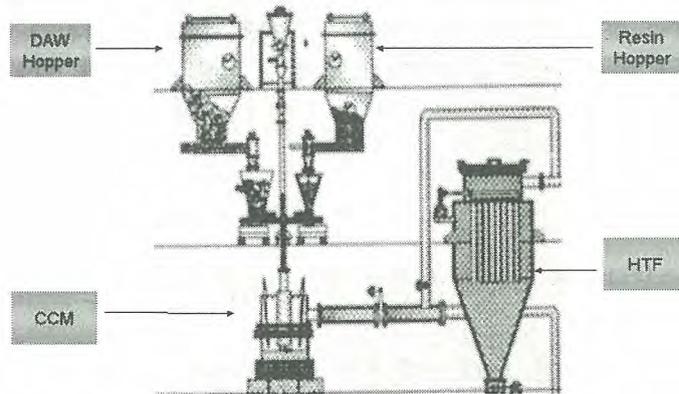


그림 1. 유리화 시설 내부 구조도

유리화 실증 시설내 차폐해석을 위해서 우선 시설 내 각 계통의 방사선 준위를 알아보려고 하였다. 특히 준위가 높을것으로 예상되는 Hopper, 저온용융로(CCM), 고온필터(High temperature filter) 세가지 기기에 대하여 살펴보고 또한 준위를 평가해 보았다. 본 연구에서는 Microshield 코드를 이용하여 각 시설의 표면선량을 평가하였다.

3.1 HOPPER

이온교환 수지 Hopper는 이온교환수지를 유도가열식 저온 용융로(CCM) 내부에 연속 정량 주입하기 위한 장치이다. 이 장치는 설계도면에 따르면 700리터 용량의 저장탱크로 예상되며, 이때 약 500kg의 수지를 저장할 있을것으로 예상된다. 가연성 잡고체 Hopper는 방호복, 제염지 비닐봉지, 신발덮개, 장갑 등으로 구성된 가연성 잡고체를 CCM에 주입하는 장치이다. 기본적인 구조는 이온교환수지 주입기와 유사하고 약 1,000리터 용량의 저장탱크를 가지고 있으며, 이곳에 약 700kg의 잡고체를 저장할 수 있을것으로 예상된다. 이 Hopper들은 CCM 바로 위 상부에 위치하고 있고, 특히 이온교환수지중 고방사능 이온교환수지는 매우 높은 방사선을 방출하기 때문에 시설내 방사선 준위를 평가하는데 있어 매우 중요하다.

평가를 수행한 결과는 Hopper내 500kg이 저장된 것으로 가정하여, 저방사능 이온교환수지의 경우, 표면선량은 330.5mR/h, 3.014mSv/h, 로 평가 되었고, 고방사성 이온교환수지에 대해서는 표면선량이 2.299E+06mR/h, 2.093E+04mSv/h로 평가되었다.

3.2 Cold Crucible Melter(CCM)

CCM은 스테인레스 스틸로 제작되어 있고, 내부를 냉각수로 냉각할 수 있도록 하였고, 유입되는 냉각수의 온도를 90 °C로 유지하여 산성 가스등이 용융로 표면에 응축됨으로 인한 부식을 방지하도록 하였다.

CCM 내 투입되어 질 수 있는 최대 폐기물의 양은 W1타입의 경우358kg으로, W2의 경우 214kg으로 가정하였다.[3]

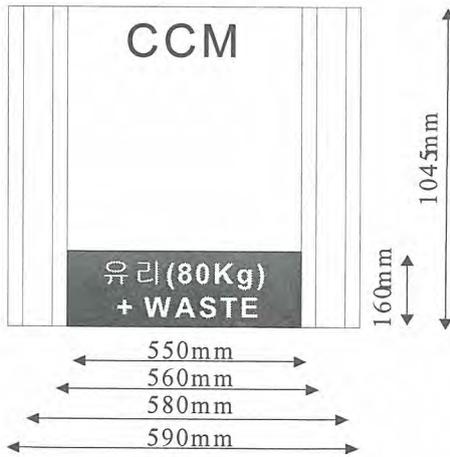


그림 2 CCM 개략도

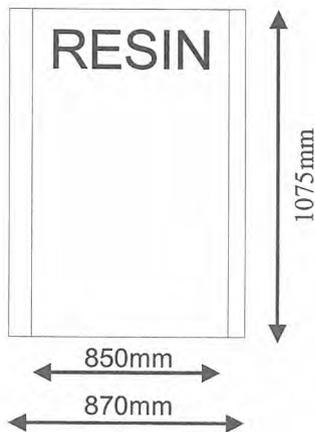


그림 3 HOPPER 개략도

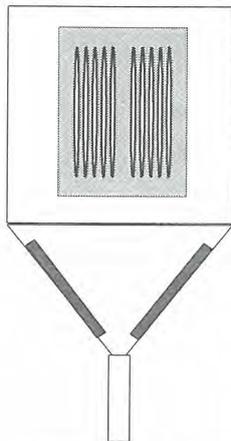


그림 4 HTF개략도

표면선량은 W1의 경우 20.260mSv/h W2의 경우는 171.9 mSv/h로 평가 되었다.

3.3 High Temperature Filter(HTF)

High Temperature Filter(HTF)는 CCM으로부터 발생된 배기체들은 1차로 여과시킨다. HTF는 내부의 온도가 50 0℃정도로 CCM에서 발생한 고온의 배기체들을 냉각시킴으로써, 상대적으로 높은 휘발점을 가지는 방사성 핵종들을 쉽게 여과할 수 있다. 또한 여과효율이 99.78%로 알려져 있으며, 매우 많은 양의 Dust와 그 외의 많은 이 물질들을 여과할 수 있다. 또한 HTF는 1-2초에 한번씩 필터에 Back Pressure를 걸어 줌으로써 걸러진 여과물들을 연결된 Pipe를 통해서 Tank에 보관할수 있도록 설계되어 있다. 때문에 HTF는 높은 여과효율에 비해 상대적으로 필터내부에 존재하는 Dust와 방사성 핵종들의 양이 적고, 단지 Dust와 방사성 핵종들이 HTF의 하단부에 약간량 존재하게 된다. 이를 Dust Cake이라 부르는데, 이것의 양은 약 1920g정도로 예상되며 이중 Cs의 농도가 1.57 W/o 정도이고, Co의 농도가 0.66 W/o로 보고되고 있다[3]. 본 연구에서는 두 농도 값 중 상대적으로 보수적인 Cs의 농도값 1.57 W/o 을 사용하여 Dust Cake내 다른 핵종들의 농도값을 가정하였다. 이 농도값들을 이용하여 HTF에서의 표면선량은 1.07E-05 mR/h, 9.71E-08 mSv/h로 평가되었다. 이 값들은 방사성 물질 취급시설 설계지침상의 비상시 작업구역 내의 차폐요건인 1mSv/h는 물론 비 통제 구역의 차폐 설계기준치 값인 0.001 mSv/h에도 이르지 않으므로 인해 차폐가 불필요하다고 판단된다.

4. 차폐해석

위의 계산결과에서 나타난 바와 같이 HTF는 CCM과 Hopper에 비해 매우 미미한 선량을 방출한다. 따라서 전체 시설내 방사선 준위에 HTF가 미치는 영향은 매우 작으므로 별도의 차폐체의 고려가 불필요하다고 판단되어 고려 기기에서 HTF는 제외하였다. 따라서 본 연구에서는 Hopper와 CCM만을 고려하여 차폐해석을 수행하였다. 또한 Hopper는 이온교환수지용과 DAW용 두가지가 있으나, DAW는 이온교환수지에 비해 그 선량이 매우 작아 그 영향이 미미함으로 이온교환수지 Hopper만을 고려하였다. 특히 보수적 관점에서 이온교환수지는 고방사성 이온교환수지로 고려하였다.

유리화 실증 시설의 내부를 간략히 살펴보면 다음과 같다.(그림 5). Operation Room은 항상 작업자가 상주하는 구역으로써 방사선 구역상에서 구역분류 1에 해당하는 비 방사선 구역[4][5]으로 분류된다. 이와 같은 영역 기준을 따르기 위해서는 보여지는 바와 같이 실증설비 설구역의 벽 바깥부분 즉, 비방사선 구역의 선량이 기준치를 초과하지 않도록 하여야 한다. 따라서 본 연구에서는 CCM과 HOPPER에서 가장 가까운 벽을 기준으로 그 외벽에서의 선

량의 두께에 따른 변화를 살펴보았다. 이때 보수적인 관점에서 사고시를 고려하였으며 가정사고로는 발생확율과 발생시 피해정도를 동시에 고려하여 가장 큰 값을 나타내는 CCM외부로의 유리용탕 누출사고를 가정하였다. 이때의 차폐체로는 경제성과 열저항성이 뛰어난 콘크리트를 고려하였다. [6]

또한 내부 차폐에 대해서는 정상운전시를 고려하여 외벽의 두께와 HOPPER의 차폐체 두께의 변화에 따른 선량변화를 살펴보았다.

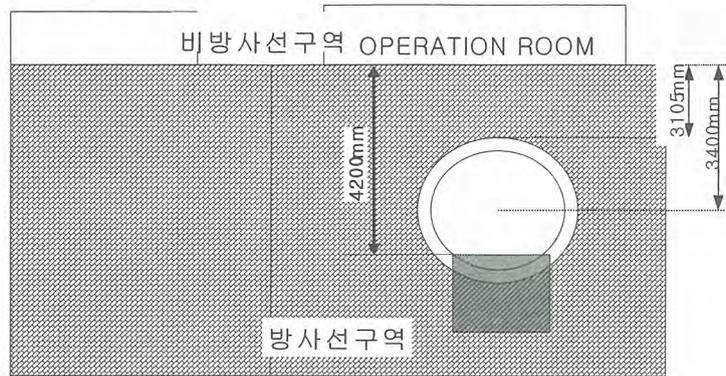


그림 5 유리화 시설 평면 개략도(Hopper 포함)

5. 결 과

5.1 외벽 두께의 분석결과

Hopper 차폐체의 콘크리트의 밀도는 기본 밀도인 2.35g/cc를 사용하였고, 두께는 20, 30, 40cm를 고려하였다. 외벽의 두께는 Hopper의 차폐체두께에 따라 많은 차이를 보임을 알 수 있다.

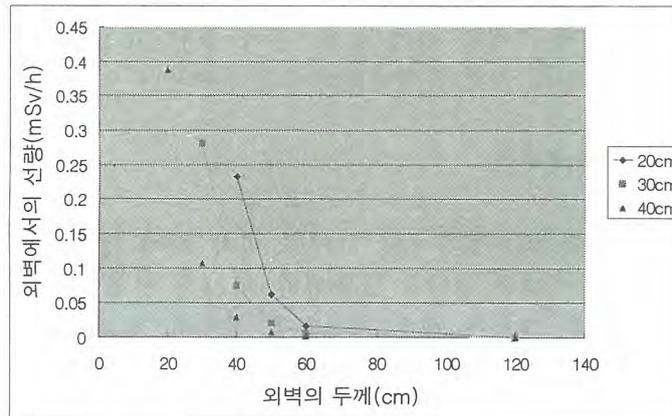


그림 6 사고시 Hopper 차폐체 두께와 외벽두께의 변화에 따른 선량의 변화

5.2 CCM과 Hopper의 차폐체 두께의 분석결과

그림 7, 8에서 보이는 바와 같이 시설내 전체 방사선 준위에 CCM의 차폐가 큰 영향을 미치지 못함을 알 수 있다.

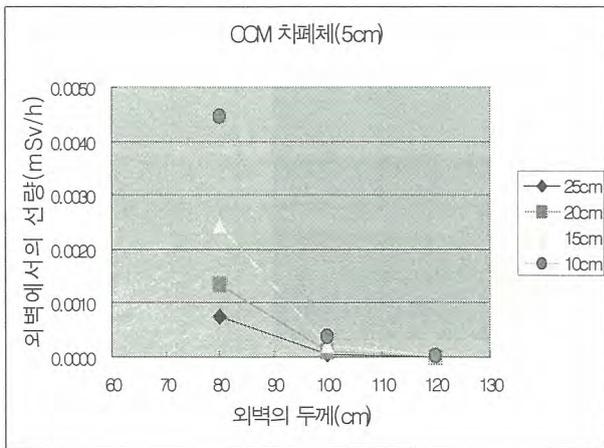


그림 7 Hopper 차폐체 두께와 외벽두께의 변화에 따른 선량의 변화(CCM 5cm)

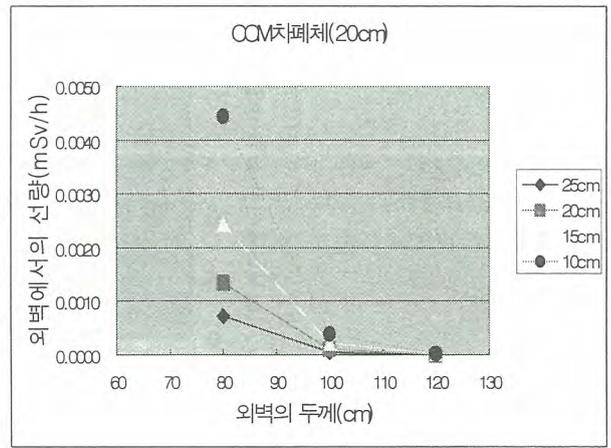


그림 8 Hopper 차폐체 두께와 외벽두께의 변화에 따른 선량의 변화(CCM 20cm)

따라서 외벽의 두께와 Hopper의 차폐 두께에 대해 민감도 분석을 실행해 보았다.

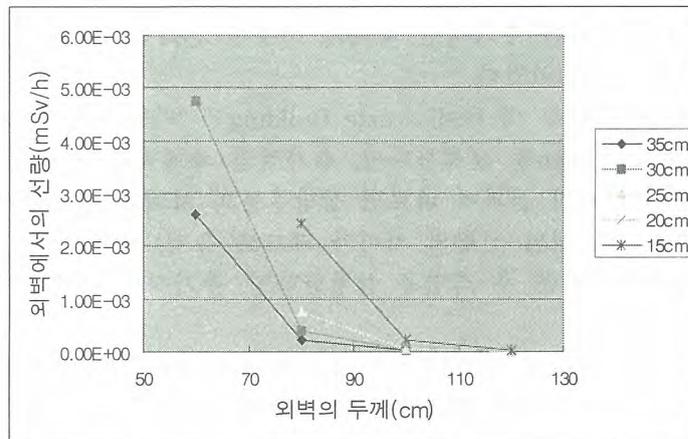


그림 9 Hopper 차폐체 두께와 외벽두께의 변화에 따른 선량의 변화

HOPPER의 차폐두께의 변화에 따라 외벽의 두께의 변화가 큼을 알수가 있다. 또한 외벽의 두께가 100cm가 넘을 경우 HOPPER의 차폐두께의 영향을 거의 받지 않음을 확인할수 있다.

또한 HOPPER의 차폐에 따른 실증 시설내 선량준위의 변화를 평가해 보았다.(그림10)

HOPPER 차폐체의 두께에 따라 거의 일정하게 실증시설 내부의 선량이 감소되어지는 것을 확인할수 있다.

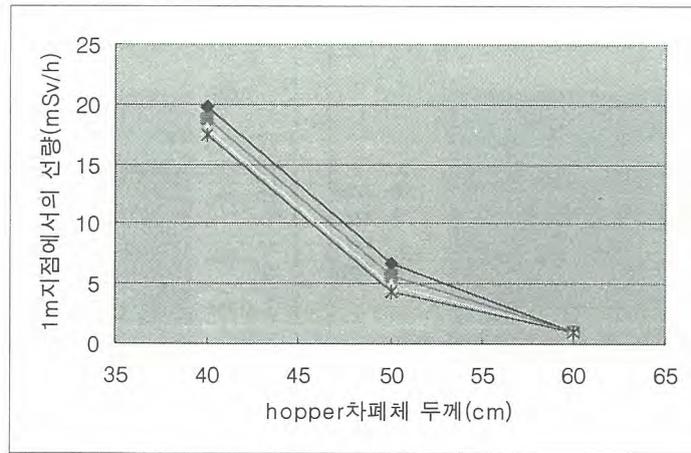


그림 20 Hopper차폐체의 두께 변화에 따른 시설 내부의 선량 변화

6. 결론 및 고찰

외벽의 두께를 100cm이상으로 한다면, 실증설비 구역외부로의 방사선적 영향은 거의 없음을 확인할수 있었다. HOPPER주위에 추가적인 차폐가 이루어 진다면, 외부 벽의 두께는 훨씬 감소되어 질수 있음도 역시 확인할수 있었다.

또한 본 시설이 설치될 발전소 내 Radiowaste Building은 벽의 두께가 약 1m이상 되므로[4] 건물의 벽 뒤편에 Operation Room을 설치한다면, 추가적인 차폐벽의 설치가 불필요할 것으로 예상된다. 시설내부에 대한 선량평가 결과에 따르면 상당부분의 차폐가 필요할것으로 예상되나 본 시설은 가동 중 시와 가동 중단시의 선량의 차이가 크므로 유지, 보수시 CCM의 가동을 중단 시킨 후 작업을 하거나 Hopper를 비운 후 작업을 실행한다면, 추가적인 차폐는 불필요할것으로 사료된다.

또한 본 연구는 1000리터 크기의 HOPPER에 고준위 이온교환수지가 최대로 충전되었을때를 가정하였으므로, 정확한 평가를 위해서 HOPPER의 크기에 대한 확정된 스펙이 필요할 것으로 판단된다.

<감사의 글>

위 연구는 한수원(주)의 원자력환경기술원의 지원에 의해서 수행되었음.

<참고문헌>

- [1] 원자력환경기술원, 중·저준위 방사성폐기물 유리화 기술개발(1), 2000
- [2] 전력연구원, 중·저준위 방사물 유리화 기술개발 연구, 1997
- [3] 이창민 외 '중·저준위 방사성폐기물 유리화시설 내 CCM의 방사선원향 결정 및 차폐해석에 관한 연구, 추계원자력 학술 발표회 논문집, 2002
- [4] 한국전력공사, 울진원자력 5, 6호기 최종안전성분석보고서(FSAR), 2002
- [5] ICRP, 1990 Recommendation of the International Commission on Radiological Protection, ICRP 60, 1990
- [6] 한국과학기술원, 중·저준위 방사성폐기물 유리화시설의 경제성 분석 및 안전성 평가 시나리오 수립, 원자력환경기술원, 2002

A Study on Improvement of Scaling Factor Prediction Using Artificial Neural Network

Sang Chul Lee, Ki Ha Hwang, Sang Hee Kang and Kun Jai Lee

Department of Nuclear & Quantum Engineering
Korea Advanced Institute of Science and Technology

Abstract

Final disposal of radioactive waste generated from Nuclear Power Plant (NPP) requires the detailed knowledge of the natures and quantities of radionuclides in waste package. Many of these radionuclides are difficult to measure and expensive to assay. Thus it is suggested to the indirect method by which the concentrations of DTM (Difficult-to-Measure) nuclide is decided using the relation of concentrations (Scaling Factor) between Key (Easy-to-Measure) nuclide and DTM nuclide with measured concentrations of Key nuclide. In general, scaling factor is determined by using of log mean average (LMA) and regression. These methods are adequate to apply most corrosion product nuclides. But in case of fission product nuclides and some corrosion product nuclides, the predicted values aren't well matched with the original values. In this study, the models using artificial neural network (ANN) for C-14 and Sr-90 are compared with those using LMA and regression. The assessment of models is executed in the two parts divided by a training part and a validation part. For all of two nuclides in the training part, the predicted values using ANN are well matched with the measured values compared with those using LMA and regression. In the validation part, the accuracy of the predicted values using ANN is better than that using LMA and is similar to or better than that using regression. It is concluded that the predicted values using ANN model are better than those using conventional model in some nuclides and ANN model can be used as the complement of LMA and regression model.

1. Introduction

Final disposal of radioactive waste generated from Nuclear Power Plant(NPP) requires the detailed knowledge of the natures and quantities of radionuclides in waste package. But the determination of inventory of radioactive waste is accompanied with a number of problems. Representative sampling is very difficult or result in considerable radiation exposure to sampling personnel. Besides the quantities of most radionuclides except γ decaying nuclides are difficult to detect and expensive to assay. Thus it is suggested to the indirect method by which the concentrations of DTM(Difficult-to-Measure) nuclide is decided using the relation of concentrations (Scaling Factor) between Key (Easy-to-Measure) nuclide and DTM nuclide with measured concentrations of Key nuclide.

In general, scaling factor is determined by statistical processing using large amount of sample data gotten through radiochemical analysis. In this study, the data in EPRI-4037 is used [1]. The conventional methods for data processing to determine scaling factor are log mean average (LMA) and

regression. It is known that these methods are adequate to apply most corrosion product nuclides. But in case of fission product nuclides and some corrosion product nuclides, the predicted values aren't well matched with the original values. It is known that the conventional methods are inadequate to apply for C-14 and Sr-90.

In this study, the models using artificial neural network (ANN) for C-14 and Sr-90 are compared with those using LMA and regression. As a result, the possibility of application of ANN for SF determination method is assessed.

2. Conventional SF Determination Method

The conventional SF determination methods which are used largely are LMA and regression. LMA is easy to establish and to understand because the model has one parameter. But it is difficult to describe. The modeling equation of LMA is expressed as the following formula.

$$A_{\text{predicted}_i} = A_{\text{SF}} \times A_{\text{key}_i} \text{ -----(1)}$$

$$A_{\text{SF}} = e^{\left(\frac{\sum_{i=1}^N \text{Ln}(SF)_i}{N} \right)} = e^{\left(\frac{\sum_{i=1}^N \text{Ln}\left(\frac{A_{\text{DTM}_i}}{A_{\text{Key}_i}}\right)}{N} \right)} \text{ -----(2)}$$

- $A_{\text{predicted}_i}$: i^{th} predicted value of the activity of DTM nuclide
- A_{DTM_i} : i^{th} measured value of the activity of DTM nuclide
- A_{key_i} : i^{th} value of the activity of Key nuclide
- A_{SF} : log mean average of the SFs in the data set
- $(SF)_i$: i^{th} value of the scaling factor in the data set : $(A_{\text{DTM}_i} / A_{\text{key}_i})$
- N : number of values in the set

The kinds of regression model are various. In this study, a multiple intrinsically linear model is used [2]. Regression is easy to understand the effect of each variable and to describe. But it is necessary to predict the rough model before establishing the model. The modeling equation of regression is expressed as the following formula.

$$\text{Ln}(A_{\text{predicted}_i}) = \beta_0 + \beta_1 \text{Ln}(A_{\text{Key}_1i}) + \beta_2 \text{Ln}(A_{\text{Key}_2i}) \text{ ----- (3)}$$

- $A_{\text{predicted}_i}$: i^{th} predicted value of the activity of DTM nuclide
- A_{DTM_i} : i^{th} measured value of the activity of DTM nuclide
- A_{key_1i} : i^{th} value of the activity of the 1st Key nuclide
- A_{key_2i} : i^{th} value of the activity of the 2nd Key nuclide
- $\beta_0, \beta_1, \beta_2$: parameters to describe the regression models

3. Artificial Neural Network

Artificial neural network (ANN) is a method of data processing. It is inspired by the structure of the brain and utilizes a parallel processing structure [3]. In general, ANN is used to solve complex non-linear problems. ANN is divided by various classifications. Multilayer perceptron (MLP) is widely used in area of data processing. The basic structure of MLP is shown in Figure 1. ANN cannot be used until it is trained. The purpose of training is to determine the unique weighting factor associated with each connection. Initially, weighting factors are assigned arbitrary values. The weighting factors change during the training phase. Once training is over, the weighting factor becomes fixed. In Figure 1, the inputs are multiplied by weighting factors and the products are summed. The sum of the products changes into a non-linear shape by a transfer function. The former sum is a combination function and the latter transfer function is an activation function. A combination function and an activation function are very important factors to determine the characteristic of ANN with the number of hidden layers and hidden nodes. In this study, a linear function is used as a combination function and a hyperbolic tangent sigmoid function as an activation function.

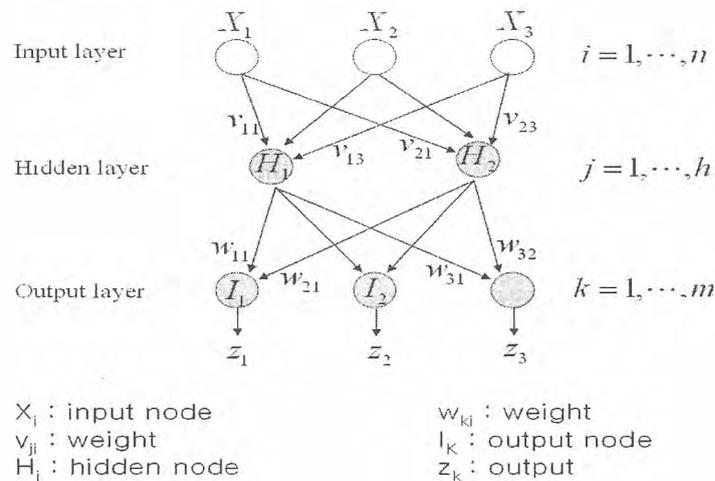


Figure 1. the structure of MLP

4. Application of SF determination

The models using ANN for C-14 and Sr-90 are compared with those using LMA and regression. Co-60 and Cs-137 are used as Key nuclides and the data in EPRI-4047 as raw data for the assessment. The assessment of models is executed in the two parts divided by a training part and a validation part [4, 5]. 80% of the raw data is used for training and 20% of them for validation. The summary of the models used for the comparison are shown in Table I.

Table I. the summary of LMA, regression and ANN models

<p>Log mean average</p> <ul style="list-style-type: none"> ■ Classification by Stream ■ Key nuclides : Co-60, Cs-137 (2 models) ■ Each SF for each stream 	<p>Artificial neural network</p> <ul style="list-style-type: none"> ■ Model : Multilayer Perceptron ■ Combination function : Linear function ■ Activation function : Hyperbolic Tangent sigmoid ■ Input node(3) : Stream No., Co-60, Cs-137 ■ Hidden layer : 10, 6X4 (2 models) ■ Target node(1): C-14 (or Sr-90)
<p>Regression</p> <ul style="list-style-type: none"> ■ Multiple Linear Intrinsically Regression (1 models) ■ Three dependent variable : Co-60, Cs-137, Stream No. 	

The root mean squared error (RMSE) is used as the method for the assessment of models. RMSE represents the difference between predicted values and measured values for each model. RMSE is shown by Equation (4).

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N \{Ln(A_{PDi}) - Ln(A_{MSi})\}^2}{N}} \quad \text{-----(4)}$$

A_{PDi} : i^{th} predicted value in a data set
 N : number of values in the set

A_{MSi} : i^{th} measured value in a data set

4.1 C-14

Figure 2 shows the scatter plot between the predicted values for the concentration of C-14 and the measured values for each model in a training part and Figure 3 shows in a validation part.

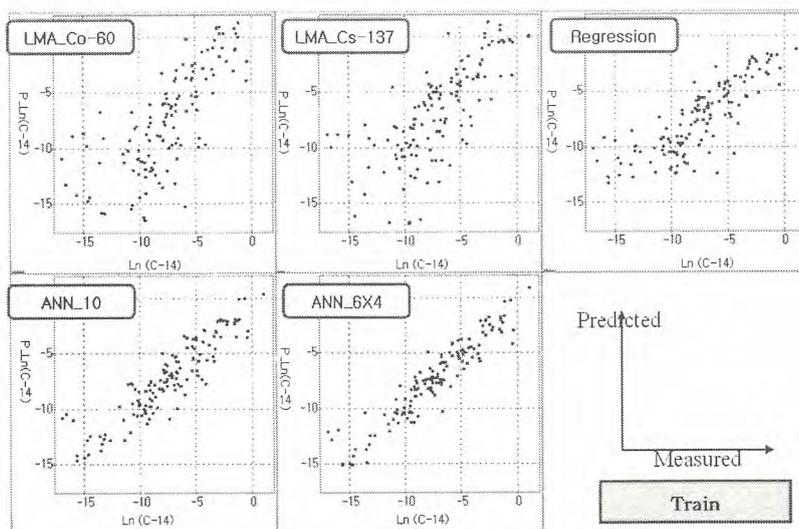


Figure 2. the scatter plot between the predicted values for concentration of C-14 and the measured values for each model in a training part

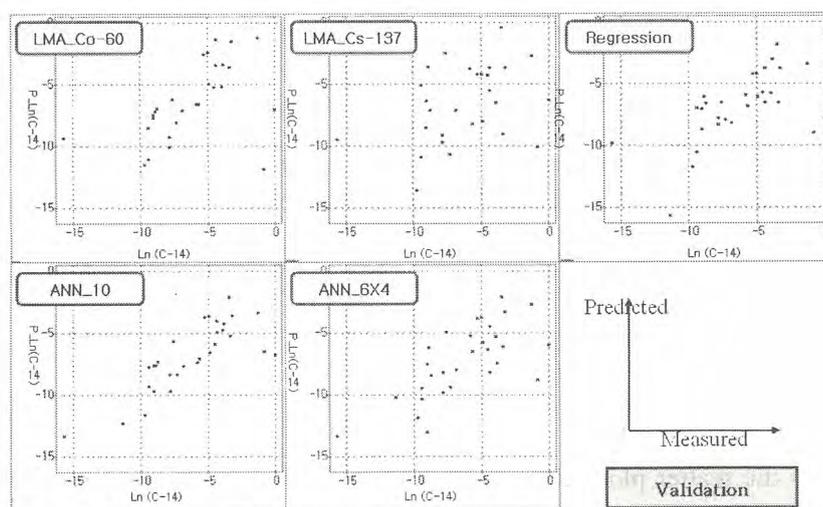


Figure 3. the scatter plot between the predicted values for concentration of C-14 and the measured values for each model in a validation part

4.2 Sr-90

Figure 4 shows the scatter plot between the predicted values for the concentration of Sr-90 and the measured values for each model in a training part and Figure 5 shows in a validation part.

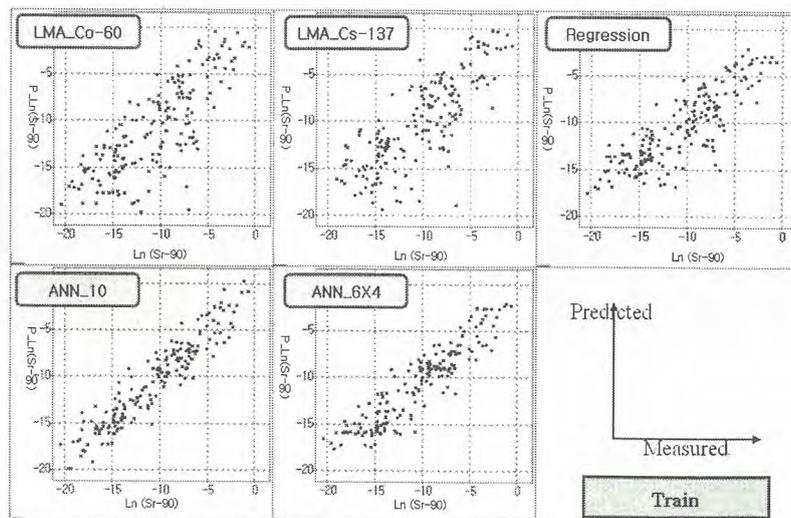


Figure 4. the scatter plot between the predicted values for the concentration of Sr-90 and the measured values for each model in a training part

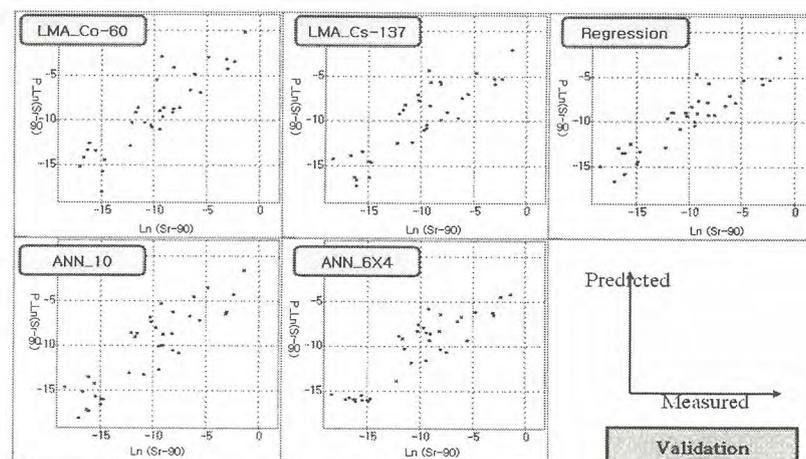


Figure 5. the scatter plot between the predicted values for the concentration of Sr-90 and the measured values for each model in a validation part

5. Results

In the training part of C-14, the model using ANN of which the hidden layer consists of 6 X 4 hidden nodes results in the best predicted values and in the validation part, the model using ANN of which the hidden layer consists of 10 hidden nodes does. In the training part of Sr-90, the model using ANN of which the hidden layer consists of 10 hidden nodes results in the best predicted values and in the validation part of Sr-90, the model using ANN of which the hidden layer consists of 6X4 hidden nodes does. Figure 6 compares the RMSE for each model.

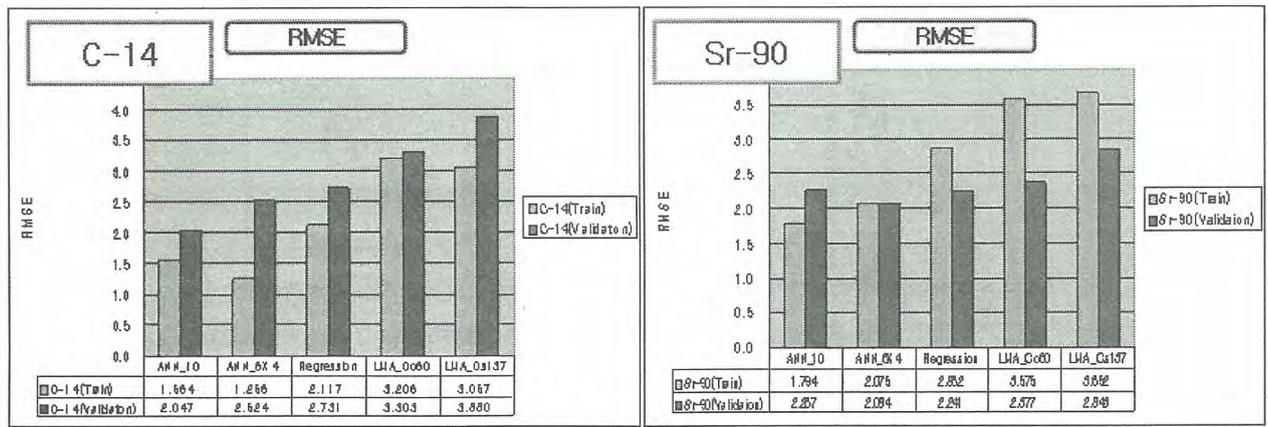


Figure 6. the RMSE for each model

6. Conclusion

For all of two nuclides in a training part, the predicted values using ANN are well matched with the measured values compared with those using LMA and regression. In a validation part, the accuracy of the predicted values using ANN is better than that using LMA and is similar to or better than that using regression. It is concluded that the predicted values using ANN model are better than those using conventional model in some nuclides and ANN model can be used as the complement of LMA and regression model.

Acknowledgments

This study was financially supported by KHNP

References

- [1]. EPRI NP-4037, "Radionuclide Correlations in Low-Level Radwaste" (1985)
- [2]. Anthony J.Hayter, "Probability and Statistics for Engineers and Scientists", pp 550-565, Duxbury(2002)
- [3]. Dae Su Kim, "The Theory and Application of Neural Network"(in Korea), Hi-Tech Information(1992)
- [4]. Hyun Chul Kang, "The Data Mining using SAS Enterprise Miner"(in Korea), pp 233-240, JaYoo Academy(2000)
- [5]. KuK Yeol Choi, " SAS Language and Analysis of Data"(in Korea), pp 161-168, Kyu Woo Sa(2001)

월성 삼중수소 저장 시설 안전성 평가를 위한 시간에 따른
삼중수소 농도 평가

Evaluation of Time Dependent Tritium Concentration for Safety
Analysis in Wolsong Tritium Removal Facility

육대식, 이건재
한국과학기술원
정홍석
한국원자력연구소

요 약

본 연구의 목적은 월성의 삼중수소 저장 시설의 안전성 평가를 위해 개발 중인 환경영향 평가 코드의 시간에 따른 삼중수소 농도를 기존의 연구 결과와 비교하여 신뢰성을 높이기 위해 수행되었다. 그 결과 삼중수소 저장시설이 2005년에 가동된다고 가정 하였을 때 가동시점에서의 월성 발전소 내의 삼중수소의 농도는 각 호기별로 60.9Ci/kg, 36.3Ci/kg, 30.0Ci/kg, 26.5Ci/kg로 기존의 문헌 결과 값과 거의 일치하는 결과를 얻었다. 그러나 TRF 시설의 가동에 따른 발전소별 농도 감소 속도는 기존 문헌 보다 더 빨리 감소하는 결과를 얻었으며 최종적으로는 각 발전소별 감속재 내의 삼중수소의 농도가 10Ci/kg 이하로 떨어지는 것은 같음을 확인 할 수 있었다.

Abstract

The objective of this study is to improve the reliability of the safety evaluation code for Wolsong Tritium Removal Facility(WTRF) which is on the development for environmental assessment. To achieve this, tritium concentrations calculated in the Wolsong Units of this study are compared with that of the existing reference. As the result, the tritium concentration in each Wolsong nuclear power plant unit just before operating WTRF is 60.9Ci/kg, 36.3Ci/kg, 30.0Ci/kg, 26.5Ci/kg under the assumption that the WTRF begins operation in 2005, respectively. This result is almost same with that of the existing reference. But the reducing rate of tritium concentration in the moderator is faster than that of the reference result. Finally it is expected to drop below 10Ci/kg after WTRF operation. And this result is also similar with that of the existing reference.

1. 서 론

현재 월성에서는 4기의 중수로형 원전이 가동중에 있다. 중수형 원자로는 경수형 원자로에 비하여

삼중수소의 생성이 약 100배 정도 더 높은 것으로 알려져 있다[1]. 이에 따라 한국수력원자력 회사는 월성 원전 부지에 삼중수소제거설비를 건설하겠다고 천명한 바 있으며 현재 2005년 가동을 목표로 건설 중에 있다. 또한 이에 따라 월성원전 삼중수소제거설비 안전성분석 보고서가 작성되었다[2]. 현재의 안전성 평가는 가상사고시 글로브 박스 내의 삼중수소만이 누출 될 수 있는 것으로 가정하고 있으며 TRF 저장 시설의 지하에 보관되는 삼중수소 저장 용기로부터의 누설은 없는 것으로 가정하고 있다. 그러나 현재 한국과학기술원에서는 예기치 않은 가상사고 발생시 글로브 박스 내의 삼중수소뿐만 아니라 이러한 삼중수소 저장 시설 지하에 저장되는 삼중수소의 누출까지도 고려 할 수 있는 전산 코드를 작성 중에 있다. 이 전산 모사 코드는 TRF 시설내에 저장되는 삼중수소의 농도변화를 시간에 따라 예측하고, 이러한 삼중수소의 농도를 선원향으로 하여 가상사고 발생 시점에 따른 주민 피폭 선량 평가를 모사 할 수 있는 전산 코드로써 다양한 시나리오에 따라 기존의 안전성 평가에서 제시하는 여러 가상사고 뿐만 아니라, TRF 저장 시설 지하에 저장된 삼중수소의 누출까지도 고려 할 수 있도록 하였다. 이러한 연구의 일환으로 본 논문에서는 월성 각 호기별 시간에 따른 삼중수소 농도의 변화를 예측하고 TRF 저장 시설에 저장될 삼중수소의 농도 또한 예측하여 기존의 문헌 연구 결과[3]와 비교하여 작성중인 전산 코드의 신뢰성을 높이고자 한다.

2. 본 론

2.1 월성 원전의 삼중수소 농도 예측 [4]

본 연구에 사용된 전산 모사 코드는 참고문헌 [4]에서 제시한 월성원전내 삼중수소 농도 예측 모델 및 시나리오를 활용하여 포트란 언어로 작성하였으며, 전산 모사의 흐름도는 그림 1에 나타내었다. TRF의 운전 시나리오는 TRF에서 처리된 중수의 삼중수소 농도가 냉각재의 삼중수소 농도보다 높을 경우, 냉각재로 사용할 수 없기 때문에 감속재로 공급하는 운전방식으로 운용되다가 냉각재 내의 삼중수소의 농도 보다 작아지면 중수를 냉각재로 보내는 방식을 택하였다. 즉 TRF에서 처리된 중수의 삼중수소 농도가 냉각재의 삼중수소 농도보다 높은 경우의 중수의 흐름은 「감속재 → TRF → 감속재」 이고, TRF에서 처리된 중수의 삼중수소 농도가 냉각재의 삼중수소 농도보다 낮아지는 시점이후에는 중수 흐름이 「감속재 → TRF → 냉각재 → 감속재」로 변경된다. 이를 운전 방식 I과 운전 방식 II로 구분한다. 그 결과 값은 그림 2와 그림 3을 통해 각 호기별 감속재 및 냉각재에서의 삼중수소 농도로써 나타내었다.

2.2 TRF 저장 시설에 저장되는 삼중수소 농도 예측

TRF 저장 시설에 저장되는 삼중수소의 농도는 다음과 같이 표현 될 수 있다.

$$\frac{dA_{TRF}}{dt} = \frac{\lambda}{3.7 \times 10^{10}} \cdot N_m \cdot \left(1 - \frac{1}{DF}\right) \cdot TF \cdot a_T \quad (1)$$

여기서,

A_{TRF} : TRF저장시설내의 삼중수소 농도 [Ci]

λ : 삼중수소의 붕괴상수 [sec^{-1}]

N_m : 월성 원전내 감속재내의 삼중수소농도 [#/ $\text{kg-D}_2\text{O}$]

DF: 탈삼중수소 율 [-]

TF: TRF 처리량 [kg/sec]

a_T : TRF 가동율 [-]

참고 문헌 [3]에서 제시한 월성 원전의 감속재내 농도 예측 식의 결과 값을 식 (1)에 적용하여 시간에 따른 TRF 저장 시설내에 저장될 삼중수소 농도를 예측하였다. 또한 TRF 시설에 저장되는 삼중수소는 TRF 시설의 운전기간인 40년간 축적되어 저장되기 때문에 삼중수소의 반감기를 고려하여 총 저장량을 계산하여야 한다. TRF 저장 시설내 축적되는 총 삼중수소량은 다음과 같이 표현된다.

$$A_{tot-TRF} = \sum_{k=1}^N N_{TRF}(k) \cdot \exp(-\lambda \cdot t_{(N-k+1)}) \quad (2)$$

여기서,

$A_{tot-TRF}$: TRF 저장시설에 저장되는 총삼중수소양[Ci]

$N_{TRF}(k)$: 각 시간대별 TRF 저장 시설에 저장되는 삼중수소 [Ci]

t : 시간[sec]

식 (1) 과 식 (2)에 의해서 계산된 월별 삼중수소의 농도 및 그에 따른 소요 저장 용기의 소요량을 그림 4에 나타내었다.

3. 결과 및 제언

본 연구에서 사용된 삼중수소 생성 및 TRF 운전에 따른 제거 시나리오는 월성 1호기에 대해서 TRF 시설을 우선 적용한 후에 1호기 감속재 농도와 2호기 감속재 농도가 같아지면 TRF 시설의 처리 용량을 반으로 나누어 1호기와 2호기를 처리하는 운전 시나리오를 따른다. 또한 다시 1,2호기의 감속재내의 삼중수소 농도가 3호기와 같아지면 TRF 시설의 처리 용량을 1/3로 나누어 각각의 호기별 감속재 농도를 감소시켜, 최종적으로는 월성의 4기의 발전소 감속재의 농도를 균일하게 낮추는 방식을 채택하였다. 본 시나리오는 참고문헌 [3]에서 제시하는 8가지 시나리오 중의 일부로써 채택되어 있어 그 결과 값의 비교가 가능하다. 참고문헌에서 제시한 결과 값이 그래프를 통해서 제시되어 있기 때문에 정량적인 비교는 불가능 하지만 정성적으로 비교했을 때 TRF 가동 전 감속재 내의 삼중수소 농도나 최종적으로 감소후의 감속재 내의 삼중수소 농도는 거의 일치하는 것을 확인 할 수 있었다. 그러나 삼중수소의 감소 속도에서는 본 연구를 통해서 수행한 결과가 더 빠르게 나타났다. 이러한 결과는 같은 방법론과 시나리오를 채택하였다 하더라도 그 방법론을 구체적으로 구현하는 전산 모사의 방법 차이에서 발생하는 것으로 판단되어 진다. 특히 냉각재 내에서의 삼중수소 농도 감소 형태는 기존의 참고 문헌과 많은 차이를 보이고 있어 추후 좀더 세밀한 비교 평가가 필요한 것으로 나타났다. 구체적으로 결과 데이터를 비교해 보면 참고 문헌에서는 초기 감속재내 삼중수소의 농도로 1호기 62Ci/kg, 2호기 38Ci/kg, 3호기 31Ci/kg, 4호기 29Ci/kg을 제시하였으며 본 연구 결과는 60.9Ci/kg, 36.3Ci/kg, 30.0Ci/kg, 26.5Ci/kg의 결과 값을 산출하여 거의 일치하고 있음을 알 수 있었다. 그러나 감속재 내 삼중수소의 농도가 10Ci/kg 이하로 떨어지는 시기에 대해서는 참고문헌에서는 대략 2010년 이후를 제시하고 있으나 본 연구 결과는 2009년도 하반기 정도면 10 Ci/kg 이하로 도달 할 수 있는 것으로 계산되어 차이를 보이고 있었다. 감속재 내에서의 삼중수소 농도가 급격히 감소 한다는 것은 TRF 저장 시설에 저장되는 삼중수소의 양이 기존의 문헌에서 제시하는 양보다 더 많아 진다는 것을 의미하기 때문에 추후 환경영향 평가를 위해서 사용될 선원항 으으로써의 삼중수소의 양이 보수적인 값을 갖게 됨을 알 수 있었다.

4. 감사의 글

본 연구는 과기부의 원자력 중장기 연구개발 사업의 일환으로 수행되었으며, 본 연구와 관련하여 많은 조언을 해주신 한전 전력연구원의 손순환 부장님과 송규민 박사님께 감사를 드린다.

5. 참고 문헌

- [1] NCRP Report No. 62, "Tritium In The Environment", 1979
- [2] 한국수력원자력(주), "월성원전 삼중수소제거설비(TRF) 안전성분석 보고서"
- [3] 송규민 외, "WTRF 가동에 따른 월성 원전 계통내 삼중수소 농도변화 및 제거량", 2003 추계 학술발표회 논문집, 대한방사선방어학회, 2003
- [4] 송규민 외, "Parameter Analysis를 통한 월성 삼중수소 제거시설의 설계요건 분석", TM.96NJ18.R1998.200, KEPRI, 1998

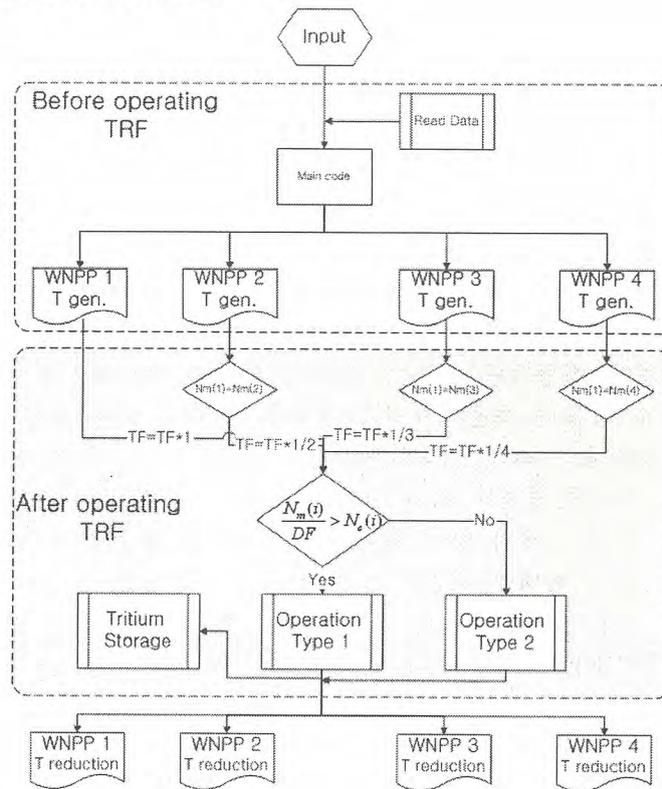


그림 1. 삼중수소 생성 및 제거에 따른 농도 계산 전산 코드 흐름도

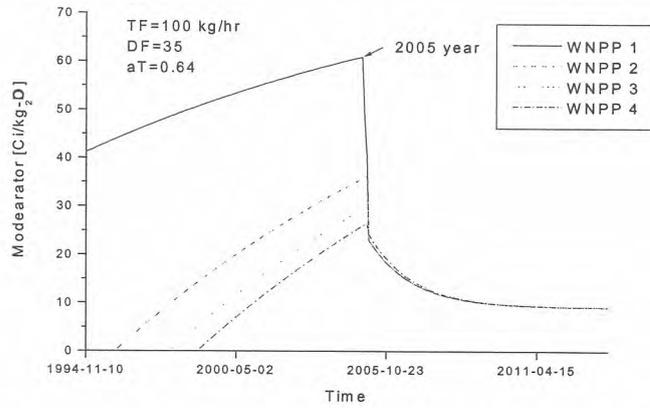


그림 2. TRF 가동에 따른 각 호기별 월별 감속재내의 삼중수소 농도 변화

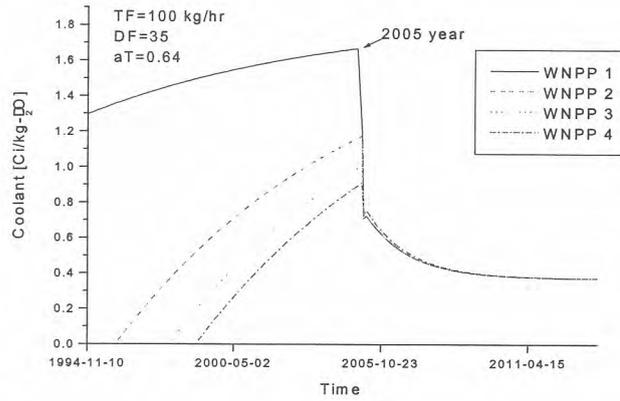


그림 3. TRF 가동에 따른 각 호기별 월별 냉각재내의 삼중수소 농도 변화

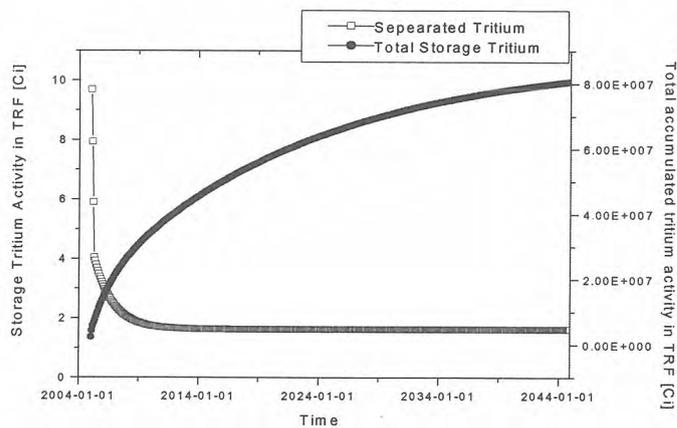


그림 4. TRF 가동에 따라 소요되는 월별 삼중수소 저장 용기 소요량과 TRF 시설에 저장되는 삼중수소의 전체 양

바코드 라벨의 방사선 조사시험

Irradiation Test of Bar Code Label

배상민, 이강무, 손종식, 홍권표,
한국원자력연구소
고병령
한국원자력기술주식회사

요 약

바코드 라벨의 방사선 조사 시험은 방사성폐기물 용기에 부착할 바코드 라벨의 방사선 환경 하에서의 영향을 판단하기 위하여 수행하였다. 중·저준위 방사성 폐기물은 원자력법에 의하면 총 방사능량이 4,000 Bq/g 미만을 말한다. 방사성 폐기물 용기의 외부에 부착할 바코드 라벨이 받게 되는 방사선 조사선량은 MCNP-4b Computer Code에 의하여 계산하였다. Co-60과 Cs-137 핵종들은 총 방사능에 50%씩 기여한다고 가정하였다. 용기와 바코드 라벨의 제원에 의하여 실제의 최종 방사선 조사선량을 계산하였다. 바코드 판독기를 이용하여 바코드 라벨의 인식률과 외관점검을 수행한 결과 코팅된 바코드 라벨은 중·저준위 방사성 폐기물 용기에 사용하기에 적합하였다.

Abstract

The irradiation test of bar code label tagged on radioactive waste container was done to determine the effect of radiation. Low and medium radioactive waste is that below total activity of 4,000 Bq/g according to the Korean nuclear law. The irradiation amount to radiate bar code label tagged on radioactive waste container was calculated by MCNP-4b computer code. The nuclide such as Co-60 and Cs-137 was assumed to contribute 50% of total activity. Real irradiation amount for bar code label was finally calculated by the dimensions of the container and the bar code label. The identification of post and the physical deflection of irradiated bar code label was tested by the bar code reader. The coated bar code label was suitable to use on low and medium radioactive waste container.

1. 서 론

미국(다수 처분장 Low Track 프로그램), 프랑스(Andra 처분장), 영국(다수 처분장, WITS 프로그램), 체코(Mochovce 처분장) 등의 방사성 폐기물의 처분장에서는 바코드 라벨을 중·저준위 방사성 폐기물 용기에 부착하여 조회와 검사를 수행하고 있다. 바코드 라벨을 중·저준위 방사성 폐기물 용기에 부착하려면 라벨에 대한 중·저준위 방사선에 대한 검증이 필수적이다. 라벨은 일반

종이에서 코팅 라벨까지 여러 종류가 있으나 영하 50도에서 영상 300도까지 견디고 습도에 강한 반영구적인 코팅라벨이 가장 우수한 물리적 성질을 지니고 있다. 그러나 코팅 라벨에 대한 방사선 검증이 이루어지지 않았으므로 중·저준위 방사성 폐기물에 적용하기 위한 바코드 라벨의 방사선 조사 시험을 수행하였다. 원자력법은 중·저준위 방사성 폐기물을 총 방사능량이 4,000 Bq/g 미만으로 정의하고 있다. 따라서 용기 외부에 부착될 라벨이 받게 될 선량은 용기의 표면적 대비 라벨의 표면적으로 계산하여야 한다. 또한 Co-60과 Cs-137 핵종이 총 방사능에 50%씩 기여한다고 가정하였다. 바코드 라벨이 받게 될 선량은 MCNP-4b Computer Code를 이용하였다. 바코드 라벨에 감마선 조사장치를 통해 조사시키기 위하여 조사거치대를 제작하였고 조사거리를 설정한 후 조사 시스템 배치를 하였다. 조사시간은 계산된 선량을 토대로 산출하였으며, 정확한 조사시간은 타이머에 의하여 설정하였다.

2. 조사시험

2.1 환경

바코드 코팅라벨은 13종으로 크기는 6.5 cm × 2.4 cm, 두께는 0.017 cm이다. 조사실 환경은 국가 교정기관 인정제도운영세칙 별표 5에 규정된 측정분야별 환경기준에 따라 온도는 23 ± 2 °C (온도변화율 : 1.5 °C/h), 습도는 55%RH 이하, 압력은 부압을 유지하였다. 조사를 위한 바코드 라벨 거치대를 그림 1과 같이 제작하였고 조사지점의 조사 빔의 입사방향과 수직이 되도록 하여 그림 2와 같이 거리 이송장치에 부착하였다. 감마선 조사장치에 사용된 선원은 Cs-137이며, 그 특성은 표 1과 같다.

표 1. 선원의 특성.

Nuclide	Cs-137
Mass Difference	-86.9
Type of Decay	β^-
Half-Life	30.0 y
Major Radiation, Energies(MeV), and Frequency per Disintegration(%)	β^- : 1.174max(5%) 0.512max(avg 0.173) (95%) γ : 0.662 (85%, ^{137m}Ba), Ba X rays e^- : 0.624, 0.656

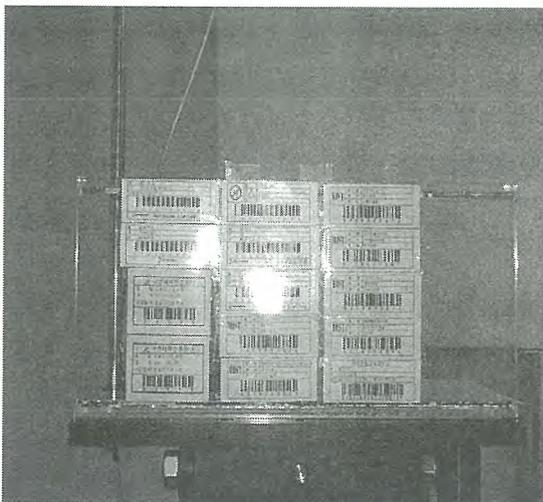


그림 1. 바코드 라벨 거치대.

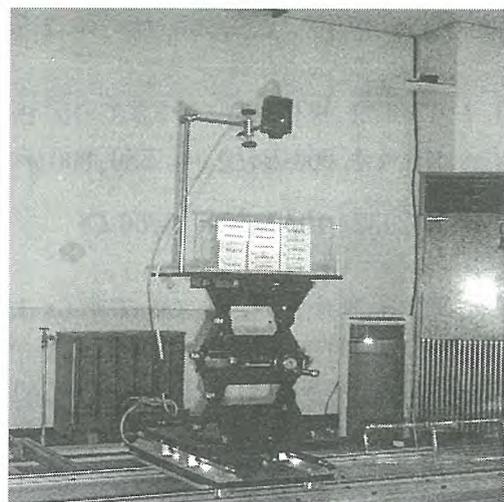


그림 2. 조사 장치.

조사시험에 사용된 기준 감마선 조사장치의 성능은 표2와 같다.

표 2. 감마선 조사장치의 성능.

구 분	성 능
조사범위	0.42 mSv/h ~ 17.33 mSv/h (주변선량당량율)
비임 균질도	유효 빔 크기 범위에서 ± 5% 이하
조사장의 재현성	± 0.6% 이하
산란선 기여도	일차 빔(Primary beam)의 5% 이하
선원이동시간	총 조사시간의 ± 0.1 % 이하

2.2 조사시험

조사시험을 위하여 그림 3과 같이 라벨거치대에 부착된 라벨 균의 중심점을 감마 비임의 중심점과 일치시키고 유효 빔 영역이 라벨 전체 균을 포락할 수 있도록 설정하였다.

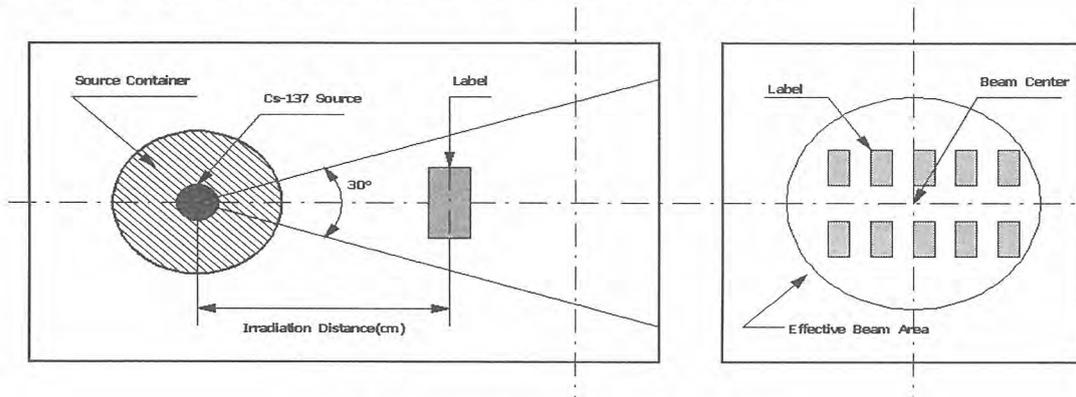


그림 3. 바코드 라벨 조사시험 배치도.

방사선원은 드럼 내부로 가정하면 방사선원의 형태는 실린더 모양의 체적 선원이 된다. 고화체의 부피(V_s)는 $200,000 \text{ cm}^3$ 이고, 고화체의 밀도(ρ_s)는 2.754 g/cm^3 이므로 고화체의 무게(M_s)는 $550,800 \text{ g}$ 이다.

$$M_s = V_s \times \rho_s = 200,000 \text{ cm}^3 \times 2.754 \text{ g/cm}^3 = 550,800 \text{ g} \text{ -----식 1}$$

따라서, 드럼 내 총 방사능(A_s)은 $2.2032 \times 10^9 \text{ Bq}$ (0.06 Ci)로 계산된다.

$$\begin{aligned} A_s &= M_s \times 4,000 \text{ Bq/g} = 550,800 \text{ g} \times 4,000 \text{ Bq/g} \\ &= 2.2032 \times 10^9 \text{ Bq} = 0.06 \text{ Ci} \text{ -----식 2} \end{aligned}$$

고화체에 포함된 방사성 핵종은 Co-60과 Cs-137로 가정하였으며, 각 핵종은 총 방사능량에 50%씩 기여한다고 가정하였다. 따라서 각 핵종에 의한 방사능량을 각각 0.03 Ci로 가정하였다. 위에서 구한 두 핵종의 방사능량을 이용해서 표 3과 같이 MCNP 계산에서 사용할 Multiplier(M)를 계산하였다.

표 3. MCNP-4b 계산에 사용한 핵종의 방사능량 및 Multiplier.

핵종	방사능 [Ci]	에너지 [MeV]	방출비 [photons/decay]	S _i [photons/sec]
Co-60	0.03	1.173	1.0	1.1100×10 ⁹
		1.332	1.0	1.1100×10 ⁹
Cs-137	0.03	0.662	0.85	9.4350×10 ⁸
				3.1635×10⁹

MCNP-4b 계산에서 폐기물 드럼 외부에 부착된 라벨의 부피에 대해 F4 Tally를 사용했으며, 위에서 계산한 광자속(ϕ)에 광자속과 방사선량을 전환인자(Photon Flux-to-Dose Rate Conversion Factor)를 적용해서, 등가선량(Dose Equivalent)을 계산하였다.

$$H [mSv/hr] = \phi [photons/cm^2] \times M [photons/sec] \times DCF \left[\frac{rem/hr}{photons/cm^2sec} \right] \times 10 \left[\frac{mSv/hr}{rem/hr} \right] \text{-----식 3}$$

여기서, ϕ : 광자속, M : 승수, DCF : 광자속과 방사선량 전환인자
계산 결과 드럼 외부에 부착된 라벨은 앞에서 가정한 조건하에서 시간당 0.0256 mGy의 선량을 흡수한다. 유효 비임 영역과 빔 균질도를 고려하여 조사거리를 300 cm로 고정하였다. 선량률-거리 관계식에서 300 cm 인 경우 공기 커마율은 37.75 μ Gy/h 이다.

$$\dot{K} = 10^{6.57507} \cdot 300^{-2.01676} \cdot e^{-6.2714 \times 10^{-5} \cdot 90} = 37.75 \mu Gy/h \text{-----식 4}$$

MCNP-4b로 계산된 누적선량(4300.8 μ Gy)을 조사지점의 선량률(37.75 μ Gy/h)로 나누어 조사시간을 결정하였다. 실제 조사시간은 113.928 hr로 계산되었지만 보수적 관점에서 120 hr으로 결정하고 표 7에서와 보는 바와 같이 조사시간 계획을 수립했다. 조사시간은 조사장치 제어시스템의 일부인 타이머로서 설정하였다.

3. 결 론

조사시험을 마친 라벨의 결과 분석은 크게 판독성 및 육안점검으로 실시하였다. 판독성의 경우 바코드 판독기를 이용해 라벨의 형상에 따른 조사 전·후의 라벨의 바코드 인식률을 확인했고, 육안점검의 경우는 표 4와 같이 조사 전·후 방사선에 의한 외부변형, 즉 뒤틀림, 팽창, 색 변화, 두께 변화 등에 초점을 두어 분석하였다. 바코드 판독기는 CASIO Model DT-900M50E(Serial No. : 508487)를 사용하였다. 판독은 방사성 폐기물 용기의 형상에 따라 곧은 형태와 굴곡진 형태의 라벨로 수행하였다. 조사 전에는 곧은 형태와 굴곡진 형태에서 바코드를 100% 판독하였다. 조사 후에도 곧은 형태와 굴곡진 형태에서 바코드를 100% 판독하였다..

표 4 육안 점검 결과

분류 점검항목	조사 전	조사 후	비고
뒤틀림	없음	없음	육안 확인
팽창	없음	없음	조사 전 : 6.5 × 2.4 cm 조사 후 : 6.5 × 2.4 cm
색 변화	없음	없음	육안 확인
두께 변화	없음	없음	조사 전 : 0.017 cm 조사 후 : 0.017 cm

결과적으로 바코드 판독기를 이용하여 바코드 라벨의 인식률과 외관점검을 수행한 결과 코팅된 바코드 라벨은 중·저준위 방사성 폐기물 용기에 사용하기에 적합하였다.

참 고 문 헌

1. ASTM Standard E 1027 Standard Practice for Exposure of Polymeric Materials to Ionizing Radiation, 1992
2. ISO 4037-1 Part 1 : Radiation characteristics and production methods
3. ISO 4037-2 Part 2 : Dosimetry for radiation protection over the energy ranges 8 keV to 1.3 MeV and 4 MeV to 9 MeV
4. ISO 4037-3 Part 3 : Calibration of area and personal dosimetries and the measurement of their response as a function of energy and angle of incidence
5. KRIS, 측정불확도 표현지침, KRIS-99-070-SP
6. Using bar codes to manage radwaste in a nuclear power facility, CONF-880201, 1988
7. Bar-code automated tracking system, KCP-613-5425, 25p, 1994
8. Labelling of the spent fuel waste package. CONF-920430, 1992
9. Ray Want., Ubiquitous Electronic Tagging, IEEE Concurrency, 1999.

방사성 폐기물 처분장 부지·환경종합관리를 위한
지리정보 시스템 구축 방안

Strategy of the GIS establishment for Site and Environmental Data
Management for Radioactive Waste Repository

임용수, 박세문, 김창락
한국수력원자력(주), 원자력환경기술원

요 약

방사성 폐기물 처분장의 건설과 안전한 운영을 위해서 정부 관계기관은 인·허가를 위한 관련서류를 요구하고 있다. 이러한 인허가 요건을 만족시키기 위해 일반 및 방사선환경영향 보고서, 부지조사 보고서 및 안전성평가 보고서 등의 방대한 자료가 생산된다. 따라서 이들 자료들은 부지조사 단계에서부터 효율적으로 수집되고 관리되어야 할 필요가 있다. 특히 방사성 폐기물 처분장의 경우에는 처분장 폐쇄 후에도 장기적인 안전성 관리가 요구되는바 감시망의 운영이 필요하며 이를 통해 향후에도 환경 관련 자료들의 지속적인 도출과 함께 시설의 효율적인 관리를 위해 이들 data의 체계적인 수집 및 관리가 요구된다. 이러한 필요성에 따라 원자력환경기술원에서는 데이터베이스와 이러한 데이터베이스를 토대로 전산분석을 수행할 수 있는 SITES (Site Information and Total Environmental Data Management System) 프로그램을 개발하고 있다. 본 논문에서는 SITES 개발을 위해 도출된 지리정보 시스템 구축 방안에 대하여 보고하고자 한다. SITES에 포함될 지리정보시스템 개발의 첫 단계로서 SITES의 데이터베이스 연계를 위한 지리정보시스템의 기본 개념 및 기능과 주제도면의 선정, 관리 및 자료 분석 방안과 함께 개발이 진행 중인 SITES와의 연계방안에 대해서 기술하고자 한다.

Abstract

For the safe management of radwaste repository, data of the site and environment have to be collected and managed systematically. Particularly, for the radwaste repository, which has to be institutionally controlled for a long period after closure, data will be collected and maintained through the monitoring programme. To meet this requirement, a new programme called "Site Information and Total Environmental data management System (SITES)" is being developed.

In this study, as the first stage of GIS(Geographic Information System) development that will be embedded in SITES, the scope and function of GIS are issued. Methodology for the Selection and management of thematic maps is studied as well.

1. 서 론

원자력 발전소를 비롯한 사용 후 핵연료 중간저장 시설, 중·저준위 방사성폐기물 처분장 등의 원자력 관계시설들은 과학기술부 고시 및 환경부 고시 등의 관련 법규에 의거하여 부지 및 환경에 대한 다양한 평가 및 감시들이 이루어져야만 한다. 이러한 부지·환경의 지속적인 감시·평가와 공개는 원자력 관계시설들의 인허가를 위한 법적 요건뿐만 아니라 시설의 효율적 관리와 원자력 산업에 대한 국민 이해 증진을 위해서도 이루어져야 할 것이다.

부지 및 환경 감시 프로그램의 공간적, 시간적 대상 항목의 범위가 커질수록 수집·평가해야 하는 자료의 양이 방대해지며, 효율적인 자료의 관리가 어려워진다. 또한, 부지·환경의 안전성 평가를 위한 자료들은 서로의 복합적인 상관관계에 의해서 원하는 정보를 도출해내는 작업은 기존의 단순한 파일관리 시스템을 통해서는 한계점을 가질 것이다. 특히, 방사성폐기물 처분장의 경우, 건설 및 운영 기간뿐만 아니라, 폐쇄 후 제도적 관리 기간에 대한 지속적인 환경 감시와 평가가 이루어져야 하므로, 부지·환경에 대한 체계적인 데이터베이스의 구축 및 관리가 필요한 실정이다.

한편, 기존의 원자력발전소에 대한 안전성분석보고서 및 환경영향평가 보고서 등의 경우, 시설물 및 지역 정보, 환경정보 등에 대한 공간자료를 도면으로만 관리함으로써 인하여, 추가적인 자료의 이용 및 다양한 분석에 있어서 한계점을 가지고 있었다. 특히, 방사성폐기물처분장의 안전성 평가 체계 구축을 위한 항목들은 대부분 공간적인 위치와 관련된 도면 정보와의 연계가 필수적이다. 따라서 공간자료와 속성자료의 통합관리가 가능한 지리정보시스템(GIS)을 도입하거나 데이터베이스를 가시화하는 데이터베이스 관리 프로그램을 개발하여 기존의 속성 데이터베이스와 연동 시킴으로서 관련 자료의 효율적인 관리 방안을 모색하는 것이 중요하다.

본 연구에서는 방사성폐기물 처분장을 비롯한 원자력시설 부지·환경의 지속적이고 효율적인 감시 및 평가를 위한 부지·환경 종합관리 시스템(SITES: Site Information and Total Environmental Database Management System) 개발의 기반연구로써 부지·환경의 종합적인 관리를 위한 지리정보시스템 구축 방안에 대한 내용을 기술하였다. 우선, 지리정보시스템에 입력될 공간 자료인 주제도면의 선정과 분류, 자료 관리 방안, 자료 분석과 출력 방안에 대하여 기술하였다.

2. 지리정보시스템의 구축

지리정보시스템(Geographic Information System)은 공간좌표 또는 지리좌표에 참조된 자료를 다루는 것으로 모든 형태의 정보를 효율적으로 수집, 저장, 갱신, 처리, 분석, 표시하기 위해 구축된 하드웨어, 소프트웨어, 지리자료, 인적자원의 조직체라 정의할 수 있다. 지리정보시스템의 큰 특징은 속성정보에 공간관계를 부여하는 것이다. 각종 야외조사 및 실내시험에서 얻어진 공간자료는 위상관계, 토지이용, 경계영역, 샘플위치 등에 대한 정밀한 지도상의 위치로 표현될 수 있다. 즉, GIS는 공간정보와 속성정보를 연계하고 통합하여 관련 지역에 대한 보다 정밀한 도시 및 연구를 가능하게 한다. 특히, 원자력 시설의 경우, 지리적인 방사선 환경에 대한 모니터링에 있어서 이러한 중요성이 더욱 부각된다. 현재까지 원자력분야에서 지리정보시스템의 도입은 단편적으로 필요성 부각의 차원에서만 이루어진 상태이다. 따라서 본 연구에서는 방사성폐기물 처분장을 비롯한 원자력시설 부지·환경에 대한 감시 및 관리 체계를 구축하기 위하여 이러한 지리정보시스템을 도입하게 되었다.

지리정보시스템의 선정

지리정보시스템의 구축을 위해서는 공간 및 속성(비공간) 자료로 구성된 데이터베이스를 구축하

여야 한다. 하지만, 현재까지의 상용 GIS 제품군의 경우, 공간자료의 도시가 강조된 나머지, 속성 데이터의 관리에 있어서는 미흡한 실정이다. 특히, 도면으로 관리하기 때문에 파일 관리 시스템의 한계점을 그대로 가지고 있으며, 다중 사용자 및 데이터의 호환 등에 있어서 많은 문제점을 가지고 있다. 또한, 대부분의 상용 GIS 제품군은 COM 방식이 아닌 패키지 방식으로 솔루션을 제공하고 있기 때문에, 개발목적에 최적화된 시스템의 설정은 어려운 상황이다. 특히, GIS를 구현하는 가장 큰 목적은 사용자들이 업무를 보다 효율적, 효과적으로 처리할 수 있도록 필요한 정보의 결과물을 제공하는 것이므로, GIS의 활용목적 및 활용분야의 특성에 맞는 데이터베이스 구축이 GIS의 성공적 구현의 중요한 관건이다.

데이터베이스 시스템통합의 핵심이 많은 사용자가 공통의 정보를 공유하는 데 있다고 볼 때, 속성정보와 공간정보 데이터베이스의 통합은 원자력부지에 대한 자료를 통합 관리하는 부지·환경관리 시스템 및 시스템간의 원활한 정보교환 및 업무 능력향상의 기반부 역할을 할 것이다.

본 연구에서는 상용 GIS 제품군을 자료의 호환성, 시스템 개발 용이성, Application 개발 가능성 등을 기준으로 ESRI사의 ArcGIS를 지리정보시스템의 개발 도구로 선정하였다. ArcGIS 제품군을 사용하여, 수집된 원시자료를 공간자료로 변환하며, 이와 별도로 관리시스템의 공간자료 도시를 위한 Application을 개발하고자 하였다.

지리정보시스템 구축 과정

지리정보시스템은 분산된 자료를 통합 분석함으로써 의사결정에 필요한 정보제공을 수행하는 시스템으로 일반적으로 5단계의 과정을 거쳐야 하며 그 과정과 내용은 다음과 같다.

(1) 자료의 수집과 분류

지리정보시스템의 특성상 자료의 종류는 공간 자료와 속성 자료로 구분되고 공간 자료는 대개의 경우 지도 또는 측량을 통해 얻어지며, 최근에는 GPS 기술의 발전으로 과거보다 더욱 세밀한 공간 자료를 표현할 수 있다. 속성 자료는 각종 보고서 및 문헌을 통하여 얻어진다. 지리정보시스템은 수집된 자료에 기반을 두고 정보를 제공하고 있으므로 정보의 신뢰성 및 가치성은 수집된 자료의 신뢰성 및 정확성과 밀접한 관련이 있다.

본 연구에서는 방사성폐기물 처분장을 비롯한 원자력관련 시설의 법령 및 안전성 평가 자료 등에 기반한 SITES 요구분석을 통하여 그림 1과 같은 SITES의 항목을 도출하였고, 이에 기반하여, 도출된 항목을 공간자료와 속성자료로 분류하였다.

