

Proceedings of the  
Korean Radioactive Waste Society  
Spring 2004

# 한국방사성폐기물학회 학술논문집

- 2004년 봄 -

- 일자 : 2004. 6. 24~25 (목~금) • 장소 : 경희대학교
- 주관 : 한국방사성폐기물학회 · 경희대학교



한국방사성폐기물학회

Proceedings of the  
Korean Radioactive Waste Society  
Spring 2004

# 한국방사성폐기물학회 학술논문집

- 2004년 봄 -

- 일자 : 2004. 6. 24~25 (목~금) • 장소 : 경희대학교
- 주관 : 한국방사성폐기물학회 · 경희대학교



한국방사성폐기물학회

빈 면

# 목 차

제1분과(A) : 방사성폐기물 정책 및 제염해체

좌장 : 양호연 · 이연명

10:00	Removal of Cesium and Cobalt within Soil around TRIGA Reactor by Electrokinetic Method .....	13
	Gye-Nam Kim, Hui-Jun Won, Chong-Hun Jung and Won-Zin Oh [KAERI]	
10:20	해체부지의 잔류방사능 조사 절차 수립에 관한 연구 .....	24
	김학수 · 임용규 · 박경록 · 손중권 · 강기두 · 김경덕 [원자력환경기술원] 정찬우 [한국원자력안전기술원]	
10:40	Removal of Metallic Cobalt Layers by Reactive Cold Plasma .....	32
	Yong-Soo Kim, Sang-Hwan Jeon, Byung-Joo Yim and Hyo-Cheol Lee [H. U] Jong-Heon Jung and Kye-Nam Kim [KAERI]	
11:10	Monte Carlo 모사기법을 이용한 해체 콘크리트의 방사능 분석법 연구 .....	43
	서범경 · 김계홍 · 정운수 · 이근우 · 오원진 · 박진호 [한국원자력연구소]	
11:30	해체 부지 선량평가모델의 주요 핵종에 대한 Key Parameter 분석 .....	52
	임용규 · 김학수 · 손중권 · 박경록 · 강기두 · 김경덕 [원자력환경기술원] 정찬우 [한국원자력안전기술원]	
11:50	연구로 해체정보 관리를 위한 데이터베이스 시스템 개발 .....	58
	정관성 · 이동규 · 박희성 · 이근우 · 오원진 [한국원자력연구소]	
13:40	중성염 용액 내에서 우리늄으로 오염된 금속성 해체폐기물의 전해제염 .....	72
	최왕규 · 이성렬 · 김계남 · 원휘준 · 정종현 · 오원진 [한국원자력연구소]	
14:00	이해당사자 신뢰성 증진을 위한 유럽연합의 RISCUM II 프로젝트 사례현황 .....	81
	황용수 · 정미선 · 강철형 [한국원자력연구소]	
14:20	원자력시설 해체비용 산정에 관한 고찰 .....	85
	이동규 · 정관성 · 이근우 · 오원진 [한국원자력연구소]	
14:40	원자력시설 해체 시 특성평가를 위한 표면오염 탐지 이중구조 고분자 복합체의 제조 .....	97
	한명진 [경일대학교] 서범경 · 우주희 · 이근우 [한국원자력연구소]	
15:00	Thermal Behavior of the Nuclear Graphite Waste Generated from the Decommissioning of the Nuclear Research Reactor .....	105
	Hee-Chul Yang, Hee-Chul Eun, Dong-Gyu Lee, Yong-Jun Cho, Young-Ae Kang, Keun-Woo Lee and Won-Zin Oh [KAERI]	

제1분과(A) : 방사성폐기물 정책 및 제염해체 (Poster)

P01A01	해체 금속폐기물의 처리 방안 연구 .....	117
	최왕규 · 송평섭 · 김학이 · 이성렬 · 정종현 · 오원진 [한국원자력연구소]	

P01A02	Selective Adsorption of Uranium Ions in High Concentration of Chemical Salts .....	119
	ChongHun Jung, HuiJun Won, GyeNam Kim, WangKyu Choi and WonZin Oh [KAERI]	
P01A03	Establishment of the Strategy for An Active Participation in the IAEA Program and Its Effective Implementation in the Fields of the Nuclear Fuel Cycle and Materials Technology .....	121
	Kyoung-Pyo Kim, Seong-Won PARK, Tae-Woon KIM and S. Ho KIM [KAERI]	
P01A04	초임계 이산화탄소를 응용한 개질 제강 슬래그의 Cs 및 Co 이온의 제거 특성 .....	122
	김민길 · 현재혁 [충남대학교] 원휘준 · 김계남 · 오원진 · 정종현 [한국원자력연구소]	
P01A05	WACID 시스템에서 XML 데이터의 생성 및 활용방안 .....	124
	한명길 · 정재학 · 박원재 [한국원자력안전기술원]	
P01A06	방사성폐기물 안전관리 정보공개 홈페이지 .....	127
	조용백 · 정덕진 · 송지연 · 안경일 [대상정보기술(주)]	
P01A07	해체 콘크리트폐기물 재활용을 위한 외부피폭경로 시나리오 평가 .....	130
	홍상범 · 김계홍 · 정운수 · 박진호 [한국원자력연구소]	
P01A08	선택성 이온교환수지에 의한 Cs 함유 토양 제염폐액 전화 .....	131
	원휘준 · 김계남 · 오원진 · 정종현 [한국원자력연구소]	
P01A09	Robotic Floor Surface Decontamination System .....	133
	Kiho Kim, Jangjin Park and Myungseung Yang [KAERI]	

**제2분과(B) : 방사성폐기물처리 및 처분**

**좌장 : 김경덕 · 이근우**

10:00	레이저유도 플라즈마분광법을 이용한 방사성폐기물 유리의 현장분석 시스템 개발 .....	137
	김천우 · 박종길 · 신상운 · 하중현 · 송명재 [원자력환경기술원] 이계호 [충남대학교]	
10:20	중수로 원전 14C 발생 특성 및 이온교환수지에 의한 14C 흡 · 착탈 거동 분석 .....	147
	이상진 · 양호연 · 김경덕 [원자력환경기술원]	
10:40	원전 발생 고체 방사성폐기물 내 핵종 분석을 위한 극초단파 산분해 장치를 이용한 용액화 조건 .....	158
	표형열 · 이정진 · 이창현 · 지광용 [한국원자력연구소] 전종선 [(주)액트]	
11:10	Long-term Dissolution Behavior of Cesium from Spent PWR Fuel in Contact with Compacted Bentonite under Synthetic Granitic Groundwater .....	167
	Kwan Sik Chun, Seung Soo Kim, Seong Jea Bak and Jongwon Choi [KAERI]	
11:30	Application of Dose to Curie Conversion Method Using MCNP-4C Code for the Evaluation of Radionuclide Inventory in a Radioactive Waste Container .....	174
	Sang-hee Kang, Ki-ha Hwang, Sang-chul lee and Kun-jai Lee [KAIST] Tae-wook Kim, Kyoung-deok Kim, Young-hoi Herr and Myung-jae Song [KHNP]	

11:50	중·저준위 방사성폐기물 처분시설 운영기준 수립 방안 .....	175
	정찬우·이윤근·김홍태·박원재·석태원·박상훈 [한국원자력안전기술원]	
13:40	Non-Additive Ranking of Release Scenarios in a Low and Intermediate Waste Repository .....	188
	Seong Ho KIM, Tae Woon KIM and Jaejoo Ha [KAERI]	
14:00	중·저준위 방사성폐기물 처분장 안전성 평가를 위한 시나리오 도출 .....	189
	한지웅·황용수·서은진·이연명·강철형 [한국원자력연구소]	
14:20	천층처분시설에서의 주요 안전성인자 영향 분석 .....	193
	박주완·김현주·김창락 [원자력환경기술원]	
14:40	Engineering-scale Test for Validating the T-H-M Behavior of a HLW Repository: Experimental Set-up .....	194
	Jae Owan Lee, Min Hoon Baik and Won Jin Cho [KAERI]	
15:00	고준위폐기물 처분연구를 위한 지하연구시설에 대한 기본설계 .....	199
	권상기·박정화·조원진·한필수 [한국원자력연구소]	

**제2분과(B) : 방사성폐기물 처리 및 처분 (Poster)**

P02B01	바코드 시스템을 이용한 방사성 고체폐기물 관리 .....	211
	이영희·조한석·손종식 [한국원자력연구소]	
P02B02	모의 저준위 방사성폐기물 동굴 지하수 유동 평가 .....	212
	황용수·서은진·강철형 [한국원자력연구소]	
P02B03	원전고화폐기물 특성시험을 위한 시험법 선정방법 .....	219
	김기홍·유영걸·홍권표 [한국원자력연구소]	
	정의영·박종현·김 현 [원자력환경기술원]	
P02B04	수소동위원소 운반용기의 건전성 평가 .....	222
	임성팔·이민수·방경식·김광락·서기석·정홍석 [한국원자력연구소]	
P02B05	처분환경에서 처분용기 재질의 부식 .....	223
	김승수·전관식·김영복·연제원·최종원·한필수 [한국원자력연구소]	
P02B06	<sup>14</sup> C를 함유한 톨루엔의 산화반응 및 액체성광계수를 이용한 정량적 분석 .....	225
	이홍래·안홍주·송병철·김정석·박순달·한선호·지광용 [한국원자력연구소]	
P02B07	고준위폐기물 지하처분연구시설 부지 특성에 관한 연구 .....	226
	김건기·권상기·조원진·박정화 [한국원자력연구소]	
P02B08	Effect of the Repository Configuration on Radionuclide Transport with the Multi-compartment Model for the LILW Repository Performance .....	228
	JinBeak Park, Joo Wan Park and Chang Lak Kim [NETEC]	
	Joonhong Ahn and Daisuke Kawasaki [U. California, USA]	
P02B09	용존산소 제거용 중공사 탈기막의 방사선장하에서의 영향평가에 대한 연구 .....	229
	김문수·이두호·강덕원 [한전전력연구원]	

P02B10	EPMA를 이용한 증기발생기 내부 침적물 분석 .....	230
	유병옥 · 정양홍 · 김도식 · 백승제 · 김기하 · 주용선 박남홍 · 이종현 [한국원자력연구소]	
P02B11	U 포함 질산염 용액의 안정화에 미치는 Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 의 영향 .....	232
	오종혁 · 황두성 · 김연구 · 이규일 · 최윤동 · 황성태 박진호 [한국원자력연구소]	
P02B12	원전 humidifier 제어용 감압 밸브 제어 및 방사능 inventory 평가 .....	233
	김진태 · 지준화 · 김진길 · 강덕원 [한전전력연구원]	
P02B13	밀봉선원폐기를 처분을 위한 분류방안 도출 .....	235
	이지훈 · 이태범 · 박주완 · 김창락 [원자력환경기술원]	
P02B14	삼중수소수 처리를 위한 전기분해-촉매교환 결합 공정 모델링 .....	236
	김광락 · 안도희 · 백승우 · 이민수 · 임성팔 · 정홍석 [한국원자력연구소]	
P02B15	염폐기물의 전처분 .....	237
	김준형 · 김환영 · 김인태 · 박환서 [한국원자력연구소]	
P02B16	리군슬러지 처리 공정 평가 및 개선 .....	238
	황두성 · 오종혁 · 김연구 · 이규일 · 최윤동 · 황성태 박진호 [한국원자력연구소]	
P02B17	삼중수소 활용 : 지발광유리관 (SLGT) 제조기술 .....	239
	김경숙 · 김광신 · 정은수 · 손순환 [한전전력연구원]	
P02B18	방사성폐기물 통합관리 시스템의 구축과 활용 .....	241
	이영희 · 조한석 · 손종식 [한국원자력연구소]	
P02B19	토양제염 실증실험을 위한 세척수 재순환장치의 성능시험 .....	242
	손준권 · 이강원 · 강기두 · 김학수 · 박경록 · 김경덕 [원자력환경기술원]	
P02B20	플라즈마를 이용한 고체방사성폐기물 건식제염기 개발 .....	243
	김중화 · 박승현 · 백승훈 [한일원자력(주)]	
	김용수 · 전상환 [한양대학교]	
P02B21	염폐기물 고정화 생성물의 PCT 침출 및 고정화 특성 .....	245
	이재희 · 김정국 · 김준형 [한국원자력연구소]	
P02B22	발포유리 조성물 및 이를 이용한 발포유리 전구체의 제조방법 .....	246
	이민수 · 최현순 · 정홍석 · 안도희 · 백승우 · 김광락 임성팔 [한국원자력연구소]	
P02B23	수소동위원소의 회분식 저장특성 .....	247
	백승우 · 안도희 · 김광락 · 이민수 · 임성팔 · 정홍석 [한국원자력연구소]	
P02B24	하나로의 방사성폐기물 저장 대책에 대한 연구 .....	248
	강태진 · 임인철 · 최호영 · 이병헌 [한국원자력연구소]	
P02B25	수조고온층의 사용 후 이온교환수지 처리시 작업자의 피폭 방사선량 최소화를 위한 연구 .....	250
	강태진 · 임인철 · 김명섭 · 최호영 · 이의규 [한국원자력연구소]	
P02B26	방사성 금속오염물의 표면오염제거를 위한 초음계 이산화탄소내 마이크로밀전 적용연구 .....	252
	주민수 · 고문성 · 박광현 · 김학원 · 김홍두 [경희대학교]	
P02B27	Optimization of Artificial Neural Network Model in Scaling Factor Determination Method .....	254
	Sang Chul Lee, Ki Ha Hwang, Sang Hee Kang and Kun Jai Lee [KAIST]	

P02B28	금속 킬레이트제의 시너지효과를 이용한 신용매 (CO <sub>2</sub> )내 금속이온 추출연구 .....	255
	고문성 · 박광현 · 김학원 · 김홍두 [경희대학교]	
P02B29	Glass Dissolution Rates from MCC-1 and Flow-Through Tests .....	257
	Seung-Young Jeong [KINS]	

제3분과(C) : 사용후핵연료 및 핵연료주기

좌장 : 박성원 · 윤지섭

10:00	국내 사용후핵연료 현황 분석 .....	261
	조동건 · 최종원 [한국원자력연구소]	
	이희환 [한국수력원자력(주)]	
10:20	사용후핵연료 전기환원 공정에서의 알카리, 알카리도 금속 산화물들의 거동 분석 .....	268
	박병홍 · 강대승 · 서중석 · 박성원 [한국원자력연구소]	
10:40	전해환원공정 관련 후처리공정 금속전환체 Smelting 및 용융염 고화 .....	278
	허진목 · 정명수 · 이원경 · 조수행 · 서중석 · 박성원 [한국원자력연구소]	
11:10	고온용융염계 산화분위기에서 초합금의 부식거동 .....	285
	조수행 · 임중호 · 정준호 · 이원경 · 오승철 · 박성원 [한국원자력연구소]	
11:30	지수감쇠계수의 자동 및 정밀 측정을 위한 지수실험장치 개선 .....	292
	신희성 · 장지운 · 이윤희 · 황용화 · 김호동 [한국원자력연구소]	
11:50	차세대관리 종합공정 실증시설의 핫셀 장비 및 핵물질의 반 출입 체계 .....	304
	이은표 · 유길성 · 정원명 · 구정희 · 조일제 · 국동학 · 박성원 · 주준식 [한국원자력연구소]	
13:40	영상 및 방사선 신호를 이용한 핵물질 감시시스템 .....	305
	송대용 · 이상윤 · 하장호 · 고원일 · 김호동 · 이태훈 [한국원자력연구소]	
14:00	차세대관리 공정장치 유지보수용 천정이동 서보 매니플레이터 시제품의 와이어 구동부 동작 특성 .....	306
	박병석 · 진재현 · 송태길 · 김성현 · 윤지섭 [한국원자력연구소]	
14:20	OREOX 공정에서 사용후핵연료로부터 핵분열기체 방출거동 .....	316
	박근일 · 김웅기 · 이도연 · 이영순 · 이정원 · 양명승 [한국원자력연구소]	
14:40	The Effect of Processing Parameters on the Deposition Behavior of a Spent Fuel Surrogate in the Molten Salt Electrorefining .....	319
	Jong-Hyeon Lee, Young-Ho Kang, Sung-Chan Hwang, Eung-Ho Kim and Jae-Hyung Yoo [KAERI]	

제3분과(C) : 사용후핵연료 및 핵연료주기(Poster)

P03C01	고온 용융염에 활용 가능한 Ag/AgCl 기준전극 제조 및 이를 이용한 Cd 액체음극에서의 란타늄 염화물의 순환 전압 전류 특성 .....	333
	안병길 · 심준보 · 김우호 · 유재형 [한국원자력연구소]	
P03C02	방사성환기시설비 운전에서 있어서의 부암변동 요인 및 대응 방안 .....	334
	이강무 · 이범철 · 이영희 · 김태국 · 손종식 · 홍권표 [한국원자력연구소]	
	김홍태 [한국원자력안전기술원]	

P03C03	Decomposition of Fe-EDTA in Nuclear Waste Water by Using Underwater Discharge Plasma .....	336
	Jin-Kil Kim and Duk-Won Kang [KEPRI]	
	Han-Yong Lee and Han-Sup Uhm [AU]	
P03C04	Electrolytic Deposition of Metal Ions Using A Liquid Cadmium Cathode .....	337
	Joon-Bo Shim, Byung-Gil Ahn, Sang-Woon Kwon, Eung-Ho Kim and	
	Jae-Hyung Yoo [KAERI]	
P03C05	전해정련 공정에서 지르코늄 및 세륨의 고체음극에 대한 전착특성 .....	338
	권상운 · 강영호 · 김우호 · 유재형 [한국원자력연구소]	
P03C06	LiCl-KCl 용융염에서 Cd-Li 금속을 이용한 U 및 란타늄족의 환원반응 .....	339
	우문식 · 이병직 · 김우호 · 유재형 [한국원자력연구소]	
P03C07	모의 사용후핵연료를 이용한 건식재가공 핵연료 분말 및 소결 특성 연구 .....	340
	이재원 · 신원철 · 김웅기 · 조광훈 · 이정원 [한국원자력연구소]	
P03C08	조사재시험시설 풀물속에 설치된 1톤 버킷 엘리베이터 고찰 .....	342
	송용섭 · 이종현 · 이흥기 · 주용선 · 홍권표 [한국원자력연구소]	
P03C09	사용후핵연료 차세대관리 종합공정 실증시설 개발 현황 .....	344
	유길성 · 정원명 · 구정희 · 조일제 · 국동학 · 이은표 · 박성원 [한국원자력연구소]	
P03C10	사용후핵연료 수송저장 용기의 운전 및 유지보수 .....	345
	구정희 · 서기석 · 정원명 · 유길성 · 박성원 [한국원자력연구소]	
P03C11	차세대관리 종합공정 실증시설 안전성 평가 .....	346
	정원명 · 구정희 · 조일제 · 국동학 · 이은표 · 유길성 · 박성원 [한국원자력연구소]	
P03C12	핫셀 운영을 위한 부속 설치물의 차폐능 평가 .....	347
	조일제 · 국동학 · 구정희 · 정원명 · 유길성 · 이은표 · 박성원 [한국원자력연구소]	
P03C13	ACP 핫셀의 방사선안전관리 시스템 .....	349
	국동학 · 정원명 · 구정희 · 조일제 · 이은표 · 유길성 [한국원자력연구소]	
P03C14	사용후연료 저장용기 캐니스터의 낙하평가 .....	350
	서기석 · 신동필 · 박성원 [한국원자력연구소]	
	정성환 · 이흥영 [원자력환경기술원]	
P03C15	사용후핵연료 금속전환체 저장용기의 열전달해석 평가 .....	351
	이주찬 · 방경식 · 신희성 · 서기석 · 김호동 [한국원자력연구소]	
P03C16	SnO <sub>2</sub> 양극을 이용한 전기화학적 금속전환 mock-up (5 kg U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> /batch) 시험 .....	352
	오승철 · 홍순석 · 이원경 · 허진목 · 서중석 · 박성원 [한국원자력연구소]	
P03C17	비증착 방법에 의한 사용후핵연료의 EPMA 분석 .....	353
	정양홍 · 송용섭 · 김도식 · 김희문 [한국원자력연구소]	
P03C18	모의 금속전환체 U-1wt%Nb 합금의 공기중 산화거동 .....	355
	이은표 · 주준식 · 유길성 · 조일제 · 국동학 · 김호동 [한국원자력연구소]	
P03C19	원격 작업환경에서 3차원 디지털 가상모형 (Digital Mock-Up)의 활용 .....	356
	송태길 · 김성현 · 윤지섭 [한국원자력연구소]	

P03C20	차세대관리 종합공정 실증시설의 핵물질 이동 감시 체계 설계 .....	358
	송대용 · 이상윤 · 하장호 · 고원일 · 김호동 · 이태훈 [한국원자력연구소]	

제4분과(D) : 방사선안전 및 환경

좌장 : 정양근 · 지광용

10:00	국내 원자력발전소 주변 삼중수소 및 <sup>14</sup> C 섭취선량 평가 경로인자 분석 .....	361
	이갑복 · 정양근 · 방선영 · 엄희문 [한전 전력연구원]	
10:20	자료동화기술을 이용한 대기중 오염물질 확산평가 .....	368
	한문희 · 정효준 · 김은한 · 서경석 · 황원태 · 이선미 [한국원자력연구소]	
10:40	하나로의 방사성폐기물 발생 현황 .....	377
	강태진 · 임인철 · 최호영 · 이용섭 [한국원자력연구소]	
11:10	Dynamic Modeling of the Korean Nuclear Fuel Cycle .....	386
	Chang Joon Jeong, Joo Hwan Park and Hangbok Choi [KAERI]	
11:30	화석연료 및 원자력 발전원의 전과정 환경영향평가 비교 .....	396
	김태운 · 김성호 · 하재주 · 정종태 [한국원자력연구소]	
11:50	Radiation Activity of Safety-Related Fission Products of DUPIC Fuel .....	397
	Ho Jin Ryu, Chang Je Park, Hangbok Choi and Kee Chan Song [KAERI]	
13:40	지형 및 지질에 따른 Cs-137 분포 및 거동에 관한 연구 .....	398
	한상준 · 박응섭 · 이홍연 [영광원전 환경 · 안전감시센터]	
	이경진 [조선대학교]	
	김희근 [한전 전력연구원]	
14:00	천연우라늄 오염에 관한 방사선/능 측정기술 연구 .....	407
	정운수 · 홍상범 · 서범경 · 박진호 [한국원자력연구소]	
	조용우 · 조성원 · 이정민 [한국방사선기술연구소]	
14:20	핵분열 트랙기입법을 이용한 환경 시료 중의 미량 우라늄 분석 .....	418
	표형열 · 이상경 · 이창현 · 한선호 · 박용준 [한국원자력연구소]	
14:40	방사선 계측기의 품질관리 및 최소검출방사능 측정 .....	419
	송병철 · 한성심 · 김영복 · 지광용 · 손세철 [한국원자력연구소]	

제4분과(D) : 방사선안전 및 환경 (Poster)

P04D01	3차원 그래픽 시뮬레이션 기술을 이용한 원자력 발전소 폐기물 처리 작업 중 동선에 따른 방사선 피폭 변화 .....	427
	박원만 · 김윤혁 · 김경수 · 황주호 [경희대학교]	
P04D02	방사선폐기물 원격감시용 이동로봇 .....	430
	서용철 · 김창희 · 조재완 · 최영수 · 김승호 [한국원자력연구소]	
P04D03	Study in Background Reduction for the Neutron Induced Prompt Gamma-ray Spectroscopy .....	433
	Byoung Chul Song Kwang Yong Jee and Yong Joon Park [KAERI]	

P04D04	Ir-192 100 ci용 조사기 열 시험 .....	434
	방경식 · 이주찬 · 김동학 · 이재호 · 서기석 [한국원자력연구소]	
P04D05	국내 발전원의 전과정 환경평가의 조감 : 방사성 물질 영향범주의 고려 .....	435
	김태운 · 김성호 · 하재주 · 김경표 [한국원자력연구소]	
P04D06	사용후연료 건식 저장용기의 전복 응력해석 .....	436
	신동필 · 서기석 [한국원자력연구소]	
	최병일 · 이홍영 [원자력환경기술원]	
P04D07	원자력시설의 정상운영시 주민피폭선량평가 입력 자료의 개선 .....	437
	전제근 · 이관희 [한국원자력안전기술원]	

## 제1분과 (A)

# 방사성폐기물 정책 및 제염해체

빈 면

**Removal of Cesium and Cobalt within Soil around TRIGA Reactor  
by Electrokinetic method**

동전기적방법을 이용한 TRIGA 연구로 주변 토양내의 세슘과 코발트 제거

Gye-Nam Kim, Hui-Jun Won, Chong-Hun Jung and Won-Zin Oh

Researcher, Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yuseong-Ku, Daejeon

김계남, 원휘준, 정중훈, 오원진

원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150 번지

**Abstract**

The characteristics of cesium and cobalt removal from soil around the TRIGA reactor using the electrokinetic method were analyzed and a device to restrain the pH increase in the soil column was suggested. When a NaCl solution was used as the electrolyte to raise the electric field strength, a precipitate was formed in the cathode in the soil column, resulting in a low removal efficiency. Thus, an acetate buffer solution (compound solution of  $CH_3COONa$  and  $CH_3COOH$ ) was injected into the soil column and acetic acid was periodically injected into the cathode reservoir to restrain any pH increase. Many  $Cs^{2+}$  and  $Co^{2+}$  ions were transferred by electromigration rather than electroosmosis during the initial remediation period, and no precipitate was formed in the soil column. 96% of the total amount of cesium in the soil column was removed after 5.9 days, while 94% of the total amount of cobalt was removed. Furthermore, the residual concentrations predicted by the developed model were similar to those obtained by experiment.

**Key Words :** Electrokinetic method, Acetate buffer, Soil around TRIGA, Cesium, Cobalt

**요약**

동전기적방법을 사용하여 TRIGA 연구용 원자로 주변 세슘 및 코발트 제거 특성을 분석하고 토양컬럼 내의 pH 상승을 제거할 수 있는 방안을 제시했다. 전기장을 높이기 위해 NaCl 용액이 전해질로 사용되었을 때, 토양컬럼 음극주변에 침전물이 형성되어 낮은 제거효율을 나타냈다. 그래서, pH의 상승을 억제하기 위해 초산완충액을 토양컬럼에 주입하고, 초산을 주기적으로 음극저수조에 주입했다. 초기제염기간 동안 전기삼투보다는 전기이동에 의해 많은 세슘과 코발트가 제거되었다. 토양컬럼 내의 총 세슘 중 96%가 5.9 일 동안 제거되었고, 총 코발트 중 94%가 제거되었

다. 또한, 개발된 모델에 의한 시뮬레이션 결과는 실험결과와 거의 일치했다.

중심단어 : 동전기적방법, 초산완충액, TRIGA 주변 토양, 세슘, 코발트

## I. Introduction

South Korea has many nuclear power plants and two research reactors. As such, the soil around the nuclear facilities can be contaminated with radionuclides over the long-term operation of these facilities. The Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI) had removed the soil contaminated with radionuclides from around the TRIGA research reactor in 1987, had placed it in 4000 sets of 200L-wastedrums, and has been storing the drums in a radioactive waste storage in KAERI since 1987. The contamination characteristics of TRIGA soil are shown in Table 1. The smaller the size of the soil particles is, the higher the radioactive concentration in the soil particles is. Plus the contamination concentrations of  $^{137}\text{Cs}$  are higher than those of  $^{60}\text{Co}$ . However, the radioactivities of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$  in parts of the contaminated soil have been found to be higher than the restoration target (400 Bq/kg). Therefore, it is necessary to develop a technology for decontaminating the TRIGA soil contaminated with radionuclides.

During the past decade, the necessity of developing economical techniques for decontaminating large areas of contaminated soil has grown. Existing technology, such as soil washing and soil flushing, is only effective in decontaminating the soils with a high hydraulic conductivity. Yet, electrokinetic remediation offers the possibility of in-situ and ex-situ remediation of contaminants in cases where conventional techniques are unfeasible. In electric field restoration, pairs of electrodes are placed in the contaminated soil and a direct current potential is applied across them. The contaminants are then transported under the action of the electric field to an electrode reservoir from which they can be brought to the surface. Unlike soil flushing, the electrokinetic method is effective in soils with a low or variable permeability and does not disperse the contaminants outside the treatment zone.

The  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$  in the large particles ( $>0.063\text{mm}$ ) of TRIGA soil can be removed by the soil washing method, yet, the  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$  in the minute particles ( $<0.063\text{mm}$ ) are hardly removed by this method. In particular, the removal efficiency of  $^{137}\text{Cs}$  from minute particles ( $<0.063\text{mm}$ ) by soil washing is extremely low. Accordingly, the current study applied the electrokinetic method to the removal of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$  from minute particles of soil and investigated the optimum experimental conditions for maximizing the removal efficiency of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$ .

Heavy metals incorporated into soils take different chemical forms, including a dissolved ionic form, electrostatically absorbed form, and surface complex form. In electrokinetic remediation, the pH of the cathode side in the soil column increases due to the production of  $\text{OH}^-$  in the cathode electrode. As such, a hydroxide precipitate forms in the cathode side and the removal efficiency of the contaminants is reduced. Li. et al. reported that a decrease in both conductivity and metal precipitation can be avoided by injecting a 0.01 M  $\text{KNO}_3$  solution into the soil or by inserting a cation selective membrane between the cathode and the soil to stop

**Table 1. Contamination characteristics of TRIGA soil**

Radiation dose rate of waste drum surface	Soil Particle Size	Volume(%)	Co-60(Bq/kg)	Cs-137(Bq/kg)
above 0.05mR/h ( 7%)	>1.0mm	28.3	38.9-233.7	1.5-886.0
	0.063-1.0mm	61.2	155.2-1079.3	16.3-6700.2
	<0.063mm	10.5	480.5-6645.0	47.1-19547.0
0.02-0.05mR/h (60%)	>1.0mm	48.5	2.6-24.0	0.3-35.1
	0.063-1.0mm	46.5	6.3-217.8	13.9-436.7
	<0.063mm	5.0	31.1-316.4	287.9-1663.7
below 0.02mR/h (33%)	>1.0mm	52.4	5.3-15.2	2.5-7.0
	0.063-1.0mm	43.1	14.1-69.1	25.4-53.0
	<0.063mm	4.5	56.3-204.7	85.6-377.2

the advancement of the hydroxyl front toward the anode. The electrolyte pH is then controlled by the addition of 0.05 M KOH at the anode and 0.05 M HCl at cathode. Hyunho Lee and Jiwon Yang also developed a new method of controlling the electrolyte pH using a circulation system in electrokinetic soil remediation. Plus, to avoid the precipitation of copper hydroxide in a sand column, Jiwei Yu and Ivara Neretnieks inserted a conductive solution between the sand and the cathode. The removal rates of heavy metals from soil have also been increased with the addition of salts of competing noncontaminant cations, soil acidification, and catholyte drainage. According to the results of previous experiments, after the discharge of about 3 pore volumes of effluent from a soil column by electrokinetic remediation, more than 90% of the cobalt in the soil column is removed. Thus, in the case of soil mixed with a buffer solution in a soil column, it is predicted that the pH in the column will remain constant and any pH increase will be restrained.

In the current study, TRIGA soil (<0.063mm) was artificially contaminated by a 0.01M Cs<sup>2+</sup> and Co<sup>2+</sup> solution, and the experiment for removing Cs<sup>2+</sup> and Co<sup>2+</sup> from the soil by the electrokinetic method was executed. An acetate buffer solution was mixed with the soil in the column to saturate the soil and restrain any pH increase in the column. Acetic acid was also periodically injected into the cathode reservoir to prevent a pH increase. The effect of the injection of an acetate buffer and acetic acid for removing the Cs<sup>2+</sup> and Co<sup>2+</sup> from the TRIGA soil was then analyzed. Finally, a numerical model was developed to simulate the residual concentrations after soil remediation, which was verified by comparing the model values with the experimental ones.

## II. Theorem and Modeling

### 1. Transport mechanisms

The electric field drives the contaminants toward the electrodes by two mechanisms. The first is electroosmosis, an electrokinetic phenomenon in which the saturating liquid and dissolved substances flow toward an electrode. The electroosmotic flow rate is proportional to the product of the applied electric field

strength and the  $\zeta$  potential at the soil-liquid interface. The value of the  $\zeta$  potential depends on the soil properties as well as the ionic strength and pH of the saturating liquid. A typical  $\zeta$  potential is about  $-10$  to  $-100$  V, and in a  $100\text{Vcm}^{-1}$  electric field, water will flow toward the cathode at a velocity of around  $1\text{-}10$   $\text{cm min}^{-1}$ . The second mechanism is electromigration in which charged ions move in the electric field strength, the charge on the ion, and the mobility of ion. The transport of charged ions by electromigration is generally more rapid than by electroosmosis. In cases where the ionic strength is high due to the presence of inorganic contaminants, the  $\zeta$  potential is small and transport occurs mainly by electromigration.

The contribution of each transport to the species flux is derived from the corresponding phenomenological relationship and extended to an isotropic porous medium using a vadose model. The bulk liquid velocity,  $u_c$ , in  $\text{cm min}^{-1}$  is described as the sum of the contribution due to electroosmosis,  $u_{e0}$ , in  $\text{cm min}^{-1}$  and due to any pressure gradient,  $u_h$ , in  $\text{cm min}^{-1}$ . The electroosmotic velocity is calculated from the Helmholtz-Smoluchowski relation

$$u_{e0} = \frac{\varepsilon\zeta}{\tau^2\mu} \nabla\phi \equiv k_e \nabla\phi \quad (1)$$

where  $u_{e0}$  is the pore velocity due to electroosmosis in  $\text{cm min}^{-1}$ ,  $\varepsilon$  the permittivity of the pore liquid in  $\text{F cm}^{-1}$ ,  $\zeta$  the zeta potential of the soil in V,  $\tau$  a nondimensional tortuosity factor that accounts for the capillary path and is greater than 1,  $\mu$  the viscosity of the pore liquid in  $\text{Pa}\cdot\text{min}$ ,  $\phi$  the electrostatic potential in V, and  $k_e$  in  $\text{cm}^2 (\text{V}\cdot\text{min})^{-1}$  an effective electroosmotic permeability coefficient used for convenience in the numerical formulation of the model.

The contribution of the pressure gradient is calculated from Darcy's Law

$$u_h = -\frac{k_h}{n\mu} \nabla p \equiv k'_h \nabla p \quad (2)$$

where  $u_h$  is the pore velocity in  $\text{cm min}^{-1}$  resulting from the pressure gradient,  $k_h$  the hydraulic permeability of the medium in  $\text{cm}^2$ ,  $n$  the porosity, and  $p$  the pressure in Pa. Again, an effective permeability coefficient  $k'_h$  in  $\text{cm}^2 (\text{Pa}\cdot\text{min})^{-1}$  is defined for convenience. For an individual species, the electromigration velocity,  $u_{em}$ , in  $\text{cm min}^{-1}$  is given by

$$u_{em} = -v zF \frac{\nabla\phi}{\tau^2} \equiv k_m \nabla\phi \quad (3)$$

where the migration velocity is relative to the pore liquid,  $v$  is the mobility defined as the velocity resulting from a unit force per mole,  $z$  the charge number,  $F$  Faraday's constant, and  $k_e$  an effective mobility coefficient in  $\text{cm}^2 (\text{V}\cdot\text{min})^{-1}$ .

Finally, the contribution of diffusion to the species flux for dilute solutions is given by Fick's law

$$j^d = -\frac{D}{\tau^2} \nabla C \quad (4)$$

where  $j^d$  is the molar flux due to diffusion in  $\text{mol}(\text{cm}^2\cdot\text{min})^{-1}$ ,  $C$  the molar concentration in the pore liquid in  $\text{mol cm}^{-3}$ , and  $D$  the diffusion coefficient in  $\text{cm}^2\text{min}^{-1}$ . Superposing the different mass-transfer mechanisms, the total flux of an individual species is given by

$$j = (u_{eo} + u_h + u_{em})C - \frac{D}{\tau^2} \nabla C \quad (5)$$

or in terms of the gradient of pressure, electrostatic potential, and concentration by

$$j = [(k_e + k_m) \nabla \phi + k_h \nabla p]C - \frac{D}{\tau^2} \nabla C \quad (6)$$

where  $j$  is the molar flux of species per unit pore area in  $\text{mol}(\text{cm}^2 \cdot \text{min})^{-1}$ . The coefficients  $k_e$ ,  $k_m$ ,  $k_h$ , and  $D_i \tau^{-2}$  may vary in space and time.

## 2. Change equation and charge balance

The equation for concentration change is derived from the application of the conservation of mass in a control volume of porous medium, which contains both the liquid and solid phases. Neglecting transport of adsorbed species, applying Gauss's divergence theorem, and taking the limit of infinitesimal control volume leads to

$$\frac{\partial(C + C^a)}{\partial t} + \nabla \cdot j = R \quad (7)$$

$C^a$  in  $\text{mol cm}^{-3}$  is the molar concentration in the adsorbed phase, and  $R$  is the net volumetric rates of production of chemical species due to chemical reactions.

But since the total mass of each element is conserved

$$R = 0 \quad (8)$$

Then, Eq.7 can be rewritten as follows.

$$\frac{\partial(C + C^a)}{\partial t} + \nabla \cdot ((u_{eo} + u_h + u_{em})C - \frac{D}{\tau^2} \nabla C) = 0 \quad (9)$$

The molar concentration of an individual species in the adsorbed phase is demonstrated by

$$C^a = \frac{\rho}{n} K_d C \quad (10)$$

where,  $K_d$  is the equilibrium sorption coefficient.

Substituting the pore velocity due to electroosmosis and the pressure gradient, and the electromigration velocity in Eq. 9 gives

$$\frac{\partial C}{\partial t} (1 + \frac{\rho}{n} K_d) = -(\frac{\epsilon \zeta}{\tau^2 \mu} \nabla \phi - \frac{k_h}{n \mu} \nabla p - v_z F \frac{\nabla \phi}{\tau^2}) \frac{\partial C}{\partial x} + \frac{D}{\tau^2} \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (11)$$

## 3. Initial and boundary conditions

Suitable initial and boundary conditions are needed to obtain the numerical solution of Eq.11.  $\text{Cs}^{2+}$  and  $\text{Co}^{2+}$  were initially uniformly distributed in the soil column. Since the  $\text{Cs}^{2+}$  and  $\text{Co}^{2+}$  concentrations in the solution in the anode reservoir were zero and the solution constantly flowed through the soil column, the initial and boundary conditions were as follows. Also, each electrode was given an electric potential of 100 voltages.

$$C(0,x) = C_0 \quad 0 < x < 20 \text{ (cm)}$$

$$C(t,0) = 0$$

$$\frac{\partial C}{\partial x}(t,20) = 0$$

$$\phi(t,0) = 100(V)$$

#### 4. Code development

A numerical code was developed to predict the residual contaminant concentration in the soil in the column after soil remediation by the electrokinetic method. An equation developed on the basis of the governing equation, Eq.11, was rewritten in FORTRAN 77 language. The Galerkin finite element method with a linear basis function, an implicit difference scheme for the space derivative, and a backward difference scheme for the time derivative were used. Also, the Thomas algorithm was used for the matrix calculation. Meanwhile, to avoid any numerical oscillation, the space step ( $\Delta x$ ) was selected so that  $P_e$  (Pecret number)  $\leq 2$ , and the time step ( $\Delta t$ ) so that  $Cu_e$  (Courant number)  $\leq 1$ .

### III. Soil Remediation Experiment

#### 1. Soil components and measurement of input parameters for simulation

The main components of the TRIGA soil were  $SiO_2$ ,  $Al_2O_3$  and  $K_2O$ . Also, the physical characteristics of the soil, such as the dry bulk density, porosity, and water content are listed in Table 2. The experimental methods are as follows: dry bulk density ( $\rho_b$ ) is the oven-dried mass of the sample divided by its field volume. Porosity ( $n$ ) is obtained by  $1 - (\rho_b / \rho_s)$ . Particle mass density ( $\rho_s$ ) is the oven-dried mass divided by the volume of the solid particles. Water content ( $\theta$ ) is volume of the water ( $V_w$ ) divided by the total volume ( $V_T$ ). In order to obtain an equilibrium sorption coefficient, 6 sets of  $Cs^{2+}$  and  $Co^{2+}$  solutions with different concentrations were respectively prepared and put into individual plastic bottle containing 10g of soil. The temperature was  $25^\circ C$ , 50 ml of  $Cs^{2+}$  solution for 10g of soil was used, and the shaking time was 24 hours. Then, the  $Cs^{2+}$  concentration remaining in each solution was measured by atomic absorption spectroscopy. The  $Cs^{2+}$  quantity sorbed in the soil was calculated. Under the above experimental conditions, the equilibrium sorption coefficient for  $Cs^{2+}$  was  $8.10 \text{ l kg}^{-1}$ , while that for  $Co^{2+}$  was  $1.25 \text{ l kg}^{-1}$ .

#### 2. Remediation using NaCl Solution

The TRIGA soil (<0.063mm) having a low level of radioactivity was artificially contaminated with a 0.01M  $Co^{2+}$  solution. Fig. 1 shows the electrokinetic experimental equipment on a laboratory scale. A 0.01 M NaCl solution was used as an electrolyte to heighten the electric field strength. Both reservoirs were filled with the electrolyte solution. The electrolyte solution in the anode continuously moves to the cathode by electroosmosis. Anode reservoir was continuously filled with electrolyte through the upper hole of the reservoir. The quantity of effluent was continuously measured. The  $Co^{2+}$  concentration of the effluent was periodically measured with atomic absorption spectroscopy.

Table 2. Simulation Parameters

Parameter	Values
Cell dimensions, L	$\varnothing$ 2.8cm x20 cm
Bulk density, $\rho_b$	$0.76 \text{ gcm}^{-3}$
Faraday's constant, F	$96487 \text{ C mol}^{-1}$
Potential at anode well, $\phi_1$	100.0 V
Potential at cathode well, $\phi_2$	0.0 V
Porosity, n	0.61
Tortuosity, $\tau$	1.2
Equilibrium sorption coefficient( $K_d, \text{ml g}^{-1}$ )	8.10( $\text{Cs}^{2+}$ ), 1.25( $\text{Co}^{2+}$ )
pH of soil	4.3

The experiments for soil remediation were implemented twice. The first experiment was implemented for 6.7 days, and the second for 0.8 days. After the experiment was completed, the kaolin clay in the column was divided into several pieces. The residual  $\text{Co}^{2+}$  concentration of each piece was then measured with atomic absorption spectroscopy.

#### Remediation using acetate buffer

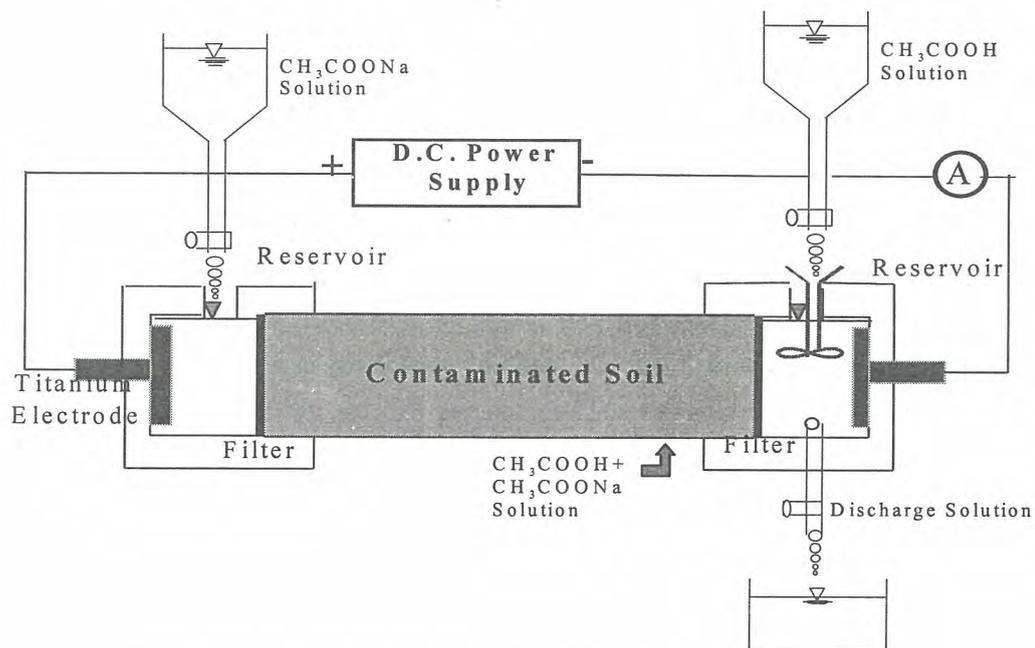


Figure 1. Schematic of cylindrical column for electrokinetic remediation

The TRIGA soil (<0.063mm) having a low level of radioactivity was artificially contaminated with a 0.01M Cs<sup>2+</sup> and Co<sup>2+</sup> solution. The option chosen for restraining the pH increase in the soil column was to inject an acetate buffer into the soil column and simultaneously to fill up the cathode reservoir with an acidic solution and the anode reservoir with an alkaline solution. CH<sub>3</sub>COONa and CH<sub>3</sub>COOH solutions were chosen as the alkaline and acidic solutions respectively. Accordingly, a compound solution of 0.01M of CH<sub>3</sub>COONa and CH<sub>3</sub>COOH was mixed with the soil to form an acetate buffer solution in the soil column. This buffer solution was chosen keeping in mind the application of the process to an actual in-situ situation, as it is a cheap, biodegradable, and nontoxic reagent. Due to this pH control, a regular electrical potential gradient was expected. The experimental process was run as follows. After the mixed soil including the acetate buffer solution was injected into the column, the experiment was initiated under a constant electric voltage gradient. The volumes of the anode and cathode reservoirs were both 20 ml. 19ml of a 0.01M CH<sub>3</sub>COONa solution was initially injected into the anode reservoir, while 13ml of a 0.01M CH<sub>3</sub>COOH solution was injected into the cathode reservoir. The pore solution in the column flowed toward the cathode reservoir by electroosmosis. When the cathode reservoir was filled with about 19 ml of the pore solution released from the soil column, the experiment was suspended, then the volume of pore solution in the cathode reservoir was measured exactly. About 3ml of the pore solution was sampled and analyzed for Cs<sup>2+</sup> and Co<sup>2+</sup> concentrations by atomic absorption spectroscopy. This process was repeated many times until the experiment was completed. Thereafter, the TRIGA soil was divided into several sections, which were then analyzed for their Cs<sup>2+</sup> and Co<sup>2+</sup> concentrations.

The initial solution with  $C_{T,Ac} = 0.02M$  was prepared using  $C_{HAc} = C_{KAc} = 0.01M$ . Since  $[H^+]$  and  $[OH^-]$  are very small with respect to  $[HAc]$  and  $[Ac^-]$  in this region, it was assumed that the small amount of  $[OH^-]$  added reacted completely with  $[HAc]$ . Thus,  $[HAc]$  decreased, and  $[Ac^-]$  increased according to the amount of  $[OH^-]$  added per liter. A pH 11.8 equals 0.0063 M of  $[OH^-]$ . Thus  $[HAc] = 0.01 - 0.0063 = 0.0027(M)$  and  $[Ac^-] = 0.01 + 0.0063 = 0.0163 (M)$ . Consequently, the pH in the column was restrained from increasing and predicted to be about 5.48 based on the following calculation:

$$pH = pK_a + \log \frac{[Ac^-]}{[HAc]} = 4.70 + 0.78 = 5.48$$

Meanwhile, the soil contaminated with Cs<sup>2+</sup> and Co<sup>2+</sup> was placed in a large bowl and mixed with the acetate buffer solution. Then, the saturated soil was injected into the soil column with tapping. The soil column was continually tapped until almost all the air bubbles had been removed. The soil column was cylindrical in shape with a 2.8cm diameter and 20.0cm length. A titanium electrode, filter, stainless steel net, and reservoir were all established at both ends of the column. The volume of the column was 123 cm<sup>3</sup> and the weight of the TRIGA soil was 110g. The volume of the buffer solution injected into the column was 76 ml. One side of the column was connected with the anode, while the other side was connected with the cathode. The voltage difference between the two electrodes was 100 V and the electric current was about 0.1 mA. A 0.01M CH<sub>3</sub>COONa solution was initially injected into the anode reservoir while a 0.01M CH<sub>3</sub>COOH solution was injected into the cathode reservoir. Because the CH<sub>3</sub>COONa solution in the anode reservoir

continuously moved to the cathode by electroosmosis, this solution was continuously injected through the upper hole of the anode reservoir. The volume of the effluent was measured along, with  $\text{Cs}^{2+}$  and  $\text{Co}^{2+}$  concentrations using atomic absorption spectroscopy.

#### IV. Results and Discussion

When the TRIGA soil was mixed with a NaCl solution to raise the electric field strength for electrokinetic remediation, the pH of the electrolyte in the anode reservoir decreased to a low value immediately, while that in the cathode reservoir increased to a high value. After remediation for 0.8 days, the pH at the position 14 cm away from the anode filter in the soil column increased from the initial 4.0 to 11.7, and a precipitate with metal ions started to form at that position. During the experiment period, hydrogen ions evolved at the anode, and hydroxide ions evolved at the cathode. Metal ions migrated from the front part of the column during this period formed a precipitate at the 14 cm position in the column, and continuously accumulated (Fig. 2). As such, the remediation efficiency after 6.7 days was significantly decreased due to the small volume and lower concentration of the effluent.

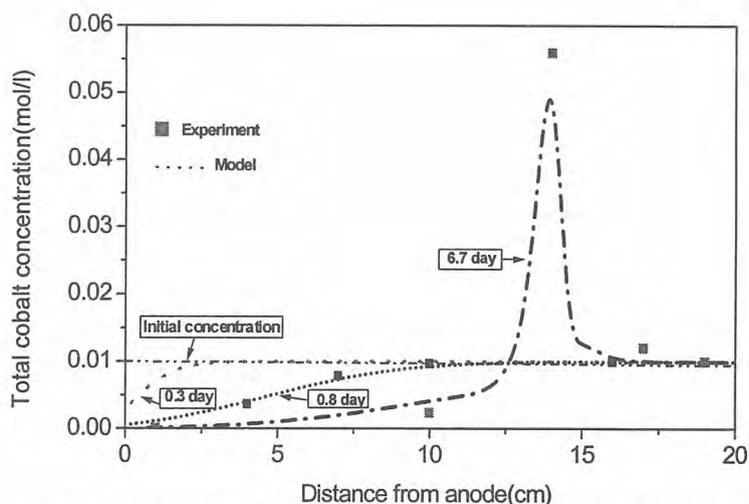
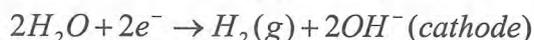
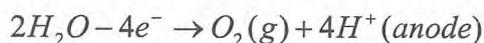


Figure 2. Distribution of total cobalt concentration in soil column versus time

Fig. 3 shows the effluent pore volume evolved from the soil column relative to time. One pore volume was 75 ml, which was calculated on the basis of the density and porosity of the TRIGA soil. About 4.1 pore volumes of effluent were discharged for 5.9 days. For 4.0 days, the average effluent volume rate was 0.6 pore volume/day, while from 4.0 to 5.9 days this increased to 0.9 pore volume/day.

Fig. 4 shows the  $\text{Cs}^{2+}$  and  $\text{Co}^{2+}$  concentrations in the effluent from the soil column. The average  $\text{Cs}^{2+}$  concentration in the effluent was 0.0051M for first 0.5 days. Since this concentration was 5.7 times larger than the initial  $\text{Cs}^{2+}$  concentration in the pore solution, namely 0.0009M, this indicates that many  $\text{Cs}^{2+}$  ions were transferred

by electromigration rather than electroosmosis during this period. The  $\text{Cs}^{2+}$  concentration in the effluent abruptly increased to about 0.009M from 0.5days to 1.7 days, then decreased to 0.0016M model developed to calculate the residual concentration were fairly similar to the experimented values.

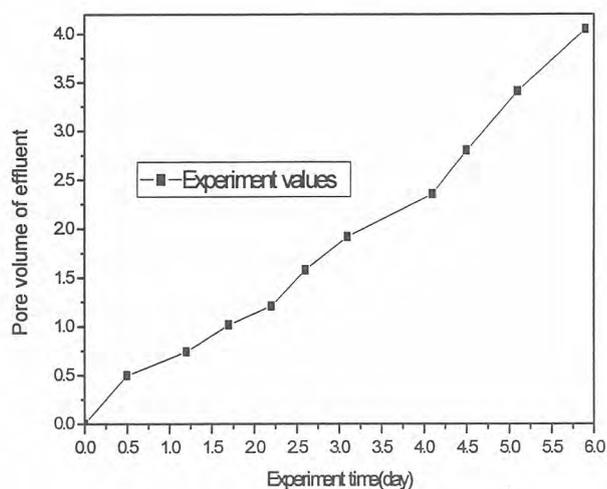


Figure 3. Pore volume of effluent versus time

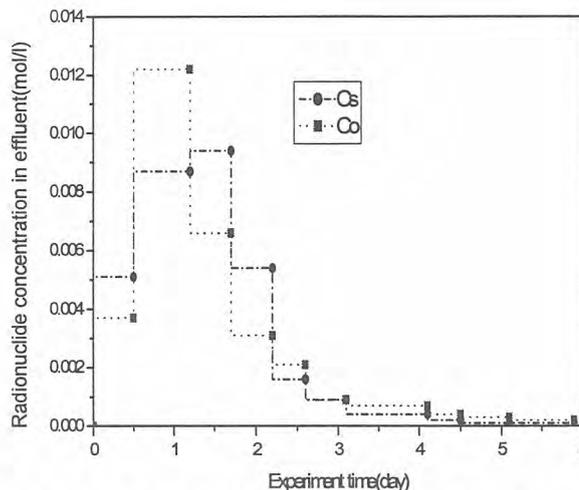


Figure 4. Cesium and Cobalt concentrations in effluent

rom 1.7 days to 2.6 days, and further decreased to below 0.001M after 3.1 days. Meanwhile, the average  $\text{Co}^{2+}$  concentration in the effluent was 0.0037M for first 0.5 days, and then increased to 0.0122M from 0.5 days to 1.2 days. Since this concentration was 3.1 times larger than the initial  $\text{Co}^{2+}$  concentration in the pore solution, namely 0.0039M, this indicates that many  $\text{Co}^{2+}$  ions were transferred by electromigration rather than electroosmosis during this period. However, the  $\text{Co}^{2+}$  concentration of effluent abruptly decreased to about 0.0031M from 1.2 days to 2.2 days, then continuously decreased to below 0.001M after 3.1 days.

The total  $\text{Cs}^{2+}$  residual concentration in the column versus each remediation time is shown in Fig. 5. Since no precipitate was formed in the column due to the restraint of any pH increase, Fig. 5 showed a high remediation efficiency. Namely, 25.1% of the total amount of  $\text{Cs}^{2+}$  in the column was removed after remediation for 0.5 day, 44.4% after 1.0 days, 76.1% after 2.0 days, 89.0% after 3.0 days, and 96% after 5.9 days. At the end of the run, the TRIGA soil was drawn out from the soil column and divided into several sections. The concentration of the pore solution was measured using atomic absorption spectroscopy. The values predicted by the developed model were fairly similar to the experimental values.

Meanwhile, Fig. 6 shows the results of the cobalt remediation, which exhibited a similar pattern to that of cesium remediation. Namely, 22.7% of the total amount of  $\text{Co}^{2+}$  in the column was removed after remediation for 0.5 day, 44.4% after 1.0 days, 71.8% after 2.0 days, 85.2% after 3.0 days, and 94.4% after 5.9 days. The values predicted by the model developed to calculate the residual concentration were fairly similar to the experimented values.

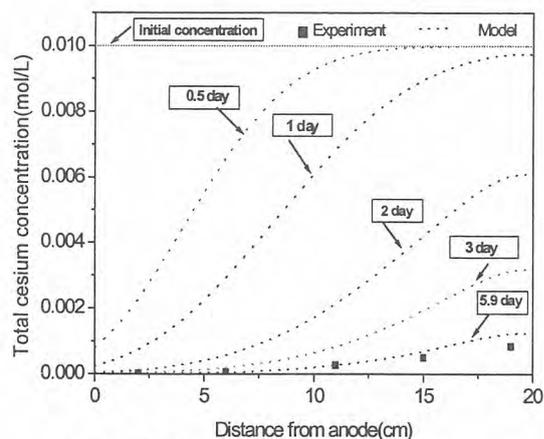


Figure 5. Distribution of total cesium concentration in soil column versus time

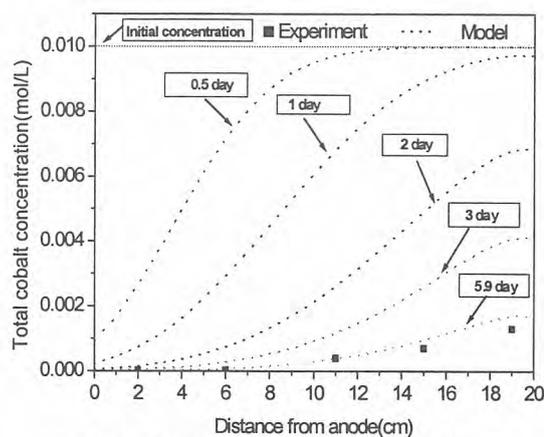


Figure 6. Distribution of total cobalt concentration in soil column versus time

## V. Conclusions

After TRIGA soil with a particle size below 0.063mm was artificially contaminated with a 0.01M  $Cs^{2+}$  and  $Co^{2+}$  solution, the remediation characteristics of cesium and cobalt using the electrokinetic method were analyzed. An acetate buffer solution was injected into the soil column and a  $CH_3COOH$  solution periodically injected into the cathode reservoir to restrain any pH increase. The experimental results indicated no precipitate, such as  $Co(OH)_2$ , formation in the soil column. Many  $Cs^{2+}$  and  $Co^{2+}$  ions were transferred by electromigration rather than electroosmosis during initial remediation period. 25.1% of the total amount of  $Cs^{2+}$  in the column was removed after remediation for 0.5 day, 44.4% after 1.0 days, 76.1% after 2.0 days, 89.0% after 3.0 days, and 96% after 5.9 days. Also, 22.7% of the total amount of  $Co^{2+}$  in the column was removed after remediation for 0.5 day, 44.4% after 1.0 days, 71.8% after 2.0 days, 85.2% after 3.0 days, and 94.4% after 5.9 days. The values predicted by the model developed to calculate the residual concentration after remediation were fairly similar to the experiment values.

## VI. References

1. Acar, Y.B., and Alshwabkeh A.N., Principles of Electrokinetic Remediation, Environ. Sci. Technol. 27(13), pp.2638-2647(1993).
2. Largeman R., Electroreclamation: Application in Netherands, Environ. Sci. Technol. 27(13), pp.2648-2650(1993).
3. Darmawan, Wana, S. I., Kinetics of Speciation of Cu, Pb and Zn loaded to Soils that differ in Cation Exchanger Composition at Low Moisture Content, Commun. Soil Sci. Plant Anal. 30, pp.2363-2375(1999).
4. Jiwei Y., and Invars N., Modelling of transport and reaction processes in a porous medium in electrical field. Chemical Engineering Science, 51(19), pp.4355-4368(1996).
5. 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).

## 해체부지의 잔류방사능 조사 절차 수립에 관한 연구

### Study on the Establishment of Residual Radioactivity Investigation Procedure in Decommissioning Site

Hak-Soo Kim, Yong-Kyu Lim, Jung-Kwon Son, Kyoung-Rock Park, Ki-Doo Kang,  
Kyoung-Doek Kim, Chan-Woo Jeong\*

Nuclear Environment Technology Institute, P.O. Box 149, Yuseong, Daejeon

\*Korea Institute of Nuclear Safety, P.O. Box 114, Yuseong, Daejeon

김학수, 임용규, 박경록, 손중권, 강기두, 김경덕, 정찬우\*

원자력환경기술원, 대전광역시 유성우체국 사서함 149

\*한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성우체국 사서함 114

#### Abstract

In order to decommission safely nuclear power plant, it is necessary for the procedure of residual radioactivity investigation in site to provide detailed guidance for planning, implementing, and evaluating environmental and facility radiological surveys conducted to demonstrate compliance with a dose or risk-based regulation. This study presents the procedure of residual radioactivity investigation in decommissioning site - Historical Site Assessment, Scoping Survey, characterization Survey, Remedial Action Support Survey, Final Status Survey - on the basis of MARSSIM(Multi-Agency Radiation Survey and Site Investigation Manual) and investigation cases of decommissioned or decommissioning nuclear power plant.

Key Words : MARSSIM, Decommissioning, Final Status Survey

#### 요 약

원자력발전소를 안전하게 해체하기 위해서는, 해체부지 개방기준의 준수여부를 확인하기 위해 수행되는 환경이나 설비의 방사선학적 조사의 계획, 실시 그리고 평가에 대한 상세 지침을 제공하는 절차가 필요하다. 본 연구에서는 해외 원전 해체 사례와 MARSSIM을 근간으로 부지운영이력 평가, 오염범위조사, 오염현황 상세조사, 제염복구 지원조사, 최종부지조사의 순으로 해체 부지내 잔류방사능을 조사하는 절차를 제시하였다.

중심단어 : MARSSIM, 해체, 최종부지조사

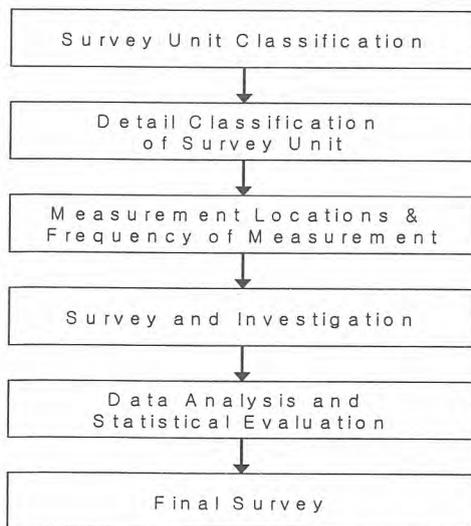
## 1. 서 론

원자력 발전소의 해체는 운전 수명이 종료된 원자력설비를 안전하게 처리, 처분하는 마지막 과정으로 이미 원자력 선진 외국에서는 오래전부터 국가적 차원으로 해체 관련 기술 개발에 상당한 진전을 이룬바 있다. 우리나라는 1978년 고리1호기의 운전을 필두로 현재 18기가 운전 중에 있으며 그중 고리1호기의 경우 수명 연장 여부에 따라 달라지긴 하겠지만 2008년이 되면 고리1호기 설계수명이 종료되므로 본 시설을 어떻게 안전하게 해체할 것인가가 매우 중요한 시점이 되었다. 이에 따라 원자력발전소를 해체할 때 해체관련 안전성 확보를 위한 요소기술들 가운데 부지 잔류 방사능을 확인할 수 있는 방사선/능 조사체계와 해체관련 표준안전성 평가 기술 등의 개발이 시급한 실정이다. 설계 수명이 종료된 원자력시설 및 부지는 제한적으로 사용하거나 일반인이 자유롭게 사용하기 위해 제염 및 해체가 필요하다. 이러한 제염 및 해체시에 부지내 방사선 측정 및 부지 특성조사 방안을 수립하기 위하여 미국에서는 기존의 여러 방사선 측정 및 부지내 선량조사 기준을 통합하여 MARSSIM이라는 표준절차서를 개발하여 활용하고 있다. 본 연구에서는 MARSSIM 발표 이전의 NUREG/CR-5849에 따라 해체 작업을 수행한 Fort St. Vrain 원자력발전소의 해체후 부지 잔류방사능 측정 사례와 MARSSIM(NUREG-1575)을 근간으로 한 Maine Yankee 원전의 해체후 부지의 잔류방사능 측정사례를 검토하여 국내 원전 해체시 해체 부지내 잔류방사능을 조사하기 위한 절차를 수립하고자 하였다.

## 2. 해체후 부지 잔류 방사능 측정 사례

### 2.1 Fort St. Vrain 원자력발전소

미국의 해체 원전중 하나인 Fort st. Vrain(FSV) 원전은 상업용 고온 가스 냉각형 원자로 (HTGR)이며, Public Service Company of Colorado(PSCo)사 소유의 330 MWe 발전소로 1968년에 건축 공사를 시작하여, 1973년도에 연료가 장전되고 1976년에 처음으로 전기를 생산하였으나 수많은 작업상의 문제점과 규제지연 때문에 운전비용과 연료비용을 조달하는데 어려움이 있어 1989년 8월에 원자력발전소를 영구히 정지시켰으며 원전이 영구히 정지된 후 설비 및 부지를 즉시 해체(DECON)하는 것으로 결정하였다. FSV 원전의 잔류 방사능 측정 절차는 그림 1과 같다.



FSV 원전은 해체 부지의 무제한적 개방을 위해 부지내 잠재적 오염도, 요구되는 측정 및 시료채취 위치의 선정, 상세조사요건 및 적용 가능한 규제 값과 측정결과의 비교 등을 고려하여 해당 부지를 Unaffected survey unit, Non-suspect affected unit 및 Suspect affected survey unit로 오염지역을 분류하였다. 각각의 조사 단위에 대한 분류는 FSV 초기 방사선 부지특성 보고서, 방사성물질 관련 이력 또는 잠재적 오염도, 해체를 수행하기 위해 실시된 조사자료, 정기 점검, 사고 보고서 및 특성조사 등과 같은 자료를 기초로 하여 구분하였다.

그림 1. FSV 해체부지 잔류방사능 측정절차

이러한 오염지역의 분류 기준을 가지고 FSV는 최종부지 조사를 위해 총 10개의 그룹으로 오염지역을 상세 분류하였다. FSV원전은 부지내 잠재적 오염도에 따라 분류된 Unaffected survey unit(A), Non-suspect affected survey unit(B) 및 Suspect affected survey unit(C) 지역에 대하여 크게 건물 바닥 및 벽

면, Plant System 및 부지로 구분하여 각 오염지역별 조사 대상에 따라 측정 방법을 수립하였으며 그 내용은 표 1과 같다. 또한 FSV 원전에서는 해체부지의 개방기준으로 Regulatory Guide 1.86 과 Draft NUREG/CR-5849에 의거하여 계산된 SGLV(Site-Specific Guideline Values)을 적용하였다.

표 1. FSV 원전의 오염지역 분류에 따른 측정 범위 및 측정 방법

지역	건물 바닥 및 벽면	Plant System	Open Land
A	○ Survey units $\leq 1500\text{m}^2$ : 최소 30개 지점 ○ Survey units $> 1500\text{m}^2$ : 50 $\text{m}^2$ 당 1개	○ 각 Survey 단위별 - 최소 30개 지점 측정 ○ Scan Survey 실시	○ 각 Survey 단위별 - 최소 30개 지점 측정
B	○ Survey units $\leq 600\text{m}^2$ : 최소 30개 지점 ○ Survey units $> 600\text{m}^2$ : 20 $\text{m}^2$ 당 1개	○ 각 Survey 단위별 - 최소 30개 지점 측정	○ Survey units $\leq 750\text{m}^2$ - 최소 30개 지점
C	○ Survey units $\leq 20\text{m}^2$ : 최소 30개 지점 ○ Survey units $> 20\text{m}^2$ : 1 $\text{m} \times 1\text{m}$	○ Scan Survey 실시 - 계통 표면의 25%	○ Survey units $> 750\text{m}^2$ - 100 $\text{m}^2$ 당 4개 지점

## 2.2 Maine Yankee 원자력발전소

Maine Yankee 원전은 열출력 2,700 MW<sub>th</sub>, 3 루프 가압경수로 원자력발전소로서 1972년 10월에 처음 운전이 시작되어 25년간 운전 후, 1997년 8월에 운전을 종료하였다. 본 원전은 부지의 무제한적 개방을 위해 MARSSIM에서 제시한 부지 잔류 방사능 조사 방법을 적용한 원전으로서 현재 원자력발전소 해체가 진행 중에 있다. Maine Yankee는 방사선학적 사고 이력, 운전이력, 액체폐기물 오염이력, 근로자 설문조사 및 연간 방사선학적 환경보고서를 포함한 운영이력정보를 토대로 Historical Site Assessment(HSA)를 수행하였으며, 또한 방사성물질의 위치 및 방사능준위와 위해성 물질의 형태 및 위치를 결정하기 위해 Scoping Survey를 수행하였다. Maine Yankee 원전은 해당 부지의 무제한적 개방을 위해 잠재적 오염도에 따라 해체 부지를 Non-impacted area와 Impacted area로 구분하였으며 특히, 오염지역의 경우는 오염 정도에 따라 Class 1, 2, 3로 분류하였다. 또한 오염지역의 측정 범위를 조사 대상에 따라 크게 구조물과 바닥 그리고 토양으로 구분하여 오염지역별 측정 범위를 선정하였다 (표 2). Maine Yankee 원전은 25 mrem의 NRC 연간 선량 제한치와 ALARA에 따라 잔류방사능을 감소시키기 위해 remedial action support survey를 해체과정 전반에 걸쳐 수행하고 있다. 또한 Final status survey를 수행하기 위한 방법으로 일반적으로 Draft Reg Guide-4006 지침 또는 Standard Review Plan(SRP : NUREG-1727)을 따르고 있다. Final status survey는 부지를 조사단위, 조사지역의 분류 및 95% 신뢰도를 갖는 DCGL과 부합하는 모든 조사단위 요건으로 구분하기 위한 방법론으로 Maine Yankee 원전에서 적용된 시료측정 수 및 위치 결정은 MARSSIM에서 제시한 방법을 적용하여 수행하고 있다. Maine Yankee 원전에 적용된 기술기준은 10 CFR 20.1402와 DCGL(Derived Concentration Guideline Level)을 적용하였다.

표 2. Maine Yankee 원전의 오염지역 분류에 따른 측정 범위 및 측정 방법

Class	측정 범위( $\text{m}^2$ )			측정 방법
	Standing Structure	Basement Structure	Land	
1	180	2,000	2,000	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 100% : 전지역의 hot spot 유무 확인</li> <li>• Systematic</li> </ul>
2	180 ~ 1,000	2,000	2,000 ~ 10,000	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 10~100% : 오염가능성이 높은 지역을 중심으로 실시</li> <li>• Systematic</li> </ul>
3	No Limit	No Limit	No Limit	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 10% : 전문가의 판단에 의해 오염가능성이 높은 지역만 실시</li> <li>• Random</li> </ul>

### 3. 부지 잔류방사능 조사절차 수립

본 연구에서는 MARSSIM과 상기 해체 사례 등을 토대로 부지 잔류방사능 조사 절차는 그림 2과 같이 제시하였으며, 오염지역의 분류에 대한 Flow-chart는 그림 3과 같이 수립하여, 각 조사단계별로 계획, 실시 및 결과 평가로 나누어 수행하는 방안을 고려하였다.

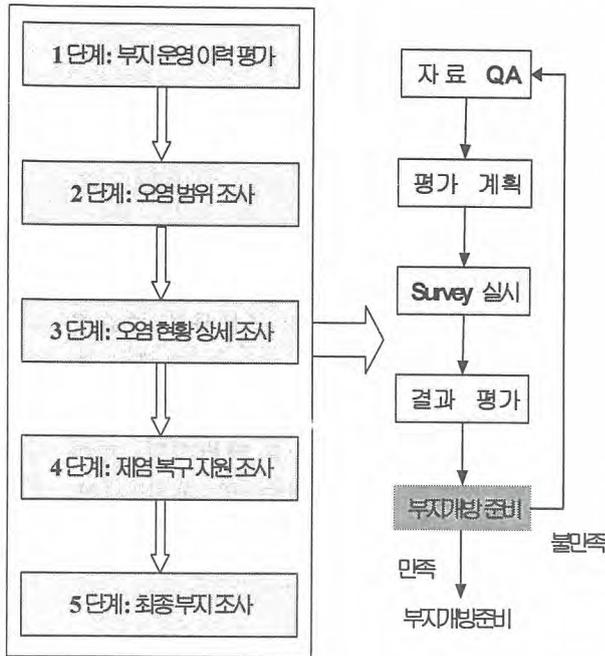


그림 2. 해체부지의 잔류방사능 조사 절차

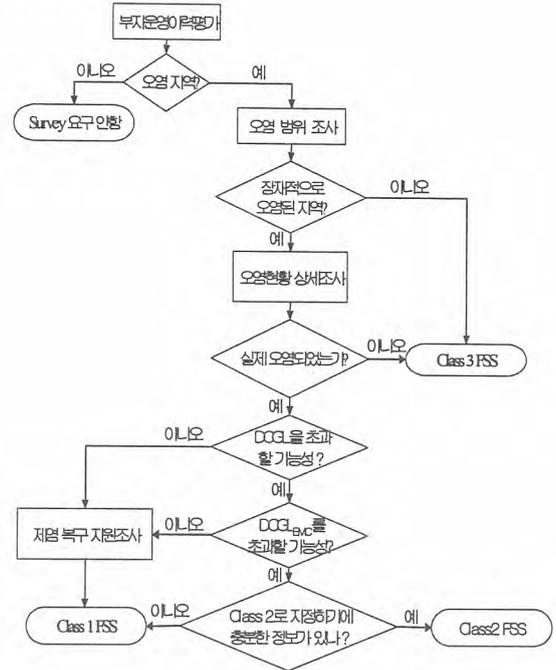


그림 3. 오염지역 분류 흐름도

#### 3.1 부지운영이력 평가

해체부지에 대한 잔류방사능 평가시 가장 먼저 수행해야 하는 단계로서 이 단계는 부지의 운영이력에 대한 자료를 조사, 수집하고 정리하는 단계이다. 부지 운영이력 평가는 해체된 원자력시설 및 부지의현재 상태를 결정하고 초기분류에 대한 정보를 제공하는 것을 목적으로 하며 그 밖에 시설 및 부지 오염의 잠재적 선원에 대한 정보, 오염범위조사와 오염현황 상세조사를 위한 유용한 정보 및 오염 물질의 이동 가능성에 대한 평가를 제공하고 오염 가능성에 따라 오염지역과 비오염지역으로 분류함을 목적으로 한다. 오염 가능성에 따라 지역을 분류하기 위해 사전에 확보하여야 할 자료로서는 사용된 방사성물질의 양/화학적, 물리적 형태와 방사성물질이 사용된 장소 및 사용 기록, 사용된 총량에 대한 정보를 포함한 방사성물질 사용허가서와 폐기물 처리, 방사성물질의 저장, 수송에 대한 기록과 유출물 및 운영중 survey, spill, pipe와 tank의 누설기록을 포함한 부지운영기록 그리고 방사성폐기물 취급에 관한 정보 수집을 위해 현재 또는 이전에 근무했던 작업자와의 설문조사 등이 있다. 본 연구에서는 이러한 부지운영이력 평가 조사시 고려사항을 제시하여, 부지가 각 항목에 해당될 시에는 오염의 가능성이 있음을 판단할 수 있도록 하였다 (표 3).

부지운영이력 평가시 부지의 위치, 위도/경도, 소유자 및 운영자 정보, 운전 및 부지현황, 부지의 크기 등을 포함한 일반적인 부지에 대한 정보와 방사성원료의 형태, 크기 및 위치, 폐기물의 형태 및 양, 위험물질의 존재 여부 등을 포함한 방사성물질 및 폐기물 특성과 부지의 일반적인 지질 형태, 카르스트 지형의 존재 여부, 대수층의 깊이, 부지내 우물의 존재 여부 등을 포함한 부지내 지하수 특성과 지표수의 형태, 지표수까지의 거리, 음용수 섭취량, 지표수의 유동특성 등을 포함한

표 3. 부지운영이력평가지 부지 오염여부를 판단하기 위한 고려사항

오염여부 판단을 위한 점검사항
<ul style="list-style-type: none"> <li>- 규제기 관으로부터 방사성 물질의 제조, 사용, 또는 분배를 위해 허가된 이력 여부</li> <li>- 이전에 처분 또는 소각, 방사성 물질 부지로 허가된 이력 여부</li> <li>- 부지에 방사성 물질이 유입될 수 있는 우물의 존재 여부</li> <li>- 부지가 의학적, 또는 치과용 엑스선 기계를 제외한 방사선 발생장치 또는 방사성 물질을 사용 하여 연구를 수행하기 위해 허가된 이력 여부</li> <li>- 방사화 방사성 물질을 생산하기 위해 사용된 이력 여부</li> <li>- 방사성 선원들이 부지내에 저장되어 있는지의 여부</li> <li>- 부지 내에 방사성 의약품을 제조, 저장, 수송 또는 처분한 적이 있는지의 여부</li> <li>- 부지가 방사성 물질로 오염되었으리라 예상되는 다른 이유가 있는지의 여부</li> </ul>

지표수 사용 특성 및 토양 피폭 특성과 공기 피폭경로에 대한 자료를 확보하여 부지의 현재 상태를 정확히 판단해야 한다. 부지운영이력평가에서 앞에서 언급한 부지내 오염원을 선정하는 것은 매우 중요하다. 이는 오염 선원이 해체 부지를 오염지역과 비오염지역으로 구분하는 중요한 자료가 되기 때문이다. 오염원으로 구분할 수 있는 것은 크게 토양, 지하수 및 건물로 한정할 수 있으며, 토양의 경우에는 표층 토양과 심층 토양으로 다시 구분한다. 오염 여부를 판단하기 위한 정보로서는 방사성물질이 사용된 위치, 방사성물질 저장지역, 소내 방사성폐기물 매립지역, 지하 아스팔트 주차지역, 지하 저장수 탱크, 방사성물질의 처리 및 저장과 건물, 배수 및 환기 시설, 지하 바닥 덮개, 지붕 환기 배출 지점 등이 있다.

### 3.2 오염범위조사

오염범위조사는 부지운영이력 평가에서 수집된 부지 이력을 보완하는 절차로서 이력 자료의 보완, 오염장소의 확인, 누락 여부를 점검하는데 그 목적이 있다. 이를 위하여 잔류오염의 가능성이 있는 부지에 대하여 부지운영이력평가를 확대하고 부지운영이력평가에 따른 부지 오염 여부를 확인, 오염현황 상세조사 계획 수립을 위한 입력 자료를 생산, 자연방사능 준위 지역을 설정하고 최종부지 조사계획을 위하여 오염지역을 Class 1, 2, 3 로 분류하게 된다. 조사계획 단계에서는 부지 운영이력평가에서 검토한 내용을 포함하여 액체폐기물의 오염과 방사성물질의 방출지점에 관한 유용한 정보를 고려하여 잔류방사능이 존재할 가능성이 있는 지역과 오염범위조사가 수행될 지역을 결정하는데 도움을 준다. 또한, 이 정보는 관련 방사성핵종이 자연방사능 준위내에 존재할 때 잠재적 참조지역으로 하나 이상의 비오염지역을 선정할 수 있도록 한다. 부지운영이력평가를 통해 구분된 오염지역을 오염범위조사 단계에서 오염정도에 따라 Class 1, 2, 3로 분류하며 표 4는 부지운영이력에 근거한 오염도와 이전의 방사선조사에 근거한 오염지역 분류기준을 제시하였다.

표 4. 오염지역의 분류 기준

오염지역 분류	분류 기준
Class 1	운전이력에 따른 잠재적인 방사능 오염도나 이전의 방사선 측정에 근거하여 DCGL 이상의 오염도를 가지고 있는 지역으로서 이 지역은 방사능 누출이 예상되고, 폐기물을 매립하였거나 처분하였던, 그리고 처분중인 부지 또는 폐기물 저장 창고 등으로 사용된 지역 등을 포함
Class 2	운전이력에 따른 잠재적인 방사능 오염도나 이전의 방사선 측정에 근거한 오염이 있지만 오염도가 DCGL을 초과하지 않는 지역으로서 이 지역에는 방사성 물질이 개봉되지 않은 형태로 있거나 저농도의 방사성 물질을 다루는 지역 등이 포함됨
Class 3	어떠한 잔류 방사능도 존재하지 않거나 잔류 방사능의 양이 DCGL보다 훨씬 낮은 지역으로서 Class 1, 2 지역 주위의 완충지역

오염범위조사의 실시 단계에서는 잔류오염이 예상되는 지역을 조사하기 위해 스캐닝, 직접 측정 및 시료채취측정의 방법으로 부지운영이력평가자료, 사전 조사 및 전문가의 판단을 근거로 하여 수행한다. 해당 지역에 대한 자연방사능과 방사선준위는 건물표면에서의 직접 방사선준위와 매질 내 방사성핵종 농도를 포함하여 결정하여야 한다. 평가결과 단계에서 계측결과를 DCGLs와 비교하며 관심핵종을 확인하고 부지운영이력에 근거한 오염가능성이 있는 지역에 대하여 계산된 DCGLs 값이 부지개방유도농도기준을 초과하면 그 지역을 Class 1로, 초과하지 않으면 Class 2로 그리고 오염이 없는 지역은 Class 3으로 상세 분류한다. 부지의 잔류방사능 준위내 변동을 평가하다 보면 초기에 선정된 DCGLs 값이 적합하지 않을 수 있기 때문에 오염범위조사의 결과를 근거로 재조정하여야 한다. 또한 오염의 정도에 따라 추가적인 조치(제염활동)의 필요 여부를 결정한다.

### 3.3 오염현황 상세조사

방사선학적 오염핵종과 오염범위를 결정하고 그에 따라 최종부지조사 계획을 위한 정보를 제공한다. 또한 제염여부 결정과 부지특성을 고려한 DCGLs를 결정하기 위한 피폭경로, 선량 및 위해도 평가 모델에 대한 입력 자료를 생산한다. 오염현황 상세조사의 계획 단계에서는 부지 방사능에 의해 영향을 받았거나 잠재적으로 오염된 부지의 존재 여부를 명확히 확인하여야 하며 방사능에 의해 영향을 받지 않은 부지에 대하여도 확인하여야 한다. 부지운영이력평가와 오염범위조사에서 선정된 오염지역(Class 1, 2)을 중심으로 실시하여 조사단위 재분류에 대한 정당성을 제공할 수 있다. 상세조사 실시 단계에서는 오염이 확인된 Class 1, 2 지역(건물 및 토양)을 대상으로 예상되는 오염원과 양에 대한 검출용량과 DCGLs에 근거한 계측기를 선정하고 모든 잠재적인 오염지역에 대한 철저한 표면 스캔을 실시하며 국부적으로 높은 방사능을 나타내는 지역(Hot spot)에 대해서는 직접측정 및 시료채취 측정을 실시한다. 건물 조사의 경우, 직접 조사, 스캐닝 조사 및 샘플 측정등의 방식을 이용하여 실시하고 검출기 검출 한계는 DCGLs를 근거로 결정한다. 건물내에 좌표를 설정하여 좌표상으로 관리하고 자연방사능 준위는 부지운영이력평가 또는 오염범위조사에 의해 확인된 비오염지역을 측정하여 최종부지조사시에 활용한다. 토양 조사의 경우, 토양의 평면, 깊이 방향에 대한 오염도와 핵종을 판단하는 것이 주 목적으로서 직접측정과 샘플 측정을 병행 실시한다. 토양 시료 채취점은 부지운영이력평가에서 분류된 표면오염이 있는 지역 또는 표층에 오염 가능성이 있는 지역에서 실시하고 자연방사능 준위는 건물 조사와 같이 이전 조사 결과에 따라 결정된 지역에서 측정하여 최종부지조사 평가에 사용한다. 오염현황 상세조사 평가결과 단계에서는 DCGLs를 초과하는 지역, 초과하지 않는 지역 혹은 오염이 없는 지역으로 구분한다. 또한 일부 지역의 오염도가 상승하였다면 그 지역에 대한 직접측정과 부가적인 측정 및 시료채취의 필요성을 결정하여야 한다. 아울러 오염현황 상세조사 평가결과는 각 지역의 오염핵종과 양, Hot spot의 존재 유무 및 제염 필요성을 판단할 수 있어야 한다.

### 3.4 제염복구 지원조사

지역이 DCGLs 이상으로 오염된 경우 제염복구 지원조사는 합리적으로 달성 가능한 한 낮게 잔류방사능을 감소시키기 위한 제염활동의 효율성을 지원하기 위해 수행한다. 제염활동은 조사단위 내 오염분포에 대한 변화를 초래할 수 있으므로 제염에 따른 재확립이 필요할 것이다. 계획 단계에서는 제염비용과 용이성을 고려하여 제염 방법 및 기술 등을 검토한다. 또한, 실시 단계에서 예상되는 오염과 오염의 양에 대한 검출능력을 근거로 계측기와 절차를 선정하여야 하며 잔류방사능 확인을 위해 직접측정과 표면 스캔 방법을 사용한다. 평가 결과에서는 측정된 방사능 준위를 DCGLs와 비교하여 제염이 더 필요한지를 결정한다. 제염복구 지원조사 결과 DCGLs를 만족하면 제염활동을 중지하고 최종부지조사를 착수할 수 있으나, 조사결과가 DCGLs를 초과한다면 추가 제염을 실시해야 한다.

### 3.5 최종부지조사

원자력시설의 운영 종료 후 해체하고자 하는 원자력시설의 방사선학적 오염현황이 피폭경로 모델링에 근거하여 수립된 DCGLs 이하임을 증명하는 것이 최종부지조사의 목적이다. 본 단계에서는 원자력시설 및 부지의 잔류방사성 물질 농도가 정해진 부지개방기준 이하임을 증명함으로써 개방여부를 결정한다. 또한 이 단계에서는 Class 별로 분류한 조사지역의 분류가 적절한지를 평가하게 된다. 최종부지조사 계획에서는 시료채취 및 분석절차를 제시하고 오염 가능성에 따른 지역 분류와 통계적 방법에 의한 측정지점 수, 국부적으로 높은 방사능 지역(hot spot)에 대한 측정지점의 수와 측정 위치를 결정하는 방법들이 기술되어야 한다. 본 연구에서는 오염지역의 측정지점 수 평가 방법으로서 MARSSIM에서 권고하고 있는 측정지점 수 계산 방법인 WRS(Wilcoxon Rank Sum) 와 Sign Test 방법을 적용하였으며, 또한 측정 위치 결정 방법도 MARSSIM에서 권고하고 있는 삼각형 및 사각형 격자 모델을 적용하였다. 측정지점의 수의 증가는 불필요한 노력과 비용의 증가를 초래하게 되고 감소는 해체 기준에 부합함을 보일 수 없기 때문에 적절한 측정지점의 수를 결정하는 것이 매우 중요하다. 실시 단계에서는 참고지역에 대한 측정과 시료채취를 실시, 오염도에 따라 조사단위를 재분류, 측정 및 시료위치를 기록하고 측정결과의 이상 여부 및 편차의 기록 등이 포함된다. 평가결과 단계에서는 앞에서 언급한 측정방법과 계산과정을 수행하여 그 결과를 가지고 부지개방기준을 판단하며, 부지개방기준의 평가방식은 크게 자연방사능준위 내에 오염이 존재할 경우와 존재하지 않을 경우로 구분하여 평가한다. 아직 국내에는 해체부지에 대한 부지개방기준이 없는 관계로 어느 기준값에 의한 결정보다는 그 기준을 만족시킬 수 있는 부지개방 유도농도기준(DCGL)을 적용하여 평가하는 방법을 표 5와 같이 제시하였다.

표 5. 부지개방유도농도기준을 활용한 부지 개방 평가 방법

오염물이 자연방사능준위에 존재할 경우	
조사 결과	결론
가장 큰 조사단위 측정과 가장 작은 참고지역 측정 사이의 차가 DCGL <sub>w</sub> 보다 적다	조사단위는 해체기준 만족
조사단위 평균과 참고지역 평균의 차가 DCGL <sub>w</sub> 보다 크다	조사단위는 해체기준 불만족
어떠한 조사단위 측정과 어떠한 참고지역 측정 사이의 차가 DCGL <sub>w</sub> 보다 크고 조사단위 평균과 참고지역 평균 사이의 차가 DCGL <sub>w</sub> 보다 적다	WRS test와 DCGL <sub>EMC</sub> 수행
오염물이 자연방사능준위에 존재하지 않을 경우	
조사 결과	결론
모든 측정들이 DCGL <sub>w</sub> 보다 적다	조사단위는 해체기준 만족
평균이 DCGL <sub>w</sub> 보다 더 크다	조사단위는 해체기준 불만족
어떤 측정은 DCGL <sub>w</sub> 보다 크고 평균은 DCGL <sub>w</sub> 보다 적다.	Sign test와 DCGL <sub>EMC</sub> 수행

### 4. 결 론

본 연구에서는 해체 부지내 잔류방사능 조사 절차를 원활하게 수행하기 위해 각 단계별로 계획, 실시 및 결과 평가로 나누어 수행하는 방안을 제시하였다. 계획단계에서는 부지운영이력평가 동안 확보한 자료를 근거로 조사단위를 분류하고 측정방법, 측정개수, 측정지점을 결정하기 위한 조사 계획을 수립하고, 실시단계에서는 Hot spot 지역 확인을 위한 스캔 측정 및 오염의 평균준위를 결정하기 위한 방법 등에 대한 절차를 제시하였고 결과평가단계에서는 부지개방기준에 부합하는지

를 결정하기 위해 통계적 방법을 이용하여 평가를 수행하는 일련의 절차를 따르게 된다. 국내의 경우 아직 원자력시설 및 부지의 해체와 관련된 법규 및 규제지침이 미비한 상태이고, 오염지역을 분류하고 부지개방 여부를 평가하는데 적용되는 부지개방유도농도기준(DCGL) 역시 법적 제한치가 마련되어있지 않은 실정이므로 국내 실정에 적합한 부지개방유도농도기준을 설정하기 위해서는 해체 부지의 선량평가 시나리오의 선정과 해체 부지에서 개인이 받는 유효선량을 평가하기 위한 Tool을 개발하는 것이 시급할 것으로 사료된다. 본 연구에서 제시된 해체 부지내 잔류방사능 조사 절차는 향후 국내원전을 해체할 경우 유용하게 사용될 수 있을 것으로 판단된다.

## 감사의 글

본 연구는 과학기술부에서 주관하는 원자력중장기 개발사업의 일환으로 수행되고 있습니다.

## 5. 참고문헌

- [1] USNRC, NUREG-1575, Rev. 1, "Multi-Agency Radiation Survey and Site Investigation Manual(MARSSIM)", 2000.
- [2] EPRI TR-107979, "Fort St. Vrain Decommissioning : Final Site Radiation Survey", 1998.
- [3] MYAPC, "License Termination Plan, Rev.1", 2001
- [4] USNRC, NUREG-1727, "NMSS Decommissioning Standard Review Plan", 2000.
- [5] USNRC, NUREG-1505, Rev. 1, "A Nonparametric Statistical Methodology for the Design and Analysis of Final Status decommissioning Surveys", 1998.
- [6] USNRC, NUREG-1549(Draft), "Decision Methods for Dose Assessment to comply with Radiological Criteria for License Termination", 1998.
- [7] USNRC, 10CFR20, Subpart E "Radiological Criteria for License Termination"
- [8] 김경덕, 김학수 외, "원자력발전소 제염·해체 안전성 평가 방법 개발(4차년도)", 원자력환경기술원, TM00NC02.C2004.1, 2004

## **Removal of Metallic Cobalt Layers by Reactive Cold Plasma**

**Yong-SooKim, Sang-HwanJeon, Byung-JooYim, andHyo-CheolLee**  
**Jong-HeonJung\* and Kye-NamKim\***

Hanyang University, 17 Haengdang-Dong, Sungdong-Gu, Seoul

\* Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duckjin-Dong, Yusung-Gu, Daejeon

### **Abstract**

Recently, plasma surface-cleaning or surface-etching techniques have been focused in respect of the decontamination of spent or used nuclear parts and equipment. In this study the removal rate of metallic cobalt surface is experimentally investigated via its surface etching rate with a CF<sub>4</sub>-O<sub>2</sub> mixed gas plasma. Experimental results reveal that a mixed etchant gas with about 80% CF<sub>4</sub>-20% O<sub>2</sub> (molar) gives the highest reaction rate and the rate reaches 0.06  $\mu\text{m}/\text{min}$  at 380 °C and ion-assisted etching dramatically enhances the surface reaction rate. With a negative 300 V DC bias voltage applied to the substrate, the surface reaction initiation temperature lowers and the rate increases about 20 times at 350 °C and up to 0.43  $\mu\text{m}/\text{min}$  at 380 °C, respectively. Surface morphology analysis confirms the etching rate measurements. Auger spectrum analysis clearly shows the adsorption of fluorine atoms on the reacted surface. From the current experimental findings and the results discussed in previous studies, mechanistic understanding of the surface reaction, fluorination and/or fluoro-carbonylation reaction, is provided.

**Key Words** : Decontamination, Cobalt-Layer, Plasma Surface Cleaning, Ion-Assisted Etching

### **I. Introduction**

Under continuous power operation, many major parts and equipment in nuclear power plants are gradually surface contaminated by the absorption or adsorption of radioactive isotopes. If these surface contaminants can be removed selectively, it should be possible to convert the radioactive substrate metal into a non-radioactive or low-level radioactive material. This would lead to a tremendous volume reduction of radioactive wastes and to substantial economic gain from the recycled substrate materials. Recently OECD/NEA claimed that approximately 30 million tons of contaminated metal scraps would be produced over the next 50 years from dismantling and decommissioning nuclear facilities.<sup>1)</sup> IAEA also reported that dismantling of one Russian RBMK 1000 reactor would generate nearly 35,000 tons of Cr-Ni steel.<sup>2)</sup>

Metal surface cleaning using reactive plasma gas is one of the emerging dry processing techniques applicable to high-bonding-energy contaminants. This technique can fulfill the

requirement of minimum secondary waste generation while maintaining the same levels of efficiency as conventional wet decontamination techniques.<sup>2,3)</sup> In principle, the technique selectively turns the surface contaminants into volatile compounds through catalytic surface reactions and evaporates them out of the surface. Basically the radioactive contaminants can be categorized into three groups: uranium compounds and trans-uranic (TRU) elements released from the nuclear fuel rods corrosion products such as Co, Fe, Ni and Cr produced during the aqueous corrosion of metallic parts and fission products such as Mo, Tc, Ru, and Rh generated in fission reactions.

Since the early 1990s, several studies of this new technique have been reported in nuclear applications using various plasma sources.<sup>4-12)</sup> Recently, plasma surface-cleaning or surface-etching techniques have been considered for the decontamination of spent or used nuclear parts and equipment.<sup>7-13)</sup> Fundamentally, they are the techniques for converting the surface contaminants into volatile fluorides and/or carbonyl compounds that have high volatility, or very low melting and boiling temperatures.

Among the radioactive elements, Co is one of the principal contaminants of the used metallic parts or equipment such as valves and pipes made of stainless steels or inconel alloys. The  $\gamma$ -ray spectroscopic result of the discharged inconel alloy tube in Figure 1 demonstrates that two isotopes, Co-58 and Co-60, are the predominant ones. Of these, Co-60 bears a special importance because of its relatively long half-life (5.27 years) and high-energy photons (1.17 and 1.33 MeV).<sup>14)</sup> Therefore, the removal of Co isotopes from the contaminated metal surface is one of the major tasks in the development of metallic surface decontamination technology.

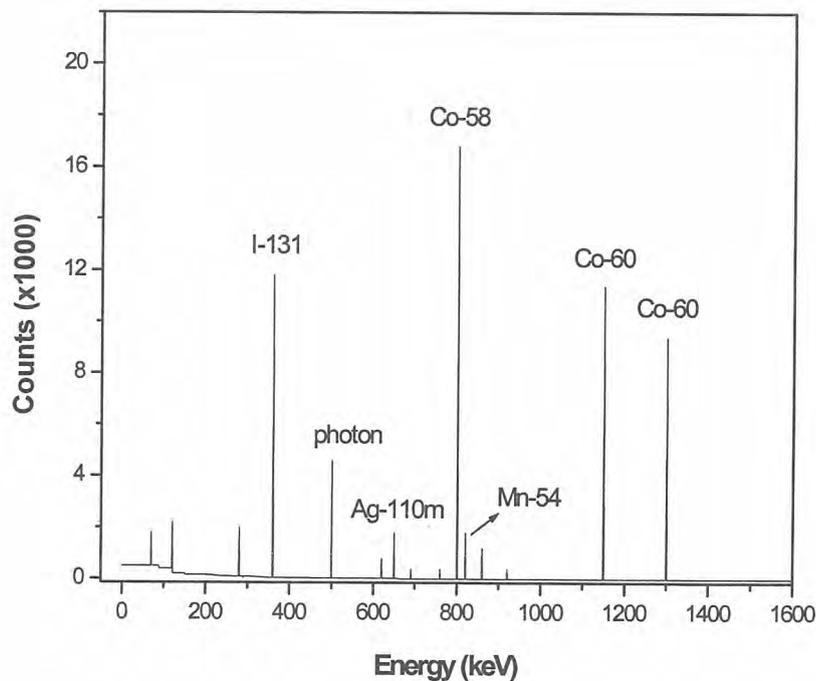


Figure 1.  $\gamma$ -spectroscopy results of discharged nuclear steam generator inconel alloy tube.

Lately, various plasma sources have been developed for this purpose and some successful results have been reported.<sup>7-11)</sup> Despite these excellent demonstrations, however, the papers gave little consideration to the mechanistic understanding of the surface reaction and the decontamination process and even the optimum operation parameters or conditions were not fully determined.

In this study, therefore, metallic cobalt is chosen again as a target element and the decontamination rate of the cobalt metal is experimentally investigated via the surface-etching rate with the focus on the mechanistic understanding of the reaction and the determination of the optimum parameters. As the etchant gas, a CF<sub>4</sub>-O<sub>2</sub> gas mixture is selected because it has been reported that both carbon monoxide (CO) and fluorine radicals (F) are abundantly generated in the plasma, depending on the volume ratio.<sup>10,15)</sup> In fact, they are considered reactant radicals that form volatile carbonyl and fluoride or fluoro-carbonyl compounds, which are believed to be essential gaseous products in the decontamination process.

In addition, the effects of both negative bias voltage application and elevated substrate temperature on the etching reaction are examined, as metallic Co is an irresponsive metal at less than 300 °C.<sup>16)</sup> The bias voltage induces ion-assisted etching, which is known to be very effective, especially when the surface reaction requires high activation energy.<sup>17-19)</sup>

To support the experimental findings, surface analysis techniques such as Auger Electron Spectroscopy (AES), Scanning Electron Microscopy (SEM), and Atomic Force Microscopy (AFM) are used as well as plasma diagnostic analysis using Optical Emission Spectroscopy (OES).

## II. Experimental

First, to meet the objectives of the current study, cold plasma apparatus for metallic surface etching is designed and manufactured. Then, the experimental investigation is performed with three experimental variables: the volume ratio of CF<sub>4</sub> to O<sub>2</sub> in the binary etchant gas mixture, the specimen substrate temperature, and the bias voltage applied to the specimen substrate.

As seen in Figure 2, plasma reactor is a diode type and rf power of up to 600 W can be applied between the parallel electrodes. Their distance can be adjusted, however during all our experiments, it is kept at 5 cm. Samples can be heated up to 800 °C by a halogen lamp heater in the reaction chamber. Bias voltages as great as 500 V can be applied to the substrate. The binary etchant gases, CF<sub>4</sub> and O<sub>2</sub>, are supplied to the reaction chamber through mass flow controllers with fine control of their flow rates. Total gas pressure is maintained 0.45 Torr in these experiments. To avoid complicated radiation protection procedures, non-radioactive cobalt metal samples with 99.8% purity are prepared.

The prepared metal pieces are cut into thin disk specimens using a low-speed diamond wheel cutter. Prior to loading the sample to the reaction chamber, the surface of the specimen is polished to a mirror-like finish with grit 600 sandpaper, pickled in a pickling solution, cleaned ultrasonically, and baked at 200 °C for 10 minutes in a vacuum to evaporate moisture adsorbed on the surface.

The decontamination rate is estimated as the surface-etching rate, which is measured by weight loss during the reaction. These measurements are made with an electro-micro balance (BP210D, Sartorius) with a sensitivity limit of  $10^{-5}$  g. The weight loss is expressed in units of micrometers per minute.

Along with the decontamination rate measurements, OES and AES analyses are carried out to diagnose the plasma parameters and to obtain information on the reaction mechanism.

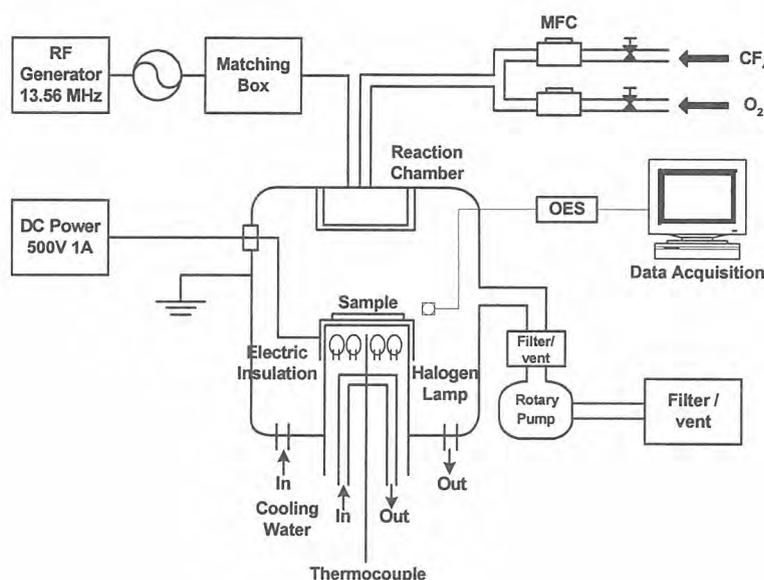


Figure 2. Schematic of cold plasma reactive ion etching apparatus.

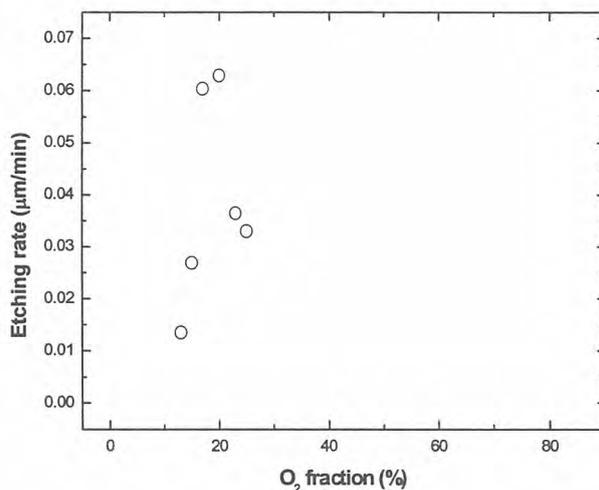
### III. Results and Discussion

First, etching reaction rates are examined with various  $\text{CF}_4/\text{O}_2$  ratios at three substrate temperatures, 290 °C, 350 °C, and 380 °C, to find the highest etching rate as a function of  $\text{CF}_4/\text{O}_2$  ratio. In these measurements, rf plasma power and exposure duration are set to be 220 W and 120 minutes, respectively.

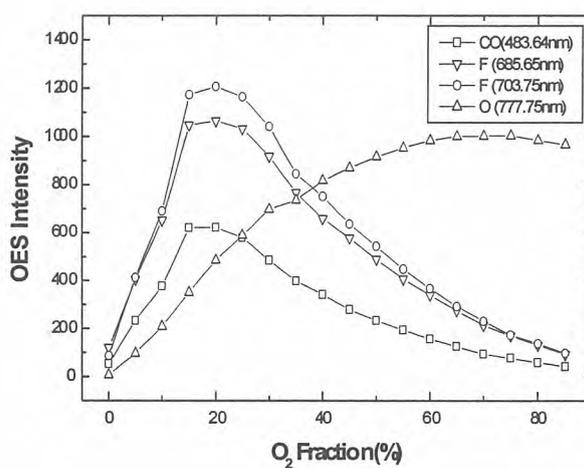
Figure 3(a) shows the results with various mole fractions of  $\text{O}_2$  at 380 °C, revealing that about 80%  $\text{CF}_4$  20%  $\text{O}_2$  mixed binary gas gives the highest reaction rate and the rate reaches 0.06  $\mu\text{m}/\text{min}$ . The same optimum composition is observed at other substrate temperatures, even though the effect of compositional changes becomes less distinctive at lower temperatures. This finding is supported by previous OES plasma diagnostics results with  $\text{CF}_4/\text{O}_2$  mixture gas,<sup>7,10</sup> as seen in Figure 3(b). This figure demonstrates the significant role of fluorine and carbon monoxide radicals in the reaction.

In the following low-temperature measurements, it is found that there is almost no surface etching at 290 °C. However, etching begins to occur at around 350 °C and its rate increases as the substrate temperature increases above that temperature. These results are shown in Figure 4. Unfortunately, the maximum etching rate attained at 380 °C, 0.06  $\mu\text{m}/\text{min}$ , is not high enough to be useful for practical decontamination. To enhance the reaction rate

with the ion-assisted etching technique, therefore, negative bias voltage is applied to the metallic cobalt substrate. Figure 4 clearly shows that the bias voltage lowers the surface reaction initiation temperature and dramatically increases the reaction rate at each substrate temperature. With 300 V DC, the reaction is measurable even at 290 °C and progresses vigorously at 350 °C. In fact, the rate increases 20 times at 350 °C and the highest etching rate achieved at 380 °C is 0.43  $\mu\text{m}/\text{min}$ . Conversely this result proves that the ion bombardments induced by the negative bias voltage applied to the substrate assist the surface reaction of the metallic cobalt.



(a)

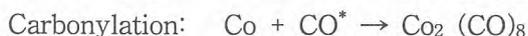


(b)

Figure 3. (a) Co etching reaction rate vs. O<sub>2</sub> mole fraction at 380 °C. (total flow rate: 100 sccm, plasma exposure time: 120 min, rf power: 220 W, no bias voltage, total pressure: 0.35 Torr)  
 (b) Emission intensities of F, O and CO with O<sub>2</sub> mole fraction.<sup>(7)</sup>

To confirm these results, surface morphology changes before and after the reaction are examined using SEM and AFM. Figure 5 shows SEM micrographs taken before and after the reaction with and without substrate bias voltage at 350 °C, and Figure 6 presents three-dimensional AFM images of the SEM micrographs in the previous figure. The morphology changes at 350 °C evidently demonstrate that the mirror-like flat surface before the reaction becomes rough after exposure to the reactive plasma gas and the negative bias voltage turns the moderate reaction into a vigorous one. The three dimensional AFM images vividly show the progressive roughness changes.

As mentioned in the introduction, diagnosis of CF<sub>4</sub>/O<sub>2</sub> mixed gas plasma by OES analysis reveals that the intensities of F and CO radicals reach a maximum at around 20% mole fraction of O<sub>2</sub>.<sup>10,15)</sup> In addition to these findings, the strong chemical affinities of F and CO radicals, the high volatility of fluoride compounds, and the very low melting temperature of carbonyl compounds (for example, 51 °C for Co<sub>2</sub> (CO)<sub>8</sub>)<sup>16,20)</sup> provide support that the dominant surface reactions are fluorination and/or carbonylation. The probable basic reactions are as follows:



Hence, to examine the surface atoms participating in the reaction, AES analyses are carried out before and after the reaction. One of the results is shown in Figure 7. The first figure (a) shows the AES spectrum of the intact Co specimen, which is in good agreement with the standard cobalt spectrum<sup>21)</sup> except for carbon and oxygen peaks. The carbon peak is from the residuals on the surface that always reside in the vacuum system. The two oxygen peaks must be from an oxide layer on the specimen surface. Even though relatively thick oxide was

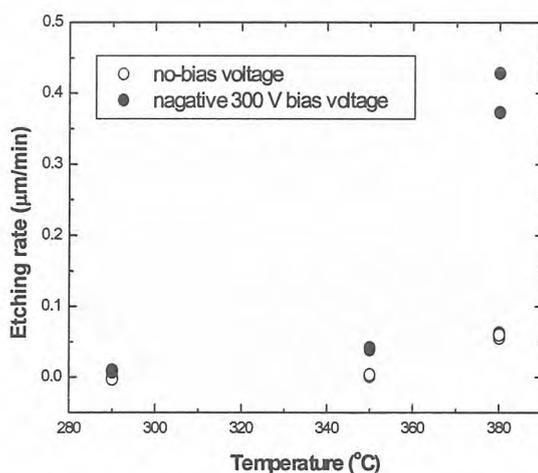
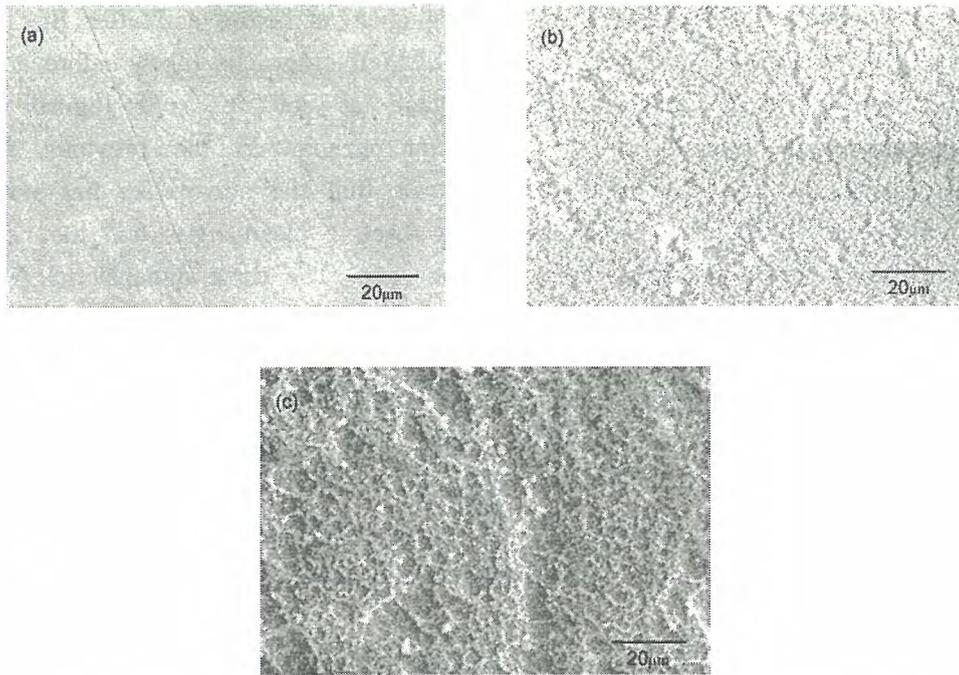
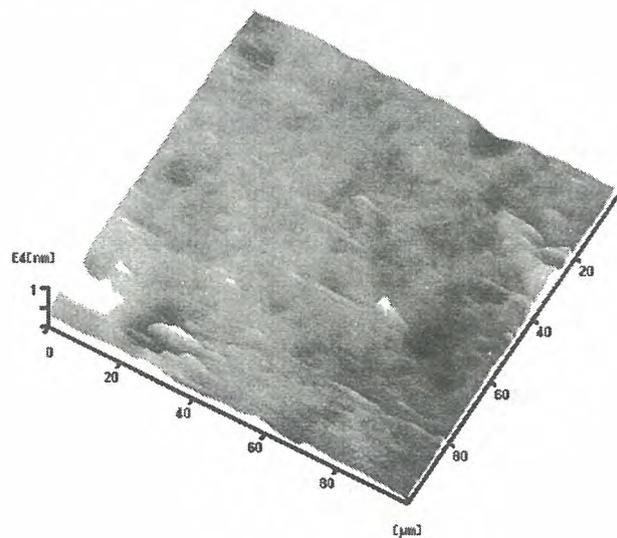


Figure 4. Co etching rate vs. various substrate temperatures (total flow rate: 100 sccm, reaction time: 120 min., 20% O<sub>2</sub> mole fraction, rf power: 220 W, bias: -300 V, total pressure: 0.35 Torr)

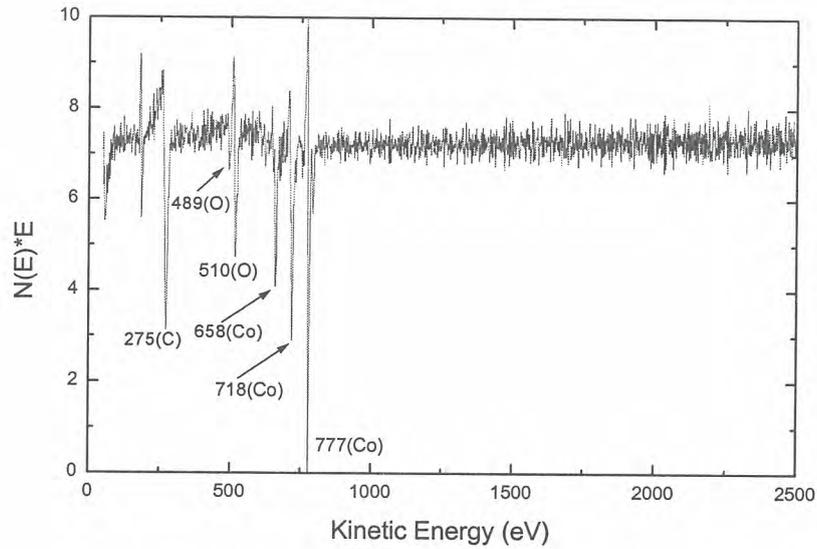


**Figure 5. SEM micrographs of surface morphology changes before and after surface reaction at 350 °C**  
 (a) intact (b) no-bias voltage (c) -300 DC bias voltage

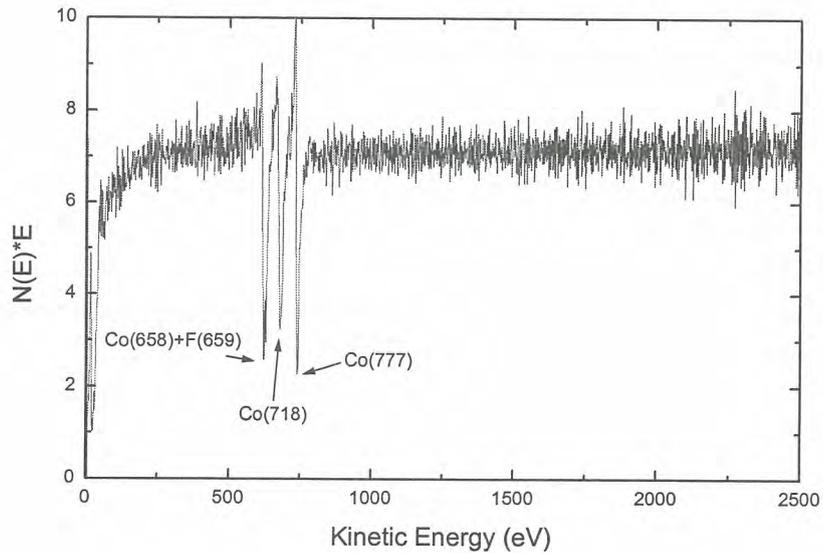
removed with the pickling solution prior to the specimen loading in the reaction chamber, it turns out that a few monolayers of thin oxide film inevitably form on the metal surface because of the high oxygen potential in the ambient environments. However, the post-reaction AES spectrum plotted in Figure 7(b) shows only Co atom peaks without the carbon and oxygen peaks. This supplementally proves that the current surface etching reaction can eliminate even an oxide layer on the surface.



**Figure 6. Three-dimensional AFM (Atomic Force Microscopy) image of SEM micrographs in Figure 5**



(a) AES spectrum of intact metallic Co surface



(b) AES spectrum of reacted metallic Co surface

**Figure 7. Differentiated AES spectrum of Co before and after etching reaction**

Next, the intensities of the three Co peaks in Figure 7(b) must be carefully considered. It is noticeable that the intensity of the first peak at 658 eV is extraordinarily large compared with that in Figure 7(a). Careful scrutiny reveals that the 658 eV Auger electron binding energy peak of Co overlaps with the 659 eV F atom Auger electron peak, because the resolution of the spectrum is not less than 1 eV. Thus, this peak is unusually large. This implies that, given the extremely strong adsorption capability of fluorine atoms on the metallic surface being considered, most of the reacted cobalt metal surface is covered with the fluorine radicals generated in the incoming gaseous plasma and these adsorbed radicals must take a

leading part in the surface reaction.

Therefore, it can be mechanistically postulated that the adsorbed fluorine atoms interact with surface cobalt atoms and possibly carbon monoxide radicals abundantly generated in the plasma gas to form intermediate species, which are quite complex metal fluorides or metal-fluoro-carbonyl compounds that are ready to desorb from the surface. Further successive interactions with the incoming radicals from the gaseous plasma finally turn the metastable species into very volatile reaction products that then leave the surface. The surface is thus etched down.

#### IV. Conclusions

Both to demonstrate the practical applicability of the plasma surface cleaning technique and to promote the mechanistic understanding of the etching process, and to determine the optimum parameters, the decontamination rate of metallic cobalt is experimentally investigated via the surface-etching rate with  $\text{CF}_4$  and  $\text{O}_2$  mixed gas plasma. The selection of the target system is based on the fact that Co is one of the most troublesome radioactive contaminants in used nuclear metallic parts or equipment and the gas mixture plasma produces carbon monoxide (CO) and fluorine radicals (F) that are essential for the formation of the volatile gaseous reaction products.

Experimental results reveal that about 80% $\text{CF}_4$ -20% $\text{O}_2$  mixed etchant gas gives the highest reaction rate and the rate reaches 0.06  $\mu\text{m}/\text{min}$  at 380 °C. This composition is also optimum at other substrate temperatures, even though the differences become less distinct as the temperature decreases. It is also found that there is almost no surface reaction at 290 °C. However, it begins to occur at around 350 °C and its rate increases sufficiently as the substrate temperature increases.

In this study, it is confirmed that ion-assisted etching dramatically enhances the surface reaction rate. Applying a 300 V DC bias to the substrate clearly lowers the surface reaction initiation temperature and dramatically increases the reaction rate. The rate increases about 20 times at 350 °C and the highest etching rate achieved at 380 °C jumps to 0.43  $\mu\text{m}/\text{min}$ .

The changes in surface morphology as a result of the reaction confirm the etching rate measurements. According to SEM analysis performed after etching at 350 °C, the mirror-like flat surface of the intact metallic cobalt becomes rough with exposure to the reactive plasma gas and the negative bias voltage turns the moderate reaction into a vigorous one. In particular, the three dimensional AFM images vividly show the progressive roughness changes.

From the current experimental findings and the results discussed in previous studies, two prospective basic reactions, metal fluorination and/or metal carbonylation reaction, are proposed. To raise the mechanistic understanding of the principal surface reaction, however, the concentrations of surface atoms participating in the reaction are examined with AES analysis. The Auger spectrum shows evidence of the adsorption of fluorine atoms on the reacted surface.

Therefore, in view of the extremely strong adsorption capability of fluorine atoms on the metallic surface, it can be mechanistically postulated that most of the reacted cobalt metal

surface is covered with fluorine radicals. The adsorbed fluorine atoms interact with surface cobalt atoms and possibly carbon monoxide radicals generated in the plasma gas to form intermediate species, which are quite complex, but volatile, metal fluorides or metal-fluoro-carbonyl compounds. Further successive interactions with the incoming radicals from the gaseous plasma finally turn the intermediate compounds into very volatile reaction products that then leave the surface. The surface is thus etched down.

Through this study, it is ascertained that plasma surface-cleaning or surface-etching techniques can be efficiently and effectively applied to the decontamination of spent or used nuclear parts and equipment if higher plasma power is used with the aid of ion-assisted etching techniques. In the near future, more thorough kinetic studies will be implemented in order to achieve a complete understanding of the surface-etching reaction.

## References

- 1) OECD/NEA, Nuclear Decommissioning: Recycling and Reuse of Scrap Metals, A Report by a Task Group of the Co-operative Programme on the Decommissioning, OECD (1996).
- 2) IAEA, State of the Art Technology for Decontamination and Dismantling of Nuclear Facilities, Technical Reports Series No. 395 (1999).
- 3) INEL, Idaho National Engineering Laboratory Decontamination and Decommissioning Technology Logic Diagram", Vol. 3, EGG-WTD-11104 (1994).
- 4) T. Amakawa, K. Adachi, S. Yasui, and S. Furukawa, "Research and development of radioactive solid waste treatment technology by thermal plasma heating in CRIEPI", Proc. Plasma Processing for Nuclear Applications, Seoul, Korea, August 9 - 10 (2001).
- 5) I.N. Toumanov, Plasma and High Frequency Processes for Obtaining and Processing Materials in the Nuclear Fuel Cycle, Nova Science Publishers Inc. (2001).
- 6) C. Girold, B. Barthelemy, N. Cerqueira, C. Vandensteendam, and J.M. Baronnet, "Medium level burnable radioactive waste incineration/vitrification under oxygen transferred arc plasma", Proc. Intern. Symposium on Plasma Chemistry (ISPC) 15, Orleans, France, July 9 13 (2001).
- 7) Y.S. Kim, S.H. Jeon, and C.H. Jung, "Fluorination reaction of uranium dioxide in CF<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> r.f. plasma", Annals of Nucl. Eng., 30, 1199 (2003).
- 8) Y.H. Kim, Y.H. Choi, J.H. Kim, J.K. Park, W.T. Ju, K.H. Paek, and Y.S. Hwang, "Decontamination of radioactive metal surface by atmospheric pressure ejected plasma source", Surface and Coatings Tech., 171, 317 (2003).
- 9) M. Suzuki, M. Komatsubara, M. Umebayashi, and H. Akatsuka, "Characteristics of microwave heated oxygen plasma and its application to oxygenation of metal chloride waste", Proc. Asia-Pacific Conference on Plasma Science & Technology, Tokyo, Japan, July 15 17 (1996).
- 10) Y.S. Kim, J.Y. Min, K.K. Bae, and M.S. Yang, "Uranium dioxide reaction in CF<sub>4</sub>/O<sub>2</sub> rf plasma", J. Nucl. Mater., 270, 253 (1999).
- 11) K. Tatenuma, Y. Hishinuma, and S. Tomatsuri, "Newly developed decontamination

- technology based on gaseous reactions converting to carbonyl and fluoric compounds", Nucl. Tech., 124, 147 (1998).
- 12) E.B. Munday and D.W. Simmons, Oak Ridge K-25 Site, K/TCD-1048 (1993).
  - 13) J.G. Malm, P.G. Eller, and L.B. Asprey, "Low temperature synthesis of plutonium hexa-fluoride using di-oxygen di-fluoride", J. Am. Chem. Soc., 106, 2726 (1984).
  - 14) W. Betteridge, Cobalt and Its Alloys, Halsted Press (1982).
  - 15) J.C. Martz, D.W. Hess, J.M. Haschke, J.W. Ward, and B.F. Flamm, "Demonstration of plutonium etching in a CF<sub>4</sub>/O<sub>2</sub> rf glow discharge", J. Nucl. Mater., 182, 277 (1991).
  - 16) J.C. Bailar, H.J. Emeleus, S.R. Nyholm, and A.F. Trotman-Dickenson, Comprehensive Inorganic Chemistry, Pergamon Press, New York (1973).
  - 17) M.A. Lieberman and A.J. Lichtenberg, Principles of Plasma Discharges and Materials Processing, John Wiley & Sons Inc. (1994).
  - 18) D.M. Manos and D.L. Flamm, Plasma Etching, Academic Press Inc. (1989).
  - 19) H.F. Winters, J.W. Coburn, and T.J. Chuang, "Surface processes in plasma-assisted etching environments", J. Vac. Sci. Tech. B, 1, 469 (1983).
  - 20) F. Calderazzo, R. Ercoli, and G. Natta, Inorganic Synthesis via Metal Carbonyls I, Wender and P. Pino (Eds.), Interscience (1968).
  - 21) K.D. Child, B.A. Carlson, L.A. LaVanier, J.F. Moulder, D.F. Paul, W.F. Stickle, and D.G. Watson, Handbook of Auger Electron Spectroscopy (3rd ed.), Physical Electronics Inc. (1995).

## A Study on the Radioactivity Analysis of Decommissioning Concrete Using Monte Carlo Simulation

### Monte Carlo 모사기법을 이용한 해체 콘크리트의 방사능 분석법 연구

Bum-Kyoung SEO, Gye-Hong KIM, Un-Soo Chung, Kune-Woo LEE, Won-Zin OH, Jin-Ho Park  
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Deok-Jin Dong, Yuseong-Gu, Daejeon

서범경, 김계홍, 정운수, 이근우, 오원진, 박진호  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

#### Abstract

In order to decommission the shielding concrete of KRR(Korea Research Reactor)-1&2, it must be exactly determined activated level and range by neutron irradiation during operation. To determine the activated level and range, it must be sampled and analyzed the core sample. But, there are difficulties in sample preparation and determination of the measurement efficiency by self-absorption. In the study, the full energy efficiency of the HPGe detector was compared with the measured value using standard source and the calculated one using Monte Carlo simulation. Also, self-absorption effects due to the density and component change of the concrete were calculated using the Monte Carlo method. Its results will be used radioactivity analysis of the real concrete core sample in the future.

**Key Words** : decommissioning, Monte Carlo simulation, radioactivity, HPGe, self-absorption,

#### 요약

현재 해체가 진행 중인 연구로 1, 2호기의 원자로 차폐 콘크리트를 해체하기 위해서는 운전기간 동안 중성자 조사에 의한 방사화 정도 및 범위를 정확하게 결정하여야 한다. 차폐 콘크리트의 방사화 정도 및 범위를 결정하기 위해서 코어 시료를 채취하여 분석하여야 하는데, 시료 전처리의 어려움과 표준선원의 준비 및 자체흡수효과에 의하여 정확한 측정효율을 결정하는데 어려움이 있다. 본 연구에서는 방사능 분석에 이용되는 HPGe 검출기의 전에너지 검출 효율을 표준선원을 이용한 측정값과 Monte Carlo 방법을 이용하여 계산값을 비교하였다. 또한, Monte Carlo 모사 기법을 이용하여 콘크리트의 밀도 및 성분 변화에 따른 자체흡수 효과를 계산하였으며, 향후 실제 콘크리트 코어 시료를 채취 시 방사능 분석에 이용할 계획이다.

**중심단어** : 해체, Monte Carlo 모사, 방사능, HPGe, 자체흡수

## 1. 서 론

한국원자력연구소의 대전 이전과 다목적 연구용 원자로인 하나로(HANARO)가 1995년에 가동됨에 따라 서울 공릉동에 위치한 연구로 1, 2호기의 효용성이 상실되어 해체작업이 진행 중에 있으며, 현재는 연구로 2호기 원자로의 콘크리트 차폐체 해체를 준비 중에 있다. 해체 작업에서 가장 중요한 것 중의 하나는 해체 시 발생하는 대량의 폐기물을 효과적으로 처리하여 관리하는 것이다. 해체 시 발생하는 폐기물은 다양한 핵종과 방사능을 가지고 있으므로, 개개의 방사성 폐기물의 처리방법을 결정하기 위해서는 방사성 폐기물 관리절차에 따라 개별적인 평가를 수행하여야 한다. 여기에는 시료채취, 표면오염도 조사, 주요 핵종 분석, 방사능 측정 및 평가 등이 포함된다.

특히, 해체 예정인 원자로 차폐 콘크리트는 방사화 콘크리트와 비방사화 콘크리트를 구분하여 제거하여야 하며, 이들은 각각 저준위 또는 규제해제 폐기물로 처리된다. 그러므로, 원자로 콘크리트를 해체하기 전에 운전기간 동안 중성자 조사에 의한 정확한 방사화 범위를 결정하기 위하여, 콘크리트 코어 시료를 채취하여 분석하여야 한다. 이들 코어 시료들을 방사능 분석하기 위해서는 측정용기 충전할 수 있도록 분쇄과정을 거쳐야하며, 정확한 방사능을 분석하기 위하여 시료와 동일한 표준선원을 이용하여 검출기의 측정효율을 교정하여야 한다. 그러나, 콘크리트 코어 시료는 분쇄와 같은 시료 전처리가 쉽지 않을뿐더러 측정시료와 동일한 표준선원을 이용하여 효율을 교정한다는 것은 매우 어려운 일이다.

또한, 체적선원(voluminal source)의 경우는 시료량의 증가로 인하여 방출된 감마선이 시료 자체에서 산란되거나 흡수될 확률이 증가하게 되므로 검출기에 도달할 확률은 감소하게 된다. 이러한 자체흡수효과를 보정하기 위해서는 측정시료의 기하학적 조건 및 밀도에 따른 검출기의 측정효율을 보정하여야 한다. 자체흡수 효과는 시료의 겉보기 밀도에 주로 의존하며, 효율 교정시 대부분의 경우에 밀도가  $1.0 \text{ g/cm}^3$ 인 수용액 상태의 표준선원을 사용하므로, 표준선원과 측정시료의 밀도 차이로 인한 시료 내에서 자체흡수 효과의 차이로 방사능 분석 시 많은 오차를 야기시킨다.

이러한 자체흡수 효과를 평가하기 위하여 Sánchez et al.[1]은 Petri vial과 Marinelli 비커에서 Monte Carlo 계산을 이용하여 자체흡수 효과를 계산하였고, Cutshall et al.[2], Kitto[3], 그리고 Ramos-Lerate et al.[4]은 원통형 용기에 토양시료를 충전한 뒤, 직접 투과법을 이용하였다. 그리고, Debertain et al.[5]과 Dryák et al.[6]은 Marinelli 비커에서의 자체흡수 효과를 연구하였다. 대부분의 측정에서 기하학적인 조건은 표준선원과 동일한 측정용기를 사용함으로써 해결될 수 있다. 그러나 원자력 시설의 해체와 같이 다양한 종류 (종이류, 유리류, 철재류, 콘크리트 등)의 폐기물을 측정대상으로 할 경우에는 측정시료와 동일한 기하학적 조건 및 밀도를 가지는 표준선원을 이용하여 효율을 결정한다는 것은 사실상 불가능하다. 이러한 문제점을 해결하기 위하여 현재 Monte Carlo 계산법을 이용하여 다양한 기하학적 모양 및 밀도의 대하여 자체흡수에 대한 연구가 수행되고 있다[7-16].

본 연구에서는 Monte Carlo 방법을 이용하여 해체 콘크리트의 방사능 분석을 위한 HPGe 검출기의 전에너지 피크효율을 계산하여 실제 측정효율과 비교하였다. 또한, 콘크리트의 밀도 및 성분 변화에 따른 자체흡수 효과에 따른 효율의 변화 정도를 비교하였다.

## 2. 재료 및 방법

### 2.1. HPGe 검출기의 전에너지 피크효율 결정

다른 모양의 측정용기에 대한 전에너지 피크효율은 HPGe 검출기를 이용하여 한국표준연구원 에서 제작·보급한 원통형 표준선원(55 mL 원통형 비커, CB1)과 Amersham의 혼합 감마선원을 증류수에 희석하여 제조한 표준선원(8L 원통형 용기, CB2)을 이용하여 측정하였다. 한국표준연구원 에서 제작된 표준선원의 매질은 한천(agar)이며, 밀도는  $1.0 \text{ g/cm}^3$ 이다. 이 때 사용된 표준선원의 핵종, 에너지 그리고 반감기는 표 1과 같다. 실험에 사용한 검출기는 Canberra 사의 동축형 HPGe 검출기이다. Ge 결정은 직경이 62 mm이고, 길이가 58 mm이며,  $^{60}\text{Co}$ 의 1332.5 keV 감마선에 대하여 에너지 분해능은 1.8 keV, 상대효율은 47.1 %, 그리고 피크 대 컴프턴 (peak-to-compton) 비는 68.1이다.

표 1. 방사성 표준선원의 감마선 에너지, 세기 및 반감기

Nuclides	Photon energy (keV)	Intensity(%)	Half life
$^{241}\text{Am}$	59.54	35.90	432.20 y
$^{109}\text{Cd}$	88.03	3.61	462.60 d
$^{57}\text{Co}$	122.06	85.60	271.79 d
	136.47	10.68	
$^{139}\text{Ce}$	165.85	79.90	137.64 d
$^{113}\text{Sn}$	391.69	64.20	115.09 d
$^{85}\text{Sr}$	514.01	95.71	64.84 d
$^{137}\text{Cs}$	661.66	85.12	30.07 y
$^{60}\text{Co}$	1173.24	99.90	5.27 y
	1332.50	99.98	
$^{88}\text{Y}$	989.04	93.68	106.65 d
	1836.06	99.24	

### 2.2. Monte Carlo 계산

HPGe 검출기의 전에너지 피크효율을 계산하기 위하여 사용한 Monte Carlo 코드는 다양한 분야에 적용할 수 있는 MCNP이다. MCNP는 초기에 중성자 수송을 위하여 개발된 코드이지만, 최근에는 전자와 광자에까지 적용되고 있다. 본 연구에서는 광자 모드만을 사용하여 다양한 콘크리트의 밀도와 성분 에 대하여 전에너지 피크효율을 계산하였다.

모든 효율계산에 대해 채널폭은 실제 측정의 에너지 폭과 맞추기 위하여 0.5 keV로 정하였다. 측정효율은 피크 계수치에서 이웃 에너지 빈(bin)의 계수치 평균을 소거하여 얻었다. 실험과 계산 표 4. 원통형 용기 CB2에서 HPGe 검출기의 측정 및 계산 효율 비교에서 전에너지 피크효율에 대하여 통계적 정밀도는 결과의 타당성을 확신하기 위해서 3% 이하로 유지하였다.

### 2.3. 원자로 차폐구조

연구로 2호기의 원자로 구조는 그림 1과 같다. 원자로는 콘크리트 차폐구조로 되어 있으며, 콘크리트 차폐체는 일반 콘크리트이며, horizontal thermal column door는 밀도가  $3.5 \text{ g/cm}^2$ 인 고밀

도 콘크리트로 구성되어 있다. 토양의 오염을 막기 위해 원자로 수조탱크의 아래쪽도 약 152 cm 두께의 일반 콘크리트 기초로 되어 있다. 표 2는 연구용 원자로 1,2호기의 해체계획서 작성 시 계산한 방사화 콘크리트의 예상 방사능을 나타낸 것이다.

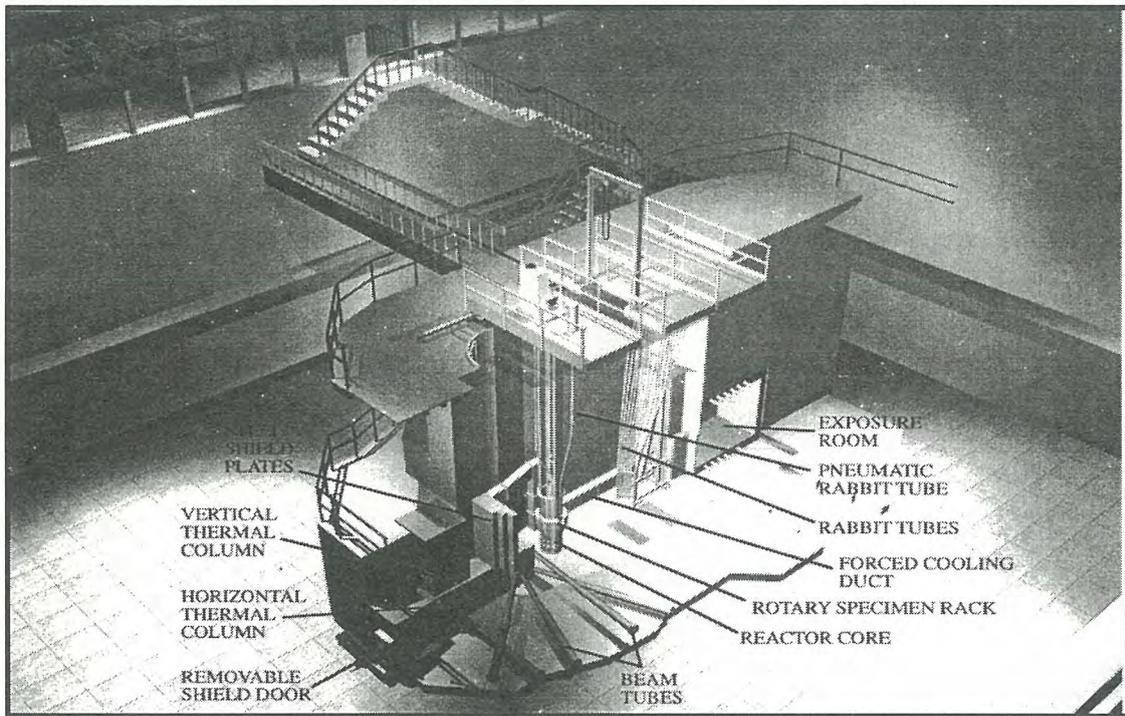


그림 1. KRR-2의 원자로 차폐 콘크리트 구조도

표 2. 연구로 1, 2호기 콘크리트 차폐체의 예상 방사능 농도

핵종	방사능 (Bq/m <sup>3</sup> )	
	연구로 1호기	연구로 2호기
<sup>22</sup> Na	$1.6 \times 10^4$	$2.4 \times 10^6$
<sup>54</sup> Mn	$1.9 \times 10^4$	$9.8 \times 10^6$
<sup>55</sup> Fe	$9.7 \times 10^5$	$1.4 \times 10^8$
<sup>60</sup> Co	$7.1 \times 10^5$	$8.2 \times 10^7$
<sup>152</sup> Eu	$1.5 \times 10^6$	$1.4 \times 10^8$
<sup>154</sup> Eu	$1.0 \times 10^6$	$1.0 \times 10^7$

※ 영국의 ICI 원자로의 자료를 기초로 계산한 값으로서, 실제 연구로 1,2호기의 차폐 콘크리트 방사능 분석 시 콘크리트 조성비의 차이 때문에 핵종 및 농도는 달라질 수 있음.

### 3. 결과 및 논의

Monte Carlo 모사기법을 이용하여 정확한 계산 결과를 얻기 위해서는 검출기의 특성을 정확하

게 모사하여야 한다. 실제 측정에 이용되는 검출기의 특성을 모사하기 위하여 두가지 측정용기인 CB1과 CB2를 이용하여 효율을 측정하고, 그 결과를 계산 결과와 비교하였다. 이들 두가지 측정용기는 실제 현장에서 콘크리트 시료의 방사능 분석 시 사용하는 것으로서, 분말과 같이 시료량이 작은 경우에는 CB1을 사용하고, 콘크리트 덩어리와 같이 부피가 큰 시료를 측정할 때는 CB2를 사용한다.

측정 용기와 동일한 모양의 용기에 표준선원을 준비하여 HPGe 검출기의 효율을 결정하였고, 측정 시와 동일한 기하학적인 조건을 사용하여 MCNP 코드로 효율을 계산하였다. 계산한 결과는 표 3과 4에 나타내었는데, 계산의 정확성을 기하기 위하여 개개의 용기에 대하여 서로 다른 두가지의 조건으로 측정하였다.

표 3과 4에서 볼 수 있는 바와 같이, 표준선원을 이용하여 실제 측정한 효율과 MCNP 코드를 이용하여 계산한 효율은 전체 측정에너지 영역에 대하여 약 10% 상대오차 범위 내외로 잘 일치하는 것을 볼 수 있다. 즉, 기존의 효율 교정 방법인 표준선원을 이용하지 않고, 검출기의 효율을 10% 오차범위 이내로 결정할 수 있다는 것을 알 수 있다.

표 3. 원통형 측정용기 CB1에서 HPGe 검출기의 측정 및 계산 효율 비교

Energy (keV)	효율					
	20 mm			50 mm		
	ME(%)	CE(%)	RE(%)	ME(%)	CE(%)	RE(%)
88.03	8.29	8.49	2.42	4.85	4.84	- 0.21
122.06	9.34	9.33	- 0.15	5.53	5.35	- 3.22
165.86	8.36	8.25	- 1.36	5.06	4.84	- 4.40
279.20	6.01	5.65	- 5.91	3.54	3.37	- 4.84
391.70	4.56	4.19	- 8.06	2.83	2.52	- 10.81
514.01	3.77	3.33	- 11.62	2.32	2.07	- 10.97
661.66	3.01	2.72	- 9.51	1.90	1.66	- 12.71
898.04	2.15	2.16	0.39	1.41	1.33	- 5.66
1173.24	1.72	1.80	4.38	1.13	1.09	- 3.56 *
1332.50	1.53	1.63	6.33	1.03	1.04	0.76
1836.06	1.22	1.30	6.57	0.82	0.81	- 2.12

Measured efficiency, \*\* Calculated efficiency, \*\*\* Relative error

표 4. 원통형 용기 CB2에서 HPGe 검출기의 측정 및 계산 효율 비교

Energy (keV)	Counting Efficiencies					
	4 L			8 L		
	ME (%)	CE (%)	RE (%)	ME (%)	CE (%)	RE (%)
88.03	0.32	0.29	- 9.83	0.18	0.18	- 3.07
122.06	0.42	0.43	0.68	0.24	0.22	- 11.28
165.86	0.45	0.42	- 6.59	0.24	0.24	- 0.74
391.70	0.31	0.29	- 6.05	0.19	0.16	- 11.80
514.01	0.26	0.24	- 8.75	0.16	0.15	- 5.84
661.66	0.23	0.23	- 2.69	0.14	0.14	- 3.78
898.04	0.20	0.17	- 13.71	0.12	0.12	0.68
1173.24	0.17	0.17	- 3.75	0.11	0.10	- 6.98
1332.50	0.16	0.17	4.57	0.10	0.10	3.47
1836.06	0.13	0.13	- 1.77	0.09	0.08	- 7.60

원자로 차폐 콘크리트 구조물을 해체하기 위한 사전 단계로서 원자로 운전기간 동안 중성자 조사에 의하여 방사화된 콘크리트의 정확한 방사화 범위와 농도를 결정하여야 하는데, 이는 코어 시료를 채취하여 깊이별로 방사능 농도를 구함으로서 얻을 수 있다. 실제 코어 시료 측정 시 최적의 시료 두께를 구하기 위하여 시료의 두께에 따른 검출기의 질량 효율을 계산하여 그림 2에 나타내었다. 계산에서 사용한 시료의 직경은 실제 해체 현장에서 콘크리트 시료를 채취하기 위한 코어 시료 채취장치와 동일한 50 mm이며, 두께는 5에서 30까지 5 mm 간격으로 변화시키면서 계산하였다.

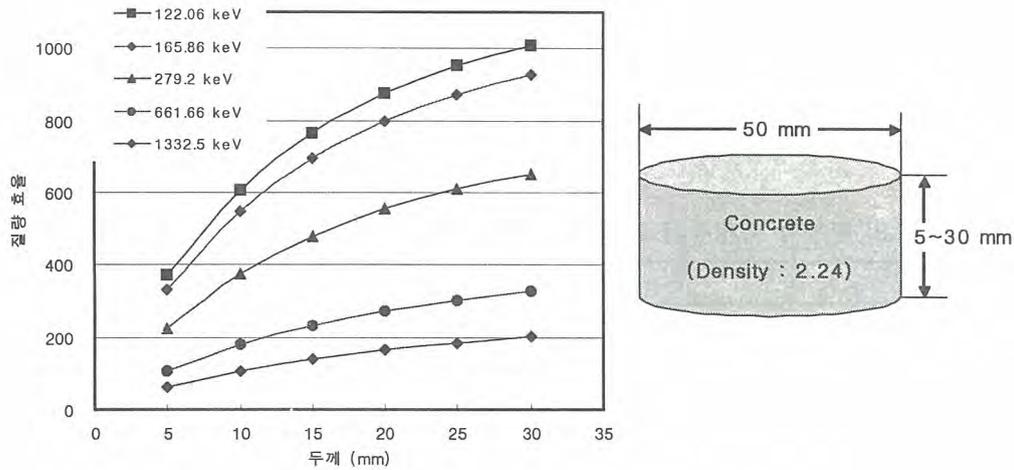


그림 2. 콘크리트 코어 시료의 두께에 따른 질량효율 변화

그림 2의 계산 결과에서 볼 수 있듯이, 콘크리트 두께에 따라서 측정 시료의 질량 효율은 점점 커지는 것을 알 수 있다. 그러나, 코어 시료의 두께가 커지면서 시료 내에서의 자체흡수 효과의 증가로 질량 효율은 거의 변하지 않는다. 즉, 코어 시료의 일정 두께 이상은 측정 시 이득이 없다는 것을 알 수가 있다. 실제 차폐 콘크리트 구조물의 코어 시료 채취 후 방사능 분석 시 방사화 정도를 알고자 하는 영역별로 수 mm에서 수십 mm까지 측정 시료의 두께에 따른 계산 효율을 적용하여 방사능을 결정할 수 있을 것이다.

측정하고자 하는 코어 시료의 정확한 방사능을 결정하기 위해서는 시료의 밀도 별로 효율을 구하여야 한다. 계산에서는 콘크리트 시료의 밀도를 2.0에서 3.5까지 0.1 간격으로 변화시킴을 시키면서 구하였지만, 그림 3에서는 대표적으로 몇가지 밀도에 대한 에너지별 효율을 나타내었다.

그림 3에서 볼 수 있는 바와 같이, 실제 측정 시 코어 시료의 정확한 밀도를 결정하지 않고 방사능 분석 시에는 많은 오차를 발생할 수 있다는 것을 알 수 있다. 계산 결과 약 100 keV 에너지 영역에서는 밀도가 0.5 g/cm<sup>3</sup>의 차이에 의하여 약 5% 정도의 효율을 차이를 보이며, 500 keV 이상의 고에너지 영역에서는 1 ~ 2% 정도의 효율의 차이를 보인다.

연구로 1,2호기의 차폐체 콘크리트는 일반 콘크리트와 강화(heavy) 콘크리트가 같이 사용되었다. 이는 실제 방사능 분석 시 밀도 뿐만 아니라 콘크리트 구성 성분의 차이에 따른 효율을 적용하여야 한다. 이를 위하여 일반 콘크리트와 강화 콘크리트의 밀도 범위인 2.0에서 3.5 g/cm<sup>3</sup>까지 0.5 간격으로 변화시키면서 Fe의 무게함량에 따른 효율을 계산하였다. 계산 결과는 그림 4에 나타내었다.

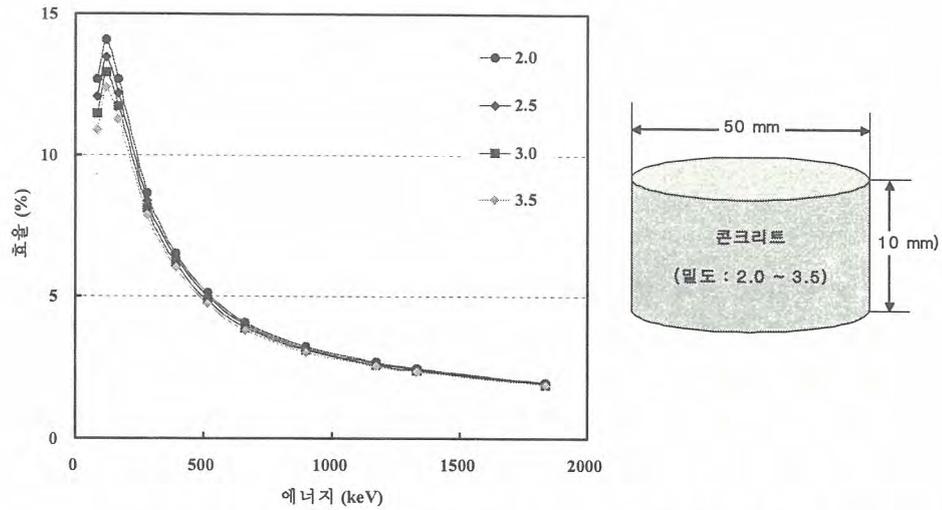


그림 3. 콘크리트 코어 시료의 밀도에 따른 에너지별 효율 변화

각 밀도 별로 Fe의 함량에 따라 효율의 차이를 100 keV 에너지 근방의 저에너지 영역에서 큰 차이가 나타나는 것을 볼 수 있다. Fe 무게 함량의 5% 정도 차이에 따라 효율은 약 2% 정도 차이가 난다. 이는 Fe 함량이 증가함에 따라 시료 내부에서 자체흡수가 크게 나타난다는 것을 알 수 있다. 그러나 200 keV이상의 에너지 영역에서는 Fe 함량의 차이에 따른 효율의 변화 정도는 거의 무시할 수 있는 정도이다.

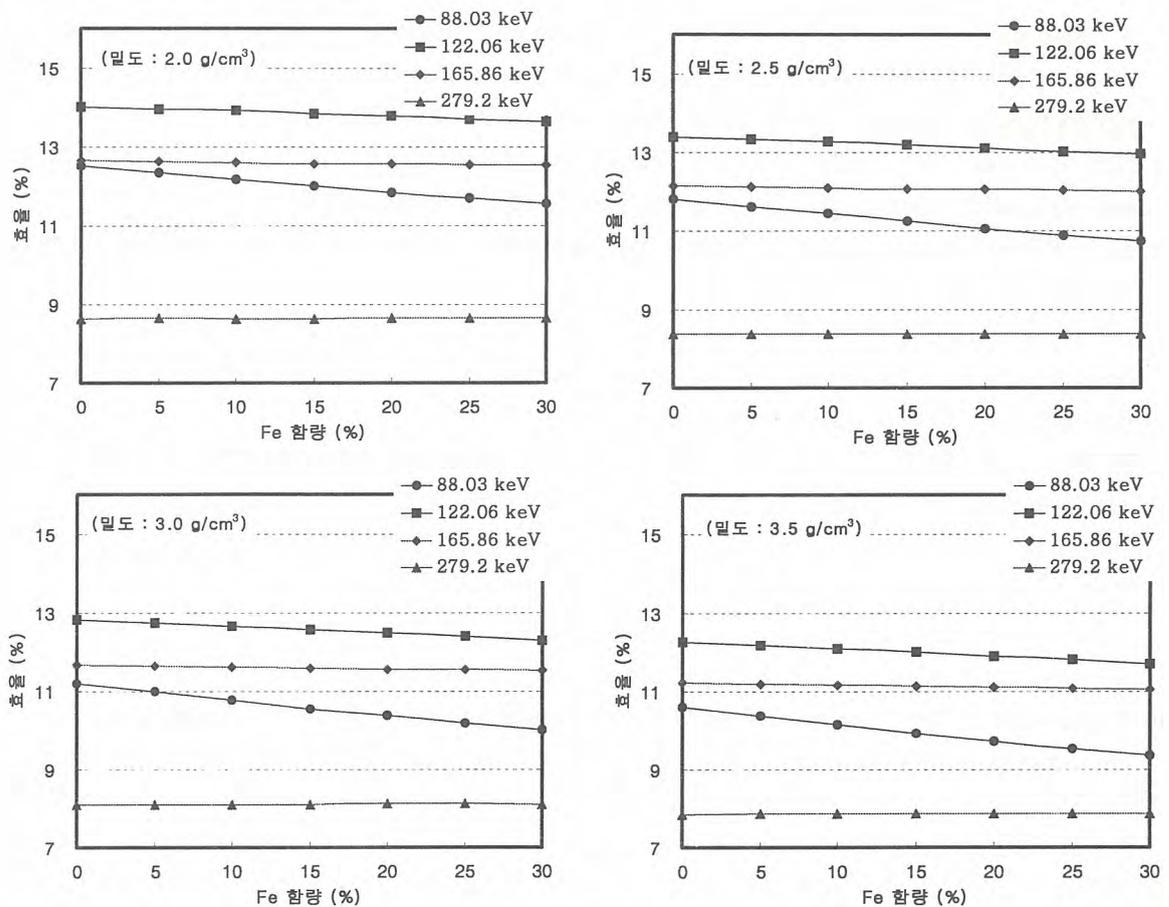


그림 4. 밀도별 Fe 무게 함량에 따른 효율의 변화

이상에서 콘크리트 시료의 두께, 밀도, 그리고 Fe 함량에 따른 효율을 계산하였다. 이 결과는 실제 원자로의 콘크리트 차폐체의 방사능 분석 시 자체흡수 효과를 포함한 효율 결정에 유용하게 이용할 수 있을 것이다.

#### 4. 결 론

연구로 1, 2호기의 원자로 차폐 콘크리트를 해체하기 위한 사전작업으로서 방사화 범위 및 농도를 결정하여야 한다. 기존의 방법으로는 시료 전처리의 어려움과 표준선원의 준비 및 자체흡수효과에 의하여 정확한 측정효율을 결정하는데 어려움이 있기 때문에, Monte Carlo 모사기법을 이용하여 효율을 평가하고 비교하였다. 또한, 계산 결과의 타당성을 입증하기 위하여 표준선원을 준비하여 HPGe 검출기의 효율을 결정하였고, 동일한 기하학적인 조건을 사용하여 MCNP 코드로 효율을 계산하여 적용성을 확인하였다.

Monte Carlo 모사기법을 이용하여 콘크리트의 두께, 밀도, 그리고 Fe 함량에 따른 효율을 계산하였다. 이는 향후 원자로 차폐 콘크리트 구조물의 코아 시료 분석 시 정확한 방사능을 결정하는데 유용한 자료로 활용될 것이다.

#### 참고문헌

1. F. Sánchez, E. Navarro, J.L. Ferrero, A. Moreno, C. Roldán, A. Baeza and J. Paniagua, "A Monte Carlo based method of including gamma self-absorption for the analysis of environmental samples", Nucl. Instr. Meth., B61, 535-540 (1991).
2. N.H. Cutshall, I.L. Larsen and C.R. Olsen, "Direct analysis of  $^{210}\text{Pb}$  in sediment samples : self-absorption corrections", Nucl. Instr. Meth., 206, 309-312 (1983).
3. M.E. Kitto, "Determination of photon self-absorption corrections for soil samples", Appl. Radiat. Isot., 42(9), 835-839 (1991).
4. I. Ramos-Lerate, M. Barrera, R.A. Ligeró and M. Casas-Ruiz, "A new method for gamma-efficiency calibration of voluminal samples in cylindrical geometry", J. Environ. Radioactivity, 38(1), 47-57 (1998).
5. K. Debertin and R. Jianping, "Measurement of the activity of radioactive samples in Marinelli beakers", Nucl. Instr. Meth., A278, 541-549 (1989).
6. P. Dryák, P. Kovář, L. Plchová and J. Šuráň, "Corrections for the Marinelli geometry", J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters 135(4), 281-292 (1989).
7. K.M. Wainio and G.F. Knoll, "Calculated gamma ray response characteristics of semiconductor detectors", Nucl. Instr. Meth., 44, 213-223 (1966).
8. B. Lal and K.V.K. Iyengar, "Monte Carlo calculations of gamma ray response characteristics of cylindrical Ge(Li) detectors", Nucl. Instr. Meth., 79, 19-28 (1970).
9. G. Gaggero, "Monte Carlo calculations for the photofractions and energy loss spectra of Ge(Li) semiconductor detectors", Nucl. Instr. Meth., 94, 481-492 (1971).
10. Ch. Meixner, "A Monte Carlo program for the calculation of gamma-ray spectra for germanium detectors", Nucl. Instr. Meth., 119, 521-526 (1974).
11. T. Nakamura, "Monte Carlo calculation of peak efficiencies and response functions of

- coaxial-type Ge(Li) detectors for disk gamma-ray sources", Nucl. Instr. Meth., 131, 521-527 (1975).
12. K. Debertin and B. Grosswendt, "Efficiency calibration of semiconductor detectors by primary standard sources and Monte Carlo calculations", Nucl. Instr. Meth., 203, 343-352 (1982).
  13. T. Nakamura and T. Suzuki, "Monte Carlo calculation of peak efficiencies of Ge(Li) and pure Ge detectors to voluminal sources and comparison with environmental radioactivity measurement", Nucl. Instr. Meth., 205, 211-218 (1983).
  14. C.E. Moss and J.R. Streetman, "Comparison of calculated and measured response functions for germanium detectors", Nucl. Instr. Meth., A299, 98-101 (1990).
  15. M.I. Abbas, "HPGe detector photopeak efficiency calculation including self-absorption and coincidence corrections for Marinelli beaker sources using compact analytical expressions", Appl. Radiat. Isot., 54, 761-768 (2001).
  16. T. Boshkova and L. Minev, "Corrections for self-attenuation in gamma-ray spectrometry of bulk samples", Appl. Radiat. Isot., 54, 777-783 (2001).

## 해체 부지 선량평가모델의 주요 핵종에 대한 Key parameter 분석

### Key Parameters Analysis of Important Radionuclides in Dose Evaluation Model of Decommissioning Site

Yong-Kyu Lim, Hak-Soo Kim, Jung-Kwon Son, Kyoung-Rock Park, Ki-Doo Kang,  
Kyoung-Doek Kim, Chan-Woo Jeong\*

Nuclear Environment Technology Institute, P. O. Box 149 Yuseong, Daejeon

\*Korea Institute of Nuclear Safety, P. O. Box 114 Yuseong, Daejeon

임용규, 김학수, 손중권, 박경록, 강기두, 김경덕, 정찬우\*

원자력환경기술원, 대전광역시 유성우체국 사서함 149

\*한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성우체국 사서함 114

#### Abstract

In order to analyze key parameters of important radionuclides in dose evaluation model of decommissioning site, a sensitivity analysis was performed. This analysis assumed a resident farmer for an exposure scenario and 0.037Bq/g for the concentration of radionuclides. As a result of sensitivity analysis, the key parameters of radionuclides considered were the area of contaminated zone, external gamma shielding factor and indoor time fraction for Cs-137 and Co-60. The key parameters for C-14 were the environmental parameters and hydrological parameters of unsaturated zone. Also, the key parameter for Sr-90 was the density of contaminated zone.

**Key Words** : Key Parameter, Sensitivity analysis, Exposure scenario, Resident farmer

#### 요약

해체부지 선량평가 모델의 주요 핵종에 대한 key parameter를 분석하기 위하여 민감도 분석을 수행하였다. 본 연구에서 민감도 분석을 수행하기 위한 주요 가정 사항으로서 피폭시나리오는 가장 보수적인 resident farmer를 그리고 방사성핵종의 오염 정도는 0.037 Bq/g로 하였다. 분석결과, 감마 방출 핵종인 Cs-137과 Co-60의 경우에는 오염지역의 면적과 거주관련 변수(외부감마차폐인자와 실내 거주시간분율), C-14 핵종의 경우에는 환경변수와 불포화층의 수문학적 변수가, Sr-90 핵종의 경우에는 오염지역의 토양 밀도가 선량에 미치는 영향이 큰 parameter로 확인되었다.

**중심단어** : Key parameter, 민감도분석, 피폭 시나리오, 거주 농부

## 1. 서 론

원자력시설에 있어 해체는 시설이나 부지를 안전하게 제거하는 것과 허용 준위로 잔류방사능을 감소시키는 것을 의미한다. 원자력발전소 해체에 있어 근본적인 문제중 하나는 해체된 부지에 잔류하는 방사능이 부지개방 후 대중에 대하여 용인할 수 있는 위해도 수준임을 증명하는 것이다. 이러한 위해도는 부지에 잔류하는 방사성물질로부터 잠재적으로 피폭된 대중의 선량을 평가함으로써 증명될 수 있으므로, 부지특성 선량평가에 있어 고려된 많은 변수들 중에서 key parameter를 확인하는 것이 중요하다. 국내의 경우 아직 원자력시설 및 부지의 해체와 관련된 법규 및 규제 지침이 미비한 상태이고, 오염지역의 부지개방 여부를 결정하는데 적용하는 부지개방유도농도기준(DCGL : Derived Concentration Guideline Level) 역시 법적 제한치가 마련되어있지 않은 실정이므로, 국내 실정에 적합한 부지개방유도농도기준을 설정하기 위해서는 부지특성변수들에 대한 자료수집과 대표 시나리오의 선정이 우선시 되어야 한다. 따라서 해체부지의 선량평가 모델링에서 고려된 변수들에 대한 민감도를 분석함으로써 각 변수들이 방사성핵종 별로 선량평가에 미치는 영향을 평가하고 핵종별 key parameter를 확인하고자 한다.

## 2. 본 론

### 2.1 RESRAD code의 입력변수

해체 부지에 대한 선량평가의 초점은 오염된 토양으로부터 기인하는 방사선량을 평가하는 것으로 환경중의 모든 피폭경로를 고려하는 가장 보수적인 시나리오인 resident farmer 시나리오를 대표 시나리오로 선정하였으며, 선량평가 모델링에서 고려된 변수들은 아래 표 1과 같다.