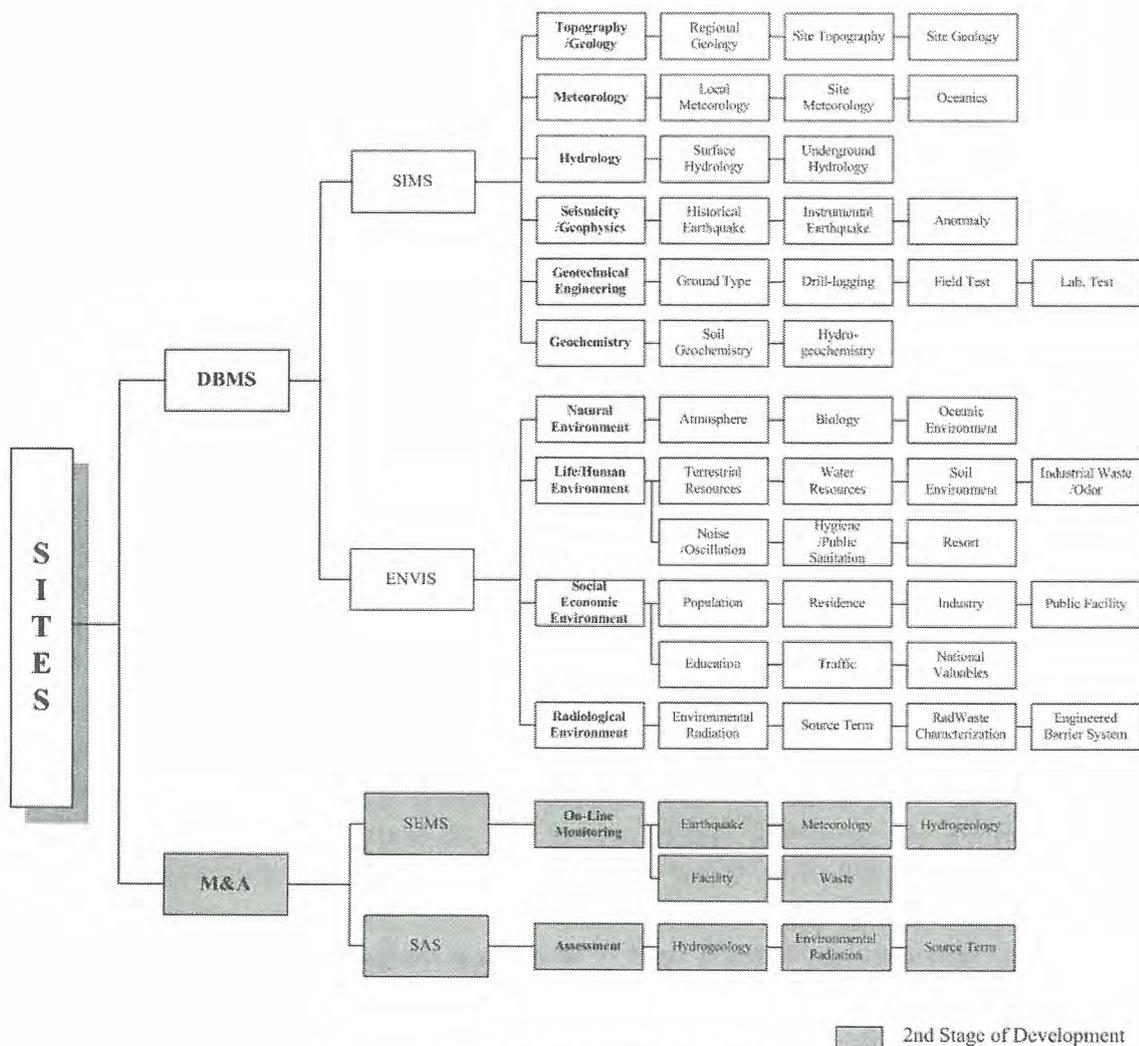


그림 1. SITES의 항목 구성도

(2) 자료 입력

자료 입력은 상기에서 수집 분류된 자료를 지리정보시스템에 입력하는 과정이다. 이 과정의 자료 형태의 변환과 대상물의 공간 구분 작업의 2가지 처리 과정으로 구분할 수 있다. 자료의 형태 변화라 함은 지도, 사진, 야외조사보고서 등으로부터 추출된 여러 가지 형태의 자료로 변환하는 과정으로 시간과 비용이 많이 소모 된다. 지도 데이터는 다목적으로 이용되므로 신뢰도가 요구 기준에 적합하여야 한다. 본 연구에서는 도면의 경우, 이미 많은 보고서와 조사가 행해진 영광 지역과 현재 중저준위 방사성 폐기물 처분장이 건설될 지역인 위도를 우선 대상으로 하였으며 필요한 도면은 광역 주제도와 부지 주제도를 구분하였다(표 1).

표 1. 입력 주제도의 구분

구분	주제도명	내 용	참 고 사 항	
광역 지형	지형도	광역 지형도	디지털라이징	
	토지이용도	토지이용현황	자료 입수 후 디지털라이징	
	행정구역도	도경계 및 시군 경계	디지털라이징	
	인구분포도	행정구역별 인구분포	속성입력 후 GIS 통계 분석	
	광역수계도	국가하천/준용하천	디지털라이징	
	사진자료	항공사진 위성사진 음영기복도		
광역 지질	지질도	광역 지질도	한국지질자원연구원	
	선구조도	단층 및 조구조	한국지질자원연구원	
	지체구조도	한반도 광역 지체구조도	디지털라이징	
부지 지형	수치지형도	1:50,000 및 1:5,000 수치지형도	각 레이어 별 추출	
	토지이용도	부지 토지이용현황	환경부 자료	
	행정구역도	도경계 및 시군읍면 경계	DB 완성 후 연결	
	인구분포도	부지 인구 분포	DB입력 후 GIS 통계 분석	
	수계도	저수지		수치지형도 추출
		지류		수치지형도 추출
		세류		수치지형도 추출
		Network		Junction Point 부여
	사진자료	항공사진, 위성사진, 음영기복도		
	지형단면도	16방위별 지형단면도(필요시)		
	도로망도	일반국도, 지방도, 군도		수치지형도 추출
		면리간 도로		수치지형도 추출
		Network		Junction Point 부여
	3D 지형도	수치지형도 등고선 추출 후 작업		GIS TIN 파일
	최대가능홍수	하천의 최대가능홍수량		GIS 분석, 프로그래밍
부지 지질	지질도	1:250,000지질도 시설구역에 대한 1:1,000지질도	광주도폭 지질도 활용 좌표 수정	
	지질단면도	시설구역에 대한 지질단면도	디지털라이징	
	구조지질도	단층 및 선구조, 파쇄대 및 우세절리	광주도폭 지질도 활용	
	주상도		디지털라이징	
	토양분포도	색깔별로 표현	환경부 자료	
	수리지질도/ 단면도	수위등고선, 수질(stiff diagram), 측선에 따른 단면도 표현		GIS 분석, 프로그래밍
	수리이방성도			디지털라이징
	해양지질	부지 근해저 지질도		디지털라이징

주제도는 지형도의 경우 국립지리원에서 발간한 1:25,000과 1:5,000 수치지형도를 각 레이어별로 세분하여 추출, 속성입력, 도면 접합하는 구조화 및 편집화 과정을 거쳐서 DXF 포맷으로 저장한 뒤, 속성정보 입력을 위해 위상관계가 포함되는 GIS 기본 도면 포맷인 coverage 형태로 변환하여 ArcGIS내에 저장하였다.

지질도는 지각을 구성하는 각 지층의 종류 암상 등에 따라 구분하여 그 분포상태를 정합, 부정합등의 상호관계, 습곡, 단층등의 지질구조 등을 표시한 도면으로, 한국지질자원연구원의 1:250,000 수치지질도를 지형도 상에 투영될 수 있도록 기준점을 지형도와 같이 투영한 후 coverage 파일로 변환하였다. 음영기복도는 수치지형도상에서 추출한 등고선 자료를 이용하거나 위성영상을 사용하였으며, 나머지 입력 주제도는 직접 종이 도면을 스캐닝 후 AutoCAD Map을 이용하여 디지털라이징 하였다. 분석이 필요한 도면은 최대가능홍수도, 수리지질도 등이 현재 수준에서 분석되어 도면으로 입력되었으며, 나머지 세부적인 분석은 모든 속성정보인 데이터베이스가

완료되는 시점에서 처리될 수 있을 것으로 생각된다.

(3) 자료 관리

자료관리라 함은 데이터베이스의 구축과 운영을 말하며, 자료의 입력, 갱신, 소거 및 복구 등의 기능을 수행한다. 대개의 지리정보시스템 관련 자료는 단기적 자료와 장기적 자료가 있다. 예를 들면 단기적 자료에는 도로나 지적과 같이 수시로 내용이 변하는 대상에 대한 자료가 있으며, 장기적인 자료에는 지질이나 정비된 하계등과 같이 내용의 변화가 거의 없는 대상에 대한 자료가 있다. 단기적 자료에 대한 자료 갱신 등과 같은 자료 관리는 최신정보를 제공하는데 필수불가결한 과정이며, 이는 자료 입력과 더불어 시간과 경비의 투자가 소홀히 되어서는 안 될 부분이다. 이를 위해 ESRI사의 최신 공간정보 관리 포맷인 Geodatabase를 사용하여 ArcSDE 내에 입력된 공간자료와 속성 자료를 저장하였으며, 현재 본 연구에서 개발 중인 데이터베이스 관리 프로그램과 잘 연계될 수 있도록 data 형태를 통일하여 저장하였다.

(4) 자료 분석 및 처리

자료의 분석 및 처리라 함은 구축된 데이터베이스를 이용하여 자료간의 연산이나 기술적 처리를 함으로써 새로운 정보를 추출하는 과정이다. 지리정보시스템에서는 각기 이용목적에 따른 자료의 해석기능을 가지고 있는 지리정보처리에 현재 많이 사용되고 있는 해석 방법은 공간 해석 기법이다. 이는 지도 요소간의 관련성을 이용한 해석방법으로 지도중첩과 네트워크 해석이 있다.

향후 데이터베이스가 구축되는 시점에는 GIS의 통계분석, 3D분석 등과 연계하여 수계 오염 추측 및 방사선원 추적, 중저준위 방사성 폐기물 처분장 최적 입지 등의 분석을 행할 예정이다.

(5) 자료 출력

출력은 자료의 처리 결과를 도표, 그래프, 지도와 같은 사용자가 이해할 수 있는 형태나 다른 컴퓨터 시스템에 전송할 수 있는 형태로 만드는 것을 말한다. 지리정보시스템에는 이런 기능이 기본적으로 포함되어 있으며, 기본적인 기능 외에 사용자 분석을 통해 추가 어플리케이션을 ESRI사의 Map Object를 이용하여 개발할 예정이다.

3. 결 론

원자력시설의 부지·환경에 대한 지리정보시스템 구축에는 다양한 형태의 원시자료와 방대한 양의 공간 정보 및 속성 정보가 존재하나 사용자 입장에서의 이들 정보의 효율적인 관리에는 문제점을 가지고 있다. 또한 현재 국내에서는 모든 평가 기반에 대한 지리정보시스템이 구축되지 않고 있는 실정이므로 본 연구는 이러한 목적의 부지환경 종합 데이터베이스 관리 시스템 구축을 위한 기반 연구로서 지리정보시스템 구축을 위한 방안을 연구하고, 향후 분석을 위한 기능 분석 및 기본 도면구축과 함께 현재 개발되고 있는 데이터베이스 시스템과의 연계성을 검토하였다.

또한 체계적이고 효율적인 시스템 구축을 위해, 가장 문제점으로 부각되던 공간 정보와 속성 정보를 통합적으로 관리할 수 있는 기본적인 시스템 구축방안을 연구하였다. 단지, 이번 지리정보시스템 구축은 전체적인 시스템 개발의 기반 단계이므로, 운용 프로그램의 설계와 개발 시, 시스템의 구조와 내용은 변경의 여지가 있다.

현재까지 국내의 원자력분야에서 추진되었던 부지·환경에 대한 데이터베이스 관리 시스템 개발이 개념 연구단계에 머물렀으나, 선진 외국의 경우 지리정보시스템과 연계하여 시설물관리, 안

전성 평가에 적극적으로 활용되고 있다는 점에 비추어보아 국내에서도 체계적이고 꾸준한 연구 개발이 필요하다고 판단된다.

사 사

본 연구는 과학기술부에서 시행하는 국가지정연구실(NRL) 사업의 일환으로 수행되었다.

참 고 문 헌

1. ESRI, 'Introduction to ArcGIS Desktop', 2002
2. 이호진, 임용수, 이찬구, 박세문, 박주완, 김창락, 방사성폐기물 처분장 부지환경 종합관리를 위한 공간 속성 데이터베이스 설계, 한국방사성폐기물학회 논문집, 2003
3. 정문섭, 김윤상, 최용복, 폐탄광 GIS 구축방안에 관한 연구, 한국 GIS 학회지, 2002
4. 한국원자력안전기술원, '방사성폐기물처분장 수리지질특성 검증방법', 2002
5. 한국전력공사, '영광원자력 5, 6호기 건설사업 안전성분석보고서'

하나로에서 기체 방사성 폐기물 발생 현황 분석

An Analysys on the Gaseous Radioactive Waste Occurrence Present Condition in HANARO

최호영, 황승렬, 강태진, 이 문
한국원자력연구소

요 약

하나로의 출력 운전 이후 1996년부터 2002년까지 하나로에서 발생한 기체 방사성 폐기물의 양을 종류별로 정리하였다. 이 기간 동안 원자로실 및 RCI 굴뚝을 통해 환경으로 방출된 기체 방사성 폐기물은 Ar-41이 $6.33E13$ Bq, H-3이 $5.10E12$ Bq, I-131이 $3.26E8$ Bq 이었다.

Abstract

The quantity of the gaseous radioactive waste generated from HANARO operation for the years from 1996 to 2002 has been investigated. The amounts of Ar-41, H-3 and I-131 exhausted to the environment were $6.33E13$ Bq, $5.10E12$ Bq and $3.26E8$ Bq, respectively.

1. 서 론

방사성 폐기물이라 함은 방사성 물질 또는 그에 의하여 오염된 물질로서 폐기의 대상이 되는 물질을 말하며, 방사능이 높고 낮음에 따라 고준위, 중준위 및 저준위 폐기물로 분류한다. 또한 성상에 따라 기체, 액체, 고체 폐기물로 분류되는데 하나로에서 발생하는 방사성 폐기물은 대부분 저준위 또는 극저준위 폐기물이다. 기체 폐기물은 원자로실, RCI(Reactor Concrete Island)의 관리 시설에서 발생하는 입자, 옥소, 불활성 기체로서 허용농도 제한치 이내에서 배기 설비를 통해 환경으로 방출된다[1].

본 논문에서는 1996년부터 2002년까지 하나로 원자로실 및 RCI에서 굴뚝을 통해 환경으로 방출 현황을 기술하였다.

2. 본 론

2.1 하나로의 기체 폐기물

하나로 원자로 건물은 준 격납용기(Confinement)로서 평상시에 외부 공기의 유입과 유출이 있다. 기체 폐기물은 하나로 운전 시 원자로 노심 구조물 등에서 유리되거나 1차 냉각재 내의 방사

화된 물질 등이 수조를 통해서 원자로실 공기 중으로 방출된다. 그리고 원자로실 내에 있는 이용 시설로는 빔 포트를 이용하는 중성자 실험시설, 시료의 중성자 조사를 위한 수직 조사공, 공기이송장치 및 수력이송장치가 있다. 이를 운영 및 이용하는 과정에서 기체 방사성 폐기물이 발생된다. 이렇게 발생된 방사성 입자, 가스, 삼중 수소 등은 RCI내에 존재하는 방사성 물질과 함께 배기 설비를 통하여 공기 여과장치를 거친 후 굴뚝을 통해서 환경으로 방출된다[2].

그림 1은 원자로실과 RCI에서 발생한 기체 폐기물의 배출 경로를 보여 주고 있다.

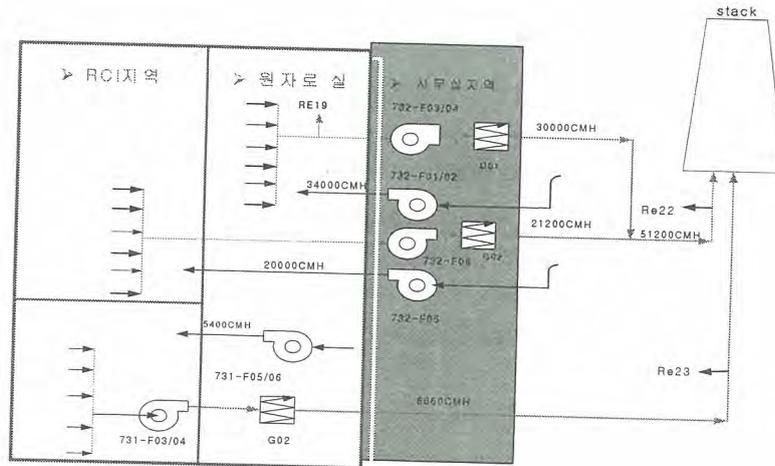


그림 1. 원자로 건물의 환기 계통 개략도

2.2 연도별 기체 폐기물 발생 현황

하나로에서 발생하는 기체 폐기물의 주 핵종은 Ar-41, H-3, I-131이다. 발생된 방사성물질은 배기에 대한 허용농도 제한치 이내에서 굴뚝을 통해 환경으로 방출된다. 1996년부터 2002년까지 하나로에서 발생한 기체 폐기물 발생량은 Ar-41이 $6.33E13$ Bq, H-3이 $5.10E12$ Bq, I-131이 $3.26E8$ Bq 이었다. 그림 2는 원자로실, RCI에서 발생한 기체 폐기물의 연도별 방출량 및 출력량을 나타내었다. 1998년 이후 2000년까지 원자로실의 Ar-41 배출량이 증가한 것은 방사화 분석을 위한 공기이송장치의 누설이 있었기 때문이며, 누설 부위를 봉합하고 질소가스를 공급하기 시작한 2001년 이후 Ar-41은 감소 추세를 나타내고 있다. 2002년에는 허용 범위 이내지만 I-131 발생량이 전년보다 증가한 이유는 원자로에 TeO_2 를 조사하여 동위원소를 생산하는 과정에서 I-131이 누설된 것으로 추측하고 있다. 그리고 H-3는 매년 조금씩 증가하는 경향을 보이는데 이는 출력량의 증가에 따른 것으로 추정되나 또 다른 원인도 분석중에 있다.

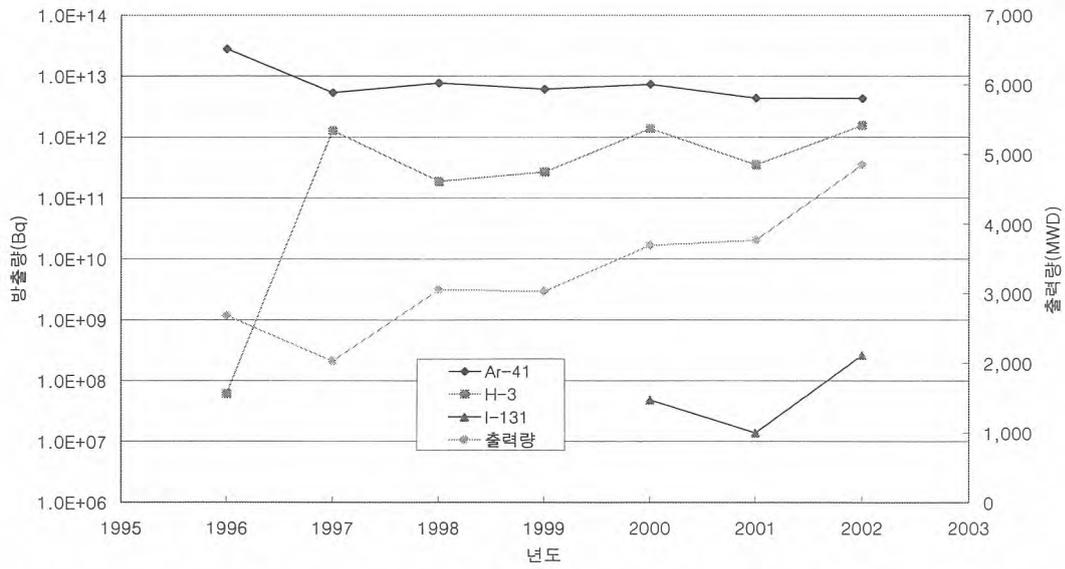


그림 2. 년도별 기체 폐기물 방출량 및 출력량

그림 3, 4, 5는 원자로실과 RCI의 년도별 기체 방사성 폐기물량의 구성비를 나타내고 있다. Ar-41의 구성비를 보면 RCI보다 원자로실이 약 80%를 차지하고 있다. 그리고 H-3와 I-131의 구성비를 보면 RCI의 비율이 증가하고 있는 것을 알 수 있다. 이는 원자로 운전 일수와 출력량의 증가와 동위원소 생산 증가에 따른 것으로 판단된다.

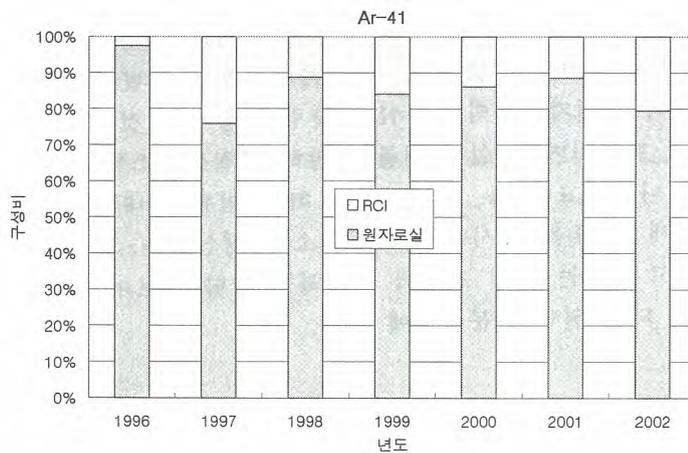


그림 3. Ar-41의 원자로실과 RCI 구성비

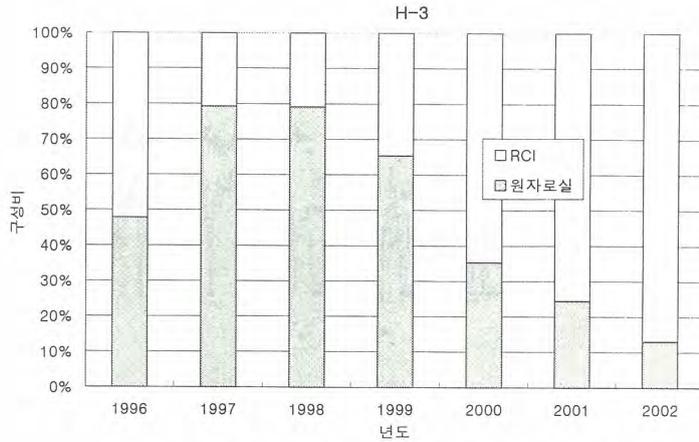


그림 4. H-3의 원자로실과 RCI 구성비

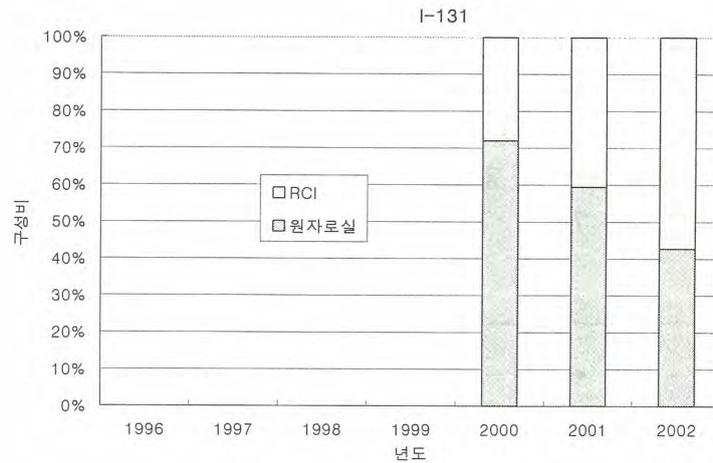


그림 5. I-131의 원자로실과 RCI 구성비

2.3 기체 폐기물 저감 노력

1) 수조 고온층 계통 설치

원자로 수조에서 발생하는 기체 폐기물은 1차 냉각재에 녹아 있는 이물질 또는 공기가 노심의 핵분열 과정에서 방사화되고, 냉각수와 함께 수조 상부로 올라와 원자로실의 공기중으로 방출된다. 방사화된 냉각수가 수조 상부로 올라오는 것을 방지하기 위하여 수조 고온층 계통을 설치하였다.

2) PTS 조사관의 누설부 봉합 및 질소 가스 주입

2000년 실험시설 중 하나인 공압이송장치(PTS) 계통에서 방사화된 공기의 일부가 원자로실로 누설되어 Ar-41의 농도를 증가시키고 있음을 알게 되었다. Ar-41 농도를 줄이기 위해 조사관으로써 기능을 상실한 PTS-2/3 조사관의 원자로 수조 유출입 배관을 격리하고 누설 부위를 보수하였다. 격리작업과 누설부를 봉합한 후 3일 동안 원자로를 운전하면서 원자로실에서 배출되는 공기중 Ar-41의 농도를 측정된 결과 Ar-41의 농도가 평균 $2.37 \times 10^{-5} \mu\text{Ci/cc}$ 에서 $5.03 \times 10^{-6} \mu\text{Ci/cc}$ 로 감소한 것을 확인하였다(그림 6).

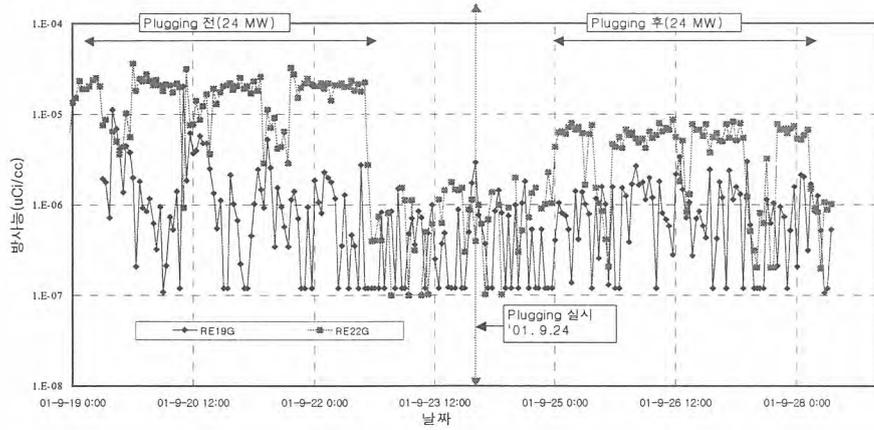


그림 4. NAA의 plugging 전후 Ar-41의 변화량

다음 단계로 PTS 조사관에 소량의 질소가스를 연속적으로 공급하여 공기의 방사화를 줄이는 실험을 하였다. 이 결과 질소 공급시 원자로실에서 배출되는 공기중 Ar-41 농도의 평균치는 $8.87 \times 10^{-7} \mu\text{Ci/cc}$ 로 운전 중에 질소를 공급하지 않으면서 측정된 평균값 $8.92 \times 10^{-6} \mu\text{Ci/cc}$ 에 비해 1/10 수준으로 감소하였다(그림 7).

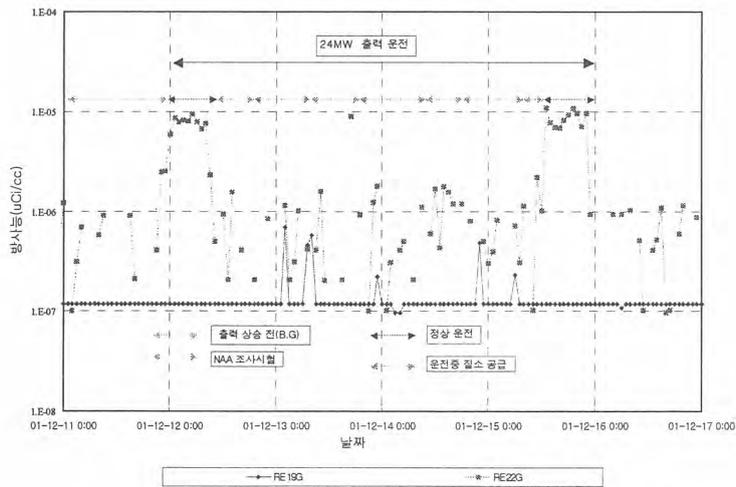


그림 5. NAA 계통에 질소를 연속 공급한 효과

5. 결 론

하나로의 출력운전이 시작된 이후 1996년부터 2002년까지 하나로에서 발생한 기체 방사성 폐기물은 Ar-41은 $6.33\text{E}13 \text{ Bq}$, H-3은 $5.10\text{E}12 \text{ Bq}$, I-131은 $3.26\text{E}8 \text{ Bq}$ 이 발생하였다. 이를 감소시키

기 위해 수조 고온층 계통을 설치하여 노심의 방사화된 냉각수가 수조 상부로 올라오는 것을 억제하였다. 방사화 분석 조사 실험 시설인 공압이송장치(PTS) 조사관의 누설부를 봉합하고 조사관으로 소량의 질소 가스를 연속적으로 공급하여 Ar-41의 발생을 저감시켰다.

감사의 글

본 연구는 정부의 출연금에 의한 기관 고유 사업으로 수행되었기에 감사의 뜻을 표한다

참 고 문 헌

- [1] 강태진 외, “하나로에서 PTS 사용에 따른 기체방사성 폐기물 발생량 저감에 대한 연구”, 한국원자력학회 2002년 춘계학술발표논문집, 2002. 5.
- [2] “2002년 하나로 운영”, 한국원자력연구소, KAERI/MR-395/2002
- [3] “방사선안전관리”, 한국원자력연구소,KAERI/MT-390/2002
- [4] 대덕원자력관련시설의 운영중 방사선환경영향평가, KAERI/CR-149/02, 한국원자력연구소

발전용원자로에서 뱃치방식으로 배출되는 액체상 방사성물질의 방사능 평가결과에 대한 불확도 해석

Uncertainty Analysis of the Calculated Radioactivity in Liquid Effluent Released as Batch Mode from a Nuclear Power Plant

정재학, 박원재
한국원자력안전기술원

요 약

발전용원자로에서 뱃치방식으로 환경으로 배출된 액체유출물 내에 함유된 방사능 평가 결과에 오차를 유발하는 시료채취, 제조, 방사능 계측, 유출물 배출체적 측정 등 다양한 인자를 분석하였다. 환경배출 방사능 평가에 포함된 많은 인자들은 단일 측정에 의해 얻어지고 환경배출 방사능의 참값을 알 수 없음에 따라, 평가결과의 오차를 예측하는 것은 원칙적으로 불가능하다. 이에 따라 1993년 ISO가 권고한 측정의 불확도 표현지침에 근거하여 액체폐기물 배출방사능에 대한 불확도 평가모델을 수립하고 가상적인 조건에 대한 액체유출물 환경배출 방사능 평가결과의 불확도를 평가하였다. 그 결과, 액체유출물을 통한 환경배출 방사능 평가결과에 불확도를 유발하는 인자의 상대적인 기여도는 배출폐액의 체적, 시료의 체적, 총방사능 계측값의 순서를 갖는 것으로 나타났다. 또한 개별 변수의 확률분포와 특성값을 토대로 몬테칼로 모사법을 적용하여 최종 환경배출 방사능 평가결과의 확률분포를 해석함으로써, 지금까지 단일 값을 평가 및 보고되었던 발전용원자로의 액체상 방사성물질 환경배출량이 실제로는 일정한 확률분포를 갖고 있음을 확인하였다.

Abstract

A series of factors such as sampling, pretreatment, measurement, volume estimation which induces uncertainty of the calculated radioactivity in liquid effluent released from a nuclear power plant were analyzed. It is innately impossible to estimate exact error of the calculated radioactivity, since most of the input parameters are determined by a single measurement and true value of the released radioactivity cannot be known. In this paper, a systematic model to calculate uncertainty of the released liquid radioactivity was developed based upon the guidance report published by the ISO in 1993, and the model was applied to a set of hypothetical batch release conditions. As a result, the priority of each input parameter was turned out to be (1) wastewater volume, (2) sample volume, and (3) measured radioactivity of the sample. In addition, probability distribution of the released radioactivity was simulated by Monte Carlo method combining the probability distribution of each input parameter. It was shown that the radioactivity released to the environment, which has been reported as a single value, has a certain form of probability distribution.

1. 서 론

국내 원자력이용시설의 유출물관리에 관한 법적 제한치는 방사능 농도를 기준으로 한 배출관리기준과 소외 주민선량을 기준으로 한 설계목표치로 규정되어 있으며, 이러한 제한치 만족여부를 입증하기 위해 발전용원자로에서는 방사성유출물에 대한 연속감시 이외에도 유출물 시료에 대한 시료채취 및 방사능 분석을 수행하고 있다[1-3]. 환경으로 배출되는 방사능을 평가하는 목적이 규제제한치 만족여부와 안전 여유도(Margin)를 확인하는데 있음을 고려할 때 가능한 한 방사성물질의 환경배출량을 정확하게 평가할 필요가 있으며, 방사성물질의 환경배출량에 대한 정확한 평가를 위해서는 평가결과의 불확도(Uncertainty)에 대한 정량적인 평가를 통해 상대 불확도가 상대적으로 큰 부분을 개선하기 위한 노력이 필요하다. 그러나 지금까지 국내 원전에서는 방사성물질 환경배출량을 단일 값으로 보고하고 있으며 단일 값에 내재된 불확도에 대한 분석이 수행된 바 없다[4].

US NRC는 Reg. Guide 1.21(1974)에서 방사성물질 환경배출량 평가결과에 대한 총오차(Total Error)를 평가하도록 규정하였으며 이에 따라 대부분의 미국 원전에서는 총오차를 평가하여 그 결과를 매년 규제기관에 보고하고 있다[5,6]. Reg. Guide 1.21 Table 2A에서는 액체유출물 배출실적 보고와 관련하여 총오차 추정치를 보고하는 기본형식을 제공하고 있으며, 이에 따르면 보고대상 기간 동안 환경으로 배출된 방사능(핵분열 및 방사화 생성물, 삼중수소, 용존기체, 전알파), 배출폐액의 체적 및 희석수의 체적에 대한 총오차 추정값을 각각 보고하도록 권고하고 있다. 또한 동 지침 C.11.a(Errors in Measurements)에서는 계수 통계값(예; 계수 오차의 표준편차)을 측정기록에 포함하고 총오차 또는 최대오차에 시료채취 및 측정작업 전반에 걸쳐 유발된 누적 오차를 포함하도록 권고하고 있다. 그러나 Reg. Guide 1.21은 오차에 대한 상세한 통계적인 평가는 권고하지 않고 있으며, 그 이유는 최종 측정결과에 영향을 미치는 각각의 파라미터에 대하여 오차항을 지정하는 것은 매우 어렵기 때문이라고 밝히고 있다. 한편 Reg. Guide 4.16(1985)의 C.5.2(Errors Estimates)에서도 핵연료주기시설에서 환경으로 배출된 방사성물질의 수량에 대한 보고와 관련하여, 보고값에 오차에 대한 추정치를 포함하고 개별 측정결과에 계측의 우연오차를 나타내는 표준편차를 보고해야 하며, 계통오차에 대한 추정치는 별도로 보고하도록 요구하고 있다[7].

비교적 최근(1999년)에 발간된 ANSI/HPS-N13.1의 Annex E(Evaluating Effluent Sampling Errors and Uncertainty)에서는 기체유출물의 시료채취 및 분석에 수반되는 불확도 평가지침을 제시하고 있다[8]. 동 기술기준에서는 유출물 환경배출량평가에 수반되는 계통오차 평가식을 다음과 같이 제시하고 있다:

$$B_L = \sqrt{\sum_i B_{CAL}^2 + \sum_i B_{PAR}^2 + \sum_i B_{TST}^2}, \quad (1)$$

여기서, B_L = 95% 신뢰수준에서 총계통오차한계, B_{CAL} = 교정오차, B_{PAR} = 파라미터 오차, B_{TST} = 설계 및 시험오차.

미국의 규제지침과 산업기술기준에 제시된 관련 요건은 시료채취, 제조, 방사능 계측 등 환경배출 방사능 평가과정에 수반되는 전반적인 오차의 유발요인을 고려하여 평가결과에 내포된 총오차를 평가해야 한다는 것으로 정리할 수 있다. 그러나 실제 방사성물질의 환경배출량에 대한 참값을 알 수 없으므로 엄밀한 의미에서 『오차』를 평가하는 것은 불가능하며, 따라서 동 규제지침에서 요구하는 총오차는 『오차』라기 보다 평가결과에 대한 통계적인 『불확도』의 범위를 산출하라는 의미로 해석되어야 한다[9]. 이에 따라 본 연구에서는 국내 발전용원자로의 액체유출물 배출에 의한 환경배출 방사능 평가결과의

불확도를 평가하기 위한 일반화된 모델을 개발하여 개상적인 배출조건에 적용함으로써 지금까지 단일 값으로 보고되고 있는 액체유출물 배출량의 불확도를 평가하고, 또한 환경 배출량 평가모델에 반영된 개별 변수의 확률분포를 토대로 최종 배출방사능의 종합적인 확률분포를 분석하고자 한다.

2. 측정 불확도 평가방법론 및 모델설정

1995년 국제표준화기구(ISO: International Organization for Standardization)는 측정에 수반되는 불확도 평가지침을 확정하였으며, 1999년 한국표준과학연구원은 이를 토대로 측정불확도 표현지침을 발간하였다[9,10]. 본 논문에서는 ISO의 불확도 평가지침을 기준으로 액체 방사성유출물에 함유된 방사능 평가결과의 불확도를 평가하기 위한 기본 방법론을 다음과 같이 도출하였다.

2.1 불확도 평가절차

1995년 발간된 측정불확도 평가지침을 통해 ISO가 제시한 불확도 평가방법은 다음과 같은 5단계 표준절차로 분류할 수 있으며, 단계별 평가절차는 다음과 같이 요약할 수 있다 [10,11].

우선 제1단계는 평가모델 수립단계이며, 직접 측정되지 않는 측정량(R)의 추정값(r)은 N개의 독립변수(X_i)에 대한 추정값(x_i)의 함수로서 다음과 같이 표현할 수 있다:

$$r=f(x_1, x_2, \dots, x_N). \quad (2)$$

제2단계에서는 수식 (2)에서 개별 독립변수의 불확도를 유발시키는 요소를 평가해야 한다. 개별 독립변수 추정값의 불확실성(즉, 편차의 폭)은 실험값, 기기공급자 인증서 등 다양한 정보원을 활용하여 추정할 수 있으며 일반적으로 다음과 같은 수식으로 표시된다:

$$x_i - \varphi_i \leq x_i \leq x_i + \varphi_i. \quad (3)$$

제3단계는 표준불확도(Standard Uncertainty)를 평가하는 과정으로 개별 독립변수의 표준불확도는 불확실성을 유발하는 요인에 따라 A형 불확도평가 또는 B형 불확도평가를 통해 산출된다. A형 평가는 다수 측정결과에 대한 통계분석을 통해 불확도를 계산하는 방법이며, B형 평가는 비통계적 방법으로 불확실성을 표현할 수 밖에 없는 경우에 적용된다. N회의 독립된 측정을 통해 획득된 측정값($X_{i,k}$)으로부터 결정된 독립변수(X_i)에 대한 추정값 x_i 가 독립변수의 평균값과 같은 경우 A형 표준불확도 $U(x_i)$ 는 다음과 같다 [10]:

$$U(x_i)=s(\bar{X}_i)=\left[\frac{1}{N(N-1)} \cdot \sum_{k=1}^N (X_{i,k} - \bar{X}_i)^2\right]^{1/2}. \quad (4)$$

한편, B형 불확도 평가에서는 활용 가능한 최대한의 정보와 평가자의 주관적 판단에 의해 독립변수 X_i 의 추정값 x_i 에 대한 표준불확도를 평가하게 되며, 따라서 B형 평가는 측정에 의해 획득할 수 없는 독립변수에 국한하여 적용되어야 한다. 독립변수에 대한 추정값이 수식 (3)과 같은 범위에 존재할 것으로 추정될 경우 B형 표준불확도는 추정값에 대한 가상적인 확률분포에 따라 다음과 같이 계산된다:

$$U(x_i) = \frac{\varphi_i}{(3 \cdot f)^g}, \quad (5)$$

여기서, 변수 f 와 g 는 x_i 의 추정 확률분포에 따라 직사각형 분포($f = 1, g = 1/2$), 삼각형 분포($f = 2, g = 1/2$), 정규분포($f = 1, g = 1$)로 주어진다[11].

제4단계에서는 종속변수 R 에 대한 추정 표준편차로 해석할 수 있는 합성표준불확도(Combined Standard Uncertainty), $U_c(R)$ 을 평가한다. 독립변수들 사이에 상관관계가 미미하거나 또는 개별 독립변수 x_i 의 표준불확도가 R 값에 비해 상대적으로 작을 경우, 합성 표준불확도는 다음 수식과 같이 합성분산의 양의 제곱근으로 정의된다[9-11]:

$$U_c^2(R) = \sum_{i=1}^N \left(\frac{\partial R}{\partial x_i} \right)^2 \cdot U^2(x_i) = \sum_{i=1}^N [c_i \cdot U^2(x_i)] = \sum_{i=1}^N U_i^2(R), \quad (6)$$

여기서, $U_c^2(R)$ = 합성분산, $U(x_i)$ = x_i 의 표준불확도, $c_i \equiv \partial R / \partial x_i$ = 감도계수, $U_i(R) = |c_i| \cdot U(x_i)$.

한편 독립변수가 상호 종속적인 경우에는 각 x_i 의 공분산항을 포함해 수식 (6)을 확장시켜야 하며, 개별 독립변수의 표준불확도가 R 값에 비해 상대적으로 클 경우에는 Taylor Series 전개를 통해 고차항을 포함하는 불확도 전파법칙을 적용해야 한다. 이에 대한 세부 평가지침은 ASME PTC appendix C 등에 자세하게 소개되어 있다[12-15].

제5단계에서는 제4단계에서 도출된 합성표준불확도에 포함인자(Coverage Factor, k)를 곱해 확장불확도(Expanded Uncertainty)를 다음과 같이 평가한다[10]:

$$U_E(R) = k \cdot u_c. \quad (7)$$

확장불확도는 주로 규제목적이나 또는 보건 및 안전과 관계된 경우에 적용하기 위한 목적으로 도입된 개념이며, R 에 대한 최종 평가결과의 자유도가 커서 정규분포로 가정할 수 있는 경우에는 약95%의 신뢰수준($k = 2$) 또는 약99% 신뢰수준($k = 3$)을 적용할 수 있다[11]. 참고로 1999년 한국표준과학연구원은 확장불확도 평가시 포함인자를 2로 적용할 것을 권고한 바 있다[10].

2.2 뱃치배출 액체유출물 환경배출 방사능 평가모델

국내 발전용원자로의 운영기술지침서 또는 방사성배출물 관리계획서에서는 액체유출물의 배출방식을 뱃치(Batch)와 연속으로 구분하고, 배출방식 및 분석대상 핵종에 따라 상이한 시료채취 및 분석요건을 적용하고 있다. 본 논문에서는 실제로 가장 적용 빈도가 높은 뱃치배출 액체유출물에 대한 그랩시료(Grab Sample) 채취를 통한 총방사능 측정시 수반되는 불확도를 평가하기 위한 모델을 수립하였다. 뱃치배출은 주로 액체폐기물을 탱크에 수집한 후 배출하되 배출기간 동안에는 탱크로 추가 폐액의 유입이 배제된 조건으로 정의되며, 이 경우 배출 전에 그랩시료를 채취하여 방사능을 분석해야 한다. 뱃치배출 탱크에서 환경으로 배출된 액체유출물에 함유된 방사능은 다음과 같은 수식을 통해 계산할 수 있다:

$$A_{BG} = C_{SG} \cdot V_D = \left(\frac{A_{SG}}{V_{SG}} \right) \cdot V_D, \quad (8)$$

여기서, A_{BG} = 뱃치배출 그래프시료 채취시 액체유출물의 총방사능[Bq], C_{SG} = 시료의 방사능 농도[Bq/m³], A_{SG} = 시료의 방사능[Bq], V_{SG} = 시료의 체적[m³], V_D = 액체유출물의 체적[m³],

3. 가상적인 뱃치배출 조건에 대한 불확도 평가

지금까지 도출된 불확도 평가방법론과 국내 발전용원자로의 운영조건에 근거하여 설정된 전형적인 액체유출물 뱃치배출 조건(표 1 참조)을 기준으로 표준불확도와 합성표준불확도를 평가하였다.

표 1. 불확도 평가를 위한 가상적인 조건(사전 평가를 목적으로 재구성된 조건으로 특정 원전의 배출조건과 일치하는 것은 아님.)

변수	값(범위)	비고
시료의 총방사능 측정결과	$(3.7 \times 10^1) \pm (3.7 \times 10^0)$ Bq (신뢰수준 : 95%)	측정기록
마리넬리 비이커의 규격	$(1.0 \times 10^{-3}) \pm (1.0 \times 10^{-4})$ m ³ (신뢰수준 : 불명)	공급자 사양
마리넬리 비이커 체적 보정온도	25℃	공급자 사양
시료채취 및 분석장소의 온도	25±5℃ (신뢰수준 : 95%)	운전조건
액체유출물 배출전 탱크 수위	80%	측정기록
액체유출물 배출후 탱크 수위	20%	측정기록
탱크 수위계의 불확도	전구간의 ±5% (신뢰수준 : 95%)	교정기록
탱크 수위-체적 관계식	2m ³ /(수위, %)	공급자 사양
탱크 용량곡선의 불확도	전구간의 ±5% (신뢰수준 : 불명)	공급자 사양

3.1 불확도 평가

가. 총방사능 측정결과의 불확도

표 1에 도시한 바와 같이 총방사능 측정결과는 95% 신뢰수준에서 $\pm(3.7 \times 10^0)$ Bq의 불확도를 갖는 것으로 가정하였으며 시료 총방사능 측정결과의 표준불확도는 다음과 같다:

$$U(A_{SG}) = \frac{(3.7 Bq)}{1.96} = 1.89 Bq. \quad (9)$$

나. 시료체적의 불확도

일반적으로 액체유출물 시료는 1,000mL 용량의 마리넬리 비이커에 수집되며, 채취된 시료체적에 불확도를 유발하는 요인은 비이커의 체적, 온도에 따른 액체체적의 변화 등이다. 본 논문에서 가정한 사례에서는 공급자 인증서에서 비이커의 규격을 $(1.0 \times 10^{-3}) \pm (1.0 \times 10^{-4})$ m³로 제시하고 있으나 신뢰수준이 별도로 주어지지 않았으므로, 비이커의 체적이 직사각형 확률분포를 갖는 것으로 가정하는 것이 타당하다. 수식 (5)를 적용하여 비이커 체적의 표준불확도는 다음과 같이 구할 수 있다:

$$\frac{(1.0 \times 10^{-4} m^3)}{\sqrt{3}} = 5.77 \times 10^{-5} m^3. \quad (10)$$

한편 시료채취장소 또는 계측장소의 온도가 25℃(비이커의 교정온도)±5℃ 이내로 유지되고 폐액의 부피팽창계수가 물과 동일하게 $2.1 \times 10^{-4} K^{-1}$ 이라고 가정하면, 마리넬리 비이커에 채취된 시료체적의 표준불확도는 95% 신뢰수준에서 다음과 같다:

$$\frac{(1.0 \times 10^{-4} m^3) \cdot (\pm 5K) \cdot (2.1 \times 10^{-4} K^{-1})}{1.96} = 5.36 \times 10^{-8} m^3. \quad (11)$$

한편 측정량과 독립변수가 수식 (12)의 관계를 갖는 경우 수식 (6)을 수식 (13)과 같이 변형하여 합성표준불확도를 계산할 수 있는 것으로 알려져 있다[9-11].

$$R = a \cdot X_1^{p_1} \cdot X_2^{p_2} \cdots X_N^{p_N}. \quad (12)$$

$$\left[\frac{U_c(R)}{R} \right]^2 = \sum_{i=1}^N \left(\frac{p_i \cdot U(x_i)}{x_i} \right)^2. \quad (13)$$

따라서 시료체적의 합성표준불확도는 수식 (10), (11) 및 (13)을 적용하여 다음과 같이 계산할 수 있다:

$$U_c(V_{SG}) = \sqrt{(5.77 \times 10^{-5} m^3)^2 + (5.36 \times 10^{-8} m^3)^2} = 5.77 \times 10^{-5} m^3. \quad (14)$$

다. 배출폐액 체적의 불확도

환경으로 배출된 액체폐기물의 순수한 체적(V_D)은 배출전 탱크에 저장된 폐액의 체적(V_{h1})과 배출후 탱크에 잔류된 폐액의 체적(V_{h2})의 차로부터 다음과 같이 구할 수 있다:

$$V_D = V_{h1} - V_{h2}. \quad (15)$$

가상적인 사례에서 운전원이 액체폐기물을 배출하기 전에 작성한 점검기록에 따르면 탱크의 수위는 80%이며, 탱크 수위계기계열 지시치의 불확도는 95% 신뢰수준에서 전구간(Full Span, 탱크 유효수위 100%)의 $\pm 5\%$ 이다. 이를 정규분포로 가정하면 수위지시계 기록값의 표준불확도는 다음과 같다:

$$\frac{(Water\ Level, 5\%)}{1.96} = 2.55 \times 10^{+0}\% (Water\ Level). \quad (16)$$

한편 탱크 수위-체적 관계식에 따르면 탱크 수위 1%에 해당하는 체적은 $2m^3$ 이고, 이러한 관계식의 불확도는 신뢰구간이 정해지지 않은 상태에서 $\pm 5\%$ 이다. 이를 직사각형분포로 가정하면 탱크 용량곡선 적용에 따른 표준불확도는 다음과 같다:

$$\frac{(0.1m^3/\%)}{\sqrt{3}} = 5.77 \times 10^{-2} m^3/\% (Water\ Level). \quad (17)$$

배출전 탱크에 저장된 액체폐기물 체적은 수위 지시계 기록값(%)과 수위계의 단위 %당 체적($m^3/\%$)의 곱으로 표현할 수 있으므로, 배출전 액체폐기물 체적의 합성표준불확도는 수식 (16)과 (17)로부터 다음과 같이 계산할 수 있다:

$$\left[\frac{U_c(V_{h1})}{V_{h1}} \right]^2 = \left(\frac{(1) \cdot (2.55 \times 10^{+0}\%)}{(80\%)} \right)^2 + \left(\frac{(1) \cdot (5.77 \times 10^{-2} m^3/\%)}{(2m^3/\%)} \right)^2, \quad (18)$$

$$V_{h1} = (80\%) \times (2m^3 / \%) = 1.60 \times 10^{+2} m^3, \quad (19)$$

$$U_C(V_{h1}) = (1.60 \times 10^{+2} m^3) \cdot \sqrt{\left(\frac{(2.55 \times 10^{+0}\%)^2}{(80\%)^2}\right) + \left(\frac{(5.77 \times 10^{-2} m^3 / \%)^2}{(2m^3 / \%)^2}\right)} = 6.88 \times 10^{+0} m^3. \quad (20)$$

이와 유사한 방법을 통해 배출후 탱크에 잔류된 액체폐기물의 체적에 대한 합성표준불확도를 다음과 같이 구할 수 있다.

$$U_C(V_{h2}) = (4.00 \times 10^{+1} m^3) \cdot \sqrt{\left(\frac{(2.55 \times 10^{+0}\%)^2}{(20\%)^2}\right) + \left(\frac{(5.77 \times 10^{-2} m^3 / \%)^2}{(2m^3 / \%)^2}\right)} = 5.23 \times 10^{+0} m^3. \quad (21)$$

한편 R과 입력변수 x_i 사이에 수식 (22)와 같은 선형관계가 성립할 경우 합성표준불확도는 수식 (23)을 통해 계산할 수 있다[10].

$$R = c_1 x_1 + c_2 x_2 + \dots + c_N x_N, \quad (22)$$

$$U_C(R) = \sum_{i=1}^N c_i^2 \cdot u^2(x_i). \quad (23)$$

환경으로 배출된 액체폐기물의 순수한 체적은 수식 (15)와 같은 선형관계식으로 표현되므로 V_D 의 합성표준불확도는 다음과 같이 계산할 수 있다.

$$U_C(V_D) = \sqrt{(6.88 \times 10^{+0} m^3)^2 + (5.23 \times 10^{+0} m^3)^2} = 8.64 \times 10^{+0} m^3. \quad (24)$$

라. 액체유출물 환경배출량의 합성표준불확도

배치배출 액체유출물에 대한 그래프시료 채취 및 분석에 따라 수반되는 합성표준불확도는 다음과 같이 계산할 수 있다:

$$\left[\frac{U_C(A_{BG})}{A_{BG}}\right]^2 = \left(\frac{(1) \cdot U_C(A_{SG})}{A_{SG}}\right)^2 + \left(\frac{(1) \cdot U_C(V_D)}{V_D}\right)^2 + \left(\frac{(-1) \cdot U_C(V_{SG})}{V_{SG}}\right)^2. \quad (25)$$

표 1과 수식(8)로부터 액체유출물 배출에 따른 총배출방사능(A_{BG})는 다음과 같이 계산할 수 있다:

$$A_{BG} = \left(\frac{3.7 \times 10^{+1} Bq}{1.0 \times 10^{-3} m^3}\right) \times (1.2 \times 10^{+2} m^3) = 4.44 \times 10^{+6} Bq. \quad (26)$$

표 2는 수식 (8)에 포함된 개별 독립변수의 값, 불확도 및 상대표준불확도 평가결과를 보여주고 있으며, 이를 통해 가상적인 조건에서 전체 평가결과에 미치는 불확도 유발인자는 배출폐액의 체적, 시료의 체적, 시료의 총방사능 순서임을 알 수 있다.

표 2. 뱃치배출 그래프시료 채취 및 분석시 배출방사능 평가인자별 불확도 요소

변수	기호	값	불확도, $U(x_i)$	상대 표준불확도, $U(x_i)/x_i$
시료의 총방사능	A_{SG}	$3.7 \times 10^{+1} \text{ Bq}$	$1.89 \times 10^{+0} \text{ Bq}$	5.10×10^{-2}
시료의 체적	V_{SG}	$1.0 \times 10^{-3} \text{ m}^3$	$5.77 \times 10^{-5} \text{ m}^3$	5.77×10^{-2}
배출 폐액의 체적	V_D	$1.2 \times 10^{+2} \text{ m}^3$	$8.64 \times 10^{+0} \text{ m}^3$	7.20×10^{-2}

표 2와 수식 (25) 및 (26)으로부터, A_{BG} 의 합성표준불확도는 다음과 같이 산출할 수 있다:

$$U_C(A_{BG}) = (4.44 \times 10^{+6} \text{ Bq}) \cdot \sqrt{(5.10 \times 10^{-2})^2 + (5.77 \times 10^{-2})^2 + (7.20 \times 10^{-2})^2} = 4.68 \times 10^{+5} \text{ Bq}. \quad (27)$$

마. 액체유출물 환경배출량의 확장불확도

수식(7)과 (27)로부터 액체유출물 환경배출량의 확장불확도는 다음과 같이 평가되었다:

$$U_E(A_{BG}) = (2) \cdot (4.68 \times 10^{+5} \text{ Bq}) = 9.36 \times 10^{+5} \text{ Bq}. \quad (28)$$

3.2 액체유출물 배출방사능 평가결과의 확률분포

최근 미국에서는 원자력이용시설 부지의 재활용이나 극저준위폐기물의 규제해제(Clearance)에 따른 방사선학적인 영향평가 등 요구되는 입력변수가 방대하고 불확실성이 큰 경우, 불확도 및 민감도 분석 측면에서 개별 입력변수의 확률분포를 조합함으로써 최종적인 단일 결과값(예: 피폭방사선량) 이외에 그 확률분포까지 추정하기 위한 시도가 활발하게 이루어지고 있다[16,17].

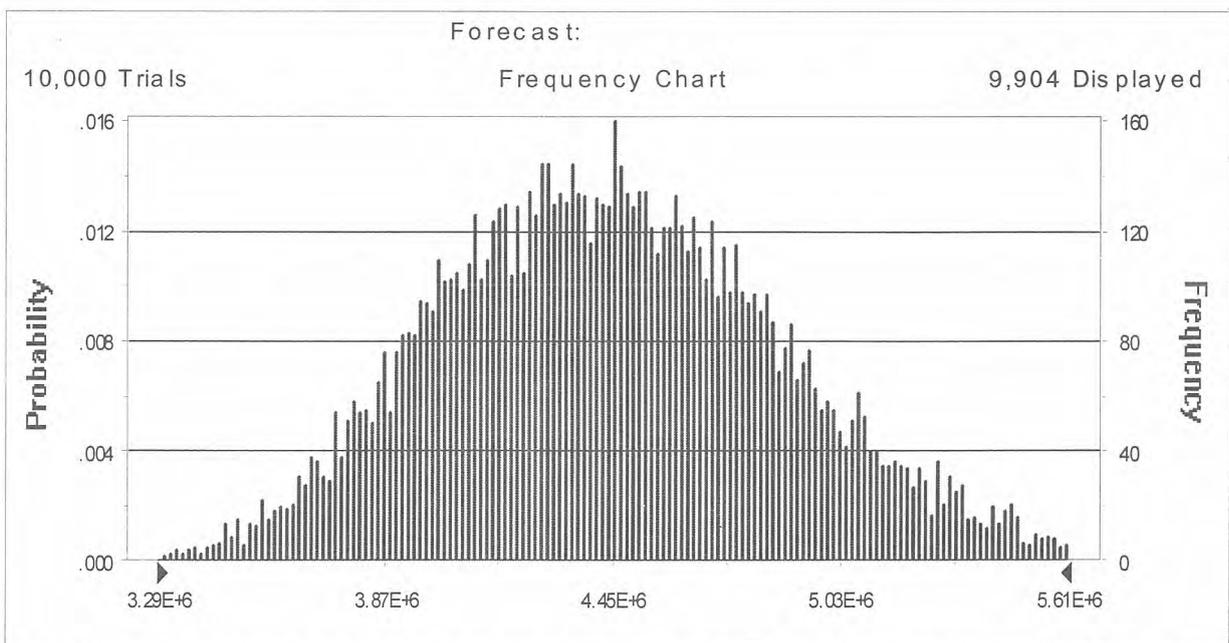


그림 1. 뱃치배출 액체유출물에 함유된 총방사능 평가결과의 확률분포(Crystal Ball®의 Monte Carlo법을 적용한 10,000회 모사결과)

최종 평가결과의 확률분포는 궁극적으로 전체 평가과정에 수반된 불확도에 대한 종합적인 정보를 제공할 뿐 아니라 제한치 대비 안전 여유도 및 제한치를 만족하는 사례(Case)의 누적 확률분포에 대한 정보를 제공함으로써 불확실성이 큰 안전성 평가결과에 대한

규제판단에 도움을 줄 수 있다. 본 논문에서 지금까지 평가된 결과는 액체유출물 배출 방사능 및 구성인자들에 대한 불확도에 대한 충분한 정보를 제공하고 있으나, 최종적인 배출방사능의 통계적인 분포를 규명하기 위해서는 추가적인 평가가 요구된다.

뱃치방식으로 환경으로 배출된 액체유출물 방사능은 정규분포를 갖는 각종 변수들(시료 방사능 계측값, 탱크의 배출전후 수위, 온도편차)과 직사각형분포를 갖는 변수들(비이커의 규격, 탱크 수위곡선)의 조합으로 구성되어 있다. 따라서 최종적인 배출방사능의 확률분포는 수식 (6)을 기준으로 하여 변수별 확률분포와 표 1에 제시된 변수별 범위를 이용하여 규명할 수 있다. 이를 위해 본 연구에서는 확률분포를 고려한 분석방법으로 Monte Carlo모사법을 적용하였고 상용 평가도구인 Crystal Ball[®]을 이용한 평가결과를 그림 1에 도시하였다. 그 결과 배출방사능의 확률분포는 왜도(Skewness)가 0.26로서 다소 왼쪽으로 편향된 정규분포를 보여주고 있으며, 첨도(Kurtosis)는 +3.0으로 정규분포 보다 다소 첨용성(Leptokurtic)을 나타내고 있다. 한편 가상적인 조건에서 확률분포의 범위는 2.92E+06~6.37E+06 Bq, 평균값 4.45E+06 Bq, 표준편차 4.45E+06 Bq 등으로 평가되었다. 한편 확률분포상 50퍼센타일 및 95퍼센타일에 해당하는 방사능은 각각 4.43E+06 Bq 및 5.23E+06 Bq으로 평가되었다.

4. 결 론

지금까지 단일 값으로 보고되고 있는 국내 발전용원자로의 액체폐기물 환경배출 방사능 평가결과에 포함된 불확도를 ISO의 평가지침에 근거하여 정량적으로 분석할 수 있는 원칙과 방법론을 도출하였다. 특히 국내 원전에서 가장 적용범위가 넓은 액체유출물 뱃치 배출방식을 기준으로 총방사능 평가결과의 불확도 평가모델을 개발하고, 특정한 조건하에서 주요 변수들의 불확도, 합성표준불확도 및 최종 결과의 확장불확도를 정량적으로 평가하였다. 본 논문에서 가정한 액체유출물 배출조건에서 환경배출 방사능 평가결과에 영향을 주는 인자들의 상대적인 중요도는 배출폐액의 체적, 시료의 체적, 시료의 총방사능 계측값 등의 순서인 것으로 분석되었다. 이를 통해 현재 국내 원전에서 방사성유출물관리 관련 요건에 따라 수행되고 있는 방사능계측기, 유량계기계열 또는 수위계기계열에 대한 주기적인 교정 및 점검은 환경배출 방사능 평가결과의 계통오차를 감소시키고 최종적인 평가결과의 불확도를 저감시키는데 중요한 역할을 하고 있음을 알 수 있다. 그러나 본 논문에서 평가된 개별 인자의 상대적인 우선순위는 절대적인 결과로 해석되지 않아야 하며 인자별 우선순위는 평가에 적용된 가정 및 조건에 따라 가변적임에 유의해야 한다. 따라서 특정 원전에서 일정 기간동안 배출된 액체방사성유출물의 방사능에 대한 불확도를 평가하기 위해서는 실제 현장의 액체유출물 감시조건을 반영한 평가가 수행되어야 한다. 또한 본 논문에서는 Monte Carlo모사법을 이용하여 개별 변수의 확률분포를 조합함으로써 뱃치방식으로 배출되는 액체유출물에 함유된 방사능의 확률분포를 유도하였으며, 그 결과 최종 배출방사능의 확률분포는 다소 편향성과 첨형성이 있는 정규분포를 갖는 것으로 나타났다.

본 논문의 평가결과는 환경배출 방사능 평가결과를 단일 값으로 간주해온 지금까지 관행에 개선의 필요성이 있음을 암시하고 있다. 또한 현장에서 방사성유출물 환경배출량 평가결과의 오차와 불확도를 자체적으로 평가하여 방사성유출물관리의 품질을 제고하기 위한 목적으로 활용될 수 있으며, 향후 개별 원자력이용시설 환경배출 방사능의 제한치 대비 안전여유도에 대한 확률론적 평가 등 규제검증 목적으로도 활용될 수 있을 것으로 기대된다. 이를 위해 향후 연속배출 및 복합시료에 대한 불확도 평가방법과 기체유출물에 대한 불확도 평가방법에 대한 추가적인 연구가 필요할 것으로 예상된다.

감사의 글

본 연구는 한국원자력안전기술원의 기본연구과제인 『원자력 이용시설의 방사성유출물에 대한 규제관리 개선방안 연구』의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

1. 과학기술부고시 제2002-23호, 방사선방호 등에 관한 기준, 2002.
2. 정재학, 방사선방호 및 폐기물 전문과정 - 방사성유출물관리, 한국원자력안전기술원, 2001.
3. 한국수력원자력(주), 영광5,6호기 배출물관리계획서, 2001.
4. 한국수력원자력(주), 원자력발전소 방사선관리연보, 2001.
5. US NRC, Measuring and Reporting Radioactivity in Solid Wastes and Releases of Radioactive Materials in Liquid and Gaseous Effluents from Light-Water-Cooled Nuclear Power Plants, Reg. Guide 1.21, 1974.
6. North Anna Power Station, Annual Radioactive Effluent Release Report for 2002, 2003.
7. US NRC, Monitoring and Reporting Radioactivity in Releases of Radioactive Materials in Liquid and Gaseous Effluents from Nuclear Fuel Processing and Fabrication Plants and Uranium Hexafluoride Production Plants, Reg. Guide 4.16, Rev.1, 1985.
8. American National Standard, Sampling and Monitoring Releases of Airborne Radioactive Substances from the Stacks and Ducts of Nuclear Facilities, ANS/HPS N13.1-1999.
9. Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement, ISO, 1995.
10. 한국표준과학연구원, 측정불확도 표현 지침, KRISS-99-070-SP, 1999.
11. 최종오 등, 국제규격에 따른 측정결과의 표현, 화학세계, Vol.40(4), pp.52-58 (2000).
12. American Society of Mechanical Engineers, Test uncertainty, ASME PTC 19.1-1998, 1998.
13. Guidelines for Evaluating and Expressing the Uncertainty of NIST Measurement Results, NIST Technical Note 1297, 1994.
14. ANSI N42.23, American National Standard Measurement and Associated Instrumentation Quality Assurance of Radioassay Laboratories, IEEE, 1997.
15. L.A. Bruckner, " Propagation of Variance Uncertainty Calculation for an Autopsy Tissue Analysis," Health Physics, 67(1): 24-33, 1994.
16. US NRC, Radiological Assessments for Clearance of Equipment and Materials From Nuclear Facilities, NUREG-1640, Draft (1999).
17. US NRC, Probabilistic Dose Analysis Using Parameter Distributions Developed for RESRAD and RESRAD-BUILD Codes, NUREG/CR-6676 (2000).

방사성폐기물 통합 관리 시스템

Radioactive Waste Integrated Management System

송덕용, 최성수, 한병섭
(주)액트

요 약

본 발명은 비 접촉방식으로 데이터 정보를 인식하는 RFID(Radio Frequency Identification) 시스템과, 위성으로부터 정확한 시간과 거리를 측정하여 현 위치를 정확히 계산하는 GPS와, 이동통신 분야에서 많이 사용되고 있는 대역확산 기술인 CDMA를 이용하여 원자력발전소 임시저장소로부터 방사성폐기물 처분장까지의 전 과정을 방사성폐기물 개별 드럼 단위로 원격 감시할 수 있는 방사성폐기물 통합 관리 시스템이다.

Abstract

In this paper, we present an integrated management system for radioactive waste, which can keep watch on the whole transporting process of each drum from nuclear power plant temporary storage house to radioactive waste storage house remotely. Our approach use RFID(Radio Frequency Identification) system, which can recognize the data information without touch, GSP system, which can calculate the current position precisely using the accurate time and distance measured from satellites, and the spread spectrum technology CDMA, which is widely used in the area of mobile communication.

1. 서 론

본 시스템은 비 접촉방식으로 데이터 정보를 인식하는 RFID(Radio Frequency Identification) 시스템과, 위성으로부터 정확한 시간과 거리를 측정하여 현 위치를 정확히 계산하는 GPS와, 이동통신 분야에서 많이 사용되고 있는 대역확산 기술인 CDMA를 이용하여 원자력발전소 임시저장소로부터 방사성폐기물 처분장까지의 전 과정을 방사성폐기물 개별 드럼 단위로 원격 감시할 수 있는 방사성폐기물 통합 관리 시스템이다. 또한 아래와 같은 바코드 기술의 제약성을 보완하고자 함이다.

첫째, 방사성폐기물 드럼에 대해 바코드를 이용한 드럼 관련 정보 판독의 경우, 바코드의 정보 저장능력 한계로 인해 서버(Server) 데이터베이스와 연결되어야만 정보 처리가 가능하기 때문에 지속적인 네트워크 안전성 유지의 부담이 있다.

둘째로, 바코드의 경우 내구성이 낮으며 인식률은 ~ 95% 수준으로 신뢰도가 높지 않은 편이며, 아울러 복수 개 바코드의 동시 인식이 불가능하고 인식 속도에도 수초가 소요되는 단점이 있다.

셋째로, 접촉식 또는 초단거리 비 접촉식 바코드 판독 방식에 의해 드럼 바코드 판독자의 방사선 피폭이 불가피하다. 이와 더불어 방사성폐기물 운송의 경우에도, 개별 방사성폐기물 드럼 단위의 감시가 아닌 운송수단의 위치 감시 수준에 머무르고 있어, 최신 IT 기술을 이용해 운송의 보안을 강화할 필요가 있다. 본 시스템은 상기한 제반 문제점을 해결하기 위해 안출된 것으로서, 그 목적은 RFID시스템을 기반으로 정보기기(노트북, PDA 등)를 이용한 방사성폐기물의 일상 감시 지원 및 원자력발전소로부터 방사성폐기물 처분장까지의 개별 방사성폐기물 드럼의 반출/운송/인수 관리를 자동화하고, GPS와 CDMA를 이용해 방사성폐기물 운송 과정을 원격 감시할 수 있으며, 상기의 두 기술의 통합에 의해 원자력발전소 임시저장소로부터 방사성폐기물 처분장까지의 전 과정을 방사성폐기물 개별 드럼 단위로 원격 감시할 수 있는 방사성폐기물 통합 관리 시스템을 제공하여 대국민 안전 및 이해를 제고시키는데 있다.

2. 방사성폐기물 통합 관리 시스템의 구성

가. 방사성폐기물 통합 관리 시스템의 기술구성

1. RFID(Radio Frequency Identification : 무선인식)

RFID 기술은 바코드 시스템과 마그네틱 카드시스템이 우리 생활에 밀접하게 이용되고 있으나 생산방식의 변화, 소비자 의식의 변화, 문화 및 기술의 진보, 바코드와 마그네틱 카드의 단점 해소 요구에 의해 개발된 시스템이다. RFID카드는 비접촉식 카드(Noncontact Card)로서, 다른 접촉식 카드와는 달리 이용자가 카드를 리더(READER)에 삽입하는 시간이 필요치 않으며 기계적인 접촉이 없기 때문에 마찰이나 손상이 없고 오염이나 환경의 영향이 적은 것이 특징이다. 그림 1은 RFID의 데이터 송수신 방식을 도식화한 것으로 안테나에서 지속적으로 전파를 발산하고 있고 데이터가 저장된 카드(TAG)가 그 전파 범위 안에 들어가면 자신이 지니고 있는 ID와 데이터를 안테나로 전송한다. 이때 안테나는 카드에서 전송된 ID를 데이터 신호로 변환하여 PC에 전송하고 PC는 미리 저장된 데이터베이스와 비교하여 필요한 서비스를 제공한다. 전파는 10 KHz ~ 300 GHz가 사용되는데 주로 저주파(134.2KHz)가 사용되고 있고 카드는 일반적으로 메모리 반도체와 코일 및 선택적으로 배터리(Battery)로 구성되며 64bits ~ 8kbytes까지 다양하게 사용되고 있다.

2. GPS(Global Positioning System)

GPS는 GPS단말기에 연결된 안테나로 인공위성을 연결해서 정보를 이용하는 서비스로서, 비행기·선박·자동차뿐만 아니라 세계 어느 곳에서든지 인공위성을 이용하여 자신의 위치를 정확히 알 수 있는 시스템이다. 그림 2는 GPS의 운용방식을 도식화한 것으로 위치 정보는 GPS수신기로 3개 이상의 위성으로부터 정확한 시간과 거리를 측정하여 3개의 각각 다른 거리를 삼각 방법에 의하여 현 위치를 정확히 계산할 수 있다.

3. CDMA(Code Division Multiple Access)

CDMA 시스템은 이동국과 기지국간의 무선망 접속방식을 코드 분할을 통해 사용자 다중 접속하는 방식으로 CDMA 이론은 1950년대에 정립되었고 1960년대에 군사적 무선 통신에 이미 사용되고 있었던 기술이다 사용자 신호가 특정 코드에 의해 곱해져서 실제 무선 매체를 통한 전송에 필요한 대역폭보다 훨씬 더 넓은 대역폭을 차지하면서 더 낮은 전력으로 전송되는 것이 특징이다.

수신자는 송신 측에서 사용한 똑 같은 코드를 가지고 역환산을 할 경우 송신 신호를 정확하게 복원이 가능한 기술이다. 이동국은 가입자가 이동통신망을 이용하여 통신할 수 있도록 하는 단말장치이고, 기지국은 이동국과 무선구간으로 연결되어 이동국을 제어하고 통화채널을 연결시켜주는 시스템이다. 이동국과 기지국을 연결시켜주는 인터페이스부분에서 IS-95에 따라 부호를 분할하여 통화채널을 구분해 준다.

나. 방사성폐기물 통합 관리 시스템의 기술 구성

1. 현장감시단계를 위한 기술 구성

방사성폐기물 통합 관리 시스템을 구축하기 위해 우선, RFID카드를 방사성폐기물 드럼에 부착 후, RFID카드의 64 kbits까지의 저장용량을 이용해 방사성폐기물 드럼 관련 정보를 부호화한 RFID코드를 집적 저장하고, 상기 방사성폐기물 드럼에 일정 거리 이내로 접근하였을 경우 상기 RFID카드에 기억된 RFID코드를 수신하는 수신기를 내장한 휴대 및 이동 가능한 정보기기(노트북, PDA 등)를 구비하여, 정보기기(노트북, PDA 등)를 이용해 무선으로 방사성폐기물 드럼을 일상 감시를 수행하도록 한다.

2. 반출감시단계를 위한 기술 구성

현장 사업소와 인수기관에는 방사성폐기물 드럼에 부착된 RFID카드로부터 방사성폐기물 드럼에 대한 관련 정보를 읽어 반출 및 인수 관리를 자동화할 수 있도록 RF Reader/Writer를 설치하고, 현장 사업소와 감독기관 및 인수기관 사이에 데이터를 송수신할 수 있도록 커뮤니케이션 키트를 구성하여, 처분을 위해 방사성폐기물 처분장으로서의 반출 시 RF Reader를 통해 방사성폐기물 관련 정보를 읽어 커뮤니케이션 키트(Communication Kit)를 이용해 감독기관에 보내며 반출 요청을 한 후, 감독기관의 반출승인을 받으면 반출 관련 정보를 RF Writer를 이용해 RFID카드에 기록하고, 또한 커뮤니케이션 키트를 이용해 현장 사업소의 데이터베이스에도 기록하는 구조로 반출 시스템을 구축한다.

3. 운송감시단계를 위한 기술 구성

운송감시단계를 수행하기 위한 기술구성을 그림 3과 그림 4에 도식화하였다. 방사성폐기물 드럼을 처분하기 위해 원자력발전소 현장에서 반출된 방사성폐기물 드럼(RFID카드 부착)을 방사성폐기물 처분장까지 운송할 운송수단에 GPS단말기와 CDMA 단말기를 장착한다. 기본적으로는 GPS 단말기(모듈)를 이용해 인공위성으로부터 운송수단의 위치정보1을 전송 받고, 지형/기후 등의 제약조건으로 인해 인공위성으로부터 위치정보1을 전송 받지 못하는 경우를 대비해 병행해서 CDMA 단말기(모듈)를 이용해 통신기지국으로부터 ±300m의 오차범위를 가지는 위치정보2를 전송 받아 대체 위치정보를 사용하도록 구성하고, 인공위성과 통신기지국으로부터 수신되는 신호의 감도에 따라 자동절체되도록 구성한다. 운송수단에 RF리더(READER)를 설치하여 방사성폐기물 드럼의 개별 정보를 무선으로 인식하도록 구성한다. GPS단말기와 CDMA 단말기로부터 위치정보를, RF리더로부터 방사성폐기물 드럼의 개별 정보를 입력받아 상황실 즉, 감독기관 및 인수기관에 전송하도록 구성된 CDMA 송신기가 내장된 송신단말기를 운송수단에 설치하여(그림 3 및 그림 4 참조), 위치정보와 방사성폐기물 드럼의 개별 정보를 CDMA 방식을 이용해 통신기지국을 통해 무선으로 원격감시 상황실 즉, 감독기관 및 인수기관에 전송하는 구조로 운송 시스템을(그림 4 참조)을 구축한다.

4. 인수감시단계를 위한 기술 구성

방사성폐기물 드럼이 처분장(인수기관)에 도착하면 방사성폐기물 드럼 관련 정보를 RF Reader를 통해 RFID카드로부터 판독하고, 또한 인수 관련 정보를 RF Writer를 통해 RFID카드에 기록 및 커뮤니케이션 키트를 이용해 인수기관의 데이터베이스에도 기록하며, 또한 커뮤니케이션 키트를 이용해 감독기관에 인수완료 보고를 수행하도록 인수 시스템을 구축한다.

3. 방사성폐기물 통합 관리 시스템의 운용 방법

가. 현장감시단계에서의 운용 방법

현장감시단계는 방사성폐기물 드럼별로 RFID를 부착한 후, 정보기기(노트북, PDA 등)를 이용해 무선으로 일상 감시를 수행한다. 방사성폐기물 드럼별로 RFID카드를 부착한 후, 정보기기(노트북, PDA 등)를 이용해 무선으로 일상 감시를 수행하는 단계이다.

나. 반출감시단계에서의 운용 방법

반출감시단계는 방사성폐기물 처분을 위해 방사성폐기물 처분장으로서의 반출 시 RF Reader를 통해 방사성폐기물 관련 정보를 읽어 커뮤니케이션 키트(Communication Kit)를 이용해 감독기관에 보내며 반출 요청을 한 후, 감독기관의 반출승인을 받으면 반출 관련 정보를 RF Writer를 이용해 상기 RFID카드에 기록하고, 커뮤니케이션 키트를 이용해 현장 사업소의 데이터베이스에 기록하여 방사성폐기물 드럼을 개별적으로 감시하는 단계이다.

다. 운송감시단계에서의 운용 방법

운송감시단계에서는 운송수단을 이용해 방사성폐기물 드럼 운송 시 운송수단의 위치정보와 RFID로부터 판독된 방사성폐기물 드럼 관련 정보를 통신기지국을 통해 감독기관 및 인수기관에 전송한다. 운송수단을 이용해 방사성폐기물 드럼 운송 시 운송수단의 위치정보와 방사성폐기물 드럼에 부착된 RFID카드로부터 판독된 방사성폐기물 드럼 관련 정보를 통신기지국을 통해 감독기관 및 인수기관에 전송하여 원격감시 상황실(감독기관 및 인수기관)에서 방사성폐기물 드럼을 감시하는 운송감시단계이다. 운송감시단계에서는 GPS단말기(모듈)를 이용해 인공위성으로부터 운송수단의 위치정보를 전송 받는 단계와, 지형/기후 등의 제약조건으로 인해 인공위성으로부터 위치정보를 전송 받지 못하는 경우에 대비해 병행해서 CDMA단말기(모듈)를 이용해 통신기지국으로부터 $\pm 300\text{m}$ 의 오차범위를 가지는 대체 위치정보를 전송 받는다.

상기와 같은 시스템 구성을 이용하여 감독기관에서에서는 방사성폐기물 드럼의 반출, 운송 및 인수시의 모든 위치정보 및 방사성폐기물에 대한 관련 정보가 데이터베이스에 저장되어 상기 방사성폐기물 드럼을 통합 관리하게 된다.

라. 인수감시단계에서의 운용 방법

방사성폐기물 드럼이 처분장에 도착하면 방사성폐기물 드럼 관련 정보를 RFID로부터 판독하며 또한 인수 관련 정보를 RF Writer를 통해 RFID에 기록 및 커뮤니케이션 키트를 이용해 인수기관의 데이터베이스에도 기록한다. 또한 커뮤니케이션 키트를 이용해 감독기관에 인수완료 보고를 수

행한다.

인수완료 보고 후 상기 현장감시단계와 같이 정보기기(노트북, PDA 등)를 이용해 무선으로 일상 감시를 수행한다.

4. 결 론

이상에서 설명한 바와 같이 본 발명에 따른 RFID와 GPS/CDMA를 이용한 방사성폐기물 통합 관리 시스템에 의하면, RFID의 64 kbits까지의 정보 저장용량으로 인해 서버 데이터베이스와 연결 없이 방사성폐기물 드럼 관련 정보의 직접 저장이 가능하고, RFID를 이용하여 내구성이 높으며 인식률은 99.9% 이상의 높은 신뢰도를 가지며, 아울러 복수개 RFID의 동시 인식이 가능하며 인식에도 0.01 ~ 0.1초밖에 소요되지 않는 장점이 있고, RFID의 복제가 불가능하여 보안성이 크게 향상될 것으로 기대된다. 또한, 비접촉식 원거리(~ 10m 까지) 판독 기능에 의해 판독을 자동화할 수 있으므로 해서, 판독자의 피폭 가능성을 방지할 수 있으며, 방사성폐기물 반출/운송/인수 과정에서, 폐기물 개별 드럼 위치 및 관련 정보의 원격 확인에 의해 원활한 감시 및 작업 통제 수단을 확보할 수 있는 효과가 있다.

5. 참고문헌

- [1] Adel S. Sedra, Kenneth C. Smith, "Micro-electronic circuits", Oxford university press, 1998
- [2] 박세현, "VHDL 기본과 활용", 도서출판 그린, 1998
- [3] "Microchip, microID 125kHz RFID System Design Guide", 1998
- [4] 김철수, 노영준, 홍언식, "전자회로", 음사, 1988
- [5] Albert Paul Malvino, "Electronic principles", McGraw-Hill, 1996
- [6] IEEE 802.11 standard, "Wireless LAN medium access control (MAC) and physical layers(PHY) specifications", 1997.
- [7] IEEE 802.15.3 draft standard, "Wireless Medium Access Control (MAC) and Physical Layer (PHY) Specifications for High Rate Wireless Personal Area Networks (WPAN)", Oct. 2002.
- [8] HomeRF, "Technical summary of the SWAP specification", February 1999.
- [9] T. H. Wu and E. Geraniotis, "CDMA with multiple chip rates for multi-media communications", in Proc. Information science and system, pp.992-997, 1994
- [10] 안호성, 류승문, 나성웅, "binary CDMA 소개", JCCI, VI-A.1.1-4, April 2002.
- [11] 조진웅, 주민철, 서경학, 류승문 "WPAN용 Binary CDMA기술", 한국통신학회지, May 2002.
- [12] 정영태, 김민호, 김명돈, 홍성일, 변건식, 정만영 "GPS 데이터 수신을 위한 하드웨어 설계", 전자공학회 논문지-A 32호 8-18페이지, Ooc. 1995.
- [13] 강성길, 유홍균 "GPS 수신기용 역확산 지연 동기 루프의 FPGA 회로 구현과 성능 분석", 한국통신학회 논문지 22호 506-514페이지 - 1997.03.발행
- [14] 홍성일, 이정호, 변건식, 정만영 "RF 수신부를 내장한 GPS 안테나 시스템의 설계 및 제작", 전자공학회 논문지 - A 33호 99-107페이지 - 1996.06.발행

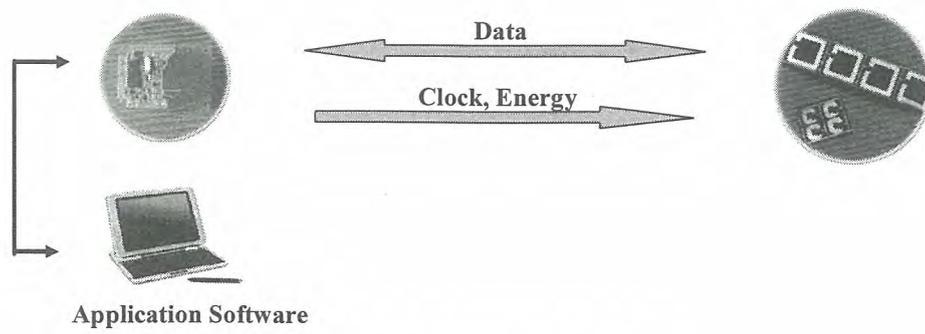


그림 1. RFID의 구성

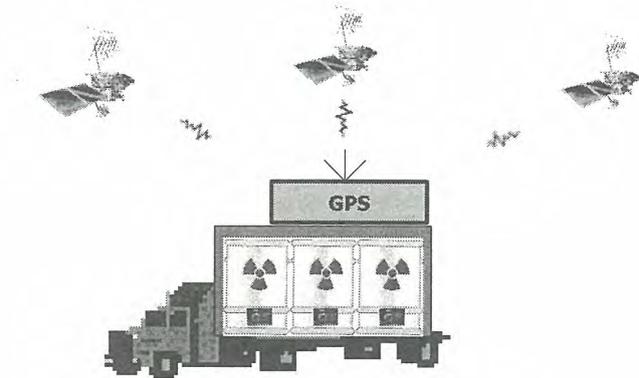


그림 2. GPS의 응용

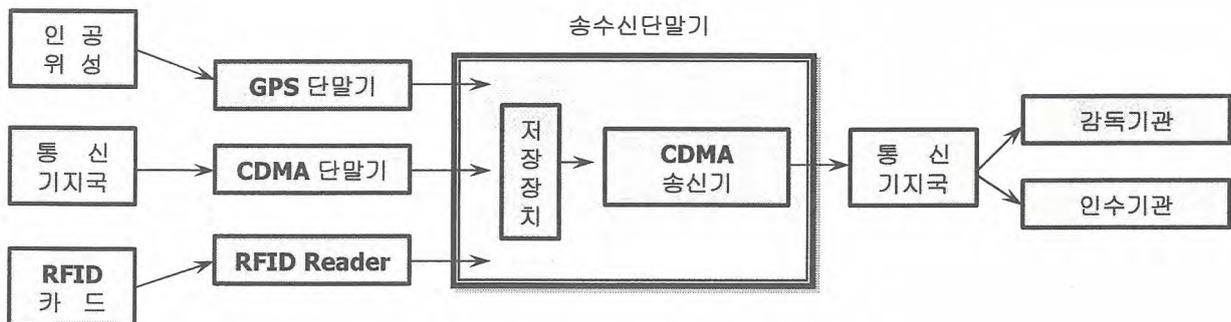


그림 3. 방사성폐기물 운송 시스템 블록도

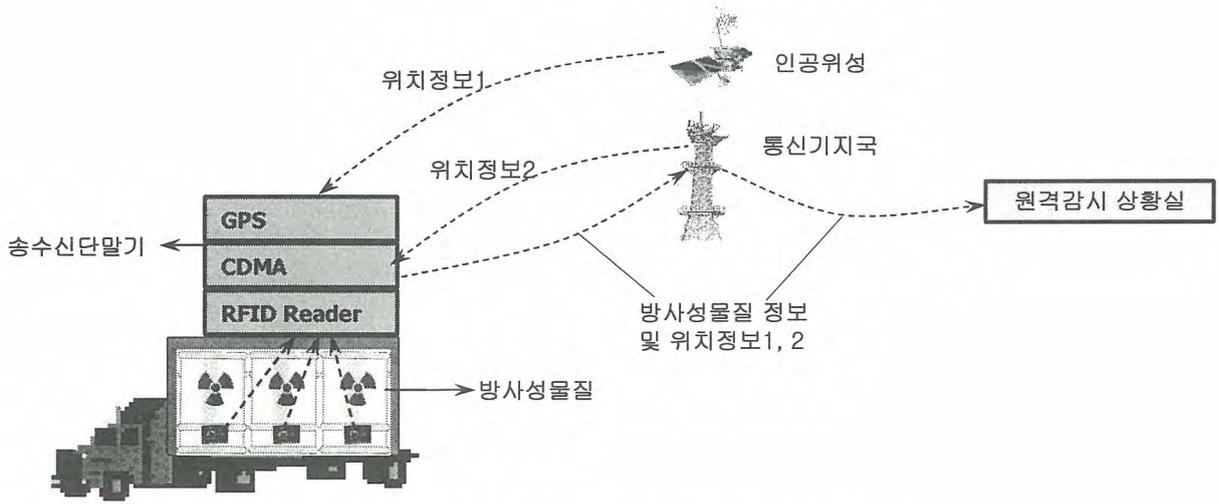


그림 4 방사성 폐기물 드럼의 운송 과정

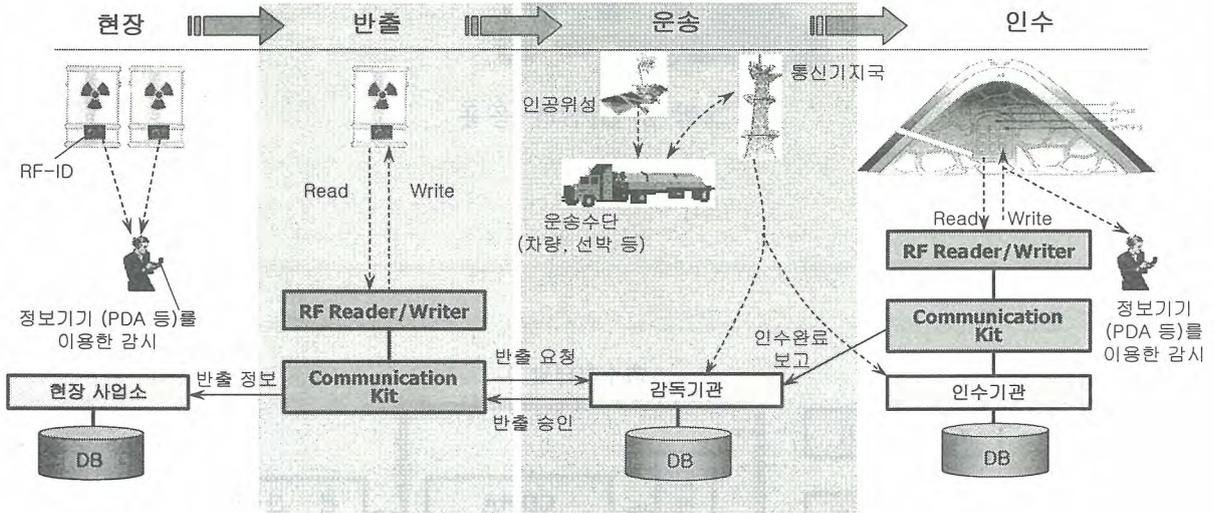


그림 5. 방사성 폐기물 통합 관리도

방사성요오드의 내부피폭 선량평가 코드 비교계산

Comparison of Internal Dose Assessment due to Intake of I-131

김은주, 김희근, 하각현, 이형석
한진 전력연구원

요 약

본 연구는 원자력발전소에서 방사선작업에 따른 I-131 흡입후 전신선량계측(Whole Body Counter : WBC)한 결과에 따라 각 내부피폭 선량평가 코드를 이용하여 섭취량과 예탁유효선량(CED : Committed Effective Dose)을 계산하였다. 여기에는 국내에서 개발된 KIDAC 코드, 일본의 MONDAL 코드, 영국의 LUDEP 코드와 IMBA 코드가 이용되었다.

Abstract

This study was to compare the Intake and Committed Effective Dose(CED) due to inhalation of I-131. The Intake and CED Calculations were based on KIDAC, LUDEP, MONDAL and IMBA computer codes.

1. 개 요

1990년말 국제방사선방호위원회(ICRP : International Commission on Radiological Protection)는 작업종사자에 대한 방사선방호 지침을 새로이 개정하여 권고하였다[1]. 내부피폭 선량평가에서도 ICRP 30에 대해 호흡기모델의 보완작업을 수행하였고, 그 결과 1994년에는 새로운 호흡기모델인 ICRP 66을 발표하였다. ICRP 66은 모델의 각 부분 즉 형태학, 생리학, 침적, 제거 및 방사선 효과 등에 대한 자료를 검토한 결과에 근거하여 ICRP 30의 모델을 개정한 것이다[2,3]. 새로운 모델에서는 호흡기관을 방사선 생물학적 측면, 기능, 침적 및 제거의 차이를 고려하여 그림 1과 같이 4개의 구역으로 Extrathoracic airway(ET)는 ET_1 (Anterior nasal passage)와 ET_2 (Posterior nasal, Oral passage, Pharynx, Larynx)로 구분하고 Thoracic airway는 BB(Bronchial), bb(Bronchiolar), AI(Alveolar-Interstitial)로 구분하였다. 임파절은 Extrathoracic(LN_{ET}) 및 Thoracic(LN_{TH}) airway별로 각 1개씩 구분하고 있다. 동 모델은 ICRP 30 모델의 TB 지역을 BB 및 bb 지역으로 좀더 세분하였다. ICRP 30모델에서는 임파절 격실을 P지역에만 둔 데 비해 새로운 모델에서는 이를 확대하여 Extrathoracic 및 Thoracic airway에 각 1개의 임파절 격실을 두었다[3,4].

2. 내부피폭 선량평가 코드 비교

KIDAC은 국내에서 개발된 내부피폭 선량평가 코드로 Windows 버전 프로그램에서 구동되며 한

화면에서 입출력이 진행되는 형태로 사용법이 용이하게 구성되어 있다[5]. 섭취경로는 원전 작업 종사자만을 대상으로 하여 흡입경로만을 고려하였고, 섭취형태로는 급성 단일/반복섭취, 만성섭취가 있다. 프로그램 상에 체내의 측정치(대변, 소변, 폐, 갑상선, 전신)를 입력하면 섭취량과 CED이 계산되어 출력되고, 저장파일 내에는 감시 일자, 이름, ID, 부서, 핵종, 섭취량, CED을 저장할 수 있다. 적용된 대사모델은 ICRP 66 호흡기모델, ICRP 30 소화기모델, ICRP 56/67/69 신진대사모델이며, 계산된 섭취량과 선량환산계수를 사용하여 CED을 평가한다. 핵종 라이브러리는 ICRP의 각종 인자들의 값을 권고값으로 주어지나, 어느 인자도 개별적으로 변경 가능하다. 계산에 사용된 해법은 Birchall 알고리즘을 이용하고, 미분방정식의 해는 MathCAD 프로그램을 사용하고 있다. 선택된 핵종의 입자크기는 보통 $1\mu\text{m}$, $3\mu\text{m}$, $5\mu\text{m}$, $10\mu\text{m}$ 이며, 섭취후 24시간 미만에서의 섭취량 및 CED을 구할 수 있는 핵종의 경우도 있다.

MONDAL(MONitoring to Dose cALculation)은 일본 NIRS에서 개발된 내부피폭 선량평가 코드로 KIDAC 코드와 유사하게 Windows 버전 프로그램이며 한 화면에서 입출력이 진행되는 형태로 구성되어 있다. 방사성핵종 섭취후 측정시간은 시간(h) 단위가 아닌 일(day)정수 단위로 구성되어 있고, 핵종별 반감기 및 방사선 yeild 등의 핵종자료가 표시된다. 또한, 방사성핵종의 흡입 혹은 섭취시 개인별 선량평가에 있어서 작업자에서 일반인까지 확대 적용하여 선량계산을 할 수 있다. 적용된 대사모델에서 호흡기모델은 ICRP 66을 사용하고, 신진대사모델은 ICRP 30/56/67/69/71에 근거하며 소화기모델은 ICRP 30에 바탕을 두어 계산된다. 선택한 핵종의 입자크기는 보통 $0.1\mu\text{m}$, $0.3\mu\text{m}$, $1\mu\text{m}$, $3\mu\text{m}$, $5\mu\text{m}$, $10\mu\text{m}$ 이고, 섭취후 24시간 미만에서의 섭취량 및 CED 값은 계산할 수 없다.

LUDEP(LUng Doses Evaluation Program)은 영국 NRPB에서 개발된 내부피폭 선량평가 코드로 ICRP 66에서 권고된 호흡기모델을 바탕으로 개발된 코드이며 IBM-PC 호환기종에서 구동되는 DOS 버전의 코드로서 ICRP 66에서 권고하는 인체 호흡기모델에 바탕을 두고 있다. 이 코드는 말핵이 미치는 영향을 고려한다거나 시간단위의 결과값을 출력할 수 있지만 사용법이 복잡하다는 단점이 있다. 섭취경로 및 섭취형태는 사용자가 임의 조작이 가능하다. ICRP 권고를 따르며, 대사모델은 ICRP 66에 근거한다. 방사성핵종 섭취로 인한 호흡기 계통이나 체내 조직기관에의 선량과 선량률은 사용자가 조건들을 선정하여 구할 수 있도록 하였고, 결과값은 유효선량으로 제시된다.

IMBA(Integrated Modules for Bioassay Analysis)는 LUDEP 코드를 개정하여 ICRP 권고 모델에 맞게 upgrading한 Windows 버전 프로그램으로 영국 NRPB(National Radiological Protection Board)에 소유권이 있다. 체내에 유입된 단일 및 다중 방사능핵종에 대한 선량평가가 가능한 프로그램으로 ICRP에서 현재 권고하고 있는 호흡기모델, 소화기모델, 신진대사모델 등을 ICRP 68 표준작업자를 권고로 하여 선량평가를 하고 있다. 선택한 핵종의 입자크기는 ICRP에서 권고하고 있는 $5\mu\text{m}$ 를 대표적으로 사용하고 있으나 사용자가 인자들을 개별적으로 변경가능 하도록 되어있다. 그러나, 섭취후 24시간 미만에서의 섭취량 및 CED 값이나 기체(Elemental) I-131이 입자로 흡입될 때의 선량평가 값은 계산할 수 없는 단점이 있다.

3. 비교 계산결과

각 프로그램에서의 입출력결과물 값을 비교해 보기 위하여 I-131 섭취후 3시간 후 WBC 계측시(측정값 : 18,170Bq 기준) 및 섭취후 12일 후 WBC 계측시(측정값 : 5,786Bq 기준)의 결과를 각 프로그램 코드별로 나타내어 살펴보았다. KIDAC 코드에서는 I-131에 대한 Thyroid 및 Whole body, 기체(Elemental)의 섭취량 및 CED 값을 구할 수 있으나, MONDAL, IMBA, LUDEP 코드에서는 공통적으로 $5\mu\text{m}$, Thyroid 값만을 계산할 수 있다[6,7]. 이는 코드 중 일시별, 입자별 구분 및 I-131에 대한 Whole body의 IRF(Intake Reduction Factor), DCF(Dose Conversion Factor) 등이 나타나 있지 않기 때문으로 파악된다. 각 코드별로 I-131의 섭취후 12일 후 WBC 계측시(측정값 : 5,786Bq 기준) $5\mu\text{m}$, Thyroid의 결과값을 비교한 결과 KIDAC에서의 섭취량과 CED 값은 각

각 $1.246E+5$ Bq, $1.370E+0$ mSv, MONDAL에서는 각각 $1.2E+05$ Bq, $1.4E+0$ mSv LUDEP에서는 $1.14E+05$ Bq, $1.193E+0$ mSv, IMBA에서는 $1.239E+05$ Bq, $1.30E+00$ mSv으로 나타났다. 또한 KIDAC 코드는 부가적으로 타 코드에 비해 핵종 섭취후 24시간미만 선량측정 옵션과 Iodine의 경우 Thyroid 및 Whole body에서의 섭취량 및 CED 측정이 가능하며, 기체(Elemental) I-131의 흡입에 따른 선량평가 결과도 계산할 수 있다.

4. 기존 평가코드(KIDAC) 문제점 및 개정

본 논문은 ICRP 66/78 등의 새로운 호흡기모델과 감시지침을 적용하여 개발한 각종 내부피폭 선량평가 코드에 대하여 비교계산을 수행하였다. 특히 KIDAC 코드는 원자력발전소에서 방사성물질 흡입후 수시간 내에 WBC 측정이 불가피한 상황을 고려하여 방사성물질 흡입/섭취후 24시간 이내 방사능 측정자료를 이용한 내부피폭선량을 평가할 수 있도록 코드를 개정하였다[7]. 이 경우 Iodine 흡입후 작업자는 Portal Monitoring과 Whole Body Counting을 하게 되며 이 경우 흡입에서 측정까지 수시간 만에 이루어진다. 그러나 ICRP에서 요오드의 경우는 Whole Body Geometry에 해당되는 IRF를 제공하지 않고, Thyroid Geometry에 해당되는 IRF만을 ICRP 78에서 제공하고 있다. 그러므로 KIDAC 코드에서 Thyroid IRF를 이용하여 CED을 계산했을 때의 측정 Geometry와 평가 Geometry가 일치하지 않는 문제점이 있었다. 이는 영국 NRPB가 개발한 LUDEP 코드에서도 동일하게 나타나고 있는 문제이기도 하다. 이에 따라 Iodine 흡입후 24시간 이전 WBC 측정시 나타난 KIDAC 코드의 화학형과 섭취잔류분을 등을 수차례에 걸쳐 보완하여 Thyroid IRF 이외에 Whole Body IRF와 화학형으로 Elemental을 추가하였으며, 이 경우에 해당하는 DCF(Dose Conversion Factor)를 추가하여 CED을 계산하도록 하였다. 또한 I-131의 흡입후 24시간미만 측정시에도 화학형으로 Elemental Iodine에 대한 IRF와 DCF도 추가하여 CED를 계산할 수 있도록 하였다.

참 고 문 헌

- [1] 과학기술부 고시 제2002-1호 “방사선방호 등을 정하는 기준”, 2002
- [2] ICRP, “Limits for intakes of Radionuclides by Worker”, ICRP Publication 30 part 1, pergamon Press, Oxford, 1978
- [3] ICRP, “Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection”, ICRP Publication 66, pergamon Press, Oxford, 1993
- [4] ICRP, “Individual Monitoring for Internal Expose of Workers Replacement of ICRP Publication 54”, ICRP Publication 78, pergamon Press, Oxford, 1997
- [5] 제1회 방사선안전 평가기술 심포지움, KINS, 2002.8
- [6] 제2회 방사선안전 평가기술 심포지움, KINS, 2003.7
- [7] 제8회 방사선피폭최소화 워크샵(ALARA WORKSHOP), KHNP, 2003.7.

감사의 글

본 논문은 과학기술부 원자력증장기사업 “방사선 피폭저감 기술개발”의 일환으로 수행되었습니다.

표 1. 각 코드에서의 섭취량과 예탁유효선량

측정시간	IRF	흡수형태 및 입자크기	Code	Intake(Bq)	예탁유효선량 (mSv)
I-131 섭취후 3시간 후 측정 (18,170Bq)	Thyroid	Type F, 1 μ m	KIDAC1.2	7.125E+5	5.415E+0
			MONDAL2.0x	-	-
			LUDEP2.0	6.27E+05	4.802E+0
			IMBA	-	-
		Type F, 5 μ m	KIDAC1.2	5.251E+5	5.777E+0
			MONDAL2.0x	-	-
			LUDEP2.0	4.72E+05	4.939E+0
			IMBA	6.934E+05	7.28E+0
		Vapor, Elemental	KIDAC1.2	2.716E+5	5.432E+0
			MONDAL2.0x	-	-
			LUDEP2.0	-	-
			IMBA	-	-
	Whole Body	Type F, 1 μ m	KIDAC1.2	4.000E+4	3.040E-1
			MONDAL2.0x	-	-
			LUDEP2.0	-	-
			IMBA	-	-
		Type F, 5 μ m	KIDAC1.2	2.500E+4	2.750E-1
			MONDAL2.0x	-	-
			LUDEP2.0	-	-
			IMBA	-	-
		Vapor, Elemental	KIDAC1.2	2.043E+4	4.086E-1
			MONDAL2.0x	-	-
			LUDEP2.0	-	-
			IMBA	-	-
I-131 섭취후 12일 후 측정 (5,786Bq)	Thyroid	Type F, 1 μ m	KIDAC1.2	1.636E+5	1.243E+0
			MONDAL2.0x	1.7E+05	1.3E+0
			LUDEP2.0	1.55E+05	1.187E+0
			IMBA	-	-
		Type F, 5 μ m	KIDAC1.2	1.246E+5	1.370E+0
			MONDAL2.0x	1.2E+05	1.4E+0
			LUDEP2.0	1.14E+05	1.193E+0
			IMBA	1.239E+05	1.30E+0
		Vapor, Elemental	KIDAC1.2	6.643E+4	1.329E+0
			MONDAL2.0x	6.6E+04	1.3E+0
			LUDEP2.0	-	-
			IMBA	-	-
	Whole Body	Type F, 1 μ m	KIDAC1.2	1.516E+5	1.152E+0
			MONDAL2.0x	-	-
			LUDEP2.0	-	-
			IMBA	-	-
		Type F, 5 μ m	KIDAC1.2	1.154E+5	1.270E+0
			MONDAL2.0x	-	-
			LUDEP2.0	-	-
			IMBA	1.149E+05	1.21E+0
		Vapor, Elemental	KIDAC1.2	-	-
			MONDAL2.0x	-	-
			LUDEP2.0	-	-
			IMBA	-	-

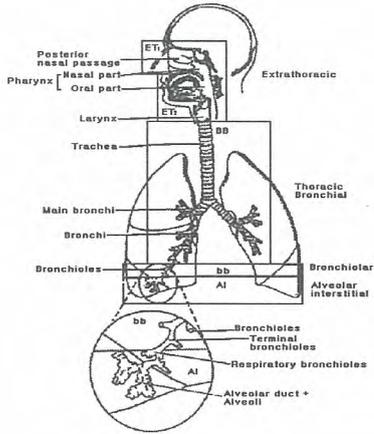


그림 1. ICRP 66 호흡기모델

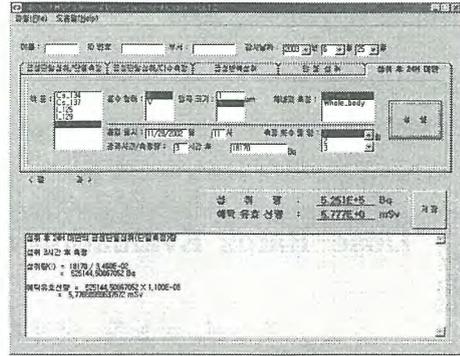


그림 2. I-131 Type F(5 μ m, Thyroid) 기준 섭취 3시간 후 섭취량과 CED - KIDAC

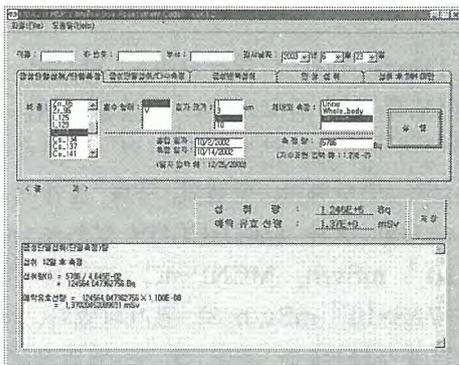


그림 3. I-131 Type F(5 μ m, Thyroid) 기준 섭취 12일 후 섭취량과 CED - KIDAC

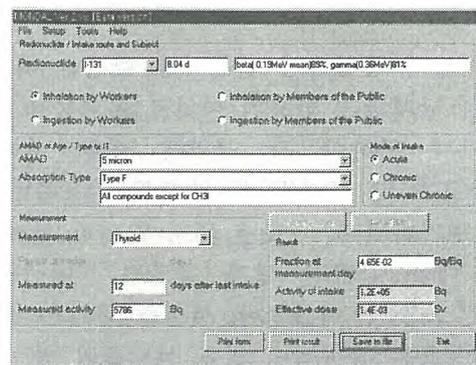


그림 4. I-131 Type F(5 μ m, Thyroid) 기준 섭취 12일 후 섭취량과 CED - MONDAL

Organ	Equivalent Dose	UI	Weighted Equiv Dose
Breasts	1.997E-05 Sv	0.050	9.987E-07 Sv
Stomach wall	4.177E-05 Sv	0.120	5.013E-06 Sv
Bliver	1.267E-05 Sv	0.050	6.335E-07 Sv
Lungs	4.593E-05 Sv	0.120	5.512E-06 Sv
Gonads	1.641E-05 Sv	0.200	3.282E-06 Sv
Bone marrow	3.397E-05 Sv	0.120	4.076E-06 Sv
Bone surfaces	1.861E-05 Sv	0.010	1.861E-07 Sv
Skin	2.252E-05 Sv	0.010	2.252E-07 Sv
Thyroid	9.824E-02 Sv	0.050	4.912E-03 Sv
Urinary bl wall	1.574E-05 Sv	0.050	7.868E-07 Sv
Colon	1.677E-05 Sv	0.120	2.012E-06 Sv
Oesophagus	4.188E-05 Sv	0.050	2.094E-06 Sv
Remainder	3.907E-05 Sv	0.050	1.953E-06 Sv
Effective Dose			4.937E-03 Sv

그림 5. I-131 Type F(5 μ m, Thyroid) 기준 섭취 3시간 후 섭취량과 CED - LUDEP20

Organ	Equivalent Dose	UI	Weighted Equiv Dose
Breasts	4.824E-06 Sv	0.050	2.412E-07 Sv
Stomach wall	1.087E-05 Sv	0.120	1.304E-06 Sv
Bliver	4.267E-06 Sv	0.050	2.134E-07 Sv
Lungs	1.061E-05 Sv	0.120	1.273E-06 Sv
Gonads	3.964E-06 Sv	0.200	7.928E-07 Sv
Bone marrow	8.082E-06 Sv	0.120	9.698E-07 Sv
Bone surfaces	9.326E-06 Sv	0.010	9.326E-08 Sv
Skin	5.439E-06 Sv	0.010	5.439E-08 Sv
Thyroid	2.297E-02 Sv	0.050	1.148E-03 Sv
Urinary bl wall	1.801E-05 Sv	0.050	9.005E-07 Sv
Colon	3.731E-06 Sv	0.120	4.477E-07 Sv
Oesophagus	1.152E-05 Sv	0.050	5.761E-07 Sv
Remainder	9.436E-06 Sv	0.050	4.718E-07 Sv
Effective Dose			1.193E-03 Sv

그림 6. I-131 Type F(5 μ m, Thyroid) 기준 섭취 12일 후 섭취량과 CED - LUDEP20

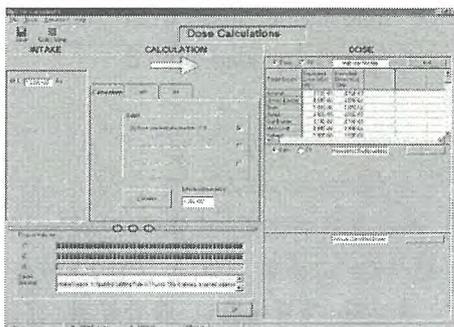


그림 7. I-131 Type F(5 μ m, Thyroid) 기준 섭취 12일 후 섭취량과 CED - IMBA

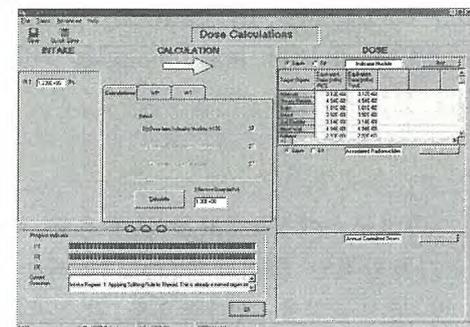


그림 6. I-131 Type F(5 μ m, WB) 기준 섭취 12일 후 섭취량과 CED - IMBA

핫셀시설의 방사선 안전성 평가

Dose-Rates Evaluation on a Reinforced Hot Cell facility

조일제, 국동학, 구정희, 정원명, 유길성, 이은표, 박성원
한국원자력연구소

요 약

차세대관리 종합공정 실증시설 핫셀은 최대 1,385 TBq의 선원의 취급시에도 방사선 선량율을 법규에서 규제하는 허용치 이하로 차폐능을 가질 수 있도록 설계되고 있다. 선량 제한 설계치를 만족시키기 위하여 각 구역에 대한 차폐보강 방안이 수립되었으며, 이의 검증을 위하여 QAD-CGGP 및 MCNP-4C 코드를 이용하여 차폐 계산을 수행하여, 핫셀의 차폐 설계에 대한 안전성을 평가하였다. 핫셀 외벽에 대한 차폐 평가를 수행한 결과, QAD-CGGP 코드에 의한 작업 구역에 대한 감마선 평가 결과는 2.10×10^{-3} , 2.97×10^{-3} mSv/h, MCNP-4C 코드는 1.60×10^{-3} , 2.99×10^{-3} mSv/h 이었으며, 서비스 구역은 1.01×10^{-2} , 7.88×10^{-2} mSv/h 로 평가되었다. 중성자에 의한 선량률은 감마선에 의한 선량률의 약 20% 이하치를 나타내는 것을 알 수 있었으며, 차폐벽의 각종 Penetration 및 Toboggan의 경우 부분적인 납 차폐보강이 필요하였다.

Abstract

The hot cell facility which is designed to permit safe handling of source materials with radioactivity levels up to 1,385 TBq, is planned to be built. To meet this goal, the facility is designed to keep gamma and neutron radiation lower than the recommended dose-rate in normally occupied areas. The calculations performed with QAD-CGGP and MCNP-4C are used to evaluate the proposed engineering design concepts that would provide acceptable dose-rates during a normal operation in hot cell facility. The maximum effective gamma dose-rates on the surfaces of the facility at operation area and at service area calculated by QAD-CGGP are estimated to be 2.10×10^{-3} , 2.97×10^{-3} and 1.01×10^{-1} mSv/h, respectively. And those calculated by MCNP-4C are 1.60×10^{-3} , 2.99×10^{-3} and 7.88×10^{-2} mSv/h, respectively. The dose-rates contributed by neutrons are one order of magnitude less than that of gamma sources, and penetration and toboggan will be partly reinforced by lead shield.

서 론

한국원자력연구소에서는 고온의 용융염 매질 하에서 사용후핵연료에 포함되어 있는 우라늄 산화물을 전기화학적 방법에 의하여 우라늄 금속을 환원시켜, 고준위 방사능물질인 사용후핵연료의 부피 및 방사능양을 획기적으로 감소시켜 저장하는 개념인 차세대관리 종합공정 기술개발 연구를 수행중이다[1]. 그리고 차세대관리 종합공정의 실증시험을 수행하기 위해서는 고단위의 방사선 차폐능이 확보된 특수한 시험시설인 핫셀이 절대 필수적이라 할 수 있다. 신규로 핫셀 시설

을 확보하기 위해서는 많은 재원과 인력 및 시간이 소요되므로 현재 한국원자력연구소 조사재시험시설 (IMEF) 지하에 위치한 기존 핫셀을, 차세대관리 종합공정 특성에 적합하게 개조하여 공정의 실증시험을 위한 핫셀 시설로 활용할 예정이다. 현재 핫셀은 일부 콘크리트 구조물 및 기본 유틸리티들이 설치되어 있으며, 차세대관리 종합공정에서 다루는 방사능양이 기존 시설의 설계치보다 높기 때문에 차폐벽 보강이 필요한 상태이다.

현재 핫셀의 사양으로서 외벽은 중량 콘크리트 80 cm로 타설되어 있으며, 내부공간은 11 m(길이) × 2 m(폭) × 4.55 m(높이)이며, 현재 중량콘크리트가 설치되어 있는 외벽들은 Fe-59(1.2 MeV) 1.3 TBq 선원 기준을 만족하도록 설계, 시공되어 있다.

현재 핫셀이 위치하고 있는 조사재 시험시설의 기존 핫셀 구역은 3개의 방사선 구역으로 나누어 관리되고 있으며, 본 차세대관리 종합공정 실증을 위한 핫셀의 경우 기존에 설치되어 있는 핫셀을 보강하는 개념이므로, 차폐 설계기준으로 기존 시설과 동일하게 기준을 적용하였다.

방사선 선량을 설계 기준치는 상시 운전구역인 7000구역의 경우 0.01 mSv/h, 작업구역인 8000구역은 0.15 mSv/h로 설정하였다.

본 연구에서는 차세대관리 종합공정 방사선원을 기준으로 기존 시설의 차폐 보강 설계에 대한 차폐 평가를 수행하였으며, 차폐 평가에는 차세대관리 종합공정의 방사선원 분석, 감마 및 중성자 선원 스펙트럼, QAD-CGGP[2] 및 MCNP-4C[3] 코드를 이용한 차폐 해석 및 핫셀의 차폐 설계에 대한 평가를 포함하고 있다.

차세대관리 종합공정 방사선원 분석

차세대관리 종합공정에서 취급되는 기준 방사선원은 경수로에서 배출된 우라늄-235의 농축도는 3.5 wt%, 연소도는 43 GWd/tU 이며 냉각기간은 10년인 사용후핵연료를 기준으로 삼았으며, 차폐 계산에 사용된 최대 방사선원은 표 1과 같다.

Table 1. Inventory Basis of Radioactivities in Hot Cell

구분	Activity (TBq)
기준 사용후핵연료 - 1 Batch(20 kg-HM)	367.4
금속우라늄 - 4 Batches	545.2 (136.3 × 4)
장반감기 Volatile FP(H, Kr) - 4 Batches	20.0 (5.0 × 4)
폐용융염 - 2 Batches	452.2 (226.1 × 2)
Total	1384.8

감마선 및 중성자 선원 스펙트럼

기준선원에서 발생하게 되는 선원의 핵종 및 각 핵종들의 양은 ORIGEN-2[4] 코드를 이용하여 계산하였으며, Table 2에서 보는 바와 같이 대부분 방사선원은 사용후핵연료, 금속 우라늄 및 폐용융염에서 발생하는 것을 알 수 있다. Table 2는 차세대관리 종합공정시 발생하는 총 방사선원 항목만을 나타내며, 차폐 계산을 위해서는 에너지에 따른 감마선 및 중성자의 방출량을 계산해야 한다. 각 물질별로 포함된 핵종 및 핵종의 붕괴 상수를 고려하여 감마선의 에너지에 따른 방출율은 Fig. 2에 중성자의 방출율은 Fig. 3에 나타내었다. 감마 방출율은 ORIGEN-2 코드를 이용하였으며, 중성자 방출율은 SOURCES[5] 코드를 사용하였다. 총 방출되는 감마선의 양은 7.42×10^{14} v/s이며, 사용후핵연료, 환원된 금속 우라늄 및 폐용융염이 방출되는 총 감마선양은 비슷하지만 사용후핵연료 및 폐용융염에서 발생하는 감마선이 금속 우라늄 보다 높은 에너지를 가지는 것을 알 수 있었다. 총 방출되는 중성자의 방출량은 6.12×10^7 n/s 이며, 중성자 선원의 대부분은 자발 중성자에 기인하였으며, (α,n) 반응 및 지발 중성자의 양은 미미하였다. 방출되는 감마선의 평균 에너지는 1 MeV 전후이며, 중성자는 2.1 MeV의 평균 에너지를 가지는 것으로 나타났다.

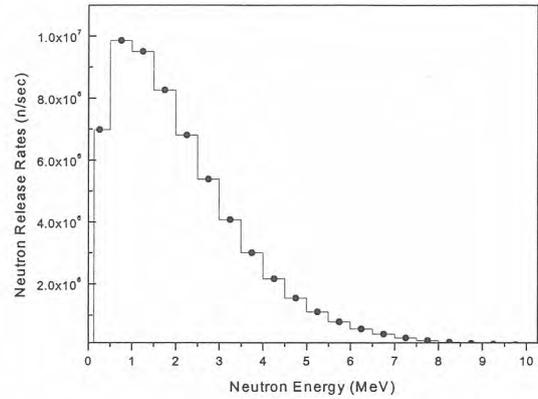
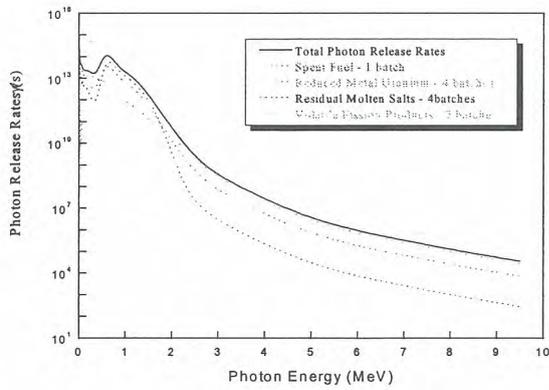


Fig. 1. Gamma source spectra of ER process. Fig. 2. Neutron source spectrum of ER process.

차폐 계산 모델링

핫셀 외벽에 대하여 다음과 같은 3가지 경우에 대하여 모델링하여 계산을 수행하였으며, 핫셀의 기하학적 구조, 차폐체들의 배치, 방사선원 및 선량 측정지점은 Fig. 2 및 Fig. 3에 나타내었다. Source Point는 선원의 위치, Detector Point는 검출기의 위치를 나타낸다. 핫셀 벽에 설치되는 각종 penetration 및 tobggan에 대한 모델링 그림은 Fig. 4~6과 같다.

- Case 1. 현재 차폐벽이 설치되어 있지 않은 전면부 및 후면부 일부를 중량콘크리트 타설시 (상시 운전 구역)
- Case 2. 기존의 중량콘크리트 벽체에 스틸로 보강차폐 (상시 운전 구역)
- Case 3. 셀간 벽을 중량콘크리트로 타설시 (작업 구역)

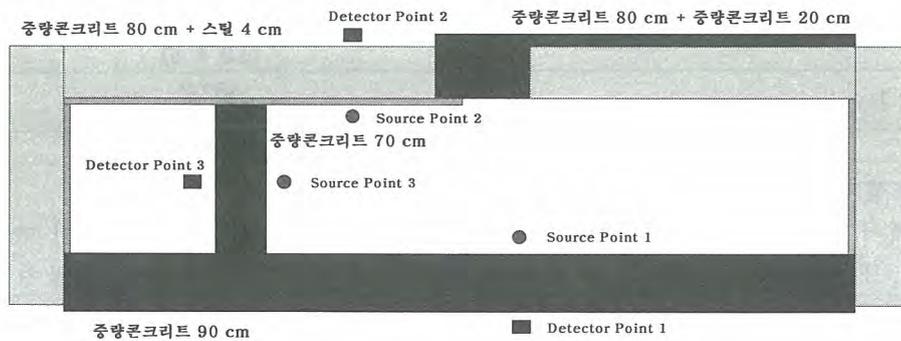


Fig. 2. Horizontal Model of Hot Cell for Shielding Calculation.

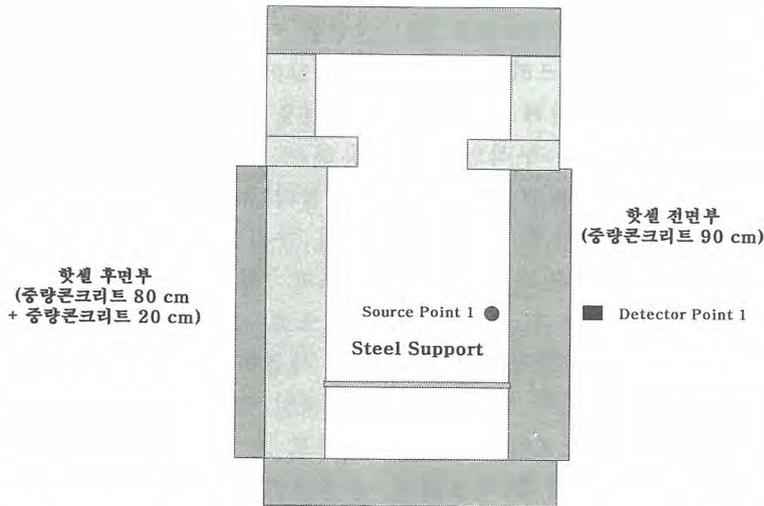


Fig. 3. Axial Model of Hot Cell for Shielding Calculation.

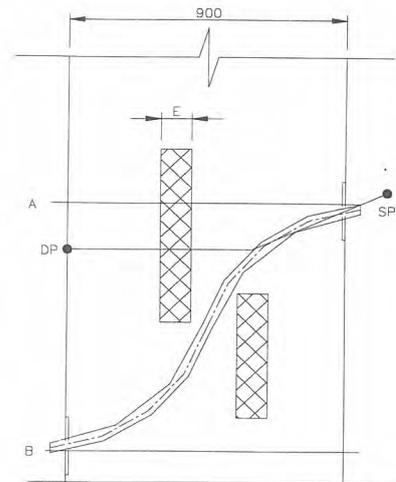


Fig. 4 Penetration type 3 Modeling

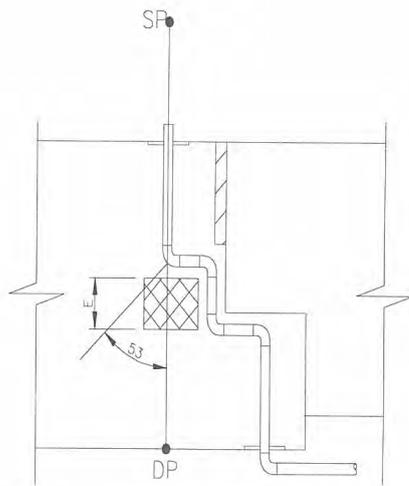


Fig. 5 Penetration type 5 modeling.

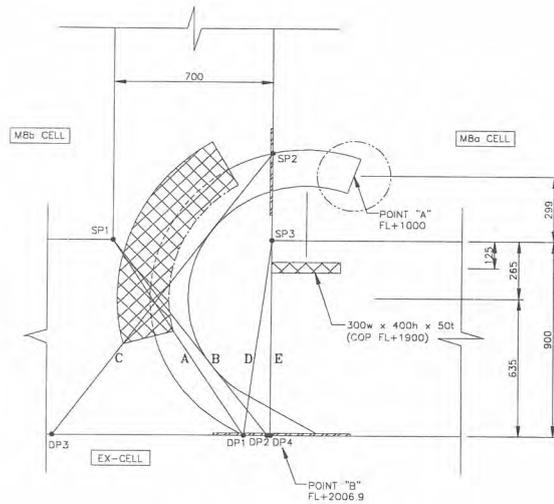


Fig. 6 Toboggan modeling.

선원은 핫셀내에서 다양한 장소에 다양한 형태로 분포하나 계산결과의 보수성을 위하여 한 지점에 점 선원 형태로 존재하는 것으로 가정하였으며, 선원의 기하학적인 위치는 핫셀벽에서 30 cm, 높이는 공정장치 높이인 선반위 120 cm 위치에 존재한다고 가정하였다.

결과 및 고찰

핫셀 외벽의 차폐두께에 따른 감마선에 의한 선량율은 Table 2에, 중성자에 의한 선량율은 Table 3에 나타내었다. 설계 기준치가 0.01 mSv/h 인 상시 작업구역의 경우 감마선에 의한 선량율은 QAD-CGGP 계산결과에 의하면 중량콘크리트 90 cm일 경우 2.10×10^{-3} mSv/h, 중량콘크리트 80cm에 스틸 4 cm 차폐체일 경우 2.97×10^{-3} 이며, MCNP-4C 계산 결과는 각각 1.60×10^{-3} mSv/h, 2.99×10^{-3} mSv/h이다. 작업구역인 중량 콘크리트 70 cm로 차폐되는 구간은 각각 1.01×10^{-1} mSv/h, 7.88×10^{-2} mSv/h 이다.

Table 2에서 QAD-CGGP와 MCNP-4C 계산 결과에서 Uncollided 선속은 거의 비슷한 값을 가지나, 총 선량율에서 약간의 차이를 나타냄을 볼 수 있었으며, 이것은 QAD-CGGP 코드 자체의 누적인자 사용에 기인한 오차로 생각할 수 있다. 우선 QAD-CGGP코드의 경우 콘크리트의 누적인자로서 중량콘크리트에 대한 누적인자가 아닌 일반콘크리트에 대한 누적인자를 사용하는데서

오는 오차와, 두 번째로 다중차폐체일 경우에도 대표적인 한 물질의 누적인자만 고려해야 하는 이유에 기인한다고 할 수 있다. QAD-CGGP 코드는 재료별로 GP 방법을 이용하여 누적인자를 계산하며, 콘크리트가 차폐체일 경우, 일반 및 중량콘크리트의 구분없이 일반콘크리트에 대한 누적인자를 사용하게 된다. 그러나 중량콘크리트는 일반콘크리트에 비해 철을 많이 포함하고 있으므로, 일반콘크리트의 누적인자를 그대로 중량콘크리트 누적인자로 사용하는 것은 계산 오차를 수반하게 된다. 재료에 대한 누적인자 비교 결과, 콘크리트의 누적인자는 철의 누적인자보다 큰 값을 가지는 것을 알 수 있었다. 따라서 철을 다량 함유한 중량콘크리트의 누적인자가 일반콘크리트 누적인자보다 적은 값을 가질 것으로 사료되므로, 일반콘크리트의 누적인자를 사용하는 QAD-CGGP 계산 결과가 MCNP-4C 계산 결과치보다 높게 나오는 것으로 생각되어 진다. 중량콘크리트 및 스틸 다중 차폐체를 사용하는 경우에, 중량콘크리트 만을 사용하는 다른 두 가지 경우와 다르게 보수적인 계산 결과치가 나오지 않았으며, 이는 다중 차폐체일 경우에도 콘크리트 단일 누적계수를 사용해야 하는 QAD-CGGP 코드 자체특징에 의한 오차로 보인다. 그러나 본 계산에서는 중량콘크리트 및 일반콘크리트의 물질 조성이 비슷하며, 중량콘크리트의 두께가 스틸에 비해 수십배 크므로 코드 자체에 의한 오차는 미미한 것으로 사료된다. 표 5에서 대부분의 경우 중성자에 의한 선량율은 감마에 의한 선량율의 약 20 % 미만인 것을 알 수 있으며, 이차 감마선에 의한 영향도 미미한 것으로 판단되었다. 따라서 차세대 관리 종합공정 실증을 위한 핫셀의 차폐 보강설계치는 감마선 및 중성자에 의한 선량율을 합한 총 선량율 기준으로 핫셀의 설계 기준치인 0.01 mSv/h 및 0.15 mSv/h를 충분히 만족시키는 것을 알 수 있다.

Table 2. The QAD-CGGP and MCNP-4C calculated effective dose-rate on hot cell surface contributed by gamma sources. The first and second row indicate to operation area and third row to service area (HC: Heavy Concrete, S: Steel)

Shielding Material and Thickness	Dose-rate (mSv/h)			
	QAD-CGGP		MCNP-4C	
	Uncollided	Total	Uncollided	Total
HC 90 cm	6.93×10^{-5}	2.10×10^{-3}	7.04×10^{-5}	1.60×10^{-3}
HC 80 cm + S 4 cm	9.84×10^{-5}	2.97×10^{-3}	9.69×10^{-5}	2.99×10^{-3}
HC 70 cm	3.84×10^{-3}	1.01×10^{-1}	3.75×10^{-3}	7.88×10^{-2}

Table 3. The MCNP-4C calculated effective dose-rate on hot cell surface contributed by neutron sources

Shielding Material and Thickness	Dose-rate (mSv/h)	
	MCNP-4C	
	Neutron	Secondary gamma ray
HC 90 cm	4.09×10^{-4}	5.05×10^{-5}
HC 80 cm + S 4 cm	6.50×10^{-4}	1.05×10^{-4}
HC 70 cm	3.74×10^{-3}	3.35×10^{-4}

Penetration Type 4, 5 의 경우 납 차폐체의 두께(E)는 각각 10.54 cm, 13.20 cm 이상이어야 외벽과 같은 차폐능을 가지는 것을 알 수 있었으며, 안전 여유도를 고려하여 설계시에는 각각 11 cm, 14 cm 를 설계치로 반영하였다. Penetraion type 5의 경우 14cm두께의 납 보강체를 설치하면, 차폐설계기준인 중량콘크리트 90 cm에 못 미치는 부분까지 차폐가 이루어져야 하므로 그림 5와 같이 각도가 53°안에 드는 부분까지 차폐가 되도록 하였으며, toboggan의 차폐가 취약할 것으로 예상되는 부분에 납 차폐체를 보강하여, 모든 위치에 대하여 중량콘크리트 90 cm이상의 차폐능을 가질 수 있도록 하였다.

결 론

핫셀의 차폐 안전성을 평가하기 위해 QAD-CGGP 및 MCNP-4C 코드를 이용하여 계산을 수행하였다. 감마선에 의한 선량율의 경우 QAD-CGGP 및 MCNP-4C 계산결과가 잘 일치 하였으며, 중성자에 의한 선량율은 감마에 의한 선량율의 20 % 이하인 것을 알 수 있었다. 사용후핵연료를 다루는 차세대관리 종합공정 실증시험을 위한 핫셀의 선량율은 감마선에 의한 영향이 대부분이며, 중성자에 의한 영향은 미미한 것으로 판단되었다. 따라서 두꺼운 중량콘크리트를 차폐체로 사용할 경우, MCNP 코드를 이용하여 믿을만한 결과치를 얻기 위해서는 많은 계산시간과 계산 오차를 줄이기 위한 여러 방안에 대한 고려가 필요하게 되므로, 사용후핵연료를 다루는 핫셀시설의 경우 수십 %의 안전 여유도를 고려한다면, 간단한 QAD-CGGP 코드 계산에 의한 감마선 영향 평가만으로도 차폐 평가가 적절하다는 것을 알 수 있다. 또한 QAD-CGGP코드의 더욱 정확한 계산 결과치를 얻기 위하여 중량콘크리트에 대한 누적인자 고려 방안을 모색하여야 할 것으로 보인다.

감사의 글

이 연구는 과학기술부 주관으로 추진중인 원자력증장기연구개발사업의 일환으로 추진하였으며, 관계자 여러분에게 감사의 말씀을 드립니다.

참 고 문 헌

1. S. W. Park, H. S. Park, C. S. Seo, J. M. Hur, and Y. S. Hwang, "Development of advanced spent fuel conditioning process", *Proc. of the 3rd Korea-China Joint Workshop on Management of Nuclear Wastes*, Shanghai (2002).
2. QAD-CGGP: A Combinatorial Geometry Version of QAD-P5A, A Point Kernel Code System for Neutron and Gamma-Ray Shielding Calculations Using the GP Buildup Factor, Available from Radiation Shielding Information Center at Oak Ridge National Laboratory as CCC-493/QAD-CGGP.
3. MCNP4C monte carlo n-particle transport code system, *ORNL RSIC CCC-700*, Radiation Safety Information Computational Center, Oak Ridge National Lab.
4. G. Croff, A user's manual for the ORIGEN2 computer code, *ORNL/TM-7175* (1980).
5. R. T. Perry, W. B. Wilson, Neutron production from (α, n) reactions and spontaneous fission in ThO_2 , UO_2 , and $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ fuels, *LA-8869-MS*, Los Alamos National Lab. (June 1981).

Determination of the Neutron Effective Multiplication Factor for a PWR Spent Fuel Assembly

Heesung Shin, Seung-Gy Ro, Gil-Soo Kim, Yong-Hwa Hwang, Ho-Dong Kim
Korea Atomic Energy Research Institute

Abstract

An Exponential experiment system which is composed of a neutron detector, a signal analysis system and a neutron source, Cf-252 has been installed in order to experimentally determine the neutron effective multiplication factor for a PWR spent fuel assembly. The axial background neutron flux is measured in a preliminary performance test. From the results, the spacer grid position is determined to be consistent with the design specifications within a 2.3 % relative error. The induced fission neutron for four of the assemblies is also measured by scanning the neutron source, Cf-252 or the neutron detector. The exponential decay constants have been evaluated by the application of the Poisson regression to the net induced fission neutron counts. The measured keffs determined on the basis of the exponential decay constants of C15 appeared to be 0.541, 0.540, 0.597 and 0.556, respectively, which are comparable with 0.55195 ± 0.00232 of the MCNP calculation.

1. Introduction

It has been reported that the reactivity related to the neutron effective multiplication factor is proportional to the exponential decay constant of the axial neutron flux of a fuel assembly, which is expressed by $1 - 1/k_{\text{eff}} = K\gamma^2$ where K is a reactivity-buckling conversion factor which can be determined by a diffusion code or a criticality experiment[1-4]. The experimentally measured k_{eff} was reported to be consistent with the calculated k_{eff} using the Monte Carlo method [5] by 3 %[3].

For the determination of the neutron multiplication factor for the PWR spent fuel loaded into the pool, a exponential experiment system has been installed in the Post Irradiation Examination Facility(PIEF) pool at Korea Atomic Energy Research Institute(KAERI). The aim is to validate the criticality calculation code and finally contribute to the implementation of the burnup credit. In this paper, the axial background neutron distribution in the C15, J14 and J44 assemblies are measured and the exponential decay constants for the C15, J14, G23 and J44 assemblies are determined. And the keff for C15 is preliminarily determined on the basis of the exponential decay constant.

The system components and preliminary performance test are explained in Section 2 and the axial background neutron flux measurement is shown Section 3. The exponential decay constant and keff determinations are described in Section 4.

2. Exponential experiment system setup and performance test^[6]

The exponential experiment system consists of a Cf-252 neutron source, a neutron detector of the fission chamber type, electronic equipment and a PC including a spectrum analysis program as shown

in Fig. 1[6]. The neutron detector is extremely small, $\phi 6.3 \times 25.4$ mm and as is the fission chamber type in which 93 wt% U-235 is coated to the inside of the chamber. The detector is inserted into a $\phi 9.5$ stainless steel tube which can be loaded into the control rod guide tube of the PWR spent fuel assembly. The neutron source is contained in a stainless steel cylinder of $\phi 6.8 \times 10$ mm in size. The activity and intensity are about 10 mCi and 4×10^7 n/s, respectively. The neutron source is inserted in a $\phi 9.2 \times 50$ mm capsule and welded. The capsule is connected to a $\phi 6 \times 10$ mm stainless steel bar which can be loaded into the control rod guide tube of the spent fuel assembly located in the PIEF storage pool which is ten meters deep.

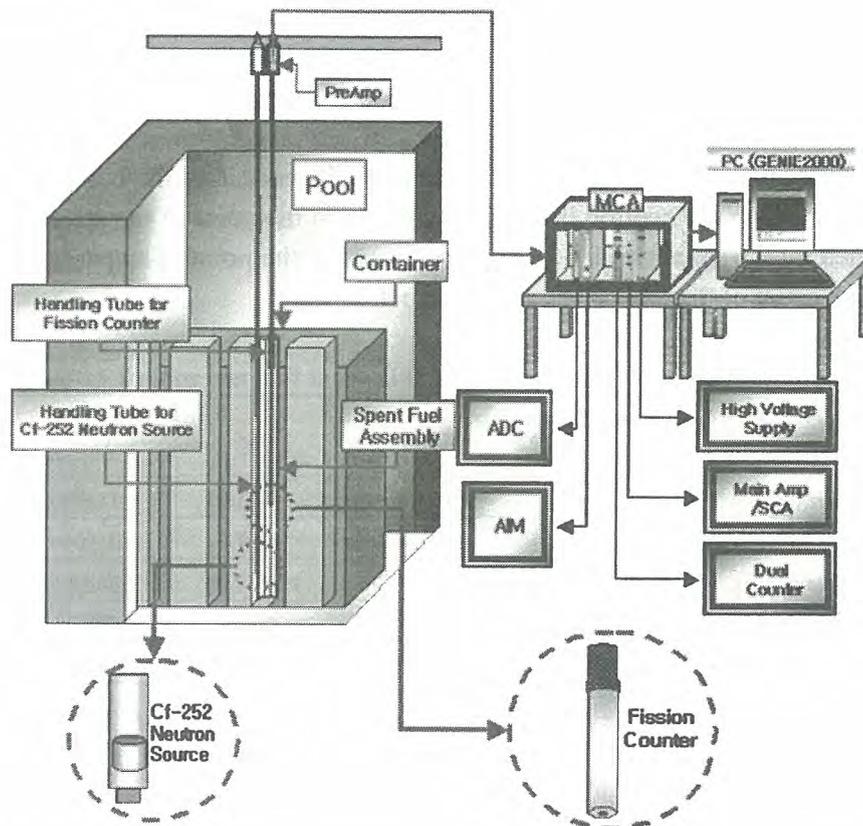


Fig. 1. Schematic Description of the Exponential experiment system installed in PIEF.

The neutron detecting signal transmits to the MCA via a pre-amplifier and a main-amplifier and the neutron counts are analyzed in the PC with a counting analysis software. Although the MCA cannot measure the neutron spectrum, it is useful for discriminating the noises due to the gamma-ray or electrics.

A response test of the exponential experiment system to the Cf-252, 4×10^7 n/s has been carried out. Several peaks appeared in the lower channels from 20 to 30. The peaks seem to result from the gamma-ray, which is similar to the fact reported in a previous result[4]. The gamma-ray effects should be removed by setting the cutoff channel in order to correctly count the neutrons.

Although the cutoff channel has been setup based on the response to a neutron from Cf-252, the test for the spent fuel assembly shows that there are a lot of noises which seem to be gamma-rays emitted from the spent fuel. The noise appears near channel 130 when the neutron counts at 63 cm from the bottom end of the fuel for the J14 assembly are measured. In the case of the C15 assembly the noise appears near channel 190. For discrimination of all the noises occurring, the minimum cutoff channel

of the MCA has been chosen as 200.

The stability of the measurement system has been examined. When the neutron counts measured for the C15 assembly at different dates are compared with each other, the measured data has been confirmed to be within a 2σ uncertainty except for the bottom and top area of the assembly. Actually the axial neutron distribution measurement with the Cf-252 neutron source is performed in the center area of the assembly.

3. Measurement of axial background neutron flux distribution

The background neutron flux in the axial direction was measured for 3 minutes and at 5 ~ 10 cm intervals. Design specifications and burnup histories of the C15, J14 and G23 assemblies of Kori Unit 1 and the J44 assembly of Kori Unit 2 which were used in this measurement are listed in Table 1.

The plateau neutron counts per 3 minutes for the C15, J14 and J44 assemblies appear to be about 1900, 3800 and 3200, respectively. The counts seem to be dependent on the burnup and cooling time. The counts decrease when the neutron detector gets closer to the point of the spacer grid because the neutron is shielded by the spacer grid. The neutron count at the point of a spacer grid appears to be much less than the count of the fuel center area by about 30 %.

Table 1 Specifications and declared burnup for the PWR spent fuel assemblies

Item \ Assembly ID	C15	J14	G23	J44
Fuel type	14x14	14x14	14x14	16x16
Initial Enrichment(wt%)	3.199	3.197	3.103	3.486
Discharge Date	1982.4.17	1989.1.20	1986.10.24	1992.5.29
Active fuel length(mm)	3658	3658	3658	3658
Control rod guide tube (ID/OD)(mm)	12.8/13.7	12.8/13.7	12.8/13.7	11.05/11.96
Burnup (GWd/tU)	31.87	37.00	35.50	34.90

The neutron counts for the C15 and J14 assemblies from Kori Unit 1 are compared with the Cs-137 gamma scanning results. Several dips in the neutron flux distributions indicate the space grid positions. On the basis of this measurement, the spacer grid position is determined to be consistent with the design specifications with a maximum 2.3 % relative error.

4. Measurement of exponential decay constant and Determination of Keff

4.1. Net fission neutron measurement

When the neutron source was loaded into a control rod guide tube of the C15, J14 and J44 assemblies, the axial neutron distributions were measured. The detector was scanned in the axial direction from the position of the neutron source by 3 or 5 cm intervals where the neutron source was located at 180 cm from the bottom end of the assemblies. Alternatively the detector was fixed at 180 cm from the bottom end of the assemblies and the neutron source was scanned in the axial direction from the detector location by the same intervals.

The fission neutron counts were measured for the four measured positions in the C15, J14, G23 and J44 assemblies. The slopes of the axial neutron flux appear not to be exactly linear on the semi-log paper, which seems to be partly due to the short measuring time.

The net neutrons resulted from the external neutron source, which are used for the determination of the exponential decay constants, are obtained from the subtraction of the background neutron counts, from the measured neutron counts. The exponential decay constants at the measured points have been evaluated by the application of the Poisson regression to the net neutron count.

4.2. Poisson regression method

Net neutron count y_i detected at an arbitrary distance from the bottom of the assembly is known to follow the Poisson probability density function, $f(y_i) = e^{-\lambda_i} \lambda_i^{y_i} / y_i!$ with the expectation value, $E(y_i) = \lambda_i$ and the variance, $Var(y_i) = \lambda_i$. The regression model representing the relation between the response variable y_i and independent variable x_i is as follows:

$$E(y_i) = \lambda_i = e^{\beta_0 + \beta_1 x_i} \quad (1)$$

From the independence assumption, the log likelihood of y_1, y_2, \dots, y_n is

$$\begin{aligned} \ln L &= \ln \prod_{i=1}^n \left[\frac{e^{-\lambda_i} \lambda_i^{y_i}}{y_i!} \right] \\ &= \sum_{i=1}^n \left[-e^{\beta_0 + \beta_1 x_i} + y_i (\beta_0 + \beta_1 x_i) - \ln y_i! \right] \end{aligned} \quad (2)$$

The MLE (maximum likelihood estimator) values of the regression coefficients β_0 and β_1 are the solutions satisfying the two equations below:

$$\frac{\partial \ln L}{\partial \beta_0} = \sum_{i=1}^n (y_i - e^{\beta_0 + \beta_1 x_i}) = 0 \quad (3)$$

$$\frac{\partial \ln L}{\partial \beta_1} = \sum_{i=1}^n (y_i - e^{\beta_0 + \beta_1 x_i}) x_i = 0 \quad (4)$$

When the iteratively re-weighted least squared method is applied to eq(3) and (4). b_0 and b_1 MLE of β_0 and β_1 respectively can be found.

The Wald's approximated $100(1 - \alpha)\%$ confidence interval for the coefficient β_j is

$$b_j - z_{\alpha/2} se(b_j) \leq \beta_j \leq b_j + z_{\alpha/2} se(b_j) \quad (5)$$

where $se(b_j)$ is j-th diagonal element of $\sqrt{(X' \hat{V} X)^{-1}}$, $X' = \begin{pmatrix} 1 & 1 & 1 \\ x_1 & x_2 & x_n \end{pmatrix}$ and $\hat{V} = \text{diag}\{e^{b_0 + b_1 x_i}\}$ in the above equation.

4.3. Determination of exponential decay constant

The exponential decay constants have been determined on the basis of the Poisson regression using the Statistical Analysis System (SAS). Through the χ^2 test which is one of the fitting diagnosis in the Poisson regression, it was confirmed that the fitting results were good for most of the cases. That is, the values of χ^2 appear to be lower than the criteria of χ^2 .

The exponential decay constants for the four measured positions in the C15, J14, G23 and J44 assemblies, respectively are determined and presented with 95 % confidence limits determined by using eq.(5) in Table 2. As shown in Table 2, for most of the cases, the measured exponential decay constants for each assembly are relatively consistent with each other. But the confidence interval

which ranges from a lower limit to an upper limit are unexpectedly much large. Considering that the confidence limit depends on the random error and measuring time, if the detection time is increased in future experiments, the confidence interval will be much decreased.

4.4. keff Determination and comparison

If K , the reactivity-buckling factor is assumed to be 46.55 as evaluated in the previous result[1], the neutron effective multiplication factors (k_{eff}) for the four exponential constants of C15 are preliminarily determined to be 0.541, 0.540, 0.597 and 0.556, respectively using the equation of $1-1/k_{eff}=K\gamma^2$, where γ is the exponential decay constant. Three of the cases seem to be consistent with 0.55195 ± 0.00232 which was calculated with the MCNP code[3], even though there is a big discrepancy in the third case.

Table 2. Exponential decay constant and its 95 % confidence limit for four assemblies

Assembly ID	Detector position	Exponential decay Constant (γ)	95 % Confidence limit	
			Lower	Upper
C15	E05	0.1350	0.1100	0.1620
	E10	0.1350	0.1110	0.1620
	J05	0.1200	0.0960	0.1480
	J10	0.1310	0.1080	0.1560
J14	E05	0.1320	0.1110	0.1540
	E10	0.1190	0.0990	0.1400
	J05	0.1230	0.1030	0.1440
	J10	0.1250	0.1050	0.1470
G23	C12	0.1250	0.1080	0.1430
	E05	0.1250	0.1070	0.1450
	J10	0.1280	0.1060	0.1520
	L03	0.1290	0.1090	0.1510
J44	F06	0.1190	0.1010	0.1380
	F11	0.1200	0.1010	0.1400
	K06	0.1220	0.1040	0.1410
	K11	0.1230	0.1060	0.1400

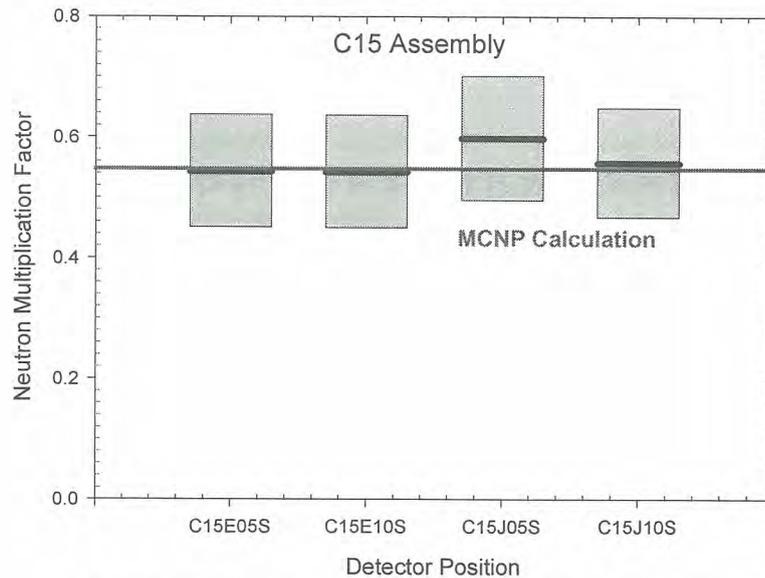


Fig. 2. Comparison of the Measured and Calculated Keff.

5. Conclusions

An exponential experiment system setup and a performance test has been carried out for several PWR spent fuel assemblies. Through the background neutron flux measurements of C15, J14 and J44, the exponential experiment system was confirmed to be successfully setup. The exponential decay constants for the C15, J14, G23 and J44 assemblies were determined using the confirmed exponential experiment system and the keff for the C15 assembly was preliminary determined. But it's necessary for further studies to improve the measuring method in order to decrease the 95 % confidence interval and determine the buckling-reactivity conversion factor for the PWR spent fuel assemblies.

Acknowledgement

This study has been performed under the Nuclear R&D Program by Ministry of Science and Technology(MOST).

References

- [1] T. Suzaki, Y. Komuro, H. Tsuruta, and I. Kobayashi, "Application of exponential experiment to high subcriticality determination," *Trans. Am. Nucl. Soc.* **35**, 280-281(1980).
- [2] T. Suzaki, "Subcriticality determination of low-enriched UO₂ lattices in water by exponential experiment," *J. Nucl. Sci. Technol.* **28**(2), 1067-1077(1991).
- [3] K. Sakurai, T. Arakawa, T. Suzaki, and Y. Naito, "Examination of applicability of exponential experiment method to complex array cores," Japan Atomic Energy Research Institute Rept. JAERI-Research 95-082(1995).
- [4] T. Suzaki et al., "Exponential experiments of PWR spent fuel assemblies for acquiring subcriticality benchmarks usable in burnup credit evaluations," 5th Int. Conf. on Nuclear Criticality Safety, Vol.1, pp.1B.11-1B.18, 17-21 Sept. 1995, Albuquerque, New Mexico. U.S.A.
- [5] Briesmeister, J. F., MCNP-4B Monte Carlo N-Particle Transport Code System, CCC-200 (1993).
- [6] H. Shin et al., "Analysis of Nuclear Parameters of PWR Spent Fuel for Exponential Experiment," Proc. of KNS Spring Meeting, Jeju, Korea (2001).

사용후핵연료 금속전환공정시설의 방사선환경영향평가

Radiation Dose Evaluation for Metallization Process Facility of Spent Fuel

국동학, 정원명, 구정희, 조일제, 이은표, 유길성
한국원자력연구소

요 약

원자력발전소에서 발생하는 사용후핵연료의 효율적인 관리를 위하여 원자력연구소에서는 사용후핵연료인 이산화우라늄을 금속우라늄으로 전환시키는 차세대관리 종합공정(ACP)을 개발하고 있으며 공정의 기초가 되는 핫셀을 설계 중에 있다. 핫셀의 설계에 앞서 사용후핵연료를 취급하게 되는 과정에서 발생하는 방사성물질들에 대한 환경영향평가를 수행하여 시설 운영에 대한 안전성을 평가하였다. 각 핵종별 발생량과 방출량을 계산하고 정상운전시와 사고시의 피폭선량을 평가하여 원자력법관련 규제기준과 핫셀이 위치하게되는 IMEF 건물의 안전성분석 기준보다 매우 안전한 결과를 얻음으로써 시설 운영에 대한 안전성을 확보하였다.

Abstract

The Advanced spent fuel Conditioning Process(ACP) is under development for the effective management of spent fuel which had been generated in nuclear plants. The ACP needs a hot cell where most operations will be performed. To give priority to the environment safety, radiation doses evaluation for the radioactive nuclides were preliminarily performed in both normal operation and accident case. The evaluation result shows a safe margin for regulation limits and SAR limit of IMEF where this facility will be constructed.

1. 서 론

사용후핵연료 차세대관리 종합공정(Advanced spent fuel Conditioning Process)은 고온의 염화리튬용액속에서 이산화우라늄을 금속우라늄으로 전환하고, 고발열성 핵종인 Cs과 Sr을 효율적으로 제거하여 사용후핵연료의 부피, 발열량 및 방사선의 세기를 감소시키고, 처분용기의 소요량과 처분장의 소요면적을 1/2이상으로 축소시킬 수 있는 방안을 제시하고 있다. 이 공정을 실증하기 위한 차폐시설의 확보를 위하여 조사재시험시설(IMEF)의 지하에 있는 예비 핫셀을 공정의 특성 및 용도에 맞게 α - γ 타입의 셀로 설계변경하여 사용하며 이에 따른 시설의 안전성 확보를 위해 실증 시설의 운영시 발생하게되는 방사선원들이 주변 주민들에게 미칠 영향을 평가하는 것이 이 연구의 목적이다.

2. 평가 방법

2.1 방사선원 결정

차세대관리 종합공정[1,2]은 건식 처리공정이고, 공정에서 필요한 냉각도 불활성 가스인 아르곤(Ar) 가스를 사용하게 되므로 액체 방사성 폐기물은 발생하지 않으며, 기체 및 고체 방사성 폐기물만 발생하게 된다. 핵물질의 취급 기준량을 설정하기 위한 사용후핵연료의 특성은 초기 농축도 3.5wt%, 연소도 43,000 MWD/MTU, 냉각기간 10년을 기준으로 하였으며 한 배치당 20kg, 연간 5 배치의 100kg을 취급할 예정이다. 이와 같은 기준을 바탕으로 실증 공정 범위, 공정 운전 개념을 고려한 ORIGEN-II 계산을 수행하여 주요 핵종의 발생량을 표1과 같이 얻었다.

2.2 정상운전시 평가

2.2.1 대기확산인자 결정

대기확산인자의 평가는 미국 원자력규제위원회의 규제기준(NRC Regulatory Guide 1.111)에 제시된 모델[3,4]에 준한다. 본 시설에서 방출될 방사성물질은 하나로로 굴뚝을 통해 외부로 방출되므로 고도방출에 해당하며, 기상관측탑의 67m 높이에서 측정된 자료를 사용한다. 대기확산인자에는 방사성물질의 붕괴와 침적을 고려한 값을 적용할 수 있는데 가장 보수적인 계산을 위해 두 가지를 모두 고려하지 않은 인자를 선택하였으며 구체적인 값은 본 연구소 환경연구팀에서 매년 발간하는 환경영향평가서[5]의 최근 2002년도 값을 적용하였다. 이 평가서에서는 하나로 스택으로 연결된 원자로굴뚝과 RCI굴뚝, 그리고 방사성동위원소 이용연구동과 조사제시험시설쪽에서 이어지는 채널 각각에 대한 대기확산인자값을 연구소 부지 기상자료를 바탕으로 XOQDOQ프로그램을 이용하여 제시하고 있으므로 이 값을 이용하였고 본 핫셀이 건설될 조사제시험시설 채널의 값을 최종적으로 택하여 그 수치를 표2에 나타내었다.