표 1. 선량평가 모델링에서 고려하고 있는 변수들

구분	변수
물리적 변수	토양형태, 밀도, 다공도, 확산계수 등
수문학적 변수	수리전도도, 토양 b 변수, water table 깊이 등
지화학적 변수	분배계수, 침출률, 용해도 등
기상학적 변수	강수량, 증발산계수, 풍속, Run-off 계수 등
소비 변수	흡입, 관개, 섭취, 거주 등

### 2.2 가정사항

섭생관련 자료는 INDAC에서 사용 중인 최대가상개인중 성인에 대한 값을 적용하였으며, 내부 선량환산인자(DCF)는 유효선량 개념을 반영한 ICRP-72의 5  $\mu$ m AMAD 값과 RESRAD 코드 내에서 권장하는 핵종별 화학적 형태의 성인에 대한 내부선량환산인자 값을 적용하였다. 또한, 부지 특성변수는 고리 1호기 최종안전성분석보고서에 있는 자료를 사용하여 고리 부지의 지질 구조와 토양 종류를 감안한 부지특성변수를 기본값으로 사용하였다.

### 2.3. 고려대상 방사성핵종

해체부지의 잔류방사성핵종의 선정은 Pathfinder, Humboldt 및 Trojan 원자력발전소의 해체시 검출된 19가지 핵종과 RESRAD 코드의 라이브러리, 일반적으로 측정이 용이한 핵종, NUREG-1727에서 토양에 대해 고려하고 있는 핵종, 그리고 중·저준위 방사성폐기물 인도규정

개정안에서 제시하고 있는 핵종 등에서 공통으로 적용되는 Cs-137, Co-60, Sr-90, C-14 및 Ni-59 핵종을 고려대상 방사성핵종으로 선정하고 각 방사성핵종의 농도를 0.037 Bq/g으로 가정하여 평가를 수행하였다.

## 2.4 Key parameters 분석

### 2.4.1 분석방법

key parameters의 분석은 민감도 분석에 의해 수행하였다. 변수들에 대한 민감도는 결과에 영향을 미치는 변수들의 불확실성에 대한 정도로서, 민감도 분석결과는 부지특성변수들의 값을 선정할 경우 총유효선량에 대하여 상대적으로 큰 영향을 초래하는 변수들에 초점을 맞추으로써 시간과 인력을 효율적으로 사용할 수 있도록 하는데 목적이 있다. 본 연구에서 변수들의 민감도는 변수들의 기본값과 상하 50%의 변동 범위에 대한 총유효선량의 상대적인 차이로서 정의하며 다음의 식 (1)과 같이 표현할 수 있다.

$$\left| \frac{TEDE_{ch} - TEDE_d}{TEDE_d} \right| \times 100\% \quad (\text{식 1})$$

여기서  $TEDE_{ch}$  : 상하 50% 범위에 대한 총유효선량

$TEDE_d$  : 기본값을 사용한 총유효선량

### 2.4.2 분석에 사용된 변수값

선량평가 모델에서 고려하고 있는 변수들은 표 1에서 보여지듯이 다양하므로 분석에 사용된 기본값으로는 상기에 언급한 INDAC의 섭생자료, ICRP-72의 내부피폭선량환산인자, 고리부지의 토양 구조와 토양 종류를 감안한 부지특성변수 및 기본변수들에 대해서는 RESRAD 코드의 기본값을 적용하여 선량을 평가하였다. 본 연구에서 수행된 선량평가의 기본값은 표 2에 제시하였다.

표 2. 피폭선량평가에 사용된 변수에 대한 기본값

변수	변수값	변수	변수값
Area of contaminated zone	10,000 m <sup>2</sup>	Saturated zone hydraulic conductivity	100 m/yr
Density of contaminated zone	1.52 g/cm <sup>3</sup>	Saturated zone hydraulic gradient	0.02
Contaminated zone erosion rate	0.001 m/yr	Saturated zone b-parameter	5.3
Contaminated zone total porosity	0.45	Water table drop rate	0.001 m/yr
Contaminated zone field capacity	0.2	Well pump intake depth	18 m
Contaminated zone hydraulic conductivity	10 m/yr	well pumping rate	4,000 m/yr
Contaminated zone b parameter	5.3	Unsaturated thickness	6 m
Evapotranspiration coefficient	0.365	Unsaturated density	1.52 g/cm <sup>3</sup>
Wind speed	2.6 m/s	Unsaturated total porosity	0.45
precipitation	1.5 m/yr	Unsaturated effective porosity	0.2
Irrigation	0.4 m/yr	Unsaturated field capacity	0.2
Runoff coefficient	0.045	Unsaturated hydraulic conductivity	10 m/yr
Watershed area for nearby stream or pond	1.00E+06 m <sup>2</sup>	Unsaturated b-parameter	5.3
Accuracy for water/soil computations	0.001	Indoor dust filtration factor	0.4
Density of saturated zone	1.52 g/cm <sup>3</sup>	External gamma shielding factor	0.7
Saturated zone total porosity	0.45	Indoor time fraction	0.7
Saturated zone effective porosity	0.2	Outdoor time fraction	0.25
Saturated zone field capacity	0.2		

### 3. 결과 및 고찰

민감도 분석을 위해 기본값을 적용하여 계산된 총유효선량은 각각 Cs-137 핵종이 0.035 mSv/yr, Co-60 핵종이 0.11 mSv/yr, Sr-90 핵종이 0.15 mSv/yr, C-14 핵종이 0.035 mSv/yr, Ni-59 핵종이  $6.49 \times 10^{-5}$  mSv/yr이며,  $\pm 50$  %의 범위에 대한 총유효선량과 기본값에 대한 총유효선량의 상대적인 차이는 표 3과 같으며, 그림 1, 2, 3에서는 Cs-137, Co-60 및 C-14 핵종의 경향을 보여주고 있다.

표 3. Key Parameter 선정을 위한 민감도분석 결과

변수	Cs-137	Co-60	Sr-90	C-14	Ni-59
Area of contaminated zone	1.1%	1.4%	0.0%	32.9%	0.0%
Density of contaminated zone	0.0%	0.0%	0.6%	49.3%	0.0%
Contaminated zone erosion rate	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
Contaminated zone total porosity	0.0%	0.0%	0.0%	2.2%	0.0%
Contaminated zone field capacity	0.0%	0.0%	0.0%	0.9%	0.0%
Contaminated zone hydraulic conductivity	0.0%	0.0%	0.0%	0.3%	0.0%
Contaminated zone b parameter	0.0%	0.0%	0.0%	0.4%	0.0%
Evapotranspiration coefficient	0.0%	0.0%	0.2%	94.0%	0.0%
Wind speed	0.0%	0.0%	0.0%	79.0%	0.0%
precipitation	0.0%	0.0%	0.2%	139.3%	0.0%
Irrigation	0.0%	0.0%	0.1%	32.2%	0.0%
Runoff coefficient	0.0%	0.0%	0.0%	5.0%	0.0%
Watershed area for nearby stream or pond	0.0%	0.0%	0.0%	19.3%	0.0%
Accuracy for water/soil computations	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
Density of saturated zone	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
Saturated zone total porosity	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
Saturated zone effective porosity	0.0%	0.0%	0.0%	19.7%	0.0%
Saturated zone field capacity	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
Saturated zone hydraulic conductivity	0.0%	0.0%	0.0%	0.2%	0.0%
Saturated zone hydraulic gradient	0.0%	0.0%	0.0%	0.2%	0.0%
Saturated zone b-parameter	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
Water table drop rate	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
Well pump intake depth	0.0%	0.0%	0.0%	19.3%	0.0%
well pumping rate	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
Unsaturated thickness	0.0%	0.0%	0.0%	238.8%	0.0%
Unsaturated density	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
Unsaturated total porosity	0.0%	0.0%	0.0%	9.9%	0.0%
Unsaturated effective porosity	0.0%	0.0%	0.0%	238.8%	0.0%
Unsaturated field capacity	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
Unsaturated hydraulic conductivity	0.0%	0.0%	0.0%	12.7%	0.0%
Unsaturated b-parameter	0.0%	0.0%	0.0%	31.6%	0.0%
Indoor dust filtration factor	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
External gamma shielding factor	22.0%	31.6%	0.1%	0.0%	0.0%
Indoor time fraction	22.0%	31.6%	0.1%	0.0%	0.0%
Outdoor time fraction	11.2%	16.2%	0.0%	0.0%	0.0%

Key Parameters 분석결과 각 핵종별로 아래와 같은 변수들이 key parameter로 확인되었다. 다만, C-14 핵종의 경우는 민감도가 20% 이상인 변수를 key parameter로 선정하였다.

- Cs-137 : 오염지역의 면적(1.1%), 외부감마차폐인자(22%), 실내거주시간분율(22%), 실외거주시간분율(11.2%)
- Co-60 : 오염지역의 면적(1.4%), 외부감마차폐인자(31.6%), 실내거주시간분율(31.6%), 외부거주시간분율(16.2%)
- Sr-90 : 오염지역의 토양밀도(0.6%)
- C-14 : 오염지역의 면적(32.9%), 오염지역의 토양밀도(49.3%), 증발산계수 (94%), 풍속(79%), 강수량(139.3%), 관개(32.2%), 불포화지역의 두께(238.8%), 불포화지역의 유효 공극률 (238.8%), 불포화지역의 b-parameter (31.6%)
- Ni-59 : 변수들이 선량에 미치는 영향 미미.

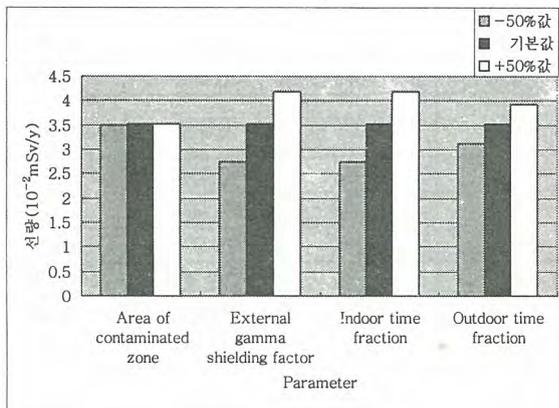


그림 1. Cs-137의 Key parameter

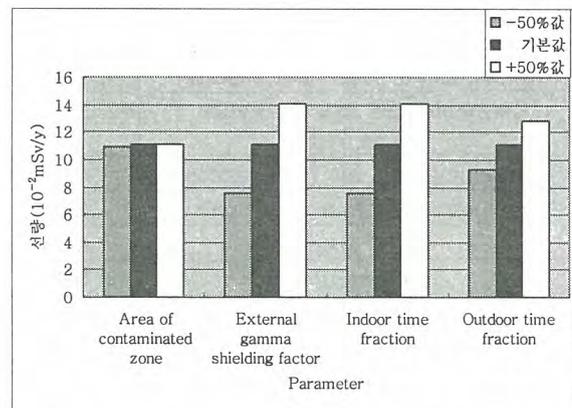


그림 2. Co-60 핵종의 Key parameter

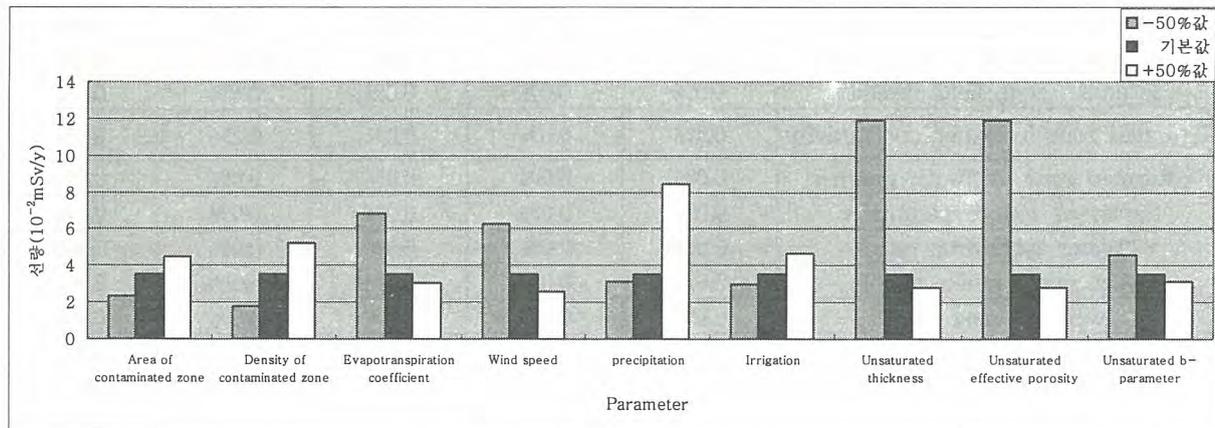


그림 3. C-14 핵종의 Key parameter

#### 4. 결 론

각 변수들의 민감도 분석에 의해 방사성핵종별로 피폭선량에 미치는 영향을 분석한 결과 감마선원인 Cs-137과 Co-60 핵종은 선원향인 오염물질의 면적과 거주관련변수가 선량평가에 미치는 영향이 큰 key parameter로 확인되었으며 Sr-90 핵종은 오염지역의 토양밀도만이 0.6%의 민감도

를 보이는 key parameter로 확인되었다. 또한 C-14 핵종은 환경관련변수와 불포화층의 수문학적 변수가 피폭선량에 미치는 영향이 큰 key parameter로 확인되었으며 Ni-59 핵종은 피폭선량에 미치는 key parameter를 확인할 수 없었다. 핵종별 key parameter의 분석 결과는 해체부지의 선량 평가시 총유효선량에 상대적으로 영향을 많이 미치는 부지특성변수들에 초점을 맞추므로써 부지 특성자료의 수집에 요구되는 시간과 노력을 극대화 할 수 있으리라 판단되며, 본 연구에서 고려치 않은 다른 핵종들에 대하여도 향후에 민감도 분석을 통해 key parameter분석을 수행할 예정이다.

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부에서 주관하는 원자력중장기 개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

#### 5. 참고문헌

- [1] 신상운 외, "원자력발전소 제염·해체 안전성 평가 방법 개발", 원자력환경기술원, (2002).
- [2] 한국원자력안전기술원, "주민피폭선량 평가지침 및 INDAC 사용지침서", KINS?GR-199, (2000).
- [3] C. Yu, A. J. Zielen etc., "User's Manual for RESRAD Version 6.0", (2000).
- [4] C. Yu etc., "Data collection handbook to support modeling impacts of radioactive material in soil", U. S. Department of Energy, (1993).
- [5] International Commission on Radiological Protection Publication 72, "Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides", CD-ROM, (1996).
- [6] 과학기술부고시, "중·저준위 방사성폐기물 인도규정 개정안"
- [7] U. S. NRC, NUREG-1727, "NMSS Decommissioning standard Review Plan", (2000).

## 연구로 해체정보 관리를 위한 데이터베이스 시스템 개발

### Development of the Database System for Managing Decommissioning Information from Research Reactor

정관성, 이동규, 박희성, 이근우, 오원진  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

#### 요 약

연구용원자료를 해체하는 과정에서 발생하는 각종 자료들은 여러 장소에서 상호 호환성 없는 형태로 발생하므로 관리와 활용이 용이하지 않다. 연구로 1, 2호기를 해체하면서 발생하는 자료를 해체시설, 해체작업, 방사선학적 그리고 해체폐기물 정보영역별로 분류하여 자료를 관리하고 보다 객관적이고 정확한 정보 분석이 가능하도록 데이터베이스 시스템을 개발하였다. 연구용 원자로 해체활동 자료에 대한 체계가 구축됨으로써 해체사업을 보다 더 효율적으로 수행하는 데 도구로 활용할 수 있을 것이다. 해체 현장 자료 입력, 분석 및 평가를 통하여 연구로 1, 2호기 해체활동 자료에 대하여 보다 객관적이고 정확한 평가가 가능하게 되었고, 이를 바탕으로 연구로 1, 2호기 해체프로젝트를 보다 효율적으로 수행할 수 있게 될 것이다.

**중심단어** : 연구용 원자로, 해체 활동, 해체 데이터베이스 시스템

#### Abstract

Korea Research Reactor (KRR) 1 & 2 has shut down and through preparatory activities, its decommissioning activities are underway. As its decommissioning activities have been done over several years, its relevant data have been spreaded with various type and media all over the discrete place and inadvertently managed. As a result, managing and assessing data of KRR 1 & 2 has been difficult and complex and its data cannot be evaluated. By developing the decommissioning database system of KRR 1 & 2, the data of decommissioning activities can be correctly evaluated, being systematically managed and objectively assessed. Finally, the decommissioning project of KRR 1 & 2 have come to more effectively accomplished.

As the data of decommissioning activities can be at last systematically analyzed and objectively assessed, the decommissioning project of KRR 1 & 2 would be more effectively accomplished.

**Key Words** : Research reactor, Decommissioning activities, Decommissioning database system

## 1. 서 론

연구로 해체작업은 장기간에 걸쳐 서로 다른 여러 가지 작업들이 수행되기 때문에 발생하는 자료의 형태가 다양하여 서로 호환이 용이하지 않고 그 양이 방대함으로 자료관리가 어렵다. 연구로 해체 활동에 있어서 작업 인원과 장비가 어느 정도 투입이 되었고, 또 작업자의 피폭은 어느 정도가 되는가 하는 계획, 분석 및 평가에 관한 문제는 과거 경험에 기초하여 결정되는 요소가 크기 때문에 실제로 행해진 연구로 해체에 관한 자료와 경험은 귀중하며, 이 축적된 자료를 장래의 해체활동에 어떻게 활용하는가를 충분히 검토해 둘 필요가 있다[1]. 방대한 해체 자료를 분석하기 위해서는 해체 자료가 동일한 형태와 동일한 곳에서 분류와 활용이 용이하고, 해체 대상 시설에 대한 방사선/능 자료 그리고 해체 사업관리를 위한 자료 분석이 가능하도록 여러 가지 특징을 갖는 해체 데이터베이스 시스템을 개발하여야 한다.

연구로 해체작업을 통해서 얻을 수 있는 지식이나, 경험을 데이터베이스화하여 보존하고 그것을 사용해서 데이터를 계산하고 실제 결과와 비교하여 검증함으로써 계산 코드 프로그램이나 데이터베이스를 개량하는 것이 우리나라 최초의 원자력시설 해체 작업 중의 아주 중요한 일중의 하나인 것이다[2]. 또한, 원자력 시설 해체는 재사용 물질 또는 폐기처분될 방사성물질이 다량으로 발생하는 복잡한 과정이므로, 해체과정에 대한 기록 및 정보유지에 대한 결여는 궁극적으로 원자력시설 해체 시 자원과 시간의 낭비, 나아가서는 원자력 안전 문제에 대한 부담을 초래할 수 있다.[3]

본 연구에서는 연구로 1, 2 호기 해체활동을 수행하면서 발생하는 자료를 분류, 분석 및 평가할 수 있는 연구로 해체 데이터베이스 설계 및 시스템 개발 내용을 기술한다.

## 2. 연구로 해체활동 자료 분석

해체 데이터베이스 작업 특징에 대한 상세한 평가가 가능하도록 연구로 해체활동에 대한 자료를 분석하였다. 연구로 해체활동은 해체 대상을 분석, 해체작업, 방사선학적 검사 등을 통하여 해체 작업이 이루어지고 핵종분석을 통하여 최종 폐기물 처리까지의 다양한 작업과정으로 이루어져 있다. 연구로 해체활동에서 발생하는 자료는 Fig.1과 같이 크게 해체 시설 자료, 해체작업 자료, 방사선학적 자료, 그리고 해체 폐기물에 관한 자료로 분류할 수 있다.

연구로 해체 활동 중에 발생하는 해체 시설에 대한 자료는 연구로 시설물을 구성하고 있는 형태, 특성 및 크기나 무게와 같은 재원에 대한 자료가 발생하고, 위치와 관련하여 시설에 대한 도면과 형상에 대한 사진 등에 대한 자료가 발생한다. 해체 시설 자료는 해체활동 자료의 기준과 대상이 되는 자료이기 때문에 시설에 대한 정확한 자료가 파악이 되면, 해체활동에서 발생하는 작업 분석 및 각종 폐기물과 연계하여 분석이 용이하게 된다.

연구로 해체활동 중에 발생하는 해체작업과 관련된 자료는 언제, 어떤 작업을 어느 정도의 인원구성으로 실시했는가 하는 자료가 발생하는데, 해체작업 내용을 기술한 것, 작업원의 작업시간, 작업자 수 등에 대한 자료가 그 내용을 이루고 있다. 매일의 해체 작업 내용에 대해서는 현장감독이 보고서를 작성해서 자료를 보관하고 있다. 해체작업에 관한 자료는 작업이 시작되기 전에는 그 작업에 대해서 작업번호가 부여되고 있으며, 모든 자료는 이 작업번호에 따라 정리되고 있다.

연구로 해체활동 중에 발생하는 방사선학적 자료는 작업자의 피폭선량, 작업환경의 집단선량, 기기나 바닥 등의 해체작업 전/후 오염 검사, 그리고 환경모니터링 측정 등에 관한 자료가 발생한다. 해체작업자에 대한 출입자 피폭 자료는 자동 피폭이력관리시스템을 이용하여 관리되고 있다. 작업자 피폭 자료는 작업번호와 작업일시가 반드시 기록되어 있기 때문에 해체작업에 관한 데이터와 연계하여 그 내용을 분석할 수 있다.

연구로 해체활동 중에 발생하는 폐기물 자료는 폐기물 발생원부터 저장까지의 폐기물의 발생량, 내역(방사능준위, 재질 등), 폐기물의 발생 시기, 용기의 수, 용기의 보관 장소 등에 대한 자료가 발생한다. 또한, 해체 작업 중에 폐기물수납용기를 필요에 따라서 수배하거나, 폐기물 수납용기를 시설 내 적당한 임시 보관 장소에 보관하거나, 다른 장소로 이동하는 자료가 발생한다.

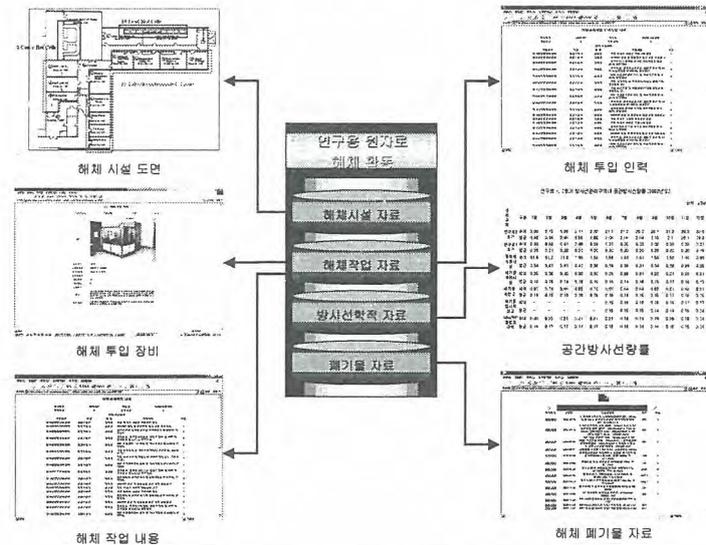


Fig. 1. 연구로 해체활동 발생자료 분류

### 3. 연구로 해체 자료 분류 체계 및 최적화

연구로 해체활동 자료를 상호 연계하여 해체 작업관리나 분석에 효율적으로 이용하기 위해서 여러 가지 해체 코드 관련 자료를 추가로 생성하였다. 해체 자료 코드로는 단위코드, 시설코드, 장비코드, 작업코드 그리고 WBS(Work Break-down Structure) 코드 이다. 단위코드는 각종 계수와 측정값을 할 때 공통된 단위를 사용하여 단위당 작업 계수, 작업 요건 등을 분석 및 평가를 할 수가 있도록 해준다. 시설코드는 해체활동이 이루어지는 기기 및 대상으로 설정하여 각종 해체작업과 폐기물 관리를 위한 기준이 되는 역할을 한다. 장비코드는 해체작업의 특징과 기술을 관리하고 주요 작업에 어떤 주요 장비가 필요하고 투입되는지를 분석할 수 있도록 해주는 역할을 한다. 작업코드는 해체작업을 상세히 분류하여 분석할 수 있도록 하였다. WBS코드는 연구로 구성 기기와 해체작업 절차를 혼합하여 상호관계를 유지하면서 계층적으로 표현하여 해체공정 및 계획을 분석할 수 있도록 구성 하였다.

연구로 해체 데이터베이스 프로그램을 개발하기 위해 연구로 해체활동에서 발생하는 자료와 추가로 생성한 코드자료를 바탕으로 상호 유기적이면서도 중복되지 않도록 해체활동 자료 구조를 세분화하여 체계화 하였다. 해체활동 자료를 바탕으로 해체 자료의 발생부터 종료까지 과정을 Fig. 2와 같이 해체 자료흐름도를 사용하여 각 자료의 하부구조간의 관계를 설정하였다. 또한 Fig. 3과 같이 해체 자료 개체관계도를 이용하여 자료간의 연계성과 자료의 중복을 제거하여 자료 처리의 정확도를 한층 높였다. 체계화된 자료구조를 바탕으로 각 정보영역별로 데이터베이스 파일에 저장되도록 자료형식을 설정하고 상호 연관관계를 설정하여 테이블을 구성하였다.[4]

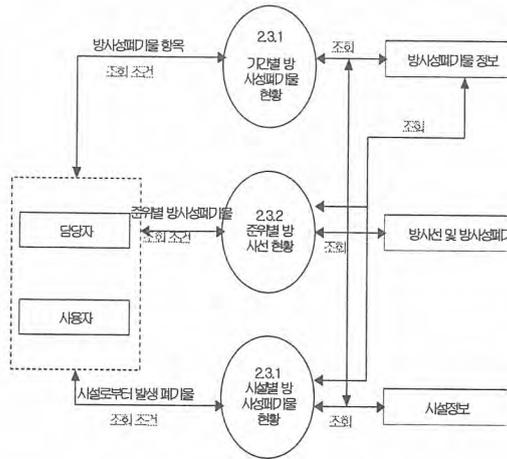


Fig. 2. 연구로 해체 자료흐름도

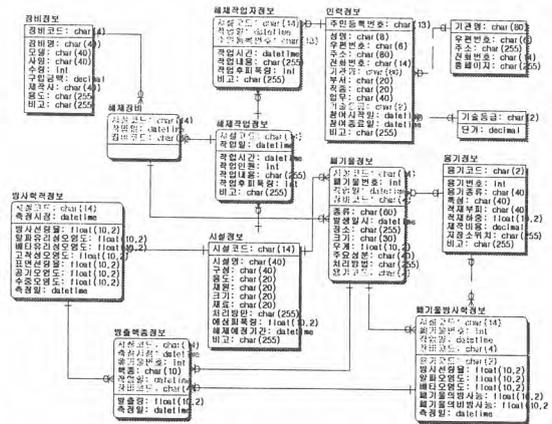


Fig. 3. 연구로 해체 자료 개체관계도

## 4. 연구로 해체 데이터베이스 구성

### 4.1 데이터베이스 시스템 구조

연구로 해체 데이터베이스 시스템 구성은 해체자료에 대한 보안성, 호환성, 그리고 확장성 측면을 고려하여 시스템을 Table 1과 같이 구성하였다.

Table 1. 연구로 해체 데이터베이스 시스템 구성

시스템	O. S.	Windows 계열
	Hardware	Compaq Compatible Server
개발도구	Software	ASP(SQL), Dreamweaver
	RDBMS	MS SQL-Server 2000
	Web Server	MS IIS Server

운영체제로는 Windows 환경을 설정하였고, 하드웨어 장비로는 대용량 자료처리를 원활하게 처리 할 수 있고 안정성 있는 Server 급 장비로 구성하였으며, 자료 처리는 승인된 사용자가 접속하여 자료 저장소 간 이동 없이 어디서나 자료를 조회할 수 있고 데이터베이스 관리시스템에 접근하여 사용할 수 있도록 ODBC(Open DataBase Connectivity)를 이용하고 Web 기반의 SQL(Structues) 스크립트를 이용하여 프로그램을 개발 하였다. 데이터베이스 관리시스템 소프트웨어는 백업과 유지보수가 용이한 SQL-Server 2000로 구성하였red Query Language) 언어를 내포하여 다양한 함수를 사용할 수 있는 ASP(Active Server Pag다. SQL-Server 2000에는 저장된 자료의 활용이 용이하고 분석된 자료에 대한 민감도 분석을 할 수 있도록 텍스트 파일로도 "내려받기" 기능이 있는 SQL Query Analyzer 도구가 내포되어 있다.

해체 데이터베이스 시스템 운영은 자료 관리는 한 곳에서 자료를 관리 및 처리하고, 네트워크 구성되어 있는 곳이면 어디서든지 인증절차를 거쳐 접속하여 자료를 활용할 수 있도록 구성하였다. 또한 분산된 자료 관리로 인한 집계의 어려움을 제거함으로써 자료 관리에 대한 일원화가 되고 자료에 대하여 이용이 곧바로 이루어질 수 있도록 시스템 운영 구조를 설정하였다.

자료에 대한 시스템 운영구조는 Fig. 4와 같다. 연구로 해체 작업이 진행되면서 투입된 인력과

장비 및 특수 작업환경에서 이루어진 해체활동, 작업관리 구역 내의 환경모니터링 검사의 방사선학적 자료와 폐기물 처리 과정에 대한 자료가 문서로 발생되는데 이것을 자료 분류를 통하여 데이터베이스 시스템에 저장을 하여 다른 자료와 연계하여 통합 하였다. 또, 해체활동 중에 작업자 피폭 자료는 작업이 이루어지는 현장에서 직접 자동 피폭이력관리 시스템으로 관리되는 데 이 자료를 해체 데이터베이스 시스템으로 통합 하였다. 통합된 자료 구조를 바탕으로 자료 간 상호 관계를 통해 해체활동에 대한 다양한 분석이 가능하도록 하였다.

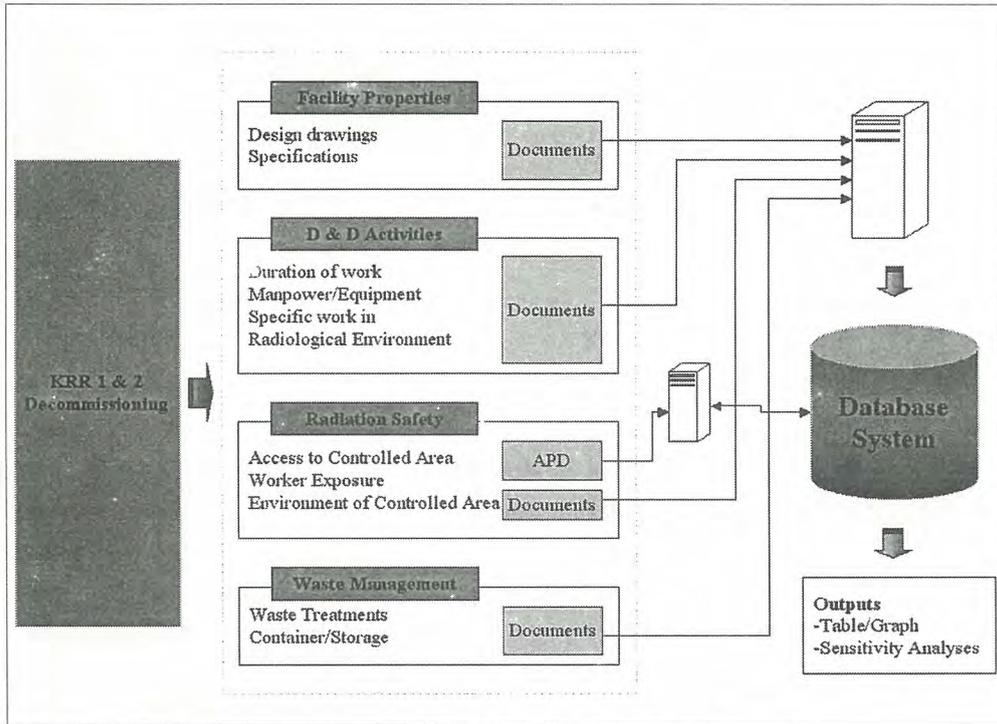


Fig. 4. 연구로 해체 데이터베이스 시스템 자료 운영 구조도

#### 4.2 입력 모듈

연구로 해체 자료를 입력하여 효율적으로 관리하기 위하여 연구로 해체 정보영역별로 분류하여 데이터베이스 입력 프로그램을 Fig.5와 같이 개발하였다. 연구로 해체정보 영역별로 자료를 처리할 수 있도록 입력 모듈을 통해 입력 자료 확인이 용이하고 중복되지 않게 함으로써 자료처리 정확성과 입력 시간을 단축할 수 있도록 개발하였다.

해체시설 정보에 대해서는 시설물을 부속물에 따라 대·중·소별로 관리할 수 있도록 구성하였다. 해체 시설에 대한 기본적인 자료를 입력한 후 갱신 및 삭제할 수 있도록 프로그램을 개발하였다.

해체작업 정보에 대해서는 해체시설(대상)에 대한 해체 작업내용별, 작업분류별로 자료를 관리할 수 있도록 하였으며, 해체작업 투입인력은 분야별, 직종별로 관리할 수 있도록 하였으며, 투입 장비에 대해서는 투입장비 상세내역을 관리하고 특수한 목적으로 투입된 장비에 대한 자료를 관리할 수 있도록 프로그램을 개발하였다.

방사선학적 정보에 대해서는 방사선 관리 구역 시설내의 공간 방사선량률, 공기오염도, 표면오염도 및 수중오염도를 감시한 결과에 대한 자료를 관리할 수 있도록 프로그램을 개발하였다.

해체 폐기물 정보에 대해서는 폐기물 발생원인 해체 시설 자료를 이용하여 폐기물 자료를 관리할 수 있도록 개발하였다.

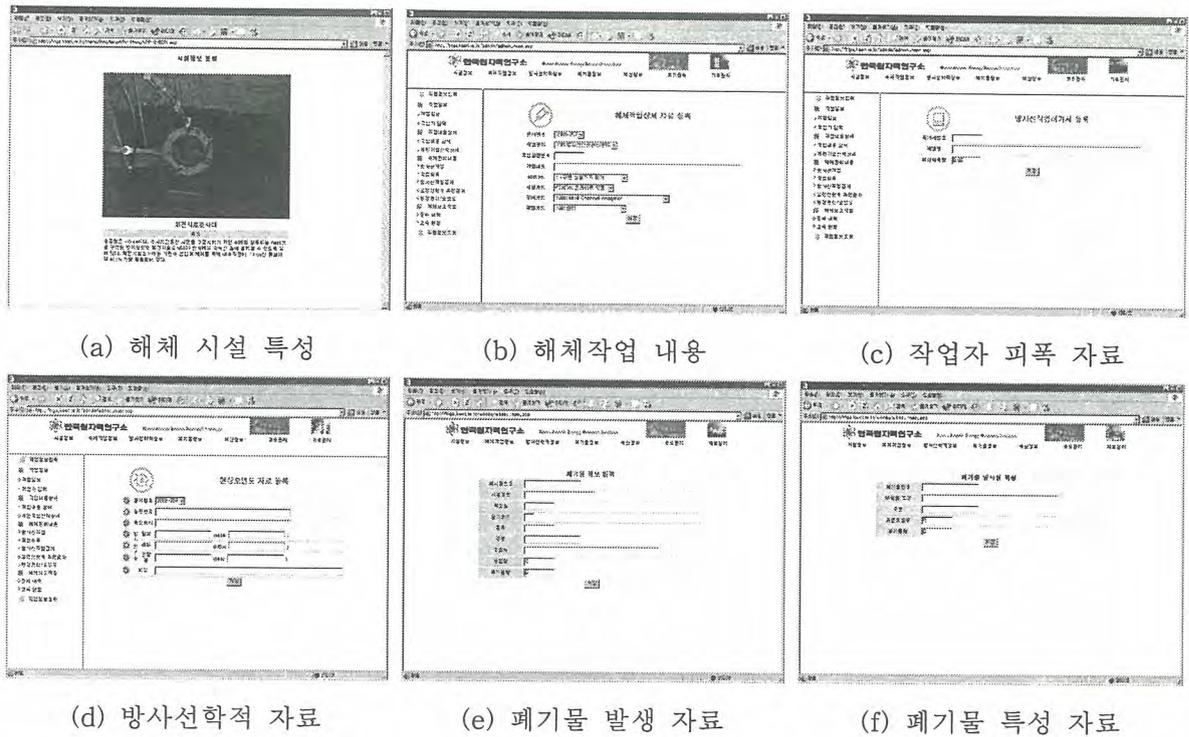


Fig. 5. 해체 데이터베이스 입력 프로그램

### 4.3 조회 및 출력 모듈

연구로 해체 정보 영역별로 입력된 자료를 바탕으로 해체 자료 집계와 정보 분석이 용이하도록 Fig.6과 같이 조회 및 출력에 관한 프로그램을 개발 하였다.

해체시설정보 영역에서는 시설물 특성에 대한 자료, 시설물 사진 또는 도면을 조회할 수 있도록 프로그램을 구성하였고, 시설물이 위치하는 소속별로 시설을 그룹핑하여 확인할 수 있게 프로그램을 개발하였다.

해체작업 정보 영역에서는 해체작업내용을 일별, 월별, 년도 별로 조회할 수 있도록 개발하였으며, 해체작업 분야별, 직종별로 투입 현황을 조회할 수 있도록 하였다. 해체 투입 주요 장비에 대해서는 장비별 투입 수에 대한 집계가 가능하고 주요 장비 특성에 대한 자료를 조회할 수 있도록 구성하였다. 작업자 피폭에 자료는 작업 허가 문서별로 예상피폭선량과 실제 피폭선량을 비교 검토할 수 있도록 프로그램을 개발하였다.

방사선학적 정보 영역에서는 방사선 관리 구역 내에 존재하고 있는 방사성물질로부터 시설의 건전성을 확인하고 동시에 방사성물질이 시설 외부로 누출 여부를 확인할 수 있도록 환경모니터링 자료를 관리구역별, 핵종별, 월별 측정결과를 도표로 확인할 수 있도록 하였다.

해체 폐기물 정보 영역에서는 해체시설물 자료와 연계하여 폐기물 처리 이력에 대한 자료를 확인할 수 있도록 구성하였다.



Fig. 6. 해체 데이터베이스 조회 및 출력 프로그램

#### 4.4 평가 모듈

연구로 해체활동을 통해 발생하는 자료를 입력 표준안에 맞게 분류한 후 매일 또는 주기적으로 해체 데이터베이스 시스템에 입력하고 입력된 결과를 작업관리나 데이터 분석에 필요한 자료를 자료 특성에 맞게 표와 그래프로 이용하여 평가할 수 있도록 개발하였다. 또한 엑셀 프로그램과 같은 Spreadsheet를 이용하여 민감도 분석을 하여 평가할 수 있도록 텍스트 파일 형태로 자료를 내려 받을 수 있는 기능을 부여 했다.

해체 데이터베이스 시스템의 코드 자료를 해체작업과 연계하여 내용을 분석 및 평가할 수 있도록 개발하였고 해체 대상물과 방사선 관리 환경에서의 작업자의 해체활동 능력을 시설별로 구분하여 해체 시설별 작업의 난이도를 평가할 수 있도록 투입량에 대한 분포를 확인할 수 있도록 구성하였다.

#### 5. 연구로 해체현장 자료를 이용한 데이터베이스 시스템 시험 및 평가

현재까지 연구로 2호기 해체활동은 주로 실험실 내부의 실험기기 해체 및 철거작업, 납 hot cell

해체 및 철거 그리고 콘크리트 hot cell 해체작업으로 이루어져 있다. 연구로 2호기 해체활동에서 발생된 현장자료를 개발된 해체 데이터베이스 시스템에 직접 입력하여 해체작업 내용, 투입 인력, 투입 장비, 방사선학적 자료에 대하여 분석 및 평가를 하였다.

### 5.1 해체작업 내용 현장 자료 적용 및 평가

연구로 2호기 해체 활동 중에 수행된 해체작업은 총 77.1 (Man/Month, 이하 M/M, 1Month=200 hour/1 Man)으로 나타났다. 해체작업 중에 배관 철거 및 피폭검사와 같은 해체 활동작업이 22.5 (M/M), 제염작업이 21.2 (M/M), 방사선 측정 및 분석 작업이 18 (M/M)으로 가장 많은 비중을 차지한 것으로 분석이 되었다. 연도별로 분석을 해보면, 2002년도에는 제염활동작업이 16 (M/M), 방사선측정 작업이 13.8 (M/M), 해체 활동작업이 11.4 (M/M), 준비작업이 9.5 (M/M), 폐기물관리 작업이 0.9 (M/M) 그리고 작업안전관리에 관한 해체작업이 0.3 (M/M) 으로 해체작업이 이루어졌음을 알 수가 있다. 2003년도에는 해체활동작업이 11.1 (M/M), 제염활동작업이 5.1 (M/M), 준비작업이 4.3 (M/M), 방사선측정작업이 4.2 (M/M), 폐기물관리작업이 0.7 (M/M)으로 해체작업이 이루어진 것으로 나타났다.

Table 2. 해체작업 내용 연도별 활동 현황

작업분류	2002년도	2003년도	합계
해체활동	11.4	11.1	22.5
제염작업	16	5.1	21.2
방사선 측정 및 분석	13.8	4.2	18
준비작업	9.5	4.3	13.8
폐기물 작업	0.9	0.7	1.6
작업 안전관리	0.3	-	0.3
합계	51.9	25.4	77.3

\* 단위 : M/M ( 200 hour per 1 man)

### 5.2 해체활동 투입인력 현장 자료 적용 및 평가

연구로 2호기 해체활동이 수행 되면서 현장에 투입된 인력에 대한 자료를 직접 입력하여 분석 및 평가를 하였다. 주요 해체 시설에 투입된 인력에 대하여 집계를 해 보았으며, 해체작업분야, 직종, 연도별 투입인력에 대한 자료에 대하여 평가를 하였다.

연구로 2호기 해체 현장 자료를 직접 입력 및 분석한 결과, 전체 해체활동에 투입한 인력은 방사선작업분야 102.1 (M/M)과 방사선안전분야 71.6 (M/M)으로 두 분야에 해체작업에 대한 인력 투입이 대부분 수행된 것으로 나타났다. 연도별로 보면, 2001년에는 방사선작업분야는 19.3 (M/M), 방사선안전분야에서 13.8 (M/M)으로 나타났고, 2002년에는 방사선작업분야 38.9 (M/M), 방사선안전분야 29.5 (M/M), 전문가분야 0.1 (M/M), 폐기물분야 2.4 (M/M), 품질관리분야 2.3 (M/M)으로 나타났으며, 2003년에는 방사선작업분야는 43.9 (M/M), 방사선안전분야는 28.3 (M/M), 품질관리분야는 9.9 (M/M), 폐기물분야는 9.8 (M/M)으로 나타났다.

또한 직종에 대해서는 총 198 (M/M)으로 조사 되었다. 이중에서 중급기술자가 46.9 (M/M), 특별인부가 43.9 (M/M)으로 큰 비중을 차지한 것으로 나타났다. 연도별로 보면, 2001년에는 중급기술자 13.8 (M/M), 특별인부 10.1 (M/M), 절단공 5.6 (M/M), 작업반장 1.8 (M/M), 콘크리트공 1.7 (M/M) 그리고 현장관리 0.1 (M/M)이고, 2002년에는 중급기술자 23.4 (M/M), 특별인부 13.7 (M/M),

Table 3. 해체작업분야 연도별 투입 인력현황

분야	2001년도	2002년도	2003년도	계
방사선안전관리 분야	13.8	29.5	28.3	71.6
방사선작업 분야	19.3	38.9	43.9	102.1
전문가 분야	-	0.1	-	0.1
폐기물 관리 분야	-	2.4	9.8	12.2
품질관리 분야	-	2.3	9.9	12.2
계	33.1	73.2	91.9	198.2

\* 단위 : M/M ( 200 hour per 1 man)

절단공 9.3 (M/M), 작업반장 8 (M/M), 콘크리트공 7.7 (M/M), 초급기술자 3.7 (M/M), 중급기능사 2.4 (M/M), 폐기물관리사 2.4 (M/M), 원자력품질관리사 2.3 (M/M) 그리고 조력공 0.2 (M/M) 로 분석되었으며, 2003년에는 특별인부 20.1 (M/M), 원자력품질관리사 10 (M/M), 중급기능사 10 (M/M), 콘크리트공 10 (M/M), 중급기술자 9.7 (M/M), 폐기물관리사 9.7 (M/M), 작업반장 9.2 (M/M), 절단공 4.6 (M/M) 으로 인력이 투입된 것으로 파악이 되었다.

Table 4. 해체활동 투입인력 직종 연도별 현황

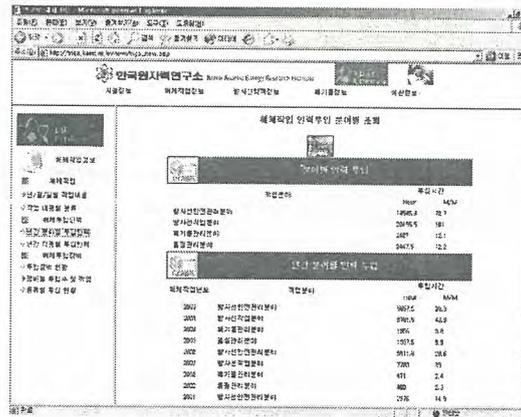
직 종	2001년	2002년	2003년	계
고급기술자	-	-	-	-
원자력품질관리사	-	2.3	10	12.3
작업반장	1.8	8	9.2	19
절단공	5.6	9.3	4.6	19.5
조력공	-	0.2	-	0.2
중급기능사	-	2.4	10	12.4
중급기술자	13.8	23.4	9.7	46.9
초급기술자	-	3.7	8.5	12.2
콘크리트공	1.7	7.7	10	19.4
특별인부	10.1	13.7	20.1	43.9
폐기물관리사	-	2.4	9.7	12.1
현장관리	0.1	-	-	0.1
계	33.1	73.1	91.8	198

\* 단위 : M/M ( 200 hour per 1 man)

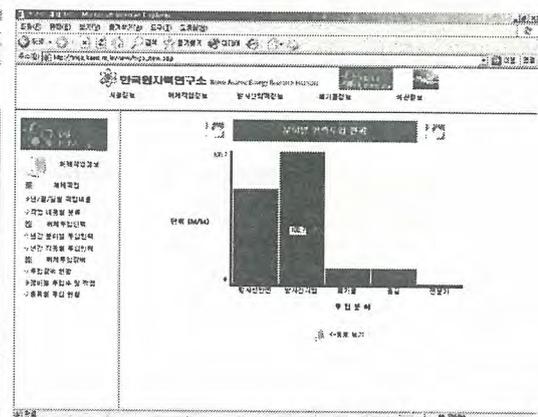
### 5.3 해체작업 투입장비 현장 자료 적용 및 평가

연구로 2호기 해체활동을 수행하면서 투입된 장비에 대한 현장 자료를 직접 입력하여 분석 및 평가를 하였다. 제염 및 해체를 위한 특수한 목적으로 투입된 장비에 대해서도 평가가 가능하다.

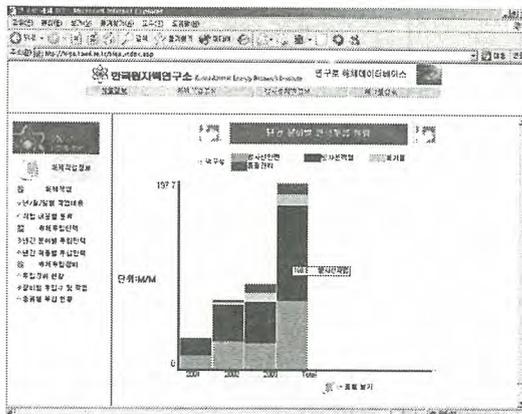
입력된 자료를 분석한 결과, 총 투입된 장비의 종류 수는 71가지 장비로 나타났다.



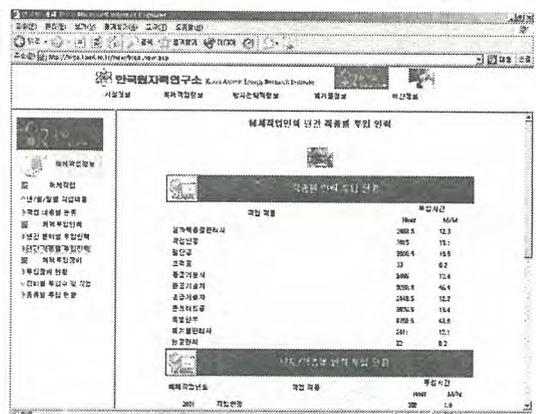
(a) 해체 분야별 인력 투입 집계 현황



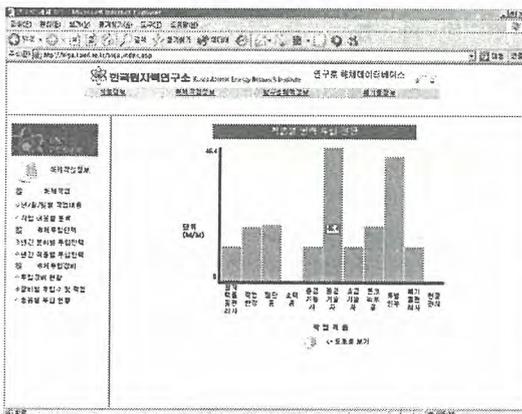
(b) 분야별 해체 인력 투입 현황



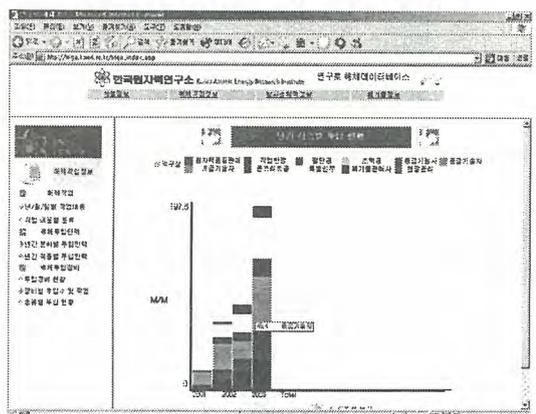
(c) 연간 분야별 해체 인력 투입 현황



(d) 해체 인력 직종별 집계 현황



(e) 해체 인력 직종별 총 투입 현황

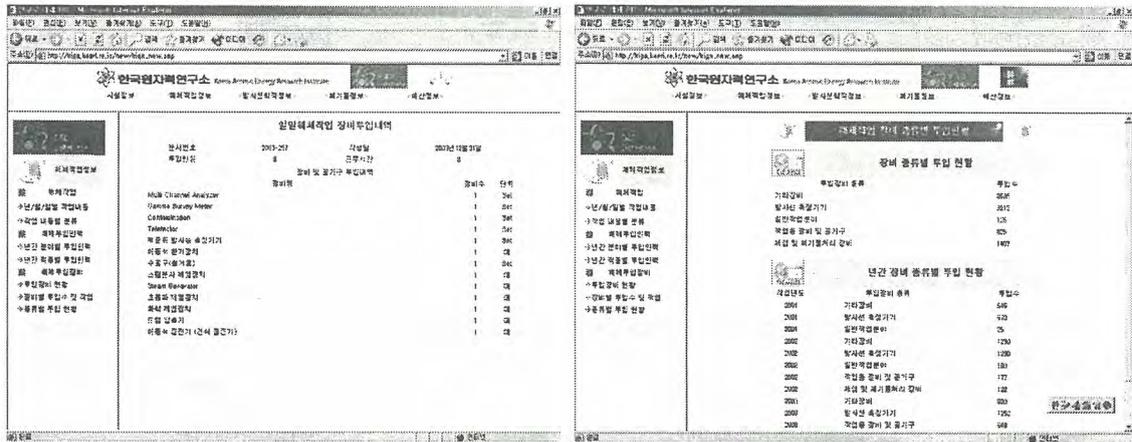


(f) 연도별 해체 인력 직종별 투입 현황

Fig. 7. 해체활동 투입 인력 분포 현황

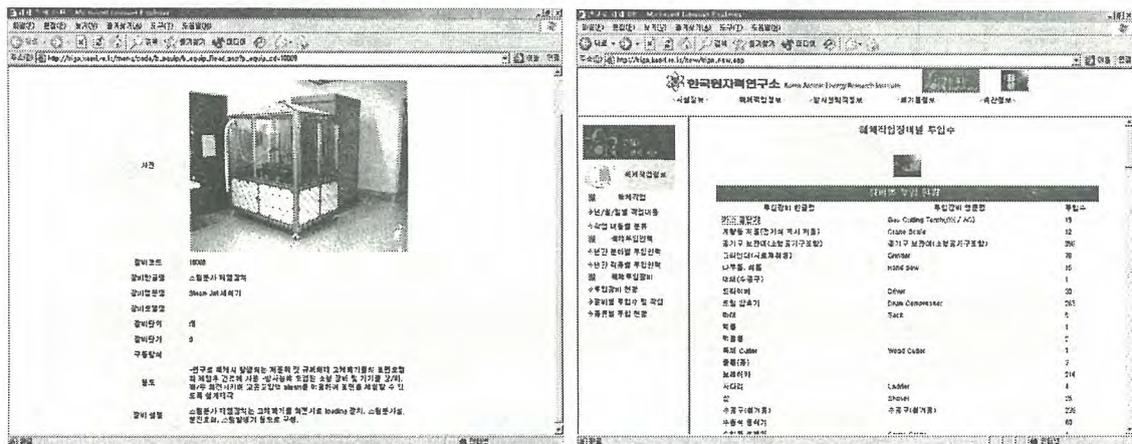
장비별로 보면, 방사선 측정에 대한 장비가 3,212 일로 가장 많이 투입된 것으로 나타났고, 기타 해체관련 장비가 2635일 투입이 것으로 분석이 되었다. 연도별로 파악을 해보면, 2001년에는 방사선측정기 종류가 670 일 투입, 기타장비가 646 일 투입 그리고 일반작업 관련 장비가 25일 투입이 되었고, 2002년에는 기타 장비류가 1290 일 투입, 방사선측정기류가 1290 일 투입, 공기구류가 177 일 투입, 제염 및 폐기물 처리 관련 장비가 122 일 투입, 그리고 일반작업 관련 장비가 100 일 투입된 것으로 분석이 되었으며, 2003년에는 제염 및 폐기물 처리 관련 장비가 1,285 일 투입, 방사선측정기류가 1,252 일 투입, 기타 장비류가 699 일 투입, 그리고 작업용 공기구류가 648 일 투입된

것으로 분석이 되었다. 주로 투입된 개별 장비는 Teletector 649 일 투입, 저준위 방사능측정기 649 일 투입, Multi-channel Analyzer 633 일 투입, Gamma Survey meter 632 일 투입, 이동식 평삭기 500 일 투입이 된 것으로 나타났다.



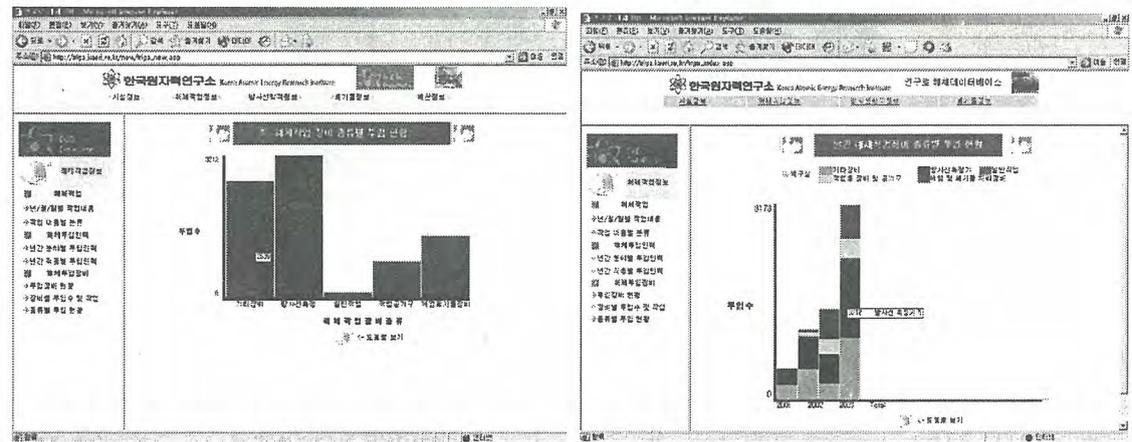
(a) 일일 해체 장비 투입 내역

(b) 해체 장비 종류별 집계 현황



(c) 주요 해체 장비 특성

(d) 해체 장비별 투입 일 현황



(e) 해체 장비 종류별 총 투입 현황

(f) 연도별 해체 장비 투입 현황

Fig. 8. 해체작업 투입장비 현황 자료 입력 및 평가

#### 5.4 해체 방사선학적 현장 자료 적용 및 평가

연구로 2호기 해체활동을 수행하면서 조사한 해체 방사선학적 현장 자료를 직접 입력하여 분석

하였다. 방사선학적 현장 자료로는 해체작업을 착수하기 전, 작업 중 그리고 작업완료 시점에 측정된 방사선/능 측정 자료인 작업 전/후 오염검사 자료와 연구용 원자로 2호기 시설, 부속시설과 부대시설의 방사선 관리 구역 내에서 정기적 또는 수시로 측정된 공간 방사선량률, 공기오염도, 표면오염도 및 수중오염도 자료를 대상으로 하였다.

공간 방사선량률 측정에 대한 자료는 방사성물질의 누설가능성이 있는 지역과 출입자의 방사선 피폭의 가능성이 높은 지역에 대한 현장 자료를 직접 입력하여 분석을 하였으며, 시설 내에서 측정된 공간 방사선량률 분포를 통해서 시설의 건전성이 유지되고 있음을 확인할 수 있었다.

공기오염도 측정에 대한 현장 자료는 해체작업이 진행 중에 있는 동위원소 생산시설과 관련된 측정 자료를 입력하여 분석한 결과, 시설 내의 월평균 공기오염도는 대부분 최소검출방사능(Medium Detectable Activity : MDA)이하인 것을 확인할 수 있었다.

수중방사능농도 측정에 대해서는 수중 방사성물질로 인한 시설내의 오염의 정도 및 범위를 확인하기 위한 현장 자료를 직접 입력하여 분석을 한 결과, 수조수의  $\alpha$ ,  $\beta$  방사능 측정결과를 명확하게 확인할 수가 있었다.

표면오염도 측정에 대해서는 스미어 방법에 의한 간접법으로 채취된 시료를 계수기를 이용하여 측정된 현장 자료를 직접 입력하여 방사성물질의 누설 여부 판정과 시설의 건전성을 확인하였다.

해체작업 전/후 측정에 대해서는 해체작업을 착수 전/후에 방사선/능을 조사한 현장 자료를 직접 입력하여 해체 처리공정의 오염도 정도를 명확하게 확인을 하였다.

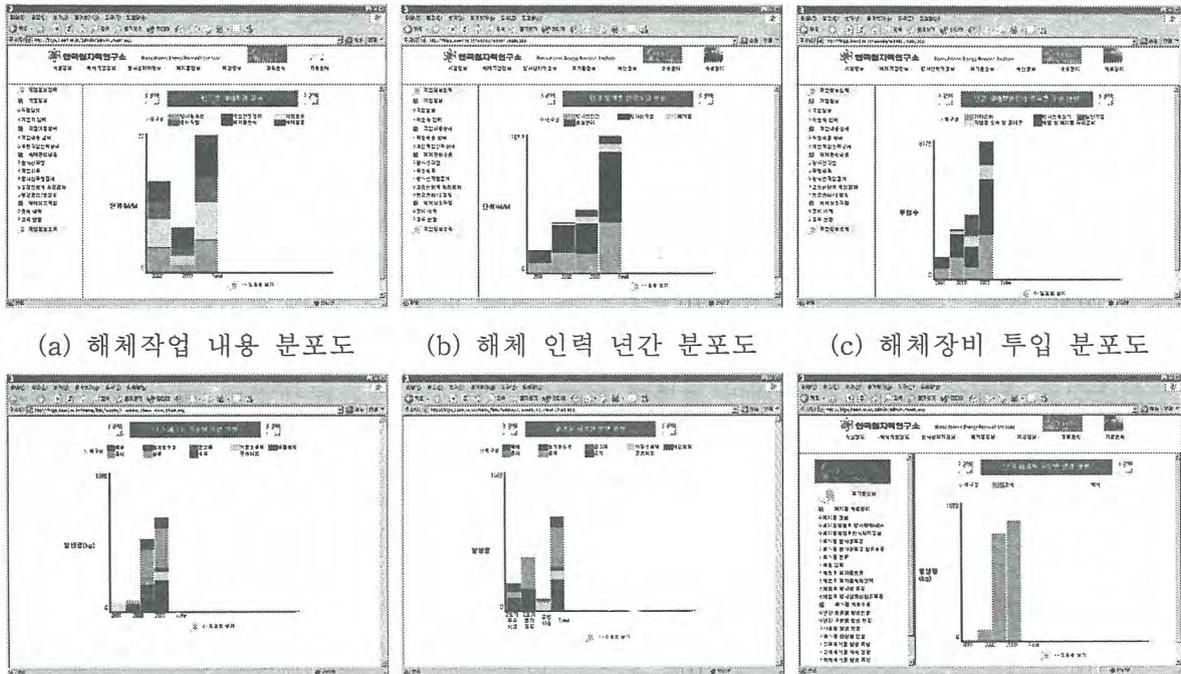
## 5.5 연구로 해체 데이터베이스 시스템 평가 및 고찰

연구로 해체 데이터베이스 시스템에 각 정보영역별로 자료를 입력하여 검색과 집계에 대한 프로그램 기능의 처리가 정확하게 처리가 되었다. 해체시설 자료 처리는 해체작업과 폐기물자료와 연계가 정확하게 처리가 되었다. 해체작업에 대한 자료는 작업번호에 따라 작업내용, 작업자, 장비에 대한 자료처리가 상호 연관되어 처리가 되어 분류가 이루어짐을 확인하였고, 방사선학적 자료는 환경 모니터링 자료가 시설코드와 연계가 되어 처리됨을 확인하였다. 해체폐기물 자료는 폐기물 처리과정이 순서대로 자료가 처리가 되었음을 확인하였다.

입력된 해체활동 자료를 바탕으로 코드와 상호 연관 자료를 바탕으로 각 정보영역별로 Fig. 9와 같이 다양한 정보 분석이 가능하게 되었다. 연구로 해체 데이터베이스의 주요 분석 기능 중의 하나는 해체 데이터베이스 시스템의 WBS 코드, 작업코드와 해체시설자료를 연계하여 해체활동을 분석 및 평가할 수 있게 되었다는 점이다. 연구로 해체작업을 분석해보면, 작업 내용이 방사선 관련 작업(안전관리, 오염검사), 해체관련 일반작업(해체, 유지보수), 폐기물 관련 작업(고체폐기물, 액체폐기물), 품질관리와 같은 작업이 규칙성을 이룸을 알 수가 있다. 이 규칙에 의해서 모아진 작업마다 관리데이터의 계산이 또한 가능하게 되었다. 즉, 기기 하나하나를 해체할 경우에도 그 기기가 갖는 특징에 맞추어 일정한 규칙적인 절차에 따라서 해체작업이 진행되고, 어느 작업에 어느 정도의 작업 장비 및 인원이 필요 하는지 알 수 있게 되었다. 또한, 해체작업 내용을 준비작업, 해체작업, 포장작업, 수송 작업, 뒤처리작업에 해당하는 작업군 등의 그룹으로 나누어 이 각 항목의 계층 정도를 세분화하여 그룹의 세분화된 항목에 대하여, 작업에 필요한 인공수, 작업자의 피폭선량, 폐기물 발생량 등을 평가하여 작업 항목마다에 필요한 양을 구할 수 있게 되었다. 해체 대상물과 방사선 관리 환경에서의 작업자의 해체활동 능력을 시설별로 구분하여 분류함으로써 해체 대상물별 작업의 난이도를 평가할 수 있으며, 예상했던 작업자 투입량과 실 투입량을 비교 평가할 수 있게 되었다.

현재 연구로 해체 데이터베이스 시스템에는 해체활동 평가 기능이 부족하다. 앞으로 연구로 해체 데이터베이스 시스템을 이용하여 해체계획이나 관리에 필요한 작업자 수, 비용, 작업자의 피폭

선량 등 관리데이터를 이용하여 연구로 해체활동에 대한 평가 방법론을 다양하게 개발하고 이것을 연구로 해체 데이터베이스 시스템에 적용함으로써 해체활동 및 기술에 대한 보다 체계적인 평가를 할 수 있도록 기능을 보완 및 확장할 계획이다.



(a) 해체작업 내용 분포도 (b) 해체 인력 연간 분포도 (c) 해체장비 투입 분포도  
 (d) 폐기물 종류 발생 분포도 (e) 시설/폐기물 발생 분포도 (f) 폐기물 물성별 분포도

Fig. 9. 연구로 해체자료 분석 및 평가 프로그램

## 6. 결 론

연구로 해체는 국내에서 처음으로 시도되는 원자력시설 해체작업이므로, 수집 가능한 많은 상세한 자료를 보관하고, 이 자료를 바탕으로 다양한 분석이 가능하도록 해체 데이터베이스를 설계 및 개발 하였다.

연구로 해체활동 중에 발생한 자료를 데이터베이스를 이용하여 처리함으로써, 해체활동을 통해 발생하는 여러 형태의 자료와 분산된 보관 방법을 호환성 있고 동일한 자료 체계로 관리 및 분석이 가능하게 되었다.

궁극적으로, 본 연구에서 개발된 연구로 해체 데이터베이스 시스템을 이용하여 우리나라 최초의 원자력 관련 시설 해체인 연구로 1, 2호기 해체활동에 대한 체계적인 자료 관리 및 분석이 가능하게 되었고, 해체활동에 대한 보다 객관적이고 정확한 정보 분석 및 평가가 가능하게 되어 연구로 해체활동을 보다 효율적으로 수행할 수 있게 되었다. 나아가, 향후 원자력관련 시설 해체 시 해체 대상에 맞게 입지조건, 운전조건, 시설의 특성 등을 충분히 고려해서 최적의 해체 계획을 세우는데 중요한 도구로 활용할 수 있을 것이다.

## 감사의 글

본 연구는 과학기술부에서 주관하는 원자력증장기 연구개발사업의 일환으로 수행하였습니다.

## 참고문헌

1. 이시카와 미치오, “안전한 퇴역을 위한 원자로 해체”, 한국원자력문화재단, 1997
2. IAEA, “Record Keeping for the decommissioning of nuclear facilities : Guidelines and Experience”, Technical Report Series No.411, 2002
3. IAEA, “A Proposed Standardised List of Items for Costing Purposes in the Decommissioning of Nuclear Installations”, Interim Technical Documents, 1999
4. 박희성 외, “Conceptual Data Modeling on the KRR-1 & 2 Decommissioning Database”, KNS, 2002

## 중성염 용액 내에서 우라늄으로 오염된 금속성 해체폐기물의 전해제염

### Electrolytic Decontamination of the Dismantled Metallic Wastes Contaminated with Uranium Compounds in Neutral Salt Solutions

최왕규, 이성렬, 김계남, 원휘준, 정종현, 오원진  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

#### 요약

국내의 가동 중지된 우라늄 변환시설의 해체 시 다량의 우라늄으로 오염되어 있는 금속성 폐기물의 재활용 또는 자체처분을 위한 제염기술로 중성염 전해액을 사용하는 전해제염 공정의 적용성을 평가하기 위하여 우라늄 변환시설 내부설비의 주 구성 재료인 SUS-304 및 Inconel-600에 대한 전기화학적 용해거동 연구를 수행하였다. 이를 위하여 중성염 전해질의 형태, 전해질의 농도, 전류밀도, 처리시간과 같은 전해제염 조건들이 금속 재료의 용해에 미치는 영향을 평가하였다. 모의 시편을 사용한 비방사성 전해용해 실험 결과를 근거로 실제 우라늄 변환시설로부터 인출한  $UO_2$ , AUC (ammonium uranyl carbonate) 및 ADU (ammonium diuranate) 오염시편에 대해  $Na_2SO_4$  및  $NaNO_3$  중성염 용액에서 전해 제염실험을 수행하였으며, 오염물의 종류 및 오염 준위의 대소와는 관계없이 모든 시편에 대하여 10분 이내의 짧은 시간 내에 자체처분 기준치 이하로  $\beta$  방사능 준위를 감소시킴으로써 본 중성염 전해제염이 매우 성공적임을 확인하였다.

#### Abstract

Electrolytic dissolution study was carried out to evaluate the applicability of electrochemical decontamination process using a neutral salt electrolyte as a decontamination technology for the recycle or self disposal with authorization of large amount of metallic wastes contaminated with uranium compounds generated by dismantling a retired uranium conversion plant using SUS-304 and Inconel-600 specimen as the main materials of internal system components of the plant. The effects of type of neutral salt as an electrolyte, current density, and concentration of electrolyte on the dissolution of the materials were evaluated. On the basis of the results obtained through the basic inactive experiments, electrochemical decontamination tests using the specimens contaminated with uranium compounds such as  $UO_2$ , AUC (ammonium uranyl carbonate) and ADU (ammonium diuranate) taken from an uranium conversion plant were performed in  $Na_2SO_4$  and  $NaNO_3$  solution. It was verified that the electrochemical decontamination of the dismantled metallic wastes was quite successful in  $Na_2SO_4$  and  $NaNO_3$  neutral salt electrolyte by reducing  $\beta$  radioactivities below the level of self disposal with authorization within 10 minutes regardless of the type of contaminants and the degree of contamination.

## 1. 서론

국내의 경우 가동 중지된 핵연료주기시설의 하나로 현재 한국원자력연구소 내에 우라늄 변환 시설이 있으며, 이 시설은 환경복원 사업을 통해 대부분 금속성 내부 설비는 완전 해체 철거하고 건물은 재사용 할 예정으로 있다. 따라서 현재 당면하고 있는 우라늄 변환시설의 환경복원사업과 관련하여 변환시설 해체 시 방대한 양의 우라늄 함유 금속성 고체 폐기물이 발생하여 이의 효과적인 관리방안이 요구된다. 따라서 우라늄 변환시설의 해체 시 작업자의 안전성 확보와 발생하는 방사성 폐기물량의 저감을 위해서는 각각의 공정별 오염 특성을 고려한 제염 기술의 적용이 요구된다. 현재까지 폐기물 처분장을 확보하지 못한 국내의 상황과 원자력연구소 내 폐기물 임시저장고의 한계 등을 고려하면 우라늄변환시설의 해체에 의해 발생하는 다량의 금속성폐기물을 재활용하거나 자체처분 하는 것이 선택할 수 있는 폐기물 관리방안 중 한 가지로 여겨진다.

따라서 본 연구에서는 우라늄변환시설 해체 전 내부설비 오염표면 및 해체 후 부품표면에 대하여 재활용 또는 자체처분이 가능한 수준의 제염성능을 갖는 우라늄 화합물로 오염된 표면의 제염 기술을 개발하고자 하였다.

전해연마 또는 전기화학제염이라 부르는 전해제염 기술은 전기 분해의 원리를 이용하여 금속 표면에 존재하는 부식 산화막층 이나 기질금속(substrate)의 얇은 표면층이 전해질 용액 속으로 양극 산화반응에 의해 용출되어 제거됨으로써 방사성 오염이 제거되는 제염기술로 짧은 시간 내에 자연방사전 준위까지 낮추는 높은 제염계수를 얻을 수 있으며, 발생하는 2차 폐기물 양이 비교적 적고 제거된 표면이 부드럽게 처리되어 재 오염성이 작을 뿐만 아니라 기술이용이 용이하다[1].

상용 원전은 물론 핵연료 주기 시설에서 발생하는 알파, 베타 및 감마방사전 오염물에 의해 오염된 어떠한 금속폐기물도 전해 제염방법에 의해 무구속 방출 허용 기준치 이하로 제염시킬 수 있음이 해외의 여러 가지 제염사례에서 확인된 바 있고, 이에 따라 방사성 금속폐기물의 자체처분 및 재활용을 위한 표면제염 기술로서 전해제염 기술의 확보는 필수적인 것이 되었다. 이 전해제염 기술에서 양극과 음극사이의 전자 이동 경로를 제공해 주는 전해액은 크게 무기산 전해액, 유기산 전해액, 중성염 용액으로 구분할 수 있다. 황산나트륨이나 질산나트륨 같은 중성염 전해질을 이용한 전해제염은 전해 성능이 어느 정도 보장되면서도 2차 폐액이 중성으로 발생되므로 처리가 용이하고, 방사성 오염물이 수산화물 형태로 침전되어 슬러지를 형성함으로 이 슬러지를 제거시킴에 의해 방사성 폐기물 발생량을 크게 저감할 수 있다[2~6]. 이러한 장점에도 불구하고 인산, 황산 및 질산을 전해질로 사용하는 전해제염에 비하여 중성염을 사용하는 전해제염 연구는 그다지 많이 수행되지 않았고, 특히 우라늄 화합물로 오염된 금속 폐기물의 제염에 적용시킨 사례는 없었으며, 전해제염의 공정적인 면에 비하여 기초적인 정보가 부족한 실정이다.

따라서, 본 연구에서는 우라늄 화합물로 오염된 스테인레스 스틸 및 인코넬 표면으로부터 중성염 전해질에 의한 우라늄 화합물의 전기화학적 분리를 통한 오염 표면의 제염 특성을 조사하였다. 이를 위하여, SUS-304 및 Inconel-600의 전해용해 특성이 우수한 중성염 용액을 선정하였고 전해제염공정의 운전변수인 전류밀도, 전해액 농도, 전해시간 등의 영향을 조사하였다. 한편, 변환시설의 공정조건 중 유동층 반응기가 고온에서 가동되었던 것을 감안하여 열처리 시편에 대한 전해제염 성능을 평가하였다. 모의시편을 사용한 비방사전 전해용해 시험 결과를 근거로 우라늄 변환시설 내에서 직접 인출한 우라늄화합물 오염시편의 전해제염 실증 실험을 통해  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  및  $\text{NaNO}_3$  중성염 전해질을 이용한 전해제염 공정의 실증시험을 통해 본 연구에서 수행한 제염 공정의 성능을 평가하였다.

## 2. 실험

### 2.1. 오염설비 구조재질의 전해용해

우라늄 변환시설 해체 시 대량으로 발생될 우라늄 화합물로 오염된 부품의 전해제염 공정을 확립하기 위하여 다양한 시설 내부 설비 및 배관 등의 주 구성 재료인 스테인레스 스틸 및 인코넬을 대상으로 중성염 전해용액을 사용한 전해 용해 실험을 수행하였다. 이를 위해 Potentiostat/Galvanostat (JS-P500, 지상증전기)를 사용하여 세 개의 전극으로 구성된 고전적인 전해셀 내에서 제염대상물에 일정한 전류를 흘려주는 일정전류 방식으로 전해용해 실험을 수행하였다. 제염대상물이 되는 양극으로는 우라늄 변환시설 오염설비의 주된 재료인 SUS-304(Fe:74%, Ni:18%, Cr:8% [ASTM B 240])와 Inconel-600(Fe:8%, Ni:72%, Cr:15%[ASTM B 166])의 모의시편을 사용하였다. 모의시편은 시편의 노출 면적이 약  $0.95 \text{ cm}^2$ 인 홀더(K0105, EG&G)에 잘 맞도록 원형으로 가공하여 입자가 굵은 사포로부터 차례로 연마하여 최종적으로  $0.5 \mu\text{m}$  알루미나 현탁액으로 처리하여 사용하였다. 기준 전극으로는 Ag/AgCl(saturated KCl)을 사용하였고, 상대전극으로  $2.5 \times 5 \text{ cm}$  크기의 백금판을 사용하였다. 전해 시작 전 및 종료 후 SUS-304시편과 Inconel-600 시편의 무게를 측정하여 그 변화로부터 전해용해 특성을 평가하였다.

### 2.2. 우라늄화합물로 오염된 시설 인출시편의 전해제염

우라늄 변환 시설로부터 직접 인출한  $\text{UO}_2$ , AUC, ADU로 오염된 실제시편을 약  $4\sim 5 \text{ cm}^2$ 의 크기로 절단하여 중성염 전해용액 내에서  $100 \text{ mA/cm}^2$ 의 전류밀도로 전해제염 성능시험을 수행하였다. 이때 제염시간은 5분에서 1시간까지 변화시켰으며, 일정 시간간격으로 시편의 무게 감소와 동시에 전해제염 하기 전의  $\beta$  방사능과 전해제염 하고 난 후의  $\beta$  방사능을 측정하여 이로부터 제염 계수(DF)를 산정하여 제염 성능을 평가하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. 오염설비 구조재질의 전해용해

#### 3.1.1. 전해용액에 따른 금속시편의 용해

전기화학 시스템에서 중요한 요소 중 하나인 전해 용액은 그 속에 포함되어있는 이온들에 의해 전류를 통하게 하는 매개체이다. 우라늄 오염설비 제염에 적합한 전해용액을 선정할 목적으로 본 연구에서는 중성염인  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  및  $\text{NaNO}_3$ , 약염기인  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  및  $\text{Na}_3\text{PO}_4$ 와 약산인  $(\text{NH})_2\text{CO}_3$  및  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 에 대하여 각각의 농도가  $0.5\text{M}$ 이 되도록 전해용액을 제조한 후 각각의 전해용액 내에서 SUS-304와 Inconel-600 모의시편의 전해용해 거동을 조사하였다. 이 때 전해 용해실험은  $25^\circ\text{C}$ 로 유지되는 각각의 전해용액 내에서  $52.6 \text{ mA/cm}^2$ 의 전류밀도로 1시간동안 흘려보내준 조건으로 수행하였으며, 그 결과는 Fig. 1 및 Fig. 2에 각각 수록하였다.

이 결과로부터 SUS-304와 Inconel-600 시편이 전해 용액에 따라 서로 다른 용해 특성을 보임을 알 수 있다. SUS-304시편의 경우 여러 가지 전해 용액들 중에서도  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  중성염 용액에서 가장 무게감량이 크게 나타났고, 이는 다른 전해용액에서 보다  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  전해용액 내에서 전해제염이 효과적으로 진행될 수 있음을 나타낸다. 한편  $\text{NaNO}_3$  중성염 용액에서 SUS-304 시편의 전해용해에 의한 무게감소는  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  중성염 용액에 비해 약 30%의 효율을 보였다.

이와 반면에 Inconel-600의 경우는 SUS-304시편의 경우와는 다르게  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{NaNO}_3$ ,  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  전해 용액에서 거의 비슷한 용해 효율을 보였고, 그 외 전해 용액의 경우에는 거의 질량감소가 나타나지 않았다. 본 실험결과로부터  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 와  $\text{NaNO}_3$  전해질 내에서의 중성염 전해제염이 효과적임을 알 수 있었다. 따라서 본 연구에서는 위 실험결과와 함께 제염성능이 좋고, 반응전과 후의 pH도 안정하며 공정 적용이 용이할 뿐 아니라 감용비가 큰 효과(기존 인산 전해액 방법의 1/30)

를 얻을 수 있어 2차 폐기물량이 매우 작다고 보고[7]되고 있는  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  중성염 전해질과 우라늄 변환시설에서 정광( $\text{U}_3\text{O}_8$ )을 포함한 우라늄 화합물의 용해 시 질산을 사용하였으며 불순물의 여과, 우라늄의 정제를 위한 모든 공정이 질산 매질에서 수행되었고 우라늄 변환시설의 가동 중에 발생한 액체폐기물 저장소인 Lagoon이 현재는 수분이 증발하고  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 와  $\text{NaNO}_3$ 의 구성성분으로 포화된 슬러지 상태로 존재하고 있는 연유로 질산 매질의 우라늄 용액을 취급했던 공정 및 설비표면에 가동 중 발생된 우라늄 슬러지 폐기물의 성상을 고려하여 관련된 시설물 제염에 Nitrate 형태의  $\text{NaNO}_3$  중성염을 사용하는 전해제염에 대한 운전변수의 영향을 파악하였다.

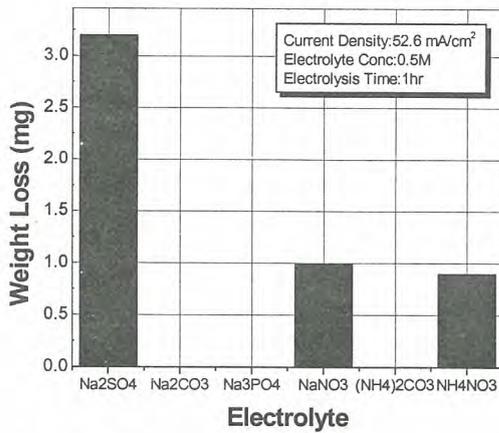


Fig. 1. Electrolytic dissolution characteristics of SUS-304 specimen in various electrolytes.