2.2.2 피폭선량 계산방법

주민피폭선량의 계산은 미국 원자력규제위원회의 규제지침 1.111에 근거한 GASDOS 프로그램을 통해 수행하였으며 국제방사선방호위원회의 권고(ICRP 60)를 반영한 선량환산인자를 적용하여 평가하였다. 하나로 스택을 통해 방출되는 주요 핵종의 특성을 고려하여 본 평가에서는 유효선량과 상대적으로 선량환산인자가 높은 중요 장기에 대한 등가선량만 고려하였다. 방사능운에 의한 외부피폭의 경우 실효선량은 국제원자력기구의 기본안전기준 (IAEA Safety Series 115)에 제시된 선량환산인자를, 공기중 흡수선량과 피부선량은 미국 원자력규제위원회의 규제지침 1.109에 제시된 값을 적용하였다. 지표에 침적된 방사성물질에 의한 외부피폭의 경우에는 미국 원자력규제위원회의 규제지침 1.109에 제시된 선량환산인자 값을 적용하였다.

국제방사선방호위원회와 국제원자력기구에서는 6개의 연령군으로 분류하고 있으나 최대 피폭 연령군과 최소피폭 연령군의 피폭량 차이가 작으므로 본 평가에서는 4가지 연령군을 고려하였다.

2.2.3 정상운전시 평가 결과

위에서 결정한 방사선원과 평가방법을 통하여 ACP 공정의 실증시설 주변 주민의 최대피폭선량을 각 연령별, 피폭장기별로 구하여 가장 큰 값을 기준으로 규제치와 비교한 결과를 표3에 나타내었다. 이 표에서 공기중 베타흡수선량, 감마 흡수선량, 외부피폭에 의한 유효선량 및 피부 등가선량은 Kr-85가 주된 원인으로 공정중 발생량이 전량 환경으로 방출된다는 가정 하에서도 안전한 수치를 보이고 있다. 장기등가선량은 Sb와 Ru이 영향을 미친 소아 연령군의 소화기에서 최대 수치를 나타냈으나 이 역시 규제기준에 못 미치는 결과를 나타내었다.

2.3 사고시 평가

2.3.1 사고 선정 및 방사선원 계산

핫셀의 운영중에 발생 가능한 사고를 도출하기 위해서 사용후핵연료를 취급하는 기존시설들의 안전성분석보고서에 기술된 사고의 종류를 참조하여 우라늄 분말로 인한 분진 폭발, 핵분열생성물의 붕괴열에 의한 위험, 배기덕트 파단사고, 배기팬실 및 핫셀내 화재 등을 고려하였고 결과적으로 핫셀내 화재를 제외하고는 차세대관리 종합공정의 도입으로 인해 사고해석의 결과에 큰 영향을 미치지 않는 것으로 판단되므로 본 연구에서는 사고 발생시 가장 큰 영향을 미치는 핫셀내 화재의 경우에 초점을 맞추었다. 이 경우 보수적 계산을 위해 핫셀내의 배기필터에는 최대 5 Batch 분의 핵연료를 취급할 때 발생하는 방사성물질이 최대로 축적되어 있는 것으로 고려하고 단기 대기확산인자 적용을 위해 불활성기체는 2시간 이내에 전량 방출되는 것으로 가정하였다. 위와 같은 가정 하에서의 방사성물질의 방출량을 표4처럼 계산하였으며 포집이 불가능한 불활성기체와 I-129는 화재시 생성된 전량이 방출되는 것으로 고려하였고 방사성입자에 대해서는 HEPA 필터의 효율을 99.97%(제염계수 1000)로 적용하여 하나로 스택 밖으로의 최종 방출량을 결정하였다.

2.3.2 단기대기확산인자 및 호흡률 결정

사고시에는 단기간의 빠른 대기확산인자를 적용함으로써 보수적인 평가를 수행하게 되며 시설부지에서 측정된 기상자료[5]를 바탕으로 사고의 특성상 2시간 이내에 모든 방사성원이 방출한다는 가정과 더불어 사고시 방사성 물질은 유일하게 하나로 스택을 통해 방출되므로 고도방출 모델을 적용하였다. 본 평가에서는 미국 원자력규제위원회 규제지침 1.145에 따라 개발된 PAVAN 전산 프로그램을 사용하여 단기대기확산인자를 계산하였으며 방출지점주위의 지형효과를 고려하였다. 방향별 최대의 x/Q 값을 갖는 거리에 대한 대기확산인자값을 각각 Nonfumigation 조건하에서의 소구역별 대기확산인자($(x/Q)_{99.5}$), Fumigation 조건에서의 소구역별 대기확산인자($(x/Q)_f$) 및 모든 방향에 대한 대기확산인자($(x/Q)_{95}$)를 구하고 이 중에서 최대 값인 W 방향 400m 지점의 값 1.38×10^{-2} 을 적용하였다. 방사성운 내에서의 호흡에 의한 내부피폭 유효선량 환산인자와 갑상선 등가선량 환산인자는 국제방사선방호위원회의 권고(ICRP 60)에 따른 값을 택하였고 사고기간 동안의 호흡율은 US NRC Regulatory Guide 1.4에 제시된 $3.47 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{sec}$ 를 적용하였다.

2.3.3 사고시 평가결과

사고시의 최대개인 외부피폭선량을 표5에, 피폭선량 기준 및 피폭선량 계산결과를 표6에 나타내었다. 외부피폭의 경우 Kr-85가 전량을 차지하는데 핫셀내 화재발생시 불활성기체는 핵연료봉내에 있는 양까지 모두 방출됨을 가정했음에도 불구하고 규제치에 못 미치는 것을 알 수 있다. 내부피폭의 경우 유효선량은 H-3과 입자상 방사성물질인 Ru-106의 영향이 가장 큰 것으로 나타났고 갑상선 등가선량은 반감기가 긴 I-129이 주된 원인으로 나타났다. 그러나 표6에서 보는 바와 같이 핫셀내의 화재시 발생하는 방사선누출에 따른 본 연구의 결과 값은 관련기준[6,7]에서 제시한 제한 치와 핫셀이 건설될 조사재건물의 설계기준에 훨씬 못 미치는 안전성을 보여준다.

3. 결 론

본 환경영향평가를 통해 사용후핵연료를 금속전환하는 과정에서 발생하는 방사성물질들에 의한 주민피폭선량은 정상운전시와 가장 보수적 사고시 모두 관련법규상의 기준치를 만족하며 향후 시설운영의 안전성 확보에 중요한 판단자료로서 평가된다.

표 1. 주요 핵종별 선원 및 방출량

핵종	선원 (Ci)	방출량 (Ci)
H-3	5.76E+01	5.76E-02
C-14	7.55E-02	1.74E-03
Kr-85	6.21E+02	6.21E+02
Ru-106	7.82E+01	2.30E-03
I-129	4.10E-03	4.10E-05
Sb-125	1.529E+02	4.50E-02
Cs-137	1.08E+04	7.45E-03

표 2. 정상운전시 대기확산인자 및 침적인자

방위	거리(km)	지역	x/Q (sec/m ³)	$(x/Q)^D$ (sec/m ³)	$(x/Q)^{DD}$ (sec/m ³)	D/Q (m ⁻²)
w	0.8	부지경계	1.308E-4	1.278E-4	1.186E-4	6.353E-8

표 3. 정상운전시의 규제기준과 평가 결과의 비교

평가 항목	기준 (mSv/yr)	평가 (mSv/yr)	분율 (%)
공기중 베타 흡수선량	0.20	5.05E-02	25.11
공기중 감마 흡수선량	0.10	4.43E-04	0.44
유효선량	0.05	5.35E-04	1.07
피부 등가선량	0.15	3.49E-02	23.23
장기 등가선량	0.15	2.67E-02	17.78

표 4. 핫셀내 화재시 주요방출선원

핵종	사고시 부유선원(Ci)	HEPA 여과기	방출선원 (Ci)
		DF=1000	
H-3	5.76E+01	1.000E+00	5.76E+01
C-14	1.74E-03	1.000E+00	1.74E-03
Kr-85	6.21E+02	1.000E+00	6.21E+02
Tc-99	1.65E+00	3.000E-04	4.95E-04
Ru-106	7.74E+01	3.000E-04	2.32E-02
Sb-125	1.50E+02	3.000E-04	4.50E-02
I-129	4.10E-03	1.000E+00	4.10E-03
Cs-137	2.49E+02	3.000E-04	7.46E-02

표 5. 외부피폭 선량환산인자와 피폭선량

핵종	방출선원 (Ci)	외부피폭 환산인자 (mSv/sec PER pCi/m ³)	유효선량 (mSv)
Kr-85	6.21E+02	4.403E-15	3.77E-02

표 6. 핫셀내 화재시의 피폭선량 평가결과 및 규제치와의 비교

구 분		피폭선량 (Sv)		
		유효선량 (외부)	유효선량 (내부)	장기등가선량 (갑상선)
피폭선량 기준	10CFR[7]	0.25	0.25	3.0
	IMEF 설계기준	2.5×10^{-3}	2.5×10^{-3}	3.0×10^{-2}
핫셀내 화재시 평가결과		3.77×10^{-5}	4.76×10^{-4}	1.65×10^{-3}

참 고 문 헌

1. 한국원자력연구소, 차세대관리 종합공정 실증시설 개념설계보고서, KAERI/TR-2092/2002
2. 한국원자력연구소, 차세대관리 종합공정 실증시설 설계요건서, KAERI/TR-2004/2002
3. 한국에너지연구소, 고리 주변 환경종합평가 및 관련모델 개발, KAERI/NSC-397/89
4. 한국원자력안전기술원, 주민피폭선량 평가지침, 1999
5. 황원태 외, 대덕 원자력관련시설의 운영중 방사선 환경영향평가(2002년보)
6. 과학기술부 고시 제2002-23호, "방사선방호 등에 관한 기준"
7. 10 CFR 100.11, "Determination of exclusion area, low population zone, and population center distance."

Thermal Analysis of a Spent Fuel Storage Cask under Normal and Off-Normal Conditions

J. C. Lee, K. S. Bang, K. S. Seo, H.D. Kim,
Korea Atomic Energy Research Institute

B. I. Choi, H. Y. Lee
Korea Hydro & Nuclear Power Co., Ltd.

Abstract

Thermal analyses have been carried out for a spent fuel dry storage cask under normal and off-normal conditions. Environmental temperature is assumed to be 15 °C under the normal condition. The off-normal condition has an environmental temperature of 38 °C. An additional off-normal condition is considered as a partial blockage of the air inlet ducts. Two of the four air inlet ducts are assumed to be completely blocked. The maximum temperatures of the fuel rod and concrete overpack were lower than the allowable values under the normal condition. Temperature distributions for the off-normal conditions were slightly higher than the normal conditions.

1. Introduction

The objective of a thermal evaluation is to ensure that the decay heat removal system is capable of a reliable operation so that the temperatures of the fuel assembly cladding material and storage system components remain within the allowable limits under normal, off-normal, and accident conditions. The spent fuel cladding must be protected during storage against degradation that leads to a gross fuel rupture. The zircalloy fuel cladding temperature limit at the beginning of the dry storage is typically below 380 °C[1] for a 5-year cooled fuel assembly for normal operations and a minimum 20 years storage. The fuel cladding temperature should also generally be maintained below 570 °C[2] for short-term off-normal and accident conditions. The decay heat removal system may be a passive (natural convection and thermal radiation) or an active cooling system for the dry storage of the spent fuel.

A spent fuel dry storage system is designed for the long-term storage of spent nuclear fuel in a vertical position. Thermal analysis of a storage cask is based on the three heat transfer modes of conduction, convection and radiation. Heat is dissipated from the outer surface of the storage overpack to the environment by a buoyancy induced air flow and thermal radiation. Heat transfer through the cylindrical wall of the storage overpack is by conduction. The analysis considers passive rejection of the decay heat from the stored spent fuel assemblies to

the environment under design basis ambient conditions. Natural circulation of the air inside the storage cask allows the concrete temperature to be maintained below the allowable value and maintains the fuel cladding temperature below the limit where long-term degradation might occur.

2. Description of Dry Storage System

A spent fuel dry storage system consists of an overpack, sealed canister including the fuel baskets and a transfer cask as shown in Fig. 1. The overpack cannot be placed in the cask pit for the loading of the spent fuel. Therefore, the canister must be carried out using the transfer cask. The canister is used in combination with the transfer cask and the storage cask components of the dry storage system for the storage of the spent fuel.

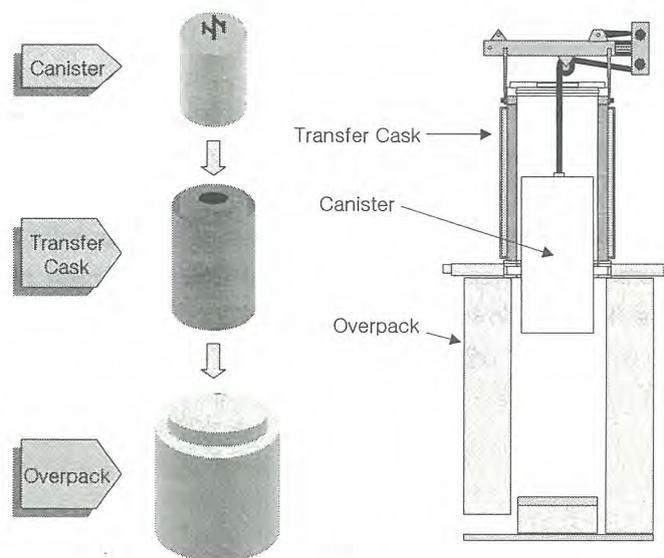


Fig. 1. Spent Fuel Dry Storage System.

Fig. 2 shows the overview of the storage cask. The cask consists of the structural material, concrete shielding, and a natural cooling system. Heat is transferred from the cask to the environment by a passive means only. Four air inlet and outlet ducts are installed at the top and bottom respectively. The main structure function of the overpack is provided by carbon steel, and the main shielding function is provided by concrete. The overpack is enclosed by cylindrical steel shells.

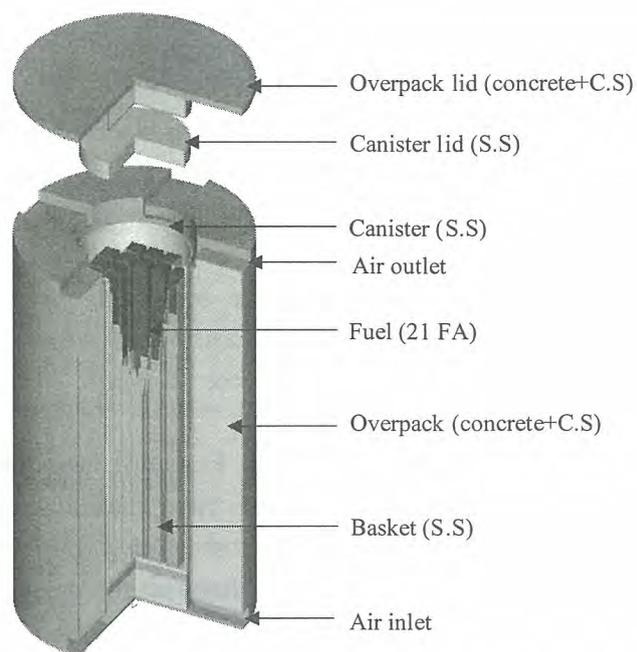


Fig. 2. Overview of Concrete Cask.

Table 1 shows the description of the dry storage system. The outer diameter of the storage cask is 3,550 mm and the overall height is 5,885 mm. The gross weight of the cask is approximately 135 tons. The storage cask is designed to store 21 PWR spent fuel assemblies with a burnup of 55,000 MWD/MTU and a cooling time of 7 years. The decay heat load from 21 PWR assemblies is 22.05 kW. Four air inlet and outlet ducts are installed at the top and bottom of the cask for a natural cooling system.

Table 1. Description of the Dry Storage System

Item	Description
Storage capacity	21 PWR assemblies
Component	- Sealed canister - Concrete overpack - Transfer cask
Dimension	- Concrete overpack : O.D. 3,550 mm x 5,885 mm L - Canister : OD. 1,680 mm x 4,840 mm L - Transfer cask : OD. 2,284 mm x 5,172 mm L
Weight	- Storage cask : 135 tons (loaded canister) - Canister : 41.4 tons (loaded fuels) - Transfer cask : 80 tons (loaded canister)
Material	- Overpack : Carbon steel, concrete - Canister : Stainless steel, boral (B4C + aluminum) - Transfer cask : Carbon steel, stainless steel, NS-F-RF
Design basis fuel	- Burn-up : 50,000 MWD/MTU - Cooling times : 7 years - Initial enrichment : 5.0 wt.% U235 - Decay heat : 22.05 kW / canister
Cooling system	- Natural cooling system - Four inlet and outlet ducts

3. Thermal Analysis Modelling

Thermal analyses have been carried out for a dry storage cask under normal and off-normal conditions. Ambient temperatures are assumed to be 15 °C and 38 °C under the normal and off-normal conditions respectively. The 15 °C ambient temperature is utilized to determine the long-term storage temperatures, because the yearly average temperature is about 15 °C in Korea. The temperature of 38 °C is the maximum observed temperature in Korea. An additional off-normal condition is considered as a partial blockage of the air inlet ducts. Two of the four air inlet ducts are assumed to be completely blocked with an ambient temperature of 15 °C. Solar insolation and maximum decay heat from the spent fuels are applied to all the analysis conditions. Decay heat from the 21 spent PWR fuel assemblies is 22.05 kW.

The finite volume computational fluid dynamics code Fluent[3] was used for the thermal analysis. Fluent analysis models were performed on the three dimensional cylindrical quarter cask model. The thermal analyses were carried out in two stages. Fig. 3 shows the thermal analysis models for the cask body and canister. In the first stage, the model consists of the cask body, and storage canister with a heat flux from the spent fuel. This model calculates the steady state temperature distributions of the overpack, ventilated air and canister wall. In the second stage, the canister with the fuel baskets and fuel assemblies is modeled. The canister wall temperature is applied as a boundary condition calculated from the first stage.

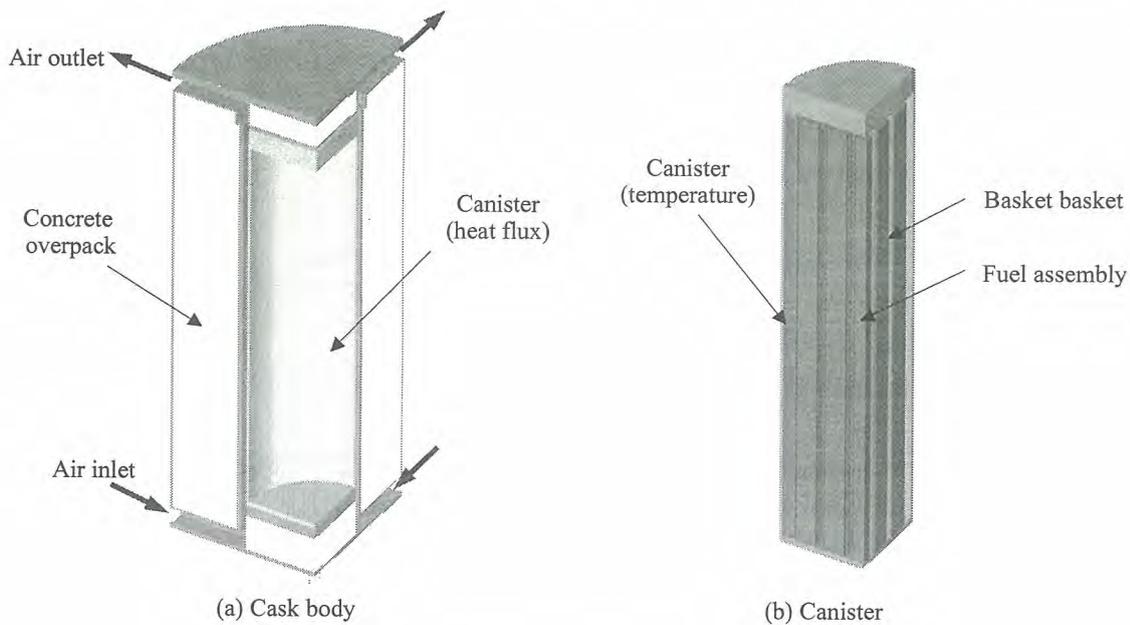


Fig. 3. Thermal Analysis Model.

Governing equation for the convective and radiation heat transfer at the cask surface to the environment is expressed as follows.

$$q = h_{nc}A(T_s - T_a) + \sigma \epsilon A(T_s^4 - T_a^4)$$

Where,

q : heat flow (W)

h : Convective heat transfer coefficient (W/m²-K)

A : Cask surface area (m²)

T_s, T_a : Temperature at the cask surface and the ambient (K)

σ : Stefan-Boltzmann constant (= 5.669x10⁻⁸ W/m² K⁴)

ε : Emissivity of surface material

Natural convection heat transfer coefficient can be derived as follows[5].

$$h_{nc} = Nu_d \frac{k}{L}$$

Where,

$$Nu_d = c(Gr Pr)^a, Gr_d = g \beta (\Delta T) d^3 / \nu^2$$

k : Thermal conductivity (W/m-K)

a : Exponent dependent on the flow regime

c : Coefficient dependent on the flow regime and geometry

g : Acceleration of gravity (m/s²)

L : Cask length (m)

β : Coefficient of the volumetric expansion (1/K)

ΔT : Temperature difference between the cask surface and the ambient(K)

ν : Dynamic viscosity (m²/s)

The storage cask is operated in a vertical position and the convective heat transfer coefficient is derived by the following correlations.

- Laminar range(10⁴ < GrPr < 10⁹) : Nu = 0.59 (Gr Pr)^{1/4}

- Turbulent range(Gr.Pr > 10⁹) : Nu = 0.10 (Gr Pr)^{1/3}

The cask's outer shell material is carbon steel and the surface is painted. In the thermal analysis, an emissivity of 0.85 is applied to the painted surface. The emissivities of the stainless steel and carbon steel are applied at 0.36 and 0.66.

Fuel baskets are constructed with stainless steel and boral plates, and the air gaps remain between the two plates. Thermal conductivity of the composite fuel basket is based on the effective thermal conductivities for the electrical resistance analogy shown in Fig. 4. Serial and parallel conductors are calculated as follows[4].

$$\text{Serial : } \frac{1}{k_{eff}} = \frac{t_1 + t_4}{k_1 t} + \frac{2t_2}{k_2 t} + \frac{t_3}{k_3 t}$$

$$\text{Parallel : } k_{eff} = \frac{k_1(t_1 + t_4) + 2k_2 t_2 + k_3 t_3}{t_1 + 2t_2 + t_3 + t_4}$$

The porous model, which can simplify the complex configuration of a fuel assembly, has been used in the thermal analysis. Thermal conductivity, and flow resistance are modeled to approximate the fuel assembly as a porous media. Flow resistance characteristics of the fuel

assemblies are used with the porous medium parameters of the permeability and the inertial resistance factor.

4. Results and Discussion

Fig. 5 presents the temperature contour of cask body and canister under the normal condition. The maximum canister wall temperature was estimated to be 155 °C. Temperature distribution for the inside of the canister was calculated using the canister temperature as a boundary condition.

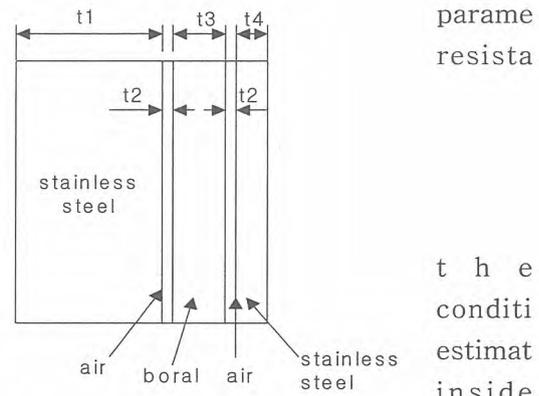


Fig. 4. Fuel Basket Model.

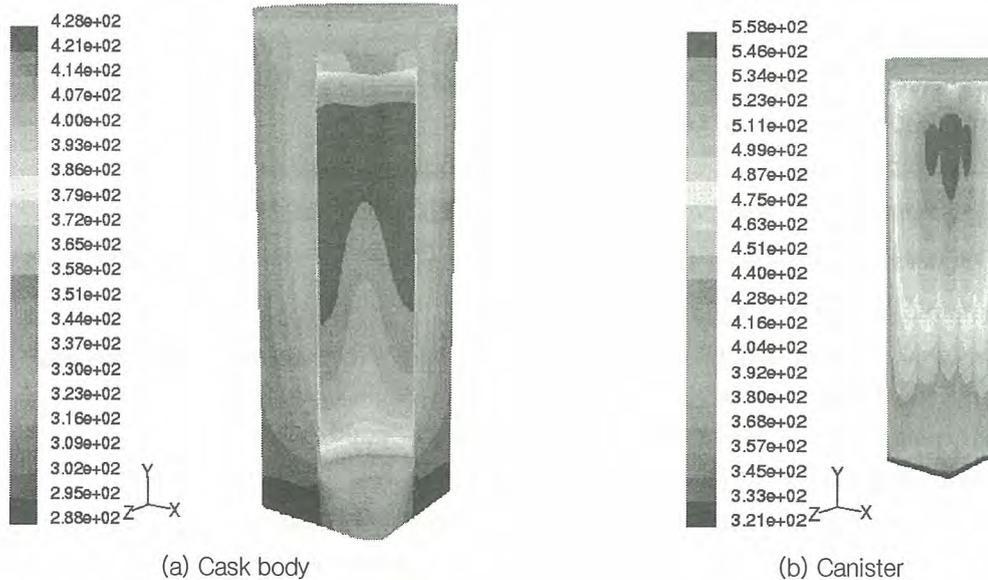


Fig. 5. Temperature Contours under Normal Condition.

Table 2 shows the calculated temperatures under the normal condition. Maximum fuel rod temperature was calculated as 285 °C. It is lower than the allowable value for the long-term storage of the spent fuel. The fuel cladding temperature limits are typically below 380 °C for a 5 years cooled fuel assembly and 340 °C for a 10 years cooled fuel assembly. We considered the temperature limit of 345 °C for a 7 years cooled fuel assembly. Maximum concrete temperature was calculated as 72 °C, which is lower than the allowable value.

Table 2. Maximum Calculated Temperatures under Normal Condition

Location	Calculated temperatures (°C)	Allowable values (°C)
Fuel rod	285	345
Fuel basket	277	
Canister surface	155	93
Concrete inside	72	
Concrete outside	39	
Air outlet	57	93
Ambient	15	

The off-normal environmental temperature of 38 °C is postulated as a constant temperature caused by extreme weather condition. To determine the effects of the off-normal temperature, it is conservatively assumed that this temperature persists for a long time to allow the cask to achieve thermal equilibrium. Table 3 shows the cask temperatures under an off-normal environmental condition. The temperatures of the off-normal condition are higher than those of the normal condition by about 23 °C. The temperature difference of 23 °C is the difference of the environmental temperature. The maximum fuel rod temperature is lower than the allowable value of 570 °C. Table 4 shows the cask temperatures for a partial blockage of the air inlet ducts. The temperatures for a partial blockage condition are slightly higher than the normal condition.

Table 3. Maximum Temperatures under Off-normal Environmental Condition

Location	Calculated temperatures (°C)	
	Normal	Off-normal
Fuel rod	285	307
Fuel basket	277	289
Canister surface	155	178
Overpack inner surface	72	95
Overpack outer surface	39	62
Air outlet	57	79
Ambient	15	38

Table 4. Maximum Temperatures under Partial Blockage of Air Inlets

Location	Calculated temperatures (°C)	
	No blockage	Partial blockage
Fuel rod	285	294
Fuel basket	277	268
Canister surface	155	165
Overpack inner surface	72	82
Overpack outer surface	39	41
Air outlet	57	65
Ambient	15	15

5. Conclusion

Thermal analyses of a spent fuel storage cask have been carried out for normal and off-normal conditions. The maximum calculated temperatures of the fuel rod and concrete overpack were lower than the allowable values under the normal condition. Temperature distributions of the off-normal conditions were slightly higher than the normal condition. Therefore, the thermal integrity of the dry storage cask will be maintained under the normal and off-normal conditions. The thermal analysis results will be confirmed by the full scale model thermal tests next year.

References

- [1] PNL-4835, "Technical Basis for Storage of Zircalloy-Clad Spent Fuel Inert Gases," PNL, 1983.
- [2] NUREG-1567, "Standard Review Plan for Spent Fuel Dry Storage Facilities," U.S. Nuclear Regulatory Commission, 2000.
- [3] "FLUENT Computational Fluid Dynamics Software Version 6", Fluent Inc., 2002.
- [4] J. P. Holman, "Heat Transfer," International Student Edition 5th Ed., 1985.
- [5] Topical Safety Analysis Report for the NAC Storable Transport Cask for Use at an Independent Spent Fuel Storage Installation", Rev. 3A", NAC International, 1995.

ISO 12807에 따른 사용후핵연료 및 금속전환체의 허용 누설률

Allowable Leakage Rate of Spent Fuel and Conditioned Spent Fuel in compliance with ISO 12807

방경식, 이주찬, 주준식, 서기석, 김호동

한국원자력연구소

요 약

사용후핵연료 및 방사성물질을 저장하기 위한 저장시스템은 사용후핵연료를 저장하는 동안 안전성 문제를 야기하지 않도록 격납을 설계하고 평가하여야 하며, 격납 평가는 ANSI N14.5 또는 ISO 12807에서 규정하고 있는 절차에 따른 허용 누설률을 계산하여 평가할 수 있다. 따라서, ISO 12807에서 규정한 평가방법에 따라 PWR 사용후핵연료 24 다발을 저장하였을 경우와 금속전환체 24다발을 저장하였을 경우에 대한 허용 누설률을 평가하였다. PWR 사용후핵연료 24다발을 저장하였을 경우 허용 누설률은 1.38×10^{-10} m³/s로, 금속전환체 24다발을 저장하였을 경우 4.46×10^{-10} m³/s로 평가되었다. 따라서, 사용후핵연료를 저장하였을 경우보다 금속전환체를 저장하였을 경우 격납 조건이 수월해 짐을 알 수 있었다.

Abstract

The confinement of a storage system to accommodate spent fuel and radioactive material must be designed and estimated so that the storage system is safe during a storage period. The confinement can be estimated by calculation of the allowable leakage rate in compliance with ANSI N14.5 or ISO 12807. Accordingly, the allowable leakage rate was estimated in compliance with ISO 12807 in the case of storage of 24 PWR spent fuels and 24-conditioned spent fuels. In the case of the 24 PWR spent fuel assemblies, the allowable leakage rate was estimated as 7.43×10^{-11} m³/s, in the case of the 24 conditioned spent fuel assemblies, the allowable leakage rate was estimated as 1.80×10^{-10} m³/s. Therefore, the confinement condition in the storage of the conditioned spent fuel is easier than that for the storage of the PWR spent fuel.

1. 서 론

원자력연구소에서는 후행핵연료주기 정책 미결정국형 사용후핵연료 관리기술 개발을 위하여, 자원으로서 가치가 있는 PWR 사용후핵연료를 건식으로 개질함으로써 그 관리 부피를 초기 대비

1/4로 줄이고, 관리상에 있어 안전에 문제를 야기할 수 있는 I-129, Cs-135, C-14와 같은 장반감기 핵종 및 Cs-137, Sr-90과 같은 고방열성 핵종을 선택적으로 제거하여 냉각부하를 1/4로 줄일 수 있는 차세대 관리공정(Advanced spent fuel Conditioning Progress : ACP)에 대한 연구를 수행하고 있으며, 이에 따라 사용후핵연료 금속전환체의 저장에 대한 연구도 대두되었다.

저장시스템에서의 격납은 공공의 건강에 영향을 미칠 수 있는 방사성물질의 방출을 방지하기 위해 매우 중요하다. 따라서, IAEA Safety Series No.116[1] 및 10 CFR Part 72[2]에서는 사용후핵연료를 저장하기 위한 저장시스템은 사용후핵연료를 저장하는 동안 안전성 문제를 야기하지 않도록 격납 시스템을 설계하고 평가하도록 명시하고 있다.

미국규격인 ANSI N14.5[3]와 국제규격인 ISO 12807[4]에서는 격납 평가에 대한 절차를 기술하고 있으며, NUREG/CR 6487[5]에서는 허용 누설률을 평가하기 위한 source term의 분류 및 source term에 따라 cavity로 방출되는 분량에 대해서 규정하고 있다. 여기서는, ISO 12807의 규정을 따라 HI-STAR 100 저장용기에 PWR 사용후핵연료 집합체 24 다발을 저장하는 경우와 PWR 사용후핵연료 96 다발을 24 다발의 금속으로 전환한 금속전환체를 저장하는 경우에 대한 허용 누설률을 비교 평가하였다.

2. 방사성 핵종의 분류(Source Term Species)

NUREG/CR-6487에서는 방출될 수 있는 방사능 물질에 대해 (1)이전의 수송 또는 장전 작업의 결과로서 용기 내부의 표면에 잔존하는 방사능, (2)사용후핵연료봉 표면위에 침착되어있는 crud, 그리고 (3)사용후핵연료봉 내의 방사성핵종의 3가지로 구분하고 있다. 그러나, 사용후핵연료의 저장에 있어서는 잔존하는 방사능은 없으므로, 저장시스템에서 방출될 수 있는 방사능 물질로서 crud와 사용후핵연료봉 내의 방사성핵종 두 가지를 고려하였다.

표 1. Fractions available for Release in accordance with Source Species

Primary Sources	Radio-nuclide Species	Fractions Available for Release		
		Normal	Off-Normal	Accident
Clud	Co-60	0.15	0.15	1.0
Gases	H-3, I-129, Kr-81, Kr-85, Xe-127	0.3	0.3	0.3
Volatiles	Cs-134, Cs-135, Cs-137, Ru-103, Ru-106, Sr-89, Sr-90	2×10^{-4}	2×10^{-4}	2×10^{-4}
Fines	Others	3×10^{-5}	3×10^{-5}	3×10^{-5}

Crud에 있어서 가장 중요한 source는 Co-60이며, PWR 사용후핵연료의 경우에 있어 핵연료봉 표면 위의 crud에서의 Co-60 방사능은 140×10^{-6} Ci/cm²이라고 평가하고 있으며, crud 중 15%가 파쇄되어 cavity로 떨어져 나간다고 평가하고 있다.

사용후핵연료봉의 피복관 파손에 의해 발생하는 방사성핵종은 fine(particle), gas 및 volatile로 구성된다. NUREG-1536에서는 사용후핵연료를 저장할 경우에 사용후핵연료봉이 손상될 확률은 정상조건인 경우 1%, 비정상조건인 경우 10%, 그리고 사고조건인 경우에 대해서는 100%로 규정하고 있으며[6], 핵연료봉 피복관 파손에 의해 발생하는 fine이 cavity로 방출될 수 있는 분량은 0.003%로 평가하고 있다. 핵연료봉으로부터 cavity로 빠져나가는 핵분열성 gas의 핵종으로는 H-3, I-129, Kr-81, Kr-85 및 Xe-127을 분류하고 있으며, 이들의 30%가 cavity로 방출된다고 규정하고 있다. 또한, Cs-134, Cs-135, Cs-137, Ru-106, Sr-89 및 Sr-90을 volatile 핵종으로 분류하

고 있으며, 이들 핵종이 cavity로 방출되는 분량은 2×10^{-4} 라고 평가하고 있다.

ANSI N14.5에서는 NUREG/CR-6487에서 규정하고 있는 내용을 동일하게 적용하고 있다. 그러나, ISO 12807에서는 crud의 100%가 cavity로 떨어져 나가는 것으로 가정하고 있으며, crud 및 fine과 같은 고체 입자들이 공중에 떠서 방출될 수 있는 분량은 10%라고 규정하고 있다.

3. 허용 누설률(Allowable Leakage Rate)

3.1 PWR 사용후핵연료의 저장

격납 평가를 수행하기 위한 기준 핵연료로는 연소도 48,000 MWD/tU, 농축도 4.5 wt%, 냉각 기간 10년인 사용후핵연료를 적용하였다. 사용후핵연료 집합체 1 다발에서 발생하는 방사능량은 ORIGEN2 전산코드를 사용하여 계산하였으며, 방사능량의 총 99.9%를 차지하는 30개 핵종으로부터의 방사능량은 9.5×10^3 TBq로 계산되었다. 따라서, 저장용기에 저장되는 사용후핵연료 집합체 24 다발로부터 발생하는 총 방사능은 2.28×10^5 TBq으로 평가되었다.

허용 방출률을 계산하기 위해서는 사용후핵연료에서 발생하는 핵종의 source term에 따라 방출되는 분량을 적용하여 방출 제한치인 A_2 값을 구해야 하며, 표 2의 결과로부터 아래와 같이 계산되었으며,

$$A_{2eq} = \frac{1}{\Sigma(F_i/A_{2i})} = \frac{1}{0.167} = 5.99 \text{ TBq}$$

방사능의 허용 방출률(R_N)은 식 (1)로부터 1.66×10^{-9} TBq로 계산되었다.

$$R_N = A_{2eq} \times 10^{-6} \times \frac{1}{3600} \text{ TBq} \dots\dots\dots (1)$$

허용 누설률은 단위 시간당 격납 경계로부터 누설되는 유체의 허용 체적이므로 단위 체적 당 방사능 농도로부터 결정된다.

저장용기의 격납 경계는 사용후핵연료를 적재하고 있는 캐니스터이다. 캐니스터는 두께 12.7 mm, 외경 1,737 mm, 길이 4,534 mm를 가지고 있으며, PWR 사용후핵연료 집합체 24 다발을 저장할 때 MPC의 자유체적(V_N)은 8.392 m³이므로, 단위체적 당 방사능 농도(C_N)은 식 (2)로부터 1.20×10^1 TBq/m³로 계산되었으며,

$$C_N = \frac{RI_{TN}}{V_N} \text{ TBq/m}^3 \dots\dots\dots (2)$$

PWR 사용후핵연료 집합체 24 다발을 다목적 캐니스터에 저장할 경우 허용 누설률(L_N)은 식 (3)으로부터 1.38×10^{-10} m³/s로 평가되었다.

$$L_N = \frac{R_N}{C_N} \dots\dots\dots (3)$$

3.2 금속전환체의 저장

사용후핵연료를 금속전환체로 전환하게 되면 장반감기 핵종 및 고방열성 핵종들이 제거되기 때문에, 방사능량의 총 99.9%를 차지하는 30개 핵종 중 약 20개의 핵종만 남게 된다. 따라서, PWR 사용후핵연료 1 다발을 금속전환체로 전환하였을 경우 방사능량은 1.94×10^3 TBq로 계산되었으며, 동일한 저장용기에 PWR 사용후핵연료 96 다발을 금속전환체로 전환하여 저장할 수 있으

므로 저장용기에 저장되는 금속전환체 24 다발로부터 발생되는 총 방사능량은 1.86×10^5 TBq으로 평가되었다.

NUREC 규정사항을 고려하여 계산된 복합 핵종에 대해 허용할 수 있는 방출 제한치인 A_2 값은 표 3의 결과로부터 1.02×10^{-2} TBq로 계산되었으며, 허용 방출률은 식 (1)로부터 2.83×10^{-12} 로 계산되었다.

금속전환체를 저장할 때 저장용기의 격납 경계인 MPC의 자유체적은 8.784 m³이므로, 단위체적당 방사능 농도는 식 (2)로부터 6.35×10^{-3} TBq/m³로 계산되었다. 따라서, 금속전환체를 저장할 경우 허용 누설률은 식 (3)으로부터 4.46×10^{-10} m³/s로 평가되었다.

표 2. Dominant radionuclide and their limits for the 24 PWR Spent Fuel Assemblies under normal and off-normal conditions.

Radionuclide		Activity (ci/tU)	Activity (TBq/tU)	Package Activity (TBq)		Release Fraction to cavity	Failed Fuel Rod	Airbone	Releasable Activity (TBq)	Activity Fraction (Fi)	Release Limit (A2i)	Fi/A2i (TBq)
CO-60	Clud	2.44E+01	9.01E-01	4.24E-01	24	1.0E+00	1.0E+00	1.0E-01	1.02E+00	1.01E-02	4.0E-01	2.52E-02
Cs137	Volatile	1.20E+05	4.42E+03	2.08E+03	24	2.0E-04	1.0E-01	1.0E+00	9.97E-01	9.90E-03	6.0E-01	1.65E-02
Ba137m		1.13E+05	4.18E+03	1.97E+03	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.41E-02	1.40E-04	6.0E-01	2.34E-04
Pu241		8.77E+04	3.24E+03	1.52E+03	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.10E-02	1.09E-04	6.0E-02	1.82E-03
Y90		8.62E+04	3.19E+03	1.50E+03	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.08E-02	1.07E-04	3.0E-01	3.57E-04
Sr90		8.61E+04	3.19E+03	1.50E+03	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.08E-02	1.07E-04	3.0E-01	3.57E-04
Pm147		1.08E+04	4.00E+02	1.88E+02	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.35E-03	1.34E-05	2.0E+00	6.71E-06
Cs134	Volatile	1.01E+04	3.74E+02	1.76E+02	24	2.0E-04	1.0E-01	1.0E+00	8.43E-02	8.37E-04	7.0E-01	1.20E-03
Kr85	Gas	7.27E+03	2.69E+02	1.26E+02	24	3.0E-01	1.0E-01	1.0E+00	9.11E+01	9.04E-01	1.0E+01	9.04E-02
Eu154		6.92E+03	2.56E+02	1.20E+02	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	8.67E-04	8.60E-06	6.0E-01	1.43E-05
Pu238		4.79E+03	1.77E+02	8.33E+01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	6.00E-04	5.95E-06	1.0E-03	5.95E-03
Cm244		3.34E+03	1.24E+02	5.81E+01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	4.18E-04	4.15E-06	2.0E-03	2.08E-03
Eu155		2.40E+03	8.86E+01	4.16E+01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	3.00E-04	2.98E-06	3.0E+00	9.92E-07
Am241		1.90E+03	7.04E+01	3.31E+01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	2.38E-04	2.36E-06	1.0E-03	2.36E-03
Sb125		1.54E+03	5.69E+01	2.68E+01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.93E-04	1.91E-06	1.0E+00	1.91E-06
Ru106	Volatile	7.59E+02	2.81E+01	1.32E+01	24	2.0E-04	1.0E-01	1.0E+00	6.34E-03	6.29E-05	2.0E-01	3.14E-04
Rh106		7.59E+02	2.81E+01	1.32E+01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	9.51E-05	9.43E-07	8.0E-01	1.18E-06
Pu240		6.24E+02	2.31E+01	1.09E+01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	7.82E-05	7.76E-07	1.0E-03	7.76E-04
H3	Gas	6.02E+02	2.23E+01	1.05E+01	24	3.0E-01	1.0E-01	1.0E+00	7.54E+00	7.48E-02	4.0E+00	1.87E-02
Sm151		4.38E+02	1.62E+01	7.61E+00	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	5.48E-05	5.44E-07	1.0E+00	5.44E-07
Te125m		3.76E+02	1.39E+01	6.53E+00	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	4.70E-05	4.67E-07	9.0E-01	5.18E-07
Pu239		3.53E+02	1.31E+01	6.14E+00	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	4.42E-05	4.38E-07	1.0E-03	4.38E-04
Ce144		2.17E+02	8.04E+00	3.78E+00	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	2.72E-05	2.70E-07	2.0E-01	1.35E-06
Pr144m		2.17E+02	8.04E+00	3.78E+00	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	2.72E-05	2.70E-07	6.0E-01	4.50E-07
Co60		5.38E+01	1.99E+00	9.35E-01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	6.73E-06	6.68E-08	4.0E-01	1.67E-07
Cd113m		4.80E+01	1.78E+00	8.35E-01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	6.01E-06	5.97E-08	5.0E-01	1.19E-07
Np239		3.02E+01	1.12E+00	5.25E-01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	3.78E-06	3.75E-08	4.0E-01	9.38E-08
Am243		3.02E+01	1.12E+00	5.25E-01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	3.78E-06	3.75E-08	1.0E-03	3.75E-05
Cm243		2.47E+01	9.13E-01	4.29E-01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	3.09E-06	3.07E-08	1.0E-03	3.07E-05
Tc99		1.86E+01	6.86E-01	3.23E-01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	2.32E-06	2.31E-08	9.0E-01	2.56E-08
Am242m		1.35E+01	4.98E-01	2.34E-01	24	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.68E-06	1.67E-08	1.0E-03	1.67E-05
SUM		5.46E+05	2.02E+04	9.50E+03	24							
Total		5.46E+05	2.02E+04	2.28E+05					1.01E+02			1.67E-01

4. 결 론

차세대관리공정을 통해 사용후핵연료를 금속전환체로 전환하면서, 전체 방사성 핵종 중 큰 방사능량을 차지하는 Kr-85가 제거된다. 또한, 장반감기 핵종 및 고방열성 핵종들도 제거된다. 그 결과로서, 동일한 저장시스템에 저장할 경우 약 4배 더 많은 양을 저장하면서도 방출 가능한 방사

능이 작아지고, 단위 체적 당 평균 방사능이 커짐으로 인하여 허용 누설률이 커져 사용후핵연료를 저장하는 경우보다 격납 조건이 유리해 짐을 알 수 있다. 다시 말해서, 사용후핵연료를 저장하는 경우의 허용 누설률이 금속전환체를 저장하는 경우보다 더 작게 산출되었기 때문에 격납 경계에 대한 밀봉 기준에 있어 사용후핵연료를 저장하는 경우가 금속전환체를 저장하는 경우보다 더 엄격해지는 결과를 초래하게되는 것이다.

표 3. Dominant radionuclide and their limits for the 24 conditioned Spent Fuels under normal and off-normal conditions.

Radionuclide	Activity (ci/tU)	Activity (TBq/tU)	Package Activity (TBq)	Release Fraction to cavity	Failed Fuel Rod	Airbone	Releasable Activity (TBq)	Activity Fraction (Fi)	Release Limit (A2i)	Fi/A2i (TBq)		
Pu241	8.77E+04	3.24E+03	1.52E+03	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	4.39E-02	7.87E-01	6.0E-02	1.31E+01
Eu154	6.92E+03	2.56E+02	1.20E+02	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	3.47E-03	6.21E-02	6.0E-01	1.04E-01
Pu238	4.79E+03	1.77E+02	8.33E+01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	2.40E-03	4.30E-02	1.0E-03	4.30E+01
Cm244	3.34E+03	1.24E+02	5.81E+01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.67E-03	3.00E-02	2.0E-03	1.50E+01
Eu155	2.40E+03	8.86E+01	4.16E+01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.20E-03	2.15E-02	3.0E+00	7.17E-03
Am241	1.90E+03	7.04E+01	3.31E+01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	9.53E-04	1.71E-02	1.0E-03	1.71E+01
Sb125	1.54E+03	5.69E+01	2.68E+01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	7.71E-04	1.38E-02	1.0E+00	1.38E-02
Rh106	7.59E+02	2.81E+01	1.32E+01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	3.80E-04	6.81E-03	8.0E-01	8.52E-03
Pu240	6.24E+02	2.31E+01	1.09E+01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	3.13E-04	5.60E-03	1.0E-03	5.60E+00
Sm151	4.38E+02	1.62E+01	7.61E+00	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	2.19E-04	3.93E-03	1.0E+00	3.93E-03
Pu239	3.53E+02	1.31E+01	6.14E+00	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.77E-04	3.17E-03	1.0E-03	3.17E+00
Ce144	2.17E+02	8.04E+00	3.78E+00	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.09E-04	1.95E-03	2.0E-01	9.75E-03
Pr144m	2.17E+02	8.04E+00	3.78E+00	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.09E-04	1.95E-03	6.0E-01	3.25E-03
Co60	5.38E+01	1.99E+00	9.35E-01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	2.69E-05	4.83E-04	4.0E-01	1.21E-03
Cd113m	4.80E+01	1.78E+00	8.35E-01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	2.40E-05	4.31E-04	5.0E-01	8.62E-04
Np239	3.02E+01	1.12E+00	5.25E-01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.51E-05	2.71E-04	4.0E-01	6.77E-04
Am243	3.02E+01	1.12E+00	5.25E-01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.51E-05	2.71E-04	1.0E-03	2.71E-01
Cm243	2.47E+01	9.13E-01	4.29E-01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	1.24E-05	2.21E-04	1.0E-03	2.21E-01
Tc99	1.86E+01	6.86E-01	3.23E-01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	9.29E-06	1.67E-04	9.0E-01	1.85E-04
Am242m	1.35E+01	4.98E-01	2.34E-01	24	4	3.0E-05	1.0E-01	1.0E-01	6.74E-06	1.21E-04	1.0E-03	1.21E-01
SUM	1.11E+05	4.12E+03	1.94E+03	24	4							
Total	1.11E+05	4.12E+03	1.86E+05						5.58E-02			9.77E+01

참고문헌

- [1] IAEA Safety Series No.116, Design of Spent Fuel Storage Fuel Storage Facilities, 1994.
- [2] US 10 CFR Part 72, Licensing Requirements for the Independent Storage of Spent Nuclear Fuel and High-Level Radioactive Waste, 1997.
- [3] ANSI N14.5, Leakage Tests on Packages for Shipment for Radioactive Materials, 1997.
- [4] ISO 12807, Safe Transport of Radioactive Materials-Leakage Testing on Packages, 1996.
- [5] NUREG/CR-6487, Containment Analysis for Type B Packages Used to Transport Various Contents, 1996.
- [6] NUREG-1536, Standard Review Plan for Dry Cask Storage Systems, 1997.

고방사성 산화물핵연료의 해외수송방안 분석

The Option Study of Oversea Shipment of DUPIC Fuel Elements to Canada

이호희, 박장진, 양명승, 서기석
한국원자력연구소

요 약

원자력연구소에서는 국내 원전에서 배출된 사용후핵연료를 IMEF M6 핫셀에서 건식 재가공하여 건식공정 산화물핵연료를 개발하였다. 개발된 핵연료의 성능을 검증하기 위해서는 실제 상용로와 동일한 고온고압 조건하에서 조사시험이 필요하나 국내에는 이러한 조사시설을 갖추지 못하고 있으므로 핵연료 성능의 검증이 어렵던 차에 한·카·미·IAEA간의 국제공동연구 과제진도회의에서 AECL측은 중성자비를 받지 않고 캐나다 NRU에서 건식공정 산화물핵연료를 조사시험을 할 수 있다고 제안하였다. NRU 조사시험을 하고자 하는 핵연료는 건식공정 산화물핵연료봉 10개(약 6 kgU)이며 운반물 분류등급에 따라 제7종 위험물로 핵분열성물질에 해당한다. 일반적으로 소량의 방사성물질을 운반할 경우에는 비용뿐 아니라 수송기간 측면에서 항공수송이 선박수송에 비해 유리한 것으로 알려져 있어 항공기를 이용한 건식공정 산화물핵연료의 해외 수송방안을 검토하였다. 검토결과, 현재 건식공정 산화물핵연료봉 10개를 운반할 수 있는 적절한 항공수송용 수송용기가 없어 항공수송이 불가능한 것으로 조사되었다. 선박을 이용한 해외 수송방안은 가능하나 이 경우에는 전용선박을 사용해야 함으로 비용이 많이 소요되는 것으로 분석되었다.

Abstract

KAERI has developed DUPIC nuclear fuel with the refabrication of spent PWR fuel discharged from domestic nuclear power plant by a dry process at M6 hot-cell in IMEF. To verify the performance of DUPIC nuclear fuel, irradiation test at the operating conditions of commercial power plant is essential. Since the HANARO research reactor of KAERI does not have fuel test loop(FTL) for irradiating nuclear fuel under high temperature and high pressure conditions, DUPIC fuel cannot be irradiated in the FTL of HANARO. In the 13-th PRM among Korea, Canada, USA and IAEA, AECL proposed that KAERI fabricated DUPIC fuel can be irradiated in the FTL of the NRU research reactor without charge of neutrons. The transportation quantity of DUPIC fuel to Canada is 10 elements(about 6 kg). This transportation package is classified as the 7-th class according to "recommendation on the transport of dangerous goods" made by the United Nations. In case of air shipment, until now, there is no proper air transportation cask for DUPIC fuel. In case of sea transportation is possible but requires very high cost.

1. 서 론

핵비확산성 건식공정 산화물핵연료 기술개발과제에서는 IMEF M6 핫셀에서 경수로 사용후핵연료를 직접적인 재가공 방법에 의해 중수로 핵연료로 재사용할 수 있는 건식공정 산화물핵연료를 개발하여 다목적 연구로인 하나로에서 조사시험을 수행한 바 있다. 개발된 중수로 핵연료의 특성을 입증하기 위해서는 실제 중수로 운전조건과 동일한 고온고압분위기에서의 조사시험이 필요하나 현재 하나로에 Fuel Test Loop이 설치되어 있지 않았으므로 고온고압조건 하에서의 조사시험은 당분간 불가능한 실정이다. 하나로에서 조사시험 결과만으론 개발된 핵연료의 성능 입증에 한계가 있음에 따라 건식공정 산화물핵연료의 성능을 입증하는 방안을 모색하던 중 '00년 11월에 한국에서 개최된 한·카·미·IAEA간의 제13차 PRM에서 AECL측은 NRU에서 중성자비를 받지 않고 건식공정 산화물핵연료의 조사시험을 수행하겠다는 파격적인 제안을 하였다. 이에 따라 NRU 조사시험을 구체화하기 위한 건식공정 산화물핵연료의 해외 수송방안을 검토하게 되었다[1, 2].

2. 운반대상 핵연료의 특성

운반대상 건식공정 산화물핵연료의 양은 '01년 5월 및 11월 한국에서 개최된 제 14차 및 15차 한·카·미·IAEA간의 PRM에서 협의하여 산화물핵연료봉 10개(약 6 kgU)로 결정한 후 이를 JD에 반영하였다. 또한 미국원산 핵연료의 국제이전에 따른 미국측의 사전동의를 '01년 4월 신청하여 '02년 4월 미국으로부터 동의를 획득하였다. 건식공정 산화물핵연료 제조에 사용된 경수로 사용후핵연료는 '86년 10월 고리 1호기에서 배출되어 PIEF 수조에 저장중인 G23 핵연료로서 농축도 3.21 w/o, 연소도 35,500 MWD/MTU이다. 운반대상 산화물핵연료봉 10개의 방사능량은: 약 40.34 TBq이다

3. 해외수송 관련 법규 및 규정

조사연료의 해외수송을 위해서는 관련법규 및 규정을 검토하여 제반 요건을 만족시킬 수 있도록 적합한 절차에 따라 수송용기와 수송방법을 선정하고, 규제기관으로부터 인허가를 획득하여야 한다. 특히 본 수송과 같이 소량의 사용후핵연료를 수송한 경험은 국내뿐 아니라 세계적으로도 매우 드문 경우에 해당하므로 관련법규 및 규정의 검토와 해당 전문가들과의 협의는 무척 중요하다. 특히 소량의 조사연료의 국제수송은 정책적인 목적에 따라 수행한 바는 있으나 상용 목적으로 운반한 경험은 전무한 것으로 조사되었다.

방사성물질의 해외수송을 위해서는 IAEA TS-R-1, IATA DGR, SOLAS, IMDG 등의 규정을 만족시켜야 한다[3~8]. 이러한 규정들은 최근 강화되어 개정됨에 따라 이들 규정의 검토는 중요하다. 조사연료의 수송과 관련된 국내 원자력관련 법규 및 규정은 원자력법, 원자력법시행령, 원자력법시행규칙, 방사선안전관리 등의 기술기준에 관한 규칙(과기부령 제 30호), 방사성 물질 등의 포장 및 운반에 관한 규정(과기부고시 제2001-23호), 방사성물질 운반용기의 제작검사 및 사용검사에 관한 규정(과기부고시 제2001-19호) 등의 원자력관련 법규 및 규정뿐 아니라 선박안전법, 선박안전법 시행령, 선박안전법 시행규칙, 특수화물 선박운송규칙, 위험물 선박운반 및 저장규칙 등이 있다[9~14]. 또한 국제수송은 위에서 언급한 공통적인 규정 외에 해당국 관련법규 및 규정도 만족시켜야 한다.

4. 수송용기 선정

고방사성 조사연료를 운반하기 위해서는 국제적으로 통용되는 규정에 따라 해당국의 원자력 규제기관으로부터 인허가를 받은 수송용기를 사용하여야 한다. 이러한 용기를 선정하기 위해서는 운반대상 조사연료의 제원, 방사능량, 붕괴열, 핵분열성물질 여부 등의 특성을 분석하여 이에 맞는 수송용기를 선정한다. 방사성물질 운반용기는 운반물의 크기, 형태 및 운반 목적에 따라 다양한 운반용기를 개발하여 활용 중에 있다. 방사성물질 등의 종류와 그 한도량에 따라 L형 운반물, IP형 운반물(IP-1형, IP-2형, IP-3형), A형 운반물, B형 운반물(B(U)형, B(M)형), C형 운반물 및 핵분열성물질 운반물로 구분한다. 운반물은 차폐·격납 및 열전달 특성이 승인된 설계기준에 적합하여야 하고, 핵분열성물질인 경우에는 임계를 방지하기 위하여 중성자 방출물질의 존재와 분포를 확인하여야 한다[3~7].

건식공정 산화물핵연료 봉 10개의 A2값의 합은 약 1,130이고, 핵분열성물질이 15 g를 초과하므로 핵분열성물질에 해당한다. 1·A2 이상인 방사성물질을 운반할 수 있는 운반용기는 B(M), B(U), C형이 있으며, 이중에서 핵분열성물질을 운반하기 위해서는 B(M)F, B(U)F, CF형의 운반용기를 사용하여야 한다. 특히 본 건식공정 산화물핵연료는 이미 원자로에서 한번 조사된 사용후핵연료를 재가공하여 제조되었으므로 방사능이 높고, 핵분열성물질일 뿐 아니라 연료봉의 길이가 약 50 cm로서 통상적인 운반물과는 차이가 크므로 이에 적합한 용기를 선정하기는 매우 어렵다. 이에 따라 건식공정 산화물핵연료의 해외 수송을 위해 국내에 사용중인 용기를 인허가 받아 사용하는 방안과 외국의 수송용기를 임대하는 방안을 동시에 검토하였다.

국내에서 사용중인 하나로 수송용기(6.6 톤)는 하나로 핵연료 1다발 또는 CANDU 핵연료 2다발을 수송할 수 있으나, 제작 당시 인허가 비용 등의 문제 때문에 연구소 내에서만 운반할 수 있도록 인허가를 받아 건식공정 산화물핵연료의 해외수송을 위해서는 규제기관으로부터 다시 인허가를 받아야 하는 문제점이 있다[15]. 하나로 수송용기의 인허가를 갱신하기 위해서는 운반용기의 인허가를 위한 제반 안전성분석을 재 시행하여야 하고, 안전성 시험도 재 수행하여야 한다. 또한 경유국 및 도착국의 인허가도 고려하여야 한다. 이러한 제반 여건과 문제점을 고려할 때 단 1~2회의 건식공정 산화물핵연료의 해외수송을 위해 국내에서 사용중인 수송용기를 재 인허가 받는 방안은 경제적 및 기술적 측면에서 위험부담은 너무 크나 얻는 이점이 적은 것으로 분석되었다.

외국의 수송용기중 AECL사의 IMT Cask(5.6 톤), NAC사의 LWT Cask(23.6 톤), GE사의 GE-2000 Cask(15.2 톤) 등이 가용한 것으로 조사되었다[16~18]. 외국의 수송용기를 임대하는 방안을 검토한 결과 GE-2000 Cask과 NAC-LWT Cask는 중량이 너무 무겁고 임대비용이 너무 비싼 것으로 조사되었다. 기술적인 측면 및 경제적인 측면에서 AECL사의 IMT 수송용기가 가장 바람직한 수송용기로 분석되었다. 그러나 이 수송용기도 검토 대상이었던 다른 수송용기와 마찬가지로 핵분열성물질의 항공수송은 불가하므로 선박을 이용한 수송이나 핵분열성물질 면제범위를 이용한 항공수송에만 사용할 수 있는 단점이 있는 것으로 조사되었다.

5. 수송방안 분석

가. 항공수송방안 분석

운반대상 사용후핵연료의 특성, 핵연료 봉과 수송용기 적재하역 방법 등의 기술적 측면 및 수송용기 임대비용, 인허가비용, 수송비용 등의 경제적 측면과 더불어 항공수송에 따른 법규 및 규정 등의 특성을 고려하여 건식공정 산화물핵연료 봉의 수송에 적합한 수송방안을 도출하기 위해 여러 수송방안을 분석하였다. 일반적으로 소량의 방사성물질을 운반할 경우에는 비용뿐 아니라 수

송기간 측면에서 항공수송이 선박수송에 비해 유리한 것으로 알려져 있다. 특히 항공수송은 수송기간이 짧아 수송용기의 임대기간을 단축할 수 있으므로 수송용기를 소유하고 있지 못한 우리 실정에 적합한 수송방식이므로 건식공정 산화물핵연료의 항공운반 가능여부를 검토하였다.

1) 항공혼용 수송방안 분석

수송비용을 줄이려면 여객기 또는 화물기를 이용해서 다른 화물과 함께 혼용 적재하여 수송하는 것이 바람직하다. 대한항공은 인천공항에서 캐나다 서부에 위치한 벤쿠버 공항까지 여객기를 하루에 1회씩 운항하고 있고, 화물기인 경우에는 인천공항에서 캐나다 동부에 위치한 토론토까지 주당 2~3회 운항하고 있다. 따라서 이 수송방안은 법규와 규정을 만족시킬 수 있다면 가용한 수송방안이므로 우선 이 방안에 대한 법규 및 규정의 제한 사항을 검토하였다.

여객기에 위험물을 혼용 적재하여 수송할 경우에는 IATA DGR 규정을 만족시켜야 한다. 그러나 IATA DGR Limitation 중 Operator Variation(대한항공)에 핵분열성물질의 여객기를 이용한 수송은 금지되어 있다. 특히 '01년부터 대한항공에서는 항공기 안전 운항을 위하여 모든 여객기에 위험품 탑재를 금지(단, 화물기 미운항 지역에 한하여 화장품, Duty Free Item, 자동차는 대한항공의 사전 결정 하에 운송 가능함)하고 있다. 또한 이밖에도 여러 규정에 위배되기 때문에 건식공정 산화물핵연료는 여객기를 이용하여 항공수송 하는 것은 불가능한 것으로 판단된다. 핵분열성물질을 화물기로 혼용 운반할 경우에는 '01. 7월 이후 IATA 규정이 강화되어 운반용기에 보다 엄격한 제한을 두고 있다. A2 값이 3000 이하이면 규정상은 B(U) 수송용기로도 항공수송이 가능하나 이 경우에는 안전한 항공운송을 보장할 수 있도록 수송용기가 설계/제작되어야 할뿐 아니라 입증시험도 거쳐야 한다.

건식공정 산화물핵연료의 수송에 가장 적합한 수송용기로 잠정 결정된 AECL사의 IMT Cask는 2002년 3월 B(U)F 수송용기로 인허가를 갱신하였으나 Certificate의 내용 중에 핵분열성물질의 항공수송은 불가하다고 명시되어있다. 또한 지금까지 조사한 바에 따르면 핵분열성물질 면제범위를 초과하는 건식공정 산화물핵연료를 항공 운반할 수 있는 적합한 수송용기는 없는 것으로 조사되었다. 따라서 건식공정 산화물핵연료의 항공혼용 수송은 여객기인 경우에는 대한항공에 적재할 수 없으므로 불가능하고, 화물기인 경우에도 현 단계에서는 건식공정 산화물핵연료를 적재할 수 있는 적합한 항공수송용 수송용기가 없어 불가한 것으로 판단된다[3~5].

2) 면제범위를 이용한 화물기 혼용 수송방안 분석

건식공정 산화물핵연료 봉 10개는 핵분열성물질 면제범위를 초과하는 양으로 이를 항공수송할 수 있는 적합한 수송용기가 없어 기술적 측면에서 항공혼용 수송방안이 불가능한 것으로 조사됨에 따라 대안으로 핵분열성물질 면제범위(건식공정 산화물핵연료 봉 약 1.7개 해당)를 이용한 항공혼용 수송방안을 검토하였다. 이 수송방안은 핵분열성물질 면제범위에 해당하는 적은 양의 건식공정 산화물핵연료를 화물기에 혼용적재하여 수송하는 방안으로 B(U) 수송용기에 적재가 가능하다. 이 경우에는 기준 수송용기로 잠정적으로 결정된 IMT Cask의 사용이 가능하고 또 1회의 수송비용이 비교적 저렴하므로 이 방안을 집중적으로 검토하였다.

그러나 이 경우에는 IATA Limitation 중 State Variation에 따라 영공 통과국, 경유국의 승인문제가 복잡한 것으로 조사되었다. 특히 미국 DOT는 일정량이상(건식공정 산화물핵연료 펠렛 1개 정도) 이상의 Pu를 포함한 핵물질을 항공수송 할 경우에는 엄격히 규제하고 있다. 이에 따라 미국 DOT에 관련사항을 문의해본 결과 비록 핵분열성물질 면제범위라 할지라도 일정량이상의 Pu를 포함한 핵물질을 항공수송 할 경우에는 수송용기의 시험까지도 요구하고 있는 것으로 조사되었다. 또한 이러한 선례도 없었던 것으로 조사되어 규정을 보수적으로 해석함에 따라 승인 받기가 무척

어려울 것으로 예상된다. 또한 핵분열성물질을 항공으로 수송할 경우에는 영공 통과국(일본, 러시아)에도 핵물질의 양에 관계없이 포장물의 설계 승인 및 운반신고를 해야 한다는 것도 파악되어 위험부담이 너무 큼을 알게 되었다[3, 8].

공동연구의 당사자인 미국 DOS의 전문가도 '02년 11월 개최된 한·카·미·IAEA 간의 제 16차 PRM에서 미국을 경유하는 항공수송경로는 바람직하지 않다고 Comment한 바 있으므로 면제범위를 이용한 항공혼용 수송방안에 대해 더 이상의 검토는 바람직하지 않은 것으로 판단된다. 또한 어려운 과정을 거쳐 면제범위를 이용해서 건식공정 산화물핵연료를 1회 수송하더라도 수송량이 적어 연구목적을 충족시키지 못하는 문제점도 있어 면제범위를 이용한 항공혼용 수송방안도 위험에 비해 실익이 적은 것으로 조사되었다.

나. 선박수송방안 분석

조사된 핵물질을 선박으로 수송하기 위해서는 SOLAS 규정에 따라 INF 등급을 획득한 선박을 이용하여야 한다. INF 화물을 운송하는 선박은 운송되는 INF화물의 합계 방사능치에 따라 INF1, 2, 3 등급으로 분류된다[6~8]. 운반하고자 하는 건식공정 산화물핵연료 봉 10개의 방사능치는 약 40 TBq이므로 INF Code에 따라 기준이 가장 약한 INF 1등급 선박이면 충분하다. 그러나 현재 국내에는 INF 등급의 선박이 없고, 또 국내에서 운반하고자 하는 캐나다 또는 미국 쪽으로 운항되는 외국선박 중에도 INF 등급의 선박이 없는 것으로 조사되었다. 국내의 핵물질 수송은 주로 핵연료를 제조하기 위한 한전원전연료(주)의 경수로용 UF6 실린더, 중수로 핵연료과우더와 원자력연구소의 조사전 하나로 연료 등의 조사전 연료를 수송한 경험이 있으며 이러한 물질을 운반할 때에도 핵물질은 통상 선주들이 기피하므로 자국 국적선인 A사의 선박을 이용하여 혼용적재하고 있는 것으로 조사되었다. 그러나 이러한 물질은 모두 조사전 연료에 속하므로 INF 등급의 선박을 이용할 필요는 없다. 이러한 물질을 운반할 경우에도 미국 동부에서 파나마 운하를 통과하기 때문에 미국과 파나마에 운반물 설계승인과 운반 신고를 하고 있는 것으로 조사되었다.

1) 선박 혼용수송 방안분석

건식공정 산화물핵연료의 항공수송이 부적합한 것으로 분석됨에 따라 그림 2에 나타낸 절차에 따라 선박수송방안을 검토하였다. 는 양이 적음에도 불구하고 원자로에서 조사된 사용후핵연료를 재가공해서 제조한 핵연료이므로 INF 등급의 선박을 이용하여야 한다. 그러나 국내에는 INF 등급의 선박을 보유하지 못한 것으로 조사됨에 따라 국내에서 INF 등급 선박의 Certificate 발급을 대행하는 한국선급과 핵물질의 전문운반 회사인 A사를 통해 INF 등급의 획득 가능성을 조사하였다.

국내에서 INF 등급선박을 인증해 주도록 정부로부터 위임받은 기관이 한국선급이므로 이 기관을 방문하여 기술적인 사항을 협의하였다. 선박수송을 위해서는 국내법으로선 선박안전법, 해양오염방지법, 위험물 선박운반 및 저장규칙 등이 적용되어야 하며, 또한 해외수송을 위해서는 국제법인 SOLAS(선체구조, 소방, 구명, 통신, 위험물적재 등에 관한 사항 기술), IMDG(SOLAS 하위 Code로서 위험물 분류, 포장, 적재 등에 관한 사항 기술), INF(SOLAS 하위 Code로서 조사연료 수송에 관한 사항 기술) 등을 적용하여야 한다.

국내 선박의 INF 등급 획득여부는 국내선사의 의지에 달려있다는 판단에 따라 국내에서 방사성물질의 운반경험이 풍부한 국내 해운회사인 A사와 INF Certificate 획득 가능성을 협의하였다. 몇차례 A사 소유 선박의 INF Certificate 신청을 협의하였으나 기술적인 어려움과 더불어 경제적인 이점이 없어 손해를 감수하면서까지 INF Certificate 신청을 추진할 명분이 없는 것으로 평가되어 A사에서는 더 이상 INF certificate 신청을 위한 업무를 추진하지 않기로 하였다.

또한 중소 선박회사에서도 수억원 정도 수송비(수송용기 임대비, 인허가비용 및 육로수송비용

제외)를 보장한다면 INF Certificate 신청을 검토하겠다고 한 바 있으나 이는 오히려 전용선박을 이용하는 수송방안보다 비용이 많이 들고 위험부담도 크므로 오히려 경제적 시간적으로 더 불리한 것으로 조사되었다. 이에 따라 국내 선박에 INF Certificate를 발급받아 건식공정 산화물핵연료를 수송하는 방안은 전용선박을 이용하는 것보다 수송비용이 더 많이 들고, 위험부담도 커서 더 이상 추진하지 않았다.

2) 전용선박 수송방안 분석

국내 화물선을 이용한 혼용수송방안이 INF Certificate 때문에 불가능해짐에 따라 전용선박 수송방안을 검토하게 되었다. 전용선박 수송방안은 핵물질을 수송을 할 수 있는 INF Certificate를 취득한 외국의 선박을 이용하는 방법으로 이미 외국의 수송경험으로 검증된 바 있으므로 본 수송 때문에 특별한 제약은 없는 것으로 조사되었다. 전용선박 수송방안은 가용한 방법임에도 수송비용이 많이 소요되고, 기존에 캐나다 서부의 하역항구로 이용되는 캐나다의 밴쿠버 항이 Clean Port로서 핵물질의 하역이 불가능한 것 등의 문제가 있는 것으로 조사되었다. 그러나 하역항구는 기존의 관례를 적용하여 미국의 수송허가를 받아 미국의 Seattle 항을 이용하거나 캐나다의 다른 항구를 조사해 보는 것이 필요하다. 미국의 승인이 필요할 경우에는 기존 수송용기로 잠정 결정된 IMT Cask가 현재 미국 DOT의 승인심사를 받고 있으므로 큰 문제는 없는 것으로 미국과 캐나다의 핵물질 수송전문회사인 LTI와 Edlow에서 조언하고 있다. 캐나다의 다른 항구를 사용하는 방안도 수송계획이 구체화될 때 다시 검토해 볼 사항이라고 판단된다. 따라서 이 수송방안은 절차상 계약간의 어려움은 예상되지만 근본적인 문제는 없는 것으로 판단된다.

전용선박을 이용하는 방안은 기술적인 측면에서는 큰 문제가 없으나 수송비용이 너무 많이 소요되는 것이 문제이다. 이에 따라 이 수송방안에 대해서도 가능성만 타진하고 구체적인 수송방안은 향후 예산확보여부에 따라 구체적으로 추진하는 것이 바람직하다고 판단된다.

6. 결 론

건식공정 산화물핵연료의 항공수송방안을 검토한 결과 건식공정 산화물핵연료 봉 10개는 핵분열성물질에 해당하므로 이를 항공수송할 수 있는 적합한 항공수송용 수송용기는 없는 것으로 조사되었다. 따라서 현시점에서는 건식공정 산화물핵연료 봉 10개의 항공수송은 불가능한 것으로 분석되었다. 또한 가용한 수송용기를 이용할 수 있는 대안으로 핵분열성물질 면제범위를 이용한 항공수송방안도 검토하였다. 이 경우에도 IATA Limitation에 따라 미국을 경유하여 일정량 이상의 Pu가 포함된 핵물질을 운반할 경우에는 미국 DOT에서 수송용기 시험을 포함한 수송용기의 인허가를 요구할 뿐 아니라 영공통과가 예상되는 일본, 러시아 등과도 기술적인 협의와 사전허가가 필요한 것으로 조사되었다. 이에 따라 핵분열성물질 면제범위를 이용할 경우에도 득보다는 위험부담이 너무 크므로 이 방안도 실현성이 없는 것으로 분석되었다.

조사된 핵물질을 선박을 이용하여 수송할 경우에는 SOLAS 규정에 따라 INF 등급 선박을 이용하여야 한다. 현재 국내 선박뿐 아니라 국내에서 미주 쪽으로 운항하는 외국선박 중에도 INF등급 선박은 없는 것으로 조사되었다. 이에 따라 INF 등급의 인증을 대행하는 한국선박과 국내에서 핵물질 수송을 전담하고 있는 국내 선사에 INF 등급의 획득 가능성을 타진하였다. INF 등급의 인증은 국내에서 시행한 경험이 없을 뿐 아니라 국내에서 핵물질을 전담으로 수송하는 국내 선사에서 이 문제를 심층 검토한 결과 기술적 및 경제적인 이유로 INF 등급의 신청을 완곡히 거절하였다. 또한 국내 중규모 선사에 INF 등급의 신청을 검토 의뢰하였으나 위험부담을 고려하여 전용선박 수송비를 초과하는 비용을 보장할 때 검토해보겠다고 함으로 이 방안도 실현가능성이 없는

것으로 분석되었다.

선박 전용수송방안은 INF 등급을 기 획득한 외국선박을 수송목적에 맞게 이용하는 방법으로 기술적으로 큰 문제는 없는 것으로 조사되었으나 이 수송방안의 경우에는 과도한 수송비가 소요 되는 것이 문제이다. 현재, 건식공정 산화물핵연료봉을 캐나다 NRU로 수송할 수 있는 가용한 방법은 전용선박을 이용하는 수밖에 없다. 그러나 이 방안은 많은 수송비가 소요됨으로 현시점에는 타당성만 확인하고 향후 예산확보여부에 따라 추진이 가시화될 때 좀더 구체적인 검토가 필요한 것으로 판단된다.

(감사의 글) 본 연구는 과학기술부 원자력중장기연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

(참고 문헌)

- [1] 이정원, 양명승 외, "DUPIC 핵연료제조 및 공정기술개발", KAERI/RR-2234/2001 (2002)
- [2] 박장진, 이호희 외, "DUPIC 핵연료시설 기술개발", KAERI/RR-2221/2001(2002)
- [3] IAEA, "Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material" IAEA Safety Standards Series TS-R-1(1996)
- [4] "IATA Dangerous Goods Regulations"(2001. 1)
- [5] Air Business Home Page
- [6] International Convention for the Safety of Life at Sea(SOLAS)
- [7] International Maritime Dangerous Goods Code(IMDG)
- [8] "포장된 방사능 핵연료, 플루토늄 및 고준위 방사능 폐기물의 안전한 선박 운송에 관한 규정 (INF CODE)"
- [9] "원자력법"(2001. 1.16), "원자력법시행령"(2001. 7. 17)", "원자력법시행규칙"(2001. 7. 25)
- [10] "방사선안전관리 등의 기술기준에 관한 규칙", 과기부령 제 30호(2001. 7. 30)
- [11] "방사성 물질 등의 포장 및 운반에 관한 규정", 과기부고시 제2001-23호(2001. 9. 18)
- [12] "방사성물질 운반용기의 제작검사 및 사용검사에 관한 규정", 과기부고시 제2001-19호(2001. 9. 18)
- [13] "선박안전법" 법률 제5971호(1999. 4. 15)
- [14] "위험물선박운송 및 저장규칙", 해양수산부령 제189호(2001. 6. 4)
- [15] 구정희, 이주찬 외 "KMRR 핵연료 수송용기 안전성분석보고서" KAERI- NEMAC/TR-19/94(1994)
- [16] U.S. NRC "Certificate of Compliance for Radioactive Material Packages (NAC-LWT)" USA/9225/B(U)F-85 Rev. 27, 2000. 1
- [17] U.S. NRC "Certificate of Compliance for Radioactive Material Packages (GE-2000)" USA/9228/B(U)F-85 Rev. 18, 1999. 11
- [18] CNSC "Certificate of Compliance for Radioactive Material Packages(IMT Flask)" CDN/2061/B(U)F-85 Rev. 5, 2002. 2

정상운전시 DFDF 시설의 환경영향평가

Environmental Effects of DFDF Normal Operation

박장진, 이호희, 신진명, 김종호, 양명승
한국원자력연구소

요 약

핵비확산성 건식공정 산화물핵연료는 경수로 사용후핵연료를 재가공하여 원전에서 사용할 수 있는 핵연료로 재가공하는 개념으로, 이 실험은 고방사능 물질인 사용후핵연료를 초기물질로 사용하므로 고방사능 차폐시설인 핫셀 내에서 원격으로 조작되어야 하는 기술적 특성 때문에 이 실험은 적절한 공학적 요건과 안전성을 갖춘 전용시설(DFDF: DUPIC Fuel Fabrication Facility)을 구축하여 '00년 1월부터 실제 사용후핵연료를 사용한 실험을 수행하고 있다. DFDF에서 최대 약 50 kgU/yr의 사용후핵연료를 사용하여 건식공정 산화물핵연료 제조시험을 수행할 때 IMEF 시설의 방사선 환경영향에 미치는 영향을 검토하였다. 분석한 결과 DFDF 시설의 운영으로 인한 영향은 모두 관련법규를 만족할 뿐 아니라 IMEF 시설의 설계기준도 만족하는 것으로 분석되었다.

Abstract

A DUPIC nuclear fuel is a newly developed fuel for CANDU reactors based on the concept of refabrication of spent PWR fuel by a dry process. Because a spent PWR fuel, a highly radioactive material, is used as a starting material, the experimental verification of DUPIC nuclear fuel fabrication requires an appropriate facility which should satisfy engineering requirements and guarantees safe operation. DUPIC nuclear fuel development team modified M6 hot-cell in IMEF to construct the dedicated facility(DFDF) for the experiment. The experiment with spent PWR fuel have been conducted since January of 2000. Environmental effects of DFDF normal operation have been investigated when DUPIC nuclear fuel is fabricated with the maximum capacity of 50 kg U/yr. The analysis results of the radiological safety of DFDF facility have shown that both national regulation limit and IMEF design criteria are satisfied.

1. 서 론

건식공정 산화물핵연료는 상용원전에서 배출된 경수로 사용후핵연료를 차폐시설 내에서 건식 재가공공정을 통해 산화물핵연료로 재가공하는 개념으로 조사재시험시설(IMEF)의 M6 핫셀에 건식공정 산화물핵연료 전용 제조시험시설(DFDF: DUPIC Fuel Fabrication Facility)을 구축하여 제조시험이 수행되고 있다. 건식공정 산화물핵연료 제조시험을 수행하고 있는 IMEF 시설의 활용계획 확대에 따라 IMEF 지하에 위치한 예비 핫셀을 차세대관리종합공정실증시험용 핫셀로 개보수할 예정이다. IMEF 핫셀에서 차세대관리종합공정실증시험을 위해서는 증설되는 시설을 포함하여

IMEF 시설의 안전성을 재평가하여 규제기관에 IMEF 시설의 건설·운영 변경허가를 획득할 예정이다. 이러한 상황변화에 따라 DFDF에서 최대 50 kgU/yr의 사용후핵연료를 사용하여 건식공정 산화물핵연료 제조시험을 수행할 때 정상운전 시 환경영향에 의한 최대 개인피폭선량 등을 분석한 후 IMEF 시설의 방사선 환경영향에 미치는 영향을 검토한다.

2. 환경영향평가 대상시설 및 기준공정

건식공정 산화물핵연료 제조시험은 조사후시험시설(PIEF)에 저장되어있는 경수로 사용후핵연료 중의 일부를 사용하여 수행한다. 사용후핵연료로부터 핵연료봉 인출, 절단 등은 PIEF에서 수행하고, 절단연료봉을 이용한 slitting, 탈피복, 산화/환원(OREOX)에 의한 분말제조공정, 소결체 제조공정, 연료봉 및 연료집합체 제조공정은 조사재시험시설(IMEF)의 M6 핫셀(DFDF 시설)에서 수행한다.

건식공정 산화물핵연료 제조시험을 위한 제반 공정설비 및 그 부속장치가 설치되는 M6 핫셀은 내부 크기가 2 m(폭) × 23.8 m(길이) × 4 m(높이)이고, 알파-감마셀로 설계되었다. M6 핫셀의 내부는 두께 3 mm의 스테인레스 스틸판으로 라이닝이 되어 제염이 용이하도록 되어 있고, 방사선 차폐를 위하여 벽체와 바닥 및 천장은 중량 콘크리트 구조물로 건설되어 있다. 벽체 두께는 1.1 m, 천장의 두께는 0.9 m로 내진 1등급 구조물로 설계되었으며, 셀 전면부에는 1.06 m(폭) × 0.84 m(높이) 크기의 방사선 차폐창이 셀의 길이 방향으로 10 개가 설치되어 있다. 차폐창 상부 좌우에는 원격조작기(M/S manipulator)가 한 쌍씩 설치되어 있어 9 kg까지의 하중을 취급할 수 있다.

M6 셀의 환기계통은 시간당 12 회 이상의 환기횟수를 갖고, 부압이 -25~-40 mmAq이며, 개구면의 면속도가 0.5 m/s 이상이 되도록 설계되어 있다. 핫셀에는 공정 배기체 처리장치와 핫셀 환기계통이 설치되어 있다. 핫셀 배기계통은 셀내 필터(예비필터 + HEPA 필터)와 배기팬실 필터(HEPA 필터 + 활성탄필터 + HEPA 필터)로 구성되어 있다[7, 8].

건식공정 산화물핵연료 제조시험에 따른 방사선 환경영향에 주로 영향을 미치는 휘발성 및 준휘발성 방사성기체와 부유분진에 영향을 미치는 고온가공공정인 OREOX와 소결공정의 특성은 다음과 같다. 경수로 사용후 핵연료봉의 표면을 절개한 후에 산화공정을 통해 사용후핵연료 분말을 추출하고 산화온도 450 °C, 환원온도 700 °C의 OREOX 공정을 3 회 수행하여 건식공정 산화물핵연료 원료분말을 제조한다. OREOX 공정을 거친 분말을 밀링, 성형압분한 후 이 압분체를 환원성 분위기(Ar-4%H₂)에서 1,750 °C로 4~7 시간동안 소결한다[1].

3. 기준 사용후핵연료 및 공정중 누출량

가. 기준 사용후핵연료

건식공정 산화물핵연료 제조시험은 PIEF 저장수조에 저장되어 있는 경수로 사용후핵연료중에서 1986년에 고리 1호기에서 방출된 G23 경수로 사용후핵연료 집합체에 포함된 핵연료봉의 일부를 인출하여 사용한다. 본 평가에서는 ORIGEN II code를 이용하여 초기농축도 3.21 w/o, 연소도 34,770 MWD/MTU, 냉각기간 13 년인 사용후핵연료의 핵종별 방사능 함유량을 계산하여 그 결과를 이용한다. 현재 DFDF에서는 연간 10 kgU이하의 소량 사용후핵연료를 사용하여 시험을 수행하고 있지만(실제 '01년 1월부터 '03년 8월까지 약 17 kgU 사용) 본 평가에서는 보수적으로 연간 최대사용량을 50 kgU으로 가정한다[1, 2].

나. 공정 배기체 처리장치

건식공정 산화물핵연료 제조시험공정은 산화·환원에 의해 분말을 제조하고 이 분말을 펠렛으로 성형하여 소결하는 고온처리공정을 포함하고 있으므로 공정장치의 운전중에는 휘발성 및 준휘발성 방사성 기체와 부유분진이 발생할 수 있다. 이러한 기체상 및 부유분진 방사성물질로 핫셀오염을 방지하고 외부환경으로의 누출을 최소화하기 위해 OREOX 공정계통과 소결공정계통에는 특

성에 맞는 방사성폐기물 처리공정 장치가 설치되어 있다.

건식공정 산화물핵연료제조공정 중 산화·환원 공정중에 발생하는 핵종제거를 위한 배기체 처리계통은 온도구배관(thermal gradient tube, TGT)을 이용하여 준휘발성 핵종을 응축시켜 처리한 다음에 미립자제거장치인 스테인레스스틸로 된 metal wool을 통하여 부유입자를 제거하고, silver impregnated zeolite를 이용한 요오드 제거장치로 I_2 를 포집하고 이어 molecular sieve 5A를 이용한 삼중수소 흡수장치로 HTO를 제거하도록 설계하였다. 최종적으로 HEPA 필터를 설치하여 이를 통과한 후 다시 한번 핫셀의 배기체 처리계통을 통해 환경으로 방출한다.

건식공정 산화물핵연료제조공정 중 소결 공정중에 발생하는 핵종을 제거하기 위한 배기체 처리계통은 석탄회 세라믹필터를 이용한 세습포집장치로 방사선적 위험도가 높은 세습을 안정한 폴루사이트 형태로 포집한다. 은침착 제올라이트를 사용한 요오드제거장치에서 배기가스중 요오드화합물을 제거한 후 이어 온도구배관을 이용하여 준휘발성핵종을 응축시킨 후 최종적으로 HEPA 필터를 통과한 후 다시 한번 핫셀의 배기체 처리계통을 통해 환경으로 방출한다.

다. 핫셀 배기체 처리계통

건식공정 산화물핵연료 제조공정에서 발생한 기체상 및 부유 방사성물질은 1차 공정 배기체 처리장치에서 처리 한 후 핫셀 배기계통으로 보내 다시 한번 처리한 후 하나로 굴뚝을 통해 대기로 방출한다. 핫셀 배기계통은 셀내 필터(전처리필터 + HEPA 필터)와 배기팬실의 2차 필터(HEPA 필터 + 활성탄 필터 + HEPA 필터)로 구성된다. HEPA 필터는 0.3 μm 미립자에 대해 최소 99.97 %의 제거효율을 가지며 활성탄 필터는 CH_3I 에 대한 제거효율이 최소 99.75 %이다[7, 8].

4. 방사선원형 결정

건식공정 산화물핵연료 제조공정에서 발생한 기체상 및 부유 방사성물질은 공정 배기체처리장치, 셀내필터 및 배기팬실 필터를 거쳐 하나로의 스택을 통해 환경으로 방출된다. 환경으로의 방출량을 결정하기 위해 우선 핵종별 방출량과 배기체 처리장치를 통과한 후의 방사선원을 산출한다. 건식공정 산화물핵연료 제조공정중 누출되는 방사성물질의 핵종 및 양을 산출하기 위하여 각종 문헌 및 실험자료의 검토를 통해 예상되는 누출율을 표 1과 같이 결정하였다[3, 4, 5].

표 1. 기체상 방사성핵종의 종류 및 누출율

핵 종	산화·환원공정 (%)	소결공정 (%)	비 고
H	100	-	약 50%는 피복관과 결합되어 있음
He	100	-	
Br	100	-	
Kr	100	-	
I	60	40	
Xe	100	-	
Ru	2	-	
Cs	2	98	
Tc	20	-	
Cd	-	100	
Se	10	90	
Sb	-	60	
Rb	5	95	
Te	10	90	
C	100	-	

5. 환경으로의 방출량 계산

공정중에 배출되는 방사성핵종은 각 공정의 배기체 처리장치를 거쳐 제거된 후 핫셀의 배기계통으로 배출되고 이들 배기체는 다시 핫셀의 배기계통을 통해 환경으로 방출된다. 이때의 방출량은 표 2에 나타낸 바와 같다.

표 2. 환경으로의 방출량 계산

핵종	배기계통으로의 방출량(Ci)	HEPA 필터 제거율	활성탄필터 제거율	환경으로의 방출량(Ci)
H-3	2.00E-02			2.00E-02
C-14	3.00E-02			3.00E-02
Se-79	6.41E-06	3.00E-04		1.92E-09
Kr-85	2.42E+02			2.42E+02
Rb-87	3.35E-11	3.00E-04		1.00E-14
Tc-99	4.14E-05	3.00E-04		1.24E-08
Ru-106	1.94E-06	3.00E-04		5.81E-10
Cd-113M	4.65E-04	3.00E-04		1.40E-07
Te-125M	1.92E-03	3.00E-04		5.76E-07
Sb-125	4.73E-03	3.00E-04		1.42E-06
Sb-126	1.02E-06	3.00E-04		3.05E-10
I-129	1.65E-05		2.50E-03	4.13E-08
Cs-134	9.30E-05	3.00E-04		2.79E-08
Cs-135	1.98E-08	3.00E-04		5.95E-12
Cs-137	3.57E-03	3.00E-04		1.07E-06
합계				2.42E+02

6. 정상운전시 환경영향 평가

정상운전시 환경영향평가를 위하여 다음과 같이 가정하였다. 건식공정 산화물핵연료 제조시험중에 발생한 휘발성 및 준휘발성 핵종은 핫셀내의 공정배기체 처리장치, 셀내 필터 및 배기팬실 필터를 통해 하나로 굴뚝을 통하여 시설 외부로 방출된다. 방출된 방사성물질은 바람을 타고 환경으로 확산되고, 일부는 확산되면서 지표면에 침적된다. 환경으로 방출된 방사성물질은 인근 주민에게 직접, 간접으로 방사선피폭을 야기한다. 피폭경로는 대기로 방출된 방사능 운에 의한 직접피폭, 방사능 운의 호흡에 의한 내부피폭, 방사성물질의 침적에 의해 오염된 농작물의 섭취를 통한 내부피폭 및 오염된 토양으로부터의 외부피폭 등이 있다[6~8].

가. 대기확산인자 및 침적인자

공정배기체처리장치 및 핫셀배기체처리장치를 통과하여 대기로 방출된 기체상 방사성물질은 주변의 기상 및 지형조건 등에 따라 대기를 통하여 이동·확산된다. 연간 평균 대기확산인자(이하 “대기확산인자”)는 방사성물질이 대기중에 확산되는 정도를 나타내며, 연간 평균 침적인자(이하 “침적인자”)는 대기중 방사성물질이 중력등에 의해 지표에 침적되는 정도를 나타낸다. 대기확산인

자 및 침적인자 평가는 미국 원자력규제위원회(US NRC)의 규제지침(Regulatory Guide) 1.111에 제시된 모델에 준한다.

본 평가에서는 한국원자력연구소 부지에 위치한 기상관측탑에서 측정된 연간 기상자료의 통계치 및 방사성물질의 방출특성자료를 사용하여 평가한 “대덕 원자력관련시설의 운영중 방사선 환경영향평가(2002년보)” 자료를 이용하였다. 이 보고서에서는 대기확산인자의 평가를 위해 미국 원자력규제위원회의 규제지침 1.111에 근거하여 개발된 전산프로그램 XOQDOQ를 사용하였다. 하나로로 경우 방출유형특성상 고도방출에 해당하며, 기상관측탑의 67 m 높이에서 측정된 자료를 사용하여 평가한다.

나. 방사선 피폭선량 평가

최대피폭지점에서의 피폭경로별 피폭선량은 미 규제지침 1.109에 따라 평가하며, 최대개인 피폭선량은 이들 모든 피폭경로에 대한 피폭선량의 합이다. 최대개인이란 부지주변 주민중 생활습관, 음식물 섭취량, 주거지 등 여러 조건이 방사능 피폭을 가장 많이 받도록 가정된 가상개인(최대개인)을 말한다. 피폭선량계산은 미 규제지침서 1.109의 모델을 기준으로 한국의 실정에 맞게 전산화한 GASDOS 전산프로그램을 사용하였다. 개인의 소비량과 선량환산인자는 연령에 따라 변하는 값으로 이를 고려하기 위하여 주민을 성인(17 세 이상), 십대(17 세 미만 11 세 이상), 소아(11 세 미만 1 세 이상) 및 유아(1 세 미만)로 구분하고, 피폭을 받는 장기는 전신, 소화기관, 뼈, 간, 신장, 갑상선, 폐 및 피부가 고려된다.

주민피폭선량의 계산은 미국 원자력규제위원회의 규제지침 1.111에 근거하여 개발된 전산프로그램 GASPARD를 한국원자력안전기술원(KINS)에서 우리나라의 실정에 맞게 수정·보완한 GASDOS를 사용하였다. 최근 과기부 고시에서 국제방사선방호위원회(ICRP)의 신권고(ICRP 60)를 법제화하면서 신권고의 평가체제를 반영한 선량환산인자를 적용하여 평가하도록 규정하고 있다. 따라서 본 평가에서는 신권고에 따른 선량환산인자를 적용하기 위해 GASDOS 전산프로그램을 수정·보완하여 적용하였다.

하나로를 통해 방출되는 주요 핵종의 특성을 고려하여 본 평가에서는 유효선량과 상대적으로 선량환산인자가 높은 중요 장기에 대한 등가선량만 고려하여 결과를 제시하였다. 방사능운에 의한 외부피폭의 경우 실효선량은 국제원자력기구의 기본안전기준(IAEA safety series 115)에 제시된 선량환산인자를, 공기중 흡수선량과 피부선량은 미국 원자력규제위원회의 규제지침 1.109에 제시된 값을 적용하였다. 지표에 침적된 방사성물질에 의한 외부피폭의 경우에는 미국 원자력규제위원회의 규제지침 1.109에 제시된 선량환산인자 값을 적용하였다. 국제방사선방호위원회와 국제원자력기구에서는 6개의 연령군으로 분류하고 있으나 본 평가에서는 성인에 대한 피폭선량만을 평가하였다.

GASDOS 전산프로그램을 이용하여 건식공정 산화물핵연료 제조공정에서 하나로 스택을 통해 환경으로 방출된 방사성물질로 인한 부지 주변의 개인최대피폭선량과 설계기준 과의 비교는 표 3에 나타낸 바와 같다. 표 3에서 알 수 있듯이 건식공정 산화물핵연료 제조시험으로 인한 정상운전시 일반주민에 대한 피폭선량은 설계 기준을 모두 만족시키는 것으로 평가되었다.

표 3. 설계기준과 DDFD 평가결과의 비교

피폭 구분	단위	설계 기준	DDFD 평가결과	%
감마선에 의한 공기흡수선량	mGy	1.00E-01	1.73E-04	0.17
베타선에 의한 공기흡수선량	mGy	2.00E-01	1.96E-02	9.80
외부피폭에 의한 유효선량	mSv	5.00E-02	2.09E-04	0.004
외부피폭에 의한 피부등가선량	mSv	1.5E-01	1.36E-02	9.07
인체장기 등가선량(내부피폭)	mSv	1.5E-01	1.24E-03	0.83

7. 결 론

핵비확산성 건식공정 산화물핵연료는 실제 경수로 사용후핵연료를 재가공하여 원전에서 사용할 수 있는 핵연료로 재가공하는 개념으로, 이 실험은 조사재시험시설의 M6 핫셀을 개보수하여 전용시설(DFDF: DUPIC Fuel Development Facility)을 확보하여 규제기관의 인허가를 득한 후 2000년 1월부터 실제 사용후핵연료를 사용하는 건식공정 산화물핵연료 제조시험을 수행하고 있다.

본 평가에서는 DFDF 시설에서 연간 최대 50 kg의 사용후핵연료를 사용하여 실험을 수행할 경우, IMEF의 환경영향 설계기준에 어느 정도 영향을 미치는지를 분석하였다. 정상운전 시 환경영향에 의한 최대 개인피폭선량과 과기부 고시 2002-23호(방사선방호 등에 관한 기준) 설계기준과 비교 하면, 감마선에 의한 공기흡수선량은 설계기준의 0.17%,

베타선에 의한 공기흡수선량은 설계기준의 9.8%, 외부피폭에 의한 유효선량은 설계기준의 0.004%, 외부피폭에 의한 피부등가선량은 설계기준의 9.07%, 인체장기 등가선량(내부피폭)은 설계기준의 0.83%로 평가되어 모두 기준값을 만족하는 것으로 분석되었다.

(감사의 글) 본 연구는 과학기술부 원자력중장기연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

(참고 문헌)

1. 이정원 외, DUPIC 핵연료제조 및 공정기술개발, KAERI/RR-2034/ 2001, 2002
2. 박장진 외, DUPIC 핵연료시설 기술개발, KAERI/RR-2221/2001, 2002
3. 신진명 외, DUPIC 핵연료 제조공정에서의 배기체처리계통 예비안전성분석, KAERI/TR-1643/2000
4. J.D. Sullivan and D.S. Cox, AECL's Progress in Developing the DUPIC Fuel Fabrication Process, AECL Chalk River Laboratories
5. 이호희 외, AIROX 공정에 의한 사용후핵연료의 재순환, KAERI/ TS-82/99, 1999
6. 황원태 외, 대덕 원자력관련시설의 운영중 방사선 환경영향평가, KAERI/CR-87/99, 1999
7. 하나로 안전성분석보고서 변경내용(11. 4. 조사재시험시설), 2003. 07
8. 하나로 안전성분석보고서 개정판(11. 4. 조사재시험시설), 2000. 11
9. 원자력법, 시행령, 시행규칙
10. 과기부 고시 2002-23호(방사선방호 등에 관한 기준), 2003

사용후연료 건식 저장용기의 구조평가

Structural Evaluation of Spent Fuel Dry Storage Cask

서기석, 이재한, 강경훈, 박성원*, 정성환**
한국원자력연구소*, 한국수력원자력(주)**

요 약

사용후연료 저장과 관련된 규정 중 구조에 대한 예상운전사고 및 설계기준사고의 구조 안전성이 보장되도록 설계하여야 한다. 이러한 구조 평가항목으로서 낙하, 전복, 폭풍, 홍수 및 지진으로 인한 사고에 대하여 하중조건과 구조적 개념평가 방법을 제시하고, 콘크리트 저장시스템에 대한 예비 구조안전성 해석을 수행하였다.

Abstract

In a various regulations and standards related to the spent fuel storage, the storage casks should be designed to sustain the structural integrity under the accident conditions of predicted operation and design criteria. These conditions for the structural evaluation requires the drop, tip-over, wind like tornado and typhoon, flood and earthquake. This paper describes the load cases and conceptual evaluation method for the structural evaluation. Preliminary safety analysis of the concrete storage system were performed.

1. 서 론

사용후연료의 중간저장시설에 대한 계획은 국가적 차원에서 2016년에 운영하도록 되어있다. 그러나 원자력 발전소의 일부는 2008년부터 저장시설이 포화되기 시작할 것으로 예상하고 있다. 따라서 원자력 발전소 부지에 사용후연료 저장시설을 마련하는 것은 불가피한 것으로 판단된다. 현재 사용후연료의 저장시스템에 대한 연구가 국내외에서 활발하게 진행되고 있다. 원자로 건물에 설치된 습식형 저장시설은 확장의 한계가 있으므로 독립적인 저장시설을 필요로 하고 있다. 독립적인 사용후연료 저장방식은 저장용기, 볼트, 모듈 등 종류가 있으며, 콘크리트 저장용기 방식을 일반적으로 경제적 이유로 많이 사용되고 있다. 본 논문은 콘크리트 저장용기의 구조 개념평가를 기술하였다.

2. 사용후연료 건식 저장용기의 구조 설계요건

사용후연료 저장과 관련된 규정으로는 IAEA Safety Series No. 116[1], US 10 CFR Part

72[2] 등이 있으며, 표준규격으로는 ANSI/ANS-57.9[3] 등이 있다. IAEA Safety Series No. 116 “사용후연료 저장시설의 설계”는 일반사항, 미입계, 구조 및 배치, 방사선 방어, 격납, 열제거, 재질, 취급 등 8개 부분으로 구성되며, US 10 CFR Part 72 “사용후연료 및 고준위 방사성폐기물의 독립저장시설에 대한 인허가 요건”은 대부분 인허가 부분을 다루고 있으며, 12개의 Subpart로 구성된다. 사용후연료 건식저장시설의 구조설계에 적용할 항목으로 구조 및 배치, 격납, 재질, 예상 운전사고 및 설계기준사고의 구조 안전성 등에 관련한 사항을 고려하여야 한다.

예상운전사고로서의 낙하해석과 설계기준사고의 지진, 폭풍, 홍수 등과 같은 조건에서 구조 건전성이 보장되도록 설계되어야 한다. 사고로 인하여 전복될 경우에도 안전성을 유지할 수 있어야 한다. 적재될 핵연료 바스켓 또는 용기의 중량(최대 저장 핵연료무게 포함)으로 인하여 취급상 문제점이 야기될 정도의 구조적 변형이 발생하지 않도록 설계하여야 하며, 아울러 정 하중, 충격하중 및 내진 하중도 고려하여야 한다. 지진설계기준은 10CFR Part 100에서 이전에 평가된 원자력발전소 부지의 safe-shutdown earthquake 기준보다 크거나 같아야 하며, 적절한 안전 여유도를 가지고 최소 20년 동안 수명이 보장되도록 하여야 하며, 강화 콘크리트 구조물은 차폐, 환기 및 날씨로부터의 보호 역할을 수행하여야 한다.

3. 사용후연료 건식 저장용기의 구조평가

3-1. 사용후연료 건식 저장용기의 구조

일반적인 사용후연료 건식 저장용기는 콘크리트 저장용기시스템으로 내부 캐니스터와 콘크리트 저장용기로 구성된다. 캐니스터(Canister)는 사용후연료를 적재하기 위한 용접된 원통형 구조물로서, 외부 구조물인 원통형 셸(shell), 뚜껑(lid), 바닥 판(baseplate), 마감 링(closure ring)과 바스켓 집합체(Basket assembly)로 구성된다. 콘크리트 저장용기는 사용후연료가 적재된 캐니스터를 저장하기 위한 단단하고 튼튼한 원통형 용기이며, 내부 셸과 외부 셸, 그리고 내부 셸과 외부 셸 사이의 차폐 기능 및 압축 강도를 제공하는 콘크리트 차폐체로 구성된다. 특히 저장용기의 상하부에 열 제거를 위한 공기 흡배기구가 있다.

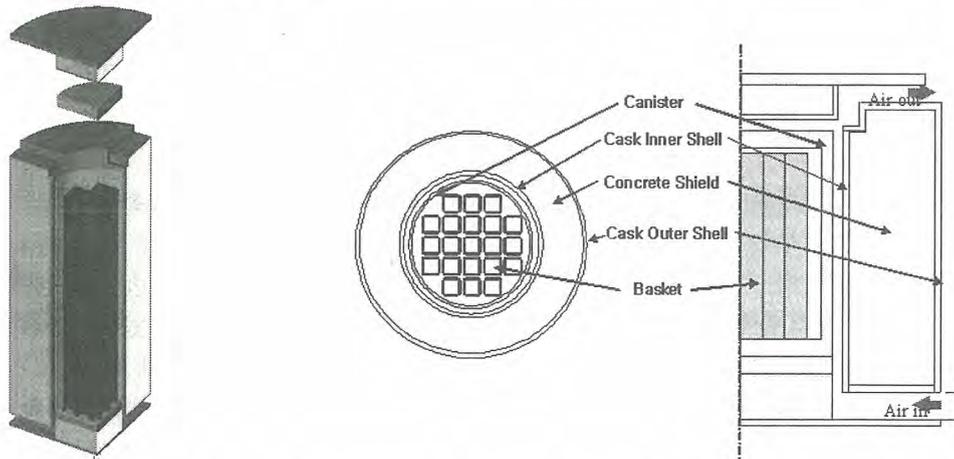


Fig 1. Configuration of Spent Fuel Storage Cask

3-2 낙하해석

1) 저장용기의 수직낙하해석

사고 조건에 의한 낙하 시 공기 흡입구에 발생하는 응력의 평가는 공기 흡입구를 구성하는 강

판 구조물에서 변형이 크게 발생한다. 이때 변형의 정도가 허용치를 넘지 않아야 한다. 콘크리트 저장용기의 하단부의 강판(steel plate)에 대한 유한 요소 모델링 및 준정적 해석은 구조 평가용 상용 프로그램인 ABAQUS/Standard를 사용한다.[1] 콘크리트 차폐체, 셸 구조물 및 캐니스터는 자체의 구조적 강성은 없는 것으로 단순하중으로 가정하여, 공기 흡입구의 강판 구조물에 대해 작용하는 분포하중으로 고려한다.

공기 흡입구의 강판 구조물의 응력강도 한계치는 탄성해석에서 ASME NF를 적용한다.[2] 공기 흡입구의 강판에서 발생하는 계산응력이 허용응력을 초과하는 하중 조건을 찾기 위해 각각의 하중조건에 대하여 최대 응력의 값을 가속도의 변화에 의한 분포하중의 증가에 따라 응력의 변화를 평가한다.

2) 바스켓의 수평낙하해석

콘크리트 저장용기의 수평 낙하 및 전복조건에 대해 사용후연료 미임계 안전성 유지를 위해 바스켓의 낙하 해석 평가가 필요하다. 저장용기의 내부 바스켓에 대하여 Plane Strain의 조건을 단면을 2차원으로 형상화하고, ABAQUS/Standard를 사용하여 모델링 및 해석을 수행한다. 재질의 기계적 특성은 순수하게 탄성변형만을 고려하고 바스켓 내부의 사용후연료는 단순히 하중으로만 작용하며, 바스켓을 고정하는 구조물과 캐니스터의 내벽은 변형이 없는 강체로 가정한다. 바스켓의 강판 구조물의 응력강도 한계치는 탄성해석에서 ASME NG를 적용한다.[3]

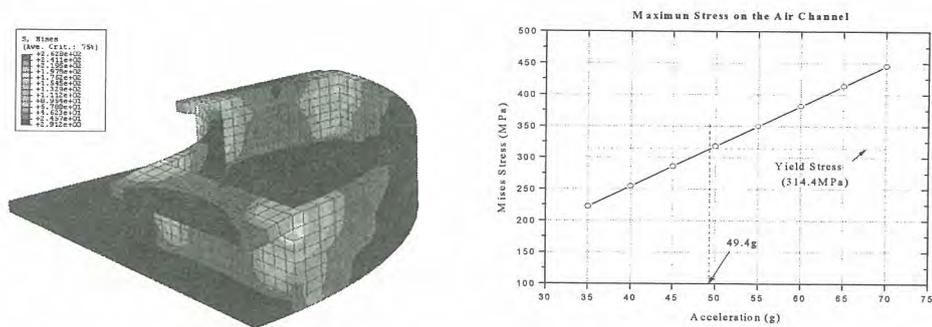


Fig. 2 Stress Contour and Maximum Stress on the Air Channel.

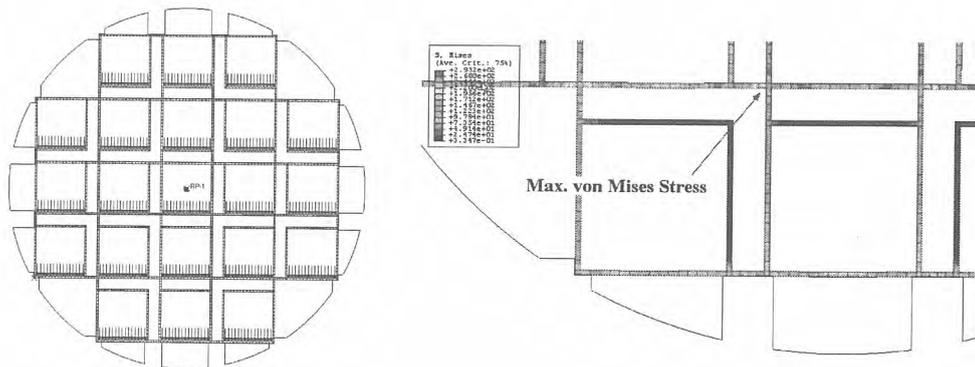


Fig. 3 Load Condition and Stress Contour of Basket.

3-3 전복평가

폭풍 및 홍수에 의한 풍속 및 유속은 압력으로 저장용기의 측면에 수평하중으로 작용한다. 이러한 힘은 저장용기의 미끄러짐 혹은 전복의 원인이 된다. 홍수 및 폭풍에 의해 저장용기는 저장용기 바닥 면의 외곽 점을 중심으로 회전하게 된다. 폭풍과 홍수 하중에 의한 모멘트가 저장용기의 자중에 의한 모멘트 보다 크다면 전복이 발생된다. 그리고 미끄럼 평가는 부력을 고려한 자중에 대한 마찰력과 폭풍 및 홍수에 의한 미끄러짐을 유발하는 힘을 비교함으로써 평가한다.[4]

3-4 지진평가

내진평가는 단순모델에 의한 수식평가와 ABAQUS 전산프로그램을 이용한 시간이력해석평가를 모두 수행한다. 저장용기를 보수적 평가를 위해 하단 고정된 외팔보 모델로 가정하여 고유진동수를 계산하며, 수직방향으로 지진가속도에 의한 반 중력 방향 하중을 가한 상태에서 수평방향으로 지진가속도와 동등한 정하중을 주어, 저장용기의 복원모멘트에 의한 전복 가능성을 평가 하였다.

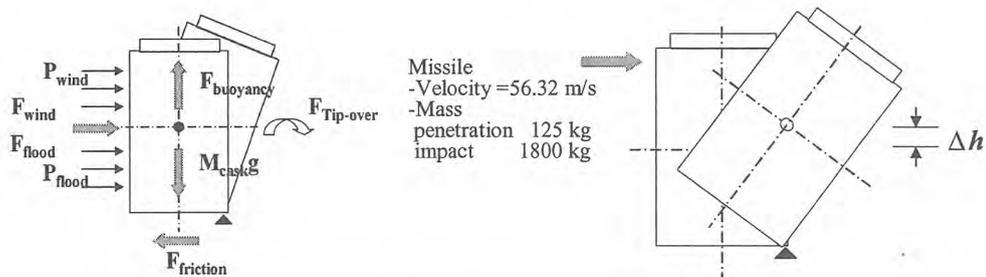


Fig. 4 Tip-over by Wind, Flood and Missile Impact Load.

시간이력해석에 의한 내진평가는 US NRC RG1.60에 제시한 가속도 스펙트럼을 근거로 작성한 수평 및 수직방향 가속도시간이력 설계지진에 대한 비선형 시간이력해석을 수행하며, 지진에 대한 시간이력해석은 개념설계 단계의 신속한 평가를 위하여 저장용기 내부구조물은 균일한 질량분포를 갖는 것으로 가정한다. 해석결과 미끄러짐과 들림 현상을 평가한다. 그러나 이들 값은 저장용기의 탄성 설치판과 저장용기의 유연성에 의한 국부 가속도의 영향으로 판단된다. 저장용기를 강체로 모델링한 경우에는 수평 미끄러짐이 발생하지 않는다. 저장용기 내의 저장용기 바닥의 미끄러짐과 들림은 설계지진에 대하여 매우 작은 정도로 발생하며 이를 통해 저장용기의 전복을 평가할 수 있다.

4. 결과 및 토의

사용후연료 저장과 관련된 규정 중 낙하, 전복, 폭풍과 홍수로 인한 가상사고 후에도 안전한 저장조건이 보장되도록 설계하여야 한다. 이에 대한 평가로 수직낙하 사고조건에서는 구조적으로 가장 취약할 것으로 예상되는 공기 흡입구에 대해 유한요소 구조해석 방법으로 구조적 건전성을 확보할 수 있는 충격 가속도를 평가하며 수평낙하에 대해서는 바스켓 구조물에 대해 수직낙하와 같은 방법으로 평가한다. 또한 전복에 대한 기준 조건을 정립하여 홍수 및 폭풍에 따른 전복 발생 유무를 평가할 수 있으며 지진 평가에 대해서 계산 모델 및 해석 모델에 대해 제시된 가정 및 조건으로 구조적 건전성을 평가하여 사용후연료 저장용기의 구조 평가에 대한 기본 자료로 활용할 수 있다.

5. 참고문헌

- 1 ABAQUS/Standard User Manual, V.6.3
- 2 ASME Boiler and Pressure Vessel code section III subsection NF
- 3 ASME Boiler and Pressure Vessel code section III subsection NB
- 4 Rothbart, H., Mechanical Design and Systems Handbook, McGraw-Hill, 1985

방사성 폐기물 중의 ^{129}I 정량을 위한 요오드의 분리 및 회수

Separation and Recovery of Iodide in Radioactive Waste for ^{129}I

최계천, 한선호, 지광용
한국원자력 연구소
임석남
한국수력원자력주식회사
박상규
(주)액트

요 약

원자력 발전소에서 배출되고 있는 방사성 폐기물의 운반 및 처분과 관련하여 규제가 예상되는 대상 핵종을 선정하고, 특히 방사능 계측기로 직접 측정이 불가능한 드림 내 $\alpha \cdot \beta$ 방출핵종에 대한 농도 예측과 검증방법에 관한 연구가 진행되고 있다. 본 연구에서는 β 방출 핵종이면서 반감기가 매우 긴 $^{129}\text{I}(t_{1/2}=1.57 \times 10^7)$ 의 정량을 위하여 모의 폐기물중 중에 함유되어 있는 요오드의 분리 및 회수율을 측정하였다. 모의 폐기물중 가용성 및 난용성 시료의 전처리 방법으로 혼합산 분해법과 알칼리 용융방법을 각각 이용하였으며 두 방법에 대한 요오드의 회수율을 비교하였다. 요오드의 측정방법으로 이온 크로마토그래피를 이용하였으며 매질의 음이온성분에 의한 영향은 없었다. 두 방법의 전체 공정에서 혼합산분해에 의한 요오드의 회수율은 76.7 (RSD 1.7%)이고 알칼리용융에 의한 방법에서 모직물의 경우에는 74.3(RSD 2.2%)이고 Resin의 경우 56.5(5.6%)로 각각 나타났다.

Abstract

For the disposal of low-level radwaste from nuclear power plant need the determination of levels of radio nuclides in radwaste. These nuclides include the difficult-to-measure nuclides, so indirect methodology for the determination of the difficult-to-measure nuclides have to be developed.

In this work, for the determination of $^{129}\text{I}(t_{1/2}=1.57 \times 10^7 \text{ years})$ in low-level radwaste from nuclear power plant is investigated. Recovery of Iodide in simulated waste(UO_2 pellet) as a soluble and radwaste(resin, woolen fabric) as a insoluble samples are measured. After pretreatment of sample, I_2 are extracted from aqueous solution with CCl_4 . Then I^- are extracted from CCl_4 with 0.1M NaHSO_3 aqueous solution. Iodide in aqueous solution are determined by ion chromatography. The overall recovery yield is 76.7 (RSD 1.7%) for mixed-acid digestion method. In case of woolen fabrics, overall recovery yield is 74.3 (RSD 2.2%) and recovery of iodide in resin 56.5 (RSD 5.6%) for alkaline fusion method.

1. 서 론

^{129}I 가 생성되는 주요 발생원은 태초의 빅뱅으로부터 존재하고 있는 자연적 발생과 각 국의 핵무기 실험에 의한 핵분열생성 및 원자력발전소(이하 원전)의 운영에 의한 폐기물로부터 발생되며 주변의 환경과 생태계에 축적되고 있다. 세계 여러 나라에서는 원전을 비롯한 기타 핵시설로부터 배출되고 있는 방사성폐기물의 처리 처분과 관련하여, 방사성 및 생물학적 독성과 핵종의 반감기, 비파괴 방법으로 측정이 곤란한 α · β 방출핵종 등 규제핵종 선정기준을 마련하고 이에 대한 규제를 강화하고 있다. 최근 국내에서도 원전에서 배출되고 있는 방사성폐기물의 운반 및 처분과 관련하여 규제가 예상되는 대상 핵종을 선정하고 α · β 방출핵종에 대한 농도 예측과 검증방법에 관한 연구가 진행되고 있다. 규제 핵종으로 예상되는 ^{129}I 의 경우 핵분열에 의하여 생성되는 휘발성원소로서 방사선의 방출에너지가 매우 낮아(6.4Bq/ug) 직접 측정이 어려운(DTM: difficult-to-measure)대표적 방사성 원소이다. DTM 방사성 핵종에 대한 방사능의 농도를 측정하기 위하여 쉽게 측정이 가능한(ETM: easy-to-measure)방사성 핵종인 ^{60}Co , ^{137}Cs 등의 γ 방출핵종을 기준핵종으로 정하고 ^{235}U 가 핵분열을 일으켰을 때 생성된 $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 의 방사능 비율을 척도화(scaling)하여 기준 핵종의 방사능 계측으로부터 대상 핵종의 농도를 예측하는 방법을 이용한다. 그러나 $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 의 방사능의 비는 핵분열도(fission yield)와 원전에서 배출되는 폐기물의 종류 및 형태에 따라 다르게 되므로 고유의 척도인자(scaling factor)산출을 위하여 개별 핵종에 대한 정확하고 신뢰할 수 있는 화학 분석법이 요구되고 있다.

^{129}I 의 측정방법으로 최근 관심의 대상이 되고 있는 가속질량분광법(accelerator mass spectrometry)¹⁾과 유도결합 플라즈마 질량분광법²⁾ 비롯하여 중성자 방사화분석법(NAA: neutron activation analysis)³⁻⁴⁾ 액체섬광계수 측정법⁵⁾, Γ -ray 분광법등이 있다⁶⁻⁹⁾. ^{129}I 의 경우 낮은 에너지(0.15 MeV)의 β 입자 방출 및 비방사능(6.4 Bq/ug m)을 갖고 있으며 Γ -ray 방출세기 또한 매우 낮아 직접 측정이 어렵기 때문에 중성자조사에 의한 NAA방법을 많이 이용한다.

본 연구의 목적은 원전 등에서 배출되고 있는 가용성 및 난용성 radwastes 시료 중의 ^{129}I 정량을 위하여 시료의 전처리 및 회수방법을 고찰하였다. 가용성시료를 산 용해방법으로 전처리 하고 용해과정에서 ^{131}I 추적자를 첨가하여 각 단계별 회수율을 측정하였다. 또한 난용성 모의시료를 혼합하여 제조한 다음 알칼리 용융법으로 용해한 후 분리 및 최적의 추출조건을 조사하고 측정된 회수율을 비교하였다.

2. 실험

2.1. 가용성 시료(모의 사용후핵연료)의 전처리

설치된 용해플라스크에 70 μL 의 ^{131}I (2.0 mCi/mL)를 가한 후 혼합산 30 mL를 가한다. 가열기로 용해온도를 97 $^{\circ}\text{C}$ 로 유지시키면서 2 시간동안 용해시킨다. 용해 후 5 mL의 시료를 취하고 혼합산의 산도를 2.5 M 로 조절한 후 140 mg 의 $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$ 를 첨가한다. 10 mL의 CCl_4 를 가한 후 즉시 마개를 닫고 5 분간 추출한 후 상 분리를 위하여 2시간 동안 정체시킨 다음 유기층을 취하여 역추출하고 수층의 일부를 크로마토그래프로 측정한다.

2.2. 난용성 시료(잡고체 등)의 전처리

고체 모의 시료를 잘 혼합하여 분쇄한 후 1 g을 취하여 50 mL 용량의 백금도가니에 넣고 용융제로서 5 g의 KOH와 산화제로서 0.5 g의 KNO_3 및 Iodine 운송체로서 10 mg의 KI,를 넣고 뚜껑을 덮은 후 전기로의 온도를 450 $^{\circ}\text{C}$ 까지 천천히 올리면서 시료가 완전히 분해되어 재가 될 때

까지 용융 시킨다. 시료의 일부를 60 ml의 분액깔때기에 넣고 5%의 NaClO mL를 가하고 HNO₃를 가하여 산도를 조절한 후 10 mL의 CCl₄를 가한다. 140 mg의 NH₂OH · HCl을 가하고 5 분간 추출한 후 상 분리를 위하여 2시간 동안 정제시킨다.

3. 결과 및 고찰

3.1. ¹³¹I 추적자를 사용한 요오드 회수율 측정

Fig. 1은 가용성시료를 질산으로 용해시킬 때 시료 중에 첨가된 ¹³¹I의 감마선 세기를 측정 한 결과이다. 시료의 용해가 시작된 후 40 여분이 되면서 급격하게 감소하다가 60여분 만에 50% 정도가 감소함을 나타내었다. 용해 후 180분이 지났을 때 대부분의 요오드는 질산에 의하여 I₂로 산화되어 휘발되는 것이 확인되었다. 따라서 시료를 용해시킬 때 시료 중에 함유된 I-가 I₂로 산화되어 휘발되는 손실을 막기 위하여 IO₃⁻나 IO₄⁻와 같은 비휘발성 요오드 산화물로 변화시켜 주기 위하여 혼합산 (8.0 M HNO₃ : 10.0 M HCl, 80 : 20 mol %)의 Nitrosyl-chloride를 이용하여 가용성시료를 용해시켰다. 용해과정에서 손실된 요오드의 양을 측정하기 위하여 용해가 끝난 후의 ¹³¹I의 감마선 세기를 측정하여 Table 1에 나타냈다. 결과에서 보는 바와 같이 용해전의 ¹³¹I의 감마선의 세기가 2970 (RSD1.9%) CPS/ml이고 용해후의 값이 2715± 83.4 CPS/ml로서 약 8.5 %의 손실율을 나타내었다. Table 2는 용해후 환원제인 NH₂OH · HCl을 첨가하여 IO₃⁻(IO₄⁻)를 I₂로 환원시킨 후 비극성 용매인 사염화탄소로 추출하였다. 그 결과 평균회수율은 74.9%를 나타내었다. 마지막 회수단계인 요오드의 역 추출단계에서는 Table 3에 나타낸 바와 같이 평균 90.8%의 회수율을 나타내었으며 전체공정에 대한 회수율은 76.7(RSD 1.7%)를 나타내었다.

3.2. 알칼리 용융법에 의한 요오드의 회수율

알칼리용융법의 경우 방사성물질의 휘발 및 오염확산으로 취급방법이 쉽지 않으나 산에 잘 녹지 않는 난용성 물질(필터류, 잡고체, 수지, 모직류 등)을 용융 시킬 수 있는 장점이 있다. 모의 radwaste (resin 및 모직물류)에 요오드의 운반체로 KI, 용융제로서 KOH, 산화제로서 KNO₃를 첨가하여 혼합한 후 450℃에서 용융시켰다. 용융 후 여액을 여과한 후 혼합산에 의한 추출방법으로 추출하고 같은 방법으로 I₂를 벗김시약인 0.1 N NaHSO₃로 역추출한 후 이온크로마토그래피로 정량하였으며 사용된 분리관 및 분리조건을 Table 4에 나타내었다. 역추출된 수용액을 분리관에 주입시키고 용리액으로서 0.08 M NaCl 용액을 0.1 μl/min. 의 흐름속도로 흘려 보내면 Fig. 2서 보는 바와 같이 약 2분 후 HSO₃⁻의 피크가, 3분 후 NO₃⁻의 피크가 나타났다. 곧 이어 6분 후에는 I⁻의 피크가 나타나므로 용액 속에 함유되어 있는 여러 성분에 방해받지 않고 정량할 수 있음을 알 수 있었다. Fig. 3의 표준 요오드의 양에 대한 분리피크의 흡수피크를 측정한 다음 시료의 상대적 분리크기를 측정하여 회수율을 측정하였으며 그 결과 모직물의 경우 74.3(RSD, 2.2%), 수지의 경우 (RSD %)의 회수율을 각각 나타내었다.

3.3. 혼합산 분해법과 알칼리 용융법에 의한 요오드 회수율 비교

가용성시료의 경우 산 처리에 의해 쉽게 분해가 되므로써 시료 중에 포함되어 있는 요오드의 추적 및 분리가 알칼리 용융에 의한 요오드의 분리 보다 용이하다. 특히 ¹³¹I추적자를 사용함으로써 단계별 요오드 회수율에 대한 보정이 가능하다. 그러나 알칼리 용융법의 경우 방사성 동위원소의 휘발로 인한 오염의 확산뿐만 아니라 작업자의 안전을 위한 차폐시설이 요구 되는 등 제한적 요건이 따르게 된다. Table 5는 요오드의 분리 및 회수과정에서 시료의 전처리 방법에 따라 회수된 결과이다. 혼합산분해의 경우 용해단계 및 추출단계, 그리고 역추출단계의 회수율을 고려한

전체공정의 회수율은 76.7(RSD 1.7%)의 회수율을 나타내었다. 알칼리 용융법에 의한 시료의 전 처리의 경우 시료의 형태에 따라 회수율에 많은 차이를 나타내었다. 모직물의 경우 전체공정을 통하여 얻어진 요오드의 회수율은 74.3(RSD 2.2%)의 회수율로써 혼합산 분해법에 의한 요오드의 보정 회수율과 비슷하였다. 수지의 경우에는 56.5(RSD 5.6%)의 매우 양상이 다른 결과를 나타내었다.

4. 결 론

혼합산분해에 가용성 시료의 경우 용해전 후의 ^{131}I 의 손실율을 측정된 결과 용해단계에서 8.6%의 손실율을 나타내었고 용해 후 추출단계에서의 회수율은 74.7(RSD 2.4%)이고 역추출 단계를 거친 다음 요오드 회수율은 91.3(RSD 0.9%)로서 전체공정에 대한 최종 회수율은 67.9(RSD 1.6%)이었다. 알칼리용융방법에 의한 난용성시료의 용해전 후 요오드의 회수율은 모직물의 경우 74.32%(RSD 2.2%)의 회수율을 나타내었으나 Resin의 경우 56.5(RSD 5.6%)의 회수율을 나타내었다.

참 고 문 헌

- 1 N. Boukis and E. Henrich, *Radio Chimica Acta*, **55**, 37-42 (1991).
2. D. Geithoff and V. Schneider, "Prevention of the Volatilization of fission Iodine in the dissolution of UO_2 samples" NUCLEAR RESEARCH CENTER, KARLSRUHE, KFK-258,(1964).
3. N. Lavi, *Journal of Radioanalytical Chemistry*, **20**, 41-49 (1974).
4. D. M. Ivak, LA. Waldman, "Iodine and Cesium in oxide fuel pellets and Zircaloy-4 cladding of irradiated fuel rods", (LWBR Development Program) WAPD-TM-1394, (1979).
5. L. C. Bate and J. R. Stokely, " Determination of ^{129}I in mixed fission products by neutron activation analysis", ORNL/TM-7449, (1980).
6. Hiroshi Kamioki and Kiyoshi Hoizumi, "Determination of radioactive iodine isotopes in the ^{99}Mo produce by distillation", JAERI-M 8070, (1979).
7. H.Katagiri, O.Narita, A.Yamato, M.Kinoshita, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles*, **138**,187-192(1990).
8. Xiaolin, H. Dahlgaard, B. Rietz, U. Jacobasen, S. P. Nielsen and A. Aarkrog, *Anal.Chem.*, **71**, 2745-2750 (1999).
9. F.Verrezen and C.Hurtgen, *Appl.Radiat.Isot.*, **43.1/2** pp.61-68.(1992)

고준위폐기물 처분 원가대상 분석

Analysis for the High-Level Waste Disposal Cost Object

김성기, 이종열, 최종원, 한필수
한국원자력연구소

요 약

본 연구에서는 처분원가산정과 관련한 원가대상의 비율을 분석하였다. 분석결과에 따르면, 총원가에서 운영비의 비율이 가장 높은 것으로 나타났다. 처분원가는 원가구성 측면에서 일반적인 제품원가 구조와는 많은 차이가 있다. 제품원가는 직접재료비, 직접노무비, 제조간접비로 구분되는 반면에 처분원가인자는 크게 기술적 인자와 비기술적 인자로 구성된다.

Abstract

The purpose of this study is to analyse the ratio of cost object in terms of the disposal cost estimation. According to the results, the ratio of operating cost is the most significant object in total cost. There are a lot of differences between the disposal costs and product costs in view of their constituents. While the product costs may be classified by the direct materials cost, direct manufacturing labor cost, and factory overhead, the disposal cost factors should be constituted by the technical factors and the non-technical factors.

1. 서 론

사용후핵연료의 처분원가를 산정하기 위해서 원가의 기본개념을 정의하면, 원가란 특정한 목적을 달성하기 위해서 자원획득을 할 때, 반대급부로 지불되는 재화나 용역의 희생액을 화폐액으로 나타낸 것이다[1]. 따라서 처분원가를 계산하기 위해서는 먼저 원가대상을 분석하고, 원가동인을 파악하여 원가대상에 대한 소요비용을 계산해야 한다. 또한 원가대상에 소요되는 총원가 중 간접원가를 배분해야 한다. 원가배분이란 원가대상에 집계한 원가를 할당시키거나 추적하는 것을 말한다. 직접원가는 원가대상으로 직접추적이 가능한 것이며, 간접원가는 원가대상으로 추적이 불가능하며, 어떤 인위적 기준에 의해 배분된다. 처분원가는 크게 처분장의 지상시설과 지하시설 비용으로 구분되며, 지하시설비용은 발전소로부터 발생하는 사용후핵연료를 인간생태계로부터 장기간 동안 안전하게 격리하기 위하여 지하 심부에 처분하는데 소요되는 비용을 의미한다. 지하 처분장에 소요되는 비용은 크게 건설비, 운영비, 그리고 폐쇄비로 나누어지며, 이러한 비용은 기술적 인자와 비기술적 인자로 세분할 수 있다. 기술적인자는 건설 및 운영시 필요한 기술과 관련된 인자이며, 비기술적인자는 인문·사회적 비용을 포함한 기술적 인자를 제외한 인자를 의미한다.

2. 원가대상

일반적으로 제품원가의 총원가는 직접재료비, 직접노무비, 제조간접비로 구성되나, 처분원가는 크게 건설비, 운영비 그리고 폐쇄비로 구분할 수 있다. 건설비는 처분장을 시공하여 상업운전을 하는 시점까지 소요되는 모든 자본적 지출을 의미한다[2].

처분원가의 특성을 이해하기 위해, 제품원가 및 발전원가의 구성요소를 변동비와 고정비의 측면에서 비교하면 표 1과 같다.

Table 1. Cost object of the product, generation and disposal cost

	제품원가	발전원가	처분원가(지하시설)		
			건설비(투자비)	운영비	폐쇄비
변동비	직접재료비	연료비	굴착비, 장비비, 처분용기의 수송비용 등	벤토나이트, 뒷채움재 비용 등	구조물해체, 갯둑채움재, 갯진입구 콘크리트 플러그 비용 등
고정비	직접노무비 제조간접비	자본회수비 운전유지비 법인세 제세/보험료	인건비 장비유지비 사고보험료 등		

처분장의 건설 및 운영기간에 모든 원가대상에 투입되는 현금흐름은 지하시험시설과 진입터널의 건설로 인하여 초기에 점진적으로 비용이 증가하여 건설 전반에 많은 비용이 발생하고 중반에는 처분터널과 처분공의 굴착과 환기비용 발생으로 비교적 많은 자본적 지출이 발생한다. 그러나 건설기간의 장기화로 인하여 현실적인 현금흐름과 추정된 현금흐름 사이에 차이가 있을 수 있다. 처분장 건설 및 운영유지비의 계산은 필요한 각 비용항목의 원가에 대하여, 비중이 높은 원가대상부터 세분하여 계산한다.

3. 원가대상의 기술적·비기술적 인자

3.1 기술적 인자

기술적 인자는 원가산정의 결과에 영향을 미친다. 따라서 인자의 중요성을 이해하고 인자의 변경이 어떻게 원가산정의 결과에 영향을 줄 수 있는 가를 이해하는 것은 중요하다.

원가산정에서 기술적 인자는 모든 프로젝트에서 가장 중요한 주요인자, 어떤 프로젝트에 한해서 중요한 인자, 상대적으로 원가에 대하여 낮은 영향을 미치는 기타 인자로 구분할 수 있다. 표 2는 기술적 인자를 6개의 카테고리로 그룹화 시킨 것이다[3]. 처분장의 원가에 영향을 미치는 주요 기술적 요인은 총 원자력의 전력생산량과 같은 원자력프로그램, 처분장의 규모, 사용후핵연료 관리체제, 발생된 폐기물의 형태, 원가산정범위, 처분장에서 방벽시스템, 그리고 모암의 지질학적 특성 등이 있다. 그리고 처분전의 고준위폐기물의 냉각기간, 처분장의 운영기간, 감시와 회수를 위

한 요구사항, 필요한 경제기반, 처분용기 형태와 포장방법, 접수장의 설계, 처분장에서 온도 제한과 실링시스템의 설계 등이 총원가를 변경시킬 수 있는 유의한 인자이다.

Table 2. Technical factors

	모든 프로젝트에 중요한 주요인자	제한된 프로젝트에 중요한 인자	기타 인자
프로젝트 정의	- 원자력 프로그램 - 핵연료 관리전략 및 폐기물 - 비용추정 범위		
처분전략	- 방벽 시스템	- 냉각기간 - 운영기간 - Retrievability 및 감시	- Conditioning 시간
부지 서비스		- 경제기반	- 지상시설
포장시설		- 포장방법 - 용기형태 및 재료	- 시설설계 - 기술현황
접수시설		- 시설설계	
처분장	- 지질 - 처분장 규모	- 온도제한 - 실링 시스템	- 처분장 심도 - 처분장 설계 - 건설 및 운영 전략 - 기술현황 등

3.2 비기술적 인자

모든 국가에서 사용후핵연료 관리는 관리정책, 규제체제, 홍보와 관련된 많은 사회적 정치적인 인자에 의해 영향을 받는다. 많은 국가에서 처분장 인식에 관한 문제는 있으며 아직도 사용후핵연료 처분과 폐기물 재처리의 과정에 영향을 미치는 중요한 단일 인자임이 분명하다. 또한 사용후핵연료 관리는 모든 국가에서 기술적·경제적 문제 뿐만아니라 중요한 정치적 문제로 간주되어 정부와 다른 정치적 조직에 의해 취해지는 정책결정에 달려 있다. 이러한 의사결정은 홍보 및 다른 사회적 인자와 긴밀하게 관련되어 있다.

폐기물관리시스템에 영향을 미치는 많은 비기술적 인자는 원자력 폐기물 관리 정책, 일정(time schedule), 부지 선정 과정, 인허가 과정, 규제 요구사항, 안전보장조치(safeguards regime), 부지가격과 배상, 세금, 정치적 결정, 위험인자 등이 있다.

비기술적 인자의 많은 것들은 예측할 수 없으며 정상비용 산정에 적용하기가 어렵다. 그러므로 그러한 인자의 영향은 적절한 위험요인으로 조사되어 비용평가에 반영해야 한다.

4. 원가대상 비율분석

핀란드의 POSIVA는 원자력연구소와 공동연구하여 원자력연구소가 사례로 제시한 36,000톤의

사용후핵연료를 처분하는데 필요한 처분장 건설비를 계산하였다. 처분장의 총건설량은 3.3 백만 m³와 처분터널 길이는 105 Km로 계산되었다. 처분터널 건설기간 중에도 처분용기가 처분장내로 유입되어 처분이 진행되므로 방사선적 안전을 위하여 처분터널은 통제구역과 비통제구역으로 나누었다. 통제구역과 비통제구역의 마지막 건설단계에서 굴착량은 731,000 m³와 799,000 m³로 거의 같아지며, 총량은 1.53 백만 m³로 산정되었다[4].

총 처분원가는 투자비, 운영비, 폐쇄비로 산정하였으며, 투자비(Investment costs)는 건설비와 기계설비비(Equipment and system costs)를 포함하는 비용이다. 일반적인 처분원가의 산정절차를 도시하면 그림 1과 같다. 처분원가는 건설기간 및 운영기간이 다른 시설에 비해 비교적 장기간 지속되므로 화폐의 시간적 가치를 고려하여 적절한 할인율을 반영하는 것이 바람직하다.

처분장 지하시설의 건설비에서 가장 많은 비중을 차지하는 원가대상은 터널굴착과 처분공의 건설비로 나타났으며 기계설비 및 시스템비용에서 환기 및 난방시스템의 비용이 가장 많이 소요되고 차량에 투입되는 비용과 전력에 소요되는 비용이 다음으로 높은 비율을 차지하는 것으로 계산되었다. 그리고 처분장에 소요되는 많은 기계장비로 인하여 기타 장비에 의한 비용이 31%를 차지하였으며, 총원가와 투자비에 대한 원가대상 비율을 그래프로 나타내면 그림 2, 3, 4와 같다.

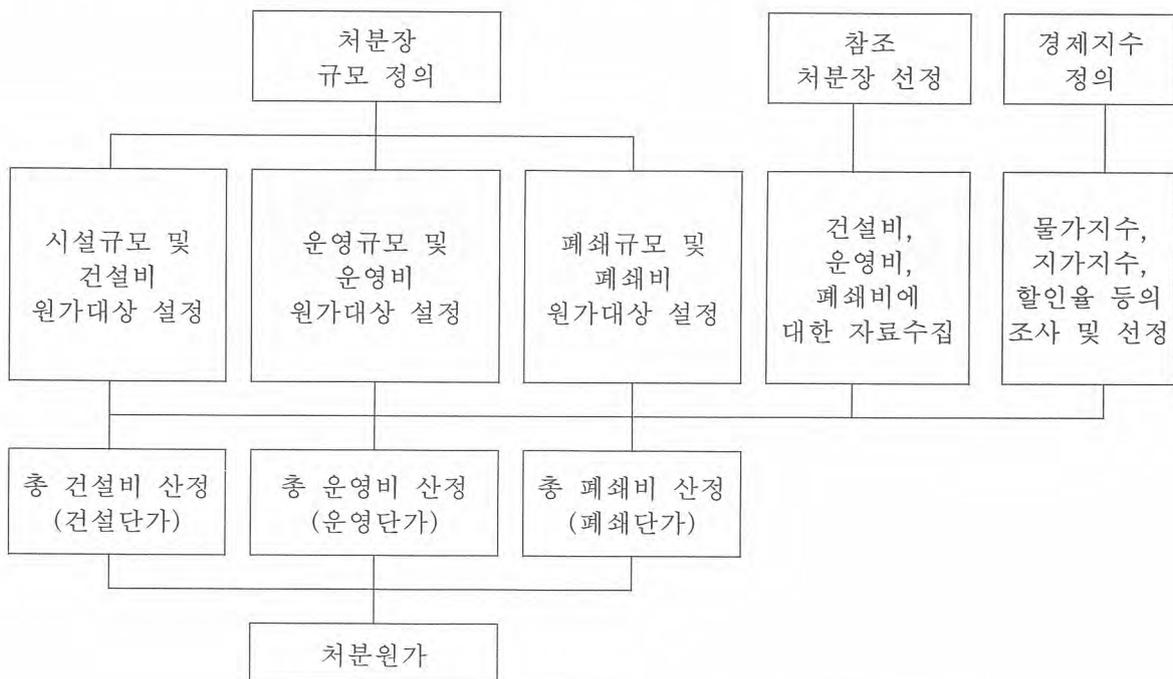


Fig. 1. Overview of the disposal cost estimation

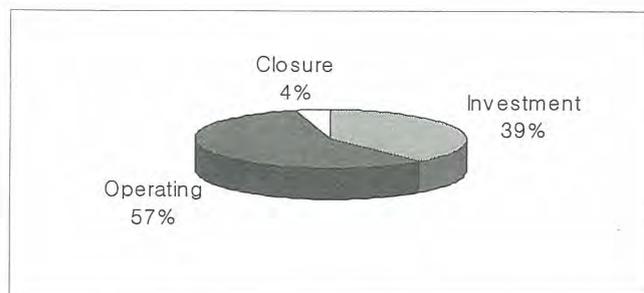


Fig. 2. Total cost object

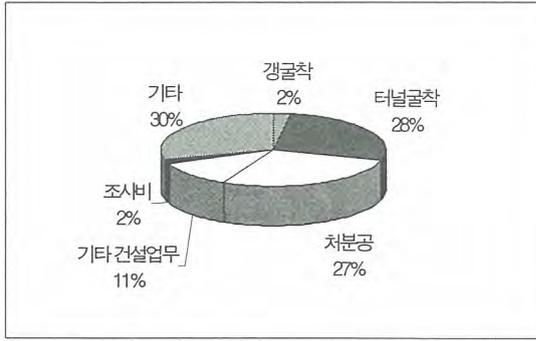


Fig. 3. Construction cost object

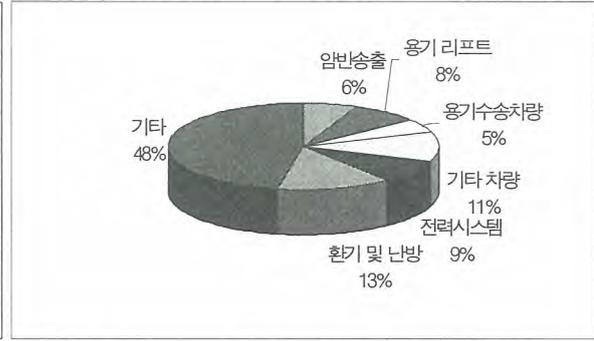


Fig. 4. Equipment cost object

운영비의 원가대상은 운영중에 발생하는 터널 뒷채움과 인건비로 발생하는 비용이 가장 많이 나타났으며 보험료는 5%로 산정되었다. 폐쇄비는 터널뒷채움 비용이 월등하게 높은 비중을 차지하였다. 또한 구조물해체비용이 비교적 많이 발생하였으며, 운영비와 폐쇄비에 대한 원가대상 비율을 그래프로 나타내면 그림 5, 6과 같다.

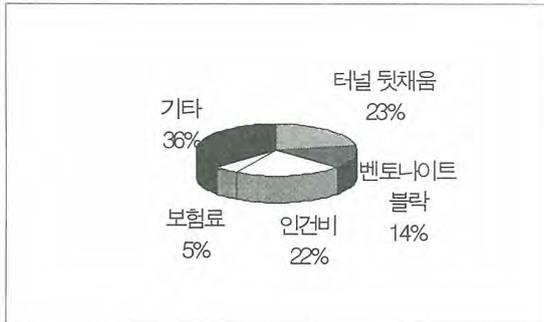


Fig. 5. Operating cost object

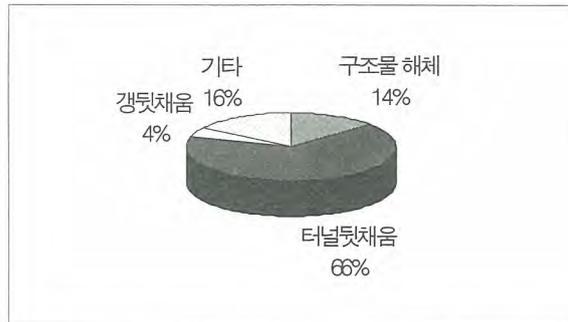


Fig. 6. Closure cost object

5. 결 론

일반적인 제품 원가대상은 직접재료비, 직접노무비, 그리고 제조간접비로 구성되는 반면에 처분 원가는 크게 건설비를 포함한 투자비, 운영비, 그리고 폐쇄비로 구성된다. 그리고 투자비는 건설비와 기계설비비가 세분되며, 운영비는 고정 운영비와 변동 운영비로 구분할 수 있다. 원가대상의 비율분석에 따르면, 총원가대상에서 운영비가 비중이 가장 높은 것으로 나타났으며, 운영비 원가대상에서는 터널 뒷채움과 인건비의 비율이 높은 것으로 계산되었다. 그리고 건설비의 원가대상에서는 터널굴착과 처분공의 원가비율이 유사한 것으로 나타났으며, 폐쇄비에서는 터널 뒷채움의 원가비율이 가장 높은 것으로 분석되었다.

사 사

본 연구는 원자력연구개발 중장기과제인 처분시스템개발의 지원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. Charles T. Horngren, George Foster, Srikant M. Datar, "Cost Accounting", 1994.
2. SKB, "Costs for management of the radioactive waste from nuclear power production", 1993.
3. NEA, "The cost of high-level waste disposal in geological repositories", 1993.
4. Tapani Kukkola, Timo Saanio, Jongwon Choi, Chul-Hyung Kang, "KAERI's spent fuel repository design evaluation and cost estimation", 2003.

빈 면

제4분과(E)

방사성폐기물 정책 및 시설해체

빈 면

KRR 1&2 제염·해체에서 방사성 금속 고체폐기물의 관리

Management of Metallic Radioactive Waste from Decontamination and Decommissioning of KRR 1&2

정기정, 이동규, 정경환, 이근우, 박진호
한국원자력연구소

요 약

제염·해체 설계단계에서 예견하였던 것과는 다르게 실제 제염·해체 과정에서는 다양한 조건과 상황이 야기됨으로써, 실제 폐기물의 특성과 양이 당초 예상과는 다른 금속성 폐기물도 발생하게 된다. 이러한 금속성 폐기물을 관리하기 위한 관리시스템을 분석하고, 이에 대한 최적 처리방법 및 공정을 선정할 수 있는 단위기술을 고찰하였다. 또한 원자력시설 제염·해체 동안 예견되는 상황에서 사용할 수 있는 적절한 기술과 공정관리시스템도 도출하였다.

Abstract

The variety conditions and working situations during decontamination and decommissioning practice may cause the production of metallic wastes, which can differ in character or in quantity from the waste anticipated during D&D planning. The management of such kind of wastes involves the need to evaluate existing waste management system in order to determine how metallic wastes should be well handled and treated. In this study, the investigation of existing management practices which can be also applied to the metallic waste management, was carried. Simultaneously, assistance in selection of appropriate technologies and processes is investigated which can be used when anticipated situations occur during decontamination and decommissioning practice.

1. 서 론

서울의 구 한국원자력연구소 연구용 원자로 1, 2호기(TRIGA Mark-II&III)는 원자력 과학기술 발전뿐만 아니라 원자력산업 기술발전에 크게 기여한 바 있다. 그러나 1995년 30MW급 다목적 연구로인 하나로가 대전에서 준공·가동함으로써, 지난 30여 년간의 운영으로 수명을 다하게 된 연구용 원자로 1, 2호기는 폐로의 길을 걷게 되었다. 이에 따라 1997년부터 연구로와 관련 부대시설 및 부지 등에 대한 특성을 파악하고 제염·해체 설계를 하였다.

연구용 원자로의 운영과 동위원소 생산, 그리고 연구로를 이용한 응용연구, 이와 관련한 각종 실험실 내에서의 실험활동 등으로 인하여, 물리·화학적으로 서로 다른 특성의 제염·해체 대상

물에 의한 방사성 폐기물이 발생하게 된다.

고체폐기물을 나타내는 기준으로는 폐기물의 화학적 특성, 물리적 특성, 그리고 방사능적 특성 등이 있다. 그리고 이러한 고체폐기물의 다양한 특성은 처리공정의 선정에 중요한 결정인자가 된다.

화학적 특성으로는 일반적으로 폐기물 자체특성 즉 가연성, 비가연성 그리고 금속성 여부 등의 분류기준이 적용되며, 오염특성으로는 표면오염도, 부식층의 존재여부 그리고 방사화 여부 등이 대표적인 특성으로 나타난다. 한편 물리적 특성에는 밀도, 물리적 형태 및 크기 등이 고려되는데, 이러한 제반특성들이 고체폐기물의 처리시스템 선정에 매우 중요한 인자가 된다. 그리고 방사능적 특성에는 방사능 준위에 따른 분류로 처리와 취급에 기준이 되고 있다.

이에 따라 일반적으로 고려될 수 있는 방사성폐기물에 대한 관리시스템은 제염·해체 설계 단계에서 이미 구축된 바 있으며, 2001년 6월부터 동위원소 생산을 위한 실험실을 비롯하여 납 핫셀의 해체를 완료하였고, 현재 연구로 2호기(KRR-2)의 로심과 부대시설 그리고 동위원소 생산용 조사 파이프를 해체하였다. 지금까지 발생되고 있는 폐기물은 앞에 서술된바와 같이 물리화학적 특성이 다양하다. 이중 특별히 제염 처리가 요구되는 폐기물은 금속성 폐기물이다.

본 연구에서는 현재 구축된 관리시스템에서 제염·해체시 발생하는 금속성 방사성 폐기물의 화학제염, 초음파 제염 등의 제염처리를 중심으로 작업조건을 구하고, 기타 폐기물의 관리 실적을 토대로 안전하게 관리할 수 있는 기술적 관리방법을 논하고자 한다.

2. 수분이 함유하지 않은 고체폐기물의 처리기술 선정

고체폐기물 처리기술 선정에 영향을 주는 인자는 금속함유 여부, 개체 크기, 가연성 여부 그리고 방사능 준위 등이다. 만일 표면만 오염된 금속 고체폐기물이라면 적절히 제염하여 재사용하거나 규제해제 폐기물화 한다. 이러한 처리방법 선정에는 경제성 분석이 필요하다. 또한 폐기물을 세단하거나 압축함으로써 부피를 감소시킬 수 있다. 폐기물의 화학적 특성은 연소공정 적용에 결정적 요인이 된다.

기술의 선정 지점에서의 판단기준은 제염의 경제성, 재사용이나 규제해제 폐기물로의 전환에 따른 규정에 적합한가, 감용효과에 따른 경제성, 농축기술과 변환기술의 경제성, 그리고 고정화 여부 등이다.

제염의 경제성 판단은 오염된 폐기물을 제염하여 재사용할 수 있게 하거나 규제해제 폐기물화 할 수가 있다. 그러나 제염에 따른 비용이 크거나 2차폐기물의 발생량이 과다하면 효과적이지 못하다. 표면이 오염된 금속성 폐기물에 대하여 제염이 실용적이고 경제적인 것으로 판단될 경우 또는 처분대상 폐기물이 운송에 적합할 경우 적절한 제염을 하는 것은 매우 효과적이다. 이때 제염 용액은 액체폐기물로서 처리된다.

재사용이나 규제해제 폐기물로의 전환에 따른 규정에 적합한가의 판단은 제염 이후에 폐기물의 오염도를 검사하여 법적 기준값과 비교하여 재사용 여부 및 규제해제 폐기물화 할 것인가를 결정한다. 이 기준값을 초과하는 폐기물은 부가적인 제염여부나 처분 여부를 판단할 수 있는 평가를 하여 결정한다.

감용효과에 따른 경제성은 폐기물의 발생량과 폐기물의 특성에 따라 감용 여부를 결정한다. 비교적 높은 빈 공간이 있는 가연성폐기물과 압축성 폐기물은 부피감용을 한다. 만약 감용 대상 폐기물이 소량 발생되면 장치개발 등의 고비용으로 인하여 감용기술의 적용이 경제적이지 못하다.

농축기술과 변환기술의 경제성은 발생된 폐기물을 대상으로 농축과 변환기술들에 대한 감용효

과와 경제성을 분석하여 적합한 처리기술을 선정한다. 가연성 폐기물이라 하여도 배기가스의 성분
에 따라 배기체 처리시스템의 추가 여부 등이 경제성에 큰 영향을 미치기 때문에 사전 분석연구
가 필연적이다.

그리고 고정화 여부는 변환기술의 적용 후에 나오는 소각재 등은 처분을 위해 고정화 하여야
하나, 용융에 의한 용융염은 바로 처분이 가능하다.

3. 가연성 고체폐기물의 관리

가연성 고체폐기물은 현장제염이나 통로 제염에서 발생하는 제염휴지, 작업자가 착용하는 작업
복, 장갑 그리고 마스크 등이다. 발생하는 폐기물의 방사능 농도는 최대 Cs-137 748Bq/g으로 측
정되었고, 추후 소각처리를 위하여 200 L 드럼에 압축 저장하고 있다. 압축성 폐기물의 압축을 위
하여 최대압력은 15톤의 압축기를 설치하여 처리하고 있다.

4. 비가연성 고체폐기물의 관리

비가연성 고체폐기물은 방사화 폐기물과 비방사화 폐기물로 그리고 금속성 폐기물과 비금속성
폐기물로 구분하여 처리하고 있다. 방사화 폐기물은 준위와 재질별로 포장용기에 포장하고 비방사
화 폐기물은 제염 여부를 결정하여 제염 처리하고 있다.

4-1 비금속성 폐기물

비금속성 폐기물은 주로 콘크리트 폐기물이 차지하는 데 제거된 콘크리트 블록의 표면이
Co-60이나 Cs-137로 약 10^{-2} Bq/g 정도 오염되어 발생되고 있다. 오염된 콘크리트 블록은 Peening
Preparation Tools로 1 - 3 mm 표면제염으로 오염부위를 제거할 수 있었다.

4-2 금속성 폐기물

발생되는 금속성 폐기물의 재질은 주철을 포함한 철재, SUS, 그리고 알루미늄 등이다. 원자
로 내에서 사용되었던 일부 금속류는 방사화 되어 있고, 기타 주변 시설에서 사용되었던 금속성
폐기물은 제염대상 폐기물로 분류된다.

4-2-1. 제염대상 폐기물

제염대상 폐기물의 발생은 실험실 및 동위원소 생산용 준비실에 설비되어 있던 흡-후드, 각종
실험 장비, 동위원소 생산용 납함셀에 설비되었던 장치와 보조기구, 원자로 내외에 설비된 각종
보조기구 및 실험장비, 그리고 배기시스템의 덕트와 폐수 수송(저장) 시스템의 싱크와 각종 파이
프 등이다.

금속성 폐기물의 제염을 위하여 화학제염, 초음파 제염, 그리고 스팀 jet 장치등을 설치하여 대
상물의 재질과 오염상태에 따른 제염제와 작업조건을 구하여 운영하고 있다.

알루미늄과 탄소강의 방사성 폐기물을 제염하기 위하여 옥살산을 이용한 화학제염과 초음파
제염실험을 수행하였다. 부식 산화물의 용해에 효과적인 것으로 알려진 옥살산의 화학 침수 실험
결과 알루미늄은 5%의 농도에서 80℃에서 1시간 화학제염 후 4분간 초음파를 쏘여 ND 값, 즉 규
제치 이하의 폐기물 수준으로 처리할 수 있었다. 표면 부식이 심한 탄소강은 제염전 1060 cpm인
것이, 5%의 옥살산으로 80℃에서 1시간 화학제염 후 4분간 초음파를 쏘여 408 cpm을 얻었다. 탄
소강의 경우 화학 제염후 초음파 시간을 4분 이상으로 하면 408 cpm보다 낮은 방사능준위를 얻

을 수 있을 것으로 판단된다.