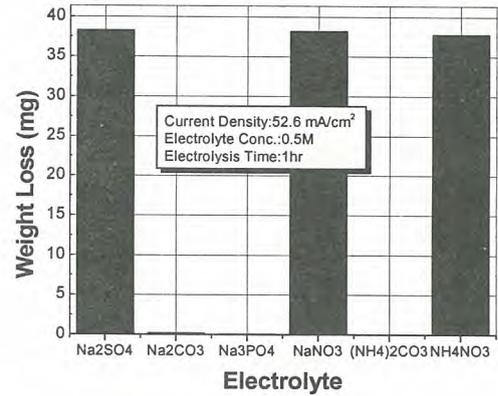


Fig. 2. Electrolytic dissolution characteristics of Inconel-600 specimen in various electrolytes.

### 3.1.2. 전류밀도에 따른 금속시편의 용해

중성염을 이용한 전해제염 시 적절한 전류밀도를 결정하기 위하여 전해 용해 성능이 우수하다고 평가된  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  및  $\text{NaNO}_3$  용액에서의 SUS-304시편과 Inconel-600시편에 대하여 전류밀도의 영향을 살펴보았다. SUS-304시편의 경우는 총 흐른 전하량을 900 coulomb 및 450 coulomb이 되도록 하는 조건에서 전류밀도를 변화시켜가며 전해 용해 실험을 수행하였고, SUS-304시편보다 전해용해 성능이 월등한 Inconel-600의 경우는 전류밀도에 따라  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 의 경우 150 coulomb,  $\text{NaNO}_3$ 의 경우는 75 coulomb이 되도록 하는 조건으로 전류밀도에 따른 무게 감량을 측정하여 그 결과를 Fig. 3 및 Fig. 4에 수록하였다.

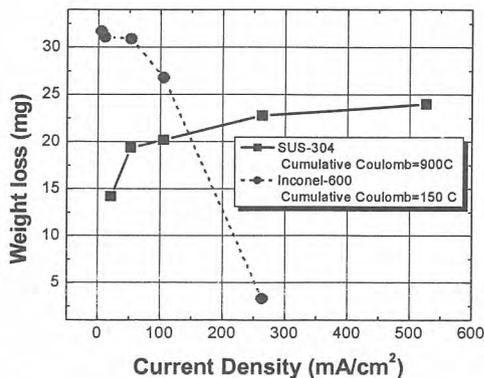


Fig. 3. Effect of current density on the electrolytic dissolution of metal specimen in 0.5M  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  solution.

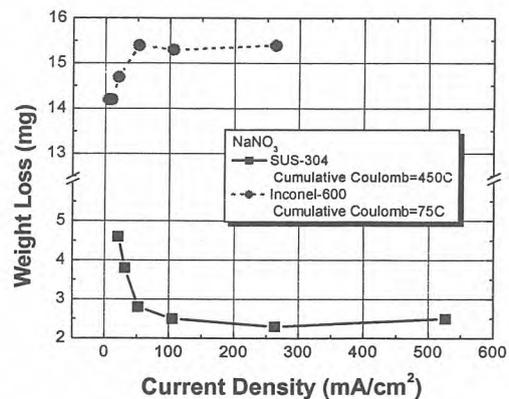


Fig. 4. Effect of current density on the electrolytic dissolution of metal specimen in 0.5M  $\text{NaNO}_3$  solution.

Fig. 3에서 살펴보면  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  용액에서 SUS-304시편을 전류밀도에 따라 전해제염 하였을 때  $50 \text{ mA/cm}^2$ 까지는 시편의 무게 감소율이 급격하게 증가하다가  $100 \text{ mA/cm}^2$  이상의 전류밀도에서는 질량감소의 증가정도가 완만하게 나타났다. 전류밀도가 클수록 전해시간이 단축되면서 전해용해가 증가하는 경향을 보이므로 전해시간의 측면에서 본다면 높은 전류밀도가 효과적으로 보이며, 경제성을 고려한다면 단위면적당 전류를 흘려보낼 장치의 크기를 생각하여 너무 높지 않은 전류밀도를 선정하여 전해제염을 수행하여야 한다. Inconel-600시편의 경우는 SUS-304시편의 결과와는 반대로 약  $50 \text{ mA/cm}^2$ 의 전류밀도까지는 전해효율에 차이는 별로 없다가  $50 \text{ mA/cm}^2$  이상에서는 전류밀도의 증가에 따라 시편의 질량 감소함으로써 전해효율이 감소하는 것으로 나타나 제염효율 및 적용시간을 고려하여 볼 때  $50 \text{ mA/cm}^2$ 의 전류밀도에서 전해제염을 수행하는 것이 바람직한 것으로 판단된다.

$\text{NaNO}_3$  전해용액에서 SUS-304시편의 경우 Fig. 4에서 보는 바와 같이 전류밀도가  $100 \text{ mA/cm}^2$ 까지 감소함에 따라 전해제염 효율도 감소하며  $100 \text{ mA/cm}^2$  이상에서는 전류밀도의 증가와는 무관하게 전해제염 효율이 거의 동일하게 나타났다. 이러한 결과로부터 전류밀도가 감소하면 전해제염 효율은 증가하지만 제염시간이 너무 길어지므로 제염시간을 고려한 적절한 전류밀도를 선택할 필요가 있다. 그와 동시에 전해제염 시간을 고려하여  $100 \text{ mA/cm}^2$  이상의 전류밀도에서 전해제염이 이루어지는 경우 시편의 질량감소만을 고려할 때에는 전류밀도가 클수록 동일한 전해효율을 갖으면서 제염시간이 단축될 수 있으므로 더 큰 전류밀도를 선택하는 것이 유리하다고 판단된다. 그러나 전류밀도의 증가는 금속의 전해용해가 과부동태 영역에서 발생되도록 전위를 끌어올림으로 인해 전해연마라고도 불리는 전해제염이 갖을 수 있는 장점인 제염 후 표면의 균일성에 영향을 미치기 때문에 적절한 전류밀도의 선택이 중요하다고 판단된다. Inconel-600시편의 경우는  $50 \text{ mA/cm}^2$  이상의 전류밀도에서는 시편의 질량 감소율이 더욱 증가하지 않고 일정한 것으로 보아 SUS-304시편과는 반대의 현상을 보여주며 이 경우에는 전해제염 시간을 고려하여  $50 \text{ mA/cm}^2$  이상의 전류밀도에서 제염을 수행하는 것이 효과적인 것으로 판단된다.

### 3.1.3. 전해질 농도에 따른 금속시편의 용해특성

$\text{Na}_2\text{SO}_4$  및  $\text{NaNO}_3$  전해용액의 농도가 SUS-304시편과 Inconel-600시편의 전해제염 효율에 미치는 영향을 조사하기 위하여 0.25M에서 5M까지 농도를 변화시켜가며 SUS-304시편의 경우 100 mA의 전류를 1시간동안 일정하게 가해주고 Inconel-600시편의 경우는 50 mA의 전류를 30분 동안 일정하게 흘려 보내주어 전해반응이 종료된 후 무게감소를 측정하였으며, 그 결과는 Fig. 5 및 Fig. 6에 각각 수록하였다.

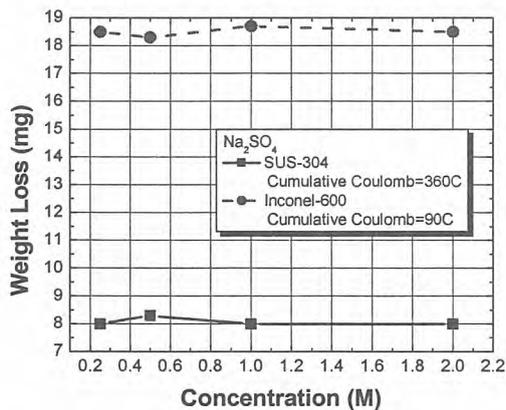


Fig. 5. Effect of  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  concentration on the electrolytic dissolution of SUS-304 and Inconel-600 specimen.

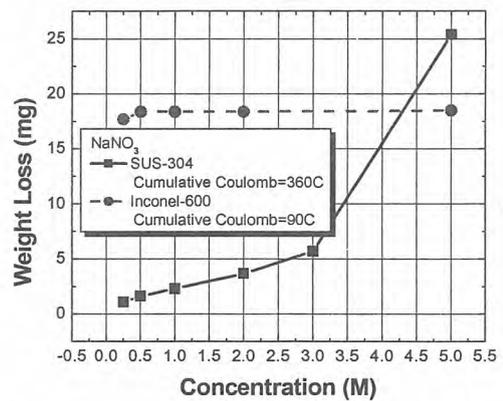


Fig 6. Effect of  $\text{NaNO}_3$  concentration on the electrolytic dissolution of SUS-304 and Inconel-600 specimen.

Fig. 6의 결과로부터  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  전해용액의 농도가 증가되더라도 SUS-304 및 Inconel-600시편의 전해제염 효율에는 그다지 큰 영향을 미치지 않음을 알 수 있다. 이와는 반면에  $\text{NaNO}_3$  전해용액 내에서 SUS-304 시편의 경우  $\text{NaNO}_3$  전해용액의 농도가 증가함에 따라 시편의 무게감소가 3M까지는 완만하게 증가하다가 그 이상에서는 급격히 증가되는 현상을 보여주고 있다(Fig. 7). 이 결과를 통해서 SUS-304시편은  $\text{NaNO}_3$  용액의 농도가 증가됨에 따라 전해 용해 속도가 매우 증가됨으로써 농도가 높은 전해용액을 사용하면 전해제염 시간의 단축이 기대되는 것으로 보인다. 하지만  $\text{NaNO}_3$  전해용액의 농도가 높아질수록 금속시편의 표면은 Fig. 8에 수록한 바와 같이 매끄럽지 않고 매우 거칠어졌으며, 이는 점식(pitting)에 의한 것으로 판단된다.

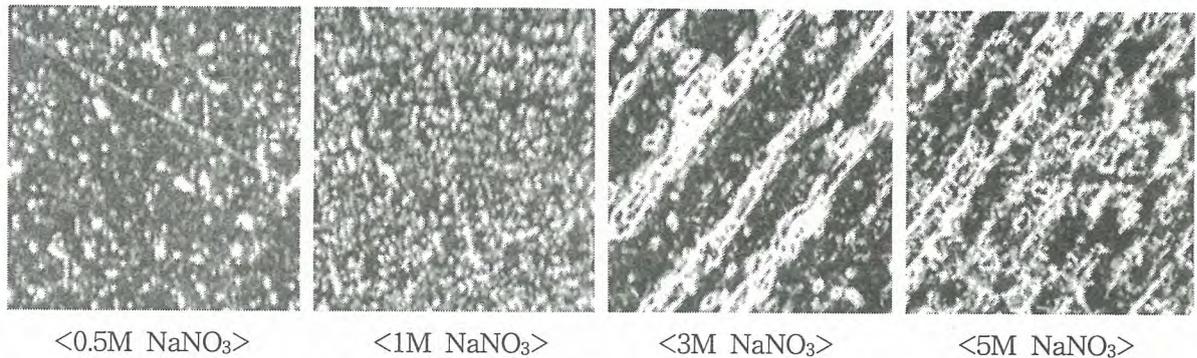


Fig. 8. Optical microscopic images of SUS-304 specimen surface after electrolytic dissolution with the variation  $\text{NaNO}_3$  concentration.

### 3.1.4. 열처리 시편의 용해특성

우라늄 변환시설의 내부설비에서 공정들이  $60^\circ\text{C}$ 에서  $650^\circ\text{C}$ 의 온도 조건에서 가동되어 높은 온도에서 가동되었던 내부설비의 제염 시 그 적용성을 찾기 위하여 제염대상 공정설비의 가동온도와 동일한 온도로 열처리한 SUS-304 및 Inconel-600 예민화 시편을 가지고  $\text{NaNO}_3$  중성염 전해질에서  $100 \text{ mA/cm}^2$ 의 전류밀도를 한 시간 동안 가하여 나타나는 시편의 용해특성을 관찰하였으며 동일한 전해조건에서 아무런 처리도 하지 않은 시편을 전해제염 한 금속시편의 용해특성을 비교한 결과를 도식화하여 Fig. 9에 수록하였다.

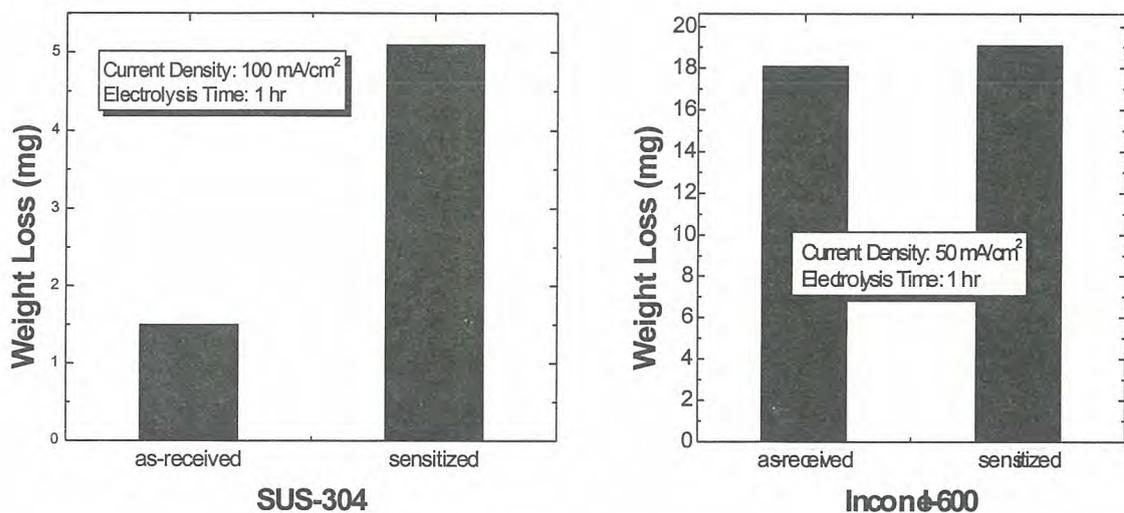


Fig. 9. Electrolytic dissolution performance of as-received and sensitized specimen.

SUS-304 시편의 경우 예민화 시편의 전해용해율이 그렇지 않은 시편에 비해 3배 이상 증가되었으며, 제염 후 표면도 매우 매끄러움을 확인 할 수 있었다. 따라서 고온의 조건에서 가동한 설비의 내부표면제염에 더욱 효과적으로 전해제염이 적용 가능함을 알 수 있었다.

### 3.2 우라늄화합물로 오염된 시설 인출시편의 전해제염

우라늄 변환 시설로부터 인출한  $UO_2$ , AUC, ADU 오염시편에 대해 그 표면적이 약  $4\sim 5\text{ cm}^2$ 의 크기로 절단하여  $Na_2SO_4$  및  $NaNO_3$  전해용액을 사용하여  $100\text{ mA/cm}^2$ 의 전류밀도로 시간을 변화시켜가며 전해제염 실증 시험을 수행하였다.  $UO_2$  오염시편의 초기  $\beta$  방사능 오염도는  $160\sim 270\text{ cpm}$ 이었으며, AUC 오염시편의 초기  $\beta$  방사능 오염도는  $324\sim 490\text{ cpm}$ 이었고, ADU 오염시편의 초기  $\beta$  방사능 오염도는  $1700\sim 2420\text{ cpm}$ 이었다. 우라늄화합물로 오염된 각각의 인출시편에 대하여  $Na_2SO_4$  및  $NaNO_3$  중성염 용액 내에서 제염시간을 5분에서 1시간까지 변화시켜가며 전해제염을 수행하였고 일정 시간간격으로 시편의 무게 감소와 동시에 전해제염 하기 전의  $\beta$  방사능과 전해제염 하고 난 후의  $\beta$  방사능을 측정하여 이로부터 제염계수(DF)를 산정하고 그 결과를 정리하여 Table 1에 수록하였다.

Table 1. Electrochemical decontamination results of metallic wastes contaminated with uranium compounds taken from an uranium conversion plant.

Contaminants	Electrolyte	Time (min)	$\beta$ -Radioactivity			
			before [cpm]	after [cpm]	DF	Specific Activity [ $\text{cpm/cm}^2$ ]
$UO_2$	$Na_2SO_4$	5	231.4	1.75	132.2	0.697
		10	233.4	1.1	212.1	0.3432
		20	244.02	0.95	258.9	0.552
		30	244.02	0.635	384.3	0.478
		60	269.22	0	$+\infty$	0
	$NaNO_3$	10	176.2	5.65	31.19	1.346
		20	160.65	2.69	59.83	1.001
		40	189.15	0.9	210.2	0.564
AUC	$Na_2SO_4$	10	454.47	4.7	96.7	0.654
		30	489.57	1.15	425.7	0.127
		60	386.13	0.60	613.5	0.079
	$NaNO_3$	10	208.53	5.25	39.72	1.15
		30	385.50	5.37	71.79	0.649
		60	324.03	2.55	127.1	0.255
ADU	$Na_2SO_4$	10	1978.3	1.185	1669	0.171
		30	1951.0	1.765	2550	0.0905
		60	2418.6	0.43	5625	0.0489
	$NaNO_3$	10	1702.8	1.83	930.5	0.239
		30	1705.3	1.65	1034	0.219
		60	1759.5	0.85	2070	0.099

금속폐기물 표면에 오염된 우라늄화합물의 성상이 다를지라도  $\beta$  비방사능은 모두 전해제염 시간이 경과함에 따라 점점 낮아지고 있음을 볼 수 있으며, 10분 이내의 전해제염만으로도 자체처분 기준치( $\beta = 0.4\text{ Bq/cm}^2$ [ $19.1\text{ cpm/cm}^2$ ])를 충분히 만족하였다.

UO<sub>2</sub>로 오염된 시편에 대하여 제염 전과 제염 후 시편의 표면상태를 SEM을 이용하여 관찰하였으며, 그 결과를 Fig. 10과 Fig. 11에 수록하였다. β 비방사능 측정결과 (Table 1)로부터 예견할 수 있었던 사실과 동일하게 10분 이내의 제염으로도 방사능 오염입자가 거의 완전히 제거되었음을 알 수 있으며, 이 정도의 전해제염 시간을 적용함으로써 전해용액 중으로 용출되는 모재 금속의 양도 감소시킴으로써 이차폐기물의 양을 최소화시킬 수 있다고 판단된다. 또한 전해제염 시간이 더욱 경과하면 표면에 있는 미세 골짜기의 가장자리들이 더욱 깎여나가 표면이 균일해지는 경향을 보여주지만 그와 동시에 NaNO<sub>3</sub> 전해질의 경우에는 점식이 발생하여 제염된 표면의 상태 및 전해제염을 통해 발생하는 이차폐기물의 측면에서 그다지 바람직한 결과를 보여주지 못할 것으로 예측된다.

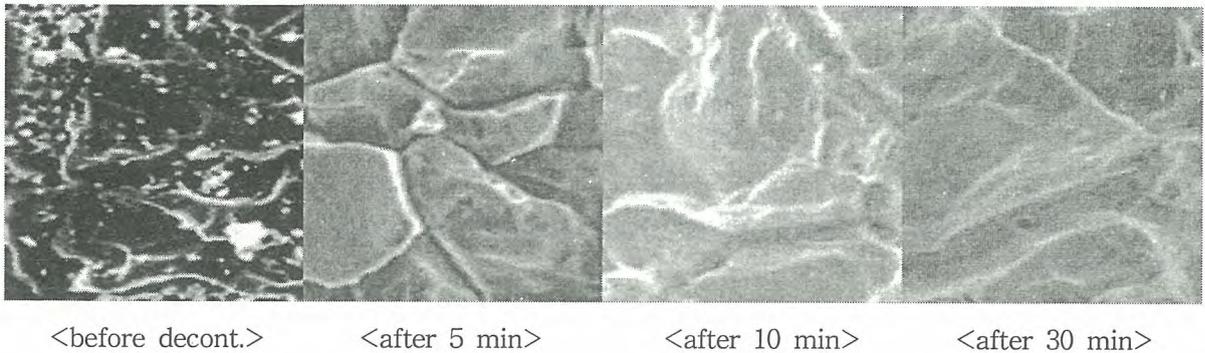


Fig. 10. SEM images of UO<sub>2</sub> contaminated metal surface before and after electrochemical decontamination with the variation of decontamination time using Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> electrolyte.

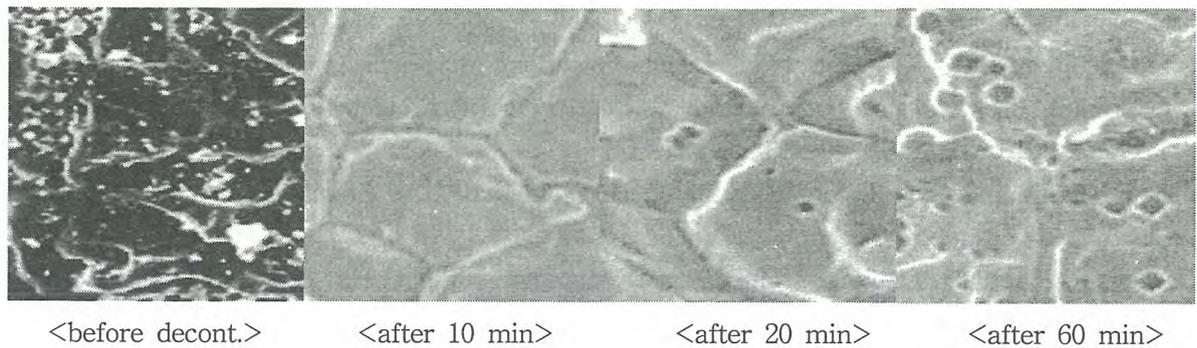


Fig. 11. SEM images of UO<sub>2</sub> contaminated metal surface before and after electrochemical decontamination with the variation of decontamination time using NaNO<sub>3</sub> electrolyte.

#### 4. 결론

(1) 여러 가지 중성염 용액 내의 동일한 조건 하에서 SUS-304 및 Inconel-600 시편의 전해용해 시 전해용해 성능이 가장 우수한 Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 및 Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>에 비해서는 다소 성능이 떨어지지만 우라늄 변환시설의 가동이력을 고려하여 NaNO<sub>3</sub> 중성염 용액이 우라늄 변환시설의 해체 시 발생하는 금속폐기물의 전해제염 용액으로 적절함을 보였다.

(2) Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 용액에서 SUS-304에 대한 전해용해는 전류밀도가 50 mA/cm<sup>2</sup> 이상에서,

Inconel-600에 대해서는  $50 \text{ mA/cm}^2$  에서가 효과적인 반면에  $\text{NaNO}_3$  용액에 있어서는 SUS-304 시편에 대해서는  $100 \text{ mA/cm}^2$  이하에서, Inconel-600에 대해서는  $50\sim 100 \text{ mA/cm}^2$  에서가 효과적이었다.

(3)  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  전해용액 내에서 전해용해가 진행되는 동안 금속시편의 무게감소는 농도의 변화와는 무관하였고, 시편표면 전체에 걸쳐 균일한 용해가 진행된 반면에,  $\text{NaNO}_3$  전해용액에 있어서는 농도증가에 따라 시편의 무게감소가 증가하며, 특히 3M 이상에서는 국부부식의 증가로 무게감소의 급격한 증가와 함께 시편의 표면 거칠기가 매우 증대되므로써 방사성 물질의 재 오염 가능성 및 이차폐기물의 발생량의 증가가 우려되므로 1M 이하의 농도조건에서의 전해제염이 바람직한 것으로 판단된다.

(4) 고온에서 예민화(열처리)된 SUS-304 시편의 전해용해 시 용해에 대한 재료의 민감도가 증가됨으로써 예민화 되지 않은 시편에 비하여 3배 이상 용해 성능이 증가되었으나, Inconel-600 시편의 경우에 있어서는 거의 차이가 없음을 알 수 있었다.

(5) 우라늄 변환시설에서 인출한  $\text{UO}_2$ , AUC 및 ADU 오염시편에 대하여  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  용액과  $\text{NaNO}_3$  전해용액 내에서  $100 \text{ mA/cm}^2$ 의 전류밀도 조건으로 전해제염 실증시험을 수행한 결과 오염물의 종류 및 오염 준위의 대소와는 관계없이 모든 시편에 대하여 10분 이내의 짧은 시간 내에 자체처분 기준치 이하로 및 방사능 준위를 감소시킴으로써 본 중성염 전해제염이 매우 성공적임을 확인하였다.

## 참고문헌

1. J. K. Moon, S. Y. Park, C. H. Jung, J. W. Lee, and W. Z. Oh, "Radioactive Metal Waste Recycling Technology", J. Korean Inst. of Resources Recycling, Vol. 6, No. 4, pp.38-47 (1997).
2. T. Izumida et al., "Electrolytic Decontamination of Surfaces Contaminated Metal by Alternating Electrolysis Using Square-Wave Current in a Neutral Salt Electrolyte", Nuclear Technology, Vol.70, pp. 249-253, Aug.(1985).
3. E. L. Childs and J. L. Long, "Electrolytic Decontamination of Stainless Steel Using a Basic Electrolyte", Nuclear Technology, Vol.54, p.208(1981).
4. Allen, R. P. et al, "Electropolishing as a Decontamination Process: Progress and Application", PNL-SA-6858(1978).
5. K. Westerverg and T. Waltersten, "Eldecon-Electrochemical Decontamination in Low Temperature Neutral Electrolyte", International Conference on Water Chemistry of Nuclear Reactor Systems 5, Vol.1, Bournemouth, UK Oct. 23-27, pp.191-195 (1989).
6. "Cleaning Up With ELDECON (Electrochemical Decontamination)", Nuclear Engineering International, Vol.34(420), pp.37-38, July(1989).
7. W. Z. Oh, J. K. Moon, C. H. Jung, and S. Y. Park, "Nuclear Fuel Cycle Waste Recycling Technology Development", KAERI/RR-1830/97 (1997).

## 이해 당사자 신뢰성 증진을 위한 유럽 연합의 RISCOM II 프로젝트 사례 현황

황용수, 정미선, 강철형  
한국원자력연구소  
yshwang@kaeri.re.kr

### 요약

방사성폐기물 처분 사업을 둘러싼 논란은 지난 50 여년간 국내외에서 계속되었다. 세계 각국은 뛰어난 과학 기술의 도입과 대규모의 홍보에도 불구하고 많은 경우 처분 사업의 실패를 맛보았다. 그러나 핀란드, 스웨덴 등 일부 유럽 국가들은 다른 나라들에 비해 비교적 적은 예산과 기술 인력을 투입함에도 불구하고 부지 확보 및 안전성 확보에서 괄목할만한 성과를 거두고 있다. 본 논문에서는 이러한 현상에 주목해 방사성폐기물 처분 연구 사업에서 쌍 방향 대화의 중요성을 간파하고 이를 적용하는 방안을 연구한 유럽 연합의 RISCOM II 프로젝트 중 프랑스, 핀란드, 스웨덴 사례에 대해 살펴본다.

**Key Words** : RISCOM II, 이해당사자, 쌍방향 대화, 투명성, 공청회, 신뢰성 증진

### 1. 서론

방사성폐기물 처분 사업은 지난 90년대 중반 영국 셀라필드 RCF(Rock Characterisation Facility) 부지 확보 실패를 필두로 독일 콜레벤 부지 확보 실패, 캐나다 처분 프로그램의 지연, 스위스 처분장 부지 확보 난항, 프랑스의 사용후핵연료 최종 처분을 둘러싼 논란 등 많은 시련을 겪어 왔다. 다행히 2000년 초 핀란드에서는 세계 최초로 올킬루오토(Olkiluoto) 처분 부지가 승인되고, 스웨덴의 경우 사용후핵연료 처분 프로그램이 착실히 진행되고 있으며 미국의 경우 네바다 주 정부의 심각한 도적에 직면하고 있으나 유카(Yucca) 산 처분 사업이 진행되고 있고 일본의 경우에도 부지 확보를 위한 일차적인 시도가 순조롭게 진행되고 있다. 여기서 주목해야 할 점은 스웨덴과 핀란드와 같이 상대적으로 처분 사업의 규모가 적은 일부 국가에서는 부지 확보 등 전체 처분 연구 사업이 원활히 진행되고 있고 막대한 연구 사업비와 최신 과학 기술을 동원한 영국 및 독일의 경우 부지 확보에 난항을 겪고 있다는 것이다.

이러한 원인들은 각국의 방사성 폐기물 관리에 대한 정책적 지원의 정도 등 외부 요인들과 방사성폐기물 처분 사업을 둘러싼 다양한 이해당사자들간의 신뢰성을 증진할 수 있는 쌍방향 대화 방법의 적용 여부이다. 1998년부터 스웨덴 SKI 가 주도해, SKB, 영국 Nirex, 핀란드 POSIVA는 이러한 점에 주목하여 RISCOM 프로젝트를 수행한 바 있으며 이를 확대하여 제 5차 유럽 연합 공동 연구 과제로 RISCOM II 프로젝트를 수행하여 2003년에 종료하였다.

### 2. RISCOM I 프로젝트의 성격

RISCOM II 프로젝트의 목적은 여러 유럽의 나라에서의 방사성 폐기물 관리 환경에 대한 지식

을 공유하는 것이고, 방사성 폐기물 관리 방법에 대한 만족도를 향상시키기 위한 투명성 모델을 좀 더 넓게 적용할 가능성의 범위를 알아보는 것이다. 이 프로젝트에 참여한 국가는 스웨덴, 영국, 핀란드, 체코 공화국, 프랑스이다. RISCUM 프로젝트는 방사성폐기물 관리 연구 사업에서 투명성을 증진하고, 이해당사자들의 참여 증진과 이를 위한 방안을 설정하기 위해 수행되었다. 투명성(transparency)이란 이해 당사자들에게 주어진 현상에 대해 예측 가능한 방법에 의해 특정 사업의 계획, 수행, 사후 감독 평가 전 과정들이 수행됨을 의미한다. 이러한 투명성 제고를 위해서는 과학적 진실(truth), 합법성(legitimacy), 신뢰성(authenticity)을 확보하는 것이 중요하다. 특히 이러한 세 측면을 확보함에 있어서 어느 특정 측면만을 집중적으로 수행하고 다른 측면을 간과할 경우에는 부작용이 따르게 된다.

신뢰성을 향상을 위해서는, 이해당사자들과 기관들 사이에 서로의 입장을 이해하기 위한 오랜 시간과 노력이 요구된다. 신뢰성을 향상시키기 위해 유럽에서는 쌍방향 의사 교환(two-way communication) 방식을 이용한 RISCUM Model을 개발하였다.

### 3. 대화를 통한 신뢰성 증진 사례

#### 가. 프랑스의 사례 연구

프랑스의 사례 연구는 "bottom-up" 대화 방법 가능성을 타진하였는데 주요 결론인 다음과 같다. 원자력 전문가들은 NIMBY 현상과 현대적 기술에 대한 사회적 반대로 인해 체계적인 대화를 계획하는 것은 어렵다고 생각한다. 비원자력 전문가들은 원자력 산업에서의 비밀주의의 전통을 여전히 유지하고 있다고 생각하기 때문에 전문가와의 대화가 어렵다고 생각한다. 전문가들은 과학이 방사성폐기물을 둘러싼 장기간에 걸친 안전성 확보 측면의 불확실성을 줄여줄 것이라고 믿는다. 전문가들은 방사성폐기물 처분장이 안전한 해결책이라는 것을 설명하기 위해 대화를 가장 좋은 수단으로 생각했다. 그러한 기술적 문제에 있어서 특별한 노력이 "교육"을 통해 기울여져야 한다고 RISCUM 프로젝트를 통해 전문가들은 자각하기 시작했다. 또한 기술적인 문제가 폐기물에 대한 부정적인 사회적, 문화적 면을 제거할 수 있도록 "대화"가 이루어져야만 한다.

반면에, 지역 주민들과 비전문가들은 과학적 토론을 대중화시키는 것을 주장하였다. 과학적 토론을 대중화시키는 것은 이 그룹이 주장하는 논리의 합법성을 증진하기 위함이다. 대화 목적에 있어서 비록 두 그룹이 차이를 가지나 공통된 견해를 찾을 수 있었다.

결론적으로 두 그룹간의 대화를 계획하기 위해서는 다음과 같은 사항들이 고려되어야 한다. 우선 방사성 폐기물 관리 문제에 대해 전문가들의 견해는 다른 해결책들을 분석, 비교하고 가장 좋은 해결책을 결정하기 위해 도와주기 위해 필요하다 인식은 요구된다. 두 번째로, 전문가적 견해는 다양한 관점들, 즉, 공학, 지구, 인류 과학을 포함한 다원론적인 전문가 견해이어야 한다. 가장 중요한 것은 방사성폐기물 처분 사업과 관련된 토론이 너무 과학적 측면에만 치우치지 말고 과학적 토론을 보다 대중화시켜 가는데 초점을 맞추어야 한다는 것이다. 방사성 폐기물을 둘러싼 현안들은 일반인들이 쉽게 인지할 수 있는 문제가 아니며, 일반인들이 쉽게 토론에 참여할 수 있도록 새로운 대화 과정이 고안되어야 한다.

#### 나. 핀란드의 사례 연구

핀란드에서의 연구는 사용후핵연료 최종 처분장을 위한 환경영향평가(EIA)에 일반 이해 당사자들은 참여시켜 처분장 안전성에 대한 인식을 향상시켜 처분 사업을 원활하게 수행할 수 있는가에 초점을 맞추었다. 핀란드 Posiva는 EIA 프로그램 전 과정을 공개하고 작성된 EIA 보고서에 대한 시민들의 의견을 수렴하는 상호 반응 과정을 도입했는데 이는 실질적인 부지 확보에 큰 영향을 미쳤다. 이러한 대화 과정을 통해 자연스럽게 POSIVA의 사업 목표와 안전성 확보 방안이 지역 주민들 뿐 아니라 중앙 및 지역 정부 그리고 규제 기관에까지 전파되었다. 특히 지역 주민들의 호응은 높았으나 전국적인

관심은 제한적 수준에 머물렀다.

핀란드의 처분 프로그램은 핀란드가 유럽 연합에 가입하기 전에 설정한 "모든 방사성 폐기물은 핀란드에서 처분되어야만 한다"는 원칙에 바탕을 두어 이외 대안에 대한 고려를 하지 않았는데 이에 불만인 일부 주민들의 반발이 있어 규제 당국은 여러 대안별 장단점 분석을 권유해 POSIVA가 대안 연구를 수행하였다.

Posiva의 EIA를 이용한 이해당사자들간의 대화 과정은 투명성 확보에 큰 도움을 주었다. 처분장에 대한 지역 주민들의 관심과 두려움은 심각했지만 Posiva는 후보지의 주민들에 의해 제기된 모든 영향들을 실제로 분석하고 고려하였다.

#### 다. 스웨덴의 사례 연구

스웨덴에서 방사성 폐기물 관리와 처분장 지역에서 공청회 개최는 지금까지 드물게 사용되었다. 1997년과 1998년에 개최된 두 번의 공청회는 스웨덴 원자력 규제처, SKI에 의해 준비되었다. 이러한 공청회 개최 결과 공청회가 처분장을 둘러싼 의사 결정 과정 정립에 도움을 준다고 판명되었다. 1999년 SKI와 SSI는 사용후핵연료 영구 처분 후보지 선정에 대한 검토 방법의 하나로 공청회를 이용하기로 결정하였다. 공청회의 주요 목적은 고준위 방사성 폐기물 처분장을 확보하기 위한 프로그램의 일환으로 지방 자치단체의 SKB의 제안에 대한 가부 여부 입장 표명에 대한 것이었다. 지방자치단체의 대표들은 RISCUM 프로젝트를 통해 개발된 공청회에 참여하였다. 이러한 지방 단체의 적극적인 참여는 두 가지 점에서 공청회의 중요성을 상기 시켰다. 첫번째로, RISCUM 방법론이 진정한 의사 결정 과정의 한 부분으로 사용될 수 있다는 실질적 가능성을 보여 주었으며 두 번째로는, 이러한 공청회 방법론은 향후 어떠한 상황에서도 사용될 수 있다는 점이다.

공청회가 스웨덴 법 체제에서 의무적은 아니지만, 사업기관과 지방 자치 단체, SKB와 다른 관련된 관계자들에게 이익을 줄 수 있는 공청회의 체제를 발전시키는 것은 SKB 프로그램을 위해 매우 유익하다고 판명되었다. 2000년대에 SKI와 SSI는 적합한 공청회 구성을 발전시킬 연구 프로젝트를 시작하였고, 그 목적을 위해 지방자치단체들과 SKB는 대화를 약속하였다.

공청회에 대한 첫 번째 대상은 부지 조사에 참여 여부를 결정하는 지방자치단체였다. 부지계획 과정에 관계된 모든 자치단체들은 SKB의 연구를 재고하고 감시하기 위한, 자치 단체의 결정을 준비하고 지역의 권한을 세우기 위한 감시 그룹(reference group)을 형성하였다. 이러한 공청회의 성공은 관계된 이해당사자들과 자치단체 시민들 사이에서 전체 과정에 대한 신뢰성에 의존한다. 공청회는 SKI에 의해 조직된 작업 그룹(working group)의 도움을 받은 지방자치단체의 대표자들과 함께 감시 그룹(reference group)에 의해 조직되었다. 모든 참여자들은 그들의 기본적인 생각들을 좀처럼 바꾸지는 않았지만 공청회의 결과에 대해서는 만족하였다. 그러나 기본적인 안전성을 둘러싼 환경 문제와 사업 주체들의 행동 등에 대해서는 일부 부정적인 반응도 있었다. 이를 성공적으로 이끌기 위해서는 공정하고, 모든 형태의 질문을 취급할 수 있는 능력을 가진 능숙한 조정인이 필요하다.

#### 4. 결 론

쌍방향 대화를 통해 처분장 부지 확보를 목표로 하는 RISCUM Model은 1998년에 처음으로 시작되었고, RISCUM II에서 적용되었다. 먼저 프랑스 연구에서는 대화의 목적과 전문가의 역할 등에 관한 연구가 수행되었다. 방사성 폐기물 관리에서, 전문가들은 다른 해결 방법들을 분석하고 비교하고 최상의 것을 결정하는데 도움을 주기 위해 필요하며 이와 동시에 일반인들의 활발한 참여도 요구된다. 핀란드의 경우는 부지 선정의 일부 과정인 EIA 보고서 작성 과정에 이해당사자들이 참여함으로써 부지 안전성을 보다 많은 사람들이 이해할 수 있다는 결론을 도출하였다. 스웨덴에서는 공청회가 지역 사회의 적극적인 의사 표현을 위한 수단임이 증명되었고 원활한 공청회 진행을 위한 방법론 및 중재자의 역할이 강조되었다.

이외에도 영국 등에서 웹 사이트를 통한 처분장 안전성 홍보 방법론의 타당성 등에 대한 많은 연구가 수행되었다.

이러한 연구 결과들은 사업 주체나 정부가 주도하는 대화 방식보다는 다양한 이해당사자들이 참여하는 대화의 중요성을 강조하고 있고 이러한 대화 과정의 원만한 진행을 위한 전문가들의 역할, 공청회 방법론의 중요성을 부각시킨다. 또한 환경 영향 평가 및 성능 평가 등이 인허가를 위한 활동으로서 뿐 아니라 전체 처분 사업에 대한 수용성을 증진시키는데 기여할 수 있다는 가능성을 보여 주었다.

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부가 주관하는 국가원자력중장기연구개발사업의 일환으로 추진되었습니다.

## 원자력 시설 해체비용 산정에 관한 고찰

### A Study of the Decommissioning Cost Estimation for Nuclear Facilities

DongGyu Lee, KwanSeong Jeong, KuneWoo Lee, WonZin Oh

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 DuckJin-Dong, Yusung-Ku, Daejeon

이동규, 정관성, 이근우, 오원진  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

#### Abstract

This paper is to study on the decommissioning cost estimation for nuclear facilities of advanced nuclear organizations and countries for deriving the cost factors to be taken considerations into accomplishing decommissioning projects. Of cost categories producing the factors of decommissioning costs, dismantling and waste processing & disposals activities are examined to increase the its costs. Of labor, materials and other costs categories, labor costs are summarized to have overall majorities in the decommissioning cost factors. The main parameters of all factors affecting the decommissioning costs are analyzed as work difficulty, regional labor costs, peripheral cost, disposal cost and final burial costs.

**Key Words** : Decommissioning, Decommissioning costs, Cost Estimation

#### 요약

연구로 및 원자력 시설 해체작업 수행 시 고려해야 할 여러 가지 비용인자를 고찰하기 위하여 OECD 국가 및 원자력 선진국의 연구용 원자로 및 원자력 시설 해체비용에 대한 추정 결과의 영향 인자를 중심으로 분석하였다. 여러 가지 해체 비용을 유발하는 범주에서 원자력 시설 철거활동과 폐기물 처리 활동이 가장 많은 비용이 발생하는 것으로 예상되고 있고, 노동인력비용, 재료비 기타 비용 중에서 노동 인력 투입에 대한 비용이 가장 많이 차지한 것으로 나타났다. 해체비용에 영향을 미치는 주요 변수로는 Work difficulty, Regional labor cost 차이, Peripheral cost, Disposal/final burial costs 으로 조사되었다.

**중심단어** : 해체, 해체 비용, 비용 산정

## 1. 서 론

전 세계의 원자력 시설이 점차 가동 중지되고 있고, 현재 약 80개 원자력발전소와 약 350개 연구용 원자로가 해체되었거나 해체단계에 와있다. 국내에서는 연구용 원자로(이하 '연구로') 1, 2호기 (TRIGA Mark II & III) 효용가치가 상실되어 운전을 정지하고 1997년부터 해체가 시작되었다 [1]. 연구로 2호기에 대한 해체활동을 바탕으로 연구로 및 원자력 시설 해체에 대한 비용산정을 하는데 있어서 기준이 되는 영향인자를 분석하여 해체비용 평가 방법론을 확립하고자 한다.

영향 인자를 바탕으로 하는 해체 비용 산정은 크게 3단계로 구성된다. 첫째로, 비용산정을 위한 기본적인 기준과 지침을 제공하기 위한 단계이다. 비용에 영향을 줄 수 있는 요인을 체계적으로 분류하여 각 요인별로 설정 가능한 레벨의 선택을 수행하는 과정이다. 둘째로, 선택된 각 기준을 근거로 하여 실제의 해체작업에서 필요한 작업의 분류 및 소요 자원의 산정과 항목별 비용을 산정하는 것으로써, 해체 비용 산정의 핵심적인 부분에 해당된다. 셋째로, 산출된 항목별 비용을 용도 및 목적에 맞게 재구성하여 전체의 비용을 산출하는 과정이다.

해체 비용 산정의 과정을 통해서 볼 때, 우선적으로 요구되는 것은 해체비용에 영향을 주는 요인의 분석과 이에 대한 기준의 설정이라고 할 수 있다. 특히 원자력 시설에 관계된 작업분류 및 산출비용 자료의 특성기준을 설정하는 것이 아주 중요하다.

해체 비용 구성요소에는 모든 알려진 비용과 알려지지 않은 것에 대한 식별 인자 그리고 수집 가능한 설계단계를 기초로 한 주변비용, 간접비 등에 대한 비용이 반드시 포함되어야 한다. 해체 비용 산정에는 가능한 한 알려지지 않은 요소를 배제하는 게 좋다. 그 이유는 해체작업을 수행하는 동안 기준, 방법 또는 매개변수가 변화됨으로써, 본래 비용 수치가 알려진 자료를 근거로 추정을 해야 이에 대한 조정이 보다 더 쉽고 정확하게 이루어질 수 있다.

본 논문에서는, 연구로 및 원자력 시설 해체작업 수행 시 고려해야 할 여러 가지 비용인자를 고찰하기 위하여 OECD 국가 및 원자력 선진국의 연구용 원자로 및 원자력 시설 해체비용에 대한 연구 결과의 영향 인자를 중심으로 분석하였다.

## 2. 원자력시설 해체비용 산정을 위한 비용항목 분류

### 2.1 연구용 원자로 및 실증로에 대한 US NRC 해체비용 산정

Research reactor와 test reactor를 reference reactor 대상으로 해체비용을 산정하고 있다. 연구용 원자로(Research Reactor)는 Oregon State University TRIGA reactor(OSTR)를 참조 대상으로 하고 있다. OSTR은 1000 kWt, open-pool, TRIGA형 노심 및 제염계통으로 된 원자력 교육 및 연구 시설이다. 실험로(Test Reactor)는 NASA의 Plum Brook Reactor Facility(PBRF)를 참조 대상으로 하였다. PBRF는 실험로와 연구로를 구성으로 하고 있다. 실험로(test reactor), Plum Brook Reactor(PBR)은 60 MWt, 경수 냉각재를 사용한다. 연구로(research reactor), Plum Brook Mock-up Reactor(MUR)는 저출력(100 kWt) swimming pool형 연구로 이다. PBR, MUR 모두 1973년에 운전정지 되었다[2].

두 참조 원자로 해체에 대한 비용 산정을 하기 전에 설정한 기본 가정은 다음과 같다.

- 해체 staff는 플랜트의 기술적 운전 인력투입은 가능한 최대
- 모든 지원 활동과 부분 지원 인원 구성은 계획 및 준비기간 동안 해체 프로그램의 일반적인 비용의 수준에서 활용
- 수정된 원자력 시설 인허가는 최종 운전 정지에 기초를 두며, 해체활동은 곧바로 개시

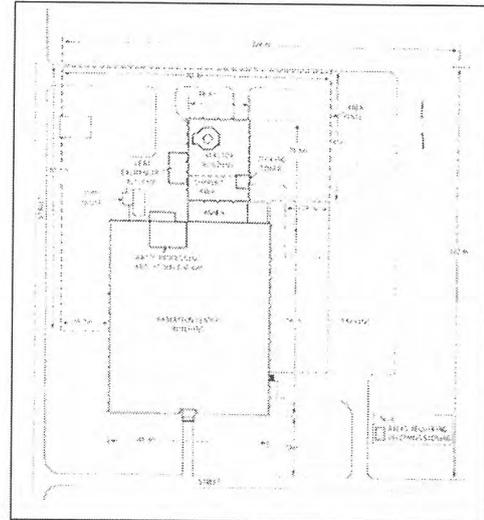
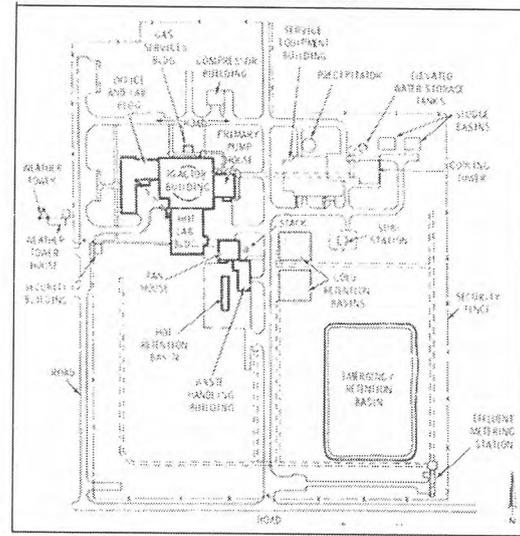


그림 1. Reference Test Reactor 개념도      그림 2. Reference Research Reactor 개념도

Cost Category	Estimated Costs (\$)	Percent of Total(%)
Disposal of Radioactive Materials	86,290	12.8
Neutron-Activated Materials	16,610	
Contaminated Materials	60,060	
Radioactive Wastes	9,620	
Staff Labor	5,30,570	78.4
Energy	13,790	2.0
Special Tool and Equipment	21,150	3.1
Miscellaneous Supplies	6,210	0.9
Nuclear Insurance	4,620	0.7
License Fees	13,950	2.1
Total	676,580	100.0
Other Possible Costs		
Spent Fuel Shipment	60,980	-
Facility Demolition & Site Restoration	1,96,750	-

표 1. Reference Research Reactor에 대한 비용 산정

Cost Category	Estimated Costs (\$)	Percent of Total(%)
Disposal of Radioactive Materials		
Neutron-Activated Materials	131,000	
Reference Test Reactor	4,000	20.7
Mock-Up Reactor (MUR)	2,338,000	
Contaminated Materials	99,000	
Staff Labor	863,000	69.3
Energy	76,000	0.6
Special Tool and Equipment	361,000	2.9
Miscellaneous Supplies	203,000	1.6
Special Contractors	616,000	4.9
Nuclear Insurance	-	-
License Fees	-	-
<b>Total</b>	<b>12,458,000</b>	<b>100.0</b>
Other Possible Costs		
Spent Fuel Shipment	204,000	-
Facility Demolition & Site Restoration	2,289,000	-

표 2. Reference Test Reactor에 대한 비용 산정

## 2.2 OECD/NEA 협력 프로그램에 의한 해체비용 산정

OECD/NEA의 해체 협력프로그램에서는 해체 프로젝트에 대한 연구로 및 실증로와 같은 다양한 원자력 시설에 대하여 비용 산정 방법을 협력하고 있다. 협력활동에 대상으로 한 원자로는 실험로 및 실증로는 Shippingport, BR3-PWR, WAGR, MZFR, JPDR, 상업용 규모의 원자력발전소는 KWL, EWN, Vandellos 1, Fort St. Vrain이고 재처리시설은 Eurochemic, AT-1, B204, West valley, WAK 시설이다[3].

OECD/NEA에서는 원자력 시설에 대한 해체 비용 산정을 하기 위하여 다음과 같이 기본 가정을 설정하고 있다.

- 해체 비용은 운전 정지 시부터 원자로 부지의 녹지화까지에 드는 모든 비용을 포함
- 핵연료 재처리공장뿐만 아니라, 모든 형태의 연구용 및 발전용 원자로에 적용되며 원자력 설비의 수명연장 및 일괄 철거 등을 망라
- 재처리와 같은 핵연료주기의 후행비용과 2차 폐기물의 처리 또는 핵연료의 중간저장, 최종처리는 비용에 포함되지 않음

모든 원자력 시설의 해체 활동에 들어가는 비용을 산정하고 분류한 결과 다음과 같은 비용 그룹 및 범주로 분석하고 있다.

이와 같이 비용기준을 설정할 경우 모든 원자력시설에 대하여 일치하지 않는데 그 이유는 다음과 같다.

- Pre-decommissioning actions : 인허가 비용이 없거나 프로젝트에 포함되어 있지 않으므로 몇 프로젝트에서 국부적 환경으로 인해 인허가 비용은 낮거나 언급되어 있지 않을 수 있다.
- Facility shutdown activities : 몇몇 해체활동은 긴 예비 해체 작업주기가 나타나지 않으나, 설비 운영에 포함됨에 따라 적은 비용수치들을 보여주고 있다. 다른 해체프로젝트에는 예측하지 못한 시설 정지 때문에 모든 작업자가 실제의 해체 주기를 준비하면서 머무르는 지연된 정지 주기를 다루고 있는 요인으로 높은 비용이 나타난다.
- Procurement of Equipment and Material : 몇몇 해체프로젝트에는 해체가 정상 작업으로부터 현지에 가능한 장비를 사용하여 수행되거나 긴 밀폐 주기 구성 요소들에 사용된 철거 방

법이나 낮은 방사능 준위 때문에 특수 장비가 기대되지 않음으로 인하여 낮은 비용 수치가 보여 지고 있다. 다른 프로젝트에서는 해체가 가능하도록 특수 장비도구들을 요구하는 특별한 설치 특성상 고비용이 들어간다.

- Dismantling Activities : 긴 밀폐 주기 때문에 철거 작업에 대한 비용이 낮을 수 있음에 따라 낮은 철거 비용이 주어진다. 다른 프로젝트들에서 기타 비용, 즉, 분리하여 확인될 수 없는 긴 1단계 준비 주기에 관계된 비용들을 포함하기 때문에 비용이 높게 나타난다.
- Waste Management and Disposal : 일부에서는 처리시설의 부재로 인해 최종 해체비용이 포함되지 않는다. 다른 프로젝트에서는 재처리로부터의 고준위 액체 폐기물의 유리화 때문에 폐기물 처리비용이 높게 보고되었다. 해체 작업 하에서 이러한 비용들을 고려하는 것은 보편적이지 않다.
- Security, Surveillance and Maintenance : 긴 밀폐 주기를 가지는 해체 프로젝트에서는 보안, 감독 및 유지비용이 지극히 높게 나타났으나, 철거 비용은 낮았다.
- Site Clean-up and Landscaping : 이 비용은 저비용을 나타내는 프로젝트는 해체 후 건물 파괴를 포함하지 않는다.
- Project Management, Engineering and Site Support : 특별한 불일치가 나타나지 않음.
- Research and Development : 몇몇 프로젝트에서는 작업 조건의 긴 밀폐 주기의 기법 향상 예상 때문에 별도의 R&D 비용이 포함되지 않는다, 다른 프로젝트에서는 R&D 특성이 프로젝트 자체의 목적 중의 일부이므로 비용이 높게 나타난다.
- Other costs : 일부 프로젝트에서는 준비금이나 예비비가 책정되지 않았으므로 비용이 낮게 나타난다.

Cost Groups	Percent of total(%)
Pre-decommissioning Operations	4.2
Facility Shutdown Activities	6.5
Procurement of Equipment and Material	8.6
Dismantling Activities	24.5
Waste Management and Disposal	9.8
Security, Surveillance and Maintenance	14.7
Site Clean-up and Landscaping	2.1
Project Management, Engineering and Site Support	13.2
Research and Development	7.4
Fuel	0.0
Other costs	8.9
Total	100.0

표 3. OECD/NEA 협력활동을 통한 해체비용 그룹

Cost Groups	Percent of total(%)
Labor Costs	56.8
Capital Equipment and Material	22.0
Expenses	21.2
Total	100.0

표 4. OECD/NEA 협력활동을 통한 해체비용 범주

### 3. 산정된 해체비용

#### 3.1 AFRRRI TRIGA 해체비용

AFRRRI TRIGA는 Armed Forces Radio-biology Research Institute에서 연구용으로 운영하고 있는 원자력 시설이다. AFRRRI TRIGA는 전형적인 TRIGA 원자로 형이다. 냉각재는 경수이며, 원형 격자 배열에 우라늄/지르코늄 hydride 연료 성분을 사용하는 swimming-pool 형 원자로이며, 최대 정상상태 출력은 1.1MW이고 최고 출력은 3000 MW이다[4].

AFRRRI에서는 TRIGA 원자로 시설을 위한 포괄적인 해체계획을 수립하기 위한 첫 번째 단계로 아래와 같은 목적으로 해체 비용을 산정하고 있다.

- DECON(즉시해체) 방법을 해체 방법으로 선정
- 해체를 안전하게 수행하는 데 필요한 주 기술적 조치사항들
- 해체과정 동안 물질에 대한 실제 방사선 준위 조사를 하기 위한 여러 가지 계획
- 고준위 및 중준위 방사성폐기물 처분 계획
- 무제한 사용이 가능하도록 부지 철거 및 복원에 대한 계획
- DECON 과 해체를 위한 정밀한 비용 산정

AFRRRI TRIGA 연구용원자로 시설의 해체작업은 크게 ‘사용후핵연료 제거’, ‘해체’ 그리고 ‘부지 복원’으로 구성한다고 가정하여 산정을 하고 있다.

AFRRRI TRIGA 연구용원자로 해체 시 투입되는 인력에 대한 Labor Costs를 아래 표 7 처럼 장비, 특수계약, 사회보장보험, 수수료 등 간접비로 구분하여 산정을 하고 있다.

AFRRRI TRIGA 에서 제거될 폐기물 대부분은 조사실에서 나온 방사화 콘크리트, 목재, 원자로 탱크에서 나오는 알루미늄, 원자로 노심 지지 구조로 구성되어 있다. AFRRRI에서는 비용 추정을 하기 위하여, 저준위 방사성 폐기물 처분 콘크리트 부피는 두 조사실에서 1 피트 깊이에서 발생된 콘크리트 이다. 실제 오염된 콘크리트는 부피는 아래 표보다는 적을 것으로 예상을 하고 있다. 해체 예산 산정을 좀 더 보수적으로 하기 위한 오차로 오염 콘크리트에 대한 과추정치를 허용을 하고 있다.

Waste Material	Volume (m <sup>3</sup> )	$\beta$ (Mg/m <sup>3</sup> )*	Mass (mg)	Crates (no)	Shipping	Cost**
오염 콘크리트	102.40	2.3	233.5	30	\$44,320.42	\$345,049.43
오염 목재	76.82	0.7	53.8	23	10,119.25	235,922.40
오염 알루미늄	1.36	2.7	5.0	1	945.05	6,589.54
원자로용기	N/A	N/A	0.9	1	169.05	1,613.26
Total						\$589,179.63

N/A, not applicable

\*Mg, Megagramme

\*\*Cost = (cost/crate)(# of crates) + shipping costs + disposal costs

표 5. AFRRRI TRIGA 해체를 위한 추정된 폐기물 처분 비용

Staff position	Workyears (no.)	Rate (\$1,000/hr)	Cost (\$1,000)
Management and staff			
Decommissioning superintendent	2.0	89.1	178.20
Decommissioning engineer	2.0	76.0	152.00
Secretary	2.0	24.2	45.40
Clerk	0.5	24.2	12.10
Health Physics	2.0	46.9	93.80
Radioactive shipment specialist	0.5	39.3	19.65
Procurement specialist	0.5	39.3	19.65
Contract and accounting specialist	0.8	47.1	57.63
Security supervisor	0.625	55.9	34.94
Security patrol officer	3.6	25.4	91.44
QA engineer	0.7	46.9	32.83
Control room operator	1.0	34.5	34.50
Consultant	1.0	100.0	100.00
Decommissioning workers			
Shift manager	1.0	52.2	52.20
Craftsman	2.0	32.1	64.20
Crew leader	0.5	44.4	22.20
Utility operator	0.342	32.1	10.98
Laborer	6.0	30.9	185.40
Health physics technician	3.0	30.0	90.00
Total	30,067	N/A	\$1,250.17

표 6. AFRR I TRIGA 해체비용 산정 결과

Cost Categories	Cost (\$1,000)	Percent of Total (%)
Waste Disposal	589.2	23.3
Labor	1,929.3	76.4
Energy	5.6	0.2
Total	2,524.1	100

표 7. AFRR I TRIGA 해체 비용 범주

### 3.2 Maine Yankee 해체비용

Maine Yankee는 1972년에 첫 운전을 개시하여 1996년에 경제적 이유와 발전소 운전의 불확실성으로 인하여 최종 운전을 정지 하였다. 총 운전 기간 동안 118.7 billion kWh 전기를 생산하였다. 현재 아래 그림과 같이 약 86% 해체 작업이 진행되고 있다[5].

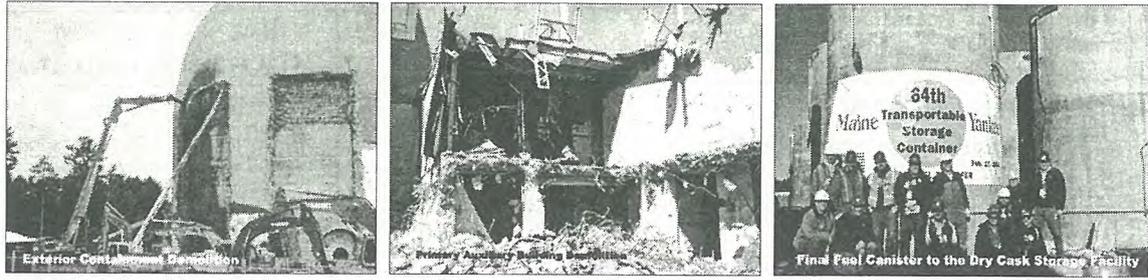


그림 3. Maine Yankee 해체작업 현황

Maine Yankee에서는 원자력 시설을 해체하기 위해 사전 준비 작업으로 부지특성에 맞는 해체비용 산정 방법에 대한 기준을 설정하고 있다. 해체비용 산정의 기준으로 비용 요소에 대한 평가 요구사항을 아래와 같이 설정하고 있다.

- 임시 인자를 포함한 소요 비용
- 주요 해체 활동 및 작업
- 단위 비용 인자
- 장비와 구조물에 대한 제염 및 제거의 산정 비용
- 처분 부지에 적용 가능한 폐기물 처분 산정 비용
- 최종 부지 조사비용 산정
- 총 비용 산정

비용 산정은 투입인력, 재료, 장비, 에너지 등 상세한 작업 활동을 바탕으로 하고 있다. 비용 산정은 단위비용 인자와 site specific 그리고 방법론에 따른 일정을 고려하여 아래 표와 같이 해체 비용을 산정하고 있다.

Categories	Costs*	Percent of Total(%)
Plant Radiological Decontamination		
- Staffing	105,789	32.2
- LLW Burial	75,244	22.9
- Equipment Removal	51,439	15.7
- LLW Packaging and Shipping	19,344	5.9
- Decontamination Activities	7,402	2.3
- Other Costs	69,327	21.1
Sub Total	328,545	100
Spent Fuel Management		
- Staffing and Security	38,529	25.8
- Property Taxes	29,539	19.8
- Construction Costs	60,655	40.6
- NRC and State Fees	11,717	7.8
- Insurance	3,504	2.4
- Other Costs	5,436	3.7
Sub Total	149,380	100
Site Restoration		
- Licensing Termination Survey	12,423	30
- Major Component Removal	12,543	30
- Close-out activities	3,740	9
- Demolition of site buildings	12,738	30.8
Sub Total	41,444	100
Total	519,369	-

\* costs in thousands of dollars.

표 8. Maine Yankee 해체비용 산정 결과

### 3.3 WWER-400 해체비용

구소련연방에서 WWER(Water Cooled Water Moderated Power Reactor) Nuclear Power Plant 설계가 1954-1955년에 시작되어, 첫 440MW(e) WWER 상업 운전을 하기 위해 Novovoronezh NPP의 두 개를 조합한 경험으로 건축을 하였다. 1971년에서 구소련연방 내에 운영되어, 1974년에서 1982년까지 추가로 10기의 원자로가 구소련연방 외 국가에서 운전을 시작하였다[6].

Country	Reference NPP	Type of the units
Armenia	Armenian NPP (Unit 1-2)	WWER-440/270
Bulgaria	Kozloduy NPP (Units 1-2)	WWER-440/230
Czech Republic	Dukovany NPP (Units 1-2)	WWER-440/213
Finland	Loviisa NPP (Units 1-2)	WWER-440/213
Germany	Greifswald NPP (Units 1-2)	WWER-440/230
Hungary	Paks NPP (Units 1--4402)	WWER-440/213
Russian	Novovoronezh NPP (Units 3-4, Kola NPP (Units 3-4)	WWER-440/230 WWER-440/213
Slovakia	Bojunice NPP(Units 1-2) Bojunice NPP(Units 3-4)	WWER-440/230 WWER-440/213
Ukraine	Rovno NPP (Units 1-2)	WWER-440/213

표 9. WWER-440 해체비용 산정을 위한 참여 국가 및 원자로

WWER-440 원자력 발전소에 대한 지속적인 운전 또는 해체에 대한 복잡한 결정에 직면해 있는 운전국들의 해체비용에 대한 관심을 바탕으로 IAEA는 기술적 문서 준비 작업을 착수하였다. WWER-400 NPP의 해체비용을 동일한 방법으로 제시하기 위해서, 비용항목을 비용그룹으로 분류 및 포함시켜 비용을 분석하는 것으로 나타났다.

비용 산정을 하기 위한 항목을 다음과 같이 그룹을 만들어 설정을 하고 있다.

- Pre-decommissioning actions
- Facility shutdown activities
- Procurement of general equipment and material
- Dismantling activities
- Waste Processing, storage and disposal
- Site security, surveillance and maintenance
- Site restoration, cleanup and landscaping
- Project management, engineering and site support
- Research and development
- Fuel and nuclear material
- Other costs

WWER-440 해체 시 설정된 가정의 기술 조건은 다음과 같다.

- 자유조건상태에서, 정상운전 후에 중지
- 두 개의 unit을 포함하고, 최종 목적은 부지 복원상태로 환원하는 것
- 제염부분에서, 철거 및 폐기물 처리과정은 현재 가능한 방법만 고려
- 사용 후 연료 풀에서 중간 저장소로 선적하기 전에 최소 3년의 최종 사용연료의 냉각

WWER-440 이용국가들의 해체비용 접근 방법으로서 단위비용인자를 바탕으로 산정을 하였는데, 비용인자들은 비생산적 시간(작업휴식, 드레싱, 언드레싱 시간, 훈련 등)과 작업을 수행하는데 필요한 시간을 지연시키는 작업조건(호흡장비 착용, 비계위에서 작업)을 고려하고 있고 단위비용인자에 대한 가정은 다음과 같다.

- 발전소 운전 중에 발생한 처리, 포장, 수송, 저장, 방사선편이물 처분에 대한 비용은 해체비용에 포함하지 않음
- 장비 재판매는 고려하지 않음
- 최종 운전정지 후 가능한 빨리 핵연료 저장조로 최종 노심을 이송하고 3년 후 중간 저장시설에 연료를 옮기는 비용은 해체비용에 포함.
- 원자력 시설 해체하는 동안 안전규정에 따라, 최종 운전정지는 시설운전의 마지막 단계임.

WWER-440 이용 국가들의 해체 프로젝트 중에서 주요 철거 작업 활동은 다음과 같다. 또한 비용그룹을 바탕으로 3가지 범주로 구분하여 비용을 분류하고 있다.

- Decontamination of areas and equipment in building to facilitate dismantling
- Dismantling operations on reactor pressure vessel and internal
- Removal of primary and auxiliary systems
- Removal of biological/thermal shield
- Removal and disposal of asbestos
- Building decontamination
- Decontamination for recycling and reuse

Cost Categories	Percent of Total(%)
Pre-decommissioning actions	1.9
Facility shutdown activities	18.9
Procurement of general equipment and material	1.5
Dismantling activities	17
Waste processing, storage and disposal costs	34.5
Site security, surveillance and maintenance	4.4
Site restoration, cleanup and landscaping	9.8
Project management, engineering and site support costs	5.4
Research and development	0.5
Fuel and nuclear material	4.2
ther costs	2

표 10. WWER-440에 대한 11개 해체 비용 그룹

Cost Groups	Percent of total(%)
Labor Costs	45.3
Capital Equipment and Material	16.6
Expenses	3
Total	100.0

표 11. WWER-440에 대한 해체비용 범주 분포

### 3.4 DR3 (Danish Reactor No. 3) 해체비용

DR3(Danish Reactor No.3)는 발전용 원자로를 위해 새로운 구성요소와 재료를 시험하기 위해 건설된 덴마크에서 가장 큰 원자로이다. 1960년부터 사용되었으며, 감속재는 중소, 본래는 실증로를 대상으로 건설되었지만 다목적 연구로의 역할로 사용되고 있다. 운전 주기는 4주이다[7].

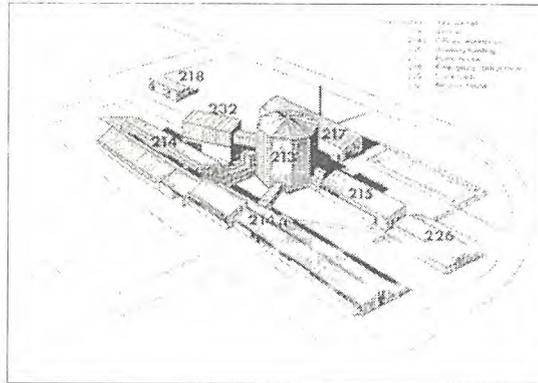


그림 4. DR3 개략도

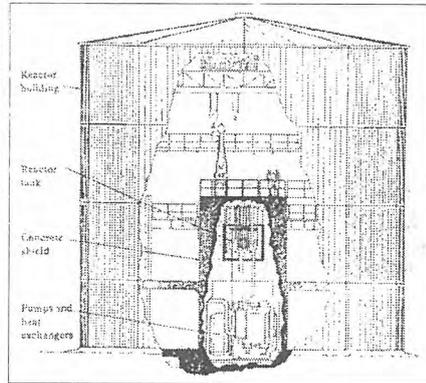


그림 5. DR3 내부 평면도

DR3 시설 내의 복잡도가 다양하기 때문에, 해체 노동력과 비용에 대한 평가는 다르게 접근하고 있다. 몇몇 시설에 대해서는 동위원소 실험실과 같은, 필요한 작업은 쉽게 나타낼 수 있지만, 반면에 다른 구성요소의 경우는 체계적인 접근이 요구되는 것으로 나타났다.

Cost Categories	Estimated costs(MDKK)	Percent of total(%)
Pre-decommissioning actions	-	-
Facility shutdown activities	7	1.9
Procurement of general equipment and material	9	2.4
Dismantling activities	249	67.5
Waste processing and storage	15	4.1
Site security, surveillance and maintenance	-	-
Site restoration, cleanup and landscaping	21	5.7
Project management, engineering and site support	-	-
Research and development	-	-
Fuel and nuclear material	68	18.4
Total	369	100

표 12. DR3 해체비용 산정 결과

#### 4. 산정된 해체비용에 대한 분석 결과

연구용 원자로 및 원자력 시설에 대한 해체 비용 산정을 분석한 결과 원자력 시설 철거활동과 폐기물 처리 활동이 가장 많은 비용이 투입될 것으로 예상되고 있고 노동인력비용, 재료비 기타 비용 중에서 노동 인력 투입에 대한 비용이 가장 많이 차지한 것으로 나타났다. 특히, 일반 작업이 아닌, 방사선 관리 구역과 같은 작업 환경이 어려운 곳 작업영역이면 작업집약도가 높아져서 비용이 많이 소요되는 것으로 분석이 되었다.

해체비용에 영향을 미치는 주요 변수로는 Work difficulty, Regional labor cost 차이, Peripheral

cost, Disposal/final burial costs 이다. 나머지 재료, 장비 및 에너지 비용의 변화로 인한 영향은 해체 전체 프로젝트 비용에 영향을 정도의 미미한 것으로 분석되었다. 이 중에서 work difficulty와 regional variations in labor rate 인자가 중요 영향인자로 나타났다.

- 작업 애로 인자(Work difficulty factors)

해체비용에 영향을 주는 작업 애로인자는 작업자 보호 장비(PPE, Personal Protective Equipment), 작업환경 고도/접근성, 노동 생산성이다. PPE 작업 애로 인자는 방사선 구역으로 진입하기 위해 필요한 체비에 대한 시간이 필요하게 된다. 작업환경 고도/접근성은 해체해야할 구성 요소에 대한 작업환경이 곤란한 곳에 해체 활동이 지연되는 시간을 의미한다. 노동 생산성은 각 해체 지역에 따라 상이하기 때문에 이에 대한 인자가 반드시 필요하다.

- 국가별 노동비용의 차이(regional variations in labor rate)

국가별로 해체비용 가운데 노동비용이 차이하는 비율이 일반적으로 -37%에서 +55% 범위로 나타났던 것으로 분석되었다.

## 감사의 글

본 연구는 과학기술부에서 주관하는 원자력중장기 연구개발사업의 일환으로 수행하였습니다.

## 참 고 문 헌

- [1] "연구용원자로 폐로사업", 정기정 외, 한국원자력연구소, p3, 2000
- [2] "Technology, Safety and Costs of Decommissioning Reference Nuclear Research and Test Reactors", NUREG/CR-1756, p11-12, 1982
- [3] "The NEA Co-operative programme on decommissioning", OECD/NEA, p113-126, 1996
- [4] "An Analysis of Decommissioning Costs for the AFRRRI TRIGA Reactor Facility", 1990
- [5] "Maine Yankee Decommissioning Costs", 2002
- [6] "Decommissioning costs of WWER-440 nuclear power plants", IAEA, IAEA-TECDOC-132, 2002
- [7] "Revised Cost Estimate for the Decommissioning of the Reactor DR3", Riso, Riso-R-129, 2001

**Preparation of polymeric composites for surface contamination measurement in order to characterize nuclear facilities decommissioning**

**원자력시설 해체 시 특성평가를 위한 표면오염 탐지 이중구조 고분자 복합체의 제조**

**Myeong-Jin HAN, Bum-Kyoung SEO<sup>a</sup>, Zu-Hee WOO<sup>a</sup>, Kune-Woo LEE<sup>a</sup>**

Kyungil University, 33 Buho-ri, Hayang-up, Gyeongsan-si, Gyeongsang buk-do

<sup>a</sup>Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Deok-Jin Dong, Yuseong-Gu, Daejeon

**한명진, 서범경<sup>a</sup>, 우주희<sup>a</sup>, 이근우<sup>a</sup>**

경일대학교 생명화학공학과, 경북 경산시 하양읍 부호리 33

<sup>a</sup>한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

**Abstract**

Double-layered polysulfone composite films, containing cerium activated yttrium silicate (CAYS) as a fluor, were prepared from double casting of two polymeric solutions, and their morphology and physical strength were superior to those of single-layered composites. The prepared polymeric films consist of a dense bottom layer and a CAYS-holding top layer. The former is made of coagulating the polysulfone and methylene chloride binary solution and works as a supporter to improve the composite's physical strength, while the latter holding the inorganic fluor plays a role as an active site to detect the radioactive contamination. The prepared films revealed two distinguished, but tightly attached, double layers, their attachment being identified by morphology of the interface between two layers. As prepared by water immersion coagulation, the films have highly developed macropores, compared with a dense structure in the film prepared by evaporation. In the radionuclide detection test of the CAYS-impregnated composites, the films have reliable detection capacity at a radionuclide spotting test. The double-layered composites with the dense support layer show a better stability in holding the radionuclides spotted on the surface as well as an improvement in physical strength, compared with the single-layer composites having shortcomings such as being too porous or being brittle.

**Key Words** : decommissioning, radioactivity, polymer, polysulfone, double-layer, inorganic fluor

## 요 약

원자력시설의 해체를 위한 표면오염도를 측정함에 있어 기존의 일반적인 단일층 함침 복합체의 단점을 개선한 치밀한 구조의 지지층 위에 활성층의 2차막을 도포하여 제조된 이중 구조의 고분자 복합체를 제조하고 이들의 특성을 분석하였다. 세륨활성화된 이트륨실리케이트 (Cerium-activated yttrium silicate, CAYS)를 함침시킨 폴리설피론 이중구조 필름은 1차 지지층으로서 폴리설피론 (polysulfone, PSF)과 메틸렌클로라이드 (methylene chloride, MC)로 이루어진 2액 용액을 유리판 위에 제막하고 증발을 통해 MC를 제거하여 고분자의 유리화(vitrification)를 통해 치밀한 구조로 고형화하도록 하였다. 고형화한 1차층 위에 CAYS 와 용매로 이루어진 2차 제막용액을 덧붙여 도포하고 물에 침지시키거나 대기방치를 통해 고형화시켰다. 이렇게 이루어진 2중 구조의 무기섬광체 함침 복합체 필름은 2차 제막층에 손가락 형태의 큰 기공이 생성되었으며, 1차층과 2차층이 완전히 결합되어 있어 우수한 기계적 물성을 나타냈다. 한편, 섬광체인 CAYS를 첨가하였을 때 필름에 생성되는 큰 기공의 형성이 증대되는 특성을 보였으며, 용매의 증발에 의해 고형화된 필름은 치밀한 구조의 형상을 보였다. 제조된 필름들은 방사성핵종의 탐지에 있어 신뢰할 만한 탐지 결과를 보였다.

**중심단어** : 해체, 방사능, 고분자, 폴리설피론, 이중구조, 무기섬광체

## 1. 서 론

원자력의 이용 및 방사성핵종을 이용한 과학기술의 발달과 아울러 방사성 물질을 취급하는 장소에서의 방사능 오염 및 원자력 시설의 해체에 대한 중요성이 크게 부각되고 있다. 특히, 원자력 시설의 해체 시 가장 중요한 부분 중의 하나가 해체 전후와 과정에서의 시설의 표면오염도 측정이다. 따라서, 오염예상 지역에서 발생하는 방사능 오염의 신속한 확인 및 처리, 그리고 안전성을 증대시킬 수 있는 기술에 대한 연구개발 및 원자력시설 해체를 위한 오염도의 사정(査定)은 중요한 문제로 대두되고 있다[1]. 결과적으로, 방사능 오염을 효율적으로 감지하고 신속하게 처리할 수 있는 기술 및 장비의 개발은 원자력의 상용화에 기여함과 아울러 세계적으로 증대하고 있는 高 효율 방사능 측정 장비에 대한 요구에 부응할 수 있다. 즉, 원자력 시설물에 있어 방사능의 표면오염도를 자동으로 측정하기 위한 장비의 개발은 국내외적으로 관심이 증대되고 있는 분야로서, 기기 제조를 위한 전기 기계적 기술과 함께 방사성 물질의 탐지를 위한 물리 화학적 기술이 접목된 복합기술을 필요로 한다.

지금까지 이러한 오염예상 지역에 있어 방사능오염도의 측정은 철저한 보호장구를 착용한 기술자에 의해 이루어졌으나 이는 작업자의 노출 위험과 아울러 작업시간이 과다하게 요구되는 단점이 있다. 또한, 일반적인 방사성핵종의 오염도 측정은 오염 지역을 매체로 문지른 후 이 매체를 유기 섬광체를 포함하는 섬광용액(scintillation cocktail)에 집어넣어 측정함으로써 많은 양의 방사능 오염 폐기물을 양산하는 단점을 지니고 있다[2]. 이에 비해, 섬광체가 함침된 고분자 복합체는 오염 지역에서 방사성핵종을 포집하기 위해 사용된 후 섬광용액의 도움 없이 오염도 측정을 가능하게 함으로써, 방사능 폐기물의 생성을 크게 줄이며 방사능 오염도를 효율적으로 측정하기 위한

방법에 사용될 수 있다[3-6]. 따라서, 이러한 시간과 인력 수요의 절감 및 방사능 폐기물 생성의 절감을 위하여 표면 방사능 오염도의 자동측정 장비의 개발은 원자력의 적극적인 상용화 및 원자력 시설의 해체에 요구되는 표면오염도의 측정에 있어 중요한 역할을 할 수 있다.

새로운 표면오염도 측정 장비의 개발에 있어 고려해야할 주요한 요소는 오염 예상지역에 존재하는 방사능 오염물질을 안전하고 확실하게 채취하고 채취된 매질에 수착된 오염물의 농도를 정확하게 측정하는 것이다. 이를 위해 오염 대상 지역으로부터 방사성오염물을 채취함에 있어, 채취 공정 도중 손상되지 않을 정도의 기계적 강도를 유지하며 안전하게 오염물질을 수착시킬 수 있는 안정된 매질의 확보가 필수적이다[7]. 현재 방사성핵종의 탐지를 위해 사용되는 기존의 채취용 재질 중 섬광체를 포함하면서 기계에 장착될 정도로 안정된 기계적 강도를 지니는 재료는 찾아볼 수 없다. 따라서, 본 연구에서는 자동측정 장비와 호환성을 지니는 시료채취부분의 효율적인 설계 및 제조를 궁극적인 목표로 하여, 방사성핵종과 우수한 반응성을 지니며 안정된 기계적 물성을 지니는 오염물 채취 재료를 개발하기 위한 연구를 수행하였다.

기존의 일반적인 단일층을 구성하는 합침 고분자 필름의 경우 필름 전체에 다공성 구조를 지니므로써 복합체의 특성이 저하되는 경향을 띄고 있다. 이러한 저감 특성은 두 가지로 분류될 수 있는데 하나는 인장강도와 같은 기계적 물성이 고밀도 고분자 필름에 미치지 못하여 오염물 채취 과정에서 매질의 찢어짐과 같은 현상이 일어날 수 있는 것, 그리고 다른 하나는 고분자 필름에 크게 형성된 기공들에 의해 방사성핵종의 에너지가 필름의 내부에서 크게 손실되는 것에 기인한다[8,9]. 이러한 단점을 개선하고자 치밀한 구조의 지지층 위에 활성층의 2차층을 도포하여 이중 구조 복합체를 제조함으로써 필름의 특성을 변화시키고자 하였다. 폴리설펀을 이용하여 친수성 용매와 소수성 용매를 각각 사용하여 이중 복합체를 제조하고 그들의 특성 및 장단점을 상호 비교하였다.