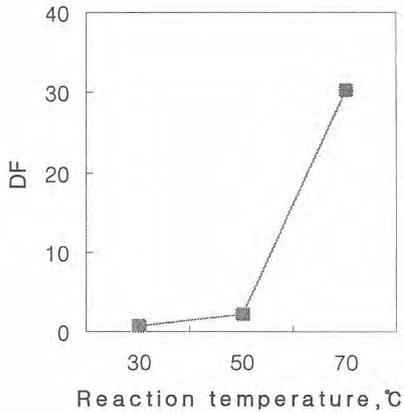


Fig.2 Decontamination effect on reaction temperature at Al

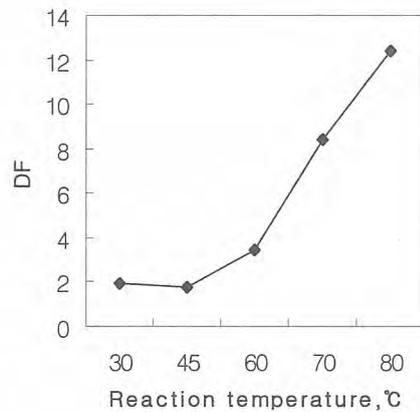


Fig.3 Decontamination effect on reaction temperature at CS

주철 배관 내부의 scale에 함유된 방사성물질을 제염하기 위하여 산이나 알칼리에 쉽게 용해되지 않는 scale을 인산으로 처리하여 FePO_4 로 변화시킨 후, 이를 염산으로 처리하여 용해시켰다. 1단계 처리공정인 인산피막 형성 과정에서 H_3PO_4 의 적정 농도는 30~40%로 제염 후 방사성 핵종인 Co^{-60} 의 농도는 0.03Bq/g이며, 제염계수는 41~60으로 제염효과를 나타내었다. 2단계 처리공정인 인산피막을 HCl에 용해시키는 방법으로 HCl의 적정농도는 7~10%이며, 제염 후 방사성 핵종인 Co^{-60} 의 농도는 0.03Bq/g이며, 제염계수는 41~48을 보였다. HCl의 농도가 10%이상에서는 제염효과가 떨어지므로, 진한염산 사용 시 제염이 잘 안되는 것으로 나타내었다.

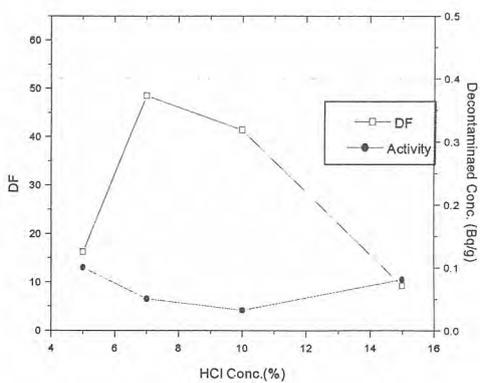


Fig.4. DF coefficient and decontaminated Co^{-60} concentration against HCl concentration.

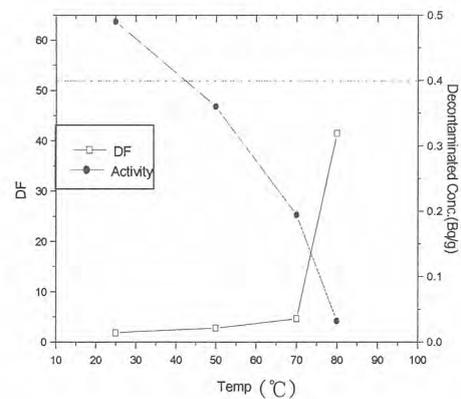


Fig. 5. DF coefficient and decontaminated Co^{-60} concentration against temperature.

4-2-2. 방사화 폐기물

원자로 core와 회전시료 조사대 그리고 동위원소 생산용 조사 파이프와 기타 보조 장비를 이루고 있는 금속성 폐기물이 방사화 되어 발생하고 있다. 재질은 대부분이 알루미늄이고 일부 SUS가 방사되고 있으며, 방사능은 수백 mSv/h까지 측정되고 있다.

발생된 방사화 폐기물은 방사능 준위가 1~50 mSv/h에 해당하는 폐기물은 직경 0.95m x 높이 0.6m 용기에 넣어 RSR 운반 캐스크에 저장하고, 50 mSv/h 이상의 폐기물은 직경 33 cm x 높이 85 cm 용기에 넣어 핵연료 운반 캐스크에 저장 한다.

5. 결 론

비정상 방사성폐기물 처리기술 선정에 영향을 주는 중요 인자중 하나는 폐기물의 물리적 형태이다. 본 연구에서는 액체, 합수 고체, 그리고 건조 고체 등의 3가지 물리적 형태로 방사성 폐기물을 분류하고, 각각의 폐기물에 대해 처리시스템을 확립하였다. 비정상 폐기물의 특성분석 및 적절한 분류는 폐기물 처리기술 선정에 매우 중요한 인자이다. 이러한 평가는 원자력시설 제염·해체 과정에서 비정상 방사성폐기물이 발생하였을 때, 이의 처리기술 선정 및 관리에 커다란 도움을 줄 것이다.

후 기

본 연구는 한국원자력연구소 기관고유사업의 일환으로 수행한 것입니다.

참 고 문 헌

1. 정기정 외, "연구용 원자로 폐로사업", KAERI/RR-1993/99, 한국원자력연구소, 1999
2. 정기정 외, "연구로 1호기 및 2호기 해체계획서 - 수정·보완", KAERI/TR-1654/2000, 한국원자력연구소, 2000
3. 정기정 외, "연구용 원자로 폐로사업", KAERI/RR-2099/2000, 한국원자력연구소, 2000
4. International Atomic Energy Agency, "Treatment of Low- and Intermediate-Level Radioactive Waste Concentrates", Tech. Rep. Series No. 82 (1982)
5. International Atomic Energy Agency, "Management of Radioactive Waste from Nuclear Power Plants", Safety Series No. 69 (1985)
6. International Atomic Energy Agency, "Treatment of Low- and Intermediate-Level Radioactive Waste Concentrates", Tech. Rep. Series No. 236 (1984)
7. International Atomic Energy Agency, "Treatment of Low- and Intermediate-Level Radioactive Waste Concentrates", Tech. Rep. Series No. 223 (1983)
8. International Atomic Energy Agency, "Management of Abnormal Radioactive Wastes at Nuclear Power Plants", Tech. Rep. Series No. 307 (1989)

액체 및 초임계 이산화탄소를 이용한 제염법

Decontaminatin Techniques using Liquid/Supercritical CO₂

박광현, 김홍두, 김학원, 고문성, 윤청현
경희대학교 청정제염연구실

요 약

원자력분야에서 방사성폐기물 처리 및 처분은 해결해야할 중요한 문제가 된다. 보다 청정한 방법을 사용한 제염법이 요구되고 있다. 이산화탄소를 이용한 제염법은 두가지로 나뉘는데 - 킬레이트제를 이용한 방법과 에멀전을 이용한 방법이다. 킬레이트제 방법은 시너지효과를 낼 수 있는 방안이 중요하다. 마이크로 에멀전을 사용한 방법은 에멀전 코어속에 산을 넣어 금속표면이나 토양에서 오염물질을 직접 꺼내는 방법이다. 표면제거율을 QCM을 사용하여 측정하였다. 에멀전을 만드는데 사용된 계면활성제의 회수 방법에 대하여 아울러 논의하였다.

Abstract

A major problem of nuclear energy is the production of radioactive wastes. Needs for more environmentally favorable method to decontaminate radioactive contaminants make the use of liquid/supercritical CO₂ as a solvent medium. In removing radioactive metallic contaminants under CO₂ solvent, two methods - use of chelating ligands and that of water in CO₂ emulsion - are possible. In the chelating ligand method, a combination of ligands that can make synergistic effects seems important. We discuss about the properties of microemulsion formed by F-AOT and that by non-ionic surfactant. By adding acid in water core, decontamination of metallic parts, soils were possible. The rate of metal surface dissolution to the microemulsion solution was measured by QCM. The possibility of recovering the surfactants after use is also mentioned.

1. 서 론

원자력 발전에서 방사성폐기물의 발생은 피할 수 없지만[1], 폐기물의 분량을 줄이는 노력이 요구되고 있다. 현재 원자력 산업에서 발생하는 방사성 오염물질의 표면 제염 방법에선 제염에 사용하는 용매 자체가 방사능에 오염되어 또 다른 2차 방사성 오염물질을 다량 발생시킨다는 단점이 있다. 특히 화학제염방법은 방사성 오염물질 자체나 산화막, 침전물 등을 용해시키기 위해 제염용액에 기기들을 담가 놓거나 혹은 배관이나 부품의 내부표면에 화학용액을 순환시키는 방법을 사용하는데 이때 제염용액(주로 유기산)에 의해 제염 대상물의 부식이 발생하는 문제점이 발생한다. 따라서 용매를 재사용할 수 있고, 산을 거의 사용하지 않는 새로운 방법의 표면 제염법의 개

한 β -diketone 과 TBP를 같이 사용하면, 시너지효과를 얻을 수 있다. 본 연구에선 시너지효과에 관련된 실험을 수행하였다. 금속추출에 많이 사용되는 NaDDC와 cyanex-272의 시너지효과를 알아내기 위하여 추출실험을 수행하였다. 실험 결과는 그림-2에 나타나있다. 사용한 금속이온은 Cd, Co, Cu, Pb, Zn이고, 이 이온들을 filter paper에 건조시켜(spiked) 시편으로 사용하였다. 초임계 이산화탄소 (200기압 60°C, 1시간)에서 NaDDC만을 사용한 경우 그 추출률은 대략 30-70% 정도이고, cyanex-272의 경우 그 추출률은 더욱 떨어진다. 그러나, 이 두 리간드를 같이 사용하면, 거의 98%에 도달하는 추출률을 얻을 수 있다. 이는 NaDDC가 아민으로 분해되어, 아민이 염기로 작용하여 cyanex-272의 양성자(proton)를 제거시키기 때문으로 분석된다. 이를 확인하기 위해 diethylamine을 cyanex-272에 첨가하였다. diethylamine의 양이 적정량 이상이 되면, 그 추출률이 급격하게 증가되는 것을 확인할 수 있었다(그림-3).

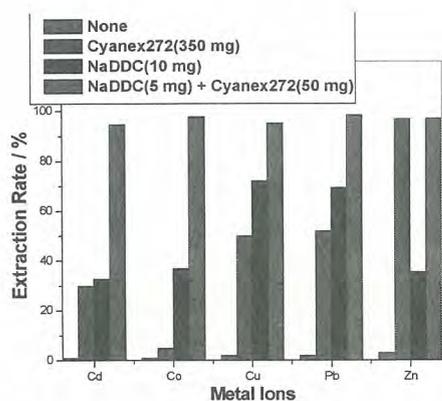


그림-2. NaDDC와 cyanex-272를 이용한 시너지효과 실험.

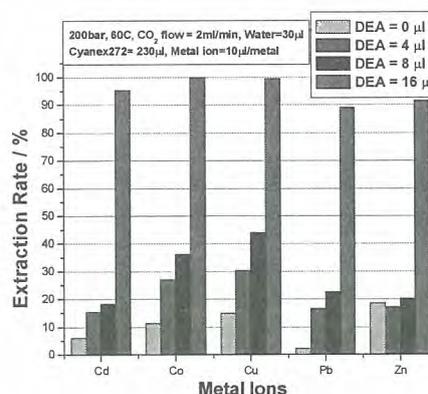


그림-3. ethylamine의 추출률 증대효과

이와같은 시너지효과를 이용하면, 추출률을 획기적으로 늘일 수 있어, 이에 관련된 연구가 더 필요할 것으로 보인다.

3. 마이크로 에멀전(microemulsion)을 이용한 실험.

계면활성제를 사용하면 이산화탄소 속에 물의 마이크로에멀전(크기는 100 nm이하)을 균일하게 만들 수 있다. 이산화탄소 속에 녹지않는 오염물을 마이크로에멀전 속의 용액에 녹일 수 있어, 극성 및 이온성 물질의 제염에 유용하게 사용할 수 있다. 그리고, 압력을 낮추면, 마이크로에멀전이 불안정하게되어 마크로에멀전(macroemulsion)으로 변화하여, 결국 물은 계면활성제를 떠나 석출되게 된다. 이 경우, 이산화탄소와 함께 계면활성제도 회수하여 재사용할 수 있어 청정한 제염법을 이루게 된다 (그림-4 참조). F-AOT (fluorinated aerosol-OT)를 합성하여, 그 제염효과를 알아보았다. F-AOT의 용해도는 매우 낮아, 초임계 이산화탄소에 계면활성제로 사용하는데 매우 적절하였으며, 마이크로에멀전도 잘 형성되었다. 물을 사용하는 대신에, 질산(1물농도와 3물농도)을 이산화탄소와 마이크로에멀전을 만들어, 표면 금속의 제염이 가능한지 알아보았다. 표면금속의 용해를 알아보기 위해 구리를 도금한 QCM을 시편으로 사용하였다. 그림-5에 실험결과를 나타내었다. 부피비로 0.17%의 1물질산을 함유한 마이크로에멀전에서 표면 구리가 용해되는 것을 관찰할 수 있

었다. 용해속도는 동일한 0.17%의 경우 3몰농도의 질산에서 더욱 증가하는 것으로 나타났다. 질산 몰농도가 높을수록, 표면의 반응속도가 높아지기 때문으로 보인다. 그러나, 동일한 농도(1몰농도)에서 질산의 부피함유량이 0.34%로 증가하여도 용해속도는 별로 증가하지 않는다. 이는 초임계 이산화탄소의 확산속도가 매우 빨라, 에멀전속의 마이셀(micelle)이 매우 활발하게 움직이므로, 그 양을 증가시켜도 큰 효과가 나타나지 않기 때문이다.

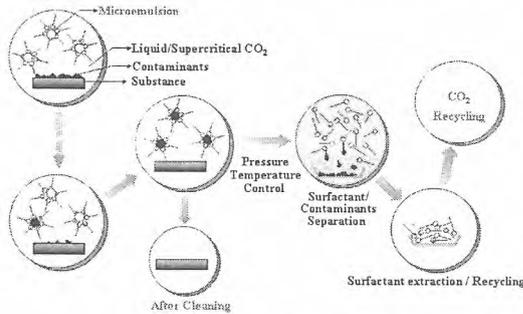


그림-4. 마이크로에멀전을 이용한 제염법, 이산화탄소와 계면활성제의 재사용이 가능.

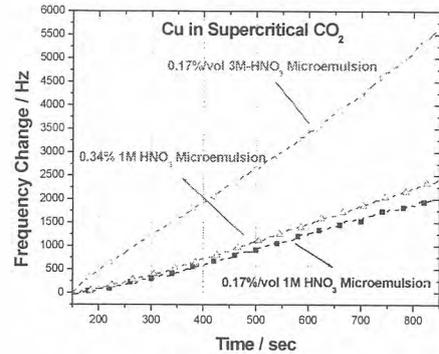


그림-5. 도금된 구리표면의 마이크로에멀전에 용해되는 QCM 측정 결과.

이를 이용하여 구리도금된 일반 시편의 표면을 제거하였다. 구리도금된 너트를 1시간동안 1몰 질산이 함유된 마이크로에멀전 (부피로 0.17%의 1몰 질산함유) 속에 둔 후에 꺼내었다. 표면의 구리가 완전히 제거된 것을 알 수 있다.

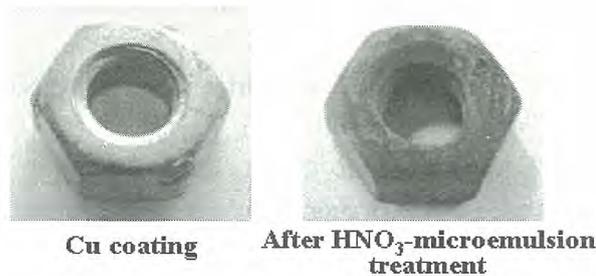


그림-6. 구리도금 시편의 모습과 질산함유 마이크로에멀전에서 표면이 완전히 제거된 모습.

4. 결 론.

오염된 금속이온, 산화물, 수산화물, 금속 등을 액체 및 초임계 이산화탄소로 제염시킬 수 있는 방법으로 킬레이트 리간드의 이용과 마이크로에멀전의 이용에 대하여 정리하였고, 각 방법을 적용한 실험을 수행하여 그 결과 및 분석을 나타내었다. 킬레이트 리간드의 경우, 시너지효과를 이용하면, 매우 효율적으로 금속이온의 추출이 가능하며, NaDDC와 Cyanex-272의 경우 아민의 염기 효과로 시너지효과가 있음을 밝혀내었다. 마이크로에멀전 이용 제염법은 이산화탄소와 계면활성제 모두 재사용이 가능한 방법으로, 그 응용성이 높은 방법이다. 질산과 이산화탄소의 마이크로에멀전을 만든 경우, 금속의 표면이 녹아 추출되는 것을 측정하였다. 마이크로에멀전 이용 제염법은

금속 부품, 공구의 제염과 오염토양의 제염에 유용하게 사용될 수 있을 것으로 기대된다.

5. 감사의 글

본 연구는 과기부의 국가지정연구실 사업에 의해 지원되었음을 알립니다.

6. 참고자료.

1. J.R.Lamash and A.J.Baratta, "Introduction to Nuclear Engineering", 3rd ed. Prentice Hall, 2001
2. M. A. McHugh and V. J. Krukonis, 'Supercritical Fluid Extraction', Principles and Practice", Butterworth-Heinemann, 1994
3. K.E.Laintz, C.M.Wai, C.R.Yonker, R.D.Smith, *Anal. Chem.* **1992**, 64, 2875
4. K.E.Laintz, C.M.Wai, C.R.Yonker, R.D.Smith, *J. Supercritical Fluid* **1991**, 4, 194
5. J.Wang, W.D.Marshall, *Anal. Chem.*, **1994**, 66, 1658
6. C.Erkey, *J. Supercritical Fluids*, **2000**, 17, 259
7. C.M.Wai, S.Wang, *J. Chromatography*, **1997**, 785, 369
8. C.L.Phelps, N.G.Smart, and C.M.Wai, *J. Chem. Education*, **1996**, 73, 1163
9. N.G.Smart, T.C.Carleson, T.Kast, A.Clifford, M.D.Burford, C.M.Wai, *Talanta*, **1997**, 44, 137
10. Mehdi Ashraf-Khorassani, Michael T. Combs, Larry T. Taylor, *J. Chromatography A*, **1997**, 774, 37
11. N.G. Smart, T.E.Carleson, S.Elshani, S.Wang, and C.M.Wai, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **1997**, 36, 1819
12. M.Z. Ozel, M.D. Burford, A.A.Clifford, K.D. Bartle, A.Shardin, N.G.Smart, N.D.Tinker, *Analytica Chimica Acta*, **1997**, 346, 73
13. S.Wang, S.Elshani, and C.M. Wai, *Anal. Chem.*, **1995**, 67, 919
14. Y.Lin, C.M.Wai, F.M.Jean, and R.D.Brauer, *Environ. Sci. Technol.*, **1994**, 28,1190
15. J.D.Glennon, S.Hutchinson, A.Walker, S.J. Harris, C.C. McSweeney, *J. Chromatography A*, **1997**, 770,85
16. K.G.Furton, L.Chen, R.Jaffe, *Analytica Chimica Acta*, **1995**, 304,203
17. K.E. Laintz and E. Tachikawa, *Anal. Chem.*, **1994**, 66,2190
18. J.A. Darr and M.Poliakoff, *Chem. Rev.*, **1999**, 99, 495
19. Y.Lin, N.G.Smart, C.M.Wai, *Trend in Anal. Chem.* , **1995**, 14, 123
20. Y.Liu, V.Lopez-Avila, M.Alcaraz, W.F.Beckert, E.M.Heithmar, *J. Chromatograph. Sci.*, **1993**, 31, 310
21. S.N.Jong, S.J.Yoon, S.Y.Kim, K.P.Yoo, *J. Supercritical Fluid*, **2000**, 18, 157
22. N.G.Smart, C.M.Wai, C.Phelps, *Chem. Eng. Data*,, **1999**, 44, 1034
23. Y.Enokida, ■Application of supercritical fluid extraction to nuclear fuel reprocessing in Japan", *Proc. SuperGreen 2002, Suwon, South Korea*,, **2002**

연구용 원자로 2호기의 로심 집합체 제염·해체 경험

Experience for The Decontamination & Decommissioning of The Core Assembly of KRR-2 Research Reactor

정경환, 정기정, 박진호
한국원자력연구소

요 약

1972년 TRIGA Mark - III(KRR-2) 연구용 원자로가 건설 운영되어 왔다. 대전 하나로의 가동으로 1999년 방사성 동위원소 생산을 중단한 후 모든 시설은 안전 저장 형태로 유지되어 왔으나, 해체 프로그램에 따라 2003년 로심 집합체를 제염·해체하게 되었다. 로심 집합체와 회전시료 조사대의 표면 방사능 선량은 300mSv/h - 700mSv/h으로 측정되었다. 이 보고서는 로심 집합체의 제염·해체, 방사선 안전관리, 그리고 폐기물 관리 등의 과정을 서술하였다.

Abstract

The research reactor (TRIGA Mark - III(KRR-2)) was constructed and had been operated in 1972. In 1999 the radioisotope process units had stopped its operation due to normal operation of HANARO. In 2003 the core assembly was decommissioned by D&D program. The contact exposure rate on the core assembly and the rotary specimen rack are from 300mSv/h to 700mSv/h. This report describes the decontamination procedures, the health physics programs, and the waste management.

1. 서 론

서울의 구 한국원자력연구소 연구용 원자로 1, 2호기(TRIGA Mark-II&III)는 원자력 과학기술 발전뿐만 아니라 원자력산업 기술발전에 크게 기여한 바 있다. 그러나 운전기간이 길어져 설비가 점점 노후화되고, 시설 주변지역이 인구 밀집지역으로 전환됨에 따라 폐로의 필요성이 점증되었다. 또한 1995년 30MW급 다목적 연구로인 하나로가 대전에서 준공·가동으로 그 효용성이 저감됨에 따라 1996년 해체가 결정되었고, 1997년부터 연구로와 관련 부대시설 및 부지 등에 대한 특성을 파악하고 제염·해체 설계를 하였다.

2001년 하반기부터 착수한 제염·해체 공사는 동위원소 생산을 위한 실험실을 비롯하여 납핫셀의 해체를 완료하였고, 콘크리트 핫셀의 제염을 완료하였다. 그리고 연구로 2호기(KRR-2)의 로심의 주변 시설물의 제염·해체를 완료하였고, 연구로 2호기 내의 동위원소 생산용 조사 파이프, 로

심 집합체 그리고 각종 부대시설을 해체하고 있다.

연구용 원자로에서 로심 집합체는 방사능 준위가 가장 높을 뿐만 아니라, 핵연료의 지지와 동위 원소 시편의 조사를 위하여 복잡한 구조로 설치되어 있다. 따라서 높은 방사능 준위를 갖고 있어 작업자의 피폭 저감을 위해 모든 작업을 수중에서 하였다. 수중공구로는 압축공기 추진형 소켓 렌치와 드라이버, 유압식 가위, 그리고 프라즈마 컷터 등이 사용되었다.

로심 집합체의 해체는 일차적으로 로심과 회전시료 조사대의 분리작업을 수행하였다. 분리된 회전시료 조사대는 Loading Tube 하단부와 Drive Assy. 하단부를 각각 절단 해체하였으며, 추후 회전시료 조사대의 해체를 위하여 연구로 1호기로 이송되었다. 로심은 로심지지 채널, Top & Bottom Grid Plat 등을 해체하고, 2개의 실린더형의 알루미늄 Shroud로 분리한 후 폐기물 저장을 위하여 세절하였다.

2. 시설 설명

로심 집합체(core assembly, Fig. 1)의 구성은 로심과 로심 내부에 상하부 격자 판(grid plates) 그리고 로심 외부에 회전시료 조사대가 설치되어 있다. 로심은 실린더형의 알루미늄 Shroud 2개가 나사못으로 일체형을 이루며 연결되어 있다. 또한 2개의 알루미늄 채널로 원자로 상부의 이동형 다리에 연결되어 있으며 원자로 바닥에서 94cm 떨어져 있다. 로심 내부에는 핵연료 봉, 중성자 소스, 제어 봉, Central Thimble 및 Fission Chamber 등을 장착하게 하기 위한 상부 및 하부 격자 판이 설치되어 있다.

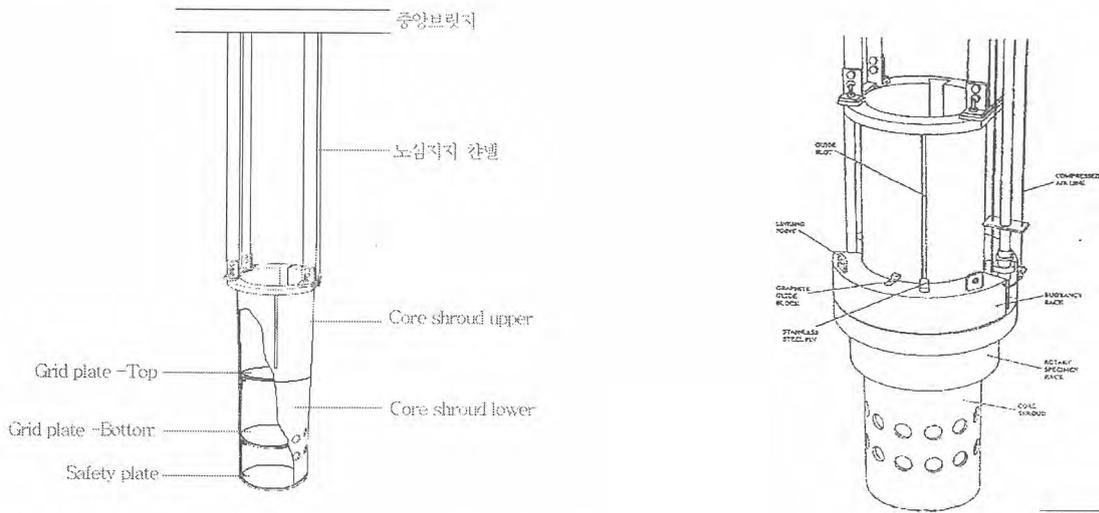


Fig. 1. Core Assembly

3. 시설의 내역 및 현재의 조건

연구로 2호기는 1972년부터 운전을 시작하여 방사성 동위원소 생산 및 방사화분석을 위한 시료 조사를 위하여 주로 사용되었다. 1995년 12월 운전 정지 시까지 총 운전시간은 55,226 시간이며, 총 출력량은 68,740MWh, 그리고 U-235 총 연소량은 3,555g 이다.

회전시료 조사대는 대부분 알루미늄으로 제작되어 있으나 스프로킷 및 체인 등 일부는 스테인레스 스틸로 제작되어 있고 원자로의 운전 중 노심 주위에 위치하고 있었으므로 상당히 방사화되어 있다. 회전시료 조사대의 스테인레스 스틸 체인 주위의 표면선량은 300 - 600 mSv/h로 측정되었고, 스테인레스 스틸 연결 막대(connection rod) 주위는 최대 1,000 mSv/h까지 측정되었다. 로심은 상단에 0.3 mSv/h에서 하단에 22 mSv/h까지 측정되었다.

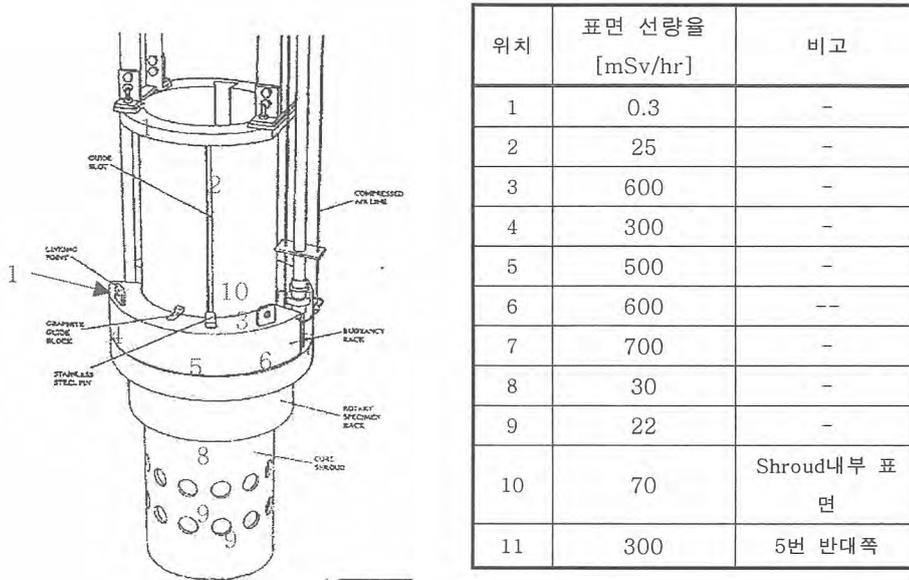


Fig. 2. Exposure Rate of Core Assembly

4. 안 전

모든 제염 & 해체 활동은 현지 작업 요원과 일반 대중을 안전하게 보호하도록 계획되고 수행된다. 여기에 고려된 사항은 방사능 안전, 산업 안전 그리고 현장보안등이다.

5. 계획과 관리

KRR-2의 제염·해체를 수행하기 위하여 계획단계에서 각종 작업지침과 절차서를 수립하였으며, 여기에 작업 수행에 따른 필요사항들이 서류화되었다.

로심 집합체의 제염·해체 작업은 현장사무소장이 관리한다. 현장사무소장은 일일 작업과 단계별 작업을 총괄하며 진행 여부 등 작업 관리를 조정하며 업무를 수행한다.

- ※ 모든 작업자를 위한 상세한 작업 절차와 명령 등을 제공한다.
- ※ 필요시 작업자에 대한 적당한 훈련을 실시한다.
- ※ 과제 단계마다 목적과 기준을 정하고 문서화한다.
- ※ 제염·해체 작업이 방사선 보호, 산업안전, 폐기물 관리 기준에 따라 수행되는 지 확인한다.
- ※ 방사선/능 측정 및 공기 채취자료, 폐기물 발생자료, 그리고 인체 피폭량의 기록유지.
- ※ 각 단계마다 설정된 기준과 수행된 값과의 비교 검토와 문서화.

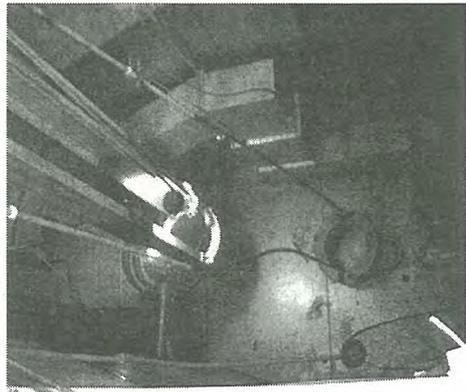
6. 작업 내용

가) 준비작업

모든 작업이 수조 위에서 이루어지기 때문에 이동작업대를 설치하고 이를 난간에 고정시켜 안정적인 작업을 할 수 있도록 하였다. 작업대 주변의 방사선 선량은 B.G. 수준이다.

나) 회전시료 조사대 분리작업

회전시료 조사대에는 동위원소 조사용 시편의 삽입과 제거를 위한 Loading Tube가 한쪽에 설치되어 있고, 반대쪽에 조사공의 위치를 조작하기 위한 Drive Assy.가 상단의 이동형 브릿지에 체결되어 있다. 이들은 브릿지 상부에서 일차적으로 해체되었다. 노심과 회전시료 조사대는 양쪽 측면에 안내 핀으로 체결되어 있는 데 압축공기 추진식 볼트 해체 공구를 이용하여 제거 분리하였다. Loading Tube 하단부 해체는 유압 절단 가위를 이용하여 절단하였고, Drive Assy. 하단부의 스테인레스 스틸 rod는 프라즈마 절단기로 절단하였다.



다) 로심 분리 및 해체작업

로심 내부에는 Top & Bottom Grid Plat가 설치되어 있어 핵연료를 지지하게 되어있고 상부 브릿지에 알루미늄 찬넬로 연결되어 있다. Top & Bottom Grid Plat를 3m길이의 3/8inch 소켓 렌치로 해체하였으며, 찬넬 또한 해체되었다. 로심은 2개의 실린더형의 알루미늄 Shroud로 분리한 후 폐기물로 포장을 위하여 휠 컷타와 유압식 가위로 세절되었다.



7. 폐기물 관리

해체 폐기물 관리는 폐기물 관리 지침과 관리 절차에 따라 방사선 준위(농도)별 그리고 재질 별로 분류하여 수집 및 저장된다. 발생한 방사화 폐기물은 방사능 준위가 1 - 50 mSv/h에 해당하는 폐기물은 직경 0.95m x 높이 0.6m 용기에 넣어 RSR 운반 캐스크에 저장하고, 50 mSv/h 이상의 폐기물은 직경 33 cm x 높이 85 cm 용기에 넣어 핵연료 운반 캐스크에 저장 한다.

8. 결과 및 고찰

로심 집합체의 해체는 연구로 제염 해체 작업에서 해체 대상물의 표면 방사선량률이 최대 1,000 mSv/h까지 측정되어 물 속에서 모든 작업이 이루어지기 때문에 여러 가지의 어려운 점이 노출되었으며, 개인에 대한 방사선 안전관리와 고소 작업으로 인한 산업안전이 더욱 더 중요시되는 작업이었다.

수중공구로는 압축공기 추진형 소켓 렌치, 유압식 가위, 그리고 프라즈마 컷터가 사용되었으나, 시야의 확보를 위하여 실질적으로 좀더 많은 해체 공구가 전기를 이용한 공구로 개발해야 하겠다. 프라즈마 컷터의 이용은 작업의 진행이나 용이성은 확보할 수 있었으나, 스테인레스 스틸의 용해 시 오염물도 같이 물에 용해되었다. 따라서 이의 처리가 별도로 필요하게 되었다.

로심의 절단에 휠 컷터와 유압식 가위를 이용하였는데 휠 컷터의 사용에서는 작업의 편이성은 있으나 튼튼한 형태의 알루미늄 찌꺼기가 발생되어 별도의 처리가 필요하게 되었다.

참 고 문 헌

1. IAEA, CLEANUP AND DECOMMISSIONING OF A NUCLEAR REACTOR AFTER A SEVERE ACCIDENT, Technical reports Series No. 346, IAEA, Vienna (1992)
2. IAEA, DECOMMISSIONING OF FACILITIES FOR MINING AND MILLING OF RADIOACTIVE ORES AND CLOSEOUT OF RESIDUES, Technical reports Series No. 362, IAEA, Vienna (1994)
3. IAEA, DECOMMISSIONING TECHNIQUES FOR RESEARCH REACTORS, Technical reports Series No. 373IAEA, Vienna (1994)
4. IAEA, PLANNING AND MANAGEMENT FOR THE DECOMMISSIONING OF RESEARCH REACTORS AND OTHER SMALL NUCLEAR FACILITIES, Technical reports Series No. 351, IAEA, Vienna (1993)
5. M.W. McMoy, R.P. Allen, H.W.Arrowsmith, SURFACE DECONTAMINATION OF SOLID WASTE, U.S. Department of Energy under Contract de-ac06-76RLO, (1830)
6. Jonny R. Harper Raymond Garde, Decommissioning the Los Alamos Molten Plutonium Reactor Experiment(LAMPRE I), Los Alamos, New Mexico 87545, (1981)
7. Adolf F. Vigt, Head Reactor Decommissioning, Principal author, Decommissioning of Ames Laboratory Research Reactor, United States Department of energy under Contract W-7405-ENG-82 (1981)

연구로 1,2호기 해체 금속폐기물의 규제해제농도기준(안)
도출을 위한 연구

A Study on the Clearance Level for the Metal Waste from the KRR-1
& 2 Decommissioning

홍상범, 이봉재, 정운수
한국원자력연구소

요 약

연구로 1,2호기 해체과정에서 발생하는 많은 양의 금속폐기물 중 자체처분대상 금속폐기물을 대상으로 재활용하는 경우에 대해서 피폭방사선량을 평가하고, 규제해제농도기준(안)을 도출하였다. 평가도구는 RESRAD-RECYCLE ver 3.06을 이용하여 ICRP60에서 제시하고 있는 유효선량 개념에 근거한 내부피폭 선량환산인자를 수정하였고, IAEA Safety Series 111-P-1.1 및 NUREG-1640을 적용하여 예상되는 최대개인선량 및 집단선량을 평가하였다. 0.4 Bq/g의 금속폐기물에 대한 RESRAD-RECYCLE 전산코드의 평가결과 개인최대선량 및 집단선량은 23.9 μ Sv/y, 0.11 man · Sv/y이다. 최종적인 핵종별 규제해제농도기준은 일반평가방법과 세부평가결과를 종합하여 가장 보수적인 평가결과를 추출하여 결정하였다. 그 결과 Co⁶⁰, Cs¹³⁷ 핵종에 대한 규제해제농도준위는 1.67×10^{-1} Bq/g미만이 되어야 국내 원자력법에서 정하고 있는 처분제한치(최대개인선량 : 10 μ Sv/y, 집단선량 : 1 man · Sv/y)를 만족할 수 있다.

Abstract

The exposure dose form recycling on a large amount of the steel scrap from the KRR-1&2 decommissioning activities was evaluated, and also the clearance level was derived. The maximum individual dose and collective dose were evaluated by modifying internal dose conversion factor which was based on the concept of effective dose in ICRP 60, applied to the RESRAD-RECYCLE ver 3.06 computing code, IAEA Safety Series 111-P-1.1 and NUREG-1640 as the assessment tool. The result of assessment for individual dose and collective dose is 23.9 μ Sv per year and 0.11 man · Sv per year respectively. The clearance levels were ultimately determined by extracting the most conservative value form the results of the generic assessment and specific assessment methodologies. The result of clearance level for radionuclides(Co⁶⁰, Cs¹³⁷) is less than 1.67×10^{-1} Bq/g to comply with the clearance criterion(maximum individual dose : 10 μ Sv per year, collective dose : 1 man · Sv per year) provided for Korea Atomic Energy Act and relevant regulations.

1. 서 론

해외 선진국에서는 이미 각종 원자력시설로부터 발생하는 다량의 금속성 방사성폐기물을 재활용하기 위한 연구와 방안에 대해 활발히 논의되고 있고, 일부국가에서는 이미 기준이 마련되어 체계적인 재활용을 하고 있다. 우리나라도 원자력발전 선진국에 진입한 이상 원자력시설에서 발생하는 다량의 금속성 방사성폐기물에 대한 적극적인 검토가 필요하며, 특히 연구로 1,2호기의 해체활동 과정에서 다량의 금속성 방사성폐기물이 발생되고 있다..[1]

본 논문은 금속성 방사성폐기물 재활용에 따른 자체처분의 안전성평가를 위해서 연구로 1,2호기 해체시 발생하는 금속성 방사성폐기물을 대상으로 예상 피폭방사선량을 평가하여 관련 규제해제농도기준(안)을 도출하기 위해서 전산코드인 RESRAD-RECYCLE을 이용하여 평가하였다. 그리고 해외의 재활용 연구사례인 NUREG-1640과 IAEA Safety Series 111-P-1.1을 적용하여 비교 평가하였다. 그리고 국내 원자력법상의 자체처분규정에 만족하기 위한 규제해제농도기준(안)을 도출하였다.

2. 본 론

2.1 평가도구

본 연구는 전산코드인 RESRAD-RECYCLE ver 3.06을 이용하여 철재 재활용 시나리오에 대해서 세부평가를 수행하였다. RESRAD-RECYCLE 전산코드는 규제해제된 철재와 알루미늄의 재활용 및 재이용 과정에서 유발되는 방사선학적 영향을 평가하기 위한 목적으로 US DOE의 지원 하에서 ANL의 EDA에서 개발하였다. Fig. 1은 RESREA-RECYCLE에서 고려한 금속성 방사성폐기물 재활용 과정을 도시하였다.

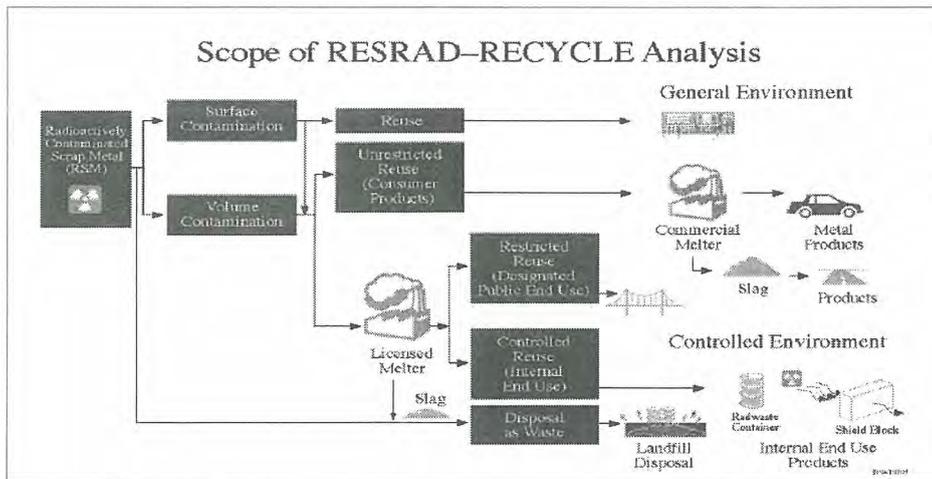


Fig. 1 A Conceptual Diagram of the Recycling Process.

RESREA-RECYCLE 전산코드에는 금속성 방사성폐기물의 수집·운반·처리 작업자(Worker)와 소비자 및 공공재를 이용하는 일반인(Public)에 대해서 총 41개의 피폭경로와 54개의 핵종에 대해서 잠재 피폭선량 및 위해도를 평가하도록 고려되었다. 그러나 본 논문에서는 국내의 상황을 고려하여 반영하기 어려운 시나리오를 선별적으로 제외시켜 총 35개 시나리오를 고려하였다. “제한적

재활용” 시나리오는 차폐체나 방사성폐기물 저장용기로 재활용하는 경우 피폭대상자가 방사선작업종사자이므로 규제해제와 관련하여 고려할 필요가 없을 것으로 판단하였다. 또한 고철의 재활용과정 중 용융공정에서 방사능 분배현상 이외에 청정금속과의 혼합에 대한 희석효과는 고려하지 않았다. 최종적인 평가결과는 개인선량, 집단선량 및 누적선량(Cumulative Dose) 등으로 출력된다.[2]

본 연구에서는 금속류 자체처분과 관련하여 해외의 연구사례를 분석하여 IAEA Safety Series 111-P-1.1와 NUREG-1640을 검토하였으며, 예상피폭방사선량 및 규제해제농도기준(안)을 도출하였다.

2.2 평가대상

연구로를 운전하는 동안 철재는 여러 가지 방사성핵종으로 오염되거나 방사화 되는데, 연구로 1, 2호기의 경우 발생된 폐기물의 농도를 고려하여 다음과 같이 세 가지로 구분하여 관리하고 있으며, 향후 처리계획을 아래와 같이 제시하였다.

- MDA(최소검출하한치) 이하 : 피폭방사선량 평가 후 자체처분.
- MDA 초과 ~ 0.4 Bq/g 미만 : 포장 후 대전(원자력연구소)로 이송하여 추후처리 예정.
- 0.4 Bq/g 이상 : 방사성폐기물 포장용기에 임시보관 후 국가 중저준위처분장(원전수거물센터) 운영시 이송.

본 연구의 자체처분 대상폐기물의 핵종의 농도는 MDA 이하만을 대상으로 처리할 예정이나 보수적으로 0.4 Bq/g을 적용하여 평가하였다.

연구로 1,2호기 해체과정에서 발생하는 금속류의 양은 85.19 m³ (약 700 Ton)으로 예상하고 있다.[3] 현재 분석과정에서 주요 검출되는 핵종은 Co⁶⁰, Cs¹³⁷이다. 그러나 이러한 수치는 철재, 알루미늄, 구리 등 여러 가지가 금속류가 혼합되어 있어 철재만을 대상으로 선정하기 위해 100 Ton의 철재로 가정하였다. 또한 이는 IAEA Safety Series 111-P-1.1에서 제시하고 있는 단위 방사능 농도 당[Bq/g] 피폭방사선량과 RESRAD-RECYCLE 전산코드의 결과값을 비교하기 위함이다.

2.3 평가방법

RESRAD-RECYCLE 전산코드를 이용하여 자체처분대상 금속성 방사성폐기물 재활용 시나리오에 대한 자체처분 안전성평가를 위해 ICRP 60(1991)에서 제시하고 있는 유효선량의 개념을 도입하여 평가하였다. 내부피폭의 경우 호흡과 섭취에 대해서 작업자의 경우 ICRP 72의 선량환산인자를 적용하였으며, 일반인의 경우 연령군별 선량환산인자의 차이를 보정하기 위해 ICRP 72의 선량환산인자값의 2배를 호흡과 섭취에 대하여 적용하였다. 호흡에 대한 선량환산인자는 ICRP 68에 근거하여 작업자의 경우 5 μ 의 AMAD(Active Median Aerodynamic Diameter)입자크기를 적용하였으며, 일반인에 대해서는 1 μ 의 AMAD 입자크기를, 흡수율 Parameter는 핵종의 반감기에 따라 F(Fast), M(moderator), S(Slow)값을 각각 적용하였다.[4]

외부피폭의 경우 Zankl 등은 연구논문(1992)에서 대부분의 경우에 유효선량 및 유효선량당량에 근거한 외부피폭선량 평가결과의 차이는 수 퍼센트 내외인 것으로 보고한 바 있으며 국내의 연구결과도 저에너지 감마핵종인 경우에는 큰 차이가 없는 것으로 밝혀졌다. 그래서 RESRAD-RECYCLE 전산코드에서 제시하고 있는 EPA FGR No. 12 (1993)을 그대로 준용하였다. [5]

IAEA Safety Series 111-P-1.1는 방사성물질의 재활용 및 재사용에 적용할 수 있는 규제면제기준을 개발하기 위한 방법론을 제시하고 있다. 상기 보고서에서는 100 Ton의 금속성방사성폐기물을 재활용하는 경우 발생하는 피폭 예상경로를 고려하여 단위 방사능 농도 당 피폭선량(Sv/y per

Bq/g)을 계산한 후 피폭선량 값이 연간 개인선량한도(10 μ Sv/y)를 넘지 않는 최대허용농도를 구하여 규제면제 기준으로 제시한 값을 이용하여 피폭방사선량 및 규제해제 농도를 도출하였다. 물론 이렇게 결정된 방출방사능 농도를 함유한 물질로 유발되는 연간 집단선량 평가결과는 집단 연간 선량한도(1 man · Sv/y)를 초과해서는 안 된다. 선량의 단위는 ICRP 26에서 제시하고 있는 유효선량당량(Effective Dose Equivalent)으로서 평가하고 있다.[6]

NUREG-1640은 US NRC의 위탁과제로 85개 핵종에 대한 규제해제농도를 도출하기 위한 연구 결과로 SAIC(Science Application International Corporation)에서 1999년 발간되었다. 일반평가방법론(Specific Approach)과 세부평가방법론(Generic Approach)을 조합하여 각 시나리오별 예상 피폭선량을 평가하였다. 상기 보고서에서는 방사성물질의 재활용 및 매립하는 경우에 대해서 규제해제농도를 도출하기 위해 선량인자(Dose Factor)를 제시하여 EC(유럽공동체)의 규제해제농도와 비교하였다.

$$\text{Clearance level} = \text{Dose criterion} \div \text{Dose Factor}$$

$$\text{Clearance level} = \text{EC 단위에서 제시하고 있는 규제해제농도(Bq/g or Bq/cm}^3\text{)}$$

$$\text{Dose criterion} = \text{연간 개인선량한도 (10}\mu\text{Sv/y)}$$

$$\text{Dose Factor} = \text{선량 인자 } (\mu\text{Sv/y per Bq/g or } \mu\text{Sv/y per Bq/cm}^3\text{)}$$

동 보고서에서는 각 핵종에 따른 선량인자(Dose Factor)를 방출시점에서 체적오염 및 표면오염에 대해서 단위오염도(1Bq/g or 1Bq/cm²)를 기준으로 결정집단(Critical Group)에 대한 결과를 제시하였다. 이러한 선량인자를 이용하여 피폭방사선량 및 규제해제농도를 도출하였다. NUREG-1640(1999)에서는 27가지 시나리오와 85개 핵종에 대한 피폭방사선량을 외부피폭에 대해서는 총유효등가선량(Total Effective Dose Equivalents)으로 평가하고 있으며, NUREG-1640(2003)에서는 30가지 시나리오와 115개 핵종에 대한 피폭방사선량을 ICRP 60(1991)의 유효선량(Effective Dose) 및 ICRP 26(1977)의 유효등가선량(Effective Dose Equivalents)로 평가하고 있다.[7,8]

3. 결과 및 고찰

연구로 1,2 호기 해체과정에서 발생하는 금속폐기물 중 자체저분대상 폐기물의 재활용하는 경우에 대하여 RESRAD-RECYCLE 전산코드를 이용하여 내부선량환산인자를 수정하였고, 나머지 변수는 초기값(Default Parameter)을 그대로 준용하여 평가하였다. 해외의 자체처분에 대한 연구 사례인 IAEA Safety-Series 111-P-1.1 및 NUREG-1640을 대상으로 예상피폭방사선량을 평가하여 그 결과 비교하여 Table 1에 제시하였다.

평가결과 NUREG-1640(1999)가 가장 보수적인 결과를 보여주었으며, IAEA Safety Series 111-P-1.1, RESRAD-RECYCLE 및 NUREG-1640(2003)은 비슷한 결과를 보여주었다. 최종 자체처분농도준위는 현재 국내 원자력법에서 적용하고 있는 유효선량의 개념을 적용하여 평가한 NUREG-1640(2003)와 RESRAD-RECYCLE 전산코드 기준으로 비교하여 보수적인 결과를 토대로 자체처분농도준위를 도출하였다.

연구로 1,2호기 해체과정에서 발생하는 자체저분대상 금속폐기물을 재활용과정을 통하여 자체처분하는 경우 핵종 Co⁶⁰, Cs¹³⁷에 대해서 대상폐기물의 오염도는 1.67 \times 10⁻¹ Bq/g미만이 되어야 국내 원자력법에서 정하고 있는 “방사성폐기물 자체처분에 관한 규정”의 처분제한치 즉 개인에 대한 연간 피폭방사선량 10 μ Sv/y미만이고 집단에 대한 총 피폭방사선량이 1man · Sv/y미만을 만족할 수 있다.

대상	RESRAD-RECY CLE ver 3.06		IAEA Safety Series 111-P-1.1		NUREG-1640 (1999)		NUREG-1640 (2003)		연구로 해체 금속 폐기물 규제해제 농도기준 (안) (Bq/g)
	방사선량 (μ Sv/y)	규제해제 농도 (Bq/g)	방사선량 (μ Sv/y) for 1Bq/g	규제해제 농도 (Bq/g)	방사선량 (μ Sv/y)	규제해제 농도 (Bq/g)	방사선량 (μ Sv/y)	규제해제 농도 (Bq/g)	
Co ⁶⁰	최대개인 2.16E+01 집단 1.14E-01	1.85E-01	최대개인 8.80E+01 집단 1.50E-02	1.34E-01	최대개인 1.00E+02	4.00E-2	최대개인 2.08E+01	1.92E-01	1.85E-01
Cs ¹³⁷	최대개인 2.39E+01 집단 7.02E-04	1.67E-01	최대개인 2.20E+01 집단 4.00E-03	4.54E-01	최대개인 1.04E+02	3.85E-2	최대개인 6.40E+00	6.25E-01	1.67E-01

Table 1. Calculated clearance level for recycling of steel scrap.

4. 참고문헌

- [1] 김희령 외, 금속성 방사성폐기물 재활용을 위한 방안연구(Ⅱ), KAERI/RR-2290/2002, 한국원자력연구소, 2002.
- [2] ANL, EAD-3, RESRAD-RECYCLE : A Computer Model For Analyzing the Radiological Doses and Risks Resulting from the Recycling of Radioactive Scrap Metal and the Reuse of Surface-Contaminated Material and equipment. 2000.
- [3] 연구로 1호기 및 2호기 폐로사업 해체계획서, 한국원자력연구소, 2000.
- [4] 임용규 외, 원전 주 발생 방사성 금속폐기물의 자체처분 안전성평가, 한국원자력학회, 2003.
- [5] 노병환 외, 방사선폐기물 규제해제 요건 개발, 한국원자력안전기술원, 2002.
- [6] IAEA, Application of exemption principles to the recycle and reuse of Material from Nuclear Facilities, Safety Series No. 111-P-1.1, 1992.
- [7] NUREG-1640, Vol. 1 & 2, Radiological Assessment for Clearance of Equipment and Material from Nuclear Facilities, 1999.
- [8] NUREG-1640, Vol. 1, Radiological Assessment for Clearance of Equipment and Material from Nuclear Facilities, 2003.

열분해에 의한 고농도 질산염 폐액의 탈질

Thermal Denitration of High Concentration Nitrate Salts Waste Water

황두성, 오종혁, 최운동, 황성태, 박진호, C. Latge*

한국원자력연구소

* CEA, Cadarache

요 약

우라늄 변환시설 내의 lagoon 슬러지의 처리 공정에서 발생하는 고농도 질산염 폐액의 처리를 위해 질산염 폐액의 열역학 및 열분해 특성을 조사하였다. 열역학적 특성은 고농도 질산염 폐액의 조성을 바탕으로 COACH와 GEMINI II를 사용하여 조사하였으며, 열분해 특성은 TG/DTA, XRD 분석을 통하여 실제 질산염 폐액에 대하여 조사하였다. 폐액 내 함유 성분 중 NH_4NO_3 는 250 °C에서 모두 분해 되었으며, 잔류물의 대부분을 차지하는 NaNO_3 는 730 °C에서 분해 되는 것으로 나타났다. NaNO_3 의 분해생성물인 불안정한 Na_2O 를 안정한 화합물로 변화시켜 주기 위하여 Al_2O_3 를 첨가할 경우 NaNO_3 는 450 °C의 낮은 온도에서 분해 가능하였다. 이 같은 열역학 및 열분해 특성을 바탕으로 고농도 질산염 폐액의 처리 공정도를 제시하였으며, 특성 자료는 공정 모사의 기초 자료로 활용될 것이다.

Abstract

This study investigated the thermodynamic and the thermal decomposition properties of high concentration nitrate salts waste water for the lagoon sludge treatment. The thermodynamic property was carried out by COACH and GEMINI II based on the composition of nitrate salts waste water. The thermal decomposition property was carried out by TG-DTA and XRD. Ammonium nitrate and sodium nitrate were decomposed at 250 °C and 730 °C, respectively. Sodium nitrate could be decomposed at 450 °C in the case of adding alumina for converting unstable Na_2O into stable $\text{Na}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$. The flow sheet for nitrate salts waste water treatment was proposed based on the these properties data. These will be used by the basic data of the process simulation.

1. 서 론

라군(lagoon)은 우라늄 변환시설의 운전 중 발생한 모든 폐액을 수집하기 위한 인공 연못으로, 변환시설 옆에 위치해 있으며 두개로 구성되어 있으며, 저장중인 슬러지는 여러 단위공정에서 발

생한 폐액으로 복잡한 조성을 이루어져 있다. 슬러지 폐액은 현재 수분이 거의 모두 증발하고 상층은 함유물의 포화용액, 가운데는 결정형, 하층은 입자상형태의 세층으로 이루어져 있다. 그 주성분은 NH_4NO_3 , NaNO_3 , $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$, CaCO_3 및 U 화합물과 소량의 Fe, Mg, Al, Si 및 P 화합물로 구성되어 있다. 라군 슬러지의 처리공정은 Fig. 1에 나타난 바와 같다^{1,2)}. 슬러지 처리를 위한 일련의 공정 중 슬러지 내 함유된 질산염을 용해한 용해액 내에 함유된 우라늄을 전기 흡착공정에서 제거한 후 약 20% 이상의 고농도 질산염 폐액이 발생한다. 본 연구에서는 이 같은 고농도 폐액을 열분해 탈질법으로 처리하고자 폐액 내 각 질산염을 대상으로 열역학적 특성과 열분해 특성을 조사하여 처리 공정을 제시하였다.

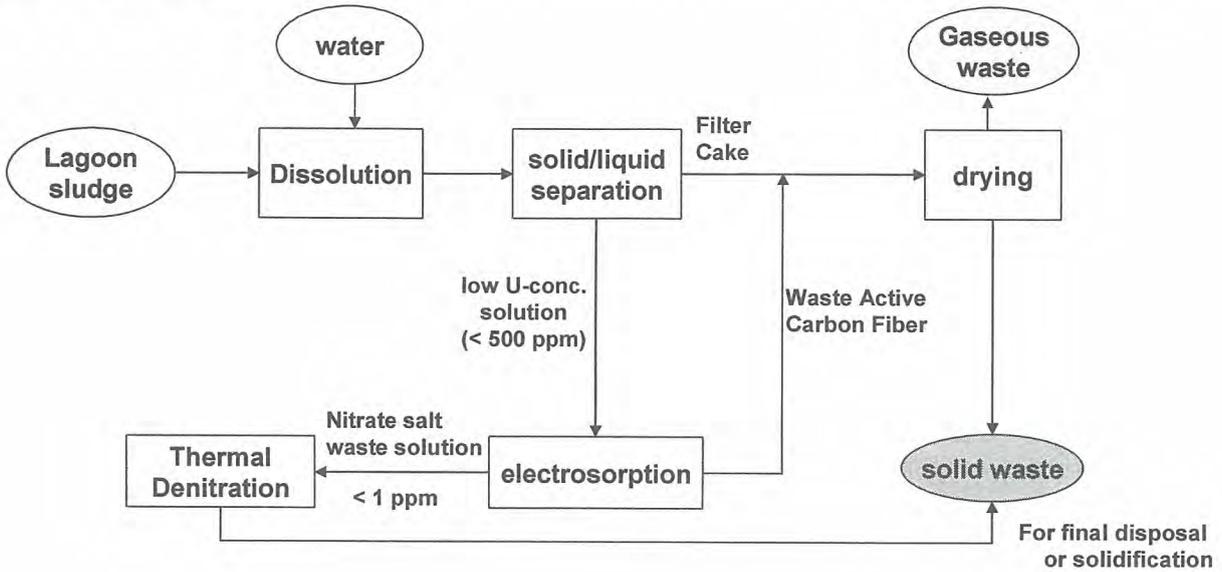


Fig. 1. Flow-sheet for the lagoon sludge treatment.

2. 실험

실험 및 열역학적 계산에 사용된 시료의 조성은 라군 슬러지를 직접 채취한 후 라군 1과 2를 혼합하여 물을 슬러지의 량에 2.5배 첨가하여 30분간 용해한 후 2.5 μm 의 ashless grade filter paper (Whatman)를 사용하여 불용해물을 분리한 후의 여과액을 사용하였으며 그 조성은 Table 1과 같다. 여기서 잔류 우라늄을 제거하는 전기 흡착 공정은 거치지 않아 우라늄의 농도는 약 120 ppm으로 다소 높은 상태이나 열분해시 우라늄의 거동을 조사하는 데는 좀더 유리할 것으로 판단된다. 열분해 특성을 조사하기 위하여 질산염 폐액 100 g을 NH_4NO_3 의 분해 온도인 250 $^{\circ}\text{C}$ 에서 5 시간 동안 열분해시킨 후 TG/DTA와 XRD를 사용하여 잔류물의 열분해 특성을 조사하였다.

Table 1. Composition of high concentration nitrate salts waste water

Compound	NH_4NO_3	NaNO_3	$\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$	U	H_2O
mol	2.475	0.447	0.079	0.0003	41.75
wt%	19.8	3.8	1.3	0.012	75.1

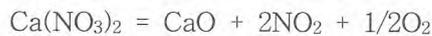
3. 결 과

열역학 database인 COACH와 열역학 계산 code인 GEMINI II를 사용하여 온도 변화에 따른 Table 1의 조성에 따른 질산염 폐액의 열역학적 특성을 조사하였으며 그 결과를 Table 2에 나타내었다.

Table 2. Thermodynamic Calculation of $\text{NH}_4\text{NO}_3\text{-NaNO}_3\text{-Ca(NO}_3)_2\text{-U-H}_2\text{O}$ system

Temp./°C	NaNO ₃	NaOH	Ca(OH) ₂	Na ₂ O	CaO	CaO.UO ₃	Na ₂ O.UO ₃
120	0.447	-	0.0787	-	-	0.0003	-
370	0.4467	-	0.079	-	-	-	0.0003
390	0.403936	0.042764	0.079	-	-	-	0.0003
520	-	0.4467	-	-	0.079	-	0.0003
920	-	-	-	0.2232	0.079	-	0.0003

여기서 NH_4NO_3 에 대한 평형값은 나타나지 않아 수록치 없었다. NaNO_3 는 600 °C에서 다음과 같은 두 단계의 반응을 거쳐 분해 되고^{3,4)}, $\text{Ca(NO}_3)_2$ 는 500 °C에서 다음과 같은 분해 기구를 통해서⁴⁾ 분해되는 것으로 알려져 있다.



열역학 코드를 통해 조사한 결과, NaNO_3 는 390 °C에서 NaOH로 변환된 후 500 °C에서 NaOH로 전량 분해되는 것으로 나타나 문헌값의 분해 결과와는 다른 결과를 보여주고 있다. 이는 문헌 값의 경우 순수한 NaNO_3 의 결과로서 수분이 있는 경우에는 NaOH로 변환됨을 알 수 있다. 이 같은 결과를 바탕으로 수분과 NH_4NO_3 가 배제된 시스템을 계산한 결과를 Table 3에 나타냈으며 730 °C에서 NaNO_3 는 Na_2O 로 분해됨을 확인할 수 있다.

Table 3. Thermodynamic Calculation of $\text{NaNO}_3\text{-Ca(NO}_3)_2\text{-U}$ system

Temp., °C	NaNO ₃	Ca(OH) ₂	Na ₂ O	CaO	CaO.UO ₃	Na ₂ O.UO ₃
120	0.447	0.0787	-	-	0.0003	-
490	0.4467	-	-	0.079	-	0.0003
730	-	-	0.4467	0.079	-	0.0003

$\text{Ca(NO}_3)_2$ 는 120 °C에서 Ca(OH)_2 를 거친 후 약 500 °C에서 CaO로 분해되는 것으로 나타나 문헌 값과 같은 결과를 보여주고 있다. 수분이 배제된 질산염을 폐액의 조성과 같이 제조하여 TG/DTA(Fig.2)로 분석한 결과 또한 이 같은 결과를 확인시켜 주고 있으나 $\text{Ca(NO}_3)_2$ 의 피크는 나타나지 않았다. 이는 함유량이 상대적으로 소량인 결과로 추측된다.

실제 폐액을 250 °C에서 분해하여 질량 변화를 측정된 결과 잔류물의 함량은 약 4.98 wt%로 나타나 수분과 NH_4NO_3 이 분해되고 남은 기타 질산염의 함량을 보여주고 있다. Fig. 3과 4는 이 같이 NH_4NO_3 이 분해되고 남아있는 잔류물의 TG/DTA와 XRD 결과로 NaNO_3 피크만이 나타났다.

Ca(NO₃)₂의 피크가 나타나지 않은 것은 Fig. 2와 비슷한 결과를 보여주고 있다. 여기서 NaNO₃는 약 700 °C에서 분해되어 Na₂O가 생성된다. 그러나 이 화합물은 수분과 쉽게 반응하는 불안정한 물질로 이를 안정한 화합물로 만들어주어야만 한다. NaNO₃는 알루미나와 다음과 같이 반응하여 안정한 화합물을 이루는 것으로 알려져 있다.

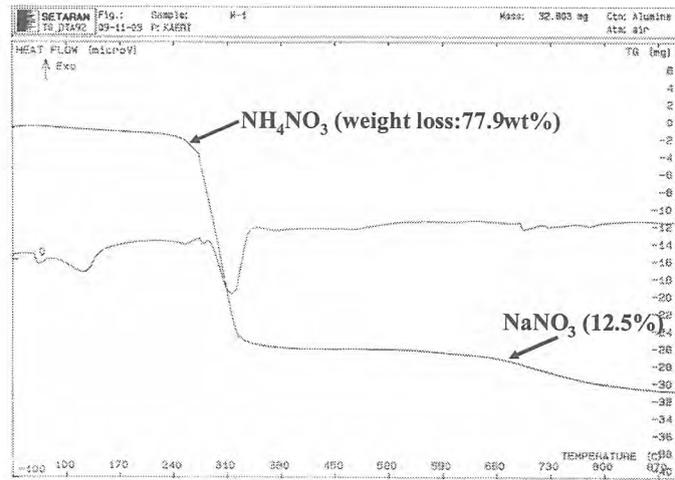
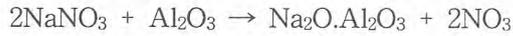


Fig.2. TG-DTA of simulated NH₄NO₃, NaNO₃, and Ca(NO₃)₂ waste without water.

따라서 이 같은 결과를 바탕으로 NH₄NO₃를 분해한 후의 잔류물에 알루미나를 혼합하였을 경우에 대하여 열역학 계산 결과를 Table 4에 나타내었다. 알루미나를 첨가한 경우 폐기물의 양은 증가하나 NaNO₃의 분해온도가 약 730 °C에서 450 °C로 낮아져 에너지 소요 면에서 경제적임을 알 수 있다.

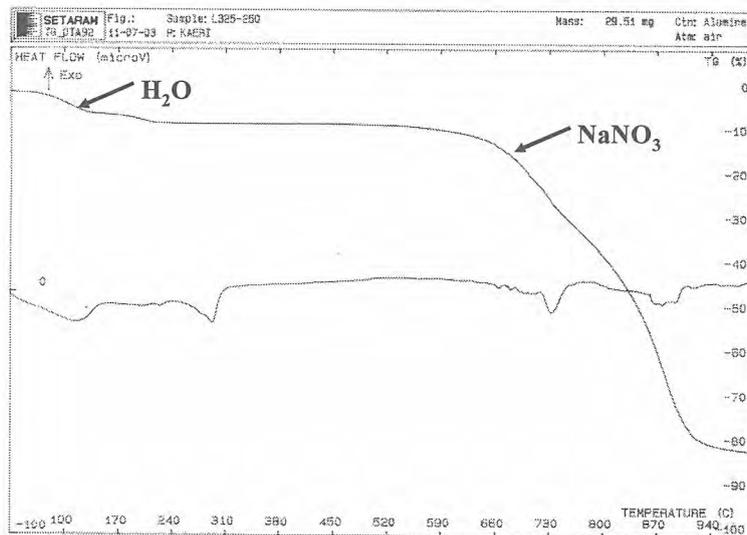


Fig.3 TG-DTA of residue after decomposing ammonium nitrate in the nitrate salts waste water

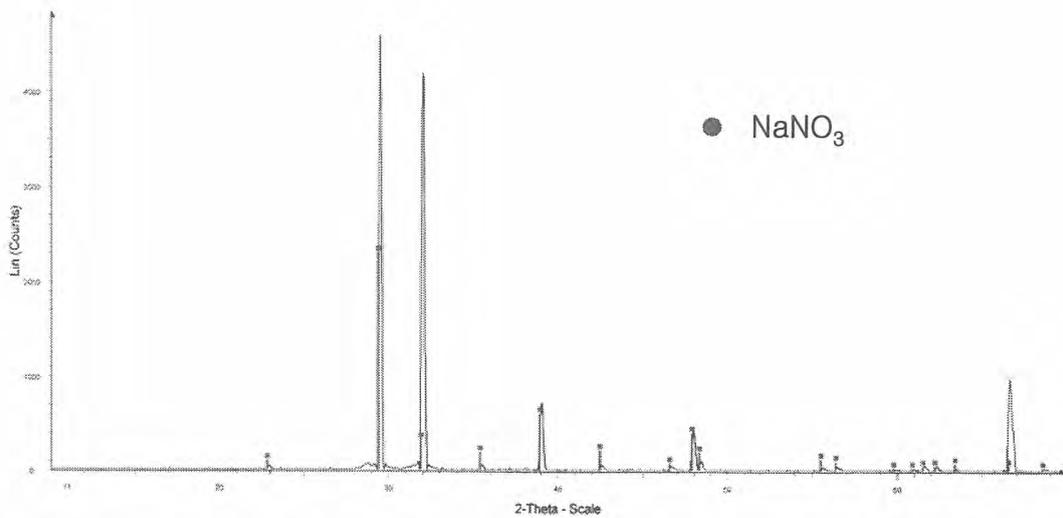


Fig.4. XRD pattern of residue after decomposing ammonium nitrate in the nitrate salts waste water.

Table 4. Thermodynamic Calculation of $\text{NaNO}_3\text{-Ca(NO}_3)_2\text{-U-Al}_2\text{O}_3$ system

Temp., °C	NaNO_3	$\text{Na}_2\text{O}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3$	Ca(OH)_2	CaO	$\text{CaO}\cdot\text{UO}_3$
250	0.447	-	0.0787	-	0.0003
450	-	0.2235		0.0787	0.0003

이 같은 고농도 질산염 폐액의 열역학 및 열분해 특성 결과를 바탕으로 Fig. 5와 같은 처리 공정도를 제시하였으며, 공정 모사를 수행한 후 처리 공정을 확정할 것이다.

4. 결 론

고농도 질산염 폐액의 조성을 바탕으로 COACH와 GEMINI II를 사용하여 열역학적 특성을 조사하였으며, TG/DTA, XRD 분석을 통하여 실제 질산염 폐액의 열분해 특성을 조사한 결과, 폐액 내 함유 성분 중 NH_4NO_3 는 250 °C에서 모두 분해 되었고 잔류물의 대부분을 차지하는 NaNO_3 는 730 °C에서 분해 되는 것으로 나타났다. NaNO_3 의 분해생성물인 불안정한 Na_2O 를 안정한 화합물로 변화시켜 주기 위하여 Al_2O_3 를 첨가할 경우 NaNO_3 는 450 °C의 낮은 온도에서 분해 가능하였다. 열역학 및 열분해 특성을 바탕으로 고농도 질산염 폐액의 처리 공정도를 제시하였으며, 이들 특성 자료는 공정모사의 기초 자료로 활용될 것이다.

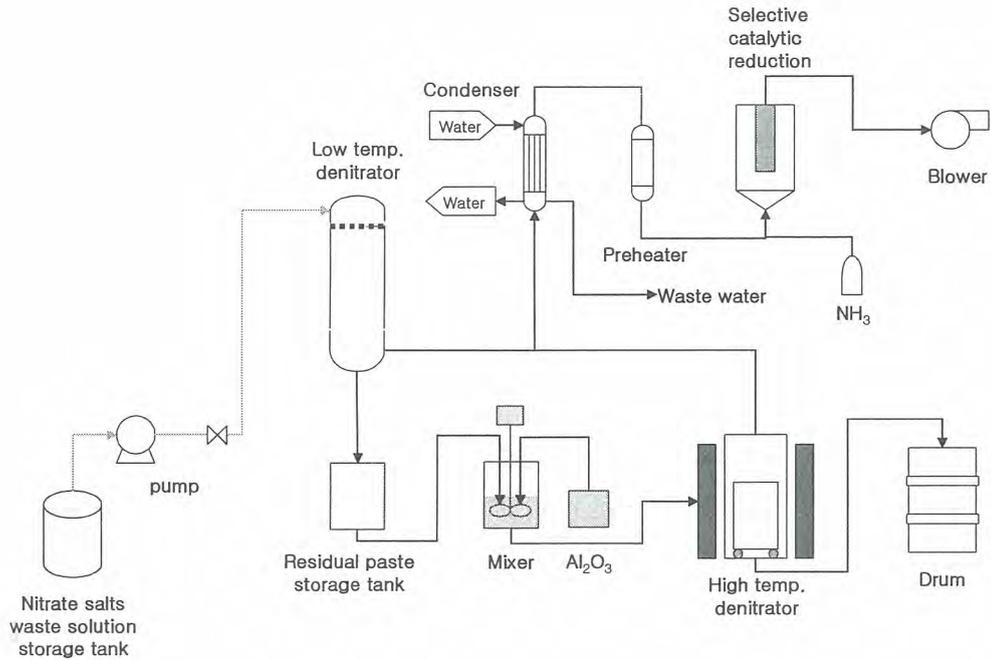


Fig. 5. Flow sheet for high concentration nitrate waste water treatment.

참 고 문 헌

1. D.S. Hwang, K.I. Lee, Y.D. Choi, S.T. Hwang, and J.H. Park, Characteristics of Lagoon Sludge Waste Generated from the Uranium Conversion Plant, J. Radioanal. and Nucl. Chem., to be submitted.
2. S.T. Hwang, Y.D. Choi, S.W. Kwon B.H. and Kim, J.Y. Jeong, The Management and Maintenance of HWR Nuclear Fuel Conversion Facility, Rep. KAERI/MR-286/96 (1996).
3. C. Ettarh and A.K. Galwey, A Kinetic and Mechanistic Study of the Thermal Decomposition of Calcium Nitrate, *Thermochimica Acta*, **203**, 288 (1996).
4. C.M. Kramer, Screening Tests of Sodium Nitrate Decomposition, *Solar Energy Materials*, **6**, 231 (1981).

연구로 2호기 동위원소생산시설 해체활동 평가
**Evaluation on the Dismantling Activities
of the KRR-2 Radioisotope Production Facilities**

박승국, 천은영, 박진호
한국원자력연구소

요 약

연구로 1,2호기 해체 사업이 본격적으로 착수하게 됨에 따라 2001년 8월부터 2002년 12월까지 연구로 2호기 부속시설인 동위원소 생산시설을 제염 및 해체하였다. 이 시설은 동위원소 생산용 콘크리트 핫셀, 납 핫셀 및 실험실로 구성되어있다. 제염·해체의 대상물은 흡후드, 실험대, 싱크 및 오염된 내부 시설물이다. 안전한 해체 활동을 위해서 각종 지침서 및 절차서가 수립되었다. 해체 활동을 위해 총 20,933 man-hour의 인력이 소요되었고, 드릴링 머신 등 여러 장비가 투입되었다. 실험실에서의 최대 오염도는 유리성 오염도가 β : 9.24 Bq/cm²이었고, 고착성 오염도는 350,000 cpm이었다. 해체폐기물은 콘크리트류, 목재류 및 철재류 등으로 총 62.146 Ton이고, 작업자들의 피폭량은 0.33 mam-mSv로 나타났다.

Abstract

In accordance with the KRR-1 & 2 decommissioning project, the decontamination and dismantling activities of the KRR-2 auxiliary facilities, radioisotope production facilities, were completed from Aug 2001 to Dec 2002. The auxiliary facilities were composed of the concrete hot-cell, lead hot-cells and several laboratories for the radioisotope production. The dismantling objects are hume hoods, experimental desks, sinks, and contaminated inner facilities. For the purpose of the safe decommissioning activity, the method statements and working procedures were set up. The manpower of the total 20,933 man-hour was required and several dismantling equipments were also. The maximum surface contamination is: 9.24 Bq/cm² in removable contamination and 350,000 cpm in fixed contamination. The total amount of 62.146 Ton was raised as dismantled waste with kinds of the concretes, wood, steels, etc. The collective dose was evaluated as 0.33 mam-mSv during this period.

1. 서 론

연구로 2호기 부속시설은 12개의 실험실과 2기의 대형 콘크리트 핫셀, 1기의 소형 콘크리트 핫셀 및 10기의 납 핫셀로 구성되어있다.[1] 이 중 제염활동을 거쳐서 3개의 실험실은 작업자의 탈의 및更衣실로 개조하였고, 1개의 실험실은 제염을 한 후 해체활동에 필요한 각종 장비를 보관, 관리하는 용도로 사용하였다. 복도에는 작업자의 출입관리를 위한 분리시설을 설치하였다. 해체 대상으로 8개의 실험실에 있는 15기의 철재 및 목재 흡후드와, 25개의 실험대와 이에 부착된 싱크가 전부 제염, 해체되었다. 10기의 납핫셀의 완전 철거와 콘크리트 핫셀내의 폐기선원을 철거하였

으며, 건물은 추후 한전에 반납하기 위해 오염에 대한 제염만 실시하였다.

해체 대상물 및 주변 환경에 대해 상세한 방사선 오염 측정업무가 수행되었고, 이를 토대로 대상물에 대한 해체 및 절단 공법이 선정되었다. 해체 대상물이 대부분 간단한 구조의 조립물이기 때문에 가벼운 연장 등을 이용하여 수작업으로 해체가 이루어 졌다. 납 핫셀의 경우에는 드릴링 머신과 소형 브레이커를 이용하여 콘크리트 벽체 및 슬라브를 제거하였다.

해체계획서, 방사선작업지침서 및 작업절차서와 폐기물관리 절차서에 따라 모든 시설물들은 제염을 거친 후 해체 철거되었으며, MDA 이하인 폐기물은 관리구역 밖의 창고에 임시 보관 중에 있으며, 일부 방사성폐기물은 #132 실험실에 임시 보관한 후, 계속적인 2차 제염을 하고 있다. 연구로 2호기 원자로실로부터 액체폐기물 반송을 위한 배관류가 있는 일부 지하 pit와 제염실로 개조하여 사용하고 있는 납핫셀룸을 제외하고, 모든 실험실의 바닥, 천장 및 벽은 제염이 완료되어 비방사선관리 구역으로 선정되었다.

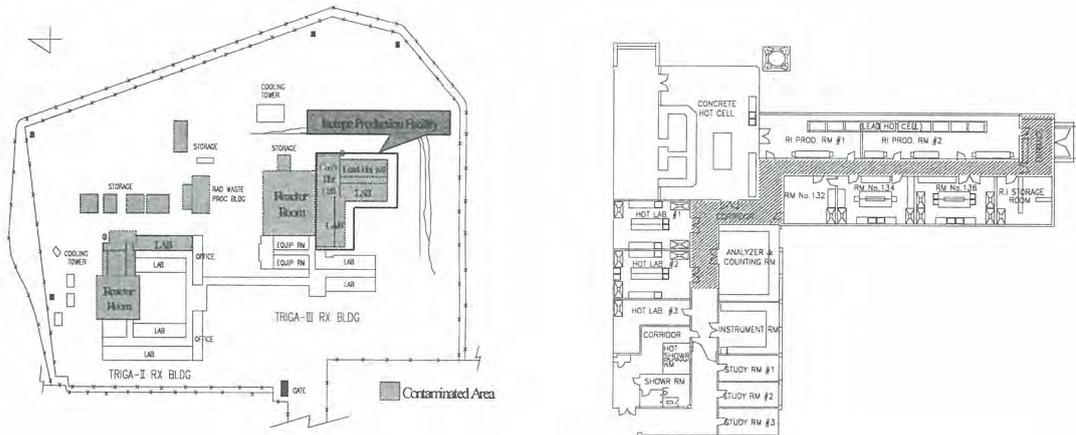


그림 1. 연구로 2호기 동위원소 생산시설

해체 활동 결과를 평가하기 위해 작업내용은 크게 방사선측정 및 분석과 제염 및 해체활동 그리고 폐기물 관리 활동과 기타 정리 및 준비 작업으로 구분되었다. 이렇게 구분되어진 작업 활동에 투입된 작업량을 산출하고 이를 다시 작업 기간별, 작업장소별, 직종별로 산출하여 평가하였고, 이에 따른 작업자들의 예상피폭량 및 실제 피폭량을 비교하였다. 해체활동에서 발생된 폐기물도 함께 평가되었다.

2. 본 론

2.1 동위원소 생산 실험실 제염·해체활동

연구로 2호기의 동위원소 생산을 위한 실험실은 후드, 실험용 탁자, 수도 및 싱크대가 설비되어 있다. 후드는 천장 덕트로 연결되어 있어 후드를 통한 공기는 HEPA 필터를 거쳐 외부로 배기되도록 설치되었다. 싱크대는 일반 하수로 나가는 관과 극저준위 방사성 폐액 저장조로 연결된 관으로 분리되어 있다. 실험실 내에는 동위원소 생산을 위하여 사용되었던 각종 실험 초자, 시약병, 전선류와 각종 잡품이 있었다.

제염·해체 작업 이전에 방사선량을 측정한 결과 250~35,000 cpm정도 범위 내에서의 오염도가 측정이 되었으며, 실험실에서의 최대 오염도는 유리성 오염도가 $\beta : 9.24 \text{ Bq/cm}^2$ 이었고, 고착성 오염도는 350,000 cpm이었다.[2] 작업 현장에서 즉시 제염할 수 없는 고착성 오염물은 실험실 #132호에 임시 저장하였다가 지금도 계속 2차 제염을 실시하고 있다.

실험용 후드는 총 15개가 있는데 이는 철재 및 목재 후드로 구분된다. 대부분의 후드 내부에는 미세 먼지가 끼어 있어 오염된 상태로서 유리성 오염도 $\beta : 0.01 \sim 0.077 \text{ Bq/cm}^2$ 정도 나타나 현장에서 간단히 제염할 수 있었다. 실험용 후드의 해체는 외부 상판부터 철거하면서 진공 청소기로 누적된 먼지를 제거하는 방식으로 수행하였다. 각 부분을 제염 휴지로 닦아 낸 후 방사선/능을 검출하였으며 이에 대한 기록을 별도로 정리하여 보관하고 있다.

후드와 실험대, 썬크 등의 해체 및 절단은 비교적 간단한 수작업 공구를 이용하여 수행되었으며 벽, 천장 및 바닥의 표면 오염은 제염재를 이용하여 닦아내고, Scabblers를 이용하여 바닥 표면을 깎아 내는 방식으로 제염되었다. 액체폐기물의 이송을 위한 매립 배관류도 함께 제거되었으며, 일부 바닥 밑 배관류의 장기간 매립에 의한 재료의 부식으로 일부 토양이 오염된 것으로 나타나 모두 수거하여 임시보관 중이다.

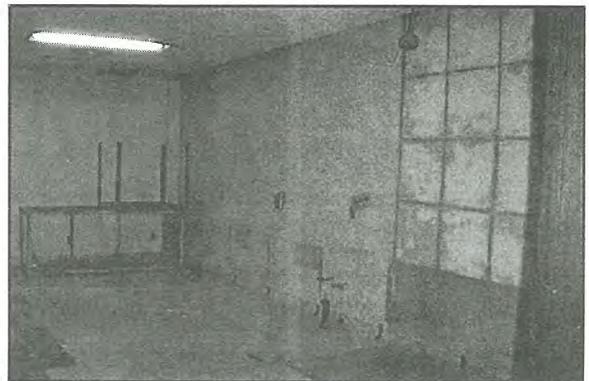


그림 2. 동위원소 실험실 해체 전·후

2.2 동위원소 생산 납핫셀 제염·해체활동

동위원소생산시설은 2개의 생산실로 구분되는데 생산실 #133호에 3기의 납 핫셀이 있고, 생산실 #135호와 #137호에 7기의 납 핫셀이 설치되어 있다. 납 핫셀은 액체 폐기물 수집통을 넣을 수 있는 700mm높이의 콘크리트 구조물 위에 전면에는 납벽돌을 쌓고, 뒷면은 출입문 역할을 하는 6mm 두께의 철판으로 가공된 2개의 차폐문이 설치되어 있으며, 납 핫셀과 납 핫셀의 사이 벽은 콘크리트 구조물로 되어있고, 천장은 3mm두께의 철판으로 되어 있다. 10개의 각 납 핫셀에는 1개의 차폐창과 2개의 원격집게(Tongs), 배기필터 및 조명장치를 갖추고 있다.

납 핫셀은 중성자 선원을 취급하지 않았으므로 납 핫셀 내 구조물 및 시설이 방사화 되지는 않은 것으로 나타났다. 납 핫셀의 방사선/능 현황을 살펴보면 방사선/능 조사 당시는 단수명 동위원소 생산을 위해 납 핫셀을 사용 중에 있었으므로 높은 방사선 및 오염도를 나타냈었으나, 납 핫셀의 해체 공사 시에는 납 핫셀 사용이 중지 된지 오래되어 단수명 핵종 등의 붕괴로 인해 오염도는 현저하게 떨어진 것으로 나타났다.

납 핫셀의 해체는 외부 수도 및 가스 공급 배관, 뒷문 철거, 납유리 및 원격집게(Tongs)와 납벽돌 철거, 필터 housing 철거, 천장 및 형광등 철거 그리고 셀 콘크리트 철거 순서로 수행하였다. 납 핫셀 뒷문의 해체는 무게가 약 340kg정도로 무겁고 작업공간이 작기 때문에 Scissor Lift를 이용하였다.

납유리와 Tongs의 철거는 외부 볼트를 푼 다음 내부에서 해머로 두드려 분리하였고, 납벽돌은 한 개씩 해체하는 방법으로 납 핫셀의 앞부분을 모두 해체하였다. 두께 20 cm의 콘크리트 벽체 및 바닥은 코어 드릴링 머신을 이용하여 코어를 연속으로 뚫어서 가능한 온전한 면의 형태를 유지하면서 해체하였다.

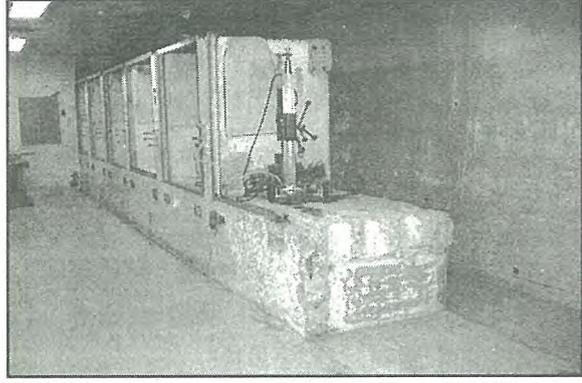
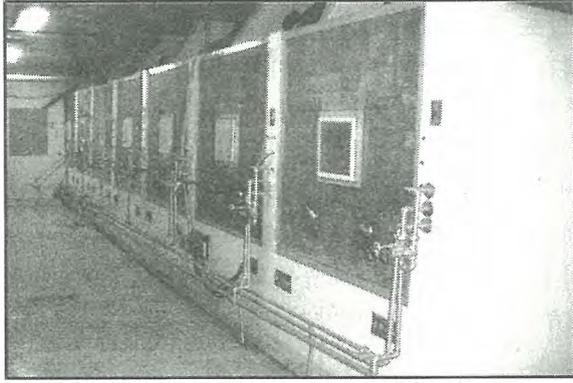


그림 3. 납 핫셀 해체 전·후

2.3 방사성폐기물 발생현황 및 관리

방사성 고체폐기물은 일반적으로 방사선 준위(농도)별 그리고 폐기물의 재질 별로 수집 및 저장 처리하도록 되어 있다. 제염 해체에서 발생된 폐기물의 품목과 오염도 측정결과에 대한 상세 내역은 별도로 기록 보관하고 있다.

동위원소 생산시설의 해체에서 발생된 폐기물은 종이류가 4포대(36.3 Kg), 유리류가 3포대(51 Kg), 아크릴류가 2포대(54 Kg), 스텔트가 1포대(49.7 Kg), 전선 및 잡품(PVC)류가 7포대(146.8 Kg), 핫셀 문(철문 내부에 납차폐)이 20개(6,760 Kg), 납이 1포대(38.5 Kg), 납 벽돌이 9,492 Kg, 철재류가 10포대(389.3 Kg)과 철재 bulk가 1,250 Kg, 목재류(bulk)가 1,490 Kg, 그리고 납유리가 9 개 등이 발생되었다.[4] MDA 이하의 측정값을 가진 폐기물은 규제해제 폐기물로서 처리 될 것이며, 해체사업의 목표치인 0.4 Bq/g 이상의 방사성폐기물은[3] 현재 2차 제염을 위해서 #132 실험실에 보관 중이며 현재 초음파 제염, 화학제염 및 고압증기제염을 통해 오염을 제거 중에 있으며 잡고체 등은 드럼압축 시설을 이용하여 감용하고 있다.

3. 결 론

2001년 8월부터 2002년 12월까지 작업일수 360일 동안, 총 20,933 Man-power가 투입되었다. 해체현장에서의 직접투입은 방사선안전관리 3인, 일반작업분야 5인, 품질관리 및 폐기물관리 각각 1인으로 구성되었다. 이외 현장 관리 및 전문가 그룹이 별도로 운영되었다. 이들 작업 그룹별로 수행하였던 작업 공정을 세부 작업 내용, 작업 장소 및 작업 특성에 따라 분류하고, 이에 투입된 인력을 산출, 평가하였다. 이는 다시 작업의 직종별로도 분류하였다. 해체 대상물의 단위별 해체투입량을 산정 할 수는 없지만 제염활동에 투입된 인력의 소요량을 산출해 본 결과 1m²당 약 10.17~10.19 시간이 소요되는 것으로 나타났다. 이는 장소의 위치, 공간의 협소 및 오염의 정도에 따라 다르지만 콘크리트 표면을 대상으로 산출, 평가된 결과이다.

(단위 : man-hour)

작업 내용	방사선 관리	일반 작업	품질 폐기물	
작업 안전관리	1,372.5	40.0	391.5	1804.0
주변정리 및 준비작업	1,240.0	4,979.5	380.0	6599.5
방사선 측정, 분석	5,978.0	704.5	33.0	6715.5
해체활동	124.0	3,548.5	2.5	3675.0
제염활동	65.0	1,941.5	37.5	2044.0
폐기물관리	11.0		84.0	95.0
	8,790.5	11,214.0	928.5	

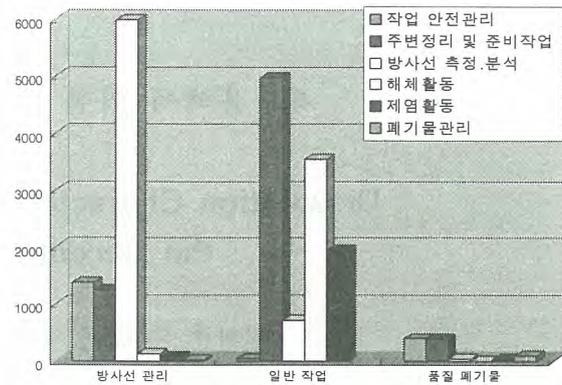


그림 4. 직종별, 작업내용별 해체활동 투입 인력량 평가

제염 및 해체활동을 통해 발생된 폐기물은 콘크리트류, 목재류 및 철재류 등으로 총 62.146 Ton이고, 이중 방사성폐기물이 0.6 Ton으로써 약 1 % 정도이고, 비방사성폐기물 이 58.627 Ton 그리고 자체처분대상폐기물이 2.19 Ton으로 집계되었다.

작업자들의 피폭량은 0.33 mam-mSv로 예상피폭량 5.035 mam-mSv 대비 6.55 % 수준으로 나타났으며, 콘크리트 핫셀 내부의 폐기선원을 제거하는 활동에서 피폭된 것으로 나타났다.

후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행한 것입니다.

참 고 문 헌

- [1] 박승국 외, TRIGA 연구로 폐로를 위한 시설현황 및 방사선/능 조사보고서, KAERI/TR-1153/98, 한국원자력연구소, 1998
- [2] 이봉재 외, "TRIGA Mark-II, III 연구로시설의 폐로를 위한 시설내 잔류 방사선/능 평가", 제 24권 제2호, 대한방사선학회지, 1999
- [3] 정기정 외, 연구로 1호기 및 2호기 폐로사업 해체계획서, KAERI/TR- 1654/2000, 한국원자력 연구소, 2000
- [4] 박진호 외, 연구용 원자로 폐로사업, KAERI/RR-2304/2002, 한국원자력연구소, 2002

제염용액에 의한 토양 중 철 성분 용해 특성

Dissolution Characteristics of Iron Ion in Soil by the Decontamination Solution

원휘준, 김계남, 정종현, 최왕규, 박진호, 오원진,
한국원자력연구소

요 약

제염 용액인 citric acid 의 농도를 일정하게 유지(0.05M)한 상태에서 토양 내 존재하는 주요 철 성분인 마그네타이트에 대한 용해거동을 조사하였다. 수용액의 산도는 pH 2.0~5.0의 산성영역에서 이루어 졌고 온도는 50 °C에서 수행하였다. 수용액의 pH는 수산화나트륨과 질산용액을 사용하여 조절하였다. Citric acid의 이온화 상수를 사용하여 pH의 변화에 따른 해리 화학종 별 농도를 계산하였으며 마그네타이트의 표면전위를 측정하였다. 측정된 표면전위 값과 해리 화학종인 H_2Y^- 및 HY^{2-} 를 비교함에 의해 citric acid에 의한 마그네타이트의 용해특성을 잘 설명할 수 있었다. 마그네타이트로부터 철 성분이 용해될 때까지 3 h 이상의 유도기간이 존재하는 것으로 나타났으며 시간 경과에 따른 철 성분의 농도 변화에 대한 용해거동을 반응식을 사용하여 전개함에 의해 마그네타이트의 용해반응을 설명하였다. 실험범위의 pH 영역에서 최적화된 변수들들의 물리적 의미를 용해반응 모델 식으로부터 설명하였다.

Abstract

Dissolution of magnetite powders by 0.05 M citric acid was investigated at 50 °C. All the tests were performed in the pH range between 2.0 to 5.0, which was adjusted using nitric acid or sodium hydroxide. Concentration of each of the dissociated chemical species of citric acid under various solution pHs was calculated using the ionization constants. Variation of zeta potential of magnetite with pH changes was also investigated. The dissolution reaction was explained by comparing the concentration of the dissociated chemical species of citric acid with the zeta potential. Longer than 3 h of induction time was required to dissolve the magnetite. The dissolution behaviour of magnetite was well described by the equation. The physical meaning of each parameter was explained successfully from the model equation.

1. 서 론

Citric acid는 중금속으로 오염된 토양의 정화에 효과적인 화합물로 알려져 있다⁽¹⁾. Co-60로 오염된 토양에 대한 정화성능의 비교를 위해 citric acid와 EDTA 용액을 사용하여 실험을 수행하였

다⁽²⁾. 방사능 제거효율은 citric acid와 EDTA가 서로 비슷하였지만 정화제가 이온교환 수지에서 재생되는 능력은 citric acid가 EDTA에 비해 우세한 것으로 나타났다. 이 citric acid 용액을 극저준위 방사능으로 오염된 토양의 정화에 이용할 경우, 2차폐기물의 양을 최소화하는 공정을 개발하는 것이 중요하다. 특히, 토양 중에 존재하는 철 산화물은 citric acid 용액에 의해 철 이온으로 용해되어 2차폐기물의 발생량을 증대시키는 원인을 제공하게 된다. EDTA 및 oxalic acid에 의한 철 산화물 용해반응 연구가 활발히 진행되고 있는 반면, citric acid의 철 산화물 용해반응 연구는 보고되지 않았다.

Citric acid의 농도를 일정하게 유지한 상태에서 용액의 산도를 변화시켜 가며 용해실험을 수행한 결과를 citric acid의 이온화 상수치 및 표면 전위 값과 비교함에 의해 citric acid에 의한 마그네타이트의 용해반응을 파악하고자 하였다.

2. 실험

0.05 M citric acid와 0.05 M KNO₃ 혼합 용액을 사용하였으며 수용액의 pH는 50 °C에서 HNO₃ 및 NaOH를 첨가함에 의해 조절하였다. 냉각기가 장착된 플라스크에 혼합 용액 200 ml를 넣은 후 Fe₃O₄ 1.0 g을 첨가하였으며 50 °C에서 용해실험을 수행하였다. 반응 중 용액을 magnetic hot plate 위에서 교반하였으며 여기에 질소 기체를 통과시켰다. 실험에 사용된 시약은 모두 Aldrich사의 제품이었다. 2 ml의 시료를 채취하였으며 이 시료는 채취 즉시 원심 분리 후 0.2 μm의 syringe filter를 통과시킴에 의해 수용액 중에 존재하는 마그네타이트 입자를 완전히 제거하였다. 용해된 철 성분의 농도는 원자흡수분광기(AAnalyst 300, Perkin Elmer Co.)로 분석하였다.

0.001 M KNO₃ 수용액에 마그네타이트(농도: 0.3 g/L)를 첨가하고 24 h 동안 방치한 후 zeta potential analyzer (Brookhaven Instruments Corp.)로 용해조건 하의 pH에서 마그네타이트의 표면전위를 25 °C에서 측정하였다. 마그네타이트의 입도 분포를 particle size analyzer (Helos 1034, Sympatec GmbH Co.)로 분석하여 Figure 1에 도시하였다. Magnetite의 비표면적은 1.28 m²/g이었으며 96% 이상의 마그네타이트 입자들이 0.44~2.5 μm의 범위에서 존재하였다.

3. 결과 및 고찰

Figure 2는 pH를 변화시켰을 때 시간이 경과함에 따라 용해된 철 이온의 농도 변화를 도시한 것이다. 마그네타이트의 철 성분은 일정 시간이 경과한 후 citric acid에 의해 용해되어지는 것으로 보여진다. 그리고, 철 성분이 용해되기 시작하면 용해 초기에는 비교적 반응이 빠르게 진행되다가 용해속도가 서서히 감소되는 경향을 나타낸다. 본 실험조건에서 수용액의 pH가 3일 때 철 성분이 가장 많이 용해되었으며 72 h 경과 후 농도는 0.0065 M 이었다. 이는 첨가된 마그네타이트 양의 10.03%이며, citric acid의 13%와 철 이온이 착물을 형성함을 알 수 있다.

철 성분의 용해거동은 본 실험의 pH 범위에 대해 다음의 식을 따르는 것으로 나타났다.

$$Y = A [1 - e^{-B(x-C)}] \quad (1)$$

(1) 식과 철 성분 용해 데이터를 이용하여 pH 변화에 따라 Levenberg-Marquardt iteration법으로 구한 최적 변수치를 Table 1에 수록하였다. 마그네타이트의 표면전위와 72 h 반응 후 용액 내 철 이온 농도를 용액의 pH 변화에 대해 동일 그래프에 도시하여 Figure 3에 나타내었다. 실험범위에

서, 마그네타이트의 표면전위는 양의 값을 가지며 pH가 2에서 5로 상승함에 따라 그 값이 +40.1 mV에서 +32.0 mV로 서서히 감소되다가 pH가 6일 때 +5.1 mV로 급격히 감소되는 경향을 보여 준다. 그리고, 수용액의 pH가 3에서 6으로 상승함에 따라 용해된 철 이온의 농도도 감소하는 경향을 보여준다. 그러나, pH 2일 때 용해된 철 이온의 농도는 표면전위의 변화 경향과는 다르게 pH 3에 비해 작다.

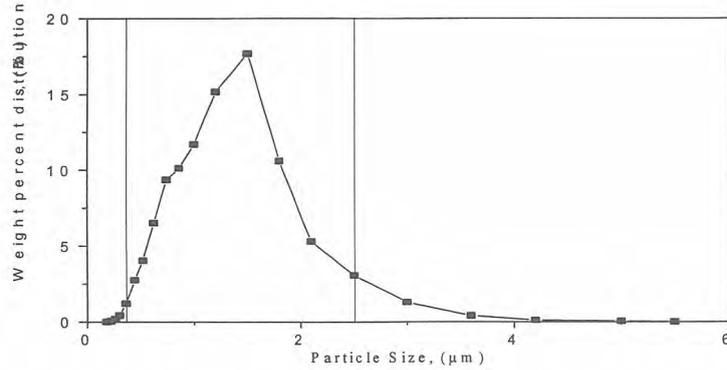


Figure 1. Weight percent distribution of magnetite against the particle size.

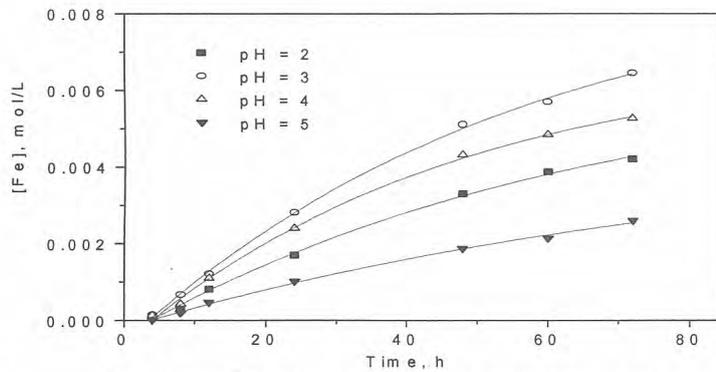


Figure 2. Dissolved iron ion concentration against time.

Table 1. Optimized Parameter Values.

pH parameter	2	3	4	5
A	0.007	0.009	0.007	0.005
B	0.015	0.018	0.020	0.012
C	3.81	3.55	3.96	3.79

Citric acid의 수용액 내에서 이온화 상수는 각각 $pK_1 = 2.87$, $pK_2 = 4.35$, $pK_3 = 5.68$ 이다⁽³⁾. 용액의 pH가 변화함에 따라 변화되는 citric acid 각각의 헤리 화학종에 대한 농도는 다음 식으로 구한다^{(4),(5)}.

$$[Y]_T = [Y^{3-}] + [HY^{2-}] + [H_2Y^-] + [H_3Y] \quad (2)$$

$$[Y^{3-}] = \frac{[CA]_{tot}}{(1 + [H^+]/K_3 + [H^+]^2/K_2K_3 + [H^+]^3/K_1K_2K_3)} \quad (3)$$

여기서, Y^{3-} 는 완전히 해리된 citric acid, HY^{2-} 는 양성자 두 개가 해리된 citric acid, H_2Y^- 는 양성자 하나가 해리된 citric acid 이며, H_3Y 는 해리되지 않은 citric acid를 각각 나타낸다. $[Y]_T$ 는 수용액 중에 존재하는 citric acid의 총 농도로, 본 연구에서는 0.05 M을 사용하였다. 각 pH에서 수소 이온 농도를 대입하여 계산한 후, 그 결과를 Figure 4에 도시하였다. 수용액의 pH 1~2의 범위에서는 H_3Y 가 우세한 화학종이지만 그 이상의 pH에서는 그 농도가 서서히 감소한다. 수용액의 pH가 2에서 4로 높아짐에 따라 음이온 종인 H_2Y^- , HY^{2-} 및 Y^{3-} 는 모두 그 농도가 증가함을 보여준다. H_2Y^- 이온의 농도는 pH 4에서 5로 높아짐에 따라 감소하며 그 이상의 pH 영역에서도 계속 감소하고 HY^{2-} 이온의 농도는 pH 5에서 최대치를 보이다가 그 이상의 영역에서는 감소한다. 한편, Y^{3-} 이온농도는 pH가 상승함에 따라 지속적으로 증가한다.

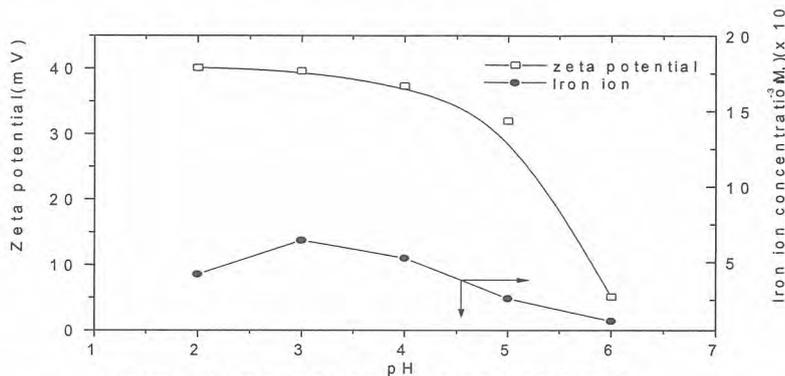


Figure 3. Zeta potential and iron ion concentration.

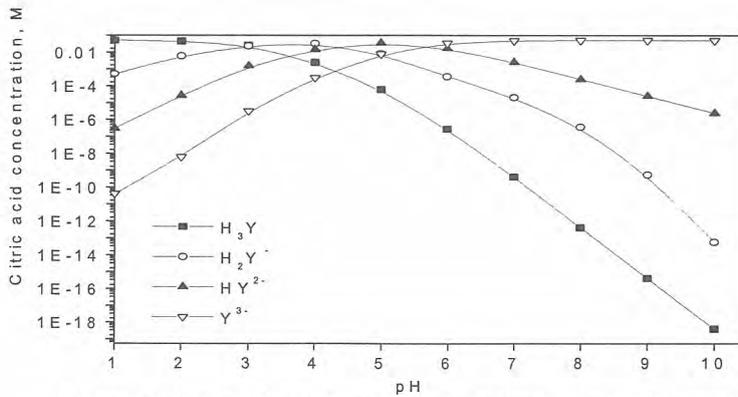


Figure 4. Concentration of the chemical species dissociated from citric acid with the pH changes.

Figure 3의 경향에서, 수용액의 pH가 3에서 6으로 증가함에 따른 철 성분의 용해량 변화는 마그네타이트 표면전위의 변화와 유사한 경향을 보여준다. 그러나, 수용액의 pH가 2에서 3으로 높아짐에 따라 마그네타이트의 표면전위가 40.1 mV에서 39.6 mV로 감소함에도 불구하고 철 성분의

용해량이 증가함을 보여준다. 이 현상은 Figure 4에서 보여지는 바와 같이, 수용액 중에 존재하는 음이온들의 농도 변화에 의해 설명이 가능하다. 즉, 수용액 pH가 2에서 3으로 증가함에 따른 마그네타이트 표면전위의 감소를 상쇄할 만큼 마그네타이트의 표면에 접근 가능한 H_2Y^- , HY^{2-} 및 Y^{3-} 이온들의 농도가 모두 증가하기 때문이다. 이는 본 연구의 pH 영역에서 citric acid에 의한 철 성분의 용해량 변화에 영향을 미치는 주요 인자가 마그네타이트의 표면전위지만 citric acid의 해리중에 의한 영향도 무시할 수 없음을 보여준다.

정화에 의해 발생하는 방사성 폐액 내에는 1 ppm 이하의 농도로 방사성 핵종이 존재한다. 이 폐액 자체가 방사성 폐기물이므로 이들은 다시 고 순도의 이온교환 수지를 사용하여 방사성 핵종을 포집하고 유기산 용액을 반복 사용함에 의해 2차폐기물의 양을 줄일 수 있다. 토양이 정화되는 중, Fe, Ca, Mg 등과 같은 금속 성분도 방사성 핵종과 함께 용액으로 침출되므로 이온교환 수지의 양도 그만큼 많이 소요된다. 본 연구에서, 일정 시간이 경과된 후 pH 변화에 따른 철 성분의 용해량 변화는 수용액의 pH 변화와 정확하게 일치하지 않았는데 그 이유를 마그네타이트의 표면전하와 citric acid의 이온화 상수 개념으로 설명할 수 있었다. 방사성 핵종인 Co-60로 오염된 토양은 citric acid 용액을 실온에서 2 h 이하 동안 접촉시킴에 의해 효과적으로 정화할 수 있다. Citric acid 용액을 사용하여 토양을 정화한다면 마그네타이트에 의한 2차폐기물 발생 문제는 무시할 만한 것으로 판단된다.

감 사

본 연구는 과학기술부의 원자력사업의 일환으로 수행되었으며, 연구비 지원에 깊은 감사를 드립니다.

4. 참고문헌

- 1) R. W. Peters, Chelant extraction of heavy metals from contaminated soils, *J. Hazardous Materials*, **66**, 151 (1999).
- 2) H. J. Won, G. N. Kim, W. K. Choi, C. H. Jung and W. Z. Oh, Decontamination of soil from the research reactor site, *Proc. Kor. Nucl. Soci. Spring Meeting*, 319, Kwangju, Korea,(2002).
- 3) Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Literature review of dilute decontamination processes for water cooled nuclear reactors, Research report NP-1033, 62, Richland, Washington 99352 (1979).
- 4) J. Kragten, Atlas of metal ligand equilibria in aqueous solution, 23, Ellis Horwood Ltd., Sussex, England (1978).
- 5) H. S. Kwon, H. J. Won, G. H. Lee, B. J. Lee and W. Z. Oh, Decontamination efficiency of EDTA on soil contaminated with Co^{2+} ion, *J. Korea Solid Wastes Engineering Society*, **16**, 239 (1999).

연구로 해체 DB User Interface 설계

Design of User Interface on Decommissioning DB

박희성, 정관성, 이근우, 백삼태, 이규일, 박진호
한국원자력연구소

요 약

연구로 해체 DB 구현과 관련하여 자료 입력의 편리성과 해체 정보 추출의 용이성을 제공하기 위해 User interface를 설계하였다. 연구로 시설을 대상으로 해체가 이뤄지는 특성을 고려하여 시설코드를 중심으로 해체 자료의 입력과 해체정보의 조회 및 출력이 수행되도록 하였으며, 또한 시설별로 최하위 해체 대상물의 추적이 가능하도록 Explorer 기능을 부여하였다. 해체 자료 입력 화면과 조회 및 출력 화면 설계에 이어 해체 전 원형의 모습부터 변형된 원형의 모습까지 해체 전 과정을 동영상과 그림으로 보여주기 위해 Multimedia 자료구조를 추가하였다. 향후에는 해체 DB와 User Interface에 공학적인 개념을 도입하여 해체 정보를 분석하고 평가할 수 있는 기능을 부여할 예정이다.

Abstract

It has been designed GUI(graphic user interface) to consult the convenience of a input data and the flexibility that can be retrieved dismantling information relation to decommissioning DB of KRR1&2. The GUI can proceed an input materials and a search and output of a saved data in server based on a facility code and also have a function of explorer which can find the lower dismantling objects in each facilities. It has added the structure of the multimedia that could be showed a series of dismantling activities with a Mpeg and pictures into the GUI. In the future work, Decommissioning DB and User Interface are intend to contribute a functions that could be evaluate and analyze for a dismantling activities with a engineering theory.

1. 서론

한국원자력연구소는 1997년 1월 TRIGA 연구로 폐로 사업을 착수하여 1998년 1월부터 제염 해체 설계 업무를 수행하고 있다¹⁾. 해체 기술 개발을 목표로 한 연구로 해체 데이터베이스 및 해체 공정 전산모사 중장기 연구 과제가 2001년 8월부터 시작되었다. 1 단계 연구 목표인 개념적 모델링 연구가 수행되면서 해체 데이터베이스 설계의 기초가 되는 해체 정보전략계획(ISP: Information Strategy Planning)이 사용자 요구 사항 분석과 해체 데이터베이스 범위 설정 및 해체 정보 분류

체계 등에 대하여 연구가 진행되었다²⁾. 1 단계 연구 결과를 토대로 해체 DB 시스템의 프로토타입 구현을 위하여 해체 자료들에 대한 입·출력 및 정보 평가 시스템을 설계하였고, 해체 데이터베이스 구조 설계 및 최적화를 수행하였으며, 해체 DB Prototype을 완료하였다³⁾. 본 논문에서는 Prototyping 한 결과를 기초로 하여 설계된 User Interface 내용을 설명한다. Graphic User Interface 설계는 수백 개에서 수천 개에 달하는 여러 유형의 데이터들을 중복됨이 없이 체계적으로 자료를 입력함과 동시에 server에 저장된 데이터들을 쉽게 접근하여 빠르게 원하는 정보를 확인 시킬 수 있는 용이성과 편리성을 최대한 보장하는데 있으며, 또한 저장된 데이터들을 단순히 보여주는 차원에서 관련된 데이터들을 조합하여 해체 정보를 분석하고 평가할 수 있는 기능을 제공하는데 그 목적이 있다. 해체 DB에 적용된 User Interface는 자료관리를 주 목적으로 하면서 공학적인 개념을 도입하여 해체 정보들을 평가할 수 있는 기능을 부여할 예정이다.

2. 해체 자료 User Interface 설계

사용자의 편의성과 보안성을 위하여 Client/Server 환경을 선택하였으며, 최소한의 접근으로 원하는 정보를 빠르게 찾을 수 있도록 User Interface를 설계하였다. program 개발은 Microsoft Visual Basic을 사용하였으며, 시스템 운영 환경은 Microsoft Windows 2000 Server로 하였고, Microsoft SQL Server 2000을 DBMS로 사용하였다.

가. 해체 정보 Screen 구조 및 배열

1) Code 등록

연구로 해체 활동으로부터 발생하는 해체 정보는 연구로 시설과 그 시설 내 대상물들에 대한 기록이기 때문에 해체 정보 및 자료의 분류 체계 확립 과제에서 분류된 해체 시설물과 대상물들에 대한 코드를 가장 먼저 정의하도록 설계하였다. 시설에 대한 코드는 해체 데이터베이스의 근간을 이루기 때문에 DB 관리자만이 운영할 수 있도록 하였으며, 시설을 대표하는 그룹 코드 등록은 해체 DB Server내 해당 코드관리 테이블에서 이루어지도록 하였다. 등록된 코드값은 해체 대상물이 폐기물로 변환되기까지 이력을 나타내며, 해체 폐기물이 저장고에 입고되기까지의 이력은 폐기물 번호 값이 대체하게 된다.

2) Explorer 기능

해체 폐기물은 대단위 시설부터 최하위 단위 시설까지 예상치 못한 장소에서 방사능 오염원이 나타날 수 있는 특성을 가지고 있다. 수백개에서 수천개에 이르는 단위 해체 대상물을 쉽게 접근하여 원하는 해체 대상물에 대한 정보를 확인할 수 있도록 설계하였으며, 해체 활동으로부터 발생된 자료들을 입력 창을 통해 입력하게 되면 초도화면에 자동으로 표현되도록 하였다.

3) 개략정보

코드로 분류된 해체 시설물들의 항목들을 explorer 기능으로 표현된 tree에서 선택하게 되면 해체 시설정보, 해체 작업 및 작업자 정보, 방사선학적 정보 그리고 폐기물 정보를 통하여 해당 시설 및 대상물을 해체하기 전부터 해체 후까지의 모든 자료들을 총체적으로 볼 수 있도록 설계하였다.

4) 구조도

해체 시설물의 위치를 확인시켜주기 위해 Tree 형태에서 해당 시설물을 선택하면 도면상에 위치가 나타나도록 설계하였다.

5) 동영상

해체 작업현장에서 해체활동을 촬영한 영상 정보와 3D Simulation으로 만들어진 *.avi 또는 *.mpeg 자료들을 보여주므로써 해체 과정과 절차를 쉽게 이해할 수 있도록 화면을 구성하였다.

나. 입력 및 출력 screen 설계

1) 해체 정보 입력 화면

해체 입력 screen은 해체 인력 정보, 기관 정보, 해체 장비 정보, 해체 용기 정보, 해체 작업 정보, 연구로 해체 활동으로부터 발생하는 자료는 해체 시설과 대상물에 대한 오염검사 및 제염과 이로부터 생성되는 폐기물로 분류되는 특징을 가지고 있기 때문에 대부분의 자료는 방사선학적 정보와 폐기물 정보가 주를 이룬다. 본 논문에서는 여러 형태의 자료가 만들어지는 방사선학적 정보와 폐기물 정보에 대한 User Interface에 대하여 설명하고자 한다.

가) 방사선학적 정보

방사선학적 정보는 크게 해체 작업전과 후 오염검사로 구분되며, 하나의 대상물에 대한 오염검사 데이터는 수십개의 오염원을 측정하기 위한 포인터를 갖는다. 이와같은 특징을 해결하기 위해서 작업전과 후의 MDA 자료를 입력할 수 있는 screen을 독립적으로 구성하였으며, 다수의 오염검사 데이터를 저장할 수 있는 screen을 동시에 설계하였다.

나) 폐기물 정보

연구로 시설 및 대상물을 해체 하는 순간 변환되는 해체 폐기물은 시설코드에서 새로운 형태의 폐기물 번호를 갖도록 하여 해체 후 대상물의 이력을 추적할 수 있도록 하였다. 폐기물에 대한 오염 및 제염 검사를 대비하여 폐기물 방사선학적 정보 screen을 만들었으며, 여러차례 반복되는 제염의 경우는 폐기물 핵종 정보 screen에 해당 자료를 입력할 수 있도록 설계하였다.

2) 해체 정보 출력 화면

해체 데이터베이스 시스템에서 보여주고자 하는 조회 및 출력 내용은 해체작업 활동에 소요되는 해체 작업내용, 투입되는 인력, 작업자 피폭량 그리고 장비 내역으로써 시설별 해체활동 작업내용은 방사선측정/분석, 작업안전관리, 준비작업, 제염활동, 폐기물관리 등으로 분류하여 조회할 수 있고, 해체활동 투입 인력은 작업분야별과 직종별로 구분하여 이들에 대하여 월간/년간/해체대상 별로 조회할 수 있도록 설계하였다. 정기적인 방사선/능 검사 결과에 대해서는 월간/주간 표면오염도, 공간방사선량률, 공기오염도, 그리고 방사능농도(평균, 최대치) 등을 조회할 수 있으며, 해체 작업에서 발생하는 폐기물과 관련해서는 해체 폐기물 종류 및 구분별 월별/분기별/년간 발생량, 해체 폐기물 시설별 발생량, 고체폐기물 처리 현황, 발생 특성 그리고 제염 현황, 액체폐기물 처리 현황, 발생 특성, 액체 농축폐기물 현황, 폐기물 저장 현황 그리고 반출 폐기물 현황을 조회할 수 있도록 하였다.

다. Multimedia 자료 설계

해체 활동에서 만들어지는 자료에는 오염 및 제염 결과를 나타내는 수치 데이터와 일반 text 데이터, 캠코더로 만들어진 영상자료와 디지털카메라로 찍은 jpg 파일 및 설계 도면들이 있다. 오염검사와 제염활동을 담은 영상 및 jpg 자료들은 수치적으로 표현할 수 없는 영역을 표현할 수 있기 때문에 중요한 해체 정보로써 가치가 있다. 또한 이들 자료들은 연구로 해체 활동에 대한 교육 및 홍보 자료로 활용할 수 있기 때문에 이들에 대한 정보를 해체 DB에서 관리할 수 있도록 자료 구조를 설계하였다.

3. 결과 및 검토

가. 해체 정보 초도 화면

연구로 2호기 부속시설 내 동위원소 생산실 중 132실험실의 위치를 확인하고자 할 때 왼쪽 explorer에서 132실험실을 선택하면 오른쪽 그림에서와 같이 파란색으로 위치를 표시해준다. 또한 실험실 132호를 해체했을 때 발생된 해체 작업정보, 방사선학적 정보 및 폐기물정보에 대한 개략정보와 동영상을 보기를 원한다면 개략정보 탭과 동영상 탭을 선택하면 해당 정보를 확인할 수 있다.

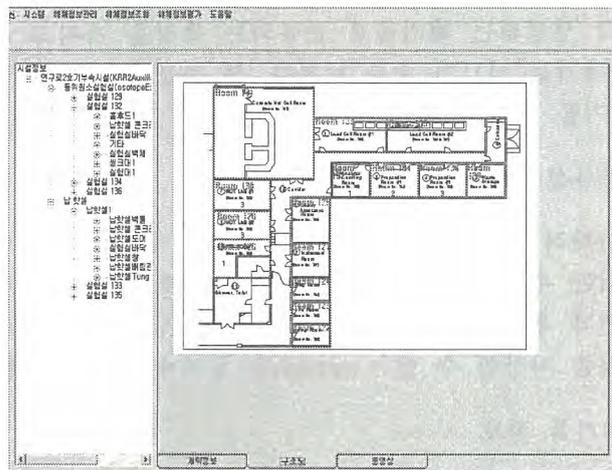


그림 1. 해체 DB Explorer와 구조도 screen

나. 입력 및 출력 screen 설계

그림 2는 연구로 2호기 부속시설내 납핫셀 8번 room을 해체하면서 오염된 핫셀내 바닥에 대한 작업전과 후의 입력된 오염검사 결과를 보여주고 있다. 그림에서 오른쪽에 위치한 command와 list들을 통해 데이터가 입력되며, list를 보면 입력된 결과가 올바르게 처리되었는지를 확인할 수가 있다. 해체된 시설들의 데이터들이 입력되면 왼쪽에 있는 Explorer를 통하여 언제든지 원하는 시설의 제염 및 오염 결과를 확인할 수 있고 또한 새로 발생한 해체 데이터를 입력할 수가 있다.

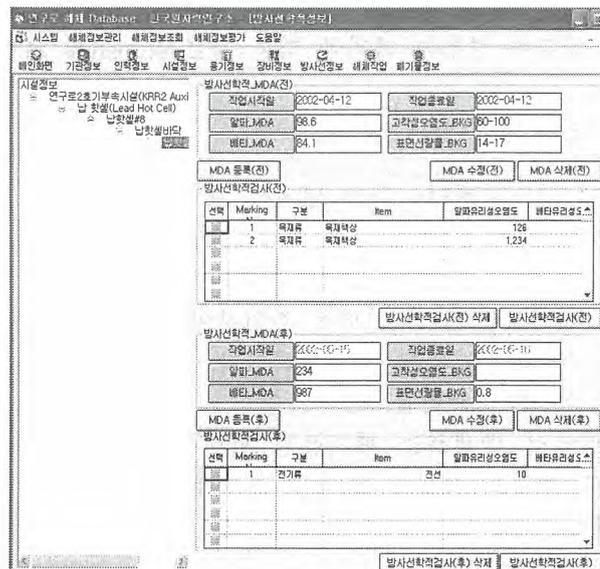


그림 2. 방사선학적 정보 입력 screen

그림 3은 납 핫셀 8번 room을 해체한 후 발생된 폐기물 정보를 입력할 수 있는 screen을

보여주고 있다. 폐기물 정보는 고유의 폐기물 번호를 가지고 있어 이 정보에 대한 상세한 데이터를 관리하도록 하였다. 그림에서와 같이 0000 폐기물 번호를 갖는 폐기물은 0000 와 같이 방사선/능 정보를 가지고 있으며, 오염된 부위를 제염한 결과 3차에 걸쳐 제염을 실시하였고, 그 때 발생한 핵종과 농도값은 0000 이라는 사실을 확인할 수 있다. 설계된 조회 출력 항목 중 해체 작업 정보로부터 조회된 직종별 월별 투입 인력 분포도를 그림 4에 나타내었다. 연구로 해체 활동은 방사선안전관리, 폐기물 관리, 일반 작업관리 그리고 품질 관리로 구분되며, 각 그룹별 직종은 10개로 나누어진다. 이 중에서 중급 기술자가 가장 많이 투입된 것을 알 수 있다.

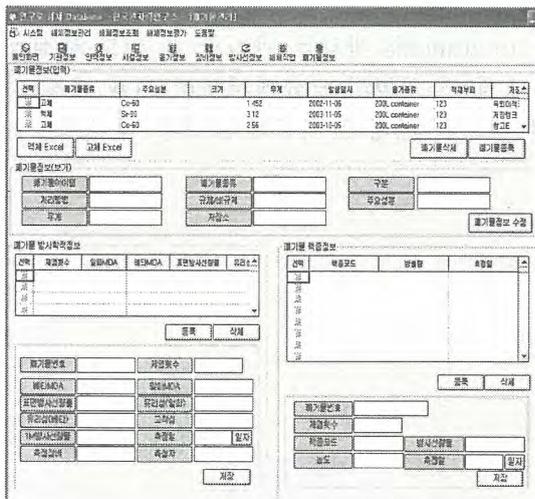


그림 3. 해체 폐기물 정보 입력 screen

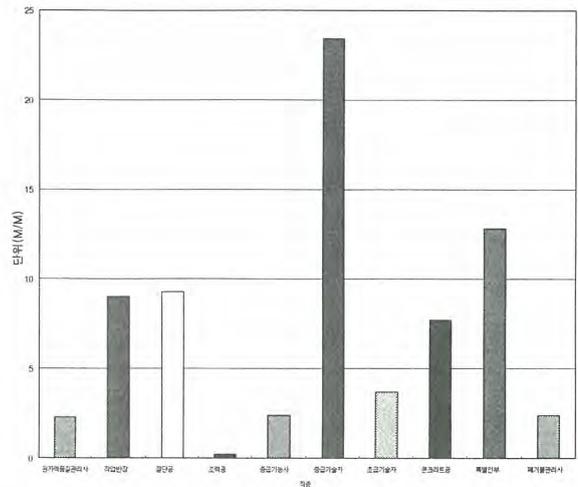


그림 4. 직종별 투입 인력 분포도(월별)
Mu Itimedia 자료 설계

오른쪽 그림은 연구로 2호기 부속시설 내 납 핫셀 8번 room 하단 남쪽벽에 대한 방사선/능 정보를 구체적으로 보여주고 있다. 그림에서와 같이 해체 전 원형의 모습에서부터 해체 후의 변형된 모습까지 전 과정을 사진과 도면 그리고 동영상 자료를 이용하여 보여줌으로써 한 시설의 해체 이력을 총체적으로 이해할 수 있으며, 예제의 경우와 같이 3차에 걸친 제염의 효과와 농도 값을 정확히 확인할 수 있으므로 사용된 제염제의 성능과 효과를 상세히 분석할 수 있는 장점을 보여주고 있다. 현재는 방사선/능 정보만을 예제로 보여주고 있지만, 해체 작업 및 작업자 정보와 폐기물 정보 역시 같은 패턴으로 설계하여 결과에 대한 원인을 규명하고 분석할 수 있도록 할 예정이다.

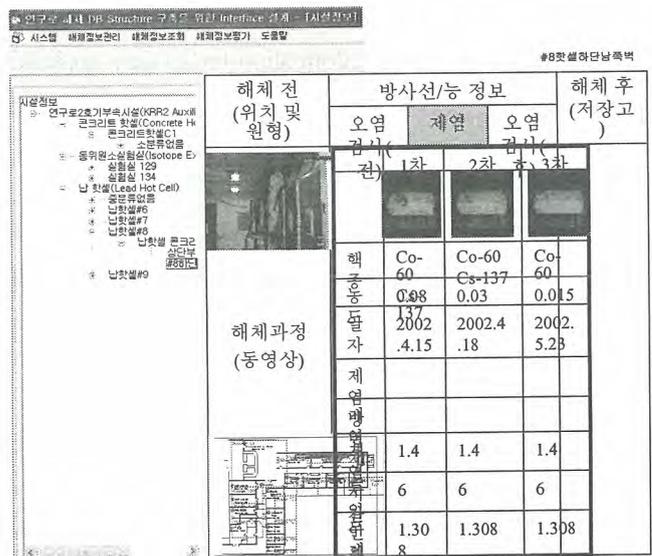


그림 5. Multimedia 자료를 활용한 해체 정보

4. 결 론

연구로 해체 DB Structure 구현을 위한 User Interface를 설계하였다. Graphic User Interface설계를 하는 목적은 일반 사용자로 하여금 원하는 정보를 신속하고 정확하게 확인할 수 있도록 편리성을 제공하는데 있다. 이러한 목적을 만족시키기 위해 시설코드 체계를 중심으로 한 screen을 설계하여 해체활동으로부터 발생된 해체 시설 내 최 하위 단위 대상물에 대한 자료 즉, 시설정보, 해체 작업정보, 방사선/능 정보 그리고 폐기물 정보들을 쉽게 볼 수 있도록 하였다. 입력 screen은 자료의 보안성을 유지하기 위해 담당자만이 해체 자료를 입력하도록 하였으며, 해체 DB Server table에 저장된 데이터들은 해체 조회 및 출력 screen을 통하여 원하는 정보를 찾을 수 있다. 해체 DB Structure에는 해체 활동에서 만들어진 영상자료 및 사진 자료등과 같은 multimedia 자료를 관리할 수 있도록 설계하였다. Multimedia 자료를 활용함으로써 연구로 시설의 해체 전 원형의 모습에서부터 해체 과정을 거쳐 변형된 해체 폐기물의 모습과 최종적으로 저장고에 입고된 변형된 시설의 모습을 보여줌으로써 해체 활동의 전 과정을 쉽게 이해할 수 있다.

감 사

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었음.

참 고 문 헌

1. 정기정 외., "연구로 1호기 및 2호기 폐로사업 해체 계획서" ,
KAERI/TR-1654/2000
2. 박희성 외., "연구로 1&2호기 해체 정보 분류 체계 및 개념적 모델링", proceedings
of the korea society of information technology applications, pp 85-86, May, 2002
3. 박희성 외., "연구로 해체 자료 구조 설계", proceedings
of the korea society of information technology applications, pp 388, May, 2003

제4분과(E)

방사성폐기물 정책 및 시설해체(Poster)

빈 면

Electrochemical Decontamination of Metallic Wastes Contaminated with Uranium Compounds in a Neutral Salt Electrolyte

W. K. Choi, Y. M. Yang, C. H. Jung, H. J. Won, W. Z. Oh, and J. H. Park
Korea Atomic Energy Research Institute

Abstract

Electrochemical decontamination process has been applied for recycle or self disposal with authorization of large amount of metallic wastes contaminated with uranium compounds such as UO_2 , ammonium uranyl carbonate (AUC), ammonium di-uranate (ADU), and uranyl nitrate (UN) with tributylphosphate (TBP) and dodecane, which are generated by dismantling the contaminated system components and equipment of a retired uranium conversion plant in Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI). Electrochemical decontamination for metallic wastes contaminated with uranium compounds was evaluated through the experiments on the electrolytic dissolution of stainless steel as the material of the system components in neutral salt electrolytes. The effects of type of neutral salt as the electrolyte, current density, and concentration of electrolyte on the dissolution of the materials were evaluated. Decontamination performance tests using the specimens taken from a uranium conversion plant were quite successful with the application electrochemical decontamination conditions obtained through the basic studies on the electrolytic dissolution of structural material of the system components.

I. INTRODUCTION

In Korea, there is a retired uranium conversion plant, in which a large number of the internal components and equipments will be completely removed and the concrete building itself will be reused through the national project of environmental restoration of the uranium conversion plant at KAERI.

The main internal process components in the uranium conversion plant are listed in Table 1 together with used and/or treated chemical compounds, process temperature, and system materials. It can be seen that there are both particulate contaminants such as U_3O_8 , UO_2 , AUC, ADU, *etc.* and liquid phase contaminants such as uranyl nitrate and organic compounds (TBP, dodecane) on the surface of the system components such as the dissolver, rotary drum filters, pulse columns, evaporator, precipitators, fluidized bed reactors, pumps, piping, valves, *etc.*

During the course of dismantling the contaminated system components and equipment, a lot of uranium contaminated metallic wastes will be generated, so that the effective waste management strategy is required. Decontamination is one of the technologies that promotes workers' safety and reduces the amount of radioactive waste in the decommissioning of the uranium conversion plant.

Table 1. Main process equipments in uranium conversion facility.

main process	detailed process	process condition*	process equipment	structural materials
ADU process	dissolution, filtration	U ₃ O ₈ , HNO ₃ , ~95 °C	dissolver, tanks, pumps, rotary drum filters	stainless steel
	purification (solvent extraction)	UN, HNO ₃ , TBP, Dodecane, ~60 °C	pulse columns, tanks, pumps	stainless steel
	ADU purification	UN, ADU, NH ₃ , ~90 °C	rotary kilns	stainless steel
	ADU calcination/reduction	ADU, UO ₃ , UO ₂ , 40kg-U/hr, ~650 °C	rotary kilns	Inconel
	UF ₄ conversion	UO ₂ , HF, UF ₄ , ~600 °C	Rotary Kiln	Inconel
	waste treatment	NO _x , NH ₃ NO ₃ , NaOH, Ca(OH) ₂ , ~60 °C	Scrubber, tanks, pumps	stainless steel
AUC process	evaporation	UN, HNO ₃ , ~100 °C	evaporator, pumps	stainless steel
	precipitation/filtration	UN, NH ₃ , CO ₂ , MeOH, AUC, ~80 °C	precipitator, pumps, rotary filters	stainless steel
	calcination/reduction/blending	AUC, UO ₃ , UO ₂ , ~650 °C	fluidized bed reactors, pumps, mixers	stainless steel
	waste treatment	AUC, NH ₃ , ~90 °C	precipitator, tanks, pumps	stainless steel

In the uranium conversion plant at KAERI, concentrated nitric acid was used in the dissolution of uranium compounds including U₃O₈, and the processes including the filtration of impurities and the extraction for purifying uranium were contacted with a nitric acid media containing uranium during the course of the operation. Liquid wastes, which exist currently in the sludge form saturated inorganic salts such as NH₄NO₃, NaNO₃, Ca(NO₂)₂, *etc.*, generated from the plant during operation have been stored in lagoons. With consideration of the compatibility with lagoon wastes, it was evaluated that the chemical decontamination using nitric acid and the electrochemical decontamination in neutral salt electrolyte containing nitrate anion are desirable for application to system components in contact with nitric acid solutions, which are applicable to the system components for recycle or self disposal with authorization of a large amount of metallic waste generated from the decommissioning of the plant at KAERI.

In this study, the applicability of a neutral salt electrolyte solution to the electrochemical decontamination of metallic wastes contaminated with uranium compounds was evaluated through the electrolytic dissolution of stainless steel as the main material of the system components in a neutral salt electrolyte. The electrochemical decontamination performance tests using UO₂, AUC and ADU contaminated specimens taken from the uranium conversion plant were also conducted.

II. EXPERIMENTAL

II.A. Electrolytic Dissolution of Structural Materials

The experiment on electrolytic dissolution of SUS-304 specimen was carried out in a conventional three-electrode electrolysis cell under a constant current using potentiostat/galvanostat (JS-P500, Ji Sang Electric Co.). The platinum foil was used as a counter electrode. All electrode potentials were measured with respect to a Ag/AgCl with saturated KCl. The effects of type of neutral salt as the electrolyte, current density, concentration of electrolyte, and electrolysis time on the electrolytic dissolution were evaluated by measuring the weight losses of the specimens and by examining the optical microscopic images of the specimen surfaces before and after electrolytic dissolution.

II.B. Decontamination Performance Tests

The specimens contaminated with UO_2 , AUC and ADU were prepared to verify an electrochemical decontamination performance in a neutral salt electrolyte. Decontamination efficiencies were evaluated by measuring the gross alpha and beta radioactivity (Tennelec TM Series 5 XLB, Canberra) of the specimens before and after decontamination. SEM images were examined to compare the surface morphology of the specimen before decontamination with that after decontamination.

III. RESULTS AND DISCUSSION

III.A. Electrolytic Dissolution of Structural Materials

In order to choose the adequate electrolyte in electrochemical decontamination of metallic wastes contaminated with uranium compounds generated from a retired uranium conversion plant, the electrolytic dissolution of SUS-304 specimen was carried out in various neutral salt electrolytes under a current density of 50 mA/cm^2 for 1 hour. The weight losses of the specimens after one-hour experiment were given in Fig. 1.

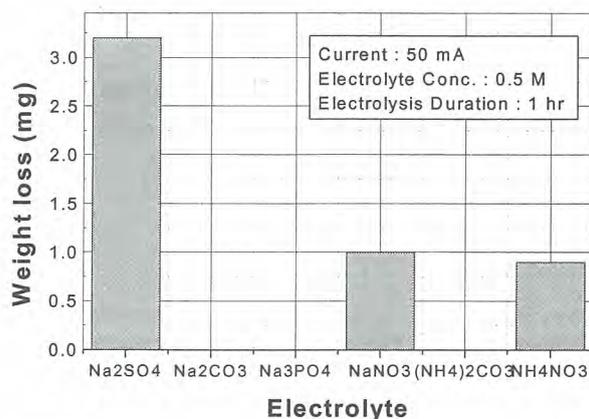


Fig. 1. Electrolytic dissolution characteristics of SUS-304 specimen in neutral salt electrolytes.

The weight loss of SUS-304 was maximized in Na_2SO_4 electrolyte, which means that the electrochemical decontamination in Na_2SO_4 electrolyte can be performed more effectively than that in any other neutral electrolytes. On the other hand, the weight loss of SUS-304 in NaNO_3 electrolyte corresponded to 30% of that in Na_2SO_4 electrolyte, while no electrolytic dissolution occurred in any other neutral electrolytes. In this study, a NaNO_3 neutral salt solution was selected as an electrolyte for the electrochemical decontamination of metallic wastes with the consideration on the surface of system components contacted with nitric and the compatibility with lagoon wastes generated during the plant operation.

In 0.5 M NaNO_3 neutral salt electrolyte, the effect of current density on the electrolytic dissolution of SUS-304 specimen was investigated with variation of current density under the same in cumulative coulombs by controlling electrolysis time. The results are shown in Fig. 2.

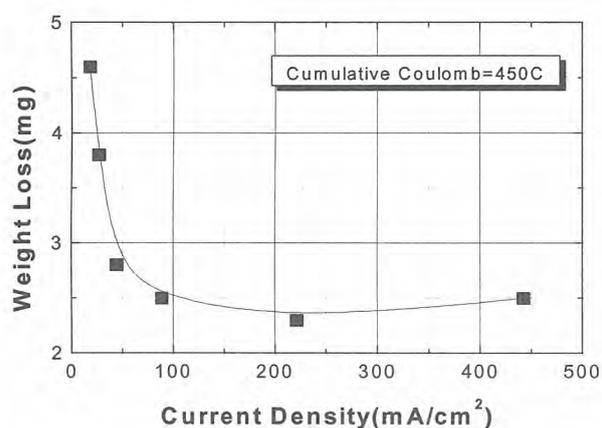


Fig. 2. Effect of current density on the electrolytic dissolution of SUS-304 in 0.5 M NaNO_3 solution.

The weight loss of SUS-304 decreased with increase in the current density lower than 100 mA/cm^2 . Above the current density of 100 mA/cm^2 , the weight losses were maintained constantly irrespective of increase in the current density. The current efficiency on the electrochemical decontamination increases with decrease in the current density, but required decontamination time increases as well. With the considerations on the decontamination time and the current efficiency, it is evaluated that the electrochemical decontamination is more effective in the current density more than 50 mA/cm^2 .

In order to investigate the effect of NaNO_3 concentration, the electrolytic dissolution of SUS-304 specimen was carried out under the application of 100 mA for 1 hour. The results are given in Fig. 3.

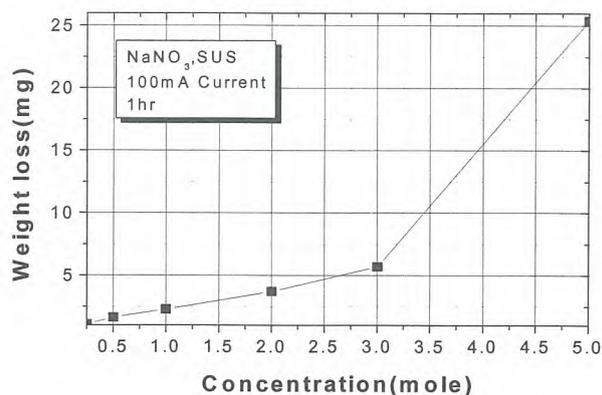


Fig. 3. Effect of NaNO₃ concentration on the electrolytic dissolution of SUS-304.

The weight loss of SUS-304 increased slowly with increase in NaNO₃ concentration lower than 3 M, while the weight loss increases rapidly above 3 M. With the consideration on the weight loss itself, it is expected that adopting concentrated NaNO₃ electrolyte will shorten the decontamination time. The surface irregularity after electrolytic dissolution, which is attributed to pitting, however, increases with increasing NaNO₃ concentration as shown in Fig. 4. The localized dissolution does not give a good decontamination effect although the weight loss is enhanced in comparison with that by uniform dissolution and moreover causes recontamination during the course of decontamination. Therefore, it is judged that NaNO₃ concentration below 1 M is suitable for electrochemical decontamination of contaminated surface of SUS-304.

III.B. Electrochemical Decontamination of Uranium Contaminated Metallic Wastes

The electrochemical decontamination tests for the specimen contaminated with uranium compounds taken from the uranium conversion plant were performed in NaNO₃ electrolyte with variation of decontamination time under the current density of 100 mA/cm². The removal behavior of alpha and beta radioactivity with variation of decontamination time is given in Fig. 5 and Fig. 6.

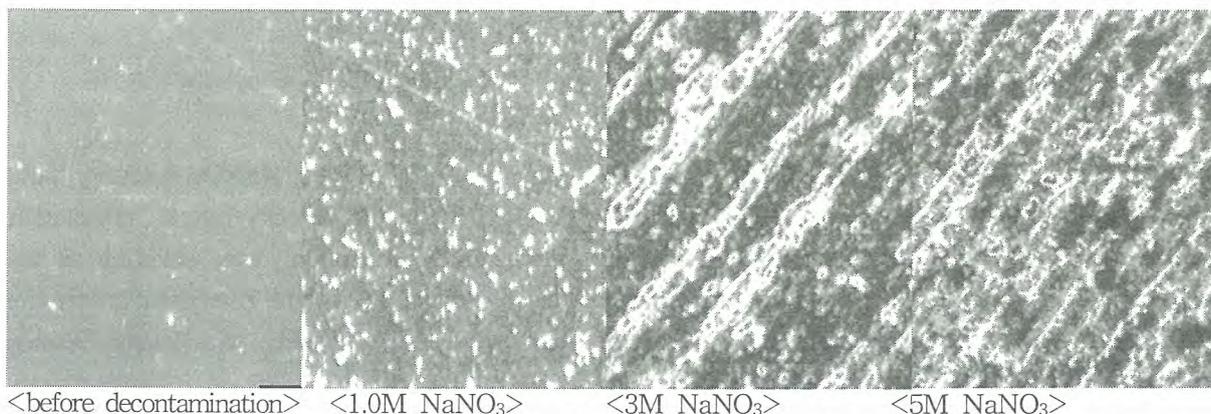


Fig. 4. Optical microscopic images of SUS-304 specimen surface before and after electrolytic dissolution with the variation NaNO₃ concentration.

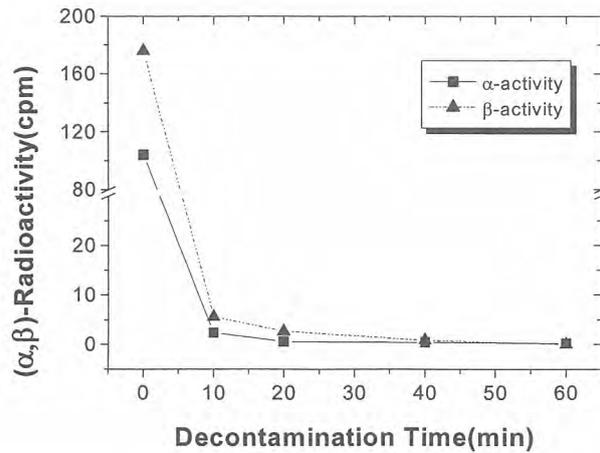


Fig. 5. Electrochemical decontamination behavior of UO₂ contaminated metallic waste.

The alpha and beta radioactivity decreases rapidly with increase in the decontamination time, and it is verified that the electrochemical decontamination of the metallic wastes contaminated uranium compounds was quite successful in a NaNO₃ neutral salt electrolyte by reducing alpha and beta radioactivities below the criteria of self-disposal within 10 minutes regardless of the type of contaminants and the degree of contamination.

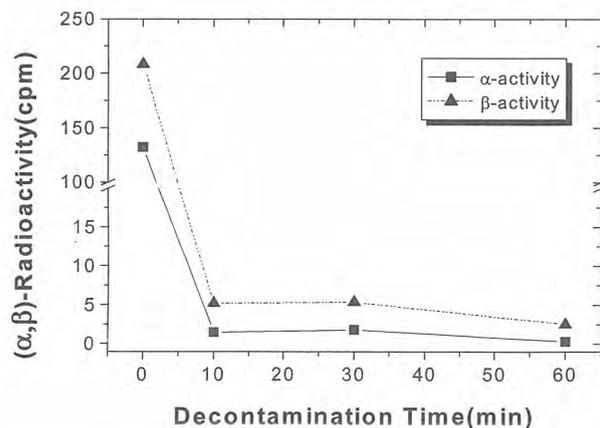


Fig. 6. Electrochemical decontamination behavior of AUC contaminated metallic waste.

IV.CONCLUSIONS

Electrolytic dissolution effectiveness for SUS-304 was the best with a Na₂SO₄ solution, but a NaNO₃ neutral salt solution, in which about 30% for SUS-304 in electrolytic dissolution performance was shown in comparison with that in a Na₂SO₄ solution, was selected as an electrolyte for the electrochemical decontamination of metallic wastes with the consideration on the surface of system components contacted with nitric acid and the compatibility with lagoon wastes generated during the facility operation.

The electrochemical decontamination of the metallic wastes contaminated uranium compounds was quite successful in a NaNO₃ neutral salt electrolyte by reducing alpha and

beta radioactivities below the criteria of self-disposal within 10 minutes regardless of the type of contaminants and the degree of contamination.

ACKNOWLEDGEMENTS

This work has been carried out under the Nuclear R&D Program funded by the Ministry of Science and Technology.

REFERENCES

1. Y. D. Choi, *et al.*, "Decommissioning of Uranium Conversion Plant", in Proceedings of Korea Nuclear Society, 2001 Fall Meeting, Kyung Hee Univ., Suwon, Korea (2001).
2. W. Z. Oh, W. K. Choi, and C. H. Jung, "Studies on Decontamination for Uranium Conversion Plant Decommissioning", in Proceedings of the 1st International Symposium on Supercritical Fluid Technology for Energy and Environment Applications, Kyung Hee Univ., Suwon, Korea (2002).

동전기적방법을 이용한 방사능오염토양 내의 세슘 제거

Cesium Removal from Soil Contaminated with Radioactivity Using Electrokinetic Method

*김 계남 · 원 휘준 · 김 민길 · 박 진호 · 오 원진
한국원자력연구소

요 약

H₂SO₄과 citric acid은 다른 화학물질 보다 토양으로부터 ¹³⁷Cs의 추출효율이 높았다. 오래 저장된 방사능오염 토양으로부터 ¹³⁷Cs의 제거효율을 높이기 위해 동전기방법에 의한 토양복원 실험 시 H₂SO₄과 citric acid를 첨가제로 사용했다. 실험 컬럼으로부터 방출된 방출수의 평균속도는 2.0x10⁻²cm/min이고, 10일 동안 방출된 토양폐액의 부피는 3.6 Pore Volume이다. 10일간 컬럼 내의 ¹³⁷Cs의 제거효율이 54%이었다. 한편, 개발된 모델에 의해 계산된 잔류농도 예측 값은 실험으로부터 구한 결과와 거의 일치했다.

Abstract

H₂SO₄ and citric acid had higher extraction efficiency of ¹³⁷Cs from soil than the other chemicals. Thus, H₂SO₄ and citric acid were used as additives on remediation experiment by electrokinetic method to increase removal efficiency of ¹³⁷Cs from the radioactive soil being stored during a long time. An average velocity of effluent discharged from experimental column 2.0x10⁻²cm/min and a volume of the discharged soil wastewater for 10 days is 3.6 Pore Volume. The 54% of a total of ¹³⁷Cs in the column was decontaminated for 10 days. Furthermore, the predicted values of residual concentration by the developed model were quite similar to those obtained from experiments.

I. 서 론

한국원자력연구소는 TRIGA 연구용원자로 주변에서 1988년에 수거해온 방사성 오염토양 4500 여 드럼을 보관해오고 있고 토양입경 0.063mm 이상의 굵은 토양은 Soil Washing으로 복원하고, 0.063 mm 이하의 미세 토양은 동전기적방법으로 복원할 계획이다. 동전기적방법을 사용할 때, 음극쪽 부근의 pH가 상승되어 토양내의 중금속과 수산화침전물이 발생하여 오염물질 제거효율이 감소되었다. 그러므로 Li 등은 이 금속침전물의 형성을 방지하기 위하여 KNO₃용액을 주입하거나 초산용액 및 HCl을 음극저류조에 첨가했다. 그러나 세슘과 코발트로 오염된 방사능오염토양을 초산을 첨가하며 동전기적방법으로 복원하였을 때 세슘의 제거효율은 코발트에 비해 상당히 작았다. 이것은 세슘의

흡착계수 가 크고 Aging 효과 때문에 토양으로부터 세슘이 잘 추출되지 않기 때문으로 사료된다. 그러므로 본 논문에서는 동전기적 복원장치를 제작하고 복원실험을 통해 방사능오염토양으로부터 세슘을 제거하는 방법을 모색했다. 먼저 복원효율을 높이기 위해 여러 종류의 화학용액을 방사능토양과 혼합한 후 Scrubbing 실험을 통해 세슘을 최대로 추출할 수 있는 화학제를 선정했다. 선정된 화학제를 미세오염토양과 혼합한 후 토양컬럼에 주입하고 동전기적실험을 수행하여 세슘의 제거효율을 분석하고 이때의 최적실험조건을 도출했다. 또한, 이 동전기적 토양복원을 모델링하기 위해 새로운 수치모델을 개발하고 모델값과 복원실험값을 비교하여 개발한 수치모델을 검증했다.

II. 토양 복원 실험

1. 입력 파라미터 측정

모델링에 필요한 입력 파라미터는 다음과 같다. 토양의 가밀도(ρ_b)는 샘플의 건조 질량을 토양 입자 부피로 나누어 준 값이다. 공극률은 식 $1 - (\rho_b/\rho_s)$ 로 구했다. 여기서 ρ_s 는 샘플의 건조 질량을 샘플의 현장부피로 나누어 준 값이다. 함수비(θ)는 샘플의 물부피(V_w)를 전체부피(V_T)로 나누어 구했다. 오염되지 않은 TRIGA 연구용원자로 주변 토양을 샘플링하고 체 분리하여 입경 0.063mm이하의 토양에 대한 평형흡착계수(Kd)를 측정했다. 입경 0.063mm이하 토양을 0.01M의 Cs^+ 용액으로 포화시켜 3일 동안 교반기에 넣어 평형에 도달하도록 교반시킨 후 포화 토양을 10g 취하여 원심분리기에 넣고 약 15분간 가동시켜 공극용액을 토양과 분리시키고 상등액을 취하여 Atomic Absorption Spectrometer로 농도를 측정하였다. 측정된 Cs^+ 에 대한 평형흡착계수는 8.1 l/kg으로 나타났다. TRIGA 토양의 성분은 독일 Siemens에서 제조한 SRS-303 XRF(X-ray fluorescence)를 사용하여 토양성분을 분석하였다. 이때, 토양시료는 지름이 4cm 높이가 5cm 되는 용기에 넣었고, 이 용기 밑 부분의 X-ray 닿는 부분은 X-ray 투과용 막으로 구성되어 있다. 원자력시설 주변 부지에서 채취한 토양을 분석한 결과 토양의 원소성분은 68.1%의 SiO_2 와 16.7%의 Al_2O_3 를 포함한다.

2. 최적추출제 선정 실험

방사능 오염토양을 체 분리하여 입경 0.063-1.0mm 토양을 20g씩 채취하여, 각각의 플라스틱 용기에 넣은 후 0.5 농도를 가진 H_2O , Citric Acid, Citric Acid+ HNO_3 , NH_4NO_3 , $FeCl_3$, $(COOK)_2.H_2O$, $(NH_4)_2SO_4$, 옥살산($H_2C_2O_4.H_2O$, NaOH, Na_3PO_4 , HCl, H_2SO_4 +Citric Acid 등의 추출 용액 200 ml를 이들 각각의 플라스틱 용기에 첨가하고 이 용기를 Scrubber에 장착하여 4시간 동안 Scrubbing 시킨 후 이들 토양혼합물 내의 추출용액을 제거하고 남겨진 토양을 건조시킨 후 이 건조토양의 잔류 방사능 농도를 Multi Channel Analyzer(MCA)로 측정하여 초기방사능농도와 비교하여 각 추출용액에 의한 ^{137}Cs 과 ^{60}Co 제거효율을 계산 및 비교분석했다(Fig.1).. 추출 실험을 수행한 결과 H_2SO_4 +Citric Acid, $H_2C_2O_4.H_2O$, NaOH 용액에 의한 제거효율이 높게 나타났다. 특히 0.5M H_2SO_4 +0.05M Citric Acid용액으로 추출 시 ^{137}Cs 은 주로 H_2SO_4 에 의해 추출되고 ^{60}Co 코발트는 주로 Citric Acid에 의해 제거되는 것으로 나타났고 토양으로부터 ^{137}Cs 추출효율은 초산보다 상당히 높게 나타났다. 그러므로 본 연구에서는 첨가제로 주로 사용했던 초산 대신에 H_2SO_4 + Citric Acid용액을 사용했다. 즉, H_2SO_4 + Citric Acid용액을 방사능토양과 혼합하여 토양내의 세슘을 추출한 다음 이 토양을 동전기 복원하므로 제거효율을 높였다.

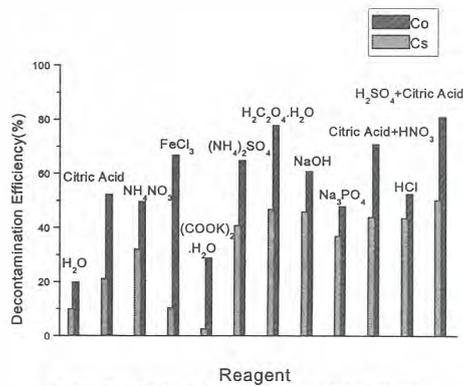


Fig. 1. Soil decontamination efficiency versus reagent

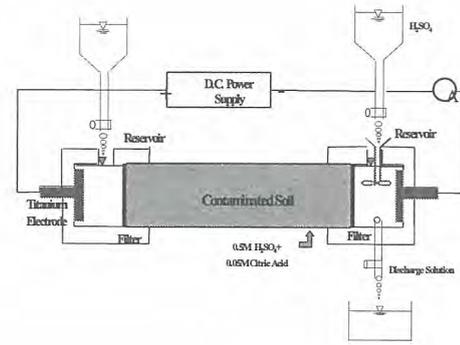


Fig.2. Apparatus for Electrokinetic Remediation

3. 동전기 실험

큰 용기에 입경 0.063mm 이하의 방사능 오염토양을 넣고 토양을 포화시키고 핵종을 토양으로부터 추출하기 위해 0.5 M H₂SO₄+ 0.05M Citric Acid용액을 혼합한 토양 샘플 150cm³을 만든다. 용기에 혼합된 포화토양내의 ¹³⁷Cs이 H₂SO₄+Citric Acid용액과 흡착 평형에 이르도록 용기를 밀폐하여 교반기에 넣고 3일간 교반시킨다. 교반 후 이 포화 토양을 토양복원장치 Column에 조금씩 다져 주입했다. 이때, 컬럼 내부에 틈새가 발생하지 않도록 충분히 다져주면서 서서히 포화토양을 주입했다. Fig. 2는 실험실 크기의 실험장치이다. 실린더 형태의 토양컬럼은 길이가 20.0 cm 이고, 직경은 2.8 cm이다. 토양컬럼 끝에는 여과지, 스텐레스 철망, 티타늄전극이 위치하는 구역이 설치하였다. 양쪽 전극에는 저류조가 위치한다. 토양컬럼의 부피가 123cm³이므로 컬럼을 채운 토양의 무게는 120g 이고, 토양을 포화시키기 위해 사용된 0.5 M H₂SO₄+ 0.05M Citric Acid용액 부피는 77ml 이었다. 이 토양컬럼의 한쪽은 양극에 다른 한쪽은 음극에 연결되어 있다. 토양컬럼에 전압경사를 주기 위해 양쪽전극에 100V의 전압을 가해주었고 전류는 약 10 mA를 나타냈다. 음극에서의 pH상승을 억제하기 위해 주기적으로 음극저류조에 H₂SO₄를 주입하였다. 또한 양극에서 음극으로 전기삼투에 의해 용액이 계속 유동하므로 양극 저류조 윗쪽에 구멍을 내어 증류수를 연속적으로 주입하여 양극저류조에 증류수가 가득 차도록 하였다. 그리고 음극 저류조 윗쪽 옆으로 구멍을 내어, 주기적으로 유출수의 유량을 측정하였다. 토양복원 실험은 약 10일간 수행했다. 복원실험 완료 후 컬럼 내의 토양을 5 등분하여 본 연구실에서 보유한 MCA를 Up-grade하여 자체적으로 잔류방사능농도를 분석했다. 토양복원 기간인 10일 동안 공극용액의 유동속도는 약간씩 감소했다. 음극의 pH상승을 억제하여 수산화침전물의 형성을 방지했다. 복원실험시간이 경과하며 유출수 내의 ¹³⁷Cs 농도는 점차 감소했고 방출된 유출수의 Pore Volume이 약 3.6이 되었을 때 복원실험을 중단했다.