## 2. 실험

### 2.1 고분자 복합체의 제조

무기섬광체가 합침된 고분자 복합체는 두 차례의 제막 과정과 고형화 과정을 거쳐 제조하였다. 먼저 메틸렌클로라이드 (MC) 80 g과 폴리설펀 (PSF) 25 g을 혼합한 투명한 1차 제막용액을 만들고, Doctor Blade (Sheen applicator, England)를 이용하여 유리판 위에 300  $\mu\text{m}$ 의 이격 두께로 제막하여 용액 필름이 형성되도록 하였다. 이를 30  $^{\circ}\text{C}$  진공오븐에서 48 시간 증발 건조시켰을 때 투명한 상태의 폴리설펀 필름은 유리판 위에 고착된 상태를 유지하였다. 1차 제막에서 얻어진 폴리설펀 필름 위에, 디메틸포름아마이드 (DMF), n-메틸피롤리돈 (NMP) 또는 메틸렌클로라이드 25 g과 폴리설펀 4.5 g으로 이루어진 균일한 용액에 cerium activated yttrium silicate(CAYS) 5 g을 분산시킨 2차 제막용 용액을 만들고 유리판과 200  $\mu\text{m}$  이격 두께로 도포함으로써, CAYS를 포함하는 용액이 1차 고형화 필름 위에 덮여지도록 제막하였다. 1차 지지용 폴리설펀 고형화 필름과 CAYS를 포함하는 2차 용액 필름으로 이루어진 2중 구조를 지니는 용액 필름은 물에 침지시키거나, 용매의 증발을 통해 용액필름의 최종 고형화가 이루어지도록 하였다. 비용매 욕조에 침지되어 고형화한 막은 24시간 경과 후 침지용 비용매 욕조로부터 대기로 옮겨져 비용매가 증발되도록 하였다. 막의 제조 조건 및 구조 특성은 Table 1에 나타내었다.

메틸렌클로라이드, 디메틸폴름아마이드, n-메틸피롤리돈과 폴리설펜(Mn 22,000)은 Aldrich로부터 구입하였으며 별도의 정제과정 없이 사용하였다. 침지용 비용매로 사용되는 물은 증류수를 사용하였으며, CAYS(P-47)은 SPI supplies (England)로부터 구입하여 사용하였다. 입자 크기는 2 - 8  $\mu\text{m}$ 이었으며, 3-5  $\mu\text{m}$  이 50% 이상을 차지하였다.

## 2.2 SEM

제조한 CAYS 함침 복합체의 형상은 전자주사현미경 (SEM, Philips XL30W)을 이용하여 분석하였다. 샘플들은 액체질소를 사용한 심냉 조건 아래에서 준비하였고 대기 중에서 건조하였다. 모든 시편들은 촬영 전에 금-팔라듐 (6:4) 합금을 도포하였다.

## 2.3 방사선 적용성 시험

제조한 무기섬광체 함침 복합체의 방사선학적인 적용성을 평가하기 위하여 저에너지  $\beta$ -선 방출 핵종인  $^{14}\text{C}$ 를 이용하였다. 준비한  $^{14}\text{C}$  표준선원에 이소프로판올을 첨가하여 방사능 농도가 2.3 Bq/ $\mu\text{l}$ 인 표준용액을 제조하였다. 표준용액을 여러 가지 공정에 따라 제조한 무기섬광체 함침 필름에 50  $\mu\text{l}$ 를 도포하였다. 방사성 표준용액을 도포한 함침 필름은 광전자증배관을 이용하여 측정하였고, 함침필름에서의 광전환 비율을 평가하기 위하여 저준위 알파/베타 계수기를 이용하여 비교하였다. 측정된 값은 분당 검출기를 통해 기록된  $\beta$ -선 숫자를 나타내는 CPM (Radioactive counts per minute)을 이용하여 기록하였다.

Table 1. Preparation conditions for composite films

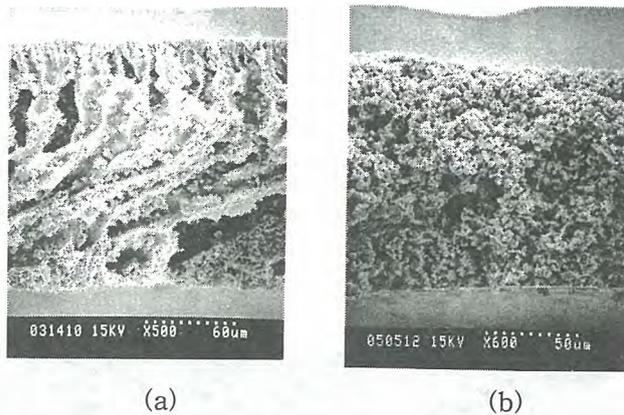
No.	support layer				active layer			coagulation condition
	PSF (g)	MC (g)	casting thickness ( $\mu\text{m}$ )	solvent (type)	PSF (g)	CAYS (g)	casting thickness ( $\mu\text{m}$ )	
1	25	80	300	DMF	25	5	200	water immersion
2	25	80	300	NMP	25	5	200	water immersion
3	25	80	300	MC	25	5	200	evaporation

## 3. 결과 및 고찰

기존의 표면오염도를 측정하기 위한 고분자 함침 복합체는 Fig. 1에서 보여지는 바와 같이 손가락 크기의 다공성 구조를 지니거나 (Fig. 1 (a)) 함침된 섬광체가 고분자에 의해 감싸져 있는 형태로 필름 전반에 걸쳐 존재하게 된다 (Fig. 1 (b)). 전자의 경우 필름에 존재하는 기공들이 채취 과정에서 오염물의 내부 흡착을 유도하여 오염물의 채취 공정에서 치밀한 구조의 필름에 비해 상대

적으로 장점을 지니고 있으나, 채취 과정에서 큰 기공을 투과한 오염물이 매체에 존재하는 기공을 통해 채취자에게 전달되는 2차 오염의 문제점이 지적되고 있다. 후자의 경우 높은 표면 거칠기 및 표면에 밀집된 무기섬광체에 의해 오염물과 섬광체의 반응이 증대되어 우수한 측정 효율을 얻을 수 있으나, 분산된 무기섬광체의 함량이 과량으로 존재하여 채취 과정에서 매체가 부서지는 취성을 지니고 있음이 단점으로 지적되어 왔다.

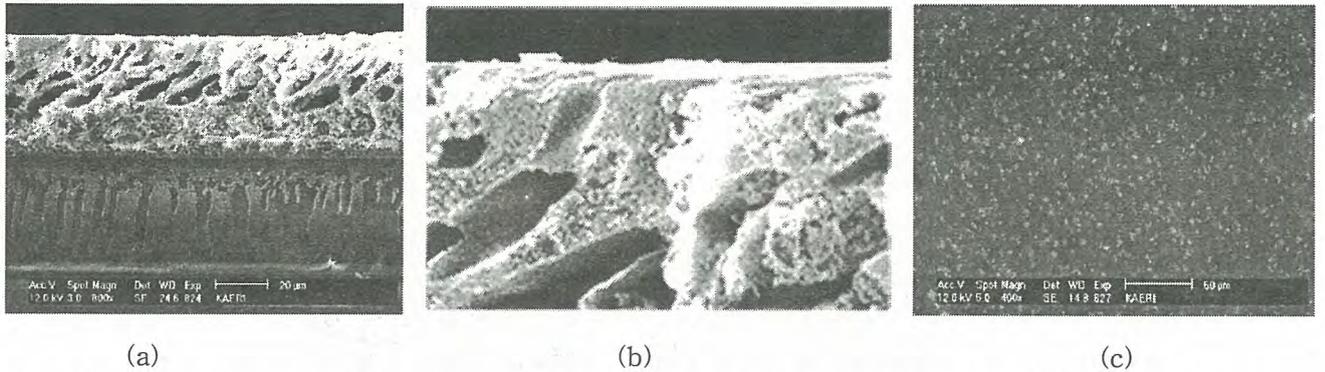
이러한 두 가지 구조의 단점을 보완하기 위해 무정형 고분자의 균일한 유리화를 통해 고형화된 치밀한 구조의 고분자 지지층에 실제 오염물을 탐지하기 위한 활성층을 도포시켜 고형화시킨 이중 구조의 고분자 복합체가 제조되었다. 유리판 위에 PSF와 메틸렌클로라이드로 이루어진 균일한 용액을 제막하여 대기에서 고형화된 지지층 필름은 유리판 위에 고착되어 평균  $45 \pm 5 \mu\text{m}$ 의 일정한 두께를 유지하면서 치밀한 구조를 나타내는 투명성을 소지하고 있다. 온도가 낮고 상대습도가 90%를 넘는 특별한 경우를 제외하고 제막된 용액의 고형화는 메틸렌클로라이드의 증발에 의해 이루어짐으로써 고형화 과정에서 상분리 과정은 일어나지 않는다.



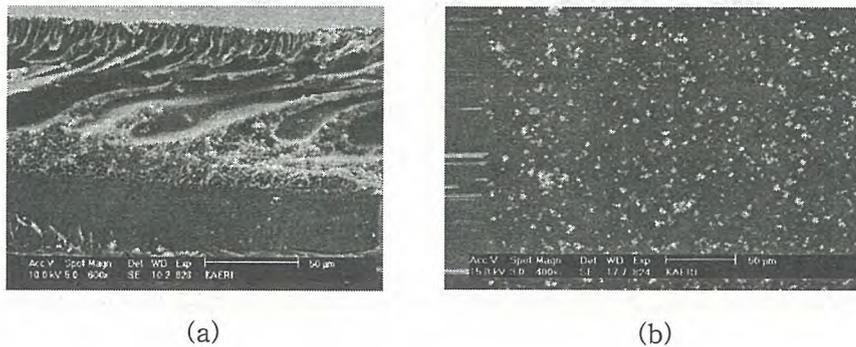
**Fig. 1. Single-layer CAYS-impregnated polysulfone films; prepared by immersion coagulation (a) and by evaporation (b).**

활성층인 상부층 제조를 위해, 디메틸포름아마이드 (DMF)를 용매로 하여 제막하고 물에 침지시켜 제조한 경우, 형성된 고분자 복합 필름은 많은 큰 기공들이 활성층에 분포되어 있음을 보여준다 (Fig. 2 (a)). 이러한 큰 기공들은 필름의 표면의 바로 밑에서부터 필름 내부로 진행하였음을 보여주고 있다 (Fig. 2 (b)). 이러한 큰 기공들은 용액을 비용매 욕조에 침지시켰을 때 표면에서 고형화하면서 생성되는 표면에서의 불균일한 구조에 의해 나타나는 확산의 비균일성에 의해 나타나게 된다. 이러한 기공들은 필름 내부에서만 일어나며 표면에서는 나타나지 않는다. 결과적으로 필름 표면을 확대하여도 표면에서의 기공들은 내부의 기공들과 달리 아주 미세한 형상을 지니므로써 일반적으로 치밀한 형태의 매끈한 형상을 지닌 것으로 보인다 (Fig. 2 (c)). 비용매 침지에 의해 형성된 필름의 매끈한 표면 형상은 상반전 방법을 이용하여 고분자 제막용액을 고형화시켰을 때 일반적으로 나타나는 비대칭형 고분자막의 전형적인 특징이다. 큰 손가락 크기의 기공을 지니는 복합체는 Fig. 1(a)에서 보는 바와 같이 필름의 상부표면으로부터 반대쪽 표면으로 기공이 연결되어 채취 과정에서 2차적 오염의 원인이 될 수 있으나 이중 구조 필름의 경우 지지층에서의 치밀 구조는 이러한 오염 요소를 제거하는 역할을 한다.

비용매로 작용하는 물을 사용하고 활성층 제막 용액의 용매만을 디메틸포름아마이드에서 n-메틸피롤리돈으로 변경하였을 경우, 침지 과정을 통해 형성된 막은 전자를 이용하여 제조한 막과 비슷한 형상을 지니게 된다. 즉, 다공성 구조의 내부 구조와 치밀한 구조의 지지층 및 표면에서의 매끈한 구조를 소지하게 된다 (Fig. 3 (a)와 (b)). 비용매 침지를 통해 제조된 막의 경우 제막용액의 준비 과정에서 고분자의 농도를 감소시키거나 무기첨광체의 양을 증가시켜 제막하여 제조하였을 경우 형성된 막의 내부 구조에서 기공이 증가하는 역할을 할 수 있으나 막의 표면의 거칠기나 표면에서의 겉보기 기공의 모습은 크게 변하지 않는 특성을 보인다.



**Fig. 2. SEM graphs of a CAY-impregnated polysulfone double-layer film prepared by immersion coagulation (DMF as a casting solution solvent); cross-section (a), magnified surface region (b) and top surface (c).**



**Fig. 3. SEM graphs of a CAY-impregnated polysulfone double-layer film prepared by immersion coagulation (NMP as a casting solution solvent); cross-section(a), and top surface(b).**

활성층 제막용액의 용매를 디메틸포름아마이드나 n-메틸피롤리돈과 같이 친수성인 용매를 사용하였을 경우 수분에 의한 영향이 크게 작용하여 다양한 형태의 필름 형상을 제조할 수 있는 장점이 있으나 일반적으로 높은 비등점을 소지함으로써, 필름 전체에 치밀도를 증대시키기 위해서는 고온 진공 하에서 고형화시켜야 하는 것이 단점으로 작용한다. 이에 비해 소수성이며 낮은 비등점을 지니는 메틸렌클로라이드를 용매로 사용하였을 경우 대기 조건 하에서 손쉽게 유리화를 통한 활성층의 고형화가 이루어질 수 있다. 활성층 용매로 메틸렌클로라이드를 사용하여 제막된 용액필

를 대기에서 증발시켜 고형화된 필름이 Fig. 4에 보여 진다. 고형화된 CAYS와 폴리설폰 복합체 필름은 고분자로 이루어진 치밀한 구조의 지지층 위에 기공 없이 상대적으로 균일한 구조의 활성층이 자리 잡고 있음을 보인다. 이러한 구조는 고형화 과정에서 용액이 상분리 현상을 수반하지 않고 고분자 농도 증가에 의한 유리화에 의해 고체로 변형되었음을 확인시켜 준다. 특히, 활성층 표면의 경우 친수성 용매를 사용하여 비용매인 물에 침지시켜 제조된 필름의 표면 형상의 매끈한 특성과 구별되어 표면의 표면 거칠기가 뚜렷하게 증가하였음을 나타내고 있다. 이러한 형상은 용매의 증발에 의해 급격히 필름 내부로 침잠하는 폴리설폰에 비해 무기섬광체의 용매에 대한 비용해성 또는 열역학적 비호환성으로 인한 섬광체의 상대적 움직임의 저하에 의해 나타나게 된다. 이러한 표면거칠기의 증대는 무기섬광체의 필름에서의 함량에 함께 증가하게 됨을 보인다.

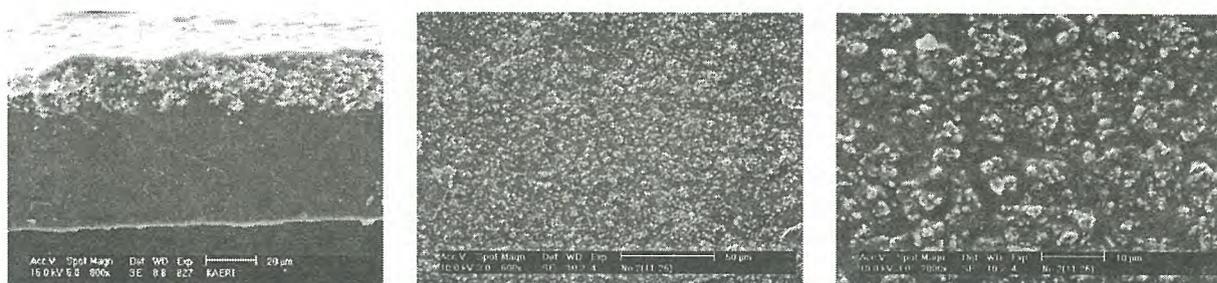


Fig. 4. SEM graphs of a CAY-impregnated polysulfone double-layer film prepared by evaporation coagulation (MC as a casting solution solvent); cross-section (left), top surface (middle) and magnified top surface (right).

제조된 고분자 복합체의 탐지 특성을 평가하기 위해 저준위 알파/베타 계수기를 이용하여 복합체에 도포된 방사성핵종의 에너지를 정량하였다. Table 2에 보이는 바와 같이 디메틸포름아미드를 이용하여 물속조에 침지시켜 상반전 공정을 거쳐 제조된 필름과 메틸렌클로라이드의 증발을 통해 제조된 막의 경우 비슷한 탐지 특성을 소지하고 있음을 보였다. 이러한 탐지 특성은 오염지역에서의 채취 과정을 포함하지 않은 것으로 실제 채취 과정에서 복합체에 흡착하는 오염물의 양에 따라 달라질 수 있다. 특히, 기공도가 높은 복합체의 탐지특성은 실제 측정에서 섬광 소멸효과에 따른 효율 감소가 예상되며 이에 대해서는 계속 연구를 수행할 예정이다.

Table 2. Radionuclide detection of CAYS-impregnated membranes

Second casting solution	Coagulation method	CPM
PSF/DMF/CAYS	water	223.8
PSF/MC/CAYS	evaporation	230.4

#### 4. 결론

무기 섬광체인 CAYS가 함침된 폴리설폰 용액을 고형화시킴으로써 방사성 핵종의 탐지 능력을 지닌 고분자 측정 복합체를 제조하였다. 두 차례의 제막 과정을 거쳐 제조된 복합 필름은 뚜렷하게 구분되고 완전히 결합된 2중구조를 지니며, 막에 기계적 안정성을 부여하는 치밀한 구조의 순수 고분자 지지체와 방사능 측정 CAYS가 함침된 방사성핵종 탐지지역으로 구성되었다. 두 지역 사이의 완전한 결합은, 비용매 육조에 침지되어 고형화된 측정 복합막에서, 연결 부분에 나타나는 고분자 용액의 액체-액체 상분리를 포함하며 고형화된 스폰지 형태의 형상에서 확인되었다. 2차 제막 용액의 고형화 경로에 따라 다공성 구조 또는 치밀한 구조로 구분될 수 있으며, 방사능 오염도를 평가하는데 신뢰할 수 있는 탐지 특성을 보였다. 용매를 증발시켜 유리화를 통해 고형화시켜 제조된 필름은 물에 침지되어 형성된 필름에 비해 섬광소멸효과가 적게 나타났으며, 이는 필름 내부에 형성된 기공 형상의 차이에 관련된 것으로 해석되었다.

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

#### 참고문헌

1. U.S. Nuclear Regulatory Commission, "Radiation Safety Surveys at Medical Institutions", Washington DC, NRC Regulatory Guide 8. 23, Rev. 1, January 1981.
2. R. C. Klein, L. Linins, and E. L. Gershey, "Detecting removable surface contamination", Health Phys. Soc., 62, 186 (1992).
3. S.W. Wunderly and J.F. Quint, US Patent 4,916,320, April 10 (1990).
4. K. A. Schellenberg, US Patent 4,562,158, December 31 (1985).
5. L. F. Costa, D. C. Harrington, and R. S. Miller, US Patent 4,692,266, September 8 (1987).
6. C. G. Potter and G. T. Warner, "Scintillation counting of harvested biological samples with low energy beta emitters, using solid scintillant filters", In H. Ross, J.E. Noakes, and J.D. Spaulding (Eds.), Liquid Scintillating Counting and Organic Scintillators, Chelsea, Michigan, Lewis Publishers, 1991.
7. M. J. Han, P. M. Bummer, and M. Jay, "Solid scintillation proximity membranes I. Characterization of polysulfone-inorganic fluor morphologies precipitated from NMP solutions", J. Membrane Sci., 140, 235 (1998).
8. M. J. Han, P. M. Bummer, and M. Jay, "Solid scintillation proximity membranes. II. Use in wipe test assays for radioactive contamination", J. Membrane Sci., 148, 223 (1998).
9. 이근우, 서범경, 박진호, 남석태, 한명진, Membrane Journal, 12(4), 240-246 (2002).

## Thermal Behavior of the Nuclear Graphite Waste Generated from the Decommissioning of the Nuclear Research Reactor

연구로 해체시 발생하는 흑연폐기물의 열적 거동

Hee-Chul Yang, Hee-Chul Eun, Dong-Gyu Lee, Yong-Jun Cho, Young-Ae Kang,  
Keun-Woo Lee, and Won-Zin Oh

Nuclear Fuel Cycle R&D Group, Korea Atomic Energy Research Institute, Korea

양희철, 은희철, 이동규, 조용준, 강영애, 이근우, 오원진

한국원자력연구소 핵화공연구부

### Abstract

This study investigated the thermal behavior of the nuclear graphite waste generated from the decommissioning of the Korean nuclear research reactor. The first part study investigated the decomposition rate of the nuclear graphite waste up to 1000 °C under various oxygen partial pressures using a thermo-gravimetric analyzer (TGA). Tested graphite waste sample not easily destroyed in the oxygen-deficient condition. However, the gas-solid oxidation reaction was found to be very effective in the presence of oxygen. No significant amount of the products of incomplete combustion was formed even in the limited oxygen concentration of 4% O<sub>2</sub>. The influence of temperature and oxygen partial pressure was evaluated by the theoretical model analysis of the thermo-gravimetric data. The activation energy and the reaction order of graphite oxidation were evaluated as 128 kJ/mole and 1.1, respectively. The second part of this study investigated the behavior of radioactive elements under graphite oxidation atmosphere using thermodynamic equilibrium model. <sup>22</sup>Na, <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs were found be the semi-volatile elements. Since volatile uranium species can be formulated at high temperatures above 1050 °C, the temperature of incinerator furnace should be minimized. Other corrosion/activation products, fission products and uranium were found to be the non-volatile species.

**Key Words** : irradiated graphite waste, incineration, thermogravimetric analysis, thermodynamic equilibrium model

### 1. Introduction

Graphite has been used as a moderator and reflector of neutrons in many nuclear

reactors. The old graphite moderated reactors are already shut down and therefore a huge amount of radioactive graphite waste is generated. The radioactive graphite waste has different characteristics compared to other radioactive waste due to its physical and chemical properties. It includes various radionuclides such as tritium and  $^{14}\text{C}$ , as well as corrosion/activation products ( $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ;  $^{54}\text{Mn}$ ;  $^{59}\text{Ni}$ ;  $^{63}\text{Ni}$ ;  $^{22}\text{Na}$ ), fission products ( $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{C}$ ;  $^{90}\text{Sr}$ ;  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ) and small amount of uranium and transmutation elements ( $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ;  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$ )[1]. Therefore the development planning of an appropriate treatment technology for the waste nuclear graphite has to consider the safe management of these radioactive elements included in the graphite waste, as well as the volume reduction with an economic point of view.

The decommissioning of the research reactors (KRR-1&2) in Korea, which started in 1997, generated 3 tones of radioactive graphite waste[2]. The current status of the processing technologies has been analyzed to select an appropriate management system for the radioactive graphite generated from the decommissioning of KRR-1&2. Although the existing processing technologies are based mostly on the isolation of radioactive graphite from the environment, they are not able to provide for a significant volume reduction[1]. For this reason, the high-temperature thermal treatment process such as an incineration is considered as a promising technology, since it provides a substantial volume reduction.

This study investigated the thermal destruction characteristics of irradiated graphite waste from KRR 1&2 (Korea Research Reactor 1&2) and the behavior of the radioactive elements during the graphite incineration atmosphere. The purpose of this study is to get some kinetic data that are required to design a thermal treatment furnace such as an incinerator and to know the behavior of radioactive elements that are required to design off-gas system for graphite thermal treatment system.

## 2. Oxidative Decomposition Characteristics of Nuclear Graphite

### 2.1. Kinetic Model

The influence of temperature and that of the partial pressure of oxygen on the oxidation reaction of graphite can be described with an Arrhenius equation and a power law approach, respectively[3]. The reaction rate of the high-temperature oxidation of the graphite is thus described as:

$$\frac{dX}{dt} = k_0 (P_{O_2})^n \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) f(X) \quad (1)$$

$$X = \frac{w_0 - w(t)}{w_0 - w_{ash}} \quad (2)$$

The function  $f(X)$  represents the influence of the conversion on the conversion rate. The most simple of these equations is:

$$f(X) = (1 - X)^\beta \quad (3)$$

in which  $\beta = 1$  represents a homogeneous reaction model and  $\beta = (2/3)$  a shrinking core reaction model. In the case of a non-isothermal reaction and the applied heating rates are

constant the temperature can be expressed as:

$$T = Bt + T_0 \quad (4)$$

The constant ramp, B, is given as:

$$\frac{dT}{dt} = B \quad (5)$$

Using this transformation equation 1 can be rewritten as:

$$\frac{dX}{dT} = \frac{k_0}{B} (P_{O_2})^n \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) f(X) \quad (6)$$

Separation of variables results in:

$$\frac{dX}{f(X)} = \frac{k_0}{B} (P_{O_2})^n \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) dT \quad (7)$$

which can be rewritten as:

$$F(X) = \frac{ZE}{BR} p(y) \quad (8)$$

in which:

$$F(X) = \int \frac{1}{f(X)} dX \quad (9)$$

and:

$$Z = k_0 (P_{O_2})^n \quad (10)$$

In Equation (8), p(y) is a function of the temperature following from the temperature integral on the right hand side of Equation (7), which can be approximated as:

$$\ln[p(y)] = -2.315 - 0.457 \frac{E}{RT} \quad (11)$$

The activation energy of the reaction, at different levels of conversion, can now be determined by:

$$E = \frac{-R}{0.457} \left( \frac{d \log B}{d\left(\frac{1}{T}\right)} \right) \quad (12)$$

Once the activation energies have been calculated, equation (8) can be used, both to find the conversion model (f(x)) as well as the Z-values, which are different for each oxygen partial pressure. The reaction order with respect to oxygen partial pressure, n, can be calculated as the slope from a graph of the logarithmic of Z versus the logarithmic of the oxygen partial pressure[4].

## 2.2. Materials and Methods

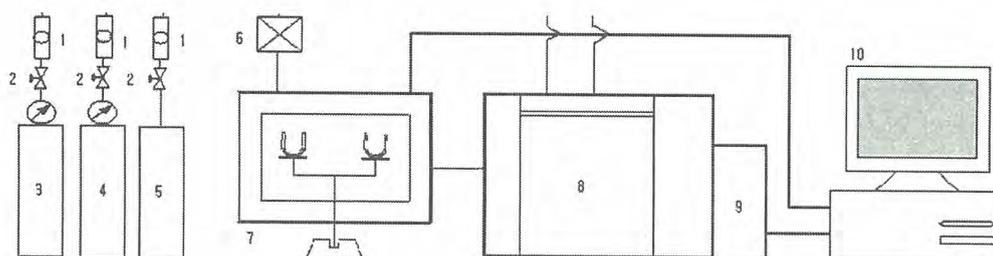
Sample graphite material was obtained from the neutron-modulating graphite rods used in Korea Research Reactor 1&2. It is one of the standard nuclear graphite. The analyzed compositions of graphite sample are shown in Table 1. The sample graphite was analyzed to

contain over 99.99% carbon, 190 ppm chlorine and about 20 ppm ash.

Experimental system, which is shown in Figure 1, consists of a gas conditioning system, a thermo-gravimetric furnace system (SDT-6120, TA instruments) and a gas chromatography (HP-5890II) - mass spectrometer system (HP-5972). After the powdered sample graphite in the size range of 47-106  $\mu\text{m}$  was placed in the thermo-balancer, the conditioning gas was fed and the furnace was heated to 1000  $^{\circ}\text{C}$ .

**Table 1. The compositions of sample nuclear graphite (dry weight basis)**

Proximate analysis	Volatile matter		Fixed carbon		Ash
	2.2%		99.8%		<500ppm
Ultimate analysis	C	H	O	N	Cl
	>99.98%	<0.001%	<0.001%	-	190ppm



1. flow meter 2. valve 3. O<sub>2</sub> 4. N<sub>2</sub> 5. He 6. gas mixer 7. TGA 8. GC-MS

**Figure 1. A schematic diagram of experimental system.**

The first investigated variable is oxygen percent of conditioning gas. The tested oxygen percents were selected as 4%, 12%, 21% 100% and <0.1% with remainder consisting of pure nitrogen. Other investigated variables are the rate of heating and the size of graphite sample. At each tested gaseous atmosphere, sample graphite was heated up to 1000  $^{\circ}\text{C}$  with a heating rate of 3  $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ , 20  $^{\circ}\text{C}/\text{min}$  and 100  $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ . The compositions of furnace off-gas under various gaseous atmospheres were also analyzed using GC-MS system.

### 2.3 Thermal Behavior of Nuclear Graphite

The behaviors of sample graphite up to 1000  $^{\circ}\text{C}$  in various atmospheric gaseous conditions and at three different heating rates are shown in Figures 2. The decomposition reaction started at about 450  $^{\circ}\text{C}$ , 500  $^{\circ}\text{C}$  and 600  $^{\circ}\text{C}$  at a heating rate of 3  $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ , 20  $^{\circ}\text{C}/\text{min}$  and 100  $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ , respectively. The heating rate did not influence the decomposition rate but the oxygen concentration greatly influenced the decomposition rate of sample graphite. In the oxygen-deficient condition (N<sub>2</sub>>99.9%), the weight loss of graphite up to 1000  $^{\circ}\text{C}$  was extremely small, regardless of

the tested heating rate. Total weight loss of graphite up to 1000 °C in the oxygen deficient atmosphere did not exceed 2%. This suggested that the tested nuclear graphite is very thermally stable under oxygen-deficient condition. The flue gas compositions measured by GC-MS were in agreement with this suggestion. Only two carbon-containing species were detected during the weight loss of sample nuclear graphite. Less than 900 ppm of CO<sub>2</sub> and about 420 ppm of C<sub>3</sub>H<sub>4</sub> were detected by the gas analysis during the weight loss of graphite sample in 99.9% N<sub>2</sub> condition. No other carbon-containing species was detected as a decomposed or volatilized species even under this oxygen-deficient condition. A trace amount of oxygen and water vapor adsorbed in the inner graphite structures or those in the flowing N<sub>2</sub> gas (>99.9% N<sub>2</sub>) could react with graphite to form CO<sub>2</sub> and C<sub>3</sub>H<sub>4</sub>. However, the weight loss of graphite in the 99.9% N<sub>2</sub> atmosphere was very small. Tested graphite did not easily destructed in the oxygen-deficient condition. It is therefore noted that the pyrolysis of tested graphite in the absence of oxygen is practically impossible.

However, the oxidation reaction in the presence of oxygen was found to be effective and no significant amount of the products of incomplete combustion (PICs) was found even in the limited oxygen concentration of 4% O<sub>2</sub>. No carbon monoxide was found and less than 100 ppm of C<sub>3</sub>H<sub>4</sub> was emitted in this oxygen-limited condition, regardless of the heating rate. The measured BET surface area of tested graphite powder was 7.996 m<sup>2</sup>/mg. This large surface area can afford to complete reaction with gaseous oxygen through gas-solid incineration mechanism and therefore no significant amount of PICs is generated. It could therefore be positively said that the direct incineration would be easily applied to reduce the volume of graphite waste.

## 2.4 Kinetic Analysis

Two tests with a heating rate of 8 °C/min and 13 °C/min were additionally performed in the air atmosphere (21% O<sub>2</sub>). The weight loss per unit time in the air, which is proportional to the rate of graphite oxidation reaction, is plotted in Figure 3 as a function of temperature. The increase in heating rate causes the reaction rate curves to shift toward higher temperatures. It is found that the heating rate is the important factor in determining the initiation temperature of decomposition reaction. This also suggests that the kinetic parameters at low heating rates could not be properly applied to the real incinerator in which fed waste is heated at a much higher heating rate.

The reaction rates shown in Figure 3, together with equation (12), were used to determine activation energy, as given in Figure 4. Figure 4 shows a series of lines created from the four curves in Figure 3. If the decomposition mechanisms were the same at all conversion levels, the lines would all have the same slope. This is the case here. The determined activation energy calculated from the slope in Figure 4 using equation (12) is 128 kJ/mol. This process was repeated for different O<sub>2</sub> % conditions and the similar results were obtained.

Assuming that the reaction follows first-order reaction, F(X) versus p(y) for 21% O<sub>2</sub> condition is plotted in Figure 5. From the obtained slopes in Figure 5, Z value was obtained. This process was also repeated for different O<sub>2</sub> % conditions, and finally the reaction order was determined from the intercept and the slope in Figure 6. The reaction order of the graphite oxidation was evaluated as 1.1.

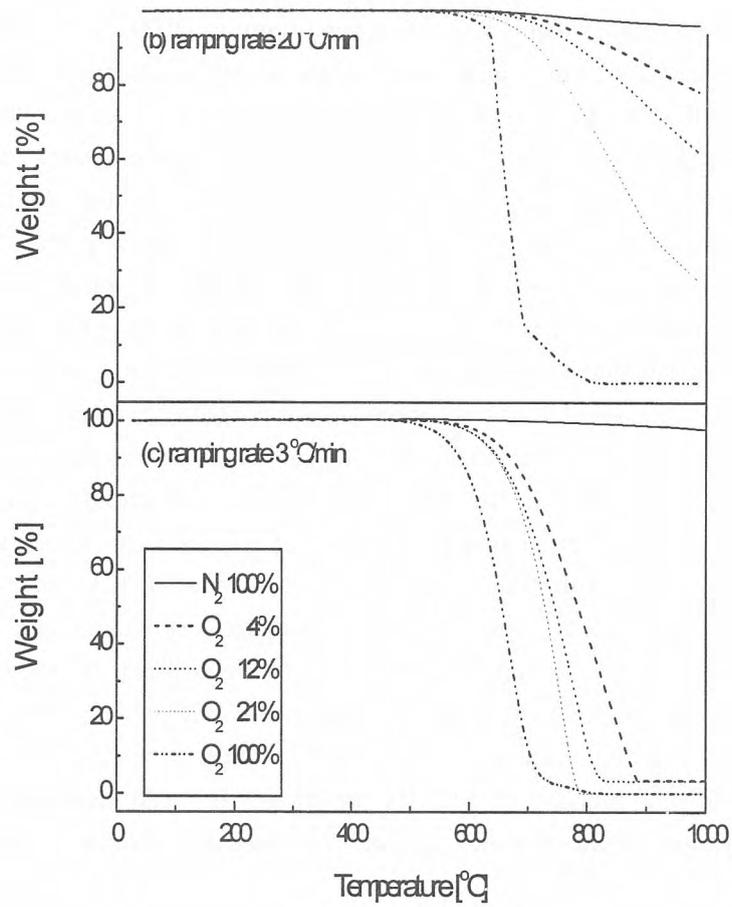


Figure 2. The weight loss of nuclear graphite at various heating conditions.

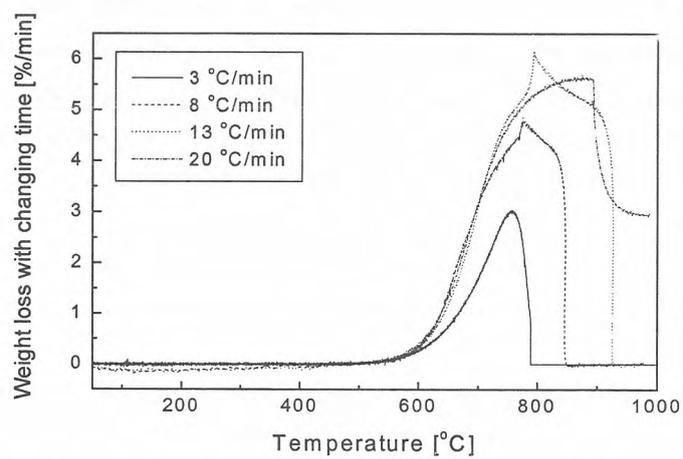


Figure 3. Weigh loss patterns of nuclear graphite in an atmospheric air condition.

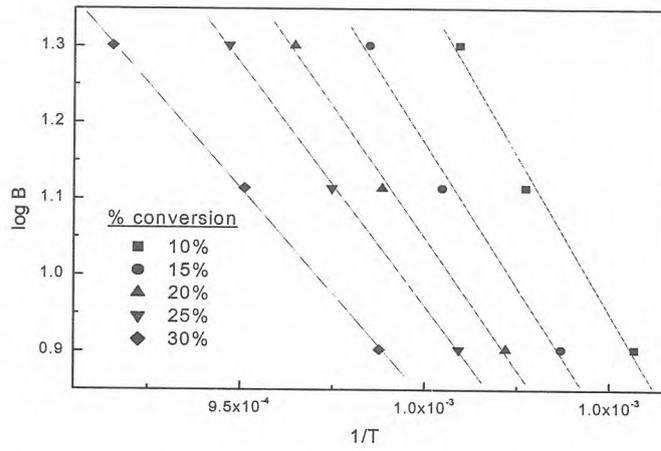


Figure 4. Calculation of activation energy for graphite oxidation.

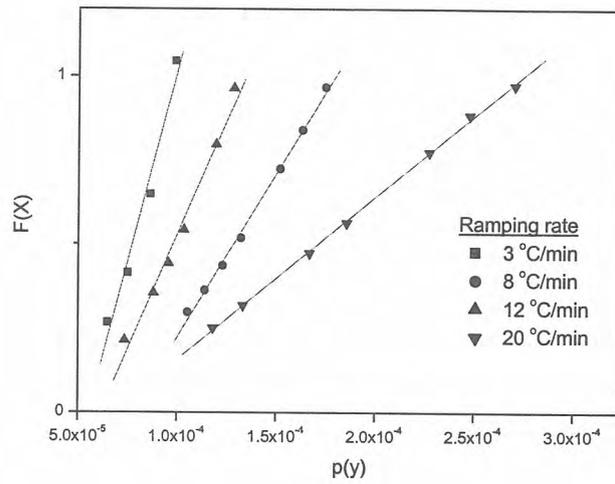


Figure 5. Plot of  $F(X)$  versus  $p(y)$  assuming first order reaction.

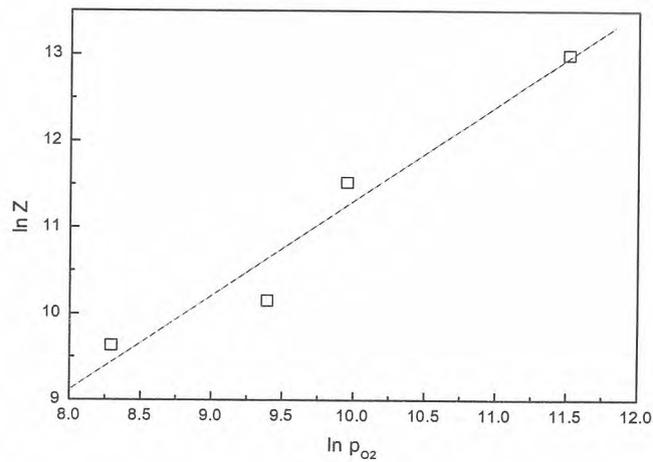


Figure 6. Estimation of reaction order of graphite oxidation.

### 3. Thermal Behavior of Radioactive Elements

#### 3.1 Radionuclide Partitioning Model

As discussed, incineration is found to be an attractive of treating nuclear graphite. However, for safety reasons during incineration, and because of environmental impact of the incinerator, it is important to know how the radioactive elements in the graphite waste partitioned between the incinerator furnace, the fly ash, and the stack emission[5]. The model analysis on the radionuclide partitioning during incineration is based on following two simple assumptions:

1. Thermodynamic equilibrium is maintained in the incinerator furnace.
2. All radioactive species present in the waste or vapor-phase element in the off-gas are intimately mixed.

Equilibrium model calculations using a computer code Chemkin 3.6 were performed to observe the behavior of radioactive elements at the temperature range of 700-1300 °C[6]. Graphite incineration furnace atmosphere was simulated to be 12% O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O 4%, CO<sub>2</sub> 5%, 100ppm Cl<sub>2</sub> and the remainder consisting of N<sub>2</sub>, considering graphite composition.

#### 3.2. Behavior of Corrosion/Activation Products

The equilibrium distributions of investigated corrosion/activation products are shown in Figure 7. Sodium (<sup>22</sup>Na) was found to be volatile radioactive elements under the graphite incineration atmosphere. Sodium converts into sodium chlorides (NaCl) in the presence of chlorine. Since the nuclear graphite waste includes a significant quantity of chlorine, sodium species may convert into NaCl(g) in the incinerator furnace. Gas-phase NaCl subsequently condense out into fly ash particles as the off-gas cools down to the dew point temperature of NaCl. Other investigated corrosion or activation products, such as <sup>54</sup>Mn, <sup>57</sup>Co, and <sup>63</sup>Ni, which are included in the nuclear graphite waste, are present as non-volatile species up to 1300 °C under the graphite combustion atmosphere.

#### 3.3. Behavior of Fission Products

The equilibrium distributions of investigated fission products are shown in Figure 8. Cesium (<sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs) was found to be volatile radioactive elements under the graphite incineration atmosphere. The behavior of cesium is similar to that of sodium. Cesium converts into cesium chloride (CsCl) in the presence of chlorine. Gas-phase CsCl condenses out into fly ash particles as the off-gas cools down to the dew point temperature of CsCl. Other investigated fission products, such as <sup>90</sup>Sr, <sup>152</sup>Eu, and <sup>144</sup>Ce is present as non-volatile species up to 1300 °C under the graphite combustion atmosphere. The behavior of strontium species is very interesting. The most stable strontium species is strontium carbonate (SrCO<sub>3</sub>) up to 1000 °C. At higher temperatures, it converts into the strontium oxides. Some gas-phase strontium hydroxide can be formed at the temperatures above 1100 °C, but its fraction is negligible.

#### 3.4. Behavior of Uranium and Transmutation elements

The equilibrium distributions of uranium, plutonium and americium are shown in Figure 9. The most stable species of each element are found to be UO<sub>3</sub>, PuO<sub>2</sub>OH, and AmO<sub>2</sub> at relatively low temperatures. These species convert to each of their high-temperature stable oxides such as UO<sub>2</sub>, PuO<sub>2</sub> and Am<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, as the temperature increases. One volatile uranium species is found as UO<sub>3</sub>(g) at the temperatures above 1050 °C and its fraction increases greatly as the temperature increases. It is therefore noted that temperature of graphite incineration furnace should be maintained as low as possible.

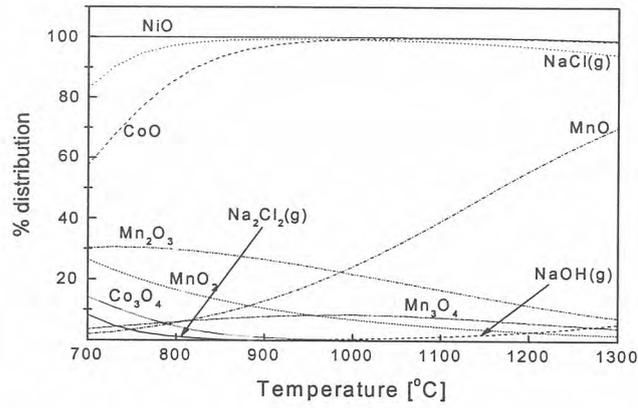


Figure 7. Equilibrium distribution of corrosion/activation products under graphite incineration atmosphere.

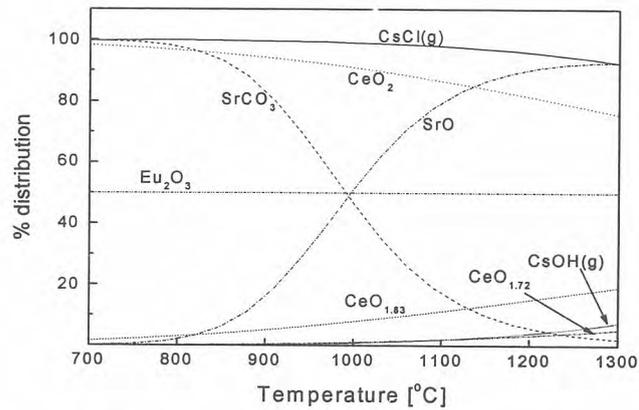


Figure 8. Equilibrium distribution of fission products under the graphite incineration atmosphere.

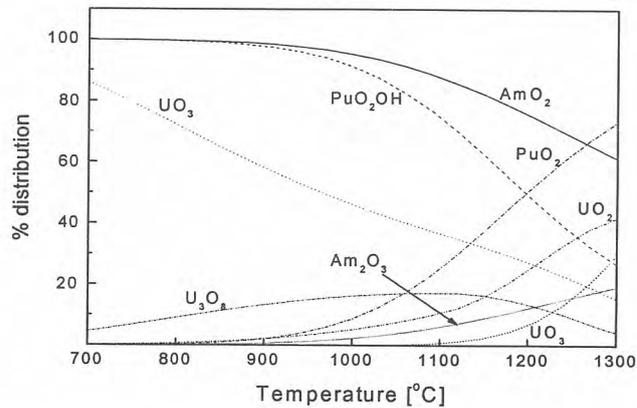


Figure 9. Equilibrium distribution of uranium and transmutation elements under the graphite incineration atmosphere.

## 4. Conclusions

Tested nuclear graphite waste was not easily destroyed in the oxygen-deficient condition. However, the oxidation reaction was found to be very effective in the presence of oxygen. No significant amount of the products of incomplete combustion was formed even in the limited oxygen concentration of 4% O<sub>2</sub>. It could therefore be positively said that the gas-solid contacting oxidation would be very effective to reduce the volume of nuclear graphite waste. The influence of temperature and oxygen partial pressure was evaluated by the theoretical model analysis of thermo-gravimetric data. The activation energy and the reaction order of the graphite oxidation were evaluated as 128 kJ/mol and 1.1, respectively. Thermodynamic equilibrium model analysis shows that <sup>22</sup>Na, <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs will be partitioned in the fine fly ash particles in the graphite incineration process. It is therefore noted that an effective collection system of these semi-volatile radioactive metal species as well as that of permanent gases such as tritium and <sup>14</sup>C should be installed in the graphite incineration process. Other radioactive elements in the graphite waste were found to be present as non-volatile species under the graphite waste incineration atmosphere. However, since volatile uranium species can be formulated at high temperatures above 1050 °C, the temperature of incinerator furnace should be minimized.

### List of Symbols

<i>B</i>	heating rate [K s <sup>-1</sup> ]	<i>E</i>	Activation energy [J mol <sup>-1</sup> ]
<i>K</i>	reaction rate constants [s <sup>-1</sup> Pa <sup>-n</sup> ]	<i>n</i>	order of reaction [-]
<i>w<sub>0</sub></i>	initial mass of graphite [g]	<i>P<sub>O<sub>2</sub></sub></i>	oxygen partial pressure [Pa]
<i>R</i>	Universal gas constant [J mol <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ]	<i>r</i>	rate of reaction [s <sup>-1</sup> ]
<i>T</i>	Temperature [K]	<i>X</i>	Conversion [-]
<i>y</i>	Dimensionless variable in equation (8) [-]	<i>β</i>	Constant in Wen's model [-]

### Acknowledgement

This work has been performed under the Nuclear R&D program by MOST.

### References

- [1] International Atomic Energy Agency, Summary. Proc. of the Technical Committee Meeting on the Nuclear Graphite Waste Management, IAEA, pp. 1-2, 1999.
- [2] K. J. Jung, et al., Decommissioning Plan of Korea Research Reactor 1&2, KAER/TR-1654, 2000.
- [3] Siddhartha Gaur and Thomas B. Reed, An Atlas of Thermal Data for Biomass and Other Fuels, NREL/TP-433-7965, NREL, USDOE, pp. 10-11 1995.
- [4] Richard Capart, Lotfi Khezami, Alan K. Burnham, Assessment of various kinetic models for pyrolysis of a microgranular cellulose, Thermochemica Acta, 417, 79, 2004.
- [5] H. C., Yang, J. H., Lee, J. G., Kim, J. H., Yoo, and J. H., Kim, Behavior of Radioactive Metal Surrogates Under Various Waste Combustion Conditions, J. of the Korean Nuclear Society, 34, 1, pp. 80-89, 2002.
- [6] R. J., Kee, F. M. Rupley, J. A. Miller, M. E. Coltrin, J. F. Grcar, E. Meeks, H. K. Moffat, A. E. Lutz, G. Dixon-Lewis, M. D. Smooke, J. Warnatz, G. H. Evans, R. S. Larson, R. E. Mitchell, L. R. Petzold, W.C., Reynolds, M. Caracotsios, W. E. Stewart, and P. Glarborg, CHEMKIN Collection, Release 3.5, Reaction Design, Inc., San Diego, CA, 1999.

**제1분과 (A)**  
**방사성폐기물 정책 및 제염해체**  
**(Poster)**

빈 면

## 해체 금속폐기물의 처리 방안 연구

### Study on Treatment Method of the Dismantled Metallic Wastes

최왕규, 송평섭, 김학이, 이성렬, 정종현, 오원진  
한국원자력연구소

#### 요 약

국내 TRIGA Mark II & III 및 우라늄 변환시설 해체시 다량의 금속폐기물 발생이 예상되며, 현재 이러한 저준위 방사성 금속폐기물을 처리, 재활용하는 기술들에 대한 연구가 국·내외적으로 활발히 수행 중에 있다. 이에 본 연구에서는 해체시 발생하는 금속폐기물의 효율적인 감용 및 재활 용에 관한 국내외 처리 기술을 검토하여 국내 TRIGA Mark II & III 및 우라늄 변환시설에서 발생하는 해체 금속폐기물의 처리 방안을 수립하기 위한 정보를 제공하고자 한다.

#### 1. 서 론

전 세계적으로 산재해 있는 수많은 원자력시설은 수십년안에 한계수명에 도달하게 되고 궁극적으로 해체단계를 맞이하게 될 것이다. 실제로 OECD/NEA 자료에 의하면, 향후 50년 동안 원자력 시설 해체시 발생하는 금속폐기물(도는 조각금속)의 양은 약 3,000만 톤 정도가 될 것으로 추정하고 있다. 만약 이러한 금속을 모두 회수하여 재사용 할 수만 있다면 100~150억 달러(미국 조각금속 산정기준)의 가치가 있을 것으로 평가된다.

국내 연구로 1, 2호기와 우라늄 변환 시설의 경우 해체시 발생하는 금속폐기물은 구조재, 배관재 등을 포함하여 수십 톤 이상이 될 것으로 예상되며, 대부분의 금속폐기물은 적절한 처리를 통하여 감용 및 재활이 가능할 것으로 예측된다.

따라서, 본 연구에서는 귀중한 자원의 절약과 처분비용 절감 차원에서 금속성 해체 폐기물의 효율적인 처리 기술 현황을 심도 있게 고찰하여 당면한 국내 원자력연구시설 해체시 발생하는 해체 금속성 폐기물의 처리 방안을 수립 하고자 한다.

#### 2. 해체 방사성 금속폐기물의 발생현황

국내 연구로 1, 2호기 및 우라늄 변환시설에서 배출되는 방사성 고체폐기물 중에 금속폐기물의 양을 보면, 1호기에서 21.53m<sup>3</sup> (12.9%), 2호기에서 51.91m<sup>3</sup> (11.5%), 우라늄 변환시설에서 160.6m<sup>3</sup> (38.5%)를 차지하고 있으며, 재질은 주철을 포함한 철재, SUS, 알루미늄 등이다.

#### 3. 해체 금속폐기물의 처리 기술

현재 국내·외적으로 적용되고 있는 해체 금속폐기물의 처리 기술은 압축(Compaction)과 용융 기술(Melting)로 구분할 수가 있다.

압축기술은 폐기물에 고압을 가하여 폐기물의 총 부피와 공극을 감소시키는 기술이며,

compaction과 balling 기술 모두 원자력산업에 실제 이용되고 있다. 압축기술의 장점을 보면 단순하며, 고장이 적고, 가격이 저렴한 반면에 유해물질을 함유한 폐기물의 처리에 부적합하고, 저공극도와 고밀도의 폐기물에 부적합하다.

용융기술은 금속폐기물을 제염하는데 효과적인 기술이며, 재활용 및 재사용 방안에 도움을 주는 구성요소이다. 또한, 잔류 방사능이 주피의 전 부분에 걸쳐 균일하게 되므로 방사성 금속 특성화를 단순화하고, 접근 불가능한 표면과 연관된 어려움을 제거한다. 결과적으로 용융은 복잡한 기하학적 구조를 가진 요소들의 제염에 있어서 가장 마지막 단계의 역할이라 할 수 있다.

금속폐기물의 감용비를 보면, 용융(1), Super Compaction(2), 비처리시(5~7)로 금속폐기물의 감용비가 큰 이점을 가지고 있음을 알 수 있으며, 미국(WINCO), 프랑스(CEA), 일본(JAERI) 등에서는 연구개발 및 상용화 단계에 있다.

#### 4. 결 론

영구 처분장이 확보되어 있지 않은 국내의 경우, 현재 발생하는 중·저준위 해체 금속폐기물은 압축 또는 분쇄 후 저장관리하고 있으나, 총 저장량의 50%를 넘어 앞으로 10년 정도면 저장시설이 모두 포화될 것으로 예상된다. 또한, 국외의 경우도 천층 처분이나 동굴 처분 등의 저장관리를 하고 있으나 처분 부지 선정에 어려움을 겪고있으며, 처분단가가 증가하는 점들을 고려할 때, 2차 오염이 적고, 모든 폐기물에 적용 가능하며, 폐기물 재활용 가능성 및 감용율이 높은 용융기술 개발이 필요한 시점이다.

이미 선진국에서는 실험 개발 및 상용화 단계에 있으므로 국내에서도 원자력시설의 해체시 다량으로 발생하는 금속성 해체폐기물 감용 및 재활용을 위한 용융기술 개발이 시급하다.

#### 5. 참고문헌

1. 박종길 외, 저준위 방사성폐기물 유리화에 관한 타당성 분석, '95 추계학술발표회 논문집, 한국원자력학회, (1995)
2. 유리화시설의 안전성평가 방법에 관한 연구, 연세대학교 환경과학 기술연구소, (2001)
3. 연구로 1, 2호기(TRIGA MARK-II, III)의 해체 방사성 고체폐기물 처리방안, 한국원자력연구소, (1999)
4. 우라늄 변화시설 환경복원사업 해체 계획서, 한국원자력연구소, (2003)
5. 해외의 금속성 방사성폐기물 재활용 기술 현황분석, 한국원자력연구소, (2002)
6. T. Umeda, The development of metal recycling technology for decommissioning waste, WM'01 Conference, February 25-March 1, (2001)

## **Selective Adsorption of Uranium Ions in High Concentration of Chemical Salts**

**ChongHun Jung, HuiJun Won, GyeNam Kim, WangKyu Choi, WonZin Oh**

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

A study on the selective adsorption of uranium(VI) from a high concentration of chemical salts has been performed to investigate the uranium removal mechanisms and the application conditions of the electrosorption technique using the activated carbon fiber (ACF) as a good conductive electrosorption adsorbent. Electrosorption tests were carried out using an electrochemical cell. A negative DC charge in the range of  $-0.3$  to  $-0.9$  V was applied onto the ACF electrode using a potentiostat (EG&G Model 273). The measurements of electrical double layer capacitance were performed by the galvanostatic pulse method ( $0.1$  mA). X-ray analysis of uranium adsorbed onto ACF was made on an XRD unit (Siemens D5000) using CuK $\alpha$  single crystal. The surface morphology of ACF after electrosorption was examined by scanning electron microscopy (JEOL Co. JSM 5410).

The selective adsorption of U ions in the Na $^+$ , Ca $^{2+}$ , and NH $_4^+$  cations could be obtained when a potential of  $-0.9$  V is applied to the ACF electrode. For a feed concentration of 100 mg/L, the concentration of U(VI) in the cell effluent is reduced to less than 1 mg/L. The selective adsorption of U ions is due to their higher charge density than that of the Na $^+$ , Ca $^{2+}$  and NH $_4^+$  cations. It shows that the external negative potential applied on the ACF electrode has a great impact on the adsorption capacity of the ACF and controls the uranium sorption rate.

One gram of ACF used for this study with a specific surface area of 1536 m $^2$ /g and a double layer capacitance of 30 F/g can adsorb and desorb about 74 mg U/g ACF with a changed potential of 1 V. This value is rather small compared to the observed capacity of 690 mg U/g ACF. Therefore it is expected that some reactions other than adsorption by the double layer charging may occur during electrosorption of the uranium.

A sample of uranium adsorbed was examined by X-ray diffraction and SEM analysis. From SEM analysis of ACF after electrosorption, uranium precipitate having a yellow color on the ACF has been observed. This uranium precipitate may be identified as metaschoepite in the form of UO $_3 \cdot 2$ H $_2$ O by identification of the diffraction peaks using a combination of computer and manual searches of JCP2. This electrochemically induced uranium precipitation

may explain the high electrosorption capacity.

Based on the above results, electrosorption behaviors for U(VI) at negative potentials is considered to be the result of a double layer charging, ion exchange sorption and an electrochemical precipitation of the uranyl ions.

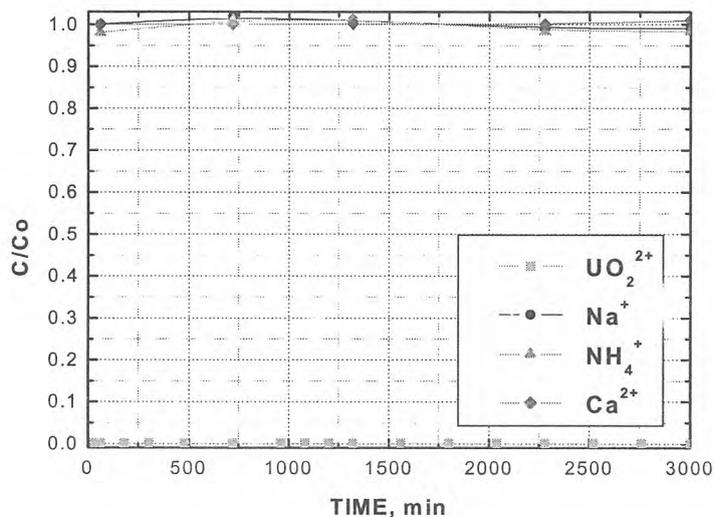


Figure 1. Electrosorption of U(IV) in multi-component salts medium at -0.9V.

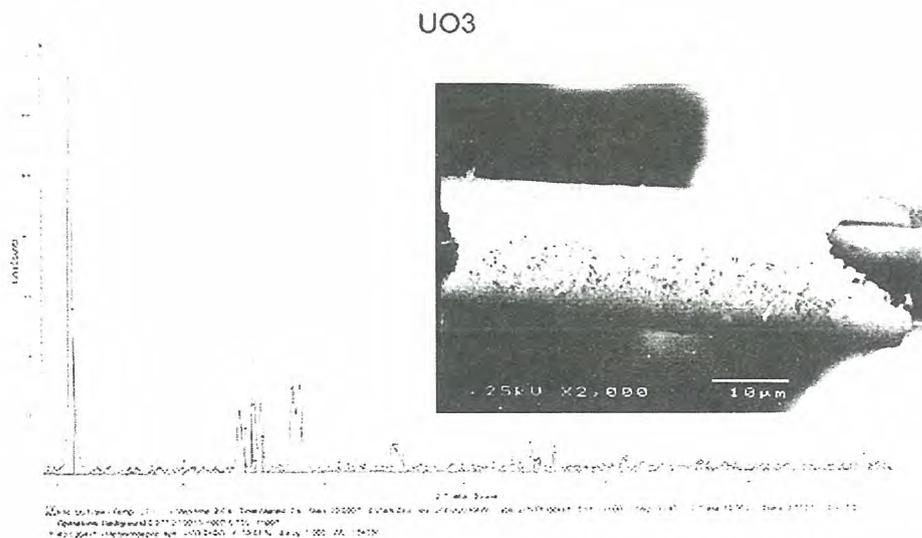


Figure 2. XRD and SEM analysis for adsorbed uranium on the ACFs.

## **Establishment of the Strategy for An Active Participation in the IAEA Program and Its Effective Implementation in the Fields of the Nuclear Fuel Cycle and Materials Technology**

**Kyoung-Pyo KIM\***, Seong-Won PARK, Tae-Woon KIM and S.Ho KIM  
Korea Atomic Energy Research Institute  
150 Deokjin-Dong, Yuseong-Gu, Daejeon, Korea  
(\* : kpkim@kaeri.re.kr)

**Kun Jai LEE**  
Korea Advanced Institute of Science and Technology  
373-1 GuseongDong, Yuseong-Gu, Daejeon, Korea

As one of the major activities of the International Atomic Energy Agency (IAEA), a Coordinated Research Program (CRP) has been implemented with the aim of solving many of the problems facing the Member States by integrating various different levels of each country's technical capabilities in the areas which the Agency needs further technology development. To establish the strategy for an active participation in the CRP and its effective implementation, general features of the current IAEA programs and a prospect of the future program for 2006-2007 are described. The contents and priorities of the programs for which the Agency has put great emphasis on were studied. It is expected that recommendations such as an analysis of the benefits for participation in the CRP and ways to expand participation in the new CRP, will be a great asset in establishing a nuclear policy in the future. In addition, the analysis of the problems which are barriers to applications for the new CRP by analyzing the current status of the CRP that the Agency has already implemented and is now implementing will be utilized for understanding the areas on which the Agency will focus and for identifying the projects in which Korea should play a leading role in their implementation, thus leading to an increase in the acceptance rate of the CRP application proposals from Korea. In the development of the programs of the Agency for 2006-2007 in the fields of the nuclear fuel cycle and materials technology, it is expected that an increased attention will be attributed to the concepts, models and opportunities for optimizing the fuel cycle, mining raw materials, re-using materials and reducing waste arisings (e.g. through partitioning and transmutation), all of which, will include an enhanced consideration for proliferation and security concerns.<sup>1)</sup>

---

1) This study is a partial product of the national project for the establishment of an infrastructure for international cooperation, which is supported by the Ministry of Science and Technology.

## 초임계 이산화탄소를 응용한 개질 제강 슬래그의 Cs 및 Co 이온의 제거 특성

김민길\*·원휘준·현재혁\*·김계남·오원진·정종현

\*충남대학교 환경공학과, 한국원자력연구소

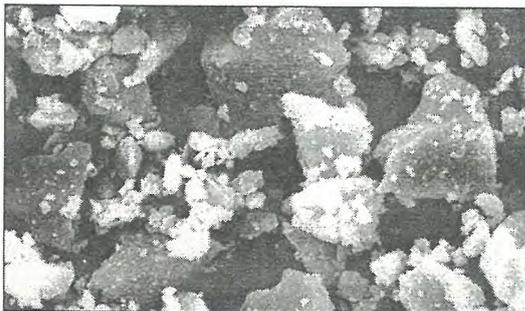
산업체에서 폐기물로 발생되는 제강 슬래그를 사용전 초임계 이산화탄소를 이용해 고온 고압에서 전처리를 통해 얻어진 제강 슬래그를 이용하여 토양 오염 후 발생하는 방사성 폐액 중에 포함되어 있는 성분 가운데 방사성이 높은 성분인 Cs 이온과 Co 이온을 제거하는데 활용함으로써 폐기물의 재활용에 의한 방사성 이온 제거 방안을 모색해 보고자 하였으며 이에 대한 연구는 환경보호 차원 뿐만 아니라 폐기물 자원 회수라는 측면에서도 그 중요성이 크다고 할 수 있다.

제강 슬래그는 전로를 이용하여 강을 제조하는 과정에서 발생하는 폐기물로 25~40%의 Hematite와 Geothite의 Fe 산화물을 다량 함유하고 있으며 평균입경이 22.18  $\mu\text{m}$ , 비중은 3.66으로 나타났다. Solid pH는 (시료와 증류수비 1 : 10) 11.20으로 강알카리성을 띠고 있는데 이는 제강 슬래그에 일부 함유하고 있는 산화칼슘 (CaO)의 수화·분해 작용에 의해  $\text{OH}^-$ 가 용출되는 것으로 기인된다. 미시적 공극구조를 살펴 보면 아래 그림처럼 비교적 입자의 조도가 크고 형상은 대체로 둥근모양을 띠고 있으며 초임계 이산화탄소를 이용 표면개질 시킨 제강 슬래그의 형상은 전처리전 보다 조금 작은 둥근 형상을 나타내며 비표면적 또한 약 5배의 증가를 가져왔다.

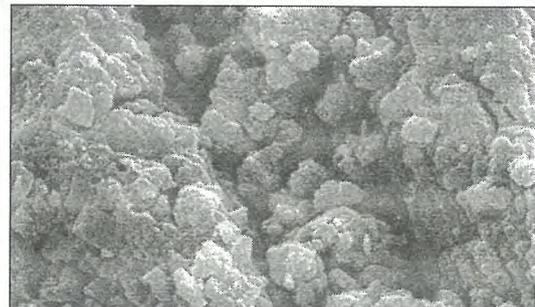
**Table 1. Heavy Metal Contents of Leachate from Steel mill slag**

(unit : %)

Chemical composition	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O	TiO <sub>2</sub>	Ig.loss	Sum
Steel mill slag	35.71	13.26	21.36	13.17	6.91	0.4	0.8	0.96	7.43	100.0



**Fig. 1 SEM analysis(×20,000, Before)**



**Fig. 2 SEM analysis(×20,000, After)**

산업체에서 폐기물로 발생되는 제강 슬래그로부터 사용전 초임계 이산화탄소를 이용 전처리를 통해 얻어진 제강 슬래그를 이용하여 방사성 오염 토양을 오염 후 발생하는 방사성 폐액 중에 포함되어 있는 성분 가운데 방사성이 높은 성분인 세슘 이온과 코발트 이온을 제거하는데 있어 다음과 같은 결과를 얻었다.

첫째, 각 오염물질에 대해 평형도달시간은 24시간 이내에 안정화 된다. 각각의 오염물질들은 비교적 적은 양과 빠른 시간에 평형에 도달하는 것으로 나타났다.

둘째, 코발트 처리공정에서 pH 조절없이 pH 상승물질(CaO, MgO)과 침전유발물질(MnO, SiO<sub>2</sub>, FeO) 및 흡착성 물질(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)이 공존하고 있는 적은 양의 제강 슬래그를 주입하여 수분 동안 교반하여 95% 이상 제거율을 보여주고 있다.

셋째, 초임계 이산화탄소를 이용하여 표면 개질된 제강 슬래그를 이용시 세습 처리효율을 95% 이상 얻을 수 있다.

따라서 현재 다량으로 발생하는 반면 재이용이 크게 이루어지지 않는 폐기물을 재활용 측면에서 뿐만 아니라 현장에서 폐수 처리시 단순화시킨 공정과 경제적/기술적 문제점이 없어 활용가치가 향상될 것으로 기대된다.

#### 참고문헌

1. 김민길, 현재혁 “도금폐수중의 유해물질 제거를 위한 제철폐기물의 재활용 기술”, J. of KSWES, Vol 17, No 4, 2000
2. Hayrettin Yucel "Removal of <sup>137</sup>Cs from aqueous solutions using different cationic forms of a natural zeolite" Separation and Purification Technology 28, 2002

## WACID 시스템에서 XML 데이터의 생성 및 활용방안

한명길, 정재학, 박원재

한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 구성동 1번지

웹 서비스기술에서 XML은 단순히 전송 네트워크로서 메시지를 전송하고 받는 역할만 하는 HTTP에 비해 서비스를 등록, 검색, 기술, 호출하는 방법을 정의하는 중요한 요소이다. XML은 어떤 플랫폼에서나 읽을 수 있는 형식을 제공하기 때문에 특정 회사의 제품과 관련된 특정 환경에 얽매이지 않아도 된다. 이처럼 기업간의 데이터 상호 교환을 위한 언어로서 XML의 역할이 중대해지고 있기 때문에, WACID(Waste Comprehensive Information Database) 시스템에서는 데이터 검증 및 교환을 목적으로 XML 데이터를 생성하고 있다.

WACID 시스템은 데이터의 통합이라는 시스템의 성격상 이기종간의 데이터를 취합하여야 한다. 현재는 각 시스템에서 Microsoft사의 Excel file을 이용하여 데이터를 교환하고 있다. 하지만 추후에 새로운 데이터 제공자가 생기거나 데이터를 보내주어야 하는 곳이 생기게 될 때 다양한 기종에 데이터를 교환하기 위해서는 교환매체로서 XML 데이터가 제일 적격일 것이다. WACID 시스템에서는 XML 데이터를 생성하기 위하여 다음과 같은 절차를 거친다.

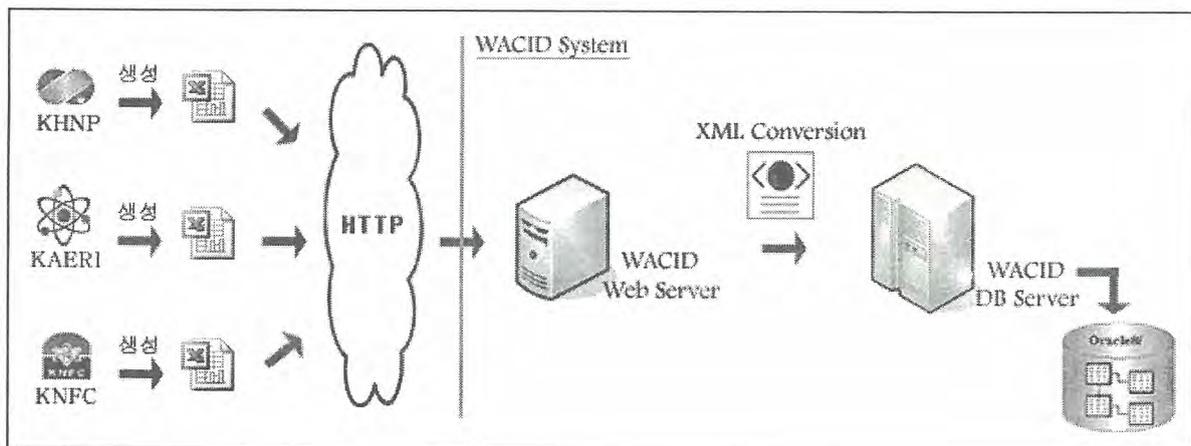


그림 1. WACID 시스템에서 XML 데이터 생성 과정

각 기관에서는 Excel file로 데이터를 WACID 시스템에 전송한다. 전송된 Excel file은 WACID의 검증프로세스를 거치면서 각각의 데이터 Sheet가 XML 문서로 변환한다. 그림 1.에서 볼 수 있듯이 Excel 형태의 데이터 포맷은 Sheet 별로 XML 변환을 실시하여 포함된 Sheet 개수만큼 XML file을 생성하고 CSV, TXT기반의 원시데이터 포맷은 구조에 상관없이 데이터만을 발췌하여 XML file로 변환한다.

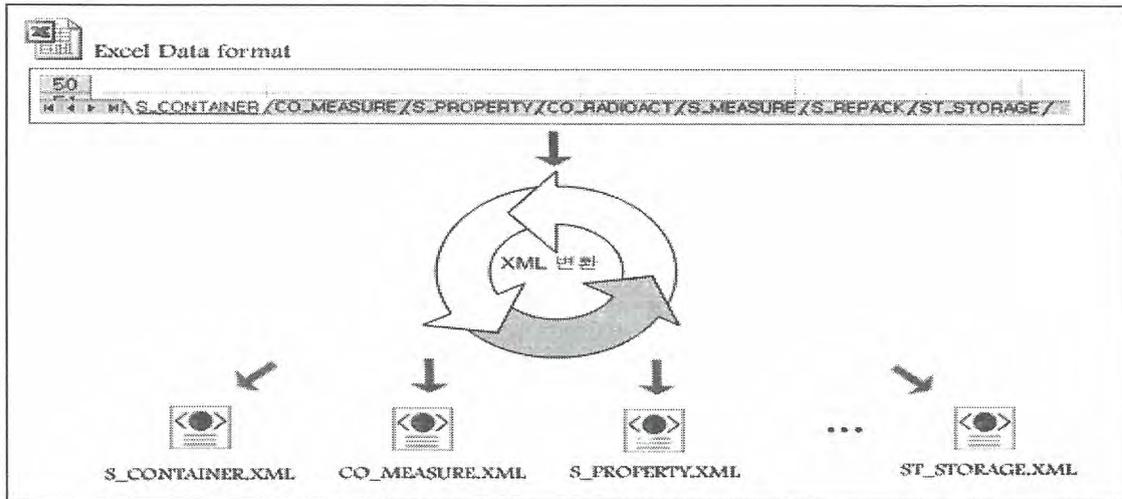


그림 2. XML 문서 변환 프로세스

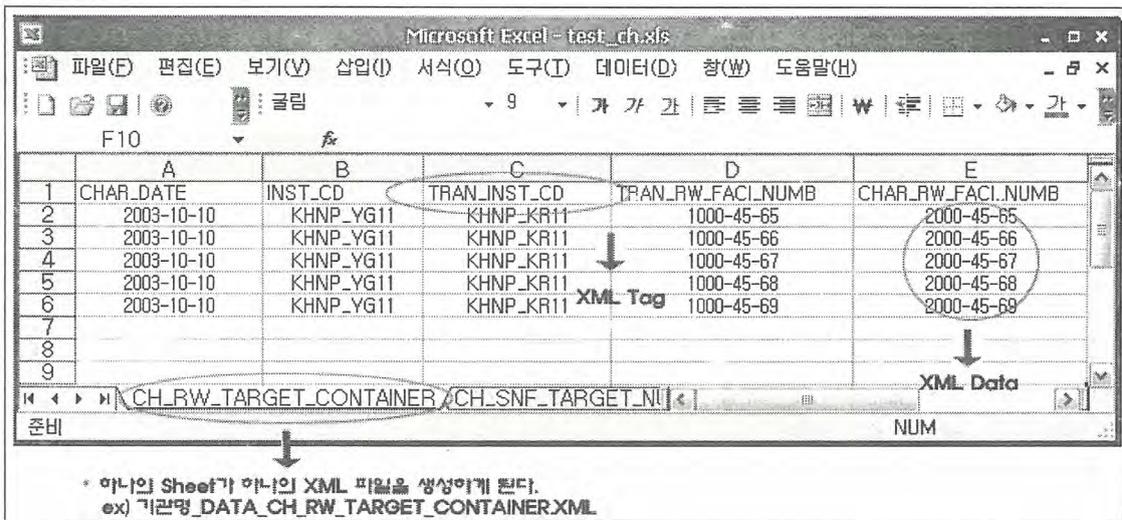


그림 3. Excel data 내부의 XML 변환 과정



그림 4. XML 문서의 생성

WACID 시스템에서 생성된 XML은 다양한 분야에서 활용될 수 있는데, 그 중 한가지는 WACID 데이터를 다른 시스템으로 전송할 때 매우 유용하게 활용될 수 있다. WACID 시스템은 IAEA의

데이터베이스 시스템인 NEWMDB와 DIRATA에 데이터를 제공해준다. 현재는 NEWMDB는 수작업으로 데이터를 입력하게 되며, DIRATA는 MS Access 파일인 MDB 형태로 데이터를 변환한 후에 전송하게 된다. 하지만, WACID 시스템에서 XML 문서를 생성하고 NEWMDB나 DIRATA 시스템에서 XML 문서의 구조를 기술한 XML 스키마를 인식할 수만 있다면, 어떤 H/W 플랫폼의 어떠한 O/S에 상관없이 데이터의 교환이 가능하다. 향후 기대되는 방사성폐기물 데이터베이스 시스템들간의 가장 이상적인 웹서비스 모형은 다음과 같다.

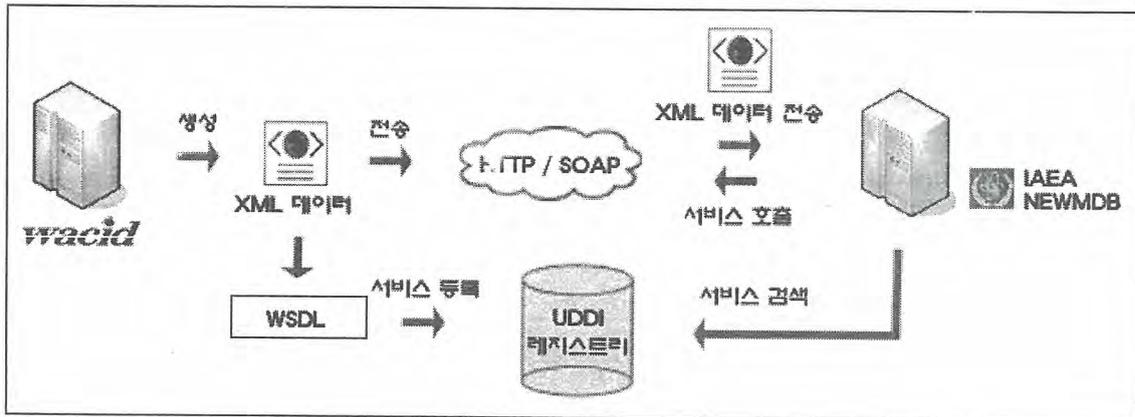


그림 5. XML 데이터의 활용 방안 (예)

그림 5..의 구조를 가지고 일반적인 웹 서비스 작업 흐름을 알아보면 다음과 같다.

- (1) WACID 시스템(서비스 공급자)은 자신에 관한 정보와 제공하려는 서비스에 대한 정보(WSDL)를 UDDI 저장소에 저장한다.
- (2) NEWMDB 시스템(서비스 사용자)은 원하는 서비스를 UDDI 저장소에서 검색하고 발견한다.
- (3) NEWMDB 시스템(서비스 사용자)는 원하는 서비스가 어떤 방식으로 호출될 수 있는지 WSDL 파일을 통해 알 수 있다.
- (4) NEWMDB 시스템(서비스 사용자)는 서비스를 호출하기 위해 필요한 메시지와 결과 값을 SOAP을 통해 받는다.

(1)은 서비스가 개발된 후 수정되지 않은 이상 한 번만 수행될 것이고, (2),(3)은 상황에 따라 다를 수 있지만 성능 향상을 위해 최초에 수행할 때 네이티브 플랫폼으로 스텝 코드를 생성하고, 그 이후에는 (2),(3) 과정을 거치지 않는다. 따라서 웹 서비스를 호출할 때는 통상 4과정만 수행된다. 웹 서비스를 사용하면 많은 요소가 참여하고 복잡한 과정을 거치는 것 같지만 실제 수행되는 과정은 매우 단순하다.

앞으로 거의 모든 이기종간의 데이터베이스 시스템간의 데이터 교환매체는 XML이 될 것이다. 이는 웹 서비스의 미래이며 필수적인 요소가 될 것이므로, WACID 시스템에서 XML데이터의 생성은 매우 성공적인 시스템 구축의 한 요인이라고 말할 수 있다.

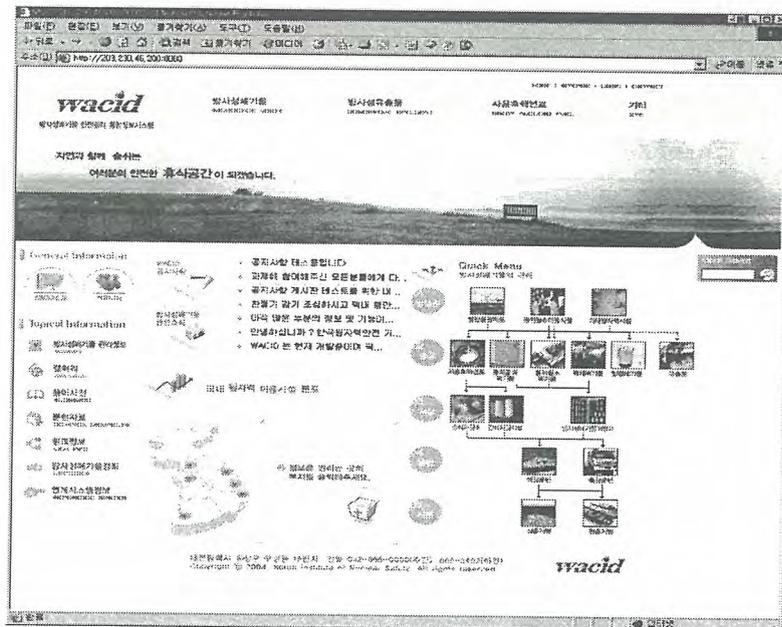
## 방사성폐기물 안전관리 정보공개 홈페이지

### Web site for Safe Management Radioactive Waste

조용백, 정덕진, 송지연, 안경일  
대상정보기술(주)  
서울특별시 성동구 성수1가2동 656-282

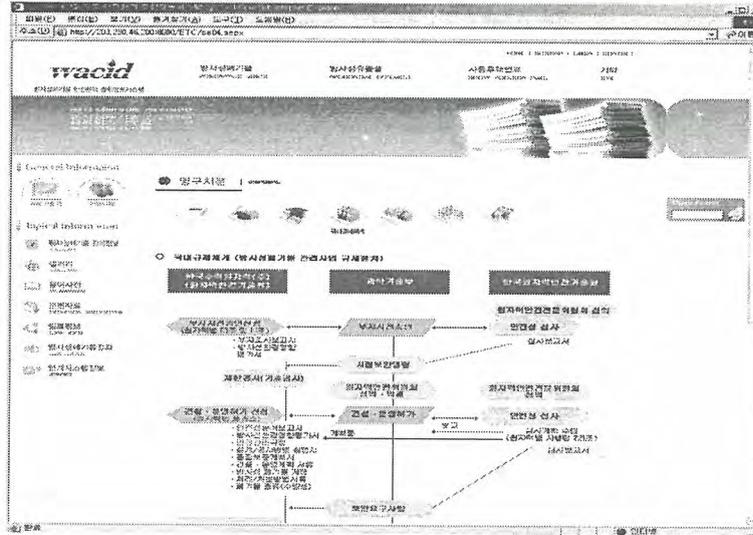
#### 방사성폐기물 안전관리 정보공개 홈페이지 설계시 고려사항

- + 웹기반의 어플리케이션 설계 및 구축 과정에서의 핵심은 WACID 시스템의 서비스 목적을 이해하는 것이다
- + WACID 시스템의 서비스 목적은 국내 방사성폐기물 관리 요소 및 보고체계를 통합한다
- + 웹을 통한 대국민 방사성 폐기물 정보 공개에 대한 투명성을 제공하기 위함이다.
- + 일반인 및 관련 종사자들에게 최상의 서비스 제공을 위한 신뢰성 있는 데이터를 제공한다.
- + 친숙한 사용자인터페이스(User Interface)로 설계되었다.
- + 단순한 방사성 폐기물 관리 요소 검색을 위한 웹기반 시스템이 아닌 방사성 폐기물과 관련된 이해를 돕기 위한 다양한 도구들을 제공한다.



## 모듈별 정보검색컨텐츠

모듈별 관리요소로 선정된 항목을 검색하기 위한 도구와 결과를 나타내는 컨텐츠로서 총 8개의 모듈을 4개의 큰 그룹으로 방사성폐기물(중저준위폐기물, 동위원소폐기물, 해체폐기물, 방사성유출물(액체유출물, 기체유출물), 사용후핵연료, 기타(영구처분, 소각, 운반, 자체처분)으로 구성되어 있다.



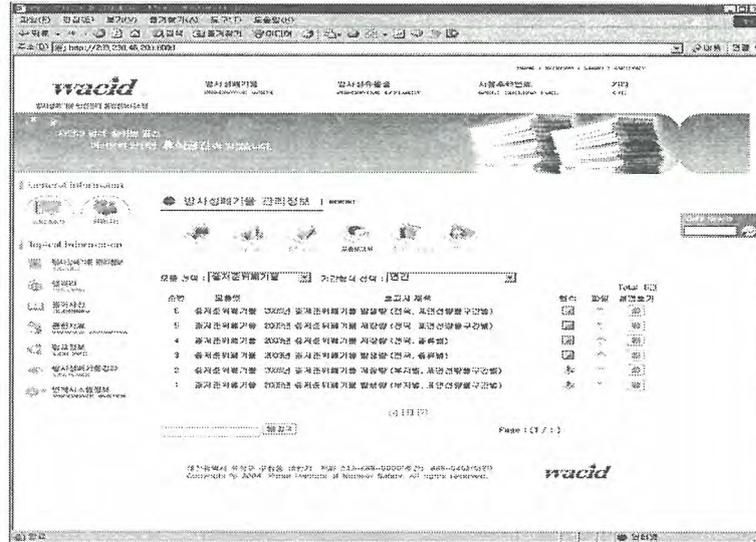
## 관련부가서비스컨텐츠

일반인에게 방사성 폐기물 관련 이해를 돕기 위한 컨텐츠와 WACID 의 구성 및 정보수록 범위를 파악할수 있는 컨텐츠로 구분되며, 커뮤니티적인 요소를 추가하여, 일반인들의 참여 및 질의응답에 대한 요구를 파악할 수 있도록 구성되어 있다.

순번	이대지	분류	국가	번호	등록일
296	시설	미국	뉴멕시코주(뉴멕시코) 고준위 방사성 폐기물	2014-04-16	
285	시설	미국	텍사스 ASB (ASB) 고준위 방사성 폐기물	2004-04-16	
294	시설	대한민국	연평대 공해물 선자회수 용기반납	2004-04-16	
287	시설	대한민국	공회대교역물 처리료	2004-04-16	
280	시설	대한민국	한국의핵연료연구: 핵연료생산시설 연구	2004-04-16	
281	기타 및 선행	대한민국	한국원자력연구원 소량방출방지시설 변경 공방	2004-04-16	
282	시설	대한민국	한국원자력연구원 소량방출방지시설 연구	2004-04-16	
247	상구처분	미국	유키아일랜드 고준위 방사성 폐기물	2004-04-16	

## 보고서관련컨텐츠

모듈별로 구성된 표준레포트외에 정기 분기보고서 및 국가 협약 보고서, 사용자 정의 보고서는 국가 차원의 대외 신뢰성있는 형태의 보고서를 출력할 수 있어야 하는 사유로 인해 별도의 컨텐츠로 구분하였으며 이러한 국가차원의 보고서는 한치의 오류도 없어야 함에 따라 자동화된 보고서 출력을 지양하고 검증된 데이터를 기본으로 보정하여 제공한다.



## 해체 콘크리트폐기물 재활용을 위한 외부피폭경로 시나리오 평가

홍상범, 김계홍, 정운수, 박진호

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

본 연구는 연구로 1,2호기 해체과정에서 발생하는 자체처분대상 콘크리트폐기물을 재활용하기 위해서 NUREG-1640에서 제시하고 있는 시나리오에 대하여 외부피폭선량을 평가하였다. NUREG-1640에서는 콘크리트폐기물 재활용에 적용시 7가지 시나리오를 제시하고 있으며, 각 시나리오를 살펴보면 대량의 콘크리트에 인접, 콘크리트폐기물 수송, 콘크리트폐기물 처리, 매립을 위한 처분활동, 매립지 폐쇄 후 거주자, 콘크리트폐기물 이용 도로건설, 도로포장재로 대량의 콘크리트 이용이 있다. 위 시나리오 중 2가지 즉, 대량 콘크리트 폐기물에 인접한 시나리오와 콘크리트 폐기물 수송시나리오는 흡입, 섭취 등에 대한 피폭경로를 고려하지 않고 외부피폭만을 고려하기 때문에 선정하였다. 각 시나리오의 외부피폭 방사선량을 MCNP4C, MERCURAD 전산코드를 이용하여 비교 평가하였다. MERCURAD는 CEA에서  $\gamma$  방출 핵종에 대한 외부피폭선량을 평가하기 위해 개발되었다. MEERCURAD는 피폭선량 평가시 Ambient Dose Equivalent Rate으로 평가하기 위하여 ICRP74(H\*10)를 적용하고 있어서 MCNP4C의 Dose Conversion Coefficient를 동일하게 적용하였다. 대상 콘크리트의 오염도는 0.1Bq/g으로 선정하였고, 핵종은 현재까지 자체처분대상 해체폐기물 계측과정에서 검출된  $Co^{60}$ ,  $Cs^{137}$ 을 적용하였다. 평가결과는 대형의 콘크리트에 인접한 시나리오에서는 다소 오차가 발생하지만, 콘크리트폐기물 수송 시나리오에서는 오차범위 안에서 두 전산코드의 결과가 일치한다. 향후 MERCURAD 전산코드에 대한 추가적인 검증과정을 통하여 연구로 1,2호기 해체과정의 외부피폭선량 평가에 매우 유용하게 적용할 수 있을 것이다.

## 선택성 이온교환수지에 의한 Cs 함유 토양 제염폐액 정화

원휘준, 김계남, 오원진, 정종현

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

원자력연구소에 보관 중인 오염 토양폐기물을 토양 세척법으로 제염하여 비 방사성폐기물화 한다면 그 부피를 10% 이하로 저감시킬 수 있으며 연구소의 고체 방사성폐기물 저장 용량을 크게 늘릴 수 있다. 1988년 발견 당시 오염 토양 폐기물의 주요 방사성 핵종은 Co-60 이었는데 시간 경과에 따라 Cs-134, 137 이 주요 방사성 핵종이 되었다. 오염토양 폐기물의 60% 이상은 방사능 농도가 극히 낮아 물리적으로 입도를 분리하거나 수 세척에 의해 비 방사성폐기물화 할 수 있음을 파악하였다. 방사능 농도가 비교적 높은 토양으로부터 이들 방사성 핵종을 제거하기 위해서는 코발트와 같은 전이금속 이온에 대해 착화능을 가지는 유기산 계통 세척제를 사용하며 세척 이온의 제거를 위해 세척 용액의 산도를 무기산 등으로 조절한다. 토양 제염을 위해 연구소에서 선정한 세척제는 구연산 혹은 수산이며 여기에 질산을 소량 첨가하거나 유기산 자체를 사용한다. 그림 1은 유기산 용액을 사용하여 제염 시 시간 경과에 따른 제염용액 내 금속성분의 농도변화를 보여 준다. 제염용액으로 용출되어 나오는 세척 이온의 양이 극히 미량이라 그림에는 정확히 그 경향이 나타나지 않지만 타 금속 이온의 농도 증가와 함께 세척 이온의 농도도 증가함을 보여준다.

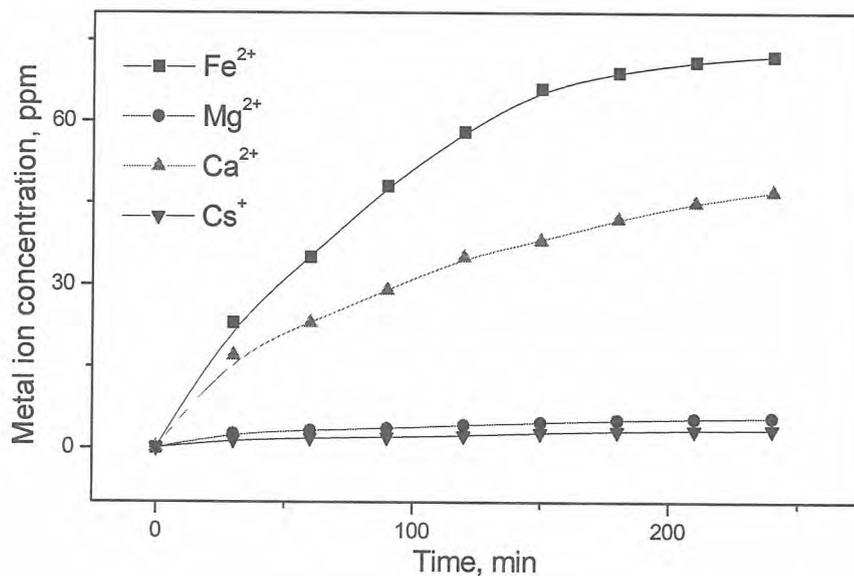


Figure 1. Metal ion concentration against time, 100 ml of 0.05 M citric acid + 0.03 M HNO<sub>3</sub>, 10g soil, 25°C.

본 연구에서는 토양 제염 폐액을 모사하여 이들 방사성 핵종이 양이온 교환 수지에 흡착되는 경향을 살펴보았다. 또한, 음이온교환 수지의 표면을 개질하여 세슘이온에 선택적으로 작용하는 이온 교환수지를 제조하여 이 이온교환수지의 세슘이온에 대한 흡착특성을 살펴보았다. 세슘이온에 선택적으로 작용하는 이온교환 수지는 음이온교환 수지에 페로시안 칼륨 용액을 접촉시킨 후 전이금속을 첨가시킴에 의해 제조하였다. 연구결과, 양이온 교환 수지 및 선택성 이온교환 수지 모두 유기산 세척제를 재생시키는 것으로 나타났다. 그림 2는 선택성 이온교환 수지를 사용했을 때, 첨가하는 수지 량 증가에 따른 금속 성분 제거 분율을 보여준다. 양 이온 교환 수지가 제염용액 중의 금속 성분을 모두 제거하는 반면 선택적 이온교환 수지는 세슘이온만을 흡착하였다.

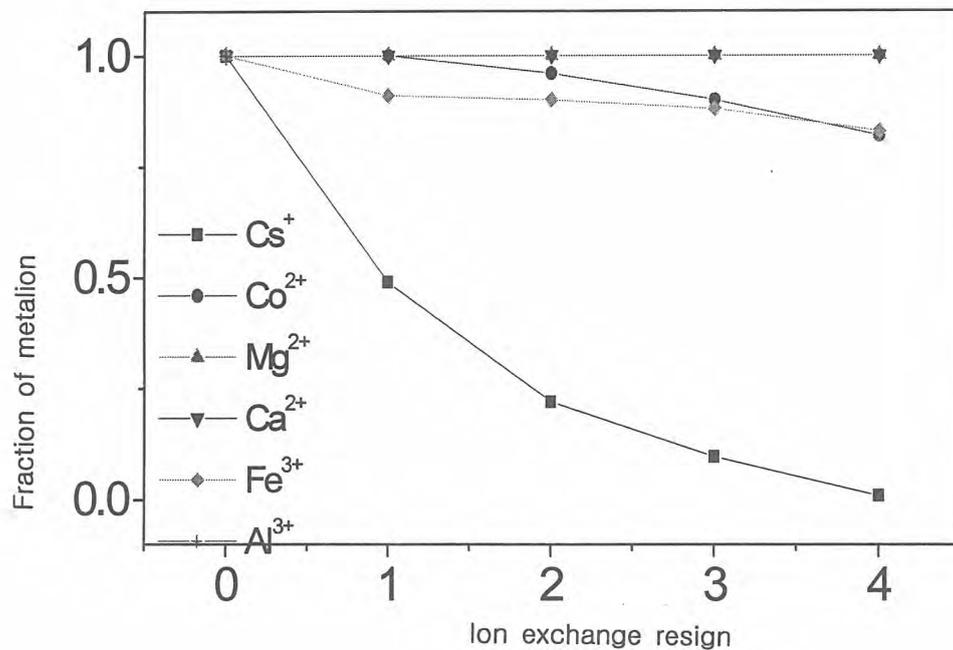


Figure 2. Fraction of metal ion concentration remained in a 0.05 M citric acid solution against the amount of Cs ion selective ion exchange resin ( $[Cs^+]_0 = 3.0$ ,  $[Co^{2+}]_0 = 5.0$ ,  $[Mg^{2+}]_0 = 10.0$ ,  $[Ca^{2+}]_0 = 45.0$ ,  $[Fe^{3+}]_0 = 67.0$ ,  $[Al^{3+}]_0 = 48.0$  ppm).

방사성 제염폐액 중 방사성 세슘이 주성분이고 코발트가 극미량으로 존재한다면 선택적 이온교환 수지를 사용함에 의해 2차적으로 발생하는 폐 이온교환 수지의 부피를 25% 까지 줄일 수 있음을 확인하였다.

## Robotic Floor Surface Decontamination System

Kiho Kim, Jangjin Park, Myungseung Yang

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

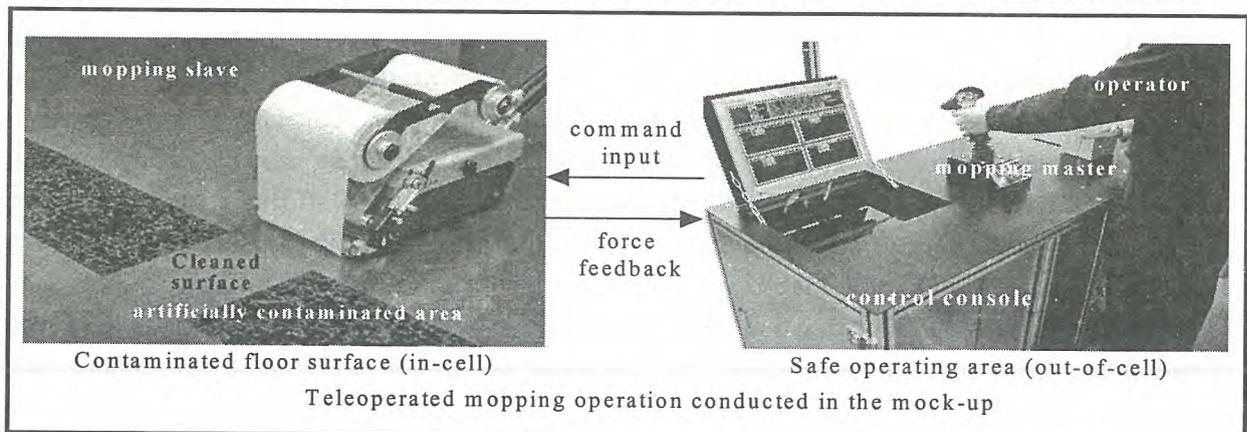
DUPIC (Direct Use of spent PWR fuel In CANDU) fuel cycle technology is being developed at Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI). All the DUPIC fuel fabrication processes are remotely conducted in the completely shielded M6 hot-cell located in the Irradiated Material Examination Facility (IMEF) at KAERI. Undesirable products such as spent nuclear fuel powder debris and contaminated wastes are inevitably created during the DUPIC nuclear fuel fabrication processes. Such radioactive waste should be cleaned and disposed of in order to prevent the contamination from spreading inside the M6 hot-cell. Currently, the contaminated M6 in-cell floor at KAERI is being remotely cleaned using both a conventional vacuum cleaner modified for the hot-cell application and a remotely operated cleaning robot with vacuum cleaner. These cleaning methods employing vacuum cleaners, however, have limits of cleaning capability in terms of particulates sustained on the floor. Even after cleaning, there still remain fine dry contaminated particulates emitting radiations on the cleaned floor. Furthermore, contaminated smears cannot also be removed and cleaned by vacuum cleaning methods. The objective of this work was to develop a robotic decontamination system that could be operated remotely from remote location to clean and mop the contaminated floor of the M6 hot-cell efficiently and without endangering human operators.

In this paper, we describe the development of a robotic surface decontamination system for use in the radioactive zone of the M6 hot-cell of the IMEF of KAERI where direct human access to the in-cell is strictly limited. The robotic decontamination system was designed to completely remove the contaminated dry particulates and smears remained on the floor surface by mopping in a remote manner after contaminated loose dry radioactive waste placed on the M6 in-cell floor was cleaned by means of remote vacuum cleaner or cleaning robot. The robotic decontamination system was also designed to completely eliminate human interaction with the hazardous radioactive contaminants. The robotic decontamination system mainly has three subsystems a mobile mopping slave located at the in-cell, a mopping master and a control console located at the out-of-cell. The mobile mopping slave consists of a tracked mobile platform, a mopping tool, and a mopping cloth, which were constructed in modules to facilitate maintenance. They can be separated and assembled easily by remote manipulation. The tracked mobile platform was designed to carry out forward, reverse and steering movements on the in-cell floor climbing over such obstacles as gas tubes and electrical cables placed on the floor. The mopping tool is installed upon the top of the mobile platform. The multi-spring loaded end-tool of the mopping tool guides the mopping cloth onto the floor surface to be mopped and enables the mopping cloth to contact with the floor surface. Floor mopping operation is conducted by

remotely pressing down the end-tool toward the floor surface while the mobile platform moves in any desired cleaning direction. The mopping strength depends on the contact degree between the end-tool and the floor surface and can be adjusted by controlling the pressing force of the end-tool. Used mopping cloth can also be exchanged easily for new one in a remote manner. The robotic decontamination system is operated by teleoperated control, which employs bilateral force reflecting control scheme. In bilateral control, force reflection is added to the mopping master, and motion and force information flows in both directions between the operator located at the out-of-cell and the mopping slave located at the in-cell. Force is the mopping force produced between the end-tool of the mopping tool and the floor surface while mopping. The sensed information of the mopping slave is feedback and used as the command input to the mopping master. As the mopping slave interacts with its task environment to be cleaned, the force feedback is a source of information about the mopping slave at remote site to be presented to the operator. The mopping master is a man-machine interface device that allows real-time interaction between the human operator and the mopping slave. The mopping master enables the human operator to manipulate the mobile mopping slave simply moving it. The human operator located at the out-of-cell can perform a series of floor mopping tasks by controlling the mobile mopping slave via the mopping master. A mopping force occurring when the mopping slave contacts with the floor surface to be mopped can be reflected to the human operator through the mopping master, thus allowing the operator to have a sense of real mopping. The control console provides a control location for the mobile mopping slave. The mopping master is installed on the control console. All functions for controlling the mopping slave and the mopping master are contained in it. The controller, circuitry, power supplies, and necessary software are also installed within the console.

The significance of this development is in providing a robotic decontamination system that can be operated from remote location to clean and mop the contaminated floor of the M6 hot-cell, completely eliminating human interaction with radioactive contaminants. The cleanup and mopping operations at contaminated hot-cell using this robotic decontamination system would have the benefits of improved worker safety, increased facilities soundness and reduced personnel exposure dose rates. Currently, we focus on the mock-up performance test of the developed robotic decontamination system in order to acquire its reliability and stability before it is put into service.

**Key Words :** teleoperation, mopping robot, force reflection, master-slave, decontaminatio



**제2분과 (B)**  
**방사성폐기물 처리 및 처분**

빈 면

## Development of in-situ Analysis System for Radwaste Glass Using Laser Induced Breakdown Spectroscopy

레이저유도 플라즈마분광법을 이용한 방사성폐기물 유리의 현장분석 시스템 개발

Cheon-Woo Kim, Jong-Kil Park, Sang-Woon Shin, Jong-Hyun Ha,  
Myung-Jae Song, and Gae-Ho Lee\*

Nuclear Environment Technology Institute, 150 Dukjin, Yuseong, Daejeon

\*Chungnam National University, 220 Gung-dong, Yuseong, Daejeon

김천우, 박종길, 신상운, 하종현, 송명재, 이계호\*  
원자력환경기술원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지  
\*충남대학교, 대전광역시 유성구 궁동 220번지

### Abstract

Laser Induced Breakdown Spectroscopy(LIBS) system is being developed as an in-situ analysis system for the radioactive waste glass in the cold crucible melter. In order to complete the LIBS system, a spectrometer, a detector, and a laser were structured. An ESA 3000(LLA Instruments GmbH, Germany) including a calibrated Kodak KAF-1001 CCD detector was selected as the spectrometer. A Q-switched Nd-YAG Brilliant(Quantel, France) laser was selected as an energy source. As the first research stage, the excitation temperatures of Fe(I) as a function of the detector's delay intervals(500, 1000, 1500, 2000ns) were evaluated using the Einstein-Boltzmann equation. The optimized excitation temperature of Fe(I) was 7820K at the delay time of 1500ns using the 532nm Nd-YAG laser pulse. This LIBS system will be optimized under the real environment vitrification facility in the near future and then used to be in-situ analyzed the glass compositions in the melter qualitatively.

### 요 약

방사성폐기물 유리화 공정 중 용융로 내에서 유리시료를 직접분석 하기 위한 레이저유도 플라즈마분광법(LIBS: Laser Induced Breakdown Spectroscopy)을 개발 중이다. LIBS 시스템을 구성하기 위하여 분광기, 검출기, 레이저 등의 장비들을 구축하였다. 분광기는 CCD(charge coupled device)가 보정되어 내장되어있는 ESA 3000을 레이저는 Q-switched Nd-YAG인 Brilliant로 구매하여 분석시스템을 구축하였다. 구축된 분석시스템 분야별 성능들을 확인하였으며 최적화 연구를 수행하였다. 첫 번째 단계로 Fe가 함유된 시료에 레이저를 주사 하였을 때 발광스펙트럼을 측정하였으며 검출기의 지연시간을 변화시켰을

때의 발광스펙트럼의 특성과 이를 이용한 여기온도를 Einstein-Boltzmann 식을 이용하여 계산하였다. 시료에 532nm Nd-YAG 레이저를 주사하고 검출기의 지연시간을 500, 1000, 1500, 2000ns로 변화시켰을 때의 분광선의 intensity 및 여기온도 변화를 분석하였다. 그 결과 검출시간이 1500ns 일 때 여기온도는 7820K로 가장 최적의 상태를 확인하였다. 향후 이 시스템은 유리화 실증시설에 적용되어 용융로 외부로의 유리시료 이송 없이 현장에서 유리성분들의 정량분석을 수행할 예정이다.

## 1. 서론

세계 여러 나라에서 수행 중에 있는 고준위 유리화의 경우 폐기물 구성성분이 비교적 균질하므로 유리화 전후의 품질관리가 상대적으로 쉬운 반면에 중-저준위 방사성폐기물의 경우 구성성분의 균질성이 다소 떨어지므로 유리화 공정 중에 유리용탕의 성분이 변할 뿐만 아니라 점도, 전기 전도도 등의 운전변수에도 영향을 초래하게 되어 운전용이성을 감소시킬 수 있게 된다. 이럴 경우 생산하고자하는 유리고화체 품질에도 영향을 주게 되므로 이러한 문제점을 신속하게 대응하고 방사성폐기물 유리화 용이성과 처리용량을 극대화하기 위한 방안이 필요하게 되었다.

이를 해결할 방안으로 유리용탕의 조성상태를 정량화할 수 있는 여러 가지 화학적 분석방법 도입이 고려되었다. 그러나, 기존 분석방법은 시료를 채취하고 이를 실험실로 이송하여야 하며 시료를 용액으로 만든 후 분석해야 하기 때문에 분석 전 절차가 복잡하고 분석결과가 나오기까지 오랜 시간이 소요되므로 문제점을 해결하기까지 폐기물 투입을 정지하는 등 운영상의 비경제적인 점들이 초래되고 있다. 또한, 분석 시 대부분 시료에 대하여 증기화, 원자화 등의 여기 과정은 같은 여기원(excitation source)을 사용하는데, 플라즈마나 불꽃을 여기원으로 사용하는 경우는 액체를 에어로졸로 만들어 분석을 하므로 시료분해 작업에 시간이 많이 소요되고 용해 및 희석과정을 통한 시약에 의한 오염이 발생하기 쉬우므로 극미량 원소 분석의 경우 고가의 고 순도 시약을 사용하거나 또는 분석시약을 정제하여 순도를 높이는 방법을 사용해야 한다. 게다가 시료후처리 과정에서 발생하는 다량의 이차폐기물 발생 문제로 인해 폐기물 감용 효과가 주된 목표중 하나인 방사성폐기물 유리화에는 적합하지 않은 단점들이 있음을 알게 되었다. 따라서 시료의 용해과정 없이 유리용융로안의 유리성분을 실시간 분석하므로 필요에 따라 적절한 첨가제 투입에 의해 일정한 유리성분 유지를 할 수 있도록 하는 실시간 화학분석법인 레이저유도 플라즈마분광법(LIBS; laser induced breakdown spectroscopy) 개발을 수행하게 되었다.

레이저유도에 의한 분석법은 광을 집중시키는 방법을 사용하므로 시료 표면의 미세 또는 거대 영역을 분석할 수 있다. 레이저 삭마(ablation)에 의해 시료에서 발생된 플라즈마로부터 방출되는 원자들의 분광선으로서 정성 및 정량분석이 가능하며, 시료표면을 움직이며 분석을 하면 여러 부위의 화학조성에 대한 원소분포분석이 가능하다. 레이저에 의한 분석의 경우 고진공의 장비가 요구되지 않으며, 광을 사용한 분석법이므로 전도성물질 뿐만 아니라 비전도성 물질까지 분석이 가능한 장점을 가지고 있다.

본고에서는 레이저유도 플라즈마분광기(LIBS) 시스템에 적용되고 있는 레이저유도 플라즈마의 원리 및 특성, LIBS 시스템 구성 및 원자력환경기술원의 유리화 기술개발에서의 응용에 대해 소개하고자 한다.

## 2. 레이저유도 플라즈마 원리

레이저빔을 집중시키면 초점에서 두 개의 전극사이의 방전 현상과 같은 밝은 빛이 방출되는 방

전(breakdown)현상을 이용하여 1962년 Brech와 Cross<sup>1</sup>에 의해 처음으로 레이저가 원자방출분광법의 여기원으로 사용할 수가 있음을 보여주었다. 레이저빔을 집속시켜 얻은 플라즈마는 유도 결합플라즈마에서 생성된 플라즈마처럼 높은 여기온도를 가지고 있으므로 시료를 증기화시켜 원자상태로 만든 후 여기시킬 수가 있다. 이렇게 펄스레이저를 사용하여 시료에서 삭마(ablation)에 의해 플라즈마를 생성시켜 고체시료를 원자화 및 이온화시키고 여기시켜 분광선을 측정하는 분광분석법을 LIPS(laser induced plasma spectroscopy) 혹은 LIBS라고 한다.

레이저 삭마에 의한 분석은 펄스레이저를 사용하여 좁은 면적에 고체시료의 임계 에너지를 넘는 에너지를 조사시켜 플라즈마를 발생시키는 원리를 이용한 분석법이다. 레이저빔이 물질과 충돌하여 표면에 에너지가 작용하면 시료 내부에서 에너지 전달과정을 통해 고체 물질이 증발된다. 이 순간에 시료에서 고체물질 자체가 튀어나가거나, 분자가 증발되어 원자나 이온이 발생되고, 충격파가 생성되며, 플라즈마가 발생하는 등 복잡한 과정이 이루어진다. 이때 시료에서 생성되는 플라즈마는 시료표면에 레이저 출력밀도를 방전 임계값 이상의 에너지로 가해질 경우에 발생이 된다. 일반적으로 레이저 조사에 의한 레이저와 물질사이의 상호작용은 증발과 삭마현상으로 설명하고 있다.<sup>2-4</sup>

### 2.1. 증발현상

레이저 펄스가 수 마이크로초 이상으로 길고 에너지가  $10^6$  W/cm<sup>2</sup> 보다 작으면 광자의 흡수에 의해 가열된 시료 내부가 증발온도에 도달하기 전에 표면이 증발하기 때문에 표적에서 방출되는 것은 증발 현상에 의한 것이 대부분이다. 광자 이완속도는 0.1ps 정도로서, 흡수된 대부분의 광학에너지는 열로 전환된다.

### 2.2. 삭마현상

레이저의 세기가  $10^9$  W/cm<sup>2</sup> 이상이고 펄스 시간을 nsec 이하로 시료에 조사시키면 폭발적인 반응이 일어난다. 레이저가 가해지는 순간에 시료표면은 광자를 흡수하여 급격하게 물질의 증발 온도를 넘어서고 여러 가지 복합적인 메커니즘에 의해 물질이 튀어나간다. 시료의 표면은 레이저 펄스가 가해지는 시간 동안 증발온도를 넘어서게 되지만 표면의 증발에 의해 열이 방출되는 속도는 레이저 펄스 시간보다는 오래 걸리므로 시료표면물질이 증발하기 전에 내부에서도 증발온도에 도달하게 된다. 그러므로 내부 물질의 온도와 압력은 임계점 이상으로 상승하여 폭발적으로 튀어나가 표면 근처의 압력이  $10^5$  MPa 까지 올라간다. 이 현상은 가열에 의한 반응이 아니므로 삭마된 부위와 주변에는 용융 현상이 생기지 않는다. 이러한 폭발적인 반응에 의해 시료표면에서 플라즈마가 생성되며, 플라즈마의 여기온도는  $10^4$  K 이상으로 올라간다. 생성된 플라즈마의 수명은 수십  $\mu$ sec 정도 되지만 레이저 펄스 유지시간에 비하면 아주 긴 시간이다.

## 3. 레이저유도 플라즈마 생성 및 특성

레이저에 의해 처음 생성된 뜨거운 플라즈마 증기는 주변의 공기와 상호작용을 일으키며 고압의 증기가 주변으로 팽창해 나가면서 충격파를 발생시키고 열전도, 복사전이 및 충격파에 의한 가열 등에 의해 에너지를 전달한다. 레이저에 의해 발생된 플라즈마가 주변의 공기와 일으키는 상호작용을 Fig. 1에 나타내었다.

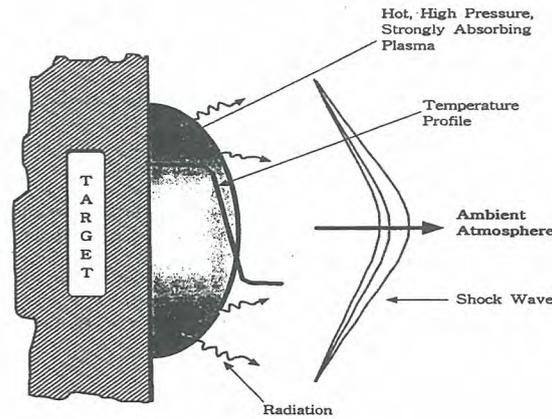


Fig. 1. Feature of the interaction between the plasma and the ambient gas

### 3.1. 레이저유도 플라즈마의 생성

플라즈마의 생성은 레이저 삭마에 의해 시료에서 뜨거운 증기가 발생하면서 시작되며 플라즈마가 유지되기 위해 전자와 중성 원자사이의 역 제동복사에 의해 레이저의 에너지를 흡수하게 된다. 시료에 조사된 초기 레이저 펄스에 의해 강한 연속스펙트럼이 약 100ns 까지 방출된 후 플라즈마에서 생성된 이온에 의한 방출선이  $1\mu s$  까지 나타나게 된다. 그 이후에  $10\mu s$  까지 이온과 전자의 결합에 의해 여기상태의 원자가 기저상태로 떨어지며 원자분광선을 방출하게 된다. 충분한 시간이 지나 플라즈마가 냉각되면 원자들의 결합에 의해 분자들의 분광선이 나타난다. 높은 에너지의 레이저를 시료에 조사시켜 시료 표면에 축적된 에너지가 증가하면 온도가 상승하고 물질들이 폭발적으로 튀어나가 마치 운석의 충돌에 의해 만들어진 crater 모양을 생성시키며 플라즈마가 발생한다. 이렇게 시료표면에서 생성된 crater 모양을 Fig. 2에 나타내었다.

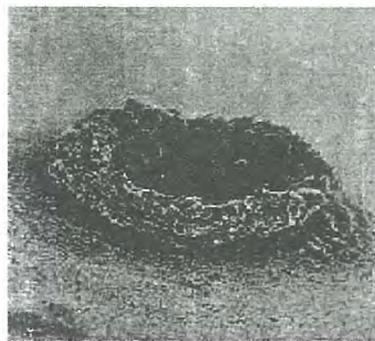


Fig. 2. Laser ablated crater in Zn based alloy surface with the use of 6 ns pulse from a Nd:YAG laser at 532 nm

### 3.2. 레이저유도 플라즈마의 특성

플라즈마가 발생된 초기 수백 ns 사이에는 전자와 이온의 충돌로 인해 발생하는 제동복사 발광에 의해 강한 바탕 연속선이 방출된다. 그 후  $0.5 \sim 2\mu s$  사이에 플라즈마온도와 이온밀도가 감소함에 따라 바탕선이 낮아지며 이온화된 물질의 분광선이 나타나게 되고  $2 \sim 10\mu s$  사이에는 이온과 자유전자의 재결합에 의한 중성원자의 분광선이 나타난다. 그리고  $10\mu s$  이상이 지나면 중성원자의 분광선의 세기는 점점 감소하여 분자의 분광선이 나타나게 된다. 그러나 어떤 원소들

은 이러한 형태의 시간특성을 나타내지 않는 경우도 있다. 우라늄과 베릴륨의 경우 이온화된 분광선이 플라즈마 발생 후 수십  $\mu\text{s}$ 까지 관측이 되고, 플루오르의 경우는 100ns 내에서도 관측이 되지 않는다.<sup>5</sup>

### 3.3. 플라즈마 여기온도

실험 변수들과 여기온도와와의 상관관계를 조사함으로써 시료 원자의 들뜸 상태에 대한 분광학적 특성을 이해할 수 있을 뿐 만 아니라, LIBS 플라즈마 원자화 장치의 기능을 향상시킬 수도 있다. 특정원소의 방출 복사선 세기를 측정하여 Einstein-Boltzmann 식<sup>6,7</sup>에 의하여 여기온도를 결정하는 데, 이 식에 의하면 원자의 방출 복사선의 세기는 아래와 같이 표현된다. 여기서  $\ln(gf/I\lambda^3)$  대 E 의 그래프를 작성한 뒤 least square fit 방법을 사용하여 직선의 기울기를 측정한다. 이때 측정된 기울기가  $-1/kT$  임으로, 플라즈마로 인해 특정원자가 들뜸 상태로 여기할 때의 온도를 산출할 수 있다.

$$I = \frac{N}{u} \frac{8 \pi^2 e^2 h g f}{m \lambda^3} \text{Exp} \left( - \frac{E}{k T} \right)$$

where, N : Particle Density of the Atoms

u : Partition Function of Atom

g : Statical Weight of Upper Level

f : Ladenburg's Oscillator Strength of the Emitted Line

e/m : Specific Charge of Electron

I : Intensity of Emitted Line

$\lambda$  : Wavelength of the Atomic Line

h : Planck's Constant

k : Boltzmann's Constant

E : Energy between Lower Energy Level and Upper Energy Level

T : Temperature

### 4. LIBS 장치 구성 및 최적화 실험

레이저를 이용한 플라즈마 분석 장치는 Fig. 3과 같다. 주요 장비로는 레이저, 렌즈, 시료함, 검출기, 분광기, 자료처리장치 등으로 구성되어 있다. 레이저 플라즈마를 발생시키기 위한 레이저는 충분한 펄스 에너지를 낼 수 있어야 한다.

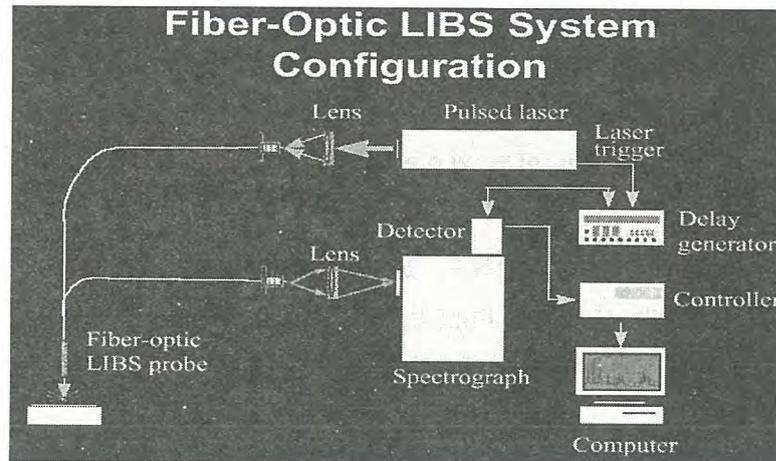


Fig. 3. Typical setup for laser induced plasma spectroscopy.

#### 4.1. 분광기 및 검출기

LIBS 시스템의 가장 중요한 부품인 분광기는 전 세계적으로 3가지 모델이 있다. 고해상도인 ESA 3000(LLA Instruments GmbH, 독일), 중해상도인 Mechelle 7500(MULTICHANNEL Instruments, 스웨덴), 저해상도인 LIBS2000+(Ocean optics, 미국)이 있으나, 본 연구의 성공적 수행을 위해서는 고해상도 분광기 구입이 필수적이다. 즉, 해상도가 낮은 분광기를 사용할 경우 유리의 주요원소들인 Al, Si, Fe, B, Na를 비롯한 약 20여개의 원소들에서 방출되는 복사선들이 중첩되어서 분석결과에 심각한 오차 발생이 우려되고, 원자 방출분광법의 특성상 다른 원소들 간의 간섭효과를 최소화하기 위하여서는 해상도가 가장 좋은 분광기를 선택하였다. LIBS 분광기의 성능은 해상도로 구분되어 지는데, ESA 3000은 현재 상업용 분광기중에서는  $40,000(\lambda/\Delta\lambda)$ 으로 가장 해상도가 높은 제품이고 검출파장영역은 200-780nm이다. LIBS2000+의 경우는 저해상도 분광기이다. ESA 3000 분광기의 경우 두 번째로 해상도가 높은 Mechelle 7500 보다 가격 면에서 저렴하며 게다가 Mechelle 7500과 달리 자체적으로 제작한 프로그램을 사용하므로 호환성 및 응용성 필요에 따라 프로그램을 확대 또는 수정할 수 있는 장점이 있고, 200-500nm 파장이 실제분석에 사용되기 때문에 ESA 3000을 본 연구에서 사용하는 것이 적절하다고 판단되었다.

플라즈마에서 방출되는 분광선은 렌즈나 광섬유를 이용하여 검출기로 보내진다. 광신호를 측정하기 위해서는 여러 가지의 검출기가 사용이 되고 있으며 최근에는 CCD(charge coupled device) 검출기가 많이 이용 되고 있으며 이를 사용하여 일정 영역에서 방출되는 분광선을 동시에 측정할 수가 있다. ESA 3000 분광기의 검출기는 CCD-Array Kodak KAF-1001를 전용으로 사용하며 다른 CCD를 사용할 경우 hardware 및 software 호환성 문제점 발생 가능으로 이원체제의 서비스를 받아야 할 뿐만 아니라 제작사간 책임전가에 대한 문제가 예상됨으로 Kodak KAF-1001을 선택하였다.

#### 4.2. 레이저

LIBS에는 조작성이 간편하고, 레이저 에너지의 변화가 적으며, Q-switched에 의해 고출력의 레이저펄스를 얻을 수 있는 Nd:YAG 레이저를 많이 사용하고 있다. LIBS 시스템에 사용할 수 있는 Nd-YAG 레이저의 종류는 많으나 ESA 3000 분광기와 control system과의 호환성, alignment 및 단파장 module의 탈 부착 간편 등 유지 보수 간편성에서 우수한 Brilliant 레이저를 구입하였다. 이 레이저의 펄스 파장은 1,064, 532, 355, 266nm이며 최고 360mJ의 에너지를 발생할 수 있다. 국산인 원다레이저의 경우는 단파장 module 탈 부착 및 alignment가 복잡하고, ESA3000 분광기와의 호환성에 많은 문제가 있는 것으로 판단되었다.

#### 4.3. 시스템 구성

Fig. 4는 원자력환경기술원이 개발하고 있는 중저준위 방사성폐기물 유리화 공정에 사용될 LIBS 시스템의 주요장비의 사진이며 Fig.5는 개략도를 보여주고 있다. 방사성폐기물을 유리화하는 공정 중에 유리의 화학적 성분은 광케이블을 이용하여 4~5 미터의 원거리에서 실시간으로 분석된다.

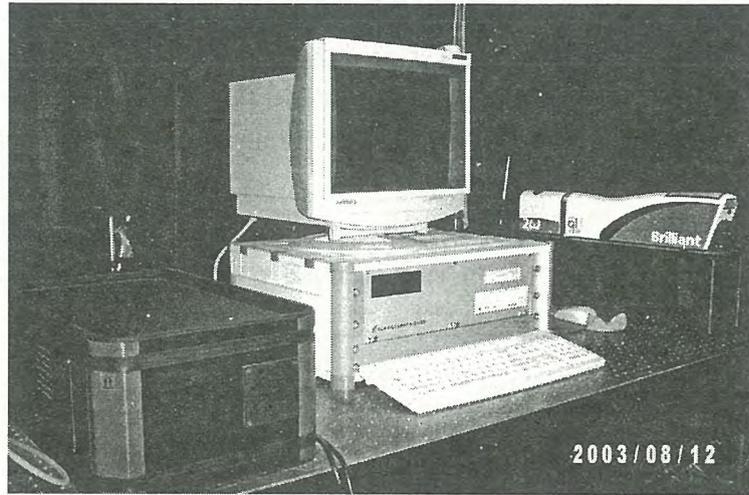


Fig. 4. LIBS 시스템 주요 구성품(분광기(검출기 내장), control system, 레이저)

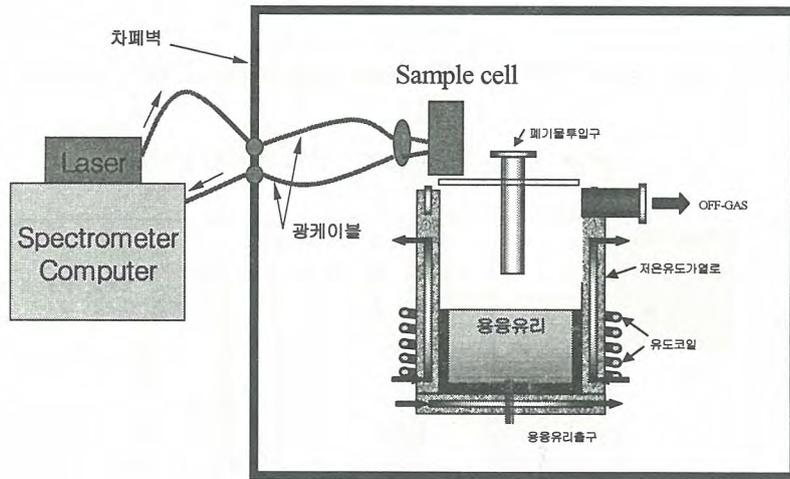


Fig 5. 원자력환경기술원의 LIBS 시스템 개략도

#### 4.4. 실험변수 최적화

LIBS 시스템을 구성한 후 실험변수 최적화를 위해 사용한 Fe(I)에 대한 Einstein-Boltzmann 식의 에너지 준위 및 gf 값을 Table 1에 요약하였다.

Table 1. Fe(I) 방출 복사선들의 에너지 준위 및 gf 값

Wavelength, nm	gf	Energy Level, $\text{cm}^{-1}$
302.11	0.646	416 - 33507
303.74	0.372	888 - 33802
344.39	0.0813	704 - 29733
346.59	0.115	888 - 29733
347.55	0.145	704 - 29469
361.88	1.91	7986 - 35612
373.71	0.316	416 - 27167
384.04	0.646	7986 - 34017

Fig. 6은 532nm Nd-YAG laser를 시료에 주사하여 ESA 3000 분광기로 200-780nm 영역 내에 있는 Fe Emission Spectrum을 측정된 결과를 보여 주고 있다. 아래 그림에서 보는 바와 같이 Fe 방출 스펙트럼은 매우 복잡하기 때문에 분광기의 해상도가 탁월하게 좋아야한다. 동일한 Fe 방출 스펙트럼을 Fig. 7에서 보듯이 338-352nm로 spectrum을 세분화하였고, 세분화 peak를 이용하여 Fe 여기온도를 측정하였다.

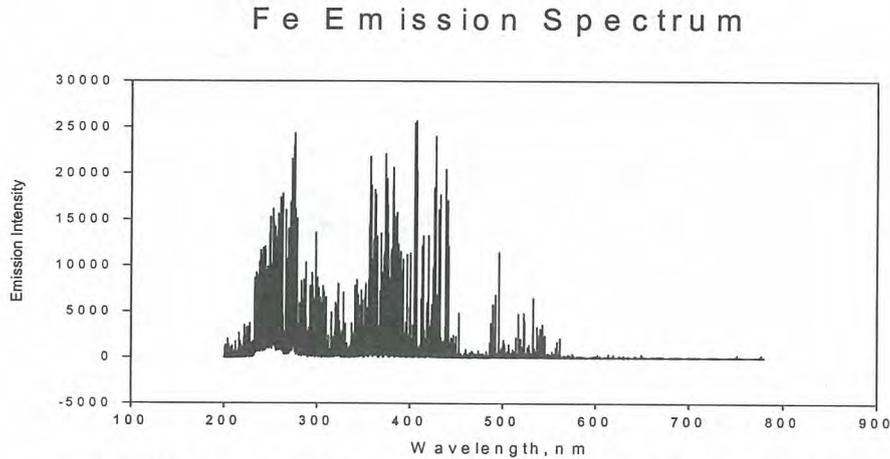


Fig. 6. 532nm Nd-YAG laser 사용시 Fe Emission Spectrum (분광기 검출영역: 200-780nm)

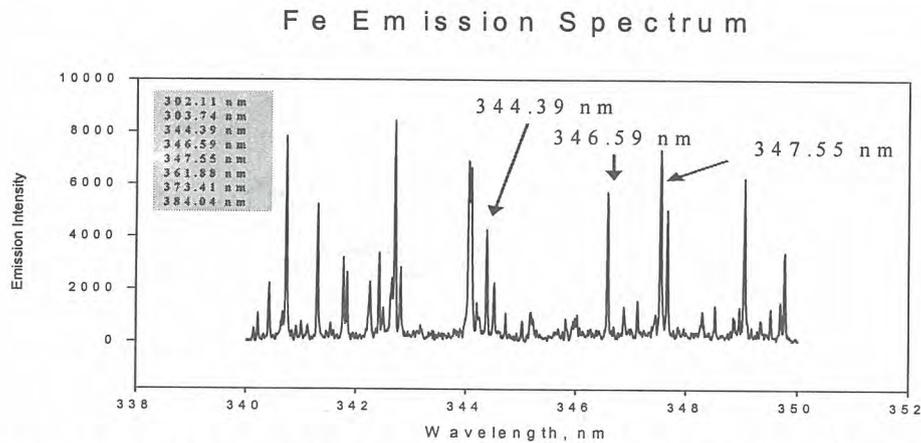


Fig. 7. 532nm Nd-YAG laser 사용시 Fe Emission Spectrum (분광기 검출영역: 338-352nm)

LIBS에서 발생하는 플라즈마의 특성이 시간에 따라 다르기 때문에, 레이저가 시료표면을 주사한 후 검출기 delay time을 500, 1000, 1500, 2000ns 후에 스펙트럼을 측정하였고, 측정된 스펙트럼에서 여기온도를 측정하였다. 검출기 delay time이 500, 1000, 1500, 2000ns를 사용하였을 때, 측정된 Fe 여기온도는 각각 6100, 7120, 7820, 8210K로 측정되었다(Table 2 참조). 따라서 검출기 delay time을 변화시켜 측정한 결과 Fig. 8에서 보는 바와 같이 delay time 1500ns 일 때 가장 최적 상태가 되었다.

Table 2. Fe(I) 방출 복사선들의 delay time(ns)의 변화에 따른 여기온도(K) 값

구 분	플라즈마 특성			
Delay time(ns)	500	1000	1500	2000
Excitation temperature(K)	6100	7120	7820	8210

## Dependency of Fe Excitation Temp. on Delay Time

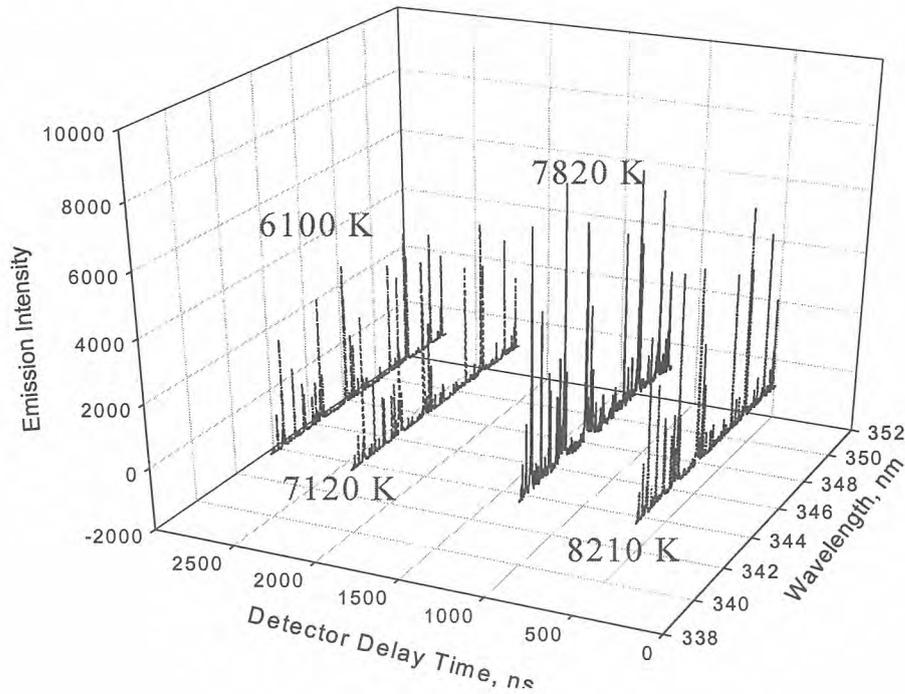


Fig. 8. 검출기 delay time 변화에 따른 스펙트럼 intensity 및 여기온도 변화

### 5. 향후계획 및 기대효과

향후 정량분석을 위한 LIBS 실험변수 최적화를 위해 수행할 몇 가지 연구내용들을 요약하면 다음과 같다.

- Laser Repetition Rate, Gas 종류, 레이저출력에 따른 탈격화정도 연구
- Time Resolved Spectrum 및 안정성, 재현성, 직선성 연구
- 표준시료를 이용한 국제적 적합성을 인증 및 품질관리 시스템 확립
- 표준작업지침서(Standard Operation Procedure, SOP)를 ISO 17025 규격에 의거하여 품질관리 시스템 확립

또한, 실제시료 분석을 위한 LIBS 시스템의 현장적용으로 다양한 매질의 많은 표준시료들을 분석하여 certified value와 비교 검토함으로써 매질에 의한 방해효과를 최소화하는 연구를 실증 유리화 시스템에 부착하여 수행할 예정이다.

LIBS 개발로 인하여 유리화 과정에서 유리시료를 실시간으로 분석함으로써 많은 시간을 절약하게 되며 공정 중 실시간 분석으로 인하여 문제점 발생시 즉시 조치할 수 있게 될 것이다. 또한, 방사성폐기물을 이차폐기물 발생 없이 현장에서 직접분석 가능하게 되는 것이다. LIBS 시스템이 상용화되면 안정적이고 신뢰성 있는 국내 방사성폐기물 유리화에 대한 전기를 마련하게 될 것이며 전 세계적으로 최초로 상용화 예정인 중-저준위 방사성폐기물 유리화 기술력에 대한 독보적인 우위 확보와 기술수출 등이 기대된다.

## 참고문헌

1. F. Brech and L. Cross, *Appl. Spectrosc.*, 16 (1962) 59
2. L. J. Radziemski and D. A. Cremers, "Laser-Induced Plasmas and Applications", Marcel Dekker Inc., New York, 1989, Chap. 2.
3. M. von Allmen, "Laser beam Interactions with Materials: Physical Principles and Applications", Springer Verlag, New York, 1987 p.16.
4. J. F. Ready, "Effect of High Power Laser Radiation", Academic Press, New York, 1971.
5. D. A. Cremers and L. J. Radziemski, *Anal. Chem.*, 55 (1983) 1252.
6. Y. I. Lee, S. P. Sawan, T. L. Thiem, Y. Y. Teng and J. Sneddon, *J. Appl. Spectrosc.*, 46 (1992) 436.
7. X. L. Mao, M. A. Shannon, A. J. Fernandez and R. E. Russo, *Appl. Spectrosc.*, 49 (1995) 1054.

## 중수로 원전 $^{14}\text{C}$ 발생 특성 및 이온교환수지에 의한 $^{14}\text{C}$ 흡·착탈 거동 분석

### Analysis on the Generation Characteristics of $^{14}\text{C}$ in PHWR and the Adsorption and Desorption Behavior of $^{14}\text{C}$ onto Ion Exchange Resin

이상진, 양호연, 김경덕

한국수력원자력(주), 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

#### 요 약

CANDU형 원전에서  $^{14}\text{C}$  핵종은 감속재 계통, 냉각재, 환형기체 및 연료 계통에서 생성된다. 이 4가지 계통 중 감속재 계통이 전체  $^{14}\text{C}$  생성의 94.8%를 차지하고 있다.  $^{14}\text{C}$  핵종은 용액 내에서 pH에 따라 용존 이산화탄소( $^{14}\text{CO}_2$ ), 중탄산 이온( $\text{H}^{14}\text{CO}_3^-$ ), 탄산 이온( $^{14}\text{CO}_3^{2-}$ ) 및 탄산( $\text{H}_2^{14}\text{CO}_3$ )의 형태로 존재하는데, 감속재 계통에서는 pH가 5이상으로서 주로 이산화탄소( $^{14}\text{CO}_2$ ), 탄산( $\text{H}_2^{14}\text{CO}_3$ ) 및 중탄산 이온( $\text{H}^{14}\text{CO}_3^-$ )으로 존재한다. 본 연구에서는 월성 원전 각 계통에서 사용되고 있는 이온교환수지 현황과 년도별 폐수지 발생현황을 조사하였다. 그리고 월성 원전에서 사용되고 있는 IRN 150 수지의 탄소화합물의 흡·탈착 특성을 살펴보기 위해, 중성 pH에서 주로 존재하는  $\text{HCO}_3^-$  이온을 IRN 150 수지와 반응시켜 포화시킨 뒤,  $\text{NaNO}_3$ 와  $\text{Na}_3\text{PO}_4$  및  $\text{HCl}$ ,  $\text{NaOH}$ 의 탈착 용액을 선정하여  $\text{HCO}_3^-$  이온의 탈착 가능성을 알아보았다.  $\text{Na}^+$  이온에 의한  $\text{Co}^{2+}$ 이온 및  $\text{Cs}^+$ 이온의 탈착은 거의 발생되지 않았으며,  $\text{NO}_3^-$  이온 및  $\text{PO}_4^{3-}$  이온에 의한  $\text{HCO}_3^-$  이온의 탈착은 서서히 진행되었다.

중심단어 :  $^{14}\text{C}$  핵종, CANDU, 폐수지, IRN 150, 흡·탈착

#### Abstract

The production of  $^{14}\text{C}$  occurs in the Moderator(MOD), Primary Heat Transport System (PHTS), Annulus Gas System(AGS) and Fuel in the CANDU reactor. Among the four systems, The MOD system is the largest contributor to  $^{14}\text{C}$  production(approximately 94.8%).  $^{14}\text{C}$  is distributed of  $^{14}\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2^{14}\text{CO}_3$ ,  $\text{H}^{14}\text{CO}_3^-$  and  $^{14}\text{CO}_3^{2-}$  species as a function of the pH of water. Of these species,  $\text{H}_2^{14}\text{CO}_3$  and  $\text{H}^{14}\text{CO}_3^-$  form are predominant because the pH of MOD system is  $> 5$ . In this paper, adsorption-desorption characteristics of bicarbonate ion ( $\text{HCO}_3^-$ ) by IRN 150 resin was investigated.  $\text{HCO}_3^-$  ion existed in neutral condition(app. pH 7) was reacted with ion exchange resin (IRN-150) and saturated with it. Then  $\text{NaNO}_3$  and  $\text{Na}_3\text{PO}_4$

solutions selected as extraction materials were used to make an investigation into feasibility of  $\text{HCO}_3^-$  extraction from resin saturated with  $\text{HCO}_3^-$ . Desorption of  $\text{Co}^{2+}$  and  $\text{Cs}^+$  ion by  $\text{Na}^+$  ion was not occurred, and desorption of  $\text{HCO}_3^-$  ion by  $\text{NO}_3$  and  $\text{PO}_4$  was occurred slowly. Also, the status of ion exchange which is used in Wolsong NPPs and generation of spent resin yearly were surveyed.

**Key Words** :  $^{14}\text{C}$ , CANDU, Spent Resin, IRN150, Adsorption · desorption,

## 1. 서 론

월성 원자력발전소는 국내 유일의 가압중수로 CANDU (CANadian Deuterium Uranium Pressurized Heavy Water Reactor)형 원전으로서,  $^{14}\text{C}$  핵종의 생성량과 방출량이 경수로인 PWR (Pressurized Water Reactor)과 BWR(Boiling Water Reactor)형에 비하여 최소 수 배 이상 많다고 보고 되고 있다[1].  $^{14}\text{C}$ 는  $\beta$ 선을 방출하는 핵종으로 타핵종과 비교하여 환경으로의 확산, 이동 및 침투가 용이하며, 반감기가 무려 5,730년으로 대단히 길다. 또한 인체의 주요 구성성분인 탄소의 동위원소로서 주로 대기중의 탄소, 질소, 산소가 우주선의 중성자와 반응하여 생성되거나 원자력 시설의 핵반응에 의해서 생성된다[2].

가압중수로에서  $^{14}\text{C}$ 은 중수를 사용하는 감속재 및 냉각재 계통, 환형기체 계통 및 핵연료 손상에 의해 생성되고, 대부분 감속재 계통 내 중수의  $^{17}\text{O}(n, a)^{14}\text{C}$  반응에 의해 생성되며 그 중 93% 이상이 이온교환수지탑의 음이온 교환수지에 의해 제거 가능하다. 실제로 월성 1, 2호기 원전은 각각 감속재 및 냉각재 계통, 액체 폐기물 처리 계통 등 9개(월성 1호기)와 7개(월성 2호기) 계통에서 이온교환 기술을 이용해 계통을 정화하고 있으며, 발생된 폐수지는 방사능 준위나 양, 음이온 교환수지, 발생 계통별로 구분이 되지 않고 발생된 상태 그대로 혼합, 저장되고 있다.

월성 원전 운영중 발생된  $^{14}\text{C}$  함유 폐수지에 대한 처리 기술이 개발되지 않아 각 계통에서 발생하는 폐 이온교환수지를 발전소 내 대형 저장탱크에서 저장하고 있는데, 향후 10년 이내에 포화될 것으로 예상되므로 폐수지의 최종 처리수단 확보가 시급하다. 현재 국내에는  $^{14}\text{C}$  핵종의 처분 제한치가 없지만, 인공방벽 천층처분장을 운영하고 있는 미국의 경우  $^{14}\text{C}$  핵종에 대해  $8\text{Ci}/\text{m}^3$ 를 최대 방사능 농도 제한치[3]로 두고 있다. 그러나  $^{14}\text{C}$  핵종의 95% 이상이 감속재 내 중수의  $^{17}\text{O}(n, a)^{14}\text{C}$  반응에 의해 생성되므로, 감속재 계통이 중성자속에 노출되어 있는 한  $^{17}\text{O}$ 의 양은 상대적으로 많아서  $^{14}\text{C}$  핵종의 양 역시 많을 거라고 예측된다. 실제로 AECL(Atomic Energy of Canada Limited)에 의하면, 감속재 계통에서 발생된 수지내  $^{14}\text{C}$ 의 농도는 약  $8\sim 213\text{Ci}/\text{m}^3$ 으로서 혼상 수지의 음이온 비드 내 주로 존재하는 것으로 알려져 있다. 이 때문에 캐나다 연구진은 강산을 이용하여 폐수지에 흡착되어 있는  $^{14}\text{C}$  핵종을 탈착하거나, 폐수지를 연소시켜  $^{14}\text{C}$  핵종을  $^{14}\text{CO}_2$  형태로 탈착시켜 제거한 후 고화하여 드럼에 저장하는 방안을 연구하였다. 그러나 강산이나 연소를 통한 폐수지내  $^{14}\text{C}$ 의 탈착 성능이 우수하다 하더라도, 강산에 의해  $^{14}\text{C}$  뿐만 아니라 폐수지에 존재하는  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{51}\text{Cr}$  등의 핵종 역시 약 99% 정도 탈착되고, 연소에 의한 방법에 의해서도 휘발성 핵종이 함께 기체 상태로 포집되므로 이들 핵종을 처리하기 위한 추가 공정이 필요할 것으로 예상된다. 이러한 문제점을 해결하기 위해 폐수지로부터 제거 대상 핵종인  $^{14}\text{C}$ 만을 탈착하는 방안

구가 필요하다.

본 연구에서는 수지에 대해 각 이온이 다르게 갖고 있는 선택도 차이에 의한 폐수지 내  $^{14}\text{C}$ 의 분리 실험을 수행하였는데 폐수지 내 함께 존재하는  $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{Cs}^+$  등의 양이온 핵종은 탈착하지 않고  $\text{HCO}_3^-$  이온만을 폐수지로부터 탈착하여 용액으로 유출시키는 탈착 용액을 선정하여  $\text{HCO}_3^-$  이온의 탈착 가능성을 평가하였다[4]. 또한,  $^{14}\text{C}$ 의 자연 환경 및 원전에 의한 생성원과 생성량에 대한 조사와 분석도 수행하였다.

## 2. 본 론

### 가. $^{14}\text{C}$ 발생원

방사성 핵종  $^{14}\text{C}$ 은 천연 존재비가  $10^{-10}\%$ 로 아주 작으나, 반감기가 무려 5,730년 이상 되기 때문에 각별한 관리가 요구되는 방사성 핵종으로, 우리나라는 과기부 고시 (제98-12호)에 의거  $^{14}\text{C}$  핵종을 환경감시 항목으로 지정하고 있다. 지구상에 존재하는  $^{14}\text{C}$  화합물은 우주선과의 상호작용에 의한 자연적인 생성 요인으로 약  $10^{-12}\text{Ci}/\text{m}^3$ 이 대기로 방출되고[5], 원자력발전소(이하 원전)로부터 방출 등의 인위적인 요인에 의해서도 생성되어 대기 내  $^{14}\text{C}$  방사능은  $10^{-5}\sim 10^{-6}\text{Ci}/\text{m}^3$ 으로서 높은 수준이다. 이렇게 생성된  $^{14}\text{C}$  화합물은 호흡 및 음식물의 섭취에 의한 내부피폭으로 인체에 큰 영향을 미치고,  $^{12}\text{C}$  화합물과 동일한 신진대사과정을 가지므로[6]  $^{14}\text{C}$  핵종에 대해 종합적이고 체계적인 연구가 필수적이다.

$^{14}\text{C}$  핵종은 가압경수로보다 가압중수로에서 약 30배 이상 많이 생성되고 있으며, 방출을 역시 가압경수로의 약 2배 이상 많은 것을 알 수 있다. 이를 표 1에 나타내었는데, 가압경수로의  $^{14}\text{C}$ 은 생성율의 약 1/2만큼 방출된다.

표 1. 원자로형에 따른  $^{14}\text{C}$  생성 및 방출량 ( $\text{Ci}/\text{GWe} \cdot \text{yr}$ )[7]

원자로형	생성량	방출량
BWR	26	15
PWR	37	15
PHWR ( $\text{CO}_2$ annulus gas)	960	37

가압중수로인 월성 원자력발전소에서 대부분의  $^{14}\text{C}$ 은 감속재 계통 내에 상당량이 존재하는 중수 중의  $^{17}\text{O}$ 의 방사화 반응 [ $^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$ ]에 의해 약 94% 이상이 발생되며, 1차 열수송 계통과 환형기체 계통, 핵연료 손상에 의해 소량 발생한다[8]. 표 1에서와 같이 가압중수로에서  $^{14}\text{C}$ 이 가압경수로보다 더 많이 생성되는 이유는 주로 감속재 및 냉각재 차이에 기인한다. 감속재와 냉각재는 가압경수로에서 경수( $\text{H}_2\text{O}$ )를, 가압중수로에서 중수( $\text{D}_2\text{O}$ )가 사용되는데 중수 내  $^{17}\text{O}$ 의 존재함량이 0.055%로 경수보다 0.018% 정도 높기 때문에 중수로에서 더 많이 생성된다. 그림 1에 CANDU형 원자로에서  $^{14}\text{C}$ 의 생성 및 방출에 대한 모식도를 나타내었다.

용액 중에 존재하는  $^{14}\text{C}$ 은 용액의 pH에 따라 용존 이산화탄소( $^{14}\text{CO}_2$ ), 중탄산 이온( $\text{H}^{14}\text{CO}_3^-$ ), 탄

산 이온( $^{14}\text{CO}_3^{2-}$ ) 및 탄산( $\text{H}_2^{14}\text{CO}_3$ ) 등의 다양한 형태로 존재하는데 이를 그림 2에 나타내었다.

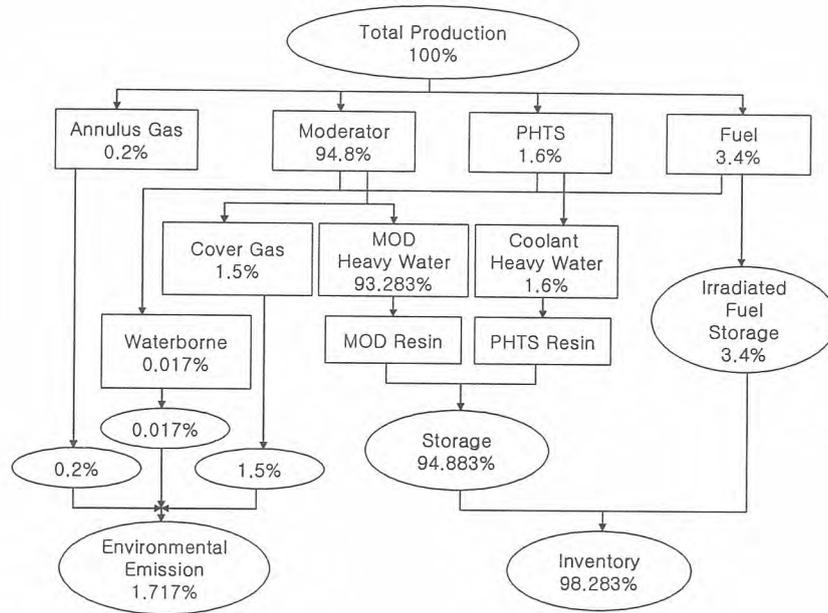


그림 1. CANDU형 원자로에서  $^{14}\text{C}$ 의 생성 및 방출

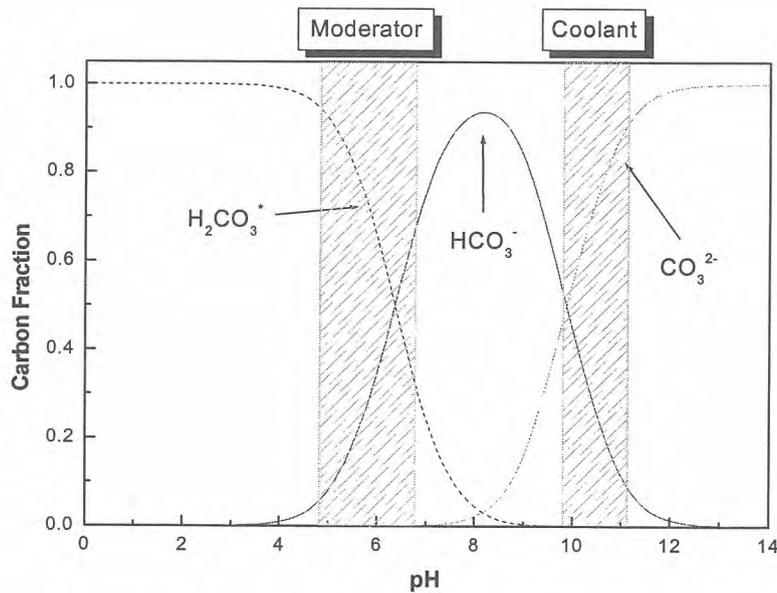


그림 2. 용액 pH에 따른 탄소 화학종( $\text{CO}_2$ ,  $\text{HCO}_3^-$ , and  $\text{CO}_3^{2-}$ ) 분포  
( $\text{H}_2\text{CO}_3^* = [\text{CO}_2] + [\text{H}_2\text{CO}_3]$ )

가압중수로의 경우 계통별로 운전중의 pH가 달라 이들 내에 존재하는 탄소의 형태가 달라지는데  $^{14}\text{C}$ 의 생성에 가장 기여도가 큰 감속재 계통의 운전 pH는 5~6으로서  $^{14}\text{C}$  핵종은 주로 이산화탄소( $^{14}\text{CO}_2$ )와 탄산( $\text{H}_2^{14}\text{CO}_3$ )의 형태로 존재하고, 중탄산 이온( $\text{H}^{14}\text{CO}_3^-$ )은 소량, 탄산 이온( $^{14}\text{CO}_3^{2-}$ )

은 존재하지 않는다. 감속제는 양·음이온 교환수지가 혼합된 수지층을 통과하면서 수지의 작용기인  $H^+$ 이온과  $OH^-$ 이온으로 전환되어 정화되고, 감속제의 pH는 약염기성을 띠는 혼상 수지탑을 통과하면서 pH 7 이상까지 상승하므로, 감속제 내 이산화탄소( $^{14}CO_2$ )와 탄산( $H_2^{14}CO_3$ )의 분율은 감소하고 중탄산 이온( $H^{14}CO_3^-$ )의 분율은 높아져 음이온 교환수지에 의해 제거되는 비율은 증가한다. 또한 pH가 10~11로 운전되는 1차 열수송 계통에서  $^{14}C$  핵종은 중탄산 이온( $H^{14}CO_3^-$ )이나 탄산 이온( $^{14}CO_3^{2-}$ )의 형태로 존재하여 이들 계통내 탄소는 주로 정화계통에 설치된 음이온 교환수지에 의해 100% 제거되어 수지와 함께 저장된다. 그림 1에 나타냈듯이 생성된 전체  $^{14}C$ 의 약 1.5%만이 기체로 방출되며, 계통수 정화용 이온교환수지에 의해서  $^{14}C$ 의 약 95.5%가 제거된다[9].

#### 나. 폐수지 발생 및 저장현황

월성 원전에서 폐수지는  $^{14}C$  핵종이 생성되는 감속제 및 냉각제, 사용후 핵연료 저장 계통 뿐만 아니라 차폐 냉각, 액체 폐기물 처리계통 등 총 9개의 계통에서 발생된다. 표 2는 월성 1발에서 사용 중인 계통별 이온교환수지 사용 현황을 나타내었는데 주로 사용되고 있는 수지는 Rohm & Hass 사에서 제조된 IRN-150 수지로서 열수송정화계통과 사용후핵연료저장 및 냉각계통의 이온교환탑 설계량 1,000L를 제외한 다른 계통은 200L의 설계량을 가지고 있다.

또한 월성 1호기 이들 계통에서 발생한 폐수지의 양은 1982년부터 2003년까지 약 239,486 L이며, 이는 월성 1호기에 설계되어 있는 전체 3개의 폐수지 저장 탱크 중 하나의 폐수지 탱크 용량인 200 m<sup>3</sup>을 넘는 양이며 이를 표 3에 나타내었다. 그 중  $^{14}C$ 과 직접 관련이 되는 감속제계통내에서 발생한 폐수지의 양은 21,411 L로서 전체 발생량의 약 8.94 %에 해당된다.

월성 1발 호기별 폐수지 저장탱크별로 저장되어 있는 폐수지의 발생량을 표 4 나타내었다. 월성 1호기 폐수지 저장탱크 #2는 설계 저장용량이 200 m<sup>3</sup>으로 2002년 6월말 폐수지 저장량 145 m<sup>3</sup>(72.5%)로 포화되어 현재 사용이 불가능하여 폐수지 저장탱크 #1을 사용 중에 있다.

표 2. 월성 1,2호기 계통별 이온교환수지 사용 현황

호기	계 통	탈염기명	수지종류	설계량
1, 2호기	감속제정화계통	M/B	IRN-150(H-OH)	200 ℓ
	열수송정화계통	M/B	IRN-154(Li-OH) IRN-150(H-OH)	1000 ℓ
	차폐냉각계통	M/B	IRN-150(H-OH)	200 ℓ
	사용후핵연료 저장 및 냉각계통	M/B	IRN-150(H-OH)	1000 ℓ
	액체영역제어계통	M/B	IRN-150(H-OH)	200 ℓ
	핵연료교환계통	M/B	IRN-154(Li-OH)	200 ℓ
1 호기	냉각재중수세정계통	Filter	활성탄(A/C)	200 ℓ
		M/B	IRN-150(H-OH)	200 ℓ
		M/B	IRN-150(H-OH)	200 ℓ
		A/B	IRN-78(OH)	200 ℓ
	감속재중수세정계통	Filter	활성탄(A/C)	200 ℓ
		M/B	IRN-150(H-OH)	200 ℓ
		A/B	IRN-78(OH)	200 ℓ
		M/B	IRN-150(H-OH)	200 ℓ
1, 2호기	액체폐기물처리계통	C/B [M/B]	IRN-120h(H) [MB-20(H-OH)]	200 ℓ

표 3. 월성 1호기 각 계통에서 발생된 폐수지의 양(단위 : L)

년도	감속재	열수송	차폐냉각	핵연료 저장	액체영 역제어	핵연료 교환	액체 폐기물	중수세정계통	
								활성탄	수지
1986	2,178	1,990	990	1,188	198	396	-	-	1,584
1987	990	2,100	990	990	198	198	-	-	1,386
1988	1,386	2,970	1,980	594	198	198	-	-	1,584
1989	1,188	3,060	990	990	198	198	-	400	1,188
1990	1,782	3,239	1,990	396	198	198	-	500	1,972
1991	1,601	2,991	3,000	198	198	396	-	800	1,312
1992	396	1,535	2,000	0	198	0	-	800	3,715
1993	1,090	1,090	3,040	400	200	200	200	600	1,000
1994	1,200	3,040	1,000	200	0	200	2,200	1000	2,600
1995	1,000	1,050	1,000	400	200	1,784	2,800	200	1,400
1996	1,400	4,080	0	1,000	200	0	3,000	200	0
1997	800	1,000	200	2,000	400	200	2,105	800	1,400
1998	600	3,000	200	1,000	200	0	7,295	800	1,200
1999	1,000	2,000	1,000	200	200	200	14,210	200	2,600
2000	1,200	1,000	2,000	1,000	200	200	13,525	200	2,200
2001	1,600	2,000	200	2,000	200	200	7,350	1000	3,200
2002	1,000	2,000	-	2,000	200	-	1,615	1000	2,600
2003	1,000	1,000	200	-	-	200	-	800	2,500
합계	21,411(8.9%)	39,145(16%)	20,780(8.7%)	14,556	3,386	4,768	54,300	9,300	33,441
총합	239,486								

표 4. 월성 1발 폐수지 저장 탱크 저장율 현황

구 분		용량(m <sup>3</sup> )	저장량(m <sup>3</sup> )	저장율(%)	비고
1호기	탱크#1	200	72.4	36.2	사용중
	탱크#2	200	145	72.5	포화상태
	소계	400	217.5	54.4	
2호기	탱크#1	200	15.6	7.8	사용중
	탱크#2	200	30.8	15.4	
	소계	400	46.4	11.6	

다. 실험 재료 및 방법

실험 재료

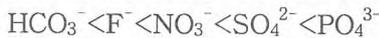
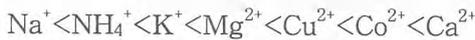
월성 원전에서 사용되고 있는 이온교환수지는 주로 상업적으로 대량 생산되는 유기 이온교환수지로서 강산성 양이온 교환수지로 Amberlite IRN 77을, 강염기성 음이온 교환수지로 IRN 78을 사용하고, 대부분 단독으로 사용되기보다는 양·음이온 교환수지가 혼합된 형태로 사용된다. 실제로

월성 1, 2호기의 감속제 및 냉각제 정화계통 등 여러 계통에서는 IRN 77 수지와 78 수지가 당량비 1 : 1로 혼합되어 있는 IRN 150 수지를 사용하고 있으며[10], 표 5에 이 수지의 물리·화학적 특성을 나타내었다.

실험에 사용된 수지는 IRN 150 으로서 초순수로 충분히 세척하여 밀봉 관리한 후 사용하였다. 사용한 시약은 모두 분석용 특급시약으로  $^{14}\text{C}$  핵종을 모사하기 위해  $\text{NaHCO}_3$ 를 사용하였으며 모의 핵종으로  $\text{CsCl}$ ,  $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 과 탈착 용액으로  $\text{NaNO}_3$  및  $\text{Na}_3\text{PO}_4$ 을 사용하였다.

#### 실험방법

IRN 150 수지의 탄소 흡착 성능을 조사하기 위해 상온에서 수지 0.5, 1, 2, 5, 10g과 0.005N  $\text{NaHCO}_3$  용액 100ml를 24시간동안 회분식 반응 실험을 수행하였다. 또한 탈착 용액에 의한  $\text{HCO}_3^-$  이온의 탈착 가능성을 평가하기 위해, 동일 노르말 농도의  $\text{NaNO}_3$ ,  $\text{Na}_3\text{PO}_4$  용액 및  $\text{HCl}$ ,  $\text{NaOH}$  용액을 탈착 용액으로 선정하였다. 문헌에 의하면 양이온과 음이온의 선택도는 각각 다음과 같다[11].



우선 0.005N  $\text{NaHCO}_3 + \text{CsCl}$ 의 혼합 용액을 제조하여 IRN 150 수지 3g이 충전된 컬럼에 5ml/min의 유속으로  $C_t/C_0$  값이 1을 초과할 때까지 주입하였다.  $\text{CsCl} + \text{NaHCO}_3$ 로 포화시킨 IRN 150 수지에 동일 노르말 농도의 탈착 용액( $\text{NaNO}_3$ ,  $\text{Na}_3\text{PO}_4$  용액 및  $\text{HCl}$ ,  $\text{NaOH}$  용액)을 주입하여 시간에 따른 각 이온의 농도를 측정하였다. 그림 4에 중탄산( $\text{HCO}_3^-$ )이온의 흡·탈착 실험 절차를 나타내었다.  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{PO}_4^{3-}$  등의 음이온은 Metrohm사의 IC(Ion Chromatography)를,  $\text{Na}^+$  이온 및  $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{Cs}^+$  등의 양이온은 Thermo사의 ICP-MS (Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometer)를 사용하여 분석하였다. 용액 내  $\text{HCO}_3^-$  이온의 농도는 Shimadzu사의 TOC(Total Organic Carbon) Analyzer를 사용하여 용액 내 탄소 농도를 측정 후 계산하였다.