III. 결과 및 고찰

복원 실험 전 측정된 토양컬럼 내의 황산 포화토양 pH는 3.0이었고 양쪽 저류조 내의 증류수의 pH는 7.0이었다. 그러나 복원실험이 시작되면서 양극에서 산소의 방출과 음극에서 수소의 방출로 인해 음극 저류조에서의 pH는 상승하기 시작했다. 음극에서의 pH 상승 시 다른 금속이온은 달리 세슘은 수산화이온과 침전을 형성하지 않지만 코발트 등 다른 금속이온들이 수산화침전물을 형성하므로 토양의 투수계수가 감소하여 토양복원효율을 저하시킨다. 그러므로, 음극에서의 pH 상승

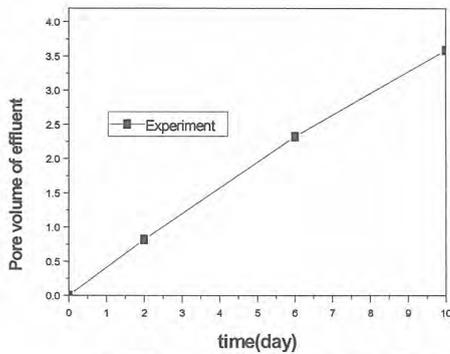


Fig. 3. Pore volume of effluent versus time

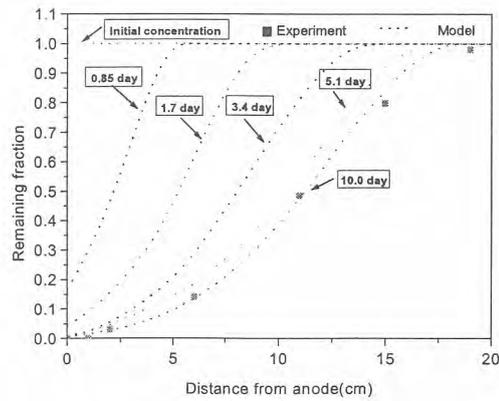


Fig. 4. Remaining fraction of cesium radioactive concentration

을 억제하기 위하여 H_2SO_4 를 주기적으로 주입하여 pH 상승을 5이하로 억제했다. 또한, 토양컬럼 음극쪽 끝으로 흘러나오는 유출수의 부피를 측정하여 전기삼투에 의한 공극용액의 유동속도를 계산한 결과는 Fig. 3과 같다. 토양복원 기간인 10일 동안 공극용액의 유동속도는 시간경과에 따라 약간씩 감소했다. 즉, 복원 시작후 2.0일까지는 평균 $2.2 \times 10^{-2} \text{cm/min}$ 이고, 2.0일부터 6.0일까지는 평균 $2.0 \times 10^{-2} \text{cm/min}$ 이고, 6.0일부터 10.0일까지는 평균 $1.7 \times 10^{-2} \text{cm/min}$ 이었다. 토양복원실험을 10일간 수행한 결과 음극저류조로 배출된 토양복원폐액의 부피는 3.6 Pore Volume이었다. 한편, 스웨덴의 Royal 연구소의 실험결과 공극용액 내의 세슘의 평균속도는 $6.0 \times 10^{-3} \text{cm/min}$ 이었다. 본 실험의 유동속도가 약간 빠른 것은 토양컬럼 양쪽전극에 좀더 높은 전압을 적용했기 때문인 것으로 사료된다. Fig. 4는 토양복원시간 경과에 따른 컬럼의 공극용액과 컬럼토양 내에 잔류한 총 세슘의 방사능농도를 나타낸다. 0.85 일 복원실험 후에는 토양컬럼 내의 초기 총농도의 12.1%가 복원되었고, 1.7 일 후에는 토양컬럼 내의 초기 총농도의 25.8%가 복원되었고, 3.4 일 후에는 토양컬럼 내의 초기 총농도의 39.1%가 복원되었고, 5.1일 후에는 토양컬럼 내의 초기 총농도의 50.0%가 복원되었고, 10.0일 후에는 53.7%가 복원되었다. 또한, 개발된 수치모델로 계산한 컬럼 내의 잔류농도에 대한 예측값과 복원실험 후 토양컬럼에 남은 잔류농도를 직접 측정한 실험값과 서로 상당히 일치하는 것으로 나타났다. 한편, 스웨덴의 Royal 연구소에서 세슘에 대한 복원실험 결과 10일 정도 경과 후 컬럼 내 세슘의 95%이상 복원되었다. 이 제거율의 차이는 세슘의 흡착평형계수가 크고, 본 방사능오염 토양이 약14년 동안의 저장으로 인한 Ageing 효과 때문으로 사료된다. 이상과 같이 토양에 흡착된 세슘을 동전기적방법에 의한 복원 시 황산을 추출제로사용할 때가 초산을 사용할 때 보다 세슘제거율이 높게 나타났다. 즉 동전기방법에 의한 제거효율은 토양을 포화시킬 때 첨가한 추출용액의 추출력에 비례함을 예측할 수 있다. 한편, 세슘의 54%가 제거될 때까지 배출된 토양복원폐액의 부피가 단지 3.7 Pore Volume 으로 Soil Washing으로 복원 시 발생하는 토양복원폐액의 20% 이하로 나타나 토양복원폐액 처리 비용의 감소효과를 가져온다.

IV. 결 론

방사능오염토양내의 세슘을 동전기적방법으로 제거하기 위해 첨가제로 H_2SO_4 +Citric Acid를 사용했을 때 초산을 사용했을 때보다 세슘의 제거효율이 높았다. 즉, 실험결과 컬럼의 음극쪽으로 배출된 유출수의 유출속도는 평균 $2.0 \times 10^{-2} \text{cm/min}$ 이었고, 10일간 음극저류조로 배출된 토양복원폐액의 부피는 3.7 Pore Volume이었다. 10.0일간 복원실험 결과 방사능토양 내 세슘의 약 54%가 제거되었다. 한편 개발

된 수치모델에 의한 예측 값은 실험값과 상당히 일치하는 것으로 나타났으며 발생한 토양복원폐액 부피는 Soil Washing 시 보다 매우 적었다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다

참 고 문 헌

1. Acar, Y.B., and Alshawabkeh, A.N. : Principles of Electrokinetic Remediation, Environ. Sci. Technol. 27(13), 2638-2647(1993).
2. Largeman, R., Electroreclamation: Application in Netherlands, Environ. Sci. Technol. 27(14), 2648-2650(1993).
3. Jiwei Y., and Invars N. : Modelling of transport and reaction processes in a porous medium in electrical field. Chemical Engineering Science, 51(19), 4355-4368(1996).
4. Li Z., Yu W. and Neretnieks I.: Removal of Cu(II) and Cr(III) from naturally contaminated loam by electromigration. J. Environ. Sci. Health, Part A 32, 1293(1997).

Removal of Uranium Ions in Lagoon Waste by Electrosorption

ChongHun Jung, HuiJun Won, WangKyu Choi, GyeNam Kim,
WonZin Oh, SungTai Hwang, JinHo Park
Decontamination & Decommissioning Technology R&D Dept.,
Korea Atomic Energy Research Institute

Abstract

A study on the electrosorption of U(VI) onto porous activated carbon fibers (ACFs) was performed to treat uranium-containing lagoon sludge. Effective U(VI) removal is accomplished when a negative potential is applied to the activated carbon fiber (ACF) electrode. For a feed concentration of 100mg/L, the concentration of U(VI) in the cell effluent is reduced to less than 1mg/L. The adsorbed uranium could be desorbed from the ACF by passing a 1M NaCl solution through the cell and applying a positive potential onto the electrode. The regeneration of ACF from the cycling experiments was confirmed.

Introduction

For the removal and recovery of uranium(VI) from contaminated water and waste streams, a variety of physical and chemical methods such as precipitation, coagulation, ion exchange and adsorption have been used. But, these techniques have been restricted in application due to their limited capacity when the concentration of U(VI) in the waste water is relatively high [1-3]. As an efficient electrochemical method for the removal of a high concentration of uranium, electro-deposition on carbon materials has been extensively investigated and used very effectively. For uranium having a high reduction potential, electrodeposition is not a practical method [4]. An alternative to electrodeposition is electrosorption that is defined as the reversible adsorption or the reversible retention of ions, molecules, or particles from a liquid phase on or near an electronic conducting surface as a function of the electric potential difference between the surface and the liquid [5]. The amount of material adsorbed in electrosorption depends on the electrochemical potential applied to the adsorbent. This technique has reversible characteristics for purifying a waste solution by adsorption and concentrating contaminants by desorption.

In this study, we conducted experiments on the selective adsorption of uranium(VI) from a high concentration of chemical salt to find the optimal conditions of the electrosorption process using ACF as an electrosorption adsorbent. The adsorption behavior with an applied potential was investigated and compared with that in the potential free conditions. Desorption was examined by first adsorbing at a negative potential, then reversing the electric potential back

to positive. In order to confirm the regeneration of ACF, cycling experiments consisting of the adsorption and desorption steps were carried out.

Experimental

Flow-through adsorption experiments were carried out using a three-electrode electrochemical cell where the electric current flows parallel to the solution flow, as shown in Fig. 1. Pitch-based ACF was used as the working electrode and placed on a platinum mesh (current collector). The counter electrode was platinum wire and the Ag/AgCl electrode was used as the reference electrode. All the potentials reported in this paper are relative to this reference electrode. The electro-chemical cell was connected with a potentiostat (EG&G Model 273). The fixed flow rates through the cell were controlled by a peristaltic pump. Various types of salts such as NH_4NO_3 , NaNO_3 and $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ were tested as supporting electrolytes. The ACF felt electrode was kept under various potentials ranging from 0.3 to 0.9V in order to remove the uranium ions in a high concentration of electrolyte salt by electrosorption. A desorption test was performed at potentials ranging from +0.5 to +1.2V and an influent pH in the range of 3 to 5.

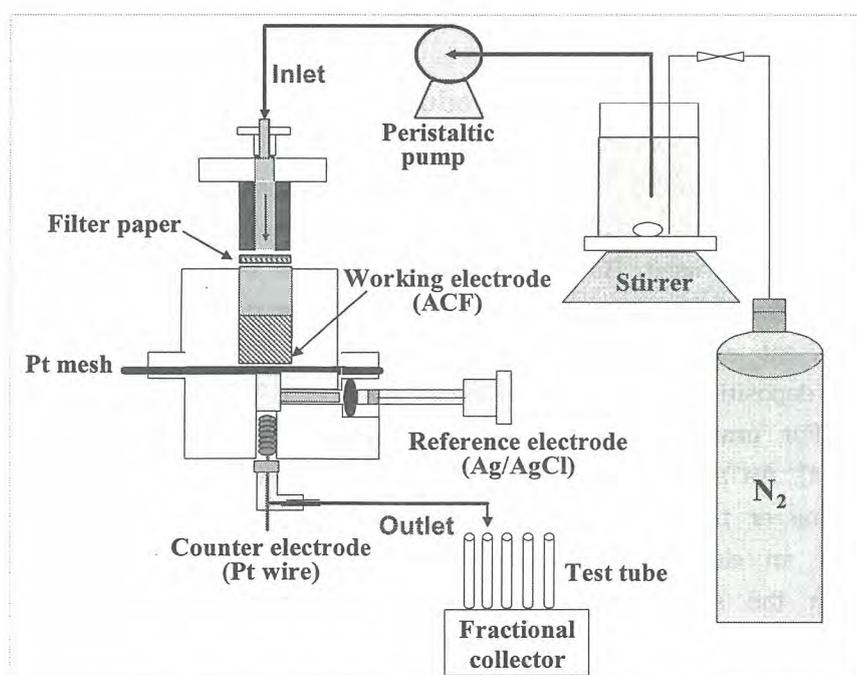


Fig. 1. Schematic diagram of the electrosorption cell.

In the cycling experiments to test the regeneration of ACF, desorption was examined by first adsorbing at -0.9V for 30h, then reversing the electric potential back to $+1.2\text{V}$ for 30h.

Results and Discussion

ACF felt used as an electrode has a large BET specific surface area(1536 m²/g), and is microporous adsorbent with an average pore diameter of about 15 Å. It has a surface acidity of 2.45 with a high proton liability of the surface OH and COOH groups. The electrosorption tests on the U ion was performed in the electric potential ranges from -0.3 to -0.9 V(vs Ag/AgCl). Fig. 2 shows the selective removal of the U ions in the multi-component system composed of the Na⁺, NH₄⁺ cations. Adsorption of the cations is related to the charge density or ionic potential of the cations. The higher the charge density(i.e. z/r , where z is the valency and r is the radius of the adsorbed ion), the stronger the cation-carbon affinity, with a variation of the applied potentials. The selective adsorption of the U ions existing as UO₂²⁺ is due to their higher charge density than that of the Na⁺, NH₄⁺ cations. Experimental test on the electrosorption with a 100 mg/L U(VI) feed onto the ACF felt at various negative potentials in the range of 0.3 to 0.9 V (vs. Ag/AgCl) is shown in Fig. 3.

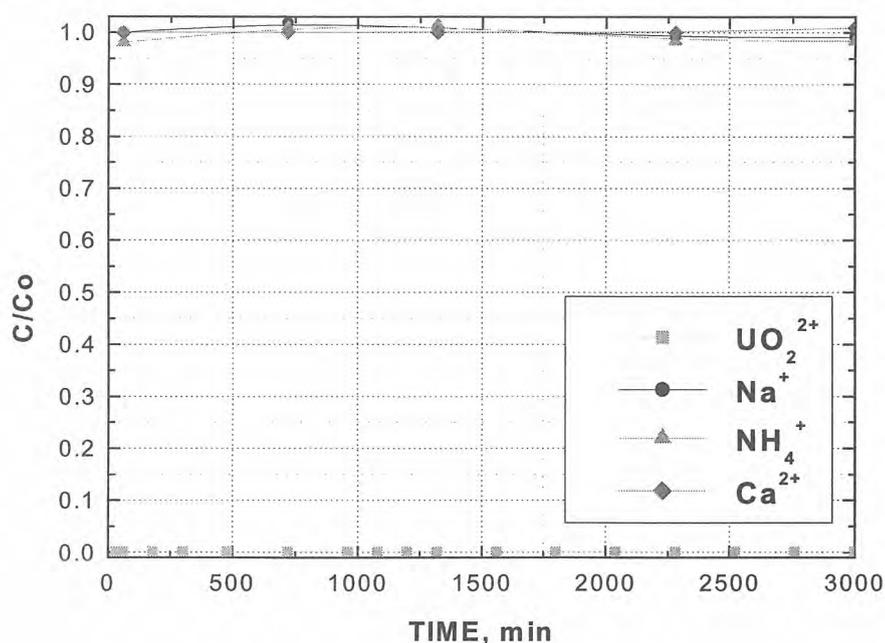


Fig. 2. Electrosorption of U(VI) in multi-component salt medium at -0.9V.

Effective U(VI) removal is accomplished at a potential of -0.9V. At a potential of 0.3V, the U(VI) concentration in the effluent is reduced to 1mg/L within 4h, then breakthrough started to appear. At 0.5V, the U(VI) ion in the effluent was detected after the test run of 10h. At a potential of 0.9V, a complete removal of U(VI) is maintained throughout the test. However, in the case of OCP(open-circuit potential) the effluent concentration of U(VI) increased within 1h and finally reached the level of the feed, indicating the saturation of the

sorption capacity of the ACF. From these results, it can be confirmed that the external negative potential exerted on the ACF electrode has a great impact on the adsorption capacity of the ACF.

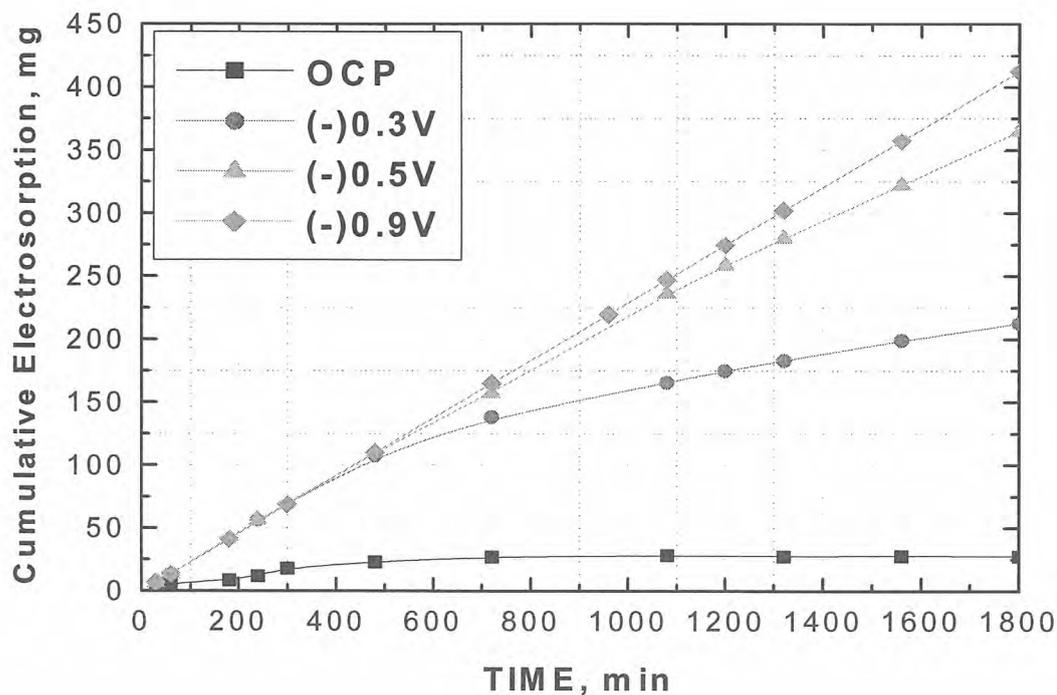


Fig. 3. Electrosorption of U(VI) with variation of potential in multi-component salt medium .

To confirm the continuous use of an electro-adsorbent, cycling experiments consisting of an adsorption step at $-0.9V$ and desorption step at $+1.2V$, were performed. An adsorption/desorption cycle is shown in Fig. 4. The adsorption capacity of the ACF electrode measured for a multiple recycling up to 5cycles does not significantly change. These results indicate that reversing the potential of the ACF electrode results in the regeneration of the ACF carbon while electro-desorbing the adsorbate ions.

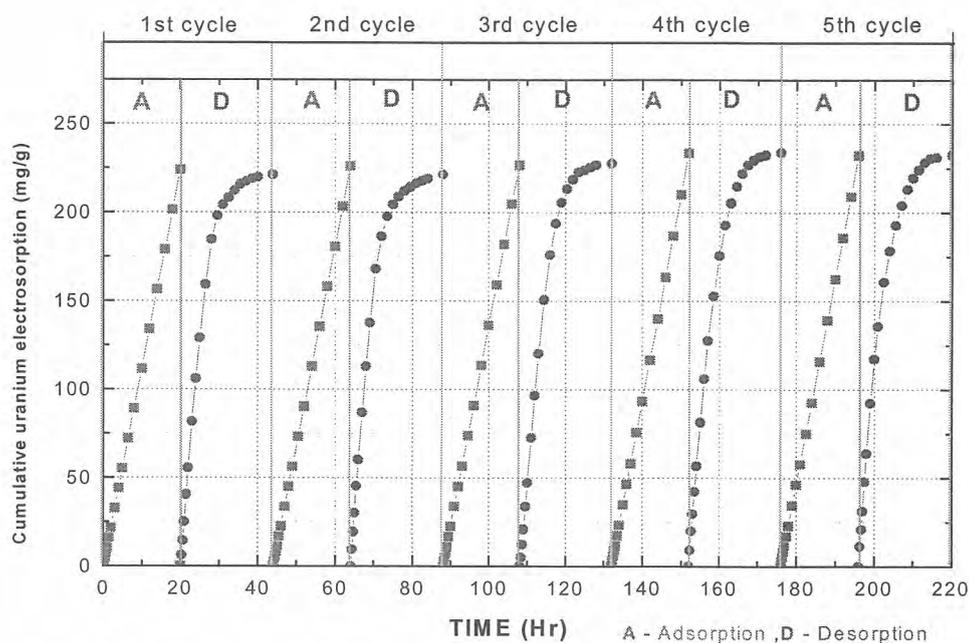


Fig. 4. Electroadsorption of U(VI) and regeneration of ACF electrode.

Conclusions

The electroadsorption process using an ACF felt electrode was confirmed to be effective in the removal of uranium ions, and an ACF felt electrode could be continuously used in the purification of a liquid waste. Also, the selective adsorption of U ions in Na^+ and NH_4^+ cations could be obtained. This electroadsorption process as a new technology without producing secondary wastes, appears to be a promising technique in liquid waste treatment and the separation of radioactive ions.

Acknowledgements

This project has been carried out under the Nuclear R & D Program funded by the Ministry of Science and Technology.

References

1. Sauer, N. N.; Smith, B. F., "Metal-Ion Recycle Technology for Metal Electro-plating Waste Waters", LA-12532-MS, 1993.
2. Hazourli, S.; Bonnacaze, G.; Astruc, M., Environmental Technology, "Adsorption and Electroadsorption of Organic Compounds on Granular Activated Carbon", 1996, 17, 1275.
3. Jayson, G. G.; Sangster, J. A.; Thompson, G.; Wilkinson, M. C., "Adsorption and

- Electrosorption of Mercury Acetate onto Activated Charcoal Cloth from Aqueous Solution", *Carbon* 1987, 25, 523.
4. Carley-Macauy, K. W.; Gutman, R. G., "Radioactive Waste: Advanced Management Methods for Medium Active Liquid Waste", Harwood Academic Pub., 1981, 41-130.
 5. Woodard, F. E.; McMackins, D. E.; Jansson, R. E. W., "Electrosorption of Organic on Three Dimensional Carbon Fiber Electrode", *J. Electroanal. Chem.* 1986, 214, 303.

연구용 원자로 2호기 해체과정 전산모사

3D Graphic Simulation for Dismantling Process of the KRR-2

김성균, 정관성, 백삼태, 이근우, 박진호
한국원자력연구소

요 약

연구로 해체 작업은 높은 방사선 환경 속에서 작업이 진행되기 때문에 작업자의 안전 및 작업에 대한 높은 신뢰성이 요구된다. 따라서 해체 대상물에 대한 선정, 적용 가능한 해체기술 선정 및 선정된 대상물에 대한 시나리오 분석은 필수적이다. 본 논문에서는 연구로 2호기의 구성부품 중 선정 기준에 따라 주요해체 대상물을 선정 하였으며 선정된 대상물들에 대해 3차원 모델링을 수행하였다. 또한 각 해체 대상물에 대해 적용 가능한 해체기술을 선정하였고 각 대상물에 대한 해체 시나리오를 구성하였다. 마지막으로 콘크리트 차폐체, 회전시료조사대, 노심에 대해 해체 시뮬레이션을 수행하였다.

Abstract

The D&D work requires worker's safety and high reliability of operation because it has been processing in high radioactive environment. Therefore, it is necessary to select the dismantling items and applicable dismantling technologies and analyze the scenarios for selected items. In this paper, the main dismantling items were selected by the consideration of several factors, their 3D CAD models were constructed as well. The applicable dismantling technologies for each dismantling items were selected and their dismantling scenarios were setup. Finally the 3D graphic simulations for the shielding concrete, the RSR, and the core are performed.

1. 서 론

전 세계의 원자로가 점차 노쇠해 짐에 따라, 연구로의 안전한 해체가 중요한 임무로 대두되고 있다. 현재 80개 이상의 원자력 발전소와 350개 이상의 연구용 원자로가 해체되었거나 해체 단계에 와 있다. 따라서 1980년대 중반부터 전 세계의 원자력 산업체들은 제염·해체(decontamination and dismantling) 프로젝트와 이와 관련된 연구 프로그램들을 진행하기 시작하였다[1-5]. 한편, 국내에서는 TRIGA Mark II&III 타입인 KRR-1&2 (Korea Research Reactor 1&2)기가 1962년과 1972년부터 각각 운전을 시작하여 한국 원자력 발전에 많은 기여를 하였다. 그러나 원자로의 임계수명에 임박함과 함께 신형 연구용 원자로인 HANARO (High-flux

Advanced Neutron Application Reactor) 가 정상 운전됨에 따라 기존 연구로의 효용가치가 상실되어 1995년에 운전을 최종 종료하고 1997년부터 해체하기 시작하였다[6]. 현재 제염·해체에 대한 연구는 주요 해체공정에 대한 그래픽 시뮬레이션 개발 및 DB구축, 원격해체장비 개발, 표면오염 자동측정장비 개발 등이 수행되고 있다[7].

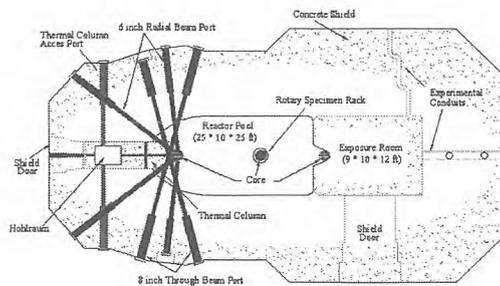
최근 컴퓨터 그래픽 시뮬레이션은 각종 장치의 설계 및 검증을 3차원 그래픽 모델링으로 수행하고, 각 장치의 동작을 컴퓨터상의 그래픽 시뮬레이션을 통해 검증해 볼 수 있는 가상모형(Virtual Prototyping) 기술로 확대되고 있다.[8-11] 이 기술은 실제 장치의 기본 설계를 바탕으로 진보된 컴퓨터 시뮬레이션 기법을 활용하여 새로운 기계설계 및 공정의 타당성을 검증하는 기술을 말한다. 즉, 제작하고자 하는 장치를 컴퓨터에서 3차원 그래픽으로 설계한 후, 모델에 운동특성(Kinematics)을 부여하여 장치들의 움직임을 정의함으로써 현실감 있는 그래픽 시뮬레이션을 구현할 수 있을 뿐만 아니라, 각 과정에서 장치의 동작경로나 구성장치간의 간섭현상을 분석함으로써 장치설계의 타당성을 검증할 수 있다. 원자력 해체분야에서 이러한 기술들은 설계한 해체장비를 컴퓨터 가상공간에서 구현하여 타당성을 검토하거나 해체공정에 대해 다양한 해체 시나리오를 적용하여 최적의 해체공정을 선택하는데 이용하고 있다. 또한 해체작업을 가상공간에서 구현하여 해체작업자들을 교육하거나 훈련시키는 용도로도 활용하고 있다.

본 논문에서는 연구로 2호기의 주요해체대상물을 선정하고 이들을 3D CAD 모델링으로 구현하였다. 그리고 주요해체대상물에 대한 적절한 해체시나리오를 선정하였다. 마지막으로 콘크리트 차폐체, 회전시료조사대 및 노심 해체과정을 전산모사 결과로 제시하였다.

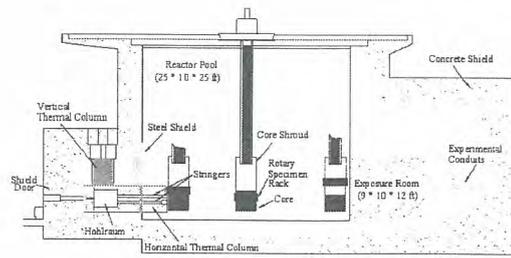
2. 주요 해체대상물 선정 및 3D 모델링

2.1 주요 해체대상물 선정

KRR-2호기는 Fig. 1에서 나타낸 구성품 뿐만 아니라 각종 실험에 관련된 장치 등과 같은 무수히 많은 부품으로 구성되어 있다. 그런데 이들 부품 중에서 일부는 수년간의 운전과 실험을 통해 방사화 되어 있으며 이러한 구성품의 해체작업은 작업자의 안전 등의 이유로 주의 깊게 이루어져야만 한다. 따라서 본 연구에서는 여러 해체 대상물 중 주요해체 대상물을 다음과 같은 기준에 따라 대상물을 선정하였다.



(a) Horizontal cross section



(b) Vertical cross section

Fig. 1 The figure of the KRR-2

- 고방사화된 재질을 취급해야 하는 작업
- 접근에 어려움이 있는 작업
- 작업자의 예상피폭선량이 높은 작업
- 안전에 대해 위험 가능성이 높은 작업
- 수중이나 원격으로 수행해야 하는 작업
- 정밀하고 세부 작업 절차를 요하는 작업
- 특별한 훈련이 요하는 작업

위와 같은 대상물 선정기준에 의해, Table 1에서 보는 바와 같이 4개의 아이템을 주요해체 대상으로 선정하였으며 선정된 대상물은 다음과 같다.

- Rotary Specimen Rack
- Reactor core
- Thermal Column
- Activated concrete
- Beam port

Table 1 The Selection of decommissioning object for graphic simulation

Selection criteria Dismantling process	Expected dose (man-mSv)	Risk	Work difficulty	Detail procedure	Special training
Internal component and pipes	1.56	M	L	×	×
RSR	3.84	H	H	0	0
Reactor core	718.00	H	H	0	0
Drain the reactor water	0.08	L	L	×	×
Thermal column	4.80	H	H	0	0
Cooling system	0.50	L	M	0	×
Core bridge	0.86	M	M	×	×
Activated concrete and beam tube	105.83	H	H	0	0
Pit and distilled water tank	2.51	M	H	0	×
Room wall and floor	3.02	L	M	×	×

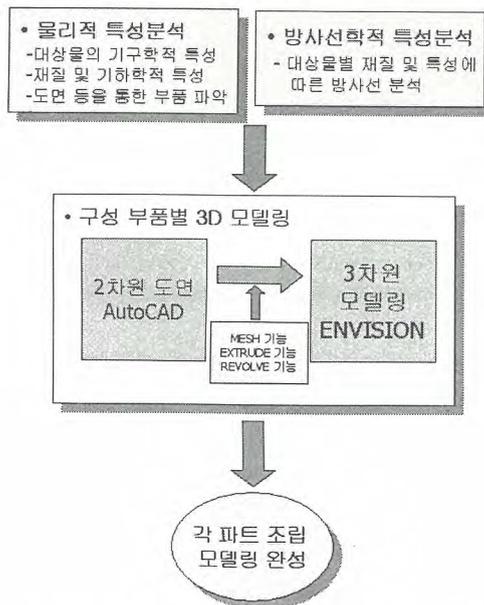


Fig. 2 The flow of CAD modeling

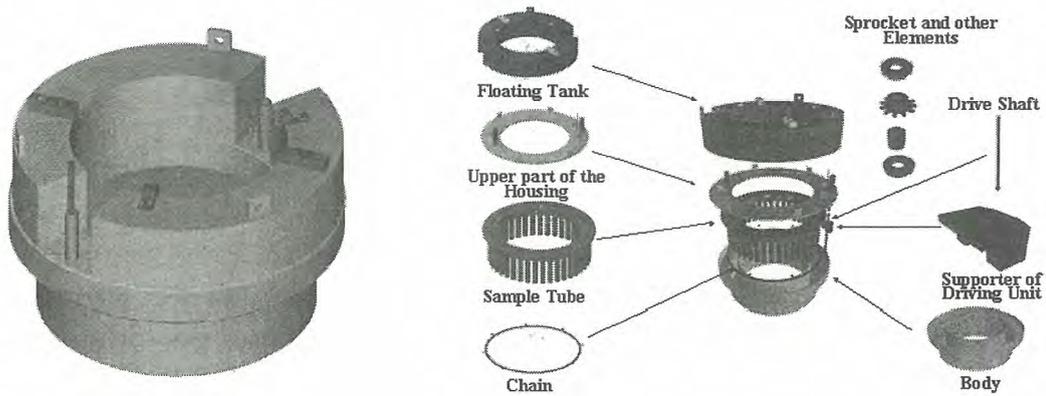
2.2 해체대상물 모델링

Fig. 2는 해체대상물의 모델링 방법을 나타내고 있다. 먼저 해체대상물의 물리적 특성분석과

방사선학적 특성분석을 수행하여 대상물의 기구학적 특성이나 재질 등을 미리 파악하고 재질에 따른 방사선 준위를 분석하여 해체부위를 판단하였다. 다음으로 특성분석 결과를 바탕으로 각 파트의 3차원 모델링을 수행하는데 AutoCAD로 구현된 2차원 도면을 전산모사 프로그램인 ENVISION의 Mesh, Extrude, Revolve 등의 기능을 이용하여 3차원 파트로 모델링 작업을 수행하였다. 그리고 이 파트 모델링들을 조립하여 최종 해체 모델링 작업을 완료하였다.

2.2.1 회전시료조사대

회전시료조사대 모델링은 Fig. 3에 보는바와 같이 Flotation Tank, Housing Cover, 조사관, 구동체인, 구동 샤프트, 베어링, Strip, 볼트, 너트 등으로 구성되어 있다. 방사화 분석 및 모델링 결과, 고방사화 부분은 볼트, 너트, 베어링 및 체인과 같은 스테인레스스틸 부품이 주로 고방사화되어 있으며 3D 모델링을 분석한 결과 이 부품들은 주로 Flotation Tank와 Housing Cover 사이에 많이 분포되어 있는 것을 알 수 있었다. 따라서 해체작업순서는 회전시료조사대 상부인 Flotation Tank의 스테인레스 볼트부터 차례로 분해하여 최종적으로 하부인 Housing을 분해하는 순서로 진행되는 것이 타당함을 알 수 있었다.



(a) The assembly of RSR

(b) The components of RSR

Fig. 3 The CAD modeling of RSR

2.2.2 Thermal Column 및 빔포트

Fig. 4와 5는 Thermal Column과 빔포트를 모델링한 결과를 나타내고 있다. 모델링 결과, 두 개의 Thermal Column과 빔포트는 서로 인접해 있는 위치에 있으며, 2개의 Radial 빔포트는 Thermal Column 측면에 연결되어 있고, 4개의 Thermal Column Access 포트는 서로 대칭된 구조로 이루고 있음을 확인 할 수 있었다. 그리고 빔포트는 콘크리트 차폐체 안에 포함되어 있으므로 콘크리트 차폐체가 해체된 후에 작업이 이루어져야 하여 한다는 것을 알 수 있었다.

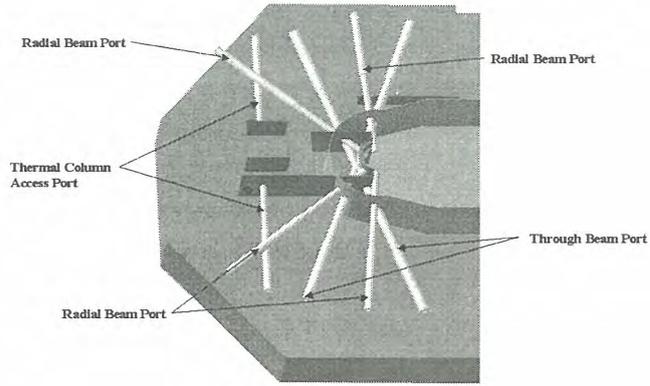


Fig. 4 The CAD modeling of the beam ports

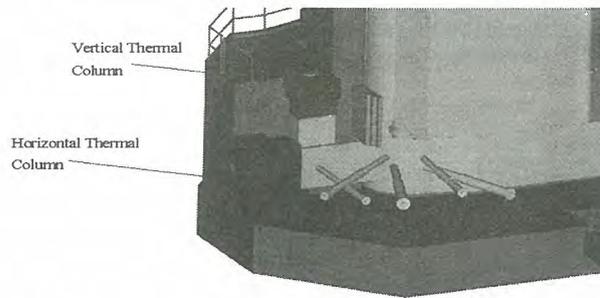


Fig. 5 The CAD modeling of the thermal column

2.2.3 노심

노심은 상부 및 하부 Shroud 2부분으로 구성되어 있으며 상부 Shroud는 6.4 mm 두께의 알루미늄 원통이며 2개의 Grid Plate가 Central Thimble과 Water diffuser pipe 등을 지지하고 있다. 이 두 개의 파이프는 상부 지지판에 연결되어 있다. 모델링 결과, 노심 내부에 모의 핵연료가 있어 이를 핵연료 인출장비로 제거한 후 유압절단기를 이용하여 파이프를 절단하고 나머지는 노심 전용 저장용기에 넣어 수납하여 폐기하기로 결정하였다.

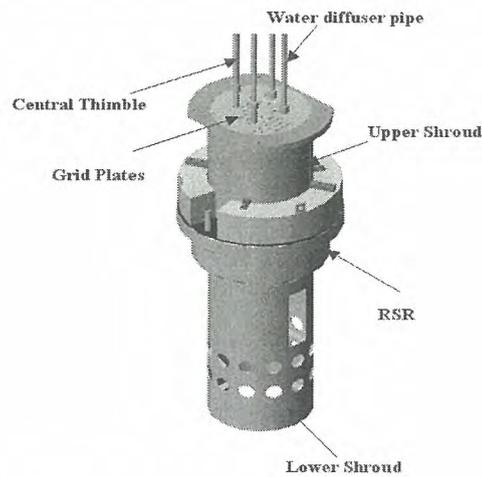


Fig. 6 The CAD modeling of the core

2.2.4 콘크리트 차폐체

콘크리트 차폐체 해체는 크레인의 최대 이송 가능한 중량을 고려하여 1m×1m×1m의 콘크리트 덩어리로 각각 절단하여 해체하기로 결정하였다. 즉 콘크리트 차폐체를 9개의 층으로 나누고 각 층을 다시 1m×1m×1m의 크기로 절단한 모델링 결과가 Fig. 7이다. 해체는 최상부 층인 9층부터 차례로 해체할 것이며 작업절차 및 해체순서에 맞게 각 층의 콘크리트마다 번호를 부여하고 우선 비방사화 부분부터 해체한 후 방사화 콘크리트를 해체하는 것을 기본으로 하였다.

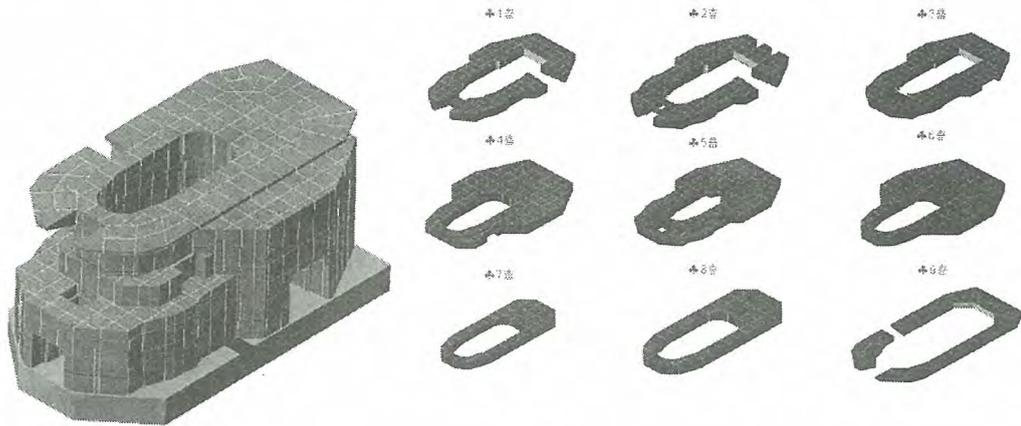


Fig. 7 The CAD modeling of the shielding concrete

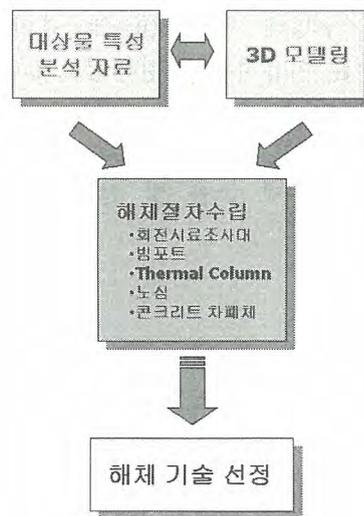


Fig. 8 The selection of dismantling technologies

2.3 해체기술 선정

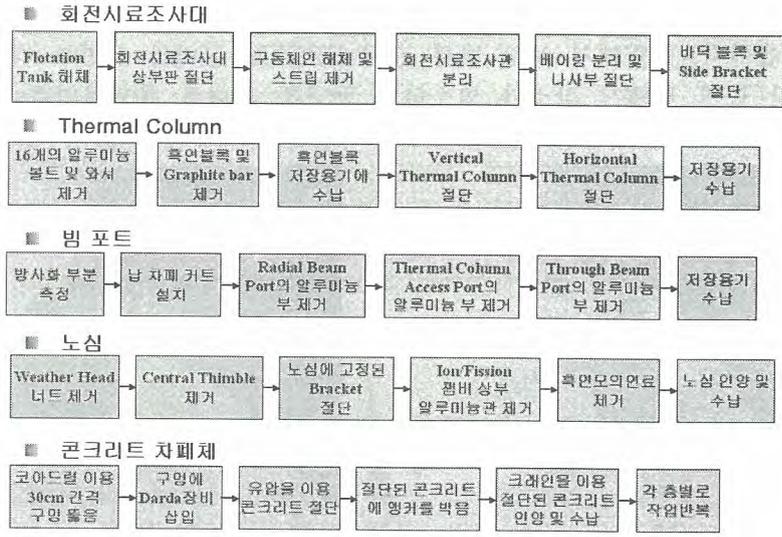
2.3.1 회전시료조사대 해체기술

- 중준위 수준으로 방사화된 회전시료 조사대는 원자로실의 약 4 m 깊이의 수중에 보관되어 있어, 수중에서 절단 및 분해되어야하고 원격제어가 가능하여야함.
- 수중에서 절단가능하고 현재 상용화되고 있는 방법들에 대한 기술현황을 분석하여 절단에 적용 가능한 기술로 milling 절단 방법을 선정함.

- Milling 절단 : 장착된 둥근 칼날을 이용하여 절단하는 방법으로 비용이 적게 들며 aerosol의 발생량이 적으며 수중에서도 작업이 가능함. 원격으로 조작이 가능하고 회전시료조사대와 같이 두께가 얇은 구조물의 절단에 매우 용이하며 수중에서 절삭하기 때문에 별도의 냉각수가 필요하지 않음. 따라서 회전시료조사대의 해체기술은 milling 절단기술을 이용하였음.
- 빔포트 해체기술
 - 빔포트는 pipe와 같은 형태이며 알루미늄과 스테인리스스틸로 이루어져 있기 때문에 기계톱과 같은 기술은 스테인리스스틸을 절단시 톱날이 상하므로 본 해체에는 nibber 절단기술을 채택하였음.
 - Nibber 절단기술은 구멍을 내거나 자르는 절단 도구로써 매우 빠른 회전률의 속도로 작동함. 작은 크기의 금속뿐만 아니라 연강, 알루미늄 또는 스테인리스 강의 큰 규모의 금속 대상물도 절단 가능하며 최고 1/4 inch의 연강판을 절단 할 수 있음. 동력원으로는 shear와 마찬가지로 전기, 압축공기 및 유압을 사용함. 원격조작이 가능하고 수중에서의 절단도 가능함. 폐기물 처리를 위해 제거된 작은 금속조각들의 수집이 용이하고 먼지 및 공기입자의 발생에 대한 우려가 없음.
- 콘크리트 차폐체 해체기술
 - 콘크리트 차폐체의 절단기술은 diamond wire cutting, 성형폭약에 의한 발파공법, abrasive water jet cutting, rock splitter 등의 기술이 개발되어 상용화되어 있음. 이러한 기술 중, 본 연구로 콘크리트 차폐체 해체에 적합한 기술로 rock splitter에 의한 절단방법이 채택되었음.
 - Rock splitter는 미리 천공된 구멍내 에 feather로 불리는 팽창가능한 가이드 2개 사이에 wedge-shaped 플러그를 유압을 이용하여 팽창시킴으로써 콘크리트를 절단하는 방법임. 사용되는 유압시스템은 약 7,000 psi로 운전되며, 자동 안전감압밸브가 장착되어 있음. 이 공법은 미국의 JANUS 원자로 차폐체 콘크리트의 해체에도 사용되었던 기술로 사용될 장비는 독일에서 개발된 DARDA임. 이 공법은 소음 및 진동이 없고 절단 시 먼지가 거의 발생되지 않는다는 장점을 가지고 있음.

2.4 해체절차 수립

해체 전산모사를 수행하기 위해서는 적절한 해체 절차와 해체기술 선정이 선행되어야 한다. 해체절차와 해체기술 선정은 Fig. 8에서 보는 것과 같이 대상물 특성분석 자료와 3D 모델링을 상호 보완 검토하여 최종 모델링을 수행하고 이를 바탕으로 주요해체 대상물에 대한 해체절차를 수립하였다. 또한 이 해체절차를 수행할 수 있는 각종 해체기술들을 평가하여 최적의 해체공법과 해체기술을 선정하여 주요해체 대상물 전산모사에 적용하였다. 위에서 언급한 5가지의 주요해체대상물에 대한 해체절차는 다음과 같다.



2.5 해체 일정 모사

그림 9는 회전시료조사대 해체절차에 대한 working process를 나타내고 있다. 본 과제에서 사용한 ENVISION 소프트웨어에서는 Gant's Chart를 이용한 해체 일정 모사가 가능하며 각 작업에 대한 working time 및 총 해체 소요 시간 산출이 가능하다. 이를 이용하여 각각의 해체공법에 대한 해체소요 시간을 비교 평가 할 수 있다.

Op	Pred	Description	Time	0.000 sec
		START DP	0.000 sec	20610.900 sec
10		Block A Disassembly	336.592 sec	
		CLI("SET VIEW TO 'Start_view' IN 0")	0.000 sec	
		\$\$SPEED_MODE = ACTUAL	0.000 sec	
		\$\$SPEED = 30	0.000 sec	
		CLI("SET VIEW TO 'Overall' IN 40")	0.000 sec	
		DELAY 40000	40.000 sec	
		\$\$HOME_NUMBER = 2	0.000 sec	
		MOVE HOME	290.582 sec	
		MOVE JOINT 1 BY -10 NOSIMUL	5.000 sec	
20	10	Rotary_Table Rotation for Tank A Block C	191.668 sec	
		\$\$SPEED_MODE = ACTUAL	0.000 sec	
		\$\$SPEED = 30	0.000 sec	
		\$\$HOME_NUMBER = 2	0.000 sec	
		MOVE HOME	191.668 sec	
30	20	MainBase Translation	465.000 sec	
		\$\$SPEED_MODE = ACTUAL	0.000 sec	
		\$\$SPEED = 30	0.000 sec	
		ADD RSR:Floating_Tank_HA_Block_Bolt_Hea	0.000 sec	
		ADD RSR:Floating_Tank_HA_Block_Bolt_Hea	0.000 sec	
		ADD RSR:Floating_Tank_HB_Block_Bolt_Hea	0.000 sec	
		ADD RSR:Floating_Tank_HB_Block_Bolt_Hea	0.000 sec	
		ADD RSR:Floating_Tank_HB_Block_Bolt_Hea	0.000 sec	
		ADD RSR:Floating_Tank_HB_Block_Bolt_Hea	0.000 sec	
		\$\$HOME_NUMBER = 2	0.000 sec	
		MOVE HOME	141.667 sec	
		CLI("SET VIEW TO 'F_T_BK_A_view' IN 40")	0.000 sec	
		DELAY 40000	40.000 sec	
		MOVE JOINT 2 BY -20 NOSIMUL	16.666 sec	
		MOVE JOINT 2 BY 40 NOSIMUL	33.333 sec	
		MOVE JOINT 2 BY -40 NOSIMUL	33.333 sec	
		MOVE JOINT 2 BY 40 NOSIMUL	33.333 sec	
		MOVE JOINT 1 BY 200 NOSIMUL	186.667 sec	
40	30	Rotary_Table Rotation for Tank B Block B	300.002 sec	
		\$\$SPEED_MODE = ACTUAL	0.000 sec	
		\$\$SPEED = 30	0.000 sec	
		\$\$HOME_NUMBER = 3	0.000 sec	
		MOVE HOME	300.002 sec	
50	40	MainBase Translation	263.334 sec	
		\$\$SPEED_MODE = ACTUAL	0.000 sec	

Fig. 9 Working chart of the RSR dismantling work

2.6 간섭 체크

그림 10 은 콘크리트 차폐체 해체 방법중 Rubblizing 공법을 적용하기 위하여 BROKK 장비를 수조에 설치한 모습이다. 그림에서 보는 바와 같이 BROKK 장비의 전면부 파쇄시에는 간섭현상이 발생되지 않지만 측면 해체시 장소가 협소하여 공구를 최대한 후퇴하였음에도 불구하고 공구의 대부분이 수조에 중첩되어 간섭현상이 발생하여 작업이 불가능함을 알 수 있었다.

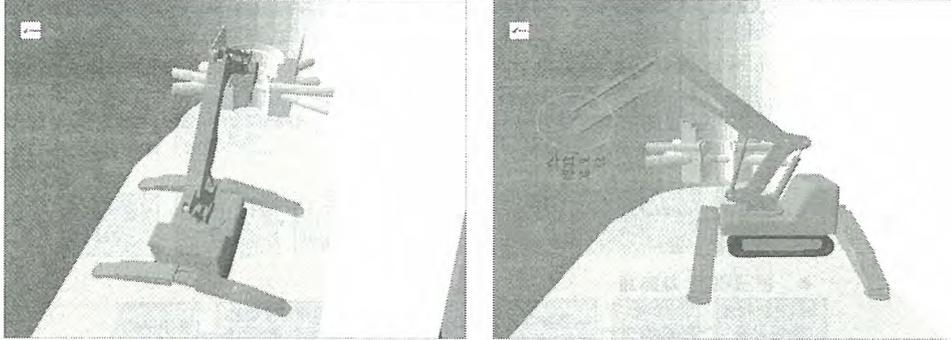


Fig. 10 Inspection of the collision for the BROKK machine

3. 전산모사 결과

3.1 콘크리트 차폐체 해체 전산모사

Fig. 11는 ENVISION을 이용한 콘크리트 해체작업의 전산모사 과정이다. 그림에서 보는바와 같이 먼저 코어드릴을 이용하여 30cm 간격으로 드릴 작업을 수행한다. 그리고 드릴구멍에 한 면 당 3개의 콘크리트 해체장비를 삽입하여 3면의 콘크리트 절단작업을 수행한다. 그리고 콘크리트 윗면에 앵커를 박고, 연구로 2호기 천장에 부착되어 있는 크레인에 앵커고리를 걸어 콘크리트를 이송한다. 이 콘크리트는 특별 이송용기로 이동한 후 용기 커버를 덮고 체결볼트를 이용 밀봉하여 최종 전산모사를 완료한다.

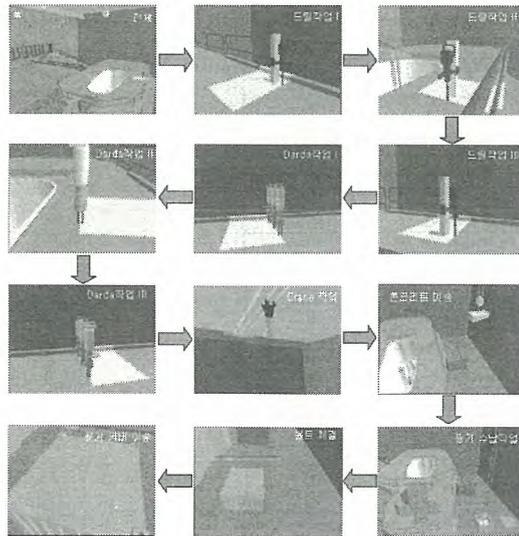


Fig. 11 The graphic simulation process of the shielding concrete

3.2 회전시료조사대 해체 전산모사

Fig. 12은 회전시료조사대의 해체과정을 전산모사로 나타낸 결과를 보여주고 있다. 회전시료 조사대는 방사능 준위가 높은 스테인레스스틸 부품인 볼트, 너트, 체인 등을 회전시료조사대 해체 장비를 이용하여 스테인레스스틸 부품만을 해체하고 나머지 알루미늄 부품들은 규제해체 폐기물로 처리하여 폐기물량을 최소화 할 계획이다. 그림에서 보는 바와 같이 블록 위, 부력탱크 위, 하우스링 블록의 볼트머리를 절단하고 나사산 부위를 잘라 스테인레스 부품들을 해체한다. 그리고 구동 샤프트를 절단하여 부력탱크를 제거한다. 그리고 구동 블록을 제거하여 체인 및 베어링을 해체 하여 최종 전산모사를 완료한다.

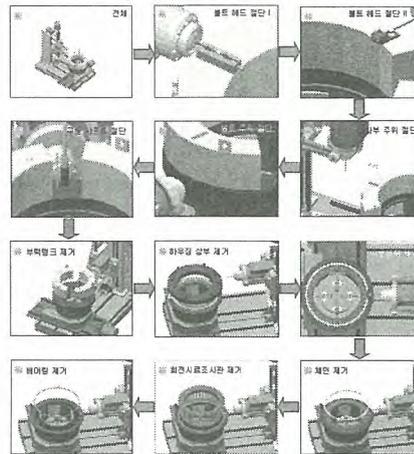


Fig. 12 The graphic simulation process of the core

3.3 노심 해체 전산모사

Fig. 13은 원자로 노심 해체과정을 보여주고 있다. 노심 해체는 먼저 노심을 상부 브리지와 연결하고 있는 지지판넬을 제거하고 유압절단 장치를 이용하여 각종 파이프를 절단한다. 그리고 노심 이송 컨테이너를 이용하여 노심을 수조밖으로 이송하여 납 차폐판 앞에 설치한다. 그리고 노심의 상부와 하부를 지지하고 있는 40개 스크류를 제거하면 노심의 상부와 하부 및 Grid plate 등이 분리된다.

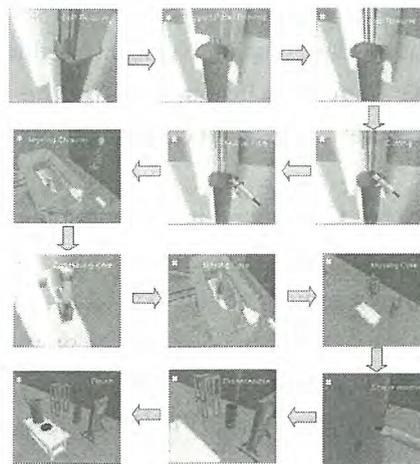


Fig. 13 The graphic simulation process of the RSR

4. 결 론

본 논문에서는 연구용 원자로 2호기(KRR-2)의 여러 대상물중 예상피폭선량, 위험도, 작업의 어려움, 숙련도 등을 고려하여 주요 해체대상물을 선정하였으며, 이들의 3D CAD 모델링을 수행하였다. 그리고 해체대상물의 방사선학적 평가 자료와 3D CAD 모델링을 기초로 각각의 해체 절차를 수립하였다. 마지막으로 주요 해체대상물 중 콘크리트 해체작업과 회전시료조사대의 해체작업에 대한 전산모사를 구현하였다. 콘크리트 해체작업은 전산모사 결과, 800개 이상의 콘크리트 덩어리가 산출될 것으로 예상되었으며 이를 처분하기 위한 충분한 공간을 확보해야 됨을 알 수 있었다. 회전시료조사대 해체 전산모사에서는 해체장비의 설계가 적절한지 확인할 수 있는 중요한 자료가 되었다. 특히 이 장비는 고방사성 물질을 취급하기 위해 설계된 장비이기 때문에 설계의 타당성을 신중히 검토할 필요가 있다. 노심 해체 전산모사에서는

이와 같이 새로운 장비설계나 해체공정설계에서 전산모사는 여러 가지 다양한 정보를 제공하여 실제설계나 해체작업시 발생할 수 있는 오류를 미연에 방지 할 수 있을 뿐만 아니라 여러 가지 설계변수를 변화시켜 보다 다양한 해체시나리오를 만들어 최적의 공정을 산출 할 수 있다. 따라서 향후 전산모사 기술은 제염·해체 연구분야에서 유용하게 활용 될 수 있을 것으로 사료된다.

후 기

이 연구는 과학기술부 원자력 연구개발 중·장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- (1) J. J. Fisher, "Applying Robots in Nuclear Applications", 1985, RI/SME Robots Conference
- (2) A. R. Gregory, et. al., "The Use of Remote Handling Equipment for Gas Cooled Reactor Inspection", 1984, Proceeding of Remote Handling in Nuclear Facilities, pp. 534-555
- (3) G. Clement, et. al., "Remote Handling and Transfer Techniques in Dismantling Strategy", 1984, Proceeding of Remote Handling in Nuclear Facilities, pp. 556-569
- (4) A. Baker, et. al., "Remote Handling Equipment for the Decommissioning of the Windscale Advanced Gas Cooled Reactor", 1984, Proceeding of Remote Handling in Nuclear Facilities, pp. 581-597
- (5) L. Costa, et. al., "Remote Operation in Decommissioning", 1989, Decommissioning of Nuclear Power Plates
- (6) K. J. Jung, et. al., "Decommissioning of TRIGA Mark 1&2", 1997, KAERI/RR-1798/97
- (7) J. H. Park, et. al., "Decontamination and Decommissioning Project for the Nuclear Facilities", 2003, KAERI/RR-2304/2002
- (8) C. P. Baker, "Parametric Design Using IGRIP", 1994, Proceeding of the DENEb User Group Conference, pp. 7-10
- (9) H. D. Clifford, S. Ekdahl, and J. S. Tulenko, "Virtual Reality for Mobile Robot Control", 1994, Proceeding of the DENEb User Group Conference, pp. 91-98

- (10) M. Salminen, R. Tuokko, and J. Sulkanen, "Development, Experiments and Experience in Telerobotics and VR Using the TELEGRIP Software", 1995, Proceeding of the DENEb User Group Conference, pp. 55-64
- (11) J. B. Barnaby, "The Use of Real-Time Computer Graphics to Assist Remote Reactor Inspection", 1999, Proceeding of the DENEb User Group Conference, pp. 27-31

TRIGA 연구로 해체 시 발생하는 덕트 폐기물의 제염

Decontamination of Duct Waste Arising from the Decommissioning of TRIGA Research Reactor

최왕규, 이근우, 정경환, 오원진, 박진호
한국원자력연구소

요 약

국내의 가동중지 된 TRIGA 연구로의 해체 시 발생하는 다양한 덕트 폐기물의 자체처분을 위한 제염 공정을 개발할 목적으로 TRIGA 연구로에서 직접 인출한 덕트 시편을 대상으로 오염물의 성상을 조사하였고, 이를 통해 적절한 제염공정을 선정하였다. 페인트 도막이 입혀진 덕트 내부 계통 표면은 주로 Co-60과 Cs-137로 오염이 되어 있었으며, 이들 핵종은 페인트 층 내부뿐만 아니라 덕트 재료인 합석 표면의 아연 도금막까지 침투되어 있음을 알 수 있었다. 이들 표면 오염을 제거하기 위한 공정으로 NaOH와 황산을 교대로 사용하는 두 단계의 화학제염을 제시하였으며, 이들 제염제를 사용하는 제염공정의 적용을 통해 덕트 폐기물을 효과적으로 제염할 수 있었다.

Abstract

In order to develop the decontamination process for self-disposal with authorization of duct waste generated from the decommissioning of retired TRIGA research reactors, the surface characterization of duct specimen taken from TRIGA research reactor was carried out and the adequate decontamination method was selected. It can be known that the paint coated internal surface of duct is contaminated with ^{60}Co and ^{137}Cs , which are penetrated into the paint layer and incorporated into zinc plated surface of galvanized iron as the material of duct. Two step chemical decontamination process, in which sodium hydroxide and sulfuric acid solutions are used in turn, is quite successful to remove the surface contamination of duct waste.

1. 서 론

국내 최초의 연구용 원자로인 TRIGA MARK-II 및 TRIGA MARK-III의 해체가 진행됨에 따라 원자로 시설 및 부속시설의 공기 조화 및 배기체 처리에 사용되었던 덕트가 고체폐기물의 하나로 발생되고 있다. 현재 실험실측의 덕트는 일부 절단 해체되어 고체 폐기물로 소량 발생되어 있으며, 대부분의 덕트는 2004년 초부터 본격적으로 해체될 전망이어서 시설의 해체가 더욱 심도 있게 진행될수록 오염된 덕트 폐기물이 비교적 대량으로 발생될 것이 예상되고 있다. 그러나 일부 절단 해체된 덕트 폐기물은 처리 방법이 설정되어 있지 않아 임시로 제염·해체 중인 연구로 부속 건물의 일부 실험실 공간에 저장하고 있는 상태로서 임시 저장 공간의 협소, 작업 공간의 안전성 및 해체 폐기물 관리의 효율성 등을 고려하여 조속한 처리 방안의 설정이 요구되고 있는 시점에서 제염기술의 적용이 필요한 시점이다. 또한 연구소 내 폐기물 저장고의 한계 및 국내 처분장의

미비 문제를 안고 있는 현재 시점에서 오염된 덕트를 비 방사성 폐기물화 하여 방사성폐기물의 부피를 최소화 할 수 있는 제염기술 개발이 필요하다.

원자력 산업에서 시설 자체 및 내부 기기 등은 필연적으로 방사성 물질로 오염된다. 이들 오염은 시설 및 기기의 재질과 방사성 공정 물질과의 화학적 반응에 의해 발생하기도 하지만 비교적 흔히 미세하게 부착된 방사성 입자의 박막 침적에 의해 발생된다. 시설 및 기기의 설계 및 조업 절차서 등에 의하여 이러한 오염의 영향을 최소화시킬 수는 있지만 작업 환경에서 방사선 준위를 감소시키기 위해서는 제염이 필수적인 공정으로 알려져 있다. 제염은 대상 표면으로부터 불필요한 방사성 핵종의 제거로 정의된다[1]. 제염공정은 오염물의 형태, 오염물의 양 및 제거 정도를 제외하고는 불필요한 비방사성 표면 오염물을 제거하는 전통적인 표면 세정 공정과 유사하다. 원자력 산업에서의 제염은 근본적으로 반도체 산업에서와 같이 외부 오염물에 매우 민감한 제조 공정에서 고도의 세정이 요구되는 것과 마찬가지로 완벽한 수준의 오염 제거가 요구되고 있다. 이를 위해 현재 대부분의 제염 공정은 연마재를 사용하는 기계적 방법 또는 강한 세정 용액을 사용하는 화학적 방법 등이 포함되고 있다[1,2].

덕트 내부 오염은 주로 미세한 방사성 입자들이 달라붙어 있는 박막의 침적물 형태로 존재하며, 마이크로미터 크기보다 작은 미세 입자는 입자-기질간 이차 valence forces에 기인하여 다른 고체표면에 매우 강하게 고착되므로 단순한 기계적 방법으로는 제거가 곤란하다고 알려져 있다[3].

따라서 본 연구에서는 TRIGA 연구로 해체 시 발생하는 덕트 폐기물의 자체처분을 위한 제염 공정을 개발하는데 목표를 두고 실제 TRIGA 연구로에서 인출한 덕트 시편을 대상으로 제염실험을 수행하였다. 이를 위해 우선적으로 덕트 표면에 부착된 입자성 오염물의 부착 형태와 화학적 조성 및 오염된 방사성 핵종 등의 분석을 수행하여 덕트 표면으로부터 오염물을 제거하는데 적절한 제염제를 선정하였고, 이를 사용한 제염 실험을 통해 본 덕트 폐기물에 적합한 제염 공정을 제시하였다.

2. 실험

TRIGA 연구로에서 직접 인출한 덕트폐기물 시편을 대상으로 적합한 제염공정을 확립하기 위하여 덕트 시편 표면의 특성 조사와 아울러 몇 가지 제염 실험을 수행하였다. 인출된 덕트폐기물 시편은 약 4 cm × 4 cm 크기가 되도록 준비하였으며, 시편 표면의 상세한 형상은 광학현미경(KH-2200 MD2, Hi-Scope Compact Microvision, System, Hirox)을 사용하여 조사하였다. 덕트 표면에 집적되어 있는 분진들의 화학적 특성을 조사하기 위하여 브러시를 사용하여 시편 표면으로부터 적당량의 분진을 수집한 후 EPMA (Electron Probe Micro Analyzer, JEOL8600)를 사용하여 분진의 화학적 성분을 분석하였다. 또한MCA를 사용하여 덕트폐기물에 오염된 핵종을 분석하였다.

덕트 폐기물 시편에 대한 제염은 온도가 일정하게 유지되는 유리 비이커 내에서 수행하였으며, 탈염수 내에서 브러시를 사용하여 표면 오염입자를 제거하는 물리적 제염과 KOH 및 황산 용액 내에서의 화학적 제염을 적용하였다. 이때 용액의 온도 및 부가적으로 동시에 초음파를 적용한 경우의 제염 성능을 비교하였으며, 제염 성능의 평가는 덕트폐기물 시편의 제염 전과 후의 β 방사능을 측정(TennelecTM series 5 XLB, Canberra)하여 수행하였다.

3. 결과 및 고찰

가. 덕트폐기물의 오염특성

TRIGA 연구로 덕트 내부 표면의 오염 특성을 조사하기 위하여 일반 실험실측에서 해체 철거된 덕트 일부로부터 덕트를 이루고 있는 상, 하, 측면 시편과 핫셀측에서 해체된 시편을 인출하였으며, 이들 표면의 외형적인 형상을 디지털 카메라로 촬영하여 Fig. 1에 수록하였다. 좌측으로부터 덕트 밑면, 측면, 그리고 윗면에 대한 표면 사진으로 표면의 위치별로 예측되어질 수 있는

바와 같이 밑면은 상당한 두께로 먼지 등이 침적되어 있으며, 측면은 밑면에 비해서는 침적된 분진의 양이 작지만 상당량이 존재하고 있다. 윗면의 경우는 밑면 또는 측면과는 달리 표면에 집적된 분진의 양은 많지 않으나 표면이 균데균데 부식되어 상당히 고르지 못한 것으로 보인다.

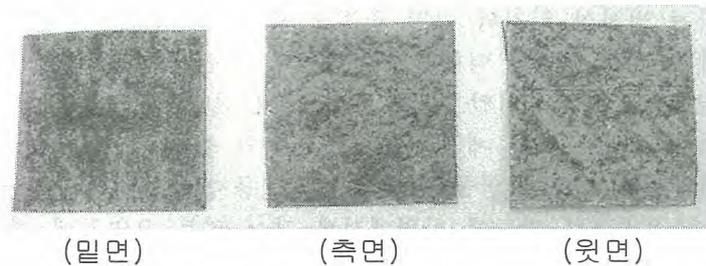


Fig.1. Photograph of the surfaces of duct taken from TRIGA research reactor.

덕트 표면에 집적되어 있는 분진들의 화학적 특성을 조사하기 위하여 브러시를 사용하여 분진을 표면으로부터 떨어뜨려 적당량을 수집한 후 EPMA(Electron Probe Micro Analyzer, JEOL8600)를 사용하여 분진의 화학적 성분을 분석하였다. 이 결과는 Table 1에 수록하였다.

Table 1. Chemical composition of dust collected from the surface of duct

Element	O	Na	Mg	Al	Si	S	Cl	K	Ca	Ti	Fe	Zn
%	47.63	1.89	0.40	2.02	5.13	8.81	1.31	0.86	11.49	1.49	2.29	16.68

분진의 화학적 조성을 살펴보면 S, Ca, 및 Zn의 함유량을 제외하고는 비교적 토양 먼지와 유사한 것으로 보인다. 토양의 경우 S, Ca 및 Zn는 거의 발견되지 않는 반면에 본 덕트 표면 오염 분진 시료에는 다량의 이러한 성분이 검출되었다. 여기서 Zn는 합석 표면의 아연 도금이 산화되어 부스러져 입자와 같이 혼합됨에 의한 것으로 사료되며, S 및 Ca는 본 덕트가 해체되기 전에 일반 실험실의 콘크리트 바닥을 파쇄하여 제염할 때 발생된 콘크리트 분진이 공기정화 계통에 집적된 것으로 판단된다.

또한 덕트 내부 표면의 방사능 오염 특성을 분석하였으며, 이때 계수 시간은 86400 초 (24 시간)이었고, 분석 결과는 Table 2에 수록하였다. 일반 실험실 및 핫셀 측 덕트 표면에 오염된 핵종은 Co-60와 Cs-137로 분석되었으며, Cs-137의 비방사능은 0.13 Bq/cm^2 으로 덕트 위치에 관계없이 동일하였으나 Co-60의 비방사능은 핫셀 측이 일반실험실 측보다 약 10배정도 더 크게 나타났다. 일반실험실 측의 Co-60의 비방사능은 덕트 밑면에 비해 측면이 약간 낮기는 하지만 별로 차이가 없는 것으로 보인다.

Table 2. Specific radioactivity of the ducts.

Sample	Radionuclide	Specific Radioactivity (Bq/cm^2)	
		Co-60	Cs-137
1		0.14	0.13
2		0.13	0.13
3		1.44	0.13

- ※ Note) 1: A lower surface of duct sample taken from a general laboratory.
 2: A side surface of duct sample taken from a general laboratory.
 3: A surface of duct sample taken from a hot cell.

나. 덕트폐기물의 제염결과

TRIGA 연구로의 일반 실험실로부터 인출된 덕트 밀면의 시편을 탈염수 내에서 브러시로 닦아내거나 초음파를 적용하여 제염하였으며, 그 결과는 Fig. 2에 수록하였다.

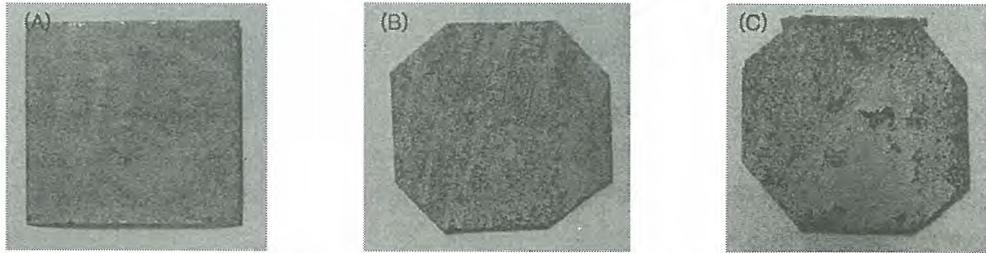


Fig. 2. Comparison of duct surfaces after decontamination by brushing(B), and ultrasonication for 2 minutes(C) in demineralized water at room temperature and before decontamination(A)

덕트 시편을 물로 세척하거나 물을 매체로 한 초음파를 적용한 경우에 표면 방사능은 초기에 비하여 10~30% 정도만이 제거됨을 알 수 있었으며 이는 오염물질이 페인트 도막 내부까지 침투되었음을 의미한다. 따라서 효과적인 제염을 위해서는 페인트 도막을 제거할 필요성이 있음을 알 수 있다.

페인트 제거제로써 염 및 염기성 화합물들이 다른 화합물들과 혼합하여 사용되고 있다는 사례 조사 [4]를 통해 KOH를 페인트 제거제로 선정하여, 페인트 도막 제거 실험과 함께 방사능이 제거되는 거동을 살펴보았다. 시편 표면을 상온 및 65°C의 1 M KOH 용액 내에 5~20분 동안 잠기도록 하여 제염한 경우에도 페인트 도막은 완전히 제거되지 않았으며, 온도가 증가함에 따라 페인트 제거 속도 역시 훨씬 증진됨을 보였으며, 이때 방사능은 초기의 40~50%가 제거되었다. 그러나 65°C의 1 M KOH 용액 내에서 초음파를 동시에 2분 동안 적용한 경우 덕트 표면에 있었던 페인트 도막은 완전히 제거되어 아연으로 도금된 합석 표면의 형상이 나타났으며, 방사능 준위도 95% 이상 제거되었다. 이 표면의 형상은 Fig. 3에 수록하였다.

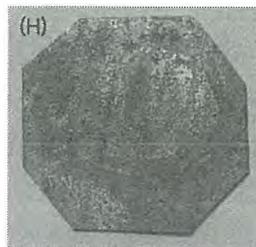


Fig. 3. The surface of duct specimen after decontamination by ultrasonication for 2 minutes in 1 M KOH solution at 65°C.

Fig. 3과 같은 결과에서도 방사능 준위가 background보다 약간 높게 나타나고 있으며 이는 일부 방사능 물질이 산화된 아연 도금막에 함침 되었다고 보이며, 따라서 덕트 폐기물을 비방사성 물질로 분류할 수 있게 되기 위해서는 아연 도금막까지 제거할 필요성이 있고 이를 위해 페인트 도막이 완전 제거된 시편을 1 M 질산 및 1 M 황산 용액을 사용하여 제염하였으며, 아연 도금막을 5분 내에 완전히 제거함으로써 자연방사능 준위까지 제염할 수 있었다. (Fig. 4)

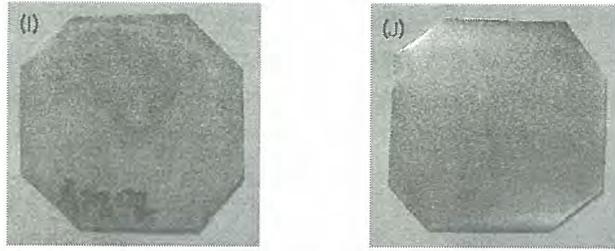


Fig. 4. The surface of duct specimens by decontaminating in 1 M HNO₃ for 5 minutes(I), and 1 M H₂SO₄ for 5 minutes(J) after treatment with the ultrasonication for 2 minutes in 1 M KOH solution at 65°C.

일반 실험실 덕트 윗면 및 페인트 도막의 종류가 다른 핫셀 내 덕트 시편 표면을 초음파 적용 유무에서 탈염수, KOH 용액 및 황산 용액으로 적용한 경우 일반 실험실 덕트 밑면 제염과 동일한 결과를 얻을 수 있었다.

다. 덕트 폐기물 제염 공정의 제안

덕트폐기물 제염 실험을 통해서 얻은 결과로부터 TRIGA 연구로 덕트폐기물의 자체처분을 위한 제염공정을 제안하였다. 덕트폐기물의 제염공정은 초음파 제염조에 맞게 적절한 크기로 절단된 덕트폐기물을 넣고 약 5분 동안 상온의 탈염수 내에서 표면에 loose하게 부착된 먼지 및 열화된 페인트 도막을 제거한 다음, 60°C 이상의 1 M KOH 용액 내에서 2분 동안 초음파 적용에 의해 페인트 도막을 완전 제거하고, 탈염수 내에서 KOH 제염 후 표면을 세척하는 세정단계를 거친다. 그래도 오염이 목표치까지 제거되지 않으면 상온의 1 M 황산 용액 내에서 5분 동안의 초음파를 적용하여 페인트 도막이 완전히 제거된 덕트 표면의 아연 도금막을 제거한 다음 최종적으로 탈염수 내에서 황산 제염 후 표면을 세척하고 건조시킨다. 이 과정을 거치면 덕트 표면 오염이 거의 완전하게 제거될 수 있을 것으로 기대된다.

사 사

본 연구는 과학기술부에서 지원하는 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

참 고 문 헌

1. J. A. Ayers, "Decontamination of Nuclear Reactors and Equipment", p. 4 in Sect. 1, The Ronald Press Company, New York (1970).
2. W. N. Rankin and J. F. McGlynn, "Overview of Decontamination Technology", DOE Report WSRC-RP-89-1080 (1990).
3. R. Kaiser, in "Particles on surfaces 2: Detection, adhesion, and removal", K.L.Mittal, Ed., pp. 269-282, Plenum Press, New York, NY (1989).
4. International Atomic Energy Agency, "State of the Art Technology for Decontamination and dismantling of Nuclear Facilities", Technical Reports Series No. 395, IAEA, Vienna (1999).



Korean Radioactive Waste Society

대전시 유성구 덕진동 150번지 원자력 연구소 정보과학동 3층 301호
 TEL ++82-42-861-5851 FAX ++82-42-861-5852 e-mail krs@kaeri.re.kr