표 5. Amberlite IRN 77 & IRN 78 이온교환 수지 특성

	IRN 77	IRN 78
Ionic form	$\text{H}^+$	$\text{OH}^-$
Degree of Cross-linking		6% DVB*
True density(wet)		1.1 g/cm <sup>3</sup>
Void fraction		32.7 %
Particle size	0.4~1.2 mm	0.4~1.2 mm
Effective size	0.5 mm	0.55 mm
Uniformity coefficient	1.8	1.35
Moisture content	55%	50%
pH range	0~14	0~14
Maximum operating temp.	120 °C	60 °C
Total exchange capacity	1.75 meq/ml	1.1 meq/ml

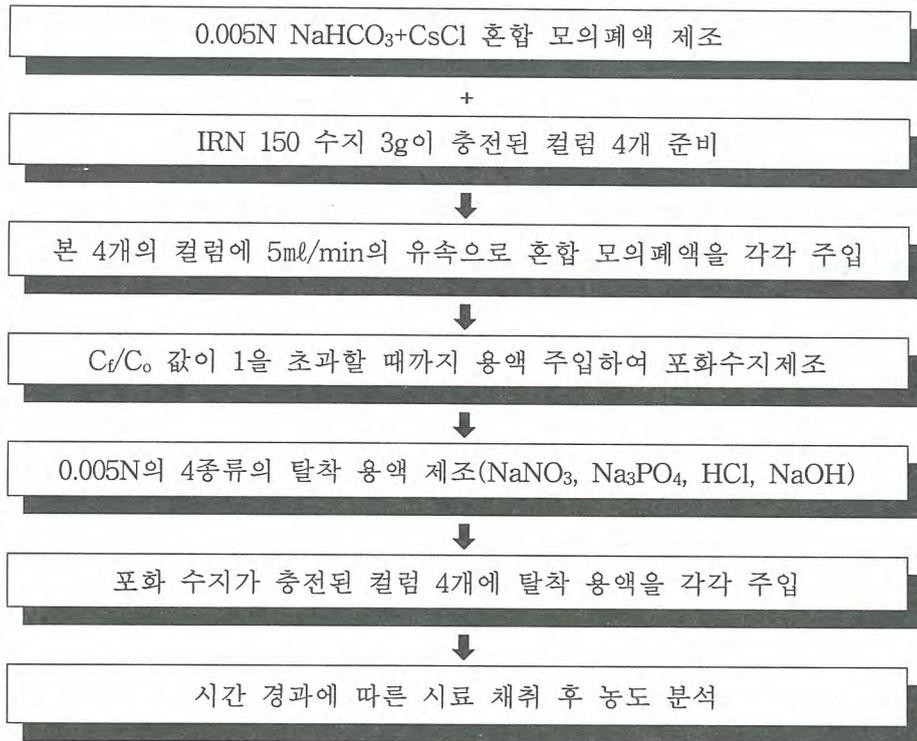


그림 4. 중탄산 이온 흡착 및 탈착 실험 절차

### 3. 결과 및 고찰

그림 5(a)에 IRN 150 수지의 질량 변화에 대한 탄소 제거율을, 그림 5(b)에 수지 단위 질량당 탄소 흡착량을 나타내었다. 탄소 제거율은 수지가 1g일 때 93%, 2g 이상일 경우 약 100% 값을 보였고 수지 단위 g당 최대 탄소 흡착량은 5.7mg/g으로 나타났다.  $^{14}\text{C}$ 은 안정 원소인  $^{12}\text{C}$ 보다 존재비가  $10^{-12}$  정도 낮지만 수지 1g에 흡착된 5.7mg의 탄소를  $^{14}\text{C}$ 이라고 가정하고 방사능을 계산하면, 0.03 Ci(붕괴상수  $\lambda$ 는  $3.8 \times 10^{-12}/\text{s}$ )로서, 즉 IRN 150 수지 1g 당 0.03Ci의  $^{14}\text{C}$ 을 흡착·제거할 수 있다.

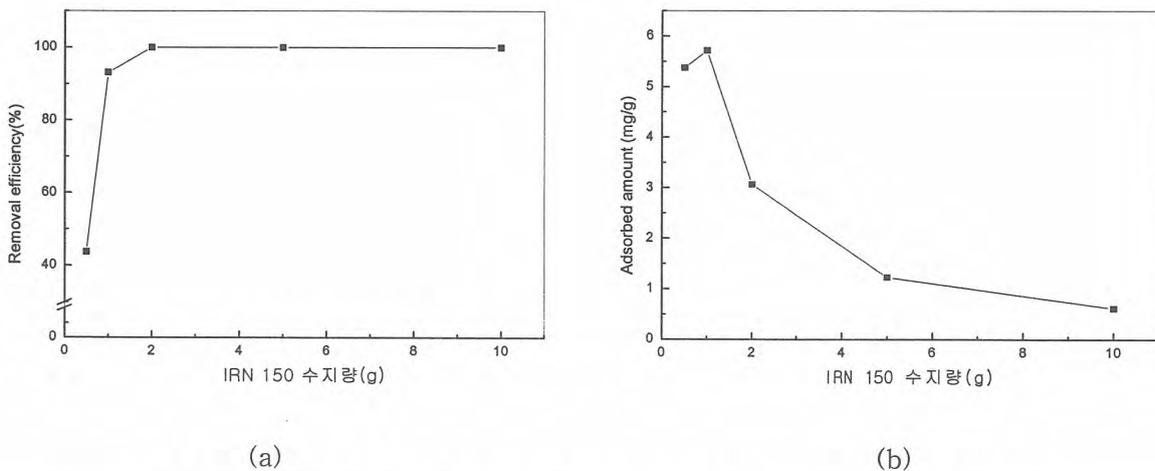


그림 5. 수지 단위 질량당 탄소 제거율(a) 및 수지 단위 질량당 탄소 흡착량(b)

그림 6에  $\text{HCO}_3^-$  이온과  $\text{NO}_3^-$  (I),  $\text{PO}_4^{3-}$  (III) 이온의 흡착 파과 곡선을 나타내었다. 그림 6에 의하면  $\text{HCO}_3^-$  이온은 IRN 150 수지에 흡착되지 못하고 초기부터 유출되어 40분 이후에  $C_t/C_0$  값이 1을 초과하는 초과농도 현상을 보였다. 이는 수지상에 먼저 흡착된  $\text{HCO}_3^-$  이온을  $\text{NO}_3^-$  이온과  $\text{PO}_4^{3-}$  이온이 밀어내고 흡착하면서, 용액상의  $\text{HCO}_3^-$  이온과 수지에서 탈착된  $\text{HCO}_3^-$  이온이 더해져 과량이 유출되었기 때문으로 판단된다.  $\text{PO}_4^{3-}$  이온의 경우  $\text{HCO}_3^-$  이온 및  $\text{NO}_3^-$  이온과 흡착 site를 경쟁하여 초기에 용액 내로 유출되다가 시간의 흐름에 따라 수지에 흡착된  $\text{HCO}_3^-$  이온 및  $\text{NO}_3^-$  이온을 탈착시키고 수지내에 흡착하는 것으로 나타났다. 그러므로 선택도는 문헌과 같이  $\text{HCO}_3^-$  (I) <  $\text{NO}_3^-$  (I) <  $\text{PO}_4^{3-}$  (III) 순으로 나타나 탈착용액을  $\text{NaNO}_3$  및  $\text{Na}_3\text{PO}_4$  용액으로 선정하여 실험을 수행하였다.

이렇게 0.005N  $\text{NaHCO}_3 + \text{CsCl}$  용액으로 포화된 IRN 150 수지에, 동일 노르말농도의 탈착 용액을 주입하여 각 이온들의 탈착 거동을 평가하였다. 그림 7는 탈착 용액을  $\text{NaNO}_3$ 로 사용하였을 때 각 이온들의 탈착 거동을 나타내었다. 그림 7 (a)에 의하면 탈착 용액으로 사용된 Na 이온의 지속적인 주입과 Cs 과의 site 경쟁에서 밀려 탈착된 Na 이온이 더해져  $C_t/C_0$  값이 1을 초과했고, Cs 이온의 경우는 Na 이온보다 선택도가 높기 때문에 탈착율이 크지 않은 것으로 나타났다.

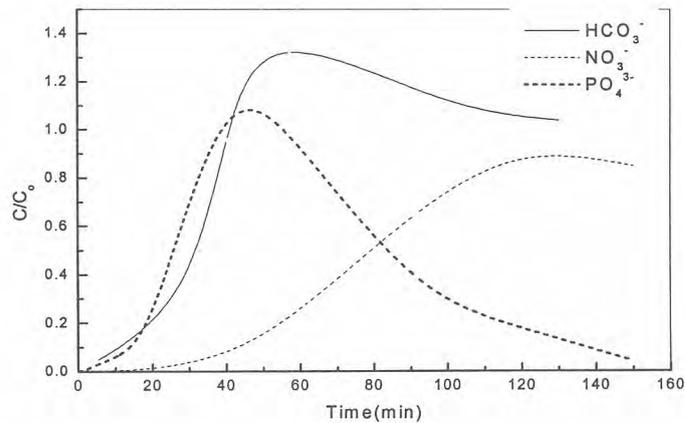


그림 6.  $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{PO}_4^{3-}$  이온의 경쟁 흡착(바탕 양이온 : Na)

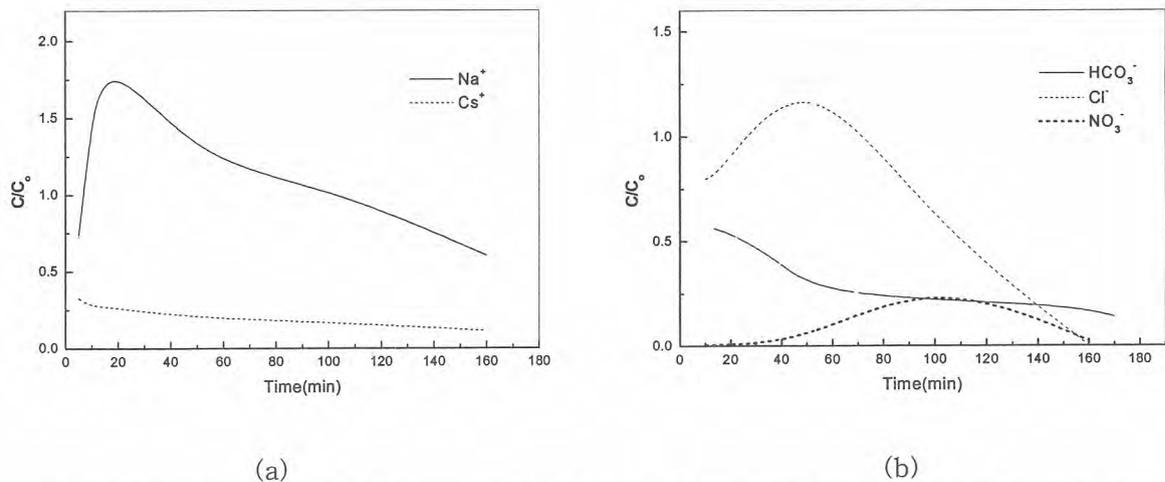
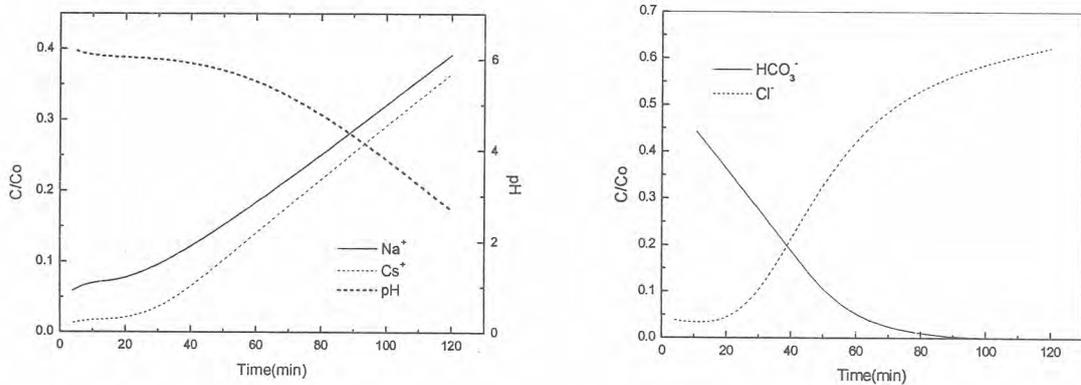


그림 7.  $\text{NaNO}_3$  용액에 의한 2성분(Na-Cs) 양이온 탈착 및 2성분 음이온( $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ) 탈착

그림 8 (b)에  $\text{NaHCO}_3 + \text{CsCl}$ 로 포화된 수지에  $\text{NaNO}_3$ 를 주입하였을 때 탈착되는  $\text{HCO}_3^- - \text{Cl}$  이온과 흡착되는  $\text{NO}_3^-$  이온을 함께 나타내었다. 주입되는  $\text{NO}_3^-$ 에 의해  $\text{Cl}$  및  $\text{HCO}_3^-$  이온의 탈착 반응이 발생하였는데,  $\text{HCO}_3^-$  이온은 느린 속도로 반응이 진행되었다. 수지에 흡착되는  $\text{NO}_3^-$  이온은 100분 경과시 용액중으로 유출되다가 시간이 흐름에 따라  $\text{Cl} - \text{HCO}_3^-$  이온을 탈착시키면서 수지상에 흡착되는 것으로 나타났다. 이 경향은  $\text{Na}_3\text{PO}_4$ 를 탈착 용액으로 사용하여 각 이온을 분리한 결과와도 동일했다. 그러므로  $\text{NaNO}_3$  및  $\text{Na}_3\text{PO}_4$  용액을 탈착 용액으로 사용할 경우  $\text{Co}$ ,  $\text{Cs}$  등의 양이온 핵종이 떨어져 용액으로  $^{14}\text{C}$ 과 함께 유출되는 양은 많지 않을 것으로 판단되어  $\text{HCO}_3^-$  이온의 탈착 용액에 적합할 것으로 생각된다. 그러나 문헌에  $\text{HCO}_3^-$  이온보다 선택성이 크다고 기술된  $\text{Cl}$  이온의 탈착이 더 크게 나타났기 때문에 이에 대한 보완 실험 및 적절한 방안이 요구된다.

그림 8에 강산인  $\text{HCl}$ 을 탈착 용액으로 사용했을 때 각 이온의 탈착 거동을 나타내었다.



(a) 2성분 양이온( $\text{Na} - \text{Cs}$ ) 탈착 및 pH 변화

(b) 2성분 음이온( $\text{HCO}_3 - \text{Cl}$ ) 탈착

Fig. 8.  $\text{HCl}$ 에 의한 각 이온 탈착

그림 8 (a)에 의하면  $\text{Na}$  및  $\text{Cs}$  이온은 산이 주입됨에 따라 탈착율이 점점 증가하여, 탈착 용액을  $\text{NaNO}_3$ 나  $\text{Na}_3\text{PO}_4$ 로 사용했을 경우와는 다르게  $\text{Cs}$  이온이  $\text{Na}$  이온과 비슷한 탈착율을 나타내었다. 그러므로 강산을 탈착 용액으로 사용한다면 폐수지로부터 탈착되어 용액 내로 유출된  $\text{Cs}$ 과  $\text{Co}$  핵종 등을 따로 처리하는 추가 공정이 필요할 것으로 판단된다. 산이 주입됨에 따라  $\text{pH}$ 는 초기 7에서 3 이하로 감소하였는데 이 역시 발전소 계통 부식 등의 문제가 발생할 수 있어 추가 처리 공정이 필요하다.  $\text{HCO}_3^-$  이온의 경우 용액내 유출되는 농도가 감소하였으며  $\text{Cl}$  이온은  $\text{HCl}$  주입 때문에 농도가 증가했다.  $\text{NaOH}$ 를 탈착액으로 사용하여  $\text{HCO}_3^-$  이온을 분리한 결과는 산에 의한 탈착 결과와 마찬가지로 나타났는데,  $\text{Cs}$  이온은  $\text{Na}$  이온의 탈착율과 비슷한 값을 보였으며  $\text{pH}$ 는 초기 8에서 12 정도로 증가하였다.  $\text{Cs}$  이온이나  $\text{Na}$  이온은  $\text{pH}$  12까지 자유 이온으로 존재하기 때문에  $\text{pH}$ 가 증가함에 따른 수산화물 형태로의 침전은 고려하지 않아도 되나  $\text{Co}$  이온이 존재한다면 고농도에서는  $\text{pH}$  6 이상에서도 침전되기 때문에  $\text{NaOH}$ 를 탈착 용액으로 사용하는 것을 제고할 필요가 있다. 또한 탈착 용액을  $\text{HCl}$ 로 사용하였을 경우와 마찬가지로 용액 내로 유출된  $\text{HCO}_3^-$  이온 및  $\text{Co}$ ,  $\text{Cs}$  이온의 추가 공정이 요구되며, 기본적으로 탈착 용액을 사용하여 폐수지로부터  $^{14}\text{C}$  핵종을 추출하는 경우 발전소 액체 폐기물 발생량이 급격히 증가할 것으로 예상되기 때문에 이에 대한 대책 역시 필요하다.

#### 4. 결 론

IRN 150 수지에 대한 탄소화합물의 흡·탈착 특성을 살펴보기 위해 원전에서 실제 사용되는  $H^+/OH^-$  혼합형 이온교환수지인 IRN 150 수지에 대해  $HCO_3^-$  이온의 흡착 거동을 알아보았다. 또한  $HCO_3^-$  이온이 흡착되어 있는 폐수지로부터  $HCO_3^-$  이온을 탈착시키기 위해  $NaNO_3$  및  $Na_3PO_4$ 의 탈착용액을 주입하여 양·음이온의 탈착 특성을 검토하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1)  $Na^+$  이온에 의한  $Co^{2+}$  및  $Cs^+$  이온의 탈착은 발생하지 않았다.
- 2)  $HCO_3^-$  이온보다 선택도가 큰 음이온  $NO_3^-$  및  $PO_4^{3-}$  이온을 사용하였을 때  $HCO_3^-$  이온의 탈착은 잘 일어났으나  $Cl^-$  이온 역시 탈착되었다.

현재 월성 원전은 IRN 78이라는 음이온 교환수지에 의해 이온화된 탄소화합물을 제거하고 있는데 그림 4에서도 나타났듯이  $HCO_3^-$  이온은 수지에 선택성이 낮기 때문에 다른 음이온이 존재한다면 이온교환수지로 제거가 불가능할 것으로 생각된다. 같은 맥락으로 이온교환수지 내 흡착되어 있는 탄소 화합물을 제거할 경우,  $Na_3PO_4$ 에 의한 분리방법이 적당할 것으로 판단된다. 그러나 탈착용액을 사용하여 폐수지로부터 중탄산 이온을 제거할 경우, 액체 폐기물 발생량이 급증할 것으로 예상되므로 신중한 접근이 필요할 것으로 판단된다.

#### 감사의 글

본 연구는 산업자원부에서 주관하는 전력산업연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

#### 참고문헌

1. NCRP, "C-14 in the Environment", NCRP Report No. 81, 1985.
2. G. R. Doshi and T. M. Krishnamoorthy, Bull. Rad. Prot. 15(2), 1992
3. 중·저준위 방사성폐기물 천층처분시설 개념설계 종합보고서(부록), 한국전력공사, 9-14 (2000)
4. Silica-based 무기이온교환수지를 이용한 방사성폐액 처리 공정 개발, 한수원(주) 원자력환경기술원 (2002)
5. Anderson, E. C., Libby, W.F., Weihouse, S., Reid, A. F., Kirshenbaum, A. D. and Grosse, A. V., Natural radiocarbon from cosmic radiation, Physic. Rev., 72, 931-936 (1954).
6. G. L. Haag, Application of the  $CO_2 - Ba(OH)_2$  Gas-Solid Reaction for the Treatment of Dilute  $CO_2$ -Bearing Gas Streams, PhD thesis(University of Tennessee, Knoxville, TN), also published as ORNL-5887, Oak Ridge National Laboratory (1982)
7. ICRP-14, The management of  $14C$  in Canada Nuclear Facilities., Advisory Committee on Radiological Protection (1995)
8. S. R. Peterson, P. A. Davis, R. R. Rao, Modeling Doses from Tritium and  $^{14}C$  in the Environment, RC-1951, Atomic Energy of Canada Limited(AECL) (1997)
9. 이범순, 강덕원, 성기방, 김연희, 중수로 운전중 발생하는 C-14방출 감시기술개발, 한국전력공사 전력연구원, 11-14, (1998)
10. Ion Exchange, Friedrich Helfferich, McGraw-Hill Book Company, 151-180
11. In H. Rhee, "Binary and Ternary cation exchanges : the effect of electrolyte anions on selectivity and adsorption capacity", J of KSEE, 4(3), 195-206, 1999.

## Dissolution Conditions of Solid Radioactive Wastes Generated from NPP for the Analysis of Radionuclides Using a Closed-vessel Microwave Acid Digestion System

원전 발생 고체 방사성 폐기물 내 핵종 분석을 위한  
극초단파 산분해 장치를 이용한 용액화 조건

Hyung-Yeal Pyo, Jeong-Jin Lee, Jong-Seon Jeon\*, Chang-Heon Lee, Kwang-Yong Jee

Korea Atomic Energy Research Institute, DuckJin-dong 150, Yusung-gu, Daejeon

\*ACT Co., LTD Sinil-dong 1688-5, Daedeok-gu, Daejeon

표형열, 이정진, 전종선\*, 이창헌, 지광용  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150  
\*액트 (주), 대전광역시 대덕구 신일동 1688-5

### Abstract

The optimal conditions are obtained for the decomposition of solid radioactive wastes, including ion exchange resin, zeolite, active charcoal, and sludge from nuclear power plant. In the process of decomposing the radioactive wastes were used the microwave acid digestion method with mixed acid. The solution after acid digestion by the following method was colorless and transparent. Each solution was analyzed with ICP-AES and AAS and the recovery yield for 5 different elements added the simulated radioactive wastes were over 94 %. As an effective pre-treatment, the proposed microwave acid digestion conditions concerning the chemical trait of each radioactive waste are expected to be generally applied to above-mentioned radioactive wastes from nuclear power plant hereafter.

**Key Words** : radioactive waste, microwave acid digestion system, dissolution condition

### 요 약

원자력 발전소에서 발생하는 방사성 폐기물인 이온교환수지, 제올라이트, 활성탄 및 슬러지에 포함된 핵종 분석을 위한 최적의 산분해 조건을 확립하였다. 방사성 폐기물의 분해에는 혼합산을 이용한 밀폐형 극초단파 산분해법을 사용하였으며, 제안한 방법에 따른 산분해 후의 용액은 맑고 색이 없는 투명한 상태임을 확인할 수 있었다. 또한, 산분해 과정을 거친 각각의 용액 시료는

ICP-AES와 AAS를 사용하여 분석하였고, 모의 방사성 폐기물에 첨가한 5종의 금속 원소들은 94 % 이상의 높은 회수율을 보여주었다. 화학적 특성을 고려하여 제안된 산분해 조건은 핵종 분석을 위한 효과적인 전처리 방법으로써, 향후 원전의 유형별 방사성 폐기물에 대해 보편적으로 적용될 수 있을 것으로 판단된다.

**중심 단어** : 방사성 폐기물, 밀폐형 극초단파 산분해법, 핵종 분석, 분해 조건

## 1. 서 론

원자력 발전소에서 발생하는 중/저준위 방사성 폐기물을 안정하게 처리하는 방법으로 파라핀, 시멘트 또는 유리 등을 이용하여 고화체로 만들어 저장하는 방법을 고려할 수 있다. (주) 한국수력원자력 산하 원자력환경기술원(NETEC)은 방사성 폐기물의 유리고화시설을 운영함에 있어 유형별 방사성 폐기물에 대한 유리화 공정의 최적화 및 최적의 유리 조성을 개발하기 위해서 원자력 발전소에서 사용하고 있는 것과 동일하고 사용하지 않은 비방사성 시료에 함유되어 있는 무기 성분 원소를 확인하여야 한다. 원전 운용 과정에서 발생하는 액체 방사성 폐기물의 부피를 줄이고 냉각 계통을 안전하게 운영하기 위하여 사용되는 이온교환수지, 제올라이트 및 활성탄, 그리고 슬러지 등을 분석 대상으로 선정하였으며, 이들의 무기 성분 원소 및 핵종 분석을 하기에 앞서 화학적 파괴 방법에 의한 시료의 전처리 과정은 필수적이라 할 수 있다. 이를 위해서는 방사성 폐기물의 형태와 양, 분석 대상 핵종의 화학적/물리적 성질을 고려하여 분해 과정에서 문제점이 발생하지 않는 효과적인 전처리 방법을 선택하여야 한다.

고체 시료들의 용액화 방법에는 산분해법, 혼합산 추출법, 알칼리 용융법, 가압용기 분해법, 극초단파 산분해법 등이 있다[1]. 이러한 전처리 방법 중에서, 방사성 폐기물의 정확한 분석과 함께 방사성 작업 공간 내 방사성 핵종 오염 문제를 최소화 할 수 있는 극초단파 산분해법을 이용하는 것이 효과적이다[2,3]. 이는 기존의 습식 산분해법에 비해 국부가열을 줄이고 산의 소모량 감소, 신속한 전처리 시간, 높은 회수율 그리고 다수의 시료를 동시에 처리할 수 있는 기능을 가지고 있어 방사성 폐기물 시료를 용액화하기 좋은 방법이다[4].

본 연구에서는, 원전에서 사용하는 것과 동일한 미사용 분리 매질의 무기 성분 원소의 분석과 함께 이온교환수지, 제올라이트, 활성탄의 분리 매질에 포착된 핵종의 종류와 농도를 분석하기 전에 비방사성 시료에 대한 최적의 분해 방법을 선정하기 위한 실험 결과를 검토하였다. 비방사성 시료를 이용하여 산의 종류와 양, 분해 시간과 온도 등의 변화에 따른 용액의 상태를 비교한 후 적합한 방법으로 모의 방사성 폐기물을 분해한 후 금속 원소의 회수율을 확인함으로써 각 유형별 비방사성 시료에 대한 최적의 분해 방법을 제안하였으며, 이 분해 조건은 방사성 폐기물 시료에도 적용할 것이다. 또한, 향후 분석하게 될 원전 발생 방사성 폐기물 내에 포함된 핵종의 종류와 농도를 정확하게 파악하기 위한 기초 자료로 사용하기 위해 분해된 비방사성 시료의 성분 원소를 ICP-AES와 AAS를 이용하여 분석하였다.

## 2. 실험

### 2.1. 시료, 시약 및 표준 용액 제조

### 2.1.1 비방사성 시료

방사성 폐기물 중 이온교환수지(음이온, 양이온, 혼합), 제올라이트 및 활성탄은 원자력 환경 기술원(NETEC)을 통하여 현재 원전에서 사용하는 것과 동일하고 사용하지 않은 것을 제공받아 110 °C에서 건조시켜 실온에 보관하면서 시료의 분해에 사용하였다.

### 2.1.2 모의 방사성 폐기물

모의 방사성 폐기물의 분해는 건조된 비방사성 시료 0.05 ~ 0.1 g 정도의 무게를 달아 Teflon 재질의 밀폐형 산분해 용기에 취한 다음, 모의 핵종 분석을 위한 금속 원소(Cs, Fe, Ni, Re 및 Sr) 표준물을 각각 250 µg 씩 취하여 용기에 첨가하여 진행하였다.

### 2.1.3 방사성 시료

원전에서 액체 방사성 폐기물의 핵종 제거에 사용된 이온교환수지(양이온, 혼합, 저준위, 영광 2 발전소), 제올라이트(영광 2발전소), 활성탄(영광 2발전소)의 분리 매질 및 원심분리기 슬러지(영광 3 발전소)는 비방사성 시료와 마찬가지로 NETEC을 통하여 제공받았다. 방사성 폐기물의 분해에 사용될 시료들은 유리 vial에 2 ~ 3 g씩 소분 하였고, 분해 시 사용된 각 시료의 무게와 감마 방사능 정도를 Table 1에 나타내었다. 소분된 방사성 시료들은 110 °C에서 건조시켜 실온에 보관하여 용액화 실험에 사용하였으며, 건조된 시료 자체에서 발생하는 정전기를 최대한 줄이기 위하여 무게 측정 시에 알루미늄 호일로 만든 무게 접시와 종이 수저를 사용하였고, 시료의 비산에 의해 넓은 영역으로 방사성 오염이 되는 것을 방지하기 위하여 윗부분에 접촉면이 있는 크린 매트를 사용하였다.

Table 1. Weight and gamma activity of radioactive wastes

Radiative sample	Weight of sample (g)	Gamma activity (µSv/hr)
Active charcoal	0.05	1.5
Cation ion exchange resin	0.10	1.8
Low level ion exchange resin	0.10	0.2
Mixed ion exchange resin	0.10	0.5
Sludge	0.05	30
Zeolite	0.05	60

### 2.1.4 시약 및 표준 용액 제조

모든 시료의 산분해에는 HNO<sub>3</sub>(Fisher Trace Metal Grade 70%), HCl(Dong yang GR 36%) 및 HF(Merck 48%)를 사용하였고, Cs, Fe, Ni, Re 및 Sr 표준용액은 ICP-AES용 표준용액(Spex plasma standard, 1000 µg/mL, 2% nitric acid solution)을 사용하였다. 실험에 사용한 테프론 용기, 유리 용기, 폴리에틸렌 용기 등은 실험하기 전에 1 M HNO<sub>3</sub>용액에 넣고 하루 동안 방치한 다음 증류수 (전기 전도도 18 MΩ 이상)로 깨끗이 헹구어 건조시킨 후 사용하였다.

### 2.2 시료 분해 및 성분 원소 분석 장치

방사성 안전 작업을 위하여 무게 저울과 밀폐형 극초단파 산분해 장치(Milestone Model Ethos Plus, Italy)는 이차 방사능 오염이 되지 않도록 특수 제작된 glove box에 넣고 사용하였다. 각 시료의 최적의 산분해 조건으로부터 얻은 용액은 증류수를 이용하여 최종 부피를 각각 25 ml 용량(비방사성 시료, 모의 방사성 시료), 20 ml 용량(방사성 시료)으로 하였다. 시료의 금속 원소 회수를 계산을 위한 성분 원소(Fe, Ni, Re 및 Sr)의 농도 분석은 mono channel ICP-AES(JOBIN

YVON Model JY 38 Plus, France)와 multi channel ICP-AES(JOBIN YVON Model JY 50 P)를 사용하였으며, Cs의 농도는 AAS(Perkin Elmer Model 3100, USA)를 사용하여 측정하였다. 산분해 후 용액화 된 방사성 폐기물 시료의 분석을 위해서는 glove box에 내장되어 있는 ICP-AES(Thermo Jarrell Ash, IRIS Shielding Spectrometer, USA)를 사용하였다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 이온교환수지(음이온, 양이온, 혼합, 저준위)

음이온교환수지를 분해하기 위해 첨가했던 HNO<sub>3</sub> 10 ml, HCl 1 ml 및 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 1 ml의 혼합산에 0.05 g의 비방사성 시료가 완벽하게 분해되지 않아서 HNO<sub>3</sub>의 양을 12 ml로 늘리는 반면, 산분해 시 발생할 gas로 인한 압력 증가로부터 폭발 위험을 줄이기 위해 HCl과 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>를 첨가하지 않고 전체 산의 부피에는 변화가 없도록 조절하였다. 건조된 음이온교환 수지 0.05 g을 HNO<sub>3</sub> 12 ml와 함께 산분해 용기에 넣고, 실온에서 시료와 시약의 반응이 일어나도록 30분 정도 방치한 후 극초단파 산분해 장치에 넣고 산분해 조건을 180 °C (ramping 10 min/soaking 5 min), 200 °C (ramping 5 min/soaking 5 min), 240 °C (ramping 5 min/soaking 40 min)으로 설정하여 처리하였다. 반응이 끝난 후 산분해 용기의 뚜껑을 열어 육안으로 관찰하였을 때는 시료가 완전히 분해되어 투명한 용액 상태였으나, 25 ml 부피 플라스크에 희석해 실온에 방치해 두었더니 용액이 부분적으로 뿌옇게 변했고 흰색 덩어리가 생겼다. 산의 조성과 양, 산분해 온도와 시간에 변화를 주어 음이온교환수지의 분해를 시도하였으나 매번 비슷한 결과를 보여주었다. 따라서, 음이온교환수지의 용액화를 위해서는 용기 내의 급격한 변화를 줄이기 위해 단계적으로 온도를 올렸던 기존의 방법 대신 240 °C까지 온도를 한 번에 올리는 것이 극초단파 산분해 장치로부터 출력되는 에너지를 효율적으로 사용할 수 있을 거라 판단되어 Table 2과 같은 조건으로 산분해해 보았다. 극초단파 산분해 장치를 이용해 산분해한 용액을 25 ml 부피 플라스크에 희석해 실온에 하루 정도 방치해도 전체 수용액이 맑고 투명했을 뿐만 아니라, 원심 분리 했을 때도 층이 분리되어 얇은 것으로부터 음이온교환수지가 완벽하게 분해된 것임을 알 수 있었다. Table 2에 나타낸 산분해 온도와 시간의 조건은 음이온교환수지 0.1 g의 분해에도 효과적이었으며, 양이온교환수지 뿐만 아니라 혼합이온교환수지를 분해하는데 적용할 수 있었다.

Table 2. Acid mixtures and reaction condition for decompositions of non-radioactive, stimulated radioactive, and radioactive ion exchange resin

	Stage	MW1 (Temperature control)	MW2 (Power control)
Reagents	1	12 ml HNO <sub>3</sub>	12 ml HNO <sub>3</sub>
Digestion time (min)	1	20	25
Temperuatre (°C)	1	170(5), 240(5), 240(10)	-
Power (watt)	1	-	290(4), 400(10), 300(1), 250(10)

이온교환수지를 분해하여 투명한 수용액으로 만드는 최적의 산분해 조건은 비방사성 시료의 반복적인 실험을 통하여 확립하였고, 이 조건에 근거하여 모의 방사성 폐기물과 울진 2 발전소의 증기 발생기 취출수에서 발생된 0.0054 µSv/h (0.10 g)의 감마 방사능이 있는 저준위 이온교환수지

0.10 g을 분해하였을 때, 투명한 용액이 되는 것을 확인하였다.

### 3.2 Cs 선택성 제올라이트

Cs 선택성 제올라이트는  $\text{SiO}_4$ 와  $\text{AlO}_4$  사면체로 이루어진 다공성 알루미늄 실리케이트 결정을 기본 구조로 갖는 무기이온교환수지로서 이온교환능력이 우수함으로 원전 발생 방사성 핵종인 Cs 흡착에 사용된다[5]. 물질의 분해에 가장 많이 쓰이는  $\text{HNO}_3$  6 ml와 제올라이트에 결합되어 있을 금속 원소를 용해하기 위해  $\text{HCl}$  2 ml, 제올라이트의 실리케이트( $\text{SiO}_2$ )를 분해하기 위해  $\text{HF}$ 과 함께 사용하였으나, NETEC으로부터 제공받은 Cs 선택성 제올라이트가 포함하고 있는 정확한 Si의 양을 모르기 때문에  $\text{HF}$ 의 비율을 임의로 0.5 ml를 넣고 제올라이트 0.05 g의 분해를 시도하였다. 산분해 용기에 시료와 산을 넣고 실온에서 반응이 일어나도록 약 30분 정도 방치한 후 극초단파 산분해 장치에 넣고 산분해 조건을 170 °C (ramping 5 min), 230 °C (ramping 5 min/soaking 10 min)으로 설정하여 처리하였을 경우, 육안으로 보기에는 제올라이트 알갱이가 모두 사라졌지만 용액이 약간 탁해 보였다. 이 용액을 25 ml 용량으로 회석하여 원심 분리한 결과, 두 층으로 분리되어 아래층은 흰색의 젤상이 형성되는 것을 볼 수 있었다. DC-Arc AES의 측정으로부터 이는 과량의  $\text{HF}$ 으로 인하여 제올라이트의 분해에 사용되지 않고 남아 있는  $\text{F}^-$ 가 Ca, Al과 착화합물을 형성했기 때문이다[6]. 제올라이트에 포함되어 있는 원소와 착화합물을 형성하는 과량의  $\text{HF}$ 을 제거하기 위해 과량의  $\text{H}_3\text{BO}_3$ 로 여러 번 처리하거나 극초단파 산분해 장치로 처리하였으나 이미 형성된 착화합물을 제거할 수 없었다. Essling에 의해 제안된 제올라이트의 분해법[7]으로부터 제올라이트 0.05 g에 물 6 ml,  $\text{HNO}_3$  3 ml 및  $\text{HF}$  0.25 ml를 첨가하고 Table 3과 같은 조건으로 분해하였고, 25 ml 용량으로 한 후 원심 분리를 한 결과 위의 경우와 달리 층이 분리 되지 않는 것으로부터 이는 제올라이트를 분해하는 적합한 방법이라 여겨진다. 산분해 온도를 230 °C까지 높이고자 했지만 200 °C 정도로 산분해 온도로 유지되었으며, 이는  $\text{HNO}_3$  보다 끓는 점이 낮은  $\text{H}_2\text{O}$ 가 많은 것에 기인한다.

Table 3. Acid mixtures and reaction condition for decompositions of non-radioactive, and radioactive zeolite

	Stage	MW1 (Temperature control)	MW2 (Power control)
Reagents	1	6 ml $\text{H}_2\text{O}$ , 3 ml $\text{HNO}_3$ , 0.25 ml $\text{HF}$	6 ml $\text{H}_2\text{O}$ , 3 ml $\text{HNO}_3$ , 0.25 ml $\text{HF}$
Digestion time (min)	1	20	25
Temperature (°C)	1	170(5), 200(5), 200(10)	-
Power (watt)	1	-	290(4), 400(10), 300(1), 250(10)

Cs 선택성 제올라이트를 산분해하여 용액으로 만드는 최적의 조건은 비방사성 시료로 반복적인 실험을 통하여 확립하였고, 이 조건(Table 3)에 근거하여 1.2963  $\mu\text{Sv/h}$  (0.05 g)의 감마 방사능이 있는 제올라이트 0.05 g을 물 6 ml,  $\text{HNO}_3$  3 ml 및  $\text{HF}$  0.25 ml를 사용하여 분해하였다. 용액화된 제올라이트의 성분 원소를 ICP-AES와 AAS로 분석하기 위하여 기기의 시료 도입부를 손상시키는  $\text{HF}$ 의 함량을 줄이기 위해 다시 10배 회석하여 측정하였다.

### 3.3 활성탄

다양한 세공구조를 가진 탄소로서 무정형인 활성탄은 수처리 분야에서 독성 유기물 제거, 정수장의 고도정수처리용으로 사용되고 있으며, 원자력 발전소에서는 방사성 액체 폐기물 내에 존재하는 휘발성 핵종  $^{131}\text{I}$ 의 기체상과 핵분열 과정에서 발생하는 기체상의 핵종을 선택적으로 제거하여 액체 폐기물의 부피를 줄이는데 사용되고 있다. 열적으로 안정한 6각형의 방향족 구조를 형성하고 있어 용매제에 의해 추출되지도 않고, 화합물에 의해 제거되지도 않는 안정적인 구조를 가지고 있기 때문에 이를 분해하여 맑고 투명한 용액을 얻는데 많은 어려움이 예상되었다. 활성탄을 분해하기 위해 180 °C(5-10 min)에서 금속 성분 뿐만 아니라, 대부분의 유기물을 산화시키는  $\text{HNO}_3$ 과 강력한 산화제인  $\text{H}_2\text{O}_2$ 를 혼합 사용하였다. 0.05 g의 활성탄을 산분해 용기에 넣고  $\text{HNO}_3$  12 ml와  $\text{H}_2\text{O}_2$ 를 첨가한 후, 활성탄과 산의 반응에 의해  $\text{NO}_x$  가스가 발생하는 약 30 분 동안 실온에 방치하여 극초단파 산분해 장치를 이용하여 산분해하는 동안 과잉의 압력으로 인한 폭발 사고를 없애고자 하였다. 활성탄의 분해가 쉽지 않아  $\text{HNO}_3$ 의 산화력을 증가시켜 주기 위해 산분해 온도를 200 °C에서부터 240 °C까지 변화를 준 데 이어 시료의 양을 0.04 g으로 줄이고, 여러 번 반복 실험한 결과 분해되지 않고 활성탄이 남아 있는 경우가 대부분이었지만, 일부는 활성탄 입자가 모두 분해되어 맑고 투명한 용액이 되었다. 또, 같은 실험 조건이었는데도 불구하고 매 실험마다 극초단파 산분해 장치로부터 출력되는 에너지가 다르게 나타났다. 극초단파 산분해 장치로부터의 일관성이 없는 출력(에너지)으로 온도를 일정하게 유지(temperature feedback control)하는 것 보다 출력을 일정(power control)하게 유지하는 것이 실험 결과의 재현성 측면에서 볼 때 활성탄을 분해하는데 적합한 방법이라고 판단된다. 또한, 온도를 조절하여 산분해 할 때 사용하는 온도 감지계를 빼고 산분해하기 때문에 조작이 간편한 이점을 가지고 있다. 분해되지 않고 남아있는 활성탄의 완벽한 분해를 위해서 한 번의 산 분해가 끝난 후  $\text{H}_2\text{O}_2$  1 ml를 첨가하고 Table 4에 있는 방법으로 다시 한 번 분해하는 과정이 요구되었으며 그 결과, 활성탄이 모두 분해되었고 무색의 맑고 투명한 용액이 되었다.

Table 4. Acid mixtures and reaction condition for decompositions of non-radioactive, and radioactive active charcoal

	Stage	MW
Reagents	1	12 ml $\text{HNO}_3$ , 1 ml $\text{H}_2\text{O}_2$
	2	1 ml $\text{H}_2\text{O}_2$
Digestion time (min)	1	50
	2	50
Power (watt)	1	250(10), 400(9.5), 280(0.5), 230(17), 210(13)
	2	Repeat one

활성탄을 분해하여 투명한 용액으로 만드는 최적의 조건은 비방사성 시료로 반복적인 실험을 통하여 확립하였고, 이 조건에 근거하여 모의 방사성 폐기물과 0.0308  $\mu\text{Sv/h}$  (0.05 g)의 감마 방사능이 있는 활성탄 0.05 g이  $\text{HNO}_3$  12 ml와  $\text{H}_2\text{O}_2$  2ml를 사용하여 분해되는 것을 확인할 수 있었다.

### 3.4 슬러지

원자력 발전소의 원심분리기 슬러지는 중/저준위 폐기물로서, 비방사성 시료의 예비실험 없이 본 분해 실험에서는 영광 3 발전소의 원심분리기에서 발생된 0.4584  $\mu\text{Sv/h}$  (0.05 g)의 감마 방사능이 있는 폐슬러지를 제올라이트와 비슷한 조건으로 산분해 하였다. 0.05 g의 슬러지를  $\text{H}_2\text{O}$  6 ml,  $\text{HCl}$  3 ml 및  $\text{HF}$  0.25 ml와 함께 산분해 용기에 넣고 Table 5에 나타낸 조건으로 처리하였으며, 한 번의 조작으로는 슬러지가 모두 분해되지 않고 다량이 남아 있어  $\text{HNO}_3$  3 ml를 첨가하여 같은 조건으로 다시 산분해 하였다.

Table 5. Acid mixtures and reaction condition for decompositions of radioactive sludge

	Stage	MW
Reagents	1	6 ml $\text{H}_2\text{O}$ , 3 ml $\text{HCl}$ , 0.25 ml $\text{HF}$
	2	3 ml $\text{HNO}_3$
Digestion time (min)	1	25
	2	25
Power (watt)	1	250(4), 400(10), 280(1), 230(1), 210(10)
	2	Repeat one

### 3.5 시료의 성분 분석 결과

Table 6은 모의 핵종으로 선정된 Cs, Fe, Ni, Re 및 Sr을 첨가한 모의 방사성 폐기물의 입자가 모두 분해된 상태에서 ICP-AES, AAS의 측정을 통해 얻은 금속 원소의 회수율을 나타낸 것이다. 극초단파 산분해 방법에 의해 용액화 된 모의 방사성 폐기물에 포함된 핵종의 회수율은 94 % 이상이며, 이온교환수지를 제외한 제올라이트와 활성탄의 산분해 조건이 다름에도 불구하고 핵종의 회수율은 비슷한 경향을 보인다. 이로부터, 혼합산과 극초단파 산분해 장치를 사용한 재현성 있는 시료의 분해는 방사성 시료가 포함하고 있는 핵종의 손실을 최대한 줄일 수 있어 신뢰성 있는 분석 결과를 얻을 수 있다.

비방사성 시료와 방사성 시료의 대한 원전 발생 방사성 폐기물의 분석 대상 원소들을 중심으로 성분 원소 측정 결과를 Table 7에 나타내었으며, 방사성 시료 내의 B, Mg, Li, Mn의 농도가 비방사성 시료에 비해 매우 높은 것을 볼 수 있다.

Table 6. Recovery of amount of 5 metals in simulated radioactive ion exchange resin

	1	2	3	AVG $\pm$ RSD
Cs (%)	102.22	98.00	103.11	101.11 $\pm$ 2.70
Fe (%)	95.80	100.40	102.00	99.40 $\pm$ 3.24
Ni (%)	99.60	102.40	100.40	100.80 $\pm$ 1.43
Re (%)	98.40	103.60	100.00	100.67 $\pm$ 2.65
Sr (%)	94.80	98.00	97.40	96.73 $\pm$ 1.76

#### 4. 결 론

원자력 발전소에서 발생하는 이온교환수지, 제올라이트, 활성탄, 슬러지등과 같은 방사성 폐기물의 용액화를 위해 밀폐형 극초단파 산분해 장치를 이용하였으며, 이 방법이 실제 방사성 폐기물 내에 포함된 핵종을 분석할 때 적합한 방법인지를 확인하기 위해 금속 원소들을 첨가하여 모의 방사성 폐기물을 만든 후 같은 산분해 조건을 적용하여 보았다. 그 결과, 금속 원소들은 94 % 이상 회수되었음을 ICP-AES와 AAS의 분석을 통해 확인할 수 있었다.

각각의 모의 방사성 폐기물의 완벽한 용액화를 위해 혼합산 비, 시료의 양과 적절한 산 분해 과정을 변화시켜줌으로써 밀폐형 극초단파 산분해 장치를 이용한 분해 방법을 확립하였으며, 이 방법에 의해 분해된 비방사성, 방사성 시료 용액 내의 성분 원소의 분석은 추후 방사성 폐기물에 포함된 핵종의 종류와 농도를 정확하게 파악하는데 필요한 기초 자료로 사용될 것이다.

#### 5. 참고문헌

1. A. Tsolakidou, J. B. I. Garrigos and V. Kilikoglou, *Analytica Chimica Acta*, 474 (2002) 177
2. D. N. Papadopoulou, G. A. Zachariadis, A. N. Anthemidis, N. C. Tsirlganis and J. A. Stratis, *Analytica Chimica Acta*, 505 (2004) 173
3. P. J. Lamothe, T. L. Fries and J. J. Consul, *Analytica Chimica Acta*, 54 (1986) 1881
4. A. Agazzi and C. Pirolab, *Journal of Microchemistry*, 67 (2000) 337
5. R. Harjula, J. Lehto, J. H. Pothuis, A. Dyer and R. P. Townsend, *Journal of the chemical society faraday transactions*, 11 (1993) 1877
6. H. M. Kingston and S. J. Haswell, *American chemical society, Washington, DC, Microwave-Enhanced chemistry*, (1977) 292
7. A. M. Essling, E. A. Huff and D. G. Graczyk. Argonne National Laboratory, *Innovative methods for inorganic sample preparation, ANL/ACL-92/1* (1992)

Table 7. ICP-AES and AAS results of non-radioactive and radioactive wastes from NETEC

	Active charcoal		Low level resin		Mixed resin		Cation resin		Sludge		Zeolite	
	used	raw	used	raw	used	raw	used	raw	used	raw	used	raw
Al	149±28	0.3±137*	158±106		1.3±168*	114±99	225±26	13±92	14±5.0*		78±5.4*	32±13*
B	1.0±3.8*	11±200	15±30		236±7.9	7.8±55	303±3.1	<5	767±4.0		602±4.6	26±22
Ca	357±14	0.4±15*	90±145		19±2.6*	58±59	376±9.1	13±28	3.3±12*		13±3.9*	0.5±49*
Co	5.8±9.6	<5	1.3±9.9		0.9±16	4.1±63	4.1±7.7	<5	184±4.2		6.4±36	12±2
Cr	12±37	-	2.4±38		7.5±104	-	2.9±49	-	3.0±13		16±22	-
Cu	38±12	-	14±21		20±27	-	12±19	-	8.6±9.4*		14±4.7	-
Fe	757±22	38±34	74±95		778±78	15±20	542±4.6	13±16	421±6.4*		19±5.4*	19±11*
K	172±27	-	200±9.9		3.9±10*	-	5.2±3.2*	-	2.4±6.6*		15±4.3*	-
Li	7.9±33	<5	5.8±25		76±8.0	<5	119±2.6	<5	19±17		23±4.7	<5
Mg	120±25	<5	41±150		10±3.7*	3.9±640	16±1.1*	7.5±16	5.0±7.9*		5.4±6.6*	3.0±17*
Mn	9.1±136	-	1.4±109		259±3.3	-	133±2.0	-	5.3±5.5*		89±10	-
Na	162±49	-	131±124		22±4.1*	-	38±3.0*	-	1.7±17*		18±1.3*	-
Ni	26±123	7.6±10	3.4±9.9		3.0±33	4.6±28	57±2.8	3.2±22	26±7.4*		9.4±4.7	20±38
Si	300±15	0.7±97*	324±117		4.0±170*	<5	64±15	55±49	43±5.6*		240±5.5*	294±8*
Zn	26±36	65±15	1.0±76		14±26	17±165	145±1.1	25±32	9.0±5.0*		70±15	0.2±15*

unit: µg/g, \*: mg/g (Average±RSD)

## **Long-term Dissolution Behavior of Cesium from Spent PWR Fuel in Contact with Compacted Bentonite under Synthetic Granitic Groundwater**

Kwan Sik Chun, Seung Soo Kim, Seong Jea Bak and Jongwon Choi

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duckjin-dong, Yuseong-gu, Daejeon

### **Abstract**

The amount of cesium released from the leaching of spent fuels in contact with and without the compacted bentonite block, which was compacted as the density of  $1.4\text{g/cm}^3$ , up to 5.7 years were measured and the empirical formula of the fractional release rate of cesium were derived from these measured values. The empirical formulas show that the long-term release rate of cesium under a repository would become a constant, as about  $3 \times 10^{-6}$  fraction/day, after a certain period. The cumulative fractions of cesium released from the spent fuel with bentonite and with copper and stainless steel sheets were steadily increased, but the fraction from bare fuel was rapidly increased and then sluggishly increased. However, the remained value except its gap inventory from the cumulative fraction of cesium released from bare fuel was almost very close to the others. This suggests that the initial release of cesium from bare fuel might be dependant on its gap inventory.

### **1. Introduction**

The R&D for the disposal of spent fuels accumulated up to our NPPs' lifetime at the Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI) has been performed since the early 1997 in order to develop a reference repository system in Korea up to the year 2006. This program is in the early stage of the second year R & D in the third phase (2003-2006). The results up to the present recommend that the repository system would be located in the plutonic rock and consisted of vertical emplacement boreholes in separate disposal panels for spent CANDU and PWR fuels, corrosion resistant containers, which their PWR and CANDU spent fuels are encapsulated into, and domestic Ca-bentonite buffer layers[1].

Many experimental results have been reported for the dissolution behavior of spent nuclear fuel and unirradiated  $\text{UO}_2$  in water under various conditions [2-7]. Most of the studies on the dissolution of unirradiated  $\text{UO}_2$  pellet with bentonite have been carried out and only a few experiments have been tried for the identification of dissolution mechanism of spent nuclear fuel in a repository condition [8-10], which is not well known with the lack of real data. In

KAERI, the long-term dissolution experiment of spent PWR fuel has been carried out under the compacted bentonite and synthetic granitic groundwater since June of 1998. The purpose of this experiment is to get the information on corrosion behavior of spent fuel and release rate of radionuclides from the fuel within our domestic bentonite and synthetic granitic groundwater in order to support the development of radionuclide release model from spent fuel in the near field and the identification of the release mechanism, and finally to support the performance assessment of our reference disposal concept. The results obtained up to the present are described in this paper.

## 2. Experimental

### 2.1. Preparation of specimens

The rod of spent PWR fuel cut to about 3mm thickness with a diamond blade. The burn-ups of the specimens were presumed to be 39,089 and 37,805 MWD/MTU for J44-H08 and J-44-A03 discharged from Kori-2 Nuclear Power Plant, respectively, and their initial enrichment of U-235 had been 3.4869wt.%. Then all the specimens were weighted and photographed by an optical microscope.

### 2.2. Leach test

Domestic Ca-bentonite, which was compacted to  $1.4\text{g}/\text{cm}^3$ , was filled into the under-part of a leach cell ( $43\text{mm}\Phi \times 33\text{mm}$ ) except space to hold a specimen, and one specimen was put in the space. Then, the under-part was bolted with the upper-part in which only the compacted bentonite was filled. The leach cell was put into 450ml of synthetic granitic groundwater (Table 1) as leachant in a bath ( $135\text{mm}\Phi \times 180\text{mm}$ ). The stainless steel 316L was used for the fabrication of the leach cells and the baths. And stainless steel filters with the pore size of  $10\mu\text{m}$  were put at the top and bottom sides of the leach cell in order to prevent the release of the compacted bentonite into the leachant by its swelling. The leachant was purged with Ar for over 15 minutes in order to remove oxygen, and all baths were kept in an Ar-filled box at a little higher pressure than that in the hot cell. For the comparison of the effect of bentonite on the leaching of spent fuel, some specimens without bentonite were put into baths. And two bare spent fuel fragments were leached into water baths with and without metal sheets. All the loaded specimens have been emplaced in a hot cell for their leaching test at ambient hot cell temperature (see Fig. 1).

Table 1. Composition of synthetic granitic ground water

Element	K	Sr	Mg	Li	Ca	Zn	Mn
Concentration (mg/L)	0.75	0.19	0.58	0.09	10.5	0.08	0.01
Element	HCO <sub>3</sub>	Cl	SO <sub>4</sub>	CO <sub>3</sub>	Na	F	Fe
Concentration (mg/L)	74.9	18.9	25.3	9.9	50.8	7.69	0.04

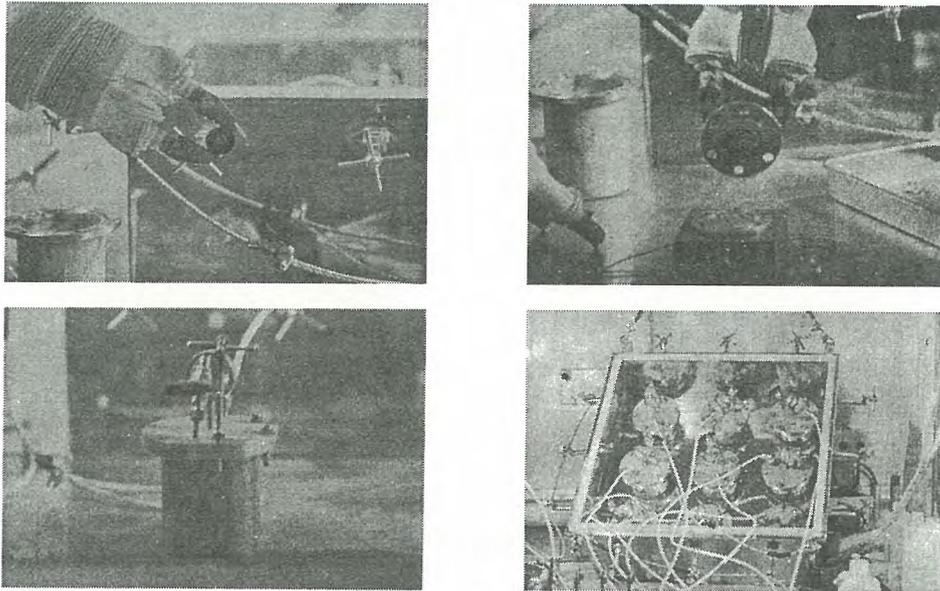


Fig. 1. Photograph of leach cells and water baths in the hot cell

### 2.3. Analysis

About 10ml of the leachates from each bath was sampled after a certain period of leaching and the activities of these leachates were measured by using  $\gamma$ -spectrometer (EG&G ORTEC ADCAM-100). The copper and stainless steel sheets from the leach cell for the specimen were taken out, settled into the 5M HNO<sub>3</sub> solution for one day, and then the activities of the solution has been measured. Some cells with the bentonite blocks were dismantled after a certain period of their leaching and then the bentonite blocks in contact with their specimens were sliced at a certain thickness as around 7 pieces. And the sliced bentonite layers were dissolved and the activities of cesium in the solutions were measured.

### 3. Results and discussion

The fractional release rates of cesium from spent fuel specimens up to 2092days are illustrated in Fig. 2. This figure shows that the release rates of cesium from the specimens are rapidly decreased up to a certain periods and then become a constant. This shows very similar

tendency to Forsyth's result[11]. In the presence of bentonite or metal sheets the constant rate would reach at around 400 to 500 days later, while the time when the rate from the bare spent fuel become a constant would require far more longer period than these.

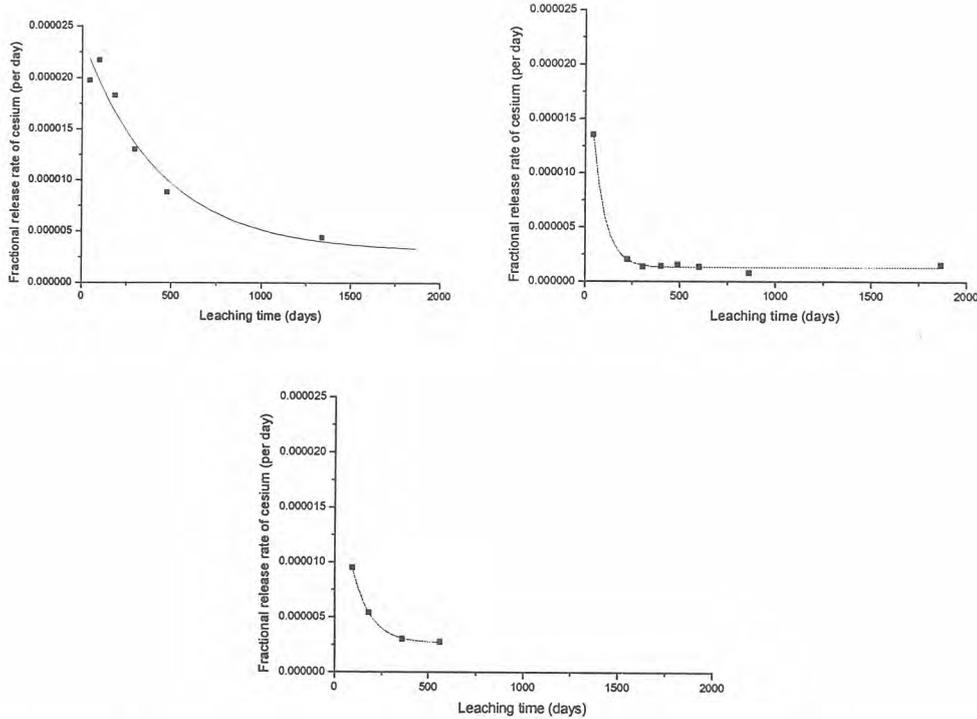


Figure 2. Fractional release rates of cesium as a function of leaching time

From the measured values the empirical formulas of the fractional release rates of cesium are derived as the following equations :

For bare fuel :  $R_o = 3.05 \times 10^{-6} + 2.08 \times 10^{-5} \text{Exp}[-2.29 \times 10^{-3} * T]$  .....(1) and

For only metals :  $R_m = 1.29 \times 10^{-6} + 2.38 \times 10^{-5} \text{Exp}[-1.55 \times 10^{-2} * T]$  .....(2) and

For bentonite :  $R_b = 2.67 \times 10^{-6} + 1.85 \times 10^{-5} \text{Exp}[-1.05 \times 10^{-2} * T]$  .....(3),

where  $R_s$  are the fractional release rates, as fraction per day, and  $T$  is the leaching time, as days. These equations indicate that the long-term release rate from the bare fuel specimen would be around  $3.05 \times 10^{-6}$  fraction/day, which is in the same range of Forsyth's results[11]. This rate is over two times higher than that without bentonite and with metal sheets, but a little higher than that from the specimen in contact with bentonite block. These lower rates may be due to the effects of waste package material(s) and bentonite material on the dissolution rate of cesium. This suggests that the long-term release rate of cesium under a repository condition would be not more than that from the spent fuel in contact with bentonite block.

The cumulative fractions of cesium released from the specimens up to around 1600 days

are shown in Figure 3. This figure shows that the fraction of cesium released from the bare fuel specimen is rapidly increased up to around 400days and then sluggishly increased, while the fractions from the others are steadily increased and these fractions are very close each other. The fraction from the bare fuel up to about 400days is about  $7 \times 10^{-3}$ , which is very close to the gap inventory of cesium ( $6 \times 10^{-3}$ )[12], and up to about 1560days is about  $9.7 \times 10^{-3}$ , which is higher than the results of Finn et al.[13,14] but lower than that of Forsyth[15]. The cumulative fraction of cesium released from the bare fuel except its gap inventory is almost the same as the fractions from the others,  $2.6 \times 10^{-3}$  up to 1640days for only metal sheets and  $3.1 \times 10^{-3}$  up to 1118 days for bentonite. This suggests that the initial release of cesium from bare spent fuel would be dependant on its gap inventory, but the amount of the initial release could be reduced due to the presence of bentonite or waste package materials. This may be due to the formation of alteration products that could incorporate cesium[16].

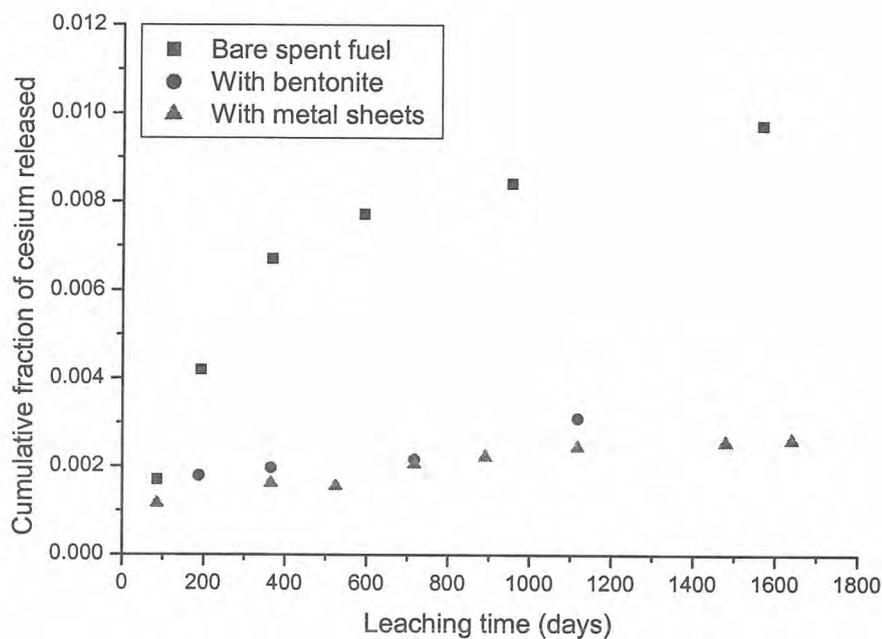


Fig. 3. Cumulative fractions of cesium released by leaching up to about 1600days

The specific activity of cesium contaminated on copper sheets was approx.  $0.41 \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ , which was about ten times higher than that on stainless steel sheets. This means that copper could be more favorable material for the retardation of cesium than stainless steel. On the other hand, the total fraction of the cesium contaminated on the copper and stainless steel sheets was about  $3 \times 10^{-5}$ , which was about two order lower than the amount of cesium in the leachate. This suggests that some other effect(s) by waste package material(s) could be affected on the dissolution of cesium from spent fuel.

The distribution of cesium in the bentonite block is illustrated in Figure 4. This shows that most of cesium released from the specimen is accumulated on the bentonite close to the specimen and the sorption band is getting wide with the increase of leaching time.

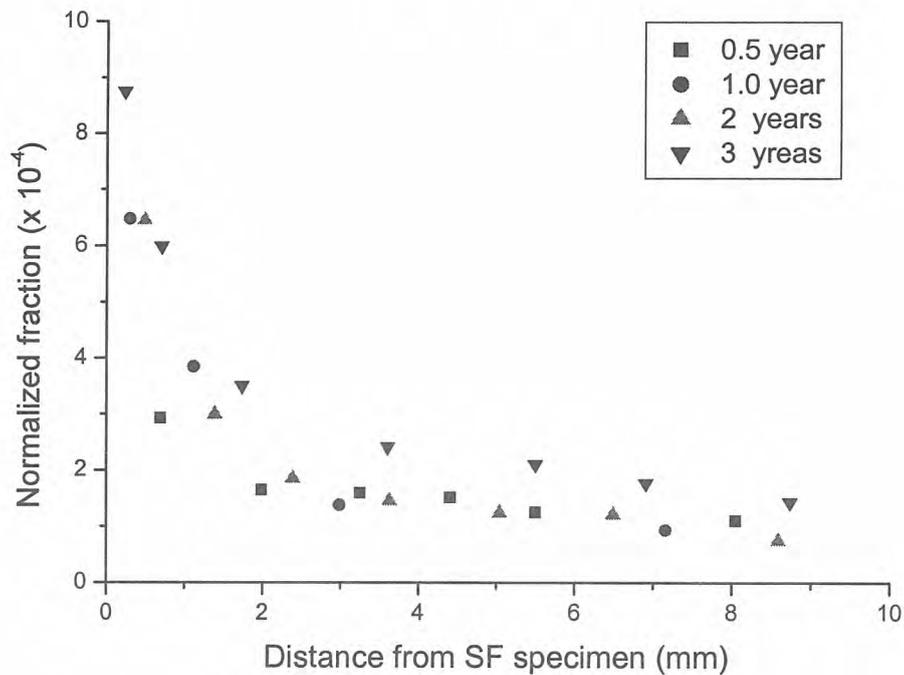


Figure 4. Distribution of cesium in bentonite block

To identify the effects of bentonite and waste package materials on the dissolution of cesium from spent fuel, the further research should be required.

#### 4. Conclusions

To identify the long-term leaching behavior of spent PWR fuel under a repository, the spent fuel exposed in their leachant up to 5.7 years and these leachates were collected, and their cesium activities were analyzed.

The empirical formulas of the fractional release rates of cesium, which are derived from the current measured values, indicate that the long-term release rate of cesium from spent fuel under a repository condition would become a constant as about  $3 \times 10^{-6}$  fraction/day.

The experimental results suggest that the cumulative fraction of cesium released from spent fuel could be reduced by the presence of bentonite and/or waste package materials. However, the further research should be required for the identification of the incorporation of cesium into an alteration product of spent fuel under the presence of bentonite and/or metals.

## Reference

1. C.H. Kang et al., "Geological disposal system development", KAERI/RR-2336/2002 (2003).
2. J.A. Serrano et al., "Comparison of the leaching behavior of irradiated fuel, SIMFUEL, and Non-irradiated UO<sub>2</sub> under oxic conditions", *Radiochimica Acta*, vol.82, p.33 (1998)
3. K. Lelous et al., "Leaching of spent fuel and simulated fuel in the presence of environmental materials : Integral experiments", *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, vol.506, p.191 (1998)
4. D.J. Wronkiewicz et al., "Ten-year results from unsaturated drip tests with UO<sub>2</sub> at 90°C : Implications for the corrosion of spent fuel", *J. Nucl. Mat.*, vol.238, p.78 (1996)
5. R.S. Forsyth, L.O. Werne and J. Bruno, "Preliminary study of spent UO<sub>2</sub> fuel corrosion in the presence of bentonite", *J. Nucl. Mat.*, vol.160, p.218 (1988)
6. J.C. Tait, S. Stroes-Gascoyne, R.J. Porth,, D. Wood and R.B. Heimann, "Leaching of used CANDU fuel in the presence of clay, titanium, and granite rock", *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, vol.127, p.309 (1989)
7. L.H. Johnson and J.C. Tait, " Release of segregated nuclides from spent fuel", SKB-TR-97-18 (1997)
8. Y. Albinsson, R. Forsyth, G. Skarnemark, M. Skalberg, B. Torstenfelt and L. Werne, , (*Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* 176, Boston, U.S.A., 1989) pp.559-565.
9. H. Rameback, M. Skalberg, U.B. Eklund, L. Kjellberg and L. Werne, *Radiochimica Acta* 82, 167 (1998).
10. K. Lelous et al., "Leaching of spent fuel and simulated fuel in the presence of environmental materials : Integral experiments", *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, vol.506, p.191 (1998).
11. R. Forsyth, An evaluation of results from the experimental programme performed in the Studvik hot cell laboratory, 1997.
12. S.S. Kim, K.S. Chun, Y.B. Kim and J.W. Choi, "Initial release of nuclides from spent PWR fuels", *Proceedings of the 4<sup>th</sup> Korea-China joint workshop on nuclear waste management, Feb. 17-19*, p238 (2004).
13. P.A. Finn, R. Finch, E. Buck and J. Bates, "Corrosion mechanisms of spent fuel under oxidizing conditions", *Materials Research Society Symposium proceedings*, Vol.506, p.123 (1998)
14. S.A. Steward, CSNF waste form degradation ; Summary abstraction, ANL-EBS-MD-000015 Rev.00 (2000).
15. R.S. Forsyth, "Spent fuel corrosion and dissolution", *J. Nucl. Mat.*, vol.190, p.3 (1992).
16. E.C. Buck et al., "A new uranyl oxide hydrate phase derived from spent fuel alteration", *J. Nucl. Mater.*, vol.249, p.70 (1997).

## **Application of Dose to Curie Conversion Method using MCNP-4C code for the evaluation of Radionuclide Inventory in a Radioactive Waste Container**

**Sang-hee, Kang, Ki-ha Hwang, Sang-chul Lee, Kun-jai Lee,  
Tae-wook Kim\*, Kyoung-deok Kim\*, Young-hoi Herr\* and Myung-jae Song\***  
Korea Advanced Institute of Science and Technology, 373-1 Guseng-dong, Yuseong-gu, Daejeon  
\*Korea Hydro & Nuclear Power Co. Ltd., 150 Duck-Jin Dong, Yuseong-Ku, Daejeon

It is necessary to perform the radionuclide inventory assessment for the disposal of low and intermediate radioactive waste containers. The  $\gamma$  nuclide analyzer can be used for the assessment of containers. However, if the radioactivity in the containers is extremely low or high, radionuclide inventory of the containers can not be evaluated properly. Also, gamma scanning method is time consuming and has economical burden to the utilities. In order to overcome those difficulty, dose to curie conversion method has been used to assess the radionuclide activities in waste containers in Korea nuclear power plant (KORI site) since 1996. Since then, it has added more nuclear power plant and waste containers, and there has been a research for the improvement of existing methodology in 2000. Thus, further detailed research is necessary for more precise assessment and continuous renewal of data. Dose to curie conversion method estimates the concentrations of  $\gamma$ -emitting radionuclides based on dose rate. The radioactivity of nuclides in containers is obtained by combining of the measured dose rate at the surface of the containers and the data of relative composition of  $\gamma$ -emitting radionuclides and scaling factor. In general, the dose to curie conversion factors are typically determined using computer code and are normally performed for each individual radionuclide at unity concentration in consideration of density of waste and geometry of the container. These results are used to determine the activity of radionuclide. And the  $\alpha$ -emitting and  $\beta$ -emitting radionuclides are calculated by using scaling factor and the relative composition of the radionuclides. The results are used to determine the radionuclide activities. In this study, it is validated that the data calculated by MCNP-4C for the determination of dose to curie conversion factors is reliable through the comparison of the measured data in actual experiments and the calculated one by MCNP-4C. It is concluded that the difference between measured and calculated data can be occurred by the uncertainty associated with parameters, such as the assumption of homogeneity of the waste and radioactive source. For the reduction of related uncertainties and declaration of more important parameters, sensitivity analysis for related parameters should be performed.

## 중·저준위방사성폐기물처분시설 운영기준 수립 방안

### Establishing Managerial Requirements for Low- and Intermediate-Level Waste Repository

정찬우, 이윤근, 김홍태, 박원재, 석태원, 박상훈

한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 구성동 19

#### 요 약

중·저준위방사성폐기물처분시설의 운영, 폐쇄, 폐쇄 후 관리에 관한 세부요건을 수립하기 위해 기본적인 사항들을 검토하고 초안을 제시한다. 처분에 관한 관계법령, 다른 기술기준, 안전성평가 등과의 연계성을 강조하며, 현행 방사성폐기물 인도규정과 더불어 향후 바람직한 발전 방향을 모색한다.

중심단어 : 저준위방사성폐기물, 처분시설, 제도적관리, 인도규정, 안전성평가

#### Abstract

This paper reviews basic considerations for establishing managerial requirements on the domestic low- and intermediate-level radioactive waste repository and presents the corresponding draft requirements. The draft emphasizes their close linking with the related regulations, standards and safety assessment for the repository. It also proposes a desirable direction towards harmonizing together with the existing waste acceptance requirements for the repository.

Key Words : low-level radioactive waste, repository, institutional control, waste acceptance requirements, safety assessment

#### 1. 서 론

처분시설의 안전관리는 방사성폐기물 특성, 공학적 설계특징, 부지 특성 등과 더불어 그 처분시스템의 장기적인 안전성을 결정하는 요소 중의 하나이다.

방사선안전관리등의 기술기준에 관한 규칙(이하 '방사선규칙' 이라 함) 제79조(천층처분시설에서의 저장·처리 또는 처분)는 중·저준위방사성폐기물 천층처분시설의 운영·폐쇄·폐쇄 후 등 처분시설의 전체 단계에 걸쳐 운영관리에 관한 기본적인 요건들을 규정하고 있으며 세부기술기준은 과학기술부장관이 정하도록 하고 있다.

한국원자력안전기술원(KINS)은 과학기술부에서 시행하는 원자력중장기계획사업의 일환으로 위

에서 언급한 세부기술기준(이하 ‘처분시설 운영기준’이라 함)을 현재 개발하고 있다. 이 논문은 그 중간 결과를 소개하며 의견 수렴을 목적으로 한다.

처분시설에 대한 부지와 처분방식조차 결정되지 않은 시점에서 운영과 제도적 관리에 관한 사항을 논하는 것이 얼핏 무의미하고 성급하게 보일지 모르나 운영관리에 관한 사항도 처분시설 안전성평가에 중요한 입력이 된다는 점에서 오히려 늦은 감이 있음을 인식하여야 할 것이다.

## 2. 기본적인 고려사항

본 연구에서는 처분시설 운영기준을 도출함에 있어 다음의 관점들을 고려하였다.

### (1) 중·저준위방사성폐기물처분시설에 대한 일반 요건으로 개발.

처분방식과 관련하여 우리 원자력법령에서 중·저준위방사성폐기물과 천층처분, 고준위폐기물과 심층처분의 관계는 일대일 대응 관계인지 분명하지 않다. 즉, 동굴처분을 천층처분의 범주에 포함시켜도 천층처분이 중·저준위방사성폐기물에 대한 처분방식을 포괄적으로 지정한다고는 볼 수 없다. 이와 관련하여, 방사선규칙 제79조는 천층처분시설에 관한 요건으로 한정되어 있으나 국내 여건상 중·저준위방사성폐기물처분시설로서 천층처분 이외에 다른 특이한 방식이 채용될 가능성이 희박할 뿐만 아니라 당해 기준은 처분시설의 운영에 관한 사항이므로 일반화될 수 있다.

### (2) 처분시설 운영자가 지켜야 할 요건의 형식으로 제시.

규제 대상 항목을 중심으로 지침을 서술할 수도 있겠으나 당해 기준의 성격상 행정적인 내용들이 많이 포함되는 점을 고려할 때 운영자에 대한 의무 요건 형식으로 서술하는 것이 보다 적절할 수 있으며 이를 통해 처분시설 안전성에 관한 운영자의 책임을 강조하는 효과도 있다.

### (3) 관계법령 및 기술기준들과 연계.

처분시설의 운영에 기초가 되는 안전요건들은 대부분 다른 폐기시설 또는 원자력이용시설에 대한 요건들로부터 인용될 수 있다. 처분 관점에서 폐기물이 갖추어야 할 특성(Waste Acceptance Requirements)에 대하여는 기본적으로 원자력법 시행규칙 제88조에 따른 중·저준위방사성폐기물 인도규정의 폐기물 특성요건을 적용하되 운영자가 당해 처분시설 고유의 특성을 반영하여 자체 ‘인수기준’을 수립·시행할 수 있도록 유연성을 부여하는 것이 바람직하다(표 1 참조). 한편, 안전성분석보고서, 안전관리규정, 방사선환경영향평가서 등 다른 건설·운영허가 신청서류 및 방사선 방호 관계규정들과의 연계성을 강조한다. 그림 1은 처분시설의 운영과 관련한 종합적인 국내 요건체계를 당해 운영기준을 중심으로 정리한 것이다.

### (4) 안전성평가에 기초한 운영관리 계획 및 이행.

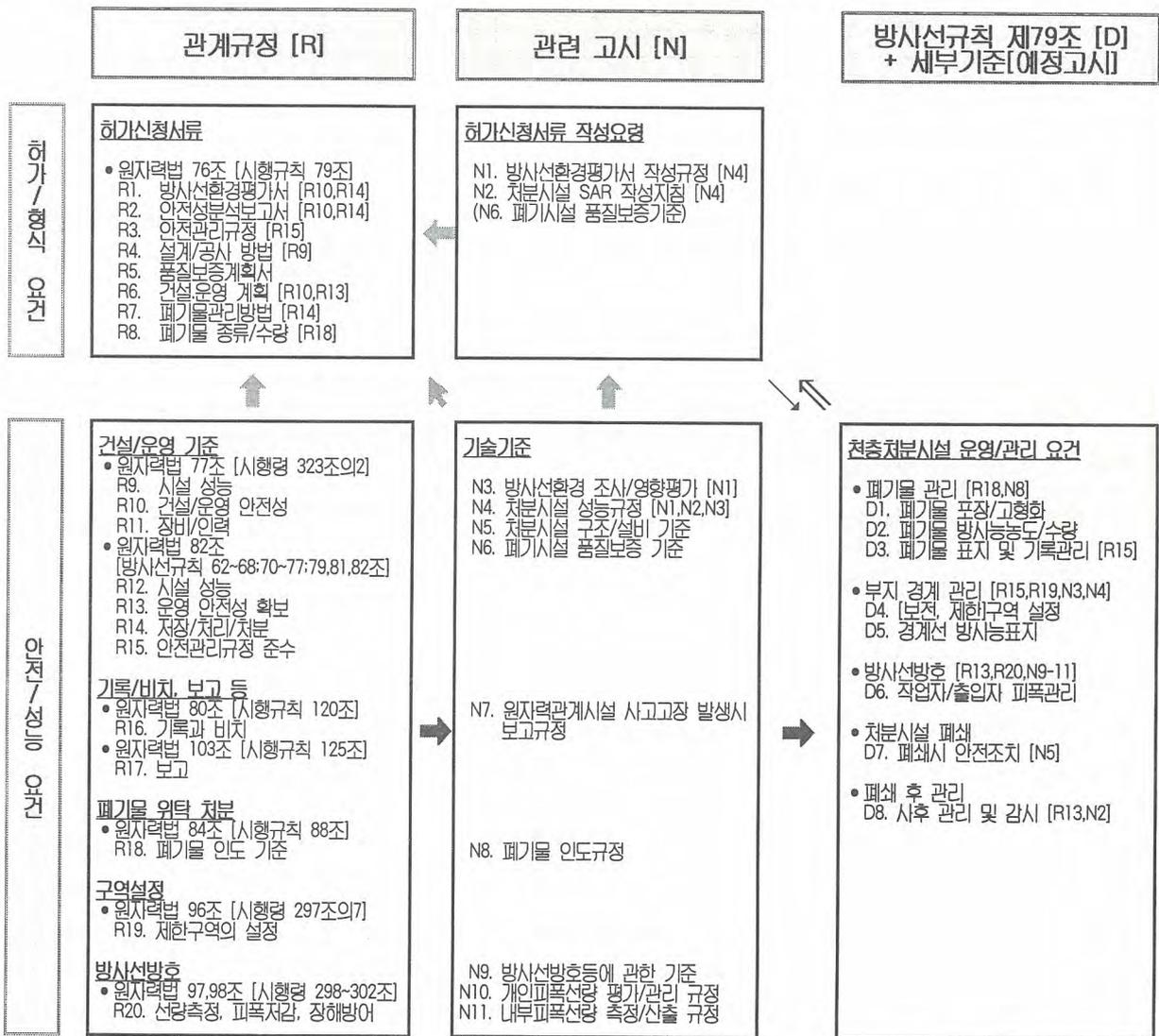
처분시설의 안전성은 체계적인 안전성평가를 통하여 입증될 수 있다. 따라서 처분시스템의 한 축을 이루는 처분시설 운영관리는 전반적으로 안전성평가에 바탕을 두어야 한다. 즉, 기본적으로 반복적인 절차인 안전성평가[1]에서 운영관리 계획은 주요 입력자료로 적용되어야 하며 다시 반복적인 평가를 통해 최적화 되어야 하고 처분시설 운영이 시작된 이후에도 주기적인 재평가를 통해 필요시 갱신되어야 한다. 이것은 운영관리에 관한 기준이 처분시설 건설에 앞서 설정되어야 하는 필요성을 말해준다.

### (5) 폐기물안전협약등 국제규범 반영.

방사성폐기물 안전협약[2]을 비롯하여 처분시설 운영에 관한 IAEA 기준들을 충족하는 것은 처분시설의 기술적인 안전성뿐만 아니라 사회적인 수용성 측면에서도 중요하다.

<표 1> 방사성폐기물 인도규정과 처분시설 운영기준의 관계  
 (\* 표시된 사항은 당해 연구에서 제안하는 내용임)

구분	중·저준위방사성폐기물 인도규정 (과학기술부고시 제2001-32호)	중·저준위방사성폐기물처분시설 운영기준* (’04년 말까지 고시 제정*)
근거규정	원자력법 시행규칙 제88조 (방사성폐기물 인도)	방사선안전규칙 제79조 (천층처분시설에서의 저장·처리 또는 처분)
주요내용	위탁처분 시 폐기물 인도 관련 제한 절차 - 처분대상 폐기물특성 분별 및 제한	처분시설 운영~폐쇄~폐쇄후관리 제반 요건 - 폐기물 포장 및 고품화 : 인도규정 인용* - 처분 방사능농도 : 인도규정 인용* - 처분 방사능수량 : 안전성분석보고서 (기술지침)에 제시하도록 규정* - 보건구역 설치; - 처분시설 폐쇄; 처분시설 폐쇄 후 관리



<그림 1> 방사성폐기물처분시설 운영 및 폐쇄 관련 요건 체계

### 3. 처분시설 운영기준 구성 방안

표 2는 위에서 언급한 기본적인 고려사항들에 바탕을 둔 운영기준의 구성방안이다. 전체적으로는 운영, 폐쇄, 폐쇄 후 관리 등 처분시설 단계별로 구성하되, 공통적이며 기본적인 사항들은 먼저 총칙으로 제시하였고 운영 단계는 다시 시설관리와 폐기물관리로 세분하여 폐기물의 인수 및 처분과 관련한 사항들의 중요성을 부각시켰다.

<표 2> 중·저준위방사성폐기물처분시설 운영기준 구성방안

구분 (장)	조 항	고 려 사 항
제1장 총칙	1. 목적; 2. 적용; 3. 용어 정의; 4. 일반사항; 5. 안전성평가의 갱신; 6. 조직 및 기능; 7. 구역 설정 및 출입자 관리	- 방사선환경영향평가서, 안전성분석보고서, 안전관리규정, 품질보증계획서, 기술지침 등의 준수 의무; 운영절차서 수립 및 이행 - 제한구역, 보전구역, 방사선관리구역 등 구역 설정
제2장 운영 중 처분시설 관리	8. 적용범위; 9. 주기점검 10. 자체 정기검사; 11. 배출감시 12. 방사선방호; 13. 오염방지 및 조치 14. 보수 및 개조; 15. 환경 감시 16. 비상대책등; 17. 기록과 보고	- 안전관리규정의 내용과 부합 - 방사선안전관련 각종 법령 및 기준 적용
제3장 운영 중 폐기물 관리	18. 적용범위; 19. 처분폐기물 특성 20. 폐기물 인수; 21. 폐기물 운반 및 취급 22. 폐기물 표지; 23. 폐기물 저장·처리 24. 폐기물 처분; 25. 품질보증	- 인도기준/규정과 부합 - 운영자 자체 인수기준의 구체화 (폐기물인증방안등 내포) - 안전성분석보고서와 부합 - 폐기물관리행위에 고유한 품질보증계획
제4장 처분시설 폐쇄	26. 적용범위; 27. 일반사항 28. 폐쇄방법; 29. 계통 및 설비의 철거 30. 안전성 재평가	- 안전성분석보고서와 부합 - 안전성분석보고서 갱신
제5장 폐쇄 후 처분장 관리	31. 적용범위; 32. 관리계획; 33. 관리기간 34. 관리방법; 35. 이행; 36. 기록과 보고 37. 관리의 종결	- 안전성평가에 기초한 관리계획 수립 - 행정적 요건 부과 - 제도적 관리의 종결에 관한 요건
부칙	1. 시행일; 2. 복합시설부지에 대한 적용	

현재까지 개발된 운영기준 초안의 전문을 뒤에 별첨하였다.

총칙 부분은 처분시설의 운영이 안전성평가 및 안전성분석보고서에 기초한 적절한 운영절차서에 따라야 함을 강조한다. 구역 설정과 관련하여 제한구역 외부에서는 원자력법 시행령 제323조의2와 이 규정에 따른 처분시설 성능목표치(설계기준 방사선량)가 만족되도록 하는 구체적인 기준을 두었다.

운영중 처분시설관리 부분은 주로 안전에 중요한 기기의 관리와 방사선방호에 관한 기본적인 요건들을 열거하는 바, 그 대부분은 원자력이용시설에 일반적인 내용들이다.

운영중 폐기물 관리 부분은 처분시설에 고유한 내용으로서 폐기물 인수와 처분 전 취급 및 최종적인 처분에 관한 절차와 방법을 상술한다. 처분되는 폐기물의 특성요건으로는 전체적으로 인도 규정의 요건을 채용하되 처분장에서 추가적으로 발생하는 폐기물을 비롯하여 모든 처분대상 폐기물에 공통적인 요건을 부과함으로써 요건의 엄밀성을 추구하였다. 또한, 현행 품질보증계획서가 다분히 기기와 설비 등 시설물의 품질에 초점을 맞추고 있어 폐기물관리와 같은 추상적인 행위에

는 적용상 한계가 있음을 인식하여 폐기물 관리에 고유한 별도의 품질보증계획을 수립하여 이행하도록 하였다.

처분시설 폐쇄 부분에서는 처분고 덮개와 지하 빈 공간의 처리에 관한 일반적인 요건을 부과함으로써 처분시설 설계 및 건설 전 안전성평가에도 기본적인 정보를 제공하며 최종적으로는 안전성평가에 의해 폐쇄의 적합성을 확인하도록 하였다.

마지막으로, 폐쇄 후 관리 부분은 제도적관리의 계획과 종결에 관한 행정적인 절차들을 비교적 자세히 다루고 있으며, 기본적인 관리요령도 예시하고 있다.

#### 4. 운영기준 수립 계획 및 향후 발전 방향

운영기준은 처분시스템의 설계와 안전성평가에 중요한 지침이 될 수 있으므로 사전에 제시되어야 하며, 과학기술부의 방침에 따라 다른 기술기준들과 더불어 2004년 말까지 수립될 예정이다.

초안에 나타난 바와 같이, 처분시설의 운영에는 다른 원자력이용시설에 두루 적용되는 방사선방호와 시설물 관리에 관한 일반원리들이 채용될 수 있으나 당해 처분시스템의 특성을 반영하여 보다 실제적이고 구체적으로 구현될 필요가 있다. 이것은 처분시설 운영기준이 해당 처분시스템의 개발과 운영이 진행됨에 따라 안전성평가의 갱신과 더불어 계속 보완되어야 함을 의미한다.

처분시설 운영기준에서 처분시설에 고유한 부분은 폐기물의 수납과 시설의 폐쇄에 관련된 부분이다. 우리 원자력법령에서 처분시설 운영에 관한 제반사항은 방사선규칙 제79조에 의해 규정된다고 할 수 있으며 처분과 관련한 방사성폐기물 특성요건도 이 조항에서 다루는 것이 일관성이 있다. 이런 맥락에서, 현재 시행규칙 제88조 및 방사성폐기물 인도규정에 들어있는 폐기물 특성요건을 향후 법령과 고시 개정을 통해 방사선규칙 제79조 및 이에 따른 기술기준(처분시설 운영기준)에 넣는 것이 바람직하다. 즉, 규제요건은 처분시설 안전을 위한 기본사항에 초점을 맞추고 그 요건을 이행하기 위한 세부사항은 처분시설 운영자가 해당 업무에 적합하게 수립하여 규제기관의 승인을 받아 시행하면 될 것이다. 이 경우, 현행 인도규정과 관련한 법령 및 기준은 폐지하거나 그 취지에 걸맞게 단순히 폐기물 인도에 관한 행정절차의 형식으로 개정하는 것이 바람직하다. 한편, 현재의 초안에서는 폐기물관리에 고유한 품질보증계획을 요구하고 있으나 향후 현행 품질보증계획서 작성에 관한 법령과 기술기준을 이러한 추상적인 행위를 적절히 망라할 수 있는 형식으로 개정하여 하나의 체계 안에서 통합적으로 다루도록 하여야 할 것이다.

#### 5. 결론

처분시설 운영과 폐쇄 및 제도적 관리에 관한 사항은 해당 단계에서만 아니라 처분시스템의 설계를 위해서도 긴요한 바, 그 규제요건을 수립하는 것은 처분사업의 추진을 위해 매우 시급하다 하겠다. 이와 관련하여 본 고에서는 방사선규칙 제79조에 따른 중·저준위방사성폐기물처분시설 운영기준의 초안을 제시하였다. 이 초안은 국내 관계법령 및 기술기준과 긴밀히 연계하고 처분시설의 안전에 관한 국제규범을 반영하였으며, 국내 고유의 요건으로 확립되기까지 관계전문가들의 적극적인 관심과 의견을 간구하는 바이다(e-mail; jcw@kins.re.kr).

#### 참고문헌

- [1] KINS/RR-119, 중·저준위방사성폐기물처분시설 안전성검증방법, KINS (2002).
- [2] Joint Convention on the Safety of Spent Fuel Management and on the Safety of Radioactive Waste Management, IAEA (1997).

## [별첨] 중·저준위방사성폐기물 처분시설 운영기준 (의견수렴용 초안)

### 제1장 총 칙

제1조 (목적) 이 기준은 원자력법 방사선안전관리등의 기술기준에 관한 규칙 제79조 제2항에 따라 중·저준위방사성폐기물 처분시설(이하 “처분시설”이라 한다)에서의 저장·처리·처분에 관한 세부기술기준을 정함으로써 처분시설의 안전한 운영과 처분시설로 인한 재해의 방지 및 환경의 보전을 목적으로 한다.

제2조 (적용) ①이 기준은 동굴처분 방식을 포함한 모든 중·저준위방사성폐기물(이하 “폐기물”이라 한다) 처분시설의 운영과 폐쇄 및 폐쇄 후 관리에 적용한다.

②중·저준위방사성폐기물 처분시설의 건설·운영자와 폐쇄 후 관리자(이하 “운영자”로 통칭한다)는 당해 처분시설의 운영, 폐쇄 및 폐쇄 후 관리와 관련하여 이 기준을 준수하여야 한다.

제3조 (용어의 정의) ①이 기준에서 사용하는 용어의 정의는 다음과 같다.

1. “부지”라 함은 원자력이용시설을 내포하고 경계 또는 울타리에 의하여 외부와 구분되고 해당 운영기구의 효과적인 통제 하에 있는 영역 또는 원자력이용시설을 건설하기에 적합한지 조사 중에 있는 영역을 말한다.
2. “처분장”이라 함은 처분시설을 내포하고 있는 부지를 말한다.
3. “폐쇄”라 함은 운영이 끝난 처분시설의 상태 또는 운영 수명의 말미에 처분시설에 취해지는 활동을 말한다.
4. “처분고”라 함은 처분시설에서 폐기물이 최종적으로 정치되는 설비로서 방벽에 의해 격리되는 독립적인 폐기물 처분용 구조물을 말한다.
5. “안전제한치”라 함은 처분시설에서 방사성물질의 누출에 대한 물리적 방벽의 건전성을 확보하기 위해 주요 공정변수에 대하여 설정하는 제한치로서 안전성분석보고서에 명시된 수치를 말한다.
6. “운전제한조건”이라 함은 처분시설에서 안전에 중요한 일련의 기기 또는 공정변수가 비정상적인 상태가 되었을 때 안전한 상태를 유지하기 위한 최소한의 운전조건으로서 안전성분석보고서에 명시된 조건을 말한다.
7. “감시”라 함은 방사선피폭의 평가 또는 제어를 목적으로 방사선학적 또는 비방사선학적 파라미터들을 측정하고 그 측정치를 해석하는 것을 말한다.
8. “성능”이라 함은 처분장이 방사성폐기물을 격리하는 데 그리고 설계 요건에 따라 방사선방어의 요건을 만족하는 데 얼마나 유효한가를 나타내는 척도를 말한다.
9. “덮개”라 함은 처분시설에서 폐기물 용기와 포장물 또는 물리적 구조물 위를 덮고 있는 물질이나 이러한 물질들의 층을 말한다.
10. “비정상적 폐쇄”라 함은 예측하지 못한 자연적 및 인위적 사건에 의하여 처분시설의 건전성이 영향을 받아 폐기물을 안전하게 처분할 수 없을 경우에 수행되는 폐쇄활동을 말한다.
11. 처분시설 폐쇄 후 단계에서 “관리”라 함은 처분시설이 설계성능을 유지함을 입증하기 위하여 수행되는 행위를 총칭하는 것으로서 감시, 접근제한, 보수작업 등의 능동적인 활동과 토지사용통제, 기록보관 등의 수동적인 활동을 모두 포함한다.

②상기 용어 이외에 이 규정에서 사용하는 용어의 정의는 원자력법과 동법 시행령, 동법 시행규칙, 동법 방사선안전관리등의 기술기준에 관한 규칙 및 동법과 관련한 과학기술부고시 등이 정하는 바에 의한다.

제4조 (일반사항) ①운영자는 이 기준에 따른 이행계획을 당해 처분시설에 대한 방사선환경평가서, 안전성 분석보고서, 안전관리규정, 품질보증계획서 등 관련 허가신청서류의 해당 부분에 적절히 제시하여야 한다.

②운영자는 이 기준의 이행을 위한 세부적인 절차를 수립하고 당해 처분시설에 대한 사용전검사, 처분검사, 정기검사 등을 통해 규제기관의 검토 및 승인을 받아 적용하여야 한다.

제5조 (안전성평가의 갱신) ①운영자는 이 기준에서 별도로 정하는 경우 이외에도 다음 각호의 경우에 최신의 가용 자료를 바탕으로 당해 처분시설의 안전성을 재평가하고 필요시 제4조 제1항의 안전성분석보고서 등 관련 허가신청서류와 제4조 제2항의 세부절차서를 갱신하여야 한다.

1. 주기적 종합 안전성평가 : 운영허가를 받은 해로부터 10년마다
  2. 수시 안전성평가 : 지진, 홍수 등의 천재지변 기타 처분시설의 방사성폐기물 격리 성능에 영향을 미칠 수 있는 사건이 발생하는 경우
- ②운영자는 처분시설을 운영 및 관리하는 과정에서 얻은 경험과 자료 및 안전성평가의 결과를 바탕으로 안전제한치 및 운전제한조건 기타 처분시설의 안전성에 관한 조건들을 수시로 재평가하고 필요시 보완하여야 한다.

제6조 (조직 및 기능) ①운영자는 처분시설의 운영에 책임이 있으며 처분시설의 운영에 영향을 주는 업무를 수행하는 요원 및 조직의 권한과 임무를 명확하게 문서로서 작성하여야 한다.

- ②처분시설의 종사자는 방사선작업자로서의 요건을 갖추어야 한다.
- ③운영자는 종사자가 처분시설의 운영에 관한 세부절차서의 내용 및 원리를 숙지할 수 있도록 종사자에 대한 종합적인 교육 계획을 수립하여 시행하여야 한다.

제7조 (구역 설정 및 출입자 관리) ①운영자는 처분시설 부지에 대하여 다음 각호에서 정하는 바와 같이 제한구역을 설치하여 관리하여야 한다.

1. 제한구역은 처분시설 및 그 부속시설을 내포하는 하나의 영역으로서 이 영역의 밖에서는 당해 처분시설과 관련하여 원자력법 시행령 제323조의2와 이 규정에 따라 과학기술부장관이 정한 세부기준에 부합하는 구역으로 정한다.
  2. 제한구역의 경계에는 울타리등의 방벽을 설치하고 “처분시설”이라는 글자와 “허가 없이 들어감을 금함”이라는 글자를 포함하는 눈에 잘 띄는 표지를 부착하여 업무상 출입 이외의 출입을 효과적으로 제한할 수 있도록 한다.
  3. 제한구역 안에는 사람의 거주를 금한다.
- ②운영자는 처분시설 부지에 대하여 다음 각호에서 정하는 바와 같이 보전구역을 설치하여 관리하여야 한다.
1. 보전구역은 제한구역 내부의 영역으로서 당해 처분장에서 방사성폐기물을 저장, 처리, 처분하는 구역으로 정한다. (하나의 영역으로 통합하여 설치하거나 둘 이상의 독립적인 영역으로 구분하여 설치할 수 있음)
  2. 보전구역의 경계에는 철조망등의 방벽을 설치하고 “보전구역”이라는 글자와 “허가 없이 들어감을 금함”이라는 글자를 포함하는 눈에 잘 띄는 표지를 부착하여 방사성폐기물의 관리와 출입자에 대한 방사선방호를 효과적으로 수행할 수 있도록 한다.
- ③운영자는 처분시설에 대하여 방사선안전관리등의 기술기준에 관한 규칙 제3조에 따라 방사선관리구역을 설정하여 관리하여야 한다.
- ④운영자는 방사선관리구역 이외의 구역이라도 방사성폐기물의 관리와 관련하여 필요한 경우에는 임시 방사선관리구역으로 설정하여 방사선관리구역에 준하는 관리를 하여야 한다.

## 제2장 운영중 처분시설 관리기준

제8조 (적용범위) 처분시설의 운영을 시작한 시점으로부터 처분시설의 폐쇄를 완료하는 시점까지 처분시설 운영 단계에서 처분시설의 관리에 관하여는 제9조 내지 제17조의 기준을 적용한다.

제9조 (주기점검) ①운영자는 처분시설의 각 설비들이 안전성분석보고서에 명시된 운전제한조건에 해당하는지를 확인하기 위하여 적절한 주기로 점검하여야 한다.

- ②처분시설의 주기점검은 항상 주요 안전기기설비의 성능 및 상태와 처분시설의 주변환경에 미치는 영향을 충분히 고려하여 수행하여야 한다.
- ③운영자는 다음 설비에 대하여는 매일 1회 이상 점검을 실시하여야 한다.

1. 방사성폐기물 취급 설비
2. 계측제어계통설비
3. 배수설비 및 배기설비
4. 비상용 전원설비
5. 방사선방호설비
6. 화재방호설비
7. 기타 처분시설 안전에 중요한 설비

④ 운영자는 주기점검의 결과를 취합하여 이상 유무를 판단한 후 이상이 있는 경우에는 이를 즉시 조치하여야 한다.

제10조 (자체정기검사) ①운영자는 처분시설의 보전에 필요한 자체 정기검사계획을 수립하여 시행하여야 한다.

②제1항의 자체정기검사계획은 다음의 사항을 포함하여야 한다.

1. 안전설비 설정치 확인검사
2. 계측제어설비의 교정 및 기능 시험
3. 방사성폐기물 취급설비의 건전성 확인검사
4. 배수설비 및 환기설비의 성능 확인
5. 기타 처분시설의 안전에 중요한 관련 계통 및 설비 검사

③제1항의 자체정기검사계획에 따른 검사는 안전성보고서에 명기된 안전제한치와 운전제한조건 및 설계상 중요한 안전특성을 감안하여 실시하여야 한다.

제11조 (배출감시) ①운영자는 처분시설 부지에서 제한구역 외부로 배출되는 방사성물질의 농도가 방사성물질 배출 농도기준을 초과하지 않도록 배기 및 배수 중의 방사성물질의 농도를 감시하여야 한다.

②배기 및 배수 감시설비는 설정치를 초과할 경우 경보발령 및 방출밸브의 자동차단 작동이 이루어질 수 있도록 하여야 한다.

③배기 및 배수 감시설비는 지정된 주기로 점검 및 보정을 실시하여 항상 최적의 상태로 작동될 수 있어야 한다.

제12조 (방사선방호) ①운영자는 원자력법시행령 제298조 내지 제300조와 원자력법시행규칙 제114조 내지 제116조 및 이와 관련한 과학기술부고시에 따라 방사선작업종사자 및 수시출입자, 기타 처분시설에 일시적으로 출입하는 모든 인원에 대하여 각 대상에 알맞은 방사선방호를 수행하여야 한다.

②작업자가 상시 출입하는 장소 및 방사선관리가 필요한 장소의 방사선량률과 표면오염도 및 공기중 방사성물질의 농도는 해당 외부방사선량률 한도와 허용표면오염도 및 유도공기중농도를 각각 초과하지 않도록 하여야 하며 초과할 경우에는 별도 관리구역으로 설정한다.

③운영자는 주기적으로 처분시설내의 방사선량률준위, 표면오염도 및 공기중 방사성물질의 농도를 측정하고 그 측정결과가 제2항의 조건을 만족함을 확인하여야 한다.

④제3항의 측정결과가 제1항의 조건을 초과하는 경우 이러한 구역에서 작업하는 자는 적절한 방호용품을 착용하여야 하며 어떠한 경우라도 작업자의 피폭방사선량은 선량한도를 초과하지 않아야 한다.

⑤처분시설을 방문하는 일반인 방문객에 대하여는 방사선방호 업무에 종사하는 직원이 안내하도록 한다.

제13조 (오염의 방지 및 조치) ①운영자는 처분시설 부지에서 폐기물에 의한 방사능 오염과 제염에 따른 폐기물의 발생을 합리적으로 달성 가능한 한 최소화하기 위하여 폐기물관리 공정을 최적화 하여야 하며, 오염이 발생하는 경우에는 확산되지 않도록 제염, 오염확대방지 및 차폐 등의 필요한 조치를 하여야 한다.

②운영자는 처분시설에서 사용한 장비를 외부로 반출하기 위한 방사능오염제한치를 설정하여 운용하여야 하며, 처분시설 내에서만 사용하는 장비에 대하여는 주기적으로 그 오염도를 측정 및 관리하여야 한다.

제14조 (보수 및 개조) ①처분시설의 방사성폐기물 격리 성능을 비롯하여 방사선안전성에 이상이 있다고 판단하는 경우, 운영자는 필요한 보수작업을 실시하여 처분시설을 정상상태로 복귀시켜야 한다.

②처분시설의 안전성에 영향을 미칠 수 있는 보수 및 개조 행위에 대하여는 사전에 제4조에 언급된 허가 신청서류와 관련 절차서의 개정 또는 보완 등 필요한 조치를 하여야 한다.

제15조 (환경감시) 운영자는 처분시설의 운영이 환경에 미치는 영향을 판단하기 위하여 처분시설 운영 중에 원자력이용시설 주변 방사선환경조사 및 방사선환경영향평가에 관한 과학기술부고시의 규정에 따라 처분시설 주변의 환경을 감시하여야 한다.

제16조 (비상대책등) ①운영자는 원자력법 시행령 제301조 및 제302조의 규정을 포함하여 처분부지에서 발생할 수 있는 방사선 비상 및 지진, 화재, 풍수해 등 천재지변의 가상사고를 비롯한 비상 상황에 대처할 수 있도록 비상대책을 수립하고 필요시 이행하여야 한다.

②운영자는 제1항과 관련하여 적절한 비상대응능력을 확보하기 위해 주기적으로 훈련을 실시하여야 한다.

제17조 (기록과 보고) 운영자는 처분시설의 운영과 관련하여 다음 각호에 따라 해당 사항들을 기록·비치 또는 보고하여야 한다.

1. 방사성폐기물의 저장·처리·처분과 관련한 기록과 비치에 관하여는 원자력법 시행규칙 제120조 및 동법 시행규칙 별표 5의 규정을 준수한다.
2. 방사선안전과 관련한 정기보고 사항과 보고기한에 관하여는 원자력법 시행규칙 제125조 및 동법 시행규칙 별표 6의 규정을 준수한다.
3. 처분시설의 사고·고장 발생시의 보고에 관하여는 원자력관계시설의 사고·고장 발생시 보고에 관한 규정 (과학기술부고시)을 준수한다.

### 제3장 폐기물 관리기준

제18조 (적용범위) 처분시설에서 폐기물의 관리에 관하여는 제19조 내지 제25조의 기준을 적용한다.

제19조 (처분폐기물 특성기준) ①처분시설에 처분되는 모든 폐기물은 처분에 따른 장기적인 방사선위해를 방지하기 위해 방사성핵종의 누출을 억제할 수 있도록 적절한 용기에 넣거나 고형화 후에 적절한 용기로 포장하여야 한다.

②운영자는 제1항의 요건을 이행하기 위하여 원자력법 시행규칙 제88조와 폐기물 인도에 관한 과학기술부고시의 규정에 당해 처분시설 고유의 특성을 반영한 상세한 처분폐기물 특성기준을 수립하여 폐기물 처분 업무에 적용하여야 한다.

제20조 (폐기물 인수) ①운영자는 당해 처분시설에서 인수할 수 있는 폐기물의 특성과 폐기물 인수절차에 관한 세부적인 지침(이하 “인수기준”이라 한다)을 수립하여 사전에 폐기물 발생자 또는 폐기물 처분을 위탁하고자 하는 자(이하 “폐기물발생자”라 한다)에게 제공하여야 한다.

②추가적인 처리 없이 직접 처분을 목적으로 폐기물을 인수하는 경우, 제1항의 인수기준은 다음 각호의 사항을 포함하여야 한다.

1. 당해 처분시설에서 처분을 위해 인수할 수 있는 폐기물의 특성과 관련하여, 제19조 제2항의 처분폐기물 특성기준
2. 폐기물발생자가 해당 폐기물이 제1호의 기준에 적합함을 입증하는 데 적용하여야 할 방법과 운영자가 그 부합성을 확인하는 데 적용할 방법
3. 처분시설에서 폐기물을 인수하는 절차
4. 폐기물발생자가 운영자에게 폐기물을 인도할 때 제출하여야 할 서류
5. 제1호의 기준을 만족하지 못하는 폐기물에 대한 운영자의 조치 계획

③운영자는 제2항의 기준에 따라 처분시설에 인도되는 모든 폐기물에 대해 인수검사를 실시하여 해당 인수기준을 만족하는지를 확인하여야 하며, 인수기준에 부합하지 않은 폐기물은 격리·보관하고 제2항 제5호의 조치계획에 따라 조치를 취하여야 한다.

④운영자가 발생자로부터 폐기물을 인수한 후 처분장에서 추가적인 처리를 통해 제19조 제2항의 처분폐기

물 특성기준을 만족시키고자 하는 경우, 제1항의 인수기준은 인수할 수 있는 폐기물의 특성기준과 인수절차를 포함하여야 한다.

제21조 (폐기물의 운반 및 취급) ①처분시설에서 폐기물을 운반할 때에는 방사성물질등의 포장 및 운반에 관한 과학기술부고시의 해당 규정을 만족하여야 한다.

②처분시설에서 폐기물을 하역할 때에는 포장물 외부표면의 오염 및 방사선량률을 측정하여야 하며, 오염된 것으로 판정되면 폐기물포장물의 표면을 제염하거나 덧포장을 하여야 한다.

③운반이나 하역 과정에서 손상된 포장물의 취급을 위해 적절한 환기설비와 방사선차폐 기능을 갖춘 공간을 마련하여야 하며, 손상된 포장물의 취급을 위한 절차를 수립하여야 한다.

④폐기물을 취급하는 장비는 포장물의 중량, 크기 및 방사선량률에 따라 적합하게 선정하여야 하며 양호한 운전상태로 유지·관리하여야 하고, 정기적인 점검을 통하여 오염여부를 확인하여야 하며, 오염이 발생한 경우에는 제염하여야 한다.

제22조 (폐기물의 표지) ①포장물에는 눈에 띄기 쉬운 표면에 방사선안전관리등의 기술기준에 관한 규칙의 별표 1에 의한 방사능표지를 부착하고 표지 위에는 “방사성폐기물”의 글자를, 표지 아래에는 운영자, 폐기물 수량, 방사능농도, 정리번호 기타 해당 포장물에 관한 주요 정보를 기입하여야 한다.

②제1항의 정리번호는 폐기물 인도에 관한 과학기술부고시의 “방사성폐기물 인수의뢰 신청서”에 제시된 포장물의 일련번호와 대응하여 해당 폐기물에 관한 기록과 대조할 수 있는 것이어야 하며, 재포장 또는 덧포장 등에 의해 포장물의 내용물 또는 외형이 바뀌는 경우에도 해당 폐기물의 정보를 추적할 수 있도록 하여야 한다.

제23조 (폐기물 저장·처리) ①운영자는 폐기물발생자로부터 인수한 폐기물을 폐기물 인도에 관한 과학기술부고시의 “방사성폐기물 인수의뢰 신청서”에 제시된 종류 및 특성별로 그리고 처분될 처분고별로 분류하여 저장하여야 한다.

②처분시설을 운영하는 과정에서 발생하는 폐기물의 저장에 대하여도 제1항의 기준을 적용하도록 한다.

③운영자는 처분시설 운영시 발생하는 폐기물의 저장 또는 처리와 관련하여 방사선안전관리등의 기술기준에 관한 규칙 제81조의 규정을 준수하여야 한다.

제24조 (폐기물 처분) ①운영자는 폐기물을 제23조 제1항에 따라 그 종류 및 특성에 맞는 처분고에 처분하여야 한다.

②운영자는 폐기물을 처분고에 정치하기에 앞서 다음 각호의 사항을 이행하여야 한다.

1. 처분고의 폐기물 격리 성능에 이상이 없는지를 확인한다.

2. 처분될 포장물의 정리번호와 그 내용이 정확하며 제19조 제1항의 처분폐기물 특성기준의 관점에서 유효한지를 확인한다.

3. 처분될 포장물에 외관상 이상이 없는지를 최종적으로 확인한다.

③정치된 폐기물 주변의 빈 공간은 폐기물로부터 방사성물질의 확산을 제한할 수 있도록 점토등의 물질로 적절하게 채워야 한다.

제25조 (품질보증) ①운영자는 제4조 제1항에 언급된 처분시설 설계·건설 및 운영에 관한 품질보증계획서(방사선안전관리등의 기술기준에 관한 규칙 제82조)와는 별도로 당해 기준의 제19조 내지 제23조에 고유의 폐기물의 관리에 관한 품질보증계획을 수립하여 운용하여야 한다.

#### 제4장 처분시설 폐쇄기준

제26조 (적용범위) 처분시설을 부분적으로 또는 전체적으로 폐쇄할 때 수행하여야 할 안전조치에 대하여는 제27조 내지 제30조의 기준을 적용한다.

제27조 (일반사항) 처분시설의 폐쇄는 다음 각호의 기준을 만족하여야 한다.

1. 폐쇄는 정상적인 폐쇄와 비정상적인 폐쇄로 구분하여 수행되어야 한다.
2. 폐쇄는 처분시설의 폐쇄를 용이하게 하고 지속적인 능동적 보수의 필요성이 없도록 수행되어야 한다.
3. 폐쇄는 사후 환경감시 및 조사가 용이하도록 수행되어야 한다.
4. 폐쇄는 사전에 허가된 폐쇄계획에 따라 수행되어야 한다.

제28조 (폐쇄방법) 운영자는 다음 사항에 의거 처분시설을 폐쇄하여야 한다.

1. 운영자는 폐쇄시 처분시설이 당해 처분시설에 대한 안전성분석보고서에 기술된 내용을 만족하도록 완성되었음을 입증해야 한다.
2. 처분시설의 최종적인 덮개, 밀폐나 뒷채움 상태는 시설의 기밀성, 필요한 수문학적 성능, 방사성 핵종의 지연, 보수의 최소화 및 침입방지 등을 보장할 수 있도록 허가된 계획에 따라 시공되어야 한다.
3. 최종 덮개를 위한 설계는 부지조건에 따라 다음 사항들을 고려하여야 한다.
  - 가. 지질학적 조건
  - 나. 기상학적 조건
  - 다. 생태학적 조건
4. 폐쇄 중에 유출수의 오염을 방지하기 위하여 침출수 수집계통과 하수도망을 분리 설치해야 한다.
5. 동굴처분이 아닌 천층처분의 경우 덮개의 모양이나 외형은 침식작용에 의하여 가능한 한 영향을 받지 않도록 해야 하며, 또한 주변 자연경관과 조화되도록 해야 한다.
6. 동굴처분의 경우, 방사성핵종의 이동을 막기 위한 배수공, 갱도 및 시추공 등의 뒷채움과 밀폐작업은 이들 공동에 적합한 설계방법이나 재료를 선택하여 수행됨을 입증해야 한다.

제29조 (기타 계통 및 설비의 철거) 운영기간 중 사용된 계통 및 설비의 철거는 다음과 같이 수행하여야 한다.

1. 기타 계통 및 설비의 철거는 처분시설의 안전성에 영향을 주지 않아야 한다.
2. 지하수 또는 침출수가 처분시설의 공학적 또는 자연적 방벽들을 우회하여 배관, 하수계통 및 배수설비 등을 통하여 흐르지 않도록 해야 한다.
3. 건물이나 장치를 철거하는 과정에서 발생하는 폐기물에 대한 관리대책이 마련되어야 한다.

제30조 (안전성 재평가) 운영자는 처분시설 폐쇄 전에 다음 사항을 재평가하여 처분시설의 안전성을 입증하여야 한다.

1. 성능평가기간에 대한 설비, 부지 및 주변지역에 대한 현황
2. 처분된 폐기물의 총량, 운영기간 중 발생하여 처분의 안전성에 영향을 줄 수 있는 사고들의 기록, 처분이 인간과 주변환경에 줄 수 있는 방사선학적 및 비방사선학적 영향 등

## 제5장 처분시설 폐쇄 후 관리 기준

제31조 (적용범위) 처분시설을 폐쇄한 후에 실시하는 처분장 관리에 관한 기술기준에 관하여는 제32조 내지 제37조의 기준을 적용한다.

제32조 (관리계획) ①운영자는 처분시설 폐쇄후관리 업무를 수행하기 위한 계획(이하 “관리계획”이라 한다)을 수립하여 폐쇄후관리를 수행하기 1년 전에 과학기술부장관에게 제출하여야 한다.

②제1항의 규정에 의한 관리계획은 다음 각 호에서 정하는 사항을 포함하여야 한다.

1. 관리기간
2. 관리의 조직과 책임
3. 처분된 폐기물, 처분시설 및 부지의 특성 (폐쇄후관리의 관점에서 정량적으로 서술한다)
4. 관리방법 (관리항목, 항목별 관리요령 등을 기술한다.)
5. 관리업무에 대한 품질보증계획

③운영자가 제1항의 관리계획을 변경하고자 할 경우에는 변경사유서와 변경된 관리계획을 변경 시행 전년도 6월까지 과학기술처장관에게 제출하여야 한다.

제33조 (관리기간) 제32조 제2항 제1호의 관리기간은 다음 각 호에서 정하는 바에 따라 설정되어야 한다.

1. 관리기간은 당해 처분시설의 폐기물 특성, 공학적 설계, 부지 특성, 처분시설과 관련하여 예상되는 사회적 활동, 기록 및 정보유지에 관한 역사적인 경험 등을 고려하여 설정되어야 한다.
2. 관리기간 이후에는 더 이상의 관리활동이 필요 없어야 하며 적절한 방법에 의한 위험도 또는 선량의 계산 결과가 당해 처분시설에 대한 성능목표치를 만족시켜야 한다.

제34조 (관리방법) 제32조 제2항 제4호의 관리방법은 다음 각 호에서 정하는 바에 따라야 한다.

1. 관리방법은 합리적으로 처분시설의 폐쇄성능을 확인하여 방사선방어의 요건을 만족함을 입증할 수 있도록 하는 것이어야 한다.
2. 관리방법은 [별표 1]을 기준으로 하되 당해 처분시설에 대한 체계적인 성능평가의 결과 또는 당해 처분시설 및 부지의 특성에 따라 조정할 수 있다.
3. 시료채취, 기기분석, 성능평가, 관리결과의 평가 등 [별표 1]에 제시되지 않은 사항에 대하여는 공인된 방법을 사용하되, 별도의 방법을 사용하고자 할 때에는 그에 대한 타당성을 입증하여야 한다.

제35조 (이행) 제32조의 규정에 의한 관리계획은 처분시설 폐쇄 직후부터 이행하는 것을 원칙으로 한다.

제36조 (기록과 보고) 처분시설의 폐쇄후관리와 관련한 기록·비치 및 보고에 대하여는 제17조의 기준을 준용한다. 이 경우, 처분시설의 “운영”은 “폐쇄 후 관리”로 본다.

제37조 (관리의 종결) ①운영자가 당해 처분시설에 대한 폐쇄후관리를 종결하고자 할 때에는 다음 각 호에서 정하는 사항을 포함하는 관리종결보고서를 작성하여 과학기술부장관에게 제출하여야 한다.

1. 관리의 종결을 정당화할 수 있는 근거자료
  2. 관리의 종결에 따른 조치 계획 (기록의 영구적 보관 방법, 처분시설의 위치에 관한 영구적 표지 방법을 포함한다.)
- ②과학기술부장관은 제1항에 의한 관리종결보고서가 적절하지 않다고 판단될 때에는 관리업무의 지속, 관리종결보고서의 수정 또는 보완을 명할 수 있다.

## 부 칙

제1조 (시행일) 이 기준은 고시한 날부터 시행한다.

제2조 (복합시설 부지에 대한 적용) ①처분시설 부지에 둘 이상의 원자력이용시설이 있을 경우에는 부지상의 모든 원자력이용시설에 대하여 하나의 통합관리계획을 수립하여 적용할 수 있다.

②제1항의 규정을 적용함에 있어서 원자력이용시설의 운영자가 서로 다른 경우에는 운영자 간에 서면 협정에 의하여 통합관리계획을 수립·운용할 수 있다.

[별표 1] 중·저준위방사성폐기물처분시설 폐쇄 후 관리방법

항 목		주 기	요 령
분 야	세 부 항 목		
방사선환경조사	원자력이용시설 주변의 환경조사 및 영향평가에 관한		과학기술부고시에 따름.
비방사선 환경조사	방사선환경조사 및 성능평가의 기초가 되는 파라미터들 (지하수위, 지하수 성분 등)	연 1 회 측정 및 평가	수리지질학적, 분석화학적 방법 적용
유지·보수	경계울타리; 처분장 표지 (인식표); 처분장 침수	매일	관찰에 의한 확인 점검
	처분장 지표 침식 및 침강	분기	기기측정, 육안관찰
	배수계통	매주	작동검사
	기타 각종 장비 및 시설물	분기	육안관찰, 기기점검
	인위적, 자연적 파손	수시	영향의 추정 및 교정 (성능평가와 연계)
접근제한	처분장 인근에서의 자원 탐사, 대규모 토목공사 등을 포함하여 처분시설의 안전성에 영향을 미칠 가능성이 있는 외부 활동의 계획 또는 시행.	일상적 또는 수 시	예방, 탐지 및 조치
	고의적 또는 우연한 인간침입		부지 경계(警戒)
성능평가	당해 처분시설의 성능목표치	연1회	관리결과와 적절한 모델에 의한 예측결과를 종합하여 평가
기록보관	부지특성조사 서류. 시설설계 및 건설 관련 자료. 폐기물 인수 요건과 절차. 안전성분석보고서. 방사선환경평가서. 처분폐기물의 특성자료. 처분시설과 폐기물의 위치. 기타 처분장 특성 자료. 환경감시의 기록. 운영중 및 폐쇄후 우발적 사건의 기록. 폐쇄 관련 문서. 품질보증 관련 문서. 폐쇄후관리계획 및 이행결과.	연1회 정리 및 보완	기록보관의 조직, 책임, 장소의 설정. 처분의 모든 단계에 포함된 활동들의 완전하고 객관적인 표현을 제공하도록 정리·보관. 폐쇄후 단계에 적절한 정보의 활용과 유지를 보증하기 위해 최신의 것으로 보완. 이용 가능한 형태로 보관되고 쉽게 접할 수 있어야 함.

## **Non-Additive Ranking of Release Scenarios in a Low and Intermediate Waste Repository**

**Seong Ho KIM\***, Tae Woon KIM, and Jaejoo Ha  
Korea Atomic Energy Research Institute  
150 Deokjin-Dong, Yuseong-Gu, Daejeon, Korea  
(\*Corresponding author: shokim@kaeri.re.kr)

In the present study, a multicriteria decision-making (MCDM) problem of ranking of important radionuclide release scenarios in a low and intermediate radioactive waste repository is to treat on the basis of non-additive fuzzy measures and fuzzy integral theory. Ranking of important scenarios can lead to the provision of more effective safety measure in a design stage of the repository. The ranking is determined by a relative degree of appropriateness of scenario alternatives. A MCDM problem is characterized in terms of two factors: relative importance of each evaluation criteria and of appropriateness of each alternative. As an input stage, both importance weights for criteria and preference scores for scenarios with respect to each criterion are obtained through a pairwise comparison in Saaty's analytic hierarchy process (AHP) approach. Then, as a modeling stage, interaction among criteria is dealt with non-additive fuzzy measures such as belief measures and plausibility measures and aggregation of these measures and preference scores is conducted by fuzzy integrals, especially, Choquet integral. Finally, as an interpretation stage, aggregated values are viewed as decision maker's optimistic and pessimistic attitude towards information aggregation. The proposed approach is called a non-additive AHP (NAAHP).

To demonstrate a validation of the proposed approach to ranking of release scenarios, results of the previous AHP study are used and compared with them of the present NAAHP approach. Since the AHP approach uses importance weights based on additive probability measures, the interaction among criteria is ignored. The comparison of scenarios ranking obtained from these two approaches enables us to figure out the effect of different models for interaction among criteria. It is found that the ranking is affected if interaction among criteria is taken into account in a modeling stage. Furthermore, this non-additive AHP approach can provide more easily interpretable information than the classical AHP does. Thus, it suggests that the proposed approach be one of suitable tools to support a decision making problem of the priority among release scenario alternatives.

## 중·저준위 방사성폐기물 처분장 안전성 평가를 위한 시나리오 도출

한지웅, 황용수, 서은진, 이연명, 강철형  
jwhan@kaeri.re.kr

### 요 약

본 연구에서는 한국형 중저준위 방사성폐기물 처분시설 안전성 평가를 위한 FEP 목록 도출 방법 및 선별 원칙들을 제시하였으며, 처분장에서의 핵종 이동 시나리오에 대해서는 생태계의 특성 및 공학방벽에 따라 각각의 RES (Rock Engineering System)를 구성하여 각 상황별 핵종이동을 모사할 수 있도록 제안하였다. 또한 각 시나리오별 안전성 평가를 위하여 적용 가능한 해석 코드를 제안하였으며, 종합 성능 평가를 위한 보완점을 지적하였다. 추후 종합 성능 평가 시스템을 통해 최종적으로 도출될 안전성 평가 결과는 한국형 처분장 설계시에 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

Key Words: 지하수 유동 평가, 방사선적 종합 안전성 평가, 이동 시간, Connectflow

### 1. 서론

병원, 연구기관, 산업체 등에서 원자력을 이용하는 과정에 발생된 각종 방사성폐기물은 인체나 환경에 영향을 주지 않는 상태가 될 때까지 철저한 관리가 필요하다. 중저준위 방사성 폐기물은 지금까지는 각 원전 부지내의 저장고에서 안전하게 관리하고 있으나, 근년 내에 포화량에 다다를 예정이다. 따라서 이러한 중저준위 방사성 폐기물 처분시설의 건설이 시급한 실정이다.

현재 한국원자력연구소를 비롯한 관련 기관들이 동굴처분방식을 대상으로 한국형 처분 안전성 평가와 관련된 다양한 연구를 활발히 진행하고 있다. 이러한 사전 안전성 평가에서 고려되어야 할 주요 사항들은 아래와 같다.

- (1) 처분 동굴 터널 배치도와 같은 처분 터널 및 주변 공학적 방벽 설계 자료
- (2) 처분 터널에 거치될 18 가지 평가 대상 핵종들에 대한 선원항(inventory)정보
- (3) 처분 용기에 함유된 핵종들의 유출 및 인간 생태계로의 이동을 기술하는 사건 (FEP: Features, Events, Processes) 목록 개발
- (4) 사건들로 구성된 처분장 핵종 이동 시나리오(Scenario) 구성
- (5) 각 시나리오 별 안전성 평가를 위한 방법론 설정
- (6) 공학적/천연 방벽의 불확실성을 고려한 입력 인자 설정
- (7) 연간 개인 선량(Annual individual dose)이나 위험도(Risk) 평가
- (8) 수정 설계 및 수정 설계안에 대한 평가

본 논문에서는 최종 안정성 평가 결과 도출에 앞서, 상기 8 단계의 중저준위 방사성폐기물 동굴 처분 안전성 평가 단계 중 (3)-(5) 단계에 대해 각각 방법론을 제시하고자 한다. 위와 같은 과정을 통해 최종적으로 도출된 안전성 평가 결과는 추후 한국형 처분장 설계 시에도 유용하게 활용될 수 있을 것이다.

## 2. FEP 목록 도출

한국원자력연구소에서는 방사성폐기물 동굴 처분장 안전성에 관한 정량적 평가 및 논의의 출발점인 FEP에 관한 상세 분석을 위한 연구를 수행하고 있다. FEP 목록 개발에서 가장 중요한 점은 발생 개연성이 조금이라도 있는 사건들은 모두 포함되어야 한다는 것이다. 1950년대 말부터 미국과 영국에서 저준위 방사성 폐기물에 대한 방대한 FEP목록이 작성되었으며, 최근 OECD의 산하기관인 NEA(Nuclear Energy Agency)에서도 심지층 처분 안전성 평가용 NEA FEP 목록을 작성하였다.

아직까지 국내에서는 중저준위 동굴 처분용 FEP Encyclopedia가 정립되지 않았으나, 현재 한국원자력연구소에서 한국형 FEP 목록을 작성하기 위하여 NEA FEP 목록을 기본으로, 영국 NIREX 및 스웨덴 FEP 목록 등 해외 각국에서 고려하고 있는 사항들을 지속적으로 추가하고 있다. 이러한 FEP 목록은 다양한 이해 당사자(Stakeholder) 계층, 인허가 기관 및 국내외 peer review group 들과의 안전성에 관한 의견 수렴을 위해 필수적인 것이므로 이에 대한 시급한 준비가 요구된다.

향후 저준위 방사성폐기물 동굴 처분과 관련된 FEP 목록이 완성되면, 이들 중에서 과연 우리나라 처분장에서 발생할 수 있는 FEP 들에 대한 선별(Screen)을 해야 한다. 이와 같은 FEP 선별 과정에서 적용할 수 있는 원칙들은 발생 확률, 사건의 영향력, 규제 조건, 부지 특성 등이 있다.

이 네가지 선별 기준 이외에도 일반 대중들의 안전성에 대한 관념(Public Perception)이 있다. 비록 과학적 발생 확률 및 영향이 미미하더라도, 일반 대중들 입장에서 중요하다고 생각될 수 있는 사건들을 대상으로 안전성 평가가 수행되어야 하는 것이 바람직하다.

중저준위 방사성폐기물 동굴 처분 안전성 평가와 관련된 FEP encyclopedia를 확보하기 위해서는 전문적인 바와 같이 보완 연구 사업을 통해 기존 해외 사례들을 이용한 generic FEP encyclopedia를 갖추어야 하며 향후 부지가 확정되면 부지 특성을 고려한 site specific FEP 들을 추가한 전체 FEP encyclopedia를 완성해야 한다.

## 3. 중·저준위 처분장 핵종 이동 시나리오

한국형 중저준위 방사성폐기물 처분 동굴 시설 개념이 안전한가를 평가하기 위해서는 이해당사자들이 공감할 수 있는 방사성 핵종 유출, 이동, 섭취 과정을 모사하는 시나리오가 개발되고, 이에 대한 안전성 평가가 수행되어야 한다.

본 논문에서는 연안에 위치한 중저준위 방사성폐기물 처분 시설을 대상으로 처분장 운영 폐쇄 후 일정 기간 후에 핵종들이 자연스럽게 유출될 것을 가정해 과기부 기술 기준에 정의된 공학적, 천연 방벽을 통해 생태계로 유출되는 핵종 이동 평가 시나리오를 개발하였다. 생태계의 특성에 따라 우물, 강, 해양으로 나누어 RES (Rock Engineering System)를 구성하였다.

그림 1은 공학적, 천연 방벽이 기능을 다하는 경우 강 생태계를 대상으로 처분장에서 고려할 수 있는 다양한 방벽들을 행렬의 대각 요소로 설정하고 이들 대각 요소들의 상호 반응을 비대각 요소로 설정하여 도시한 것이다. 그림을 비교하면 생태계의 차이로 인해 RES 상에 도시된 방벽들의 상호반응들도 달라지는 것을 알 수 있다. 공학적 방벽을 포화시킨 침투 지하수는 처분 드림의 표면을 점 부식(Pitting corrosion)을 통하여 관통하고, 방사성폐기물 고화체와 접촉한다. 일반적인 경우 중저준위 방사성폐기물 처분 용기로부터의 핵종 유출은 이론적인 최고 용해도 유출 혹은 고화체 자체의 유출에 지배를 받는 조화 유출 현상으로 표시될 수 있다. 유출된 방사성 폐기물은 벤토나이트, 시멘트, 벤토나이트/모래 혼합재 등의 공학적 방벽 내에서 주로 확산(Diffusion)에 의해 이동한다.

중저준위폐기물					선원함	
유출 제한	용기					
공극수 조성 최고용해도 결정	정부식 발생결정	벤토나이트/ 암반 혼합재 방벽			확산 흡착	
Eh 결정	부식 물질 이동	재포화	지하수		이류 확산	유입 희석
처분상도		안정성	Pathline 형성	암반	공극률 흡착 매트릭스 확 산	
					핵종이동	유출
처분장위치						감 생태계

그림 1. 강 생태계를 고려한 기준 시나리오 RES

공학적 방벽을 통과해 유출된 핵종들은 국내에서 흔히 존재하는 결정질 암반내의 단열 (Fracture) 및 단열 연결망(Fracture Network)을 통해 이동하며, 주변 매질로 확산(Matrix diffusion)을 통해 유입되고 흡착된다. 대수대로 유입된 지하수는 유동 경로를 따라 우물이나 강, 혹은 바다로 유입되어, 지역 주민에게 전달된다.

#### 4. 기준 시나리오 안전성 평가를 위한 방법론

시나리오가 설정되고 나면 설정된 시나리오에 대한 평가 방안이 도출되어야 한다. 먼저 평가를 위한 대상 시나리오에 대한 세부 사항을 보다 자세하게 과학적으로 기술(AC: Assessment Context)하고, 세부 사항에 대하여 어떤 방법으로 모델링을 개발 적용할 것인가에 대한 작업 흐름도(AMF: Assessment Method Flow chart)가 개발되어야 한다.

##### 가. 처분장 인근 지역

###### (1) 지하수 재포화

본 연구에서는 보수적인 관점에서 처분장 폐쇄 시점으로부터 모든 방벽들이 재포화된다고 가정하고 별도의 재포화 시간을 산정하지 않는다.

###### (2) 용기 수명

현재는 용기 내부의 방사성 핵종들은 매립되자마자 지하수와 접촉하여 유출을 시작한다는 보수적인 관점으로 핵종 유출을 평가한다.

###### (3) 핵종 유출

본 연구에서는 고화체 내 잔류하는 기체 상태의 방사성폐기물의 양이 무시할 수 있으며 미량의 기체가 유출된다고 가정하더라도 지하수에 용해되어 액상으로 이동할 것으로 판단되므로 평가 대상에서 제외하였다.

본 연구에서는 기체 발생으로 인한 공학적 방벽의 손상은 별도로 고려하지 않고 공극률, 확산 계수, 이류 속도 등 유동 인자들에 대한 민감도 분석을 수행하였다.

###### (4) 공학적 방벽(Engineered barrier)에서의 핵종 이동

공학적 방벽에 대한 안전성 평가를 위해서는 최고용해도와 같은 핵종 유출률과 핵종 지연 인자와 공극률, 투수 계수 및 확산 계수와 공학적 방벽들의 두께, 넓이 관련 입력 인자들이 필요하다.

###### (5) 천연 방벽(Far Field)에서의 핵종 이동

현 단계 평가에는 처분 고화체로부터 핵종이 더 이상 유출되지 않는 경우를 의미하는 현상을 모사하지 않고 처분 고화체로부터 핵종들이 계속해서 공급된다고 가정한다. 천연 방벽에서의 핵종 유출률을 예측하기 위해서는 각 암반별 지하수 유동 거리 및 시간과 같은 지하수 유동 평가 결과

와, 천연 방벽에서의 핵종 이동 지연 인자 계수와 공극률, 이류 분산 계수 등이 요구된다.

#### (6) 생태계(Biosphere)

기존 시나리오에 고려하는 생태계는 처분장에서 유출된 방사성 핵종들이 대수대로 유입되어 우물을 통해 지상의 음용수로 사용되거나 관개 및 가축 사육 등에 활용되는 경우이다. 그 외에도 강물 혹은 해양 생태계 경로 등 다양한 경로를 모두 고려한 생태계 평가가 필요하다.

이러한 생태계 영향 평가를 위해서는 천연 방벽에서의 핵종 유출 경로, 한국인의 섭생 특성, 해안 등 생태계 구획 별 이동 인자(mass transfer coefficients) 등 다양한 입력 자료가 요구된다.

#### 나. 확률론적 평가 방법론을 이용한 선량 및 불확실성 민감도 평가

안전성 평가를 위해서는 평가 대상인 시나리오와 각 시나리오별 평가를 위한 코드, 코드의 입력 자료로 활용되는 데이터들이 요구된다. 현재 채택하고 있는 중저준위 방사성폐기물 동굴처분의 안전성 평가 방법론은 라플라스 영역에서의 해를 구하는 반해석적(Semi-analytic) 기법에 의존하는 방법에 기초를 두고 있으며, MASCOT를 일부 핵종 유출 현상을 평가할 수 있도록 개량한 MASCOT-K를 개발해 사용할 예정이다.

장단기 기후 변화나 자연 재해와 같은 외부 사건(External FEP)들도 인한 영향 평가가 요구되는 경우에는 지질 구조 등의 천이적인 변화를 반영하는 TDPSA(Time Dependent Probabilistic Safety Assessment) 코드 개념인 MDPSPA 코드를 확장 개발해 적용할 예정이다.

안전성 평가를 위한 입력 자료들을 관리하기 위한 방안으로 고준위 방사성폐기물 처분 연구를 통해 개발된 PAID(Performance Assessment Input Database)라는 데이터 관리 프로그램과 입력 자료의 품질 보증을 위해 web을 기반으로 하는 품질 보증 체계와 시나리오 개발 프로그램인 FEAS(FEP to Assessment through Scenario)들을 통합하고 여기에 문서화 기능까지 보강한 Cyber RnD Platform 프로그램을 개발하고 있다.

## 5. 결론

본 논문에서는 한국형 중저준위 방사성폐기물 동굴 처분 안전성 평가와 관련하여 FEP 목록 및 시나리오 도출과 관련된 구체적인 방법들을 제시하였다. 또한 시나리오별로 안전성 평가를 위해 필요한 구체적인 방법을 제시하였다. 개발된 모델링을 실제 안전성 평가에 적용하기 위한 입력 데이터의 취득 방안 및 적용 가능 수치해석 코드를 제안하였으며, 종합 성능 평가를 위한 보완점을 지적하였다. 추후 이들 과정에 기초하여 최종적으로 도출될 안전성 평가 결과는 한국형 처분장 설계 시에도 유용하게 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

## 감사의 글

본 연구는 과학기술부가 주관하는 국가원자력중장기연구사업 및 (주)한국전력기술이 주관하는 연구 프로젝트를 통해 수행되었습니다.

## 천층처분시설에서의 주요 안전성인자 영향 분석

박주완, 김현주, 김창락

한국수력원자력(주) 원자력환경기술원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

처분시설의 안전성 평가에 사용된 시나리오와 파라미터들은 본질적으로 불확실성을 가지고 있다. 이러한 불확실성을 평가하기 위해서 동일한 시나리오에 대해서 평가 입력 파라미터의 변화에 따라 개인피폭선량 결과가 어떻게 변화하는지를 분석하였다. 본 분석에서는 처분시설을 빠져나온 핵종이 하부의 불포화된 토양층을 지나 대수층에 이른 후 지하수에 의한 분산과 이류 등에 의해 인간환경의 우물까지 이동되고, 우물을 통해 다시 회석되어 부지 경계의 주민이 우물물을 식수로 사용하는 '지하수음용시나리오'가 고려되었다. 천층처분 시설의 장기 방사선적 안전성에 미치는 주요 인자로는 지하수 이동거리, 지하수 유속, 대수층 깊이, 강우 침투율, 불포화층 두께, 방벽의 분배계수 등 고려되었으며, 영향 분석에는 단순 해석적 모델을 사용한 개략적 계산방법을 사용하였다. 검토 결과, 기존 문헌상에서 보고되고 있는 바와 유사한 경향을 나타내는 것을 확인할 수 있었으며, 주요 인자들 가운데 지하수 유속과 방벽의 분배계수가 다른 인자에 비해 민감도가 큰 것으로 나타났다. 이러한 결과로부터 천층처분시설의 부지특성조사에서는 지하수 유속을 결정하는 대수층의 수리전도도와 수력구배, 인공방벽 및 자연방벽의 분배계수 측정에 유의하여 안전성 평가 결과의 불확실성을 줄이고 신뢰도를 구축하려는 노력이 필요함을 알 수 있었다. 본 분석에서는 처분시설의 핵종 재고량 등 폐기물 특성과 시설배치 및 설계 인자들에 대한 가정치를 사용하였으며 처분장의 부지특성인자중 주로 수리지질학적 파라미터에 대한 경향만을 보여주고 있으므로 폐기물 특성치와 시설설계 관련 특성치의 변경에 따라 정량적으로는 다른 결과치를 나타낼 수 있으며, 폐기물 특성과 시설설계인자들의 불확실성에 의해 처분시설 전체에 미치는 영향에 대해서는 향후 보다 상세한 모델에 의한 재분석이 필요할 것으로 판단된다.

## **Engineering-scale Test for Validating the T-H-M Behavior of a HLW Repository: Experimental Set-up**

Jae Owan Lee, Min Hoon Baik, and Won Jin Cho  
Korea Atomic Energy Research Institute  
P.O. Box 105 Yusong, Taejon 305-353, Korea

### **Abstract**

The thermo-hydro-mechanical (T-H-M) process is one of major issues in the performance assessment of a high level waste (HLW) repository. An engineering-scale test was planned and its experimental set-up has been installed, to validate the T-H-M behavior in the buffer of a reference disposal system. The experimental set-up consists of 4 major components: the confining cylinder with its hydration water tank, the bentonite block, the heating system, and the sensors and instruments. The monitoring and data acquisition system is employed to control the heater to maintain the temperature of 95 °C at the interface of the heater and bentonite blocks and to collect signals from sensors and instruments installed in the bentonite blocks.

### **1. Introduction**

The concept of a HLW repository in Korea is based upon a multi barrier system composed of engineered barriers and the surrounding plutonic rock [1]. The repository is constructed in a bedrock of several hundred meters in depth below the ground surface. The HLWs are encapsulated in disposal containers, which are deposited into boreholes on the floor of the emplacement rooms. The gap between the container and the wall of a bore hole is then filled with a buffer material and the inside space of the emplacement rooms with a backfill material. Figure 1 shows the schematic picture of a reference disposal system developed in 2002.

The engineering performance of a HLW repository is dependent, to a large extent, upon the characteristics of the design and construction of the engineered barriers and especially on the change that may occur in the thermal, hydraulic, and mechanical behaviors as a result of the combined effects of the heat generated by the radioactive decay, of ground water flowing in from the surrounding rock, and of the swelling pressure exerted by compacted buffer material. The thermo-hydro-mechanical (T-H-M) process, in this reason, is one of major issues in the performance assessment of a high level waste (HLW) repository.

This paper presents the experimental set-up of engineering-scale test to validate the T-H-M behavior in the buffer of the reference disposal system: design concept, specification

and fabrication of major components, installation, and data acquisition and heater control.

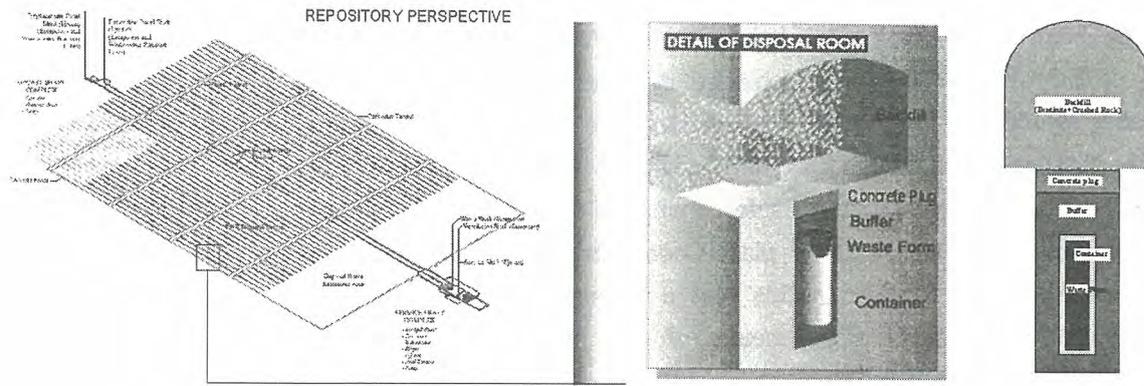


Fig. 1 Schematic picture of a reference disposal system developed in 2002.

## 2. Experimental Set-up

Figure 2 represents an experimental set-up for KENTEX (KAERI Engineering-Scale T-H-M Experiment for Engineered Barrier System), which was designed to validate the T-H-M behavior in the buffer. This set-up is a third scale of the reference disposal system and consists of four major components: the confining cylinder with its hydration tank, bentonite block, heating system, and sensors and instruments.

The confining cylinder with its hydration system is to simulate the borehole with ground water from the surrounding rock mass in the reference disposal system. It is a steel body with a length of 1.36 m and an inner diameter of 0.75 m and the hydration system consisting of a water tank and related pipes which are connected to 24 nozzles in the confining cylinder. To uniformly apply the groundwater to the surface of the bentonite blocks, each nozzle is inserted with two metal filters and the confining cylinder is lined with various layers of geotextile.

The bentonite blocks are fabricated of the bentonite which is taken from Jinmyeong mine located in Kyungju, Kyungsangbuk-do. The bentonite is prepared after its raw material is dried below 110 °C, pulverized, and passed

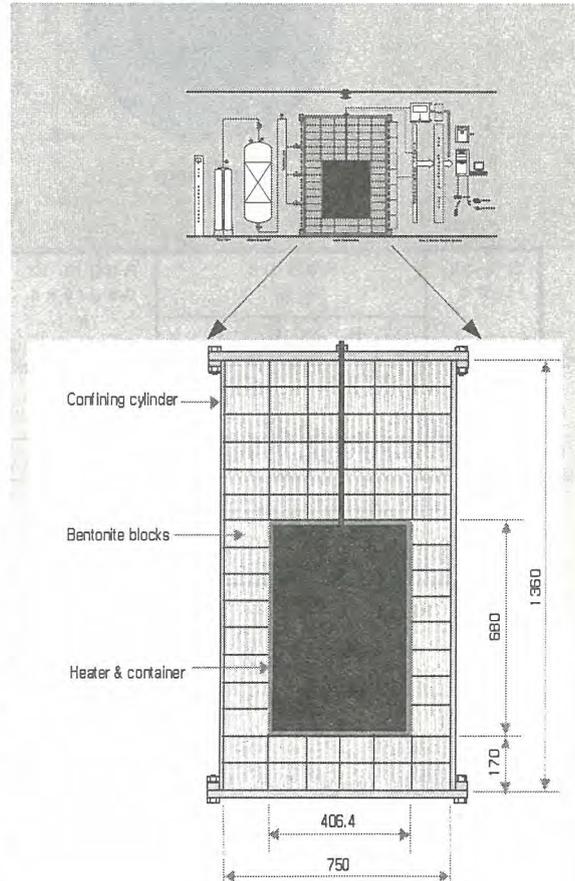
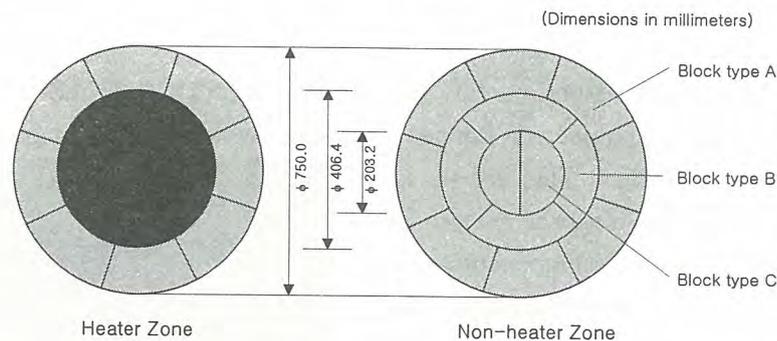


Figure 2. Experimental set-up for KENTEX

through No. 200 of ASTM (American Society for Testing and Materials) standard sieves. The fabricated blocks have average value of 13 % of water content and  $1700 \text{ kg/m}^3$  of dry density, respectively. The shape, dimension, and number of the bentonite blocks are shown in figure 3. The bentonite blocks emplaced in the confining cylinder have a percentage of construction gap of 5.9 % and thus the average dry density of the bentonite blocks in the confining cylinder is  $1600 \text{ kg/m}^3$ . There are 176 blocks emplaced in 16 sections.

The heater in the heating system measures 0.41 m in diameter and 0.68 m in length. It has three heating elements in its inside capable of supplying a thermal power of 1000 W each, i.e., a total power of 3000 W. It is placed concentrically in the confining cylinder in direct contact with the bentonite blocks. In this test a constant temperature of  $100 \text{ }^\circ\text{C}$  is maintained at the heater-bentonite interface by means of the heater control system. The heating system is redundant: each heating element is capable of supplying a higher thermal power than is strictly required.



Block type	Radius mm		Angle in degrees $\alpha$	Dimensions mm			Thickness mm	Number of blocks (*)
	R	r		a	b	c		
A	375.0	203.2	45	287.4	155.5	172.3	85	128
B	203.2	101.6	90	287.4	143.7	101.6	85	32
C	101.6		180	203.2	203.2	0	85	16

Figure 3 Specification of bentonite blocks used for KENTEX test.

The sensors used for the KENTEX are selected considering the working conditions: total pressure  $\geq 10 \text{ MPa}$ , temperature up to  $100 \text{ }^\circ\text{C}$ , and harsh saline environment. The same requirements are established for the cables and their connections to the sensors. Sixty eight sensors, within the bentonite blocks and the rest of the components of the test, are installed to measure the following variables: temperature, humidity, and total pressure. Table 1 summaries the measurement parameter and the type, model, and number of sensors. The

sensors in the bentonite blocks are grouped into 9 sections in the alphabetic order of A - I. The location of the sensors installed in the 9 sections, which was determined by preliminary modelling during the design of the tests, is shown as an example in Figure 4.

Table 1 Specification of sensors used for KETEX test.

Parameter	Sensor type		Quantity
Temperature	Thermocouple	Watlow - Gordon T - type	42 (10*)
Water content	RH & temp. transmitter Psychrometer	Vaisala HMP 234 (for < 15%)	5
		Wescor PCT 55 (for > 15%)	5
Swelling pressure	Pressure cell	Kulite BG 0234	6

(\*) No. of thermocouples installed on the heater.

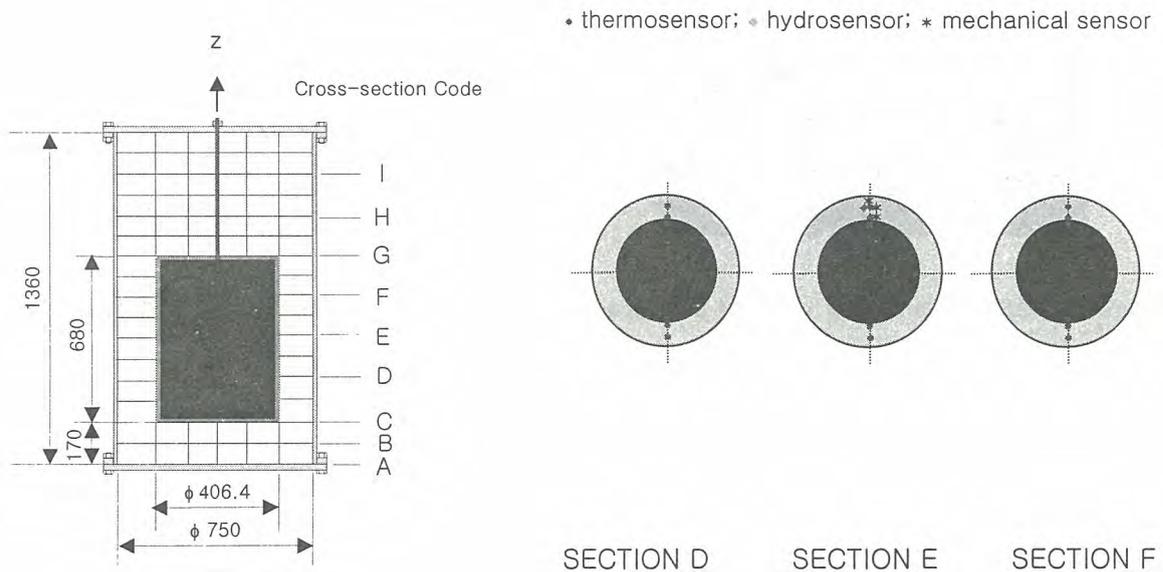


Figure 4 Location of sensors to measure the temperature, relative humidity, and total pressure.

### 3. Data Acquisition System and Heater Control System

The data acquisition system (DAS) is made up of all the electric and/or electronic components and the computer programs required for the supervision and storage on a secure magnetic device of the data obtained from the test, in an autonomous form. The system is capable of storing, analyzing and displaying the obtained data.

The heater control system (HCS) is made up of all the electric and/or electronic components and the computer programs required to accomplish the following functions: supervision of heater operation and control of the power supply, data acquisition and transfer

to the DAS and activation of the processes and alarms in the event of component failure.

The electric and/or electronic components of the DAS and HCS and the logic procedure of data acquisition and heater control is shown in figure 5.

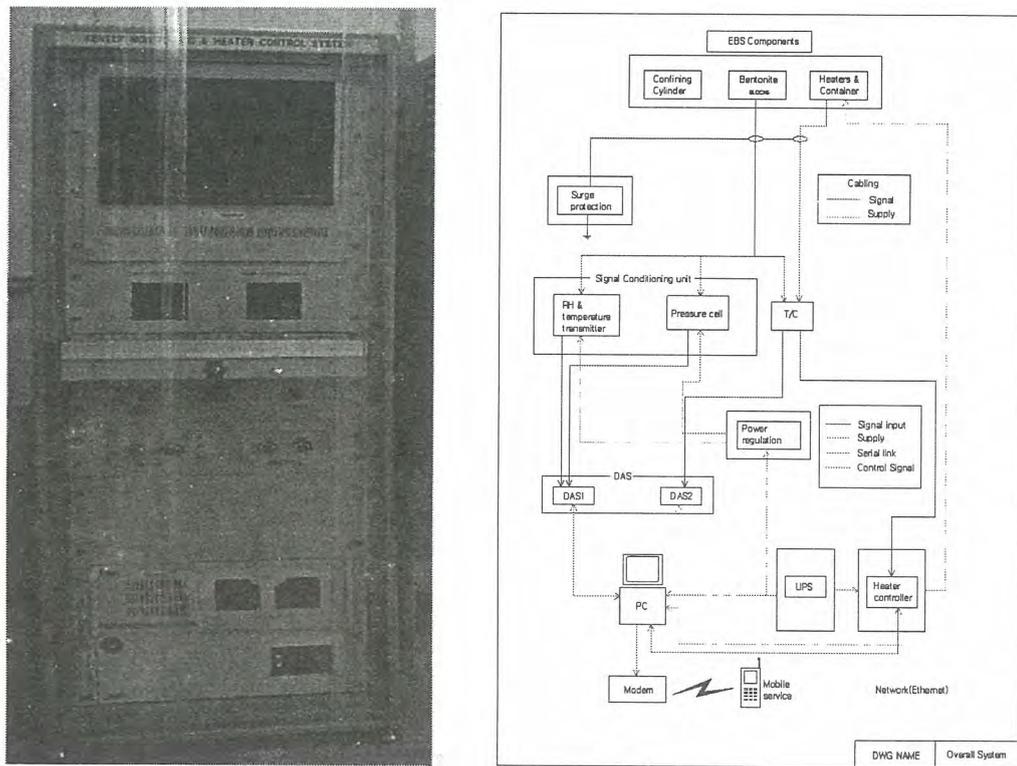


Figure 5 DAS/HCS and flow chart of data acquisition and heater control logic in KENTEX

#### 4. Summary and Further Works

The KENTEX test was planned to validate the T-H-M processes in the engineered barrier system, especially in the buffer of a repository. The concept and criteria for the experimental set-up were established and its components were designed and fabricated, based upon the reference disposal system which was developed in the year 2002. The installation of the experimental set-up is now in progress. The operation will be followed at the end of June, 2004 and the model simulation with this will be done to validate the T-H-M behavior in the buffer of reference disposal system.

#### Acknowledgement

This work has been performed under the Nuclear R&D Program by the Ministry of Science and Technology.

#### References

1. C. H. Kang et al., "High Level Radwaste Disposal Technology Development / Geological Disposal System Development," KAERI/RR-2336/2002, Korea Atomic Energy Research Institute (2002).

## Basic Design of the Underground Research Tunnel for HLW disposal Research

### 고준위폐기물 처분연구를 위한 지하연구시설에 대한 기본설계

Sangki Kwon, Jeung-Hwa Park, Won-Jin Cho, Phil-Su Han

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

권상기, 박정화, 조원진, 한필수

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

#### Abstract

In order to develop a safe geological disposal concept for the HLW from the nuclear power plants in Korea, it is necessary to evaluate the safety of the disposal concept in an underground research tunnel in the same geological formation as the host rock mass. The design concept of a research tunnel depends on the actual disposal concept, repository geometry, experiments to be carried at the tunnel, and geological conditions. In this study, geological investigation had been carried out to develop the basic design of the small scale underground disposal research tunnel in KAERI.

Key Word : HLW disposal, URT, site investigation, basic design, granite

#### 요약

국내 원자력 발전소에서 발생하는 고준위 폐기물의 안전한 지층처분 개념 개발을 위해서는 대상 암반에 지하연구시설을 건설하고 처분개념의 안전성을 평가하는 것이 필요하다. 지하연구용 터널의 개념은 처분개념, 처분장에서의 지하구조물의 형상, 수행될 실험과 지질조건에 영향을 받게 된다. 본 연구는 원자력연구소 내에 소규모 처분연구용 지하시설을 건설하기 위해 지질조사가 실시되었으며 이를 통해 부지에 적합한 시설의 기본설계가 실시되었다.

중심단어 : 고준위폐기물처분, 지하처분연구시설, 부지조사, 기본설계, 화강암

#### 1. 서론

고준위방사성폐기물의 영구처분을 위한 심지층처분 개념의 도출을 위해 한국원자력연구소에서는 1997년부터 중장기 과제를 수행하고 있다. 심지층에 처분장을 건설하고 안전하게 운영하기 위해서는 지하 심부의 암반에 대한 물리적, 화학적, 역학적, 열적, 수리적 물성과 이들과 핵종이동

의 관계, 처분환경에서의 공학적 방벽 및 암반의 거동이 처분장 안정성 및 안전성에 미치는 영향 등을 파악해야 한다. 지하 암반의 거동과 암반에서의 핵종 이동, 지하수의 유동에 대한 연구를 위해서는 지하연구시설의 건설이 필수적이며 이 때문에 방사성폐기물 처분을 고려하는 세계 각국에서는 다양한 규모의 지하연구시설(Underground Research Lab., URL)을 건설하고 지층처분 관련 각종 시험을 실시하고 있다. 지하연구시설의 건설을 위해서는 지하구조물의 굴착, 건설, 유지와 관련된 간접시설에 대한 막대한 투자가 필요하다. 이 때문에 NEA 가입국가 대부분은 지하연구시설을 기존의 광산이나 터널을 연장, 확장하는 개념으로 건설하고 있다. 기존의 지하구조물을 이용할 경우 초기 굴착 및 간접 시설의 이용 측면에서 유리하며 인허가 측면에서도 신규 부지를 개발하는 것보다 용이하다. 기존의 지하구조물을 이용하지 않고 새로운 부지독립형 지하연구시설을 처분장 모암과 동일한 종류의 암반에 설치할 수도 있다. 이 경우 굴착, 건설에 따른 모든 비용의 지출이 추가적으로 필요하게 되지만 건설전 상태의 자료를 얻을 수 있다는 장점이 있다. 실험실 연구단계에서 최종 처분 부지에 지하연구시설을 건설하는 단계까지는 각국의 현실에 적합한 접근법이 선택되고 있다. 지하처분연구시설이 심부 지하환경과 유사한 지하 조건을 구현할 수 있도록 하기 위해서는 지하 수백 미터의 깊이에 있는 신선한 암반층에 시설을 건설하는 것이 이상적이지만, 이를 위해서는 막대한 건설 및 운영 비용이 소요되며 또한 적합한 부지를 확보하는데 어려움이 따른다. 따라서 대규모 지하처분연구시설을 추진하는데 따르는 부지선정 및 비용 문제를 피하기 위해 소규모의 지하연구시설을 건설하여 경험과 기술을 축적한 후 처분 부지 지하연구시설을 추진하는 것이 바람직할 것이다. 또한 당면한 처분시스템 개발 및 처분 안전성 평가 관련 연구들을 수행하기 위한 현실적인 관점에서 원자력연구소내에 소규모 지하연구시설을 건설하는 방안을 마련하였으며 기존의 자료조사, 발파영향에 대한 예비 평가 및 3차원 구조안정성 해석을 통해 원자력연구소내 예상 부지에서의 적합한 시설 개념을 도출하였다(권상기 등, 2003). 본 연구에서는 도출된 지하처분연구시설 개념에 따라 시설이 갖추어야 할 설계요건을 도출하였으며 시설의 기본설계를 위한 예비 부지에서의 지질조사를 수행하였다.

## 2. 지하처분연구시설의 최소 요건

지하처분연구시설의 최소요건을 도출하기 위해서는 처분시스템과 연구터널에서의 수행될 연구 내용, 수리화학적 조건 및 부지의 지질학적 조건 등이 고려되어야 한다.

### 2.1 기준처분시스템

현재까지 도출된 고준위폐기물 처분 기준 개념에 따르면 지하 처분장은 지하 수백 m에 위치하는 결정질 암반에 위치하며 경사터널 또는 수직터널을 통해 지상시설과 연결된다(권상기,2002). 처분 터널을 포함한 각종 터널은 조절 발파기법을 통해 굴착되며 처분장의 안전성 확보를 위해 처분용기, 완충재, 뒷채움재로 구성되는 인공방벽과 암반과 토층으로 구성되는 자연방벽의 다중방벽(multi-barrier) 처분개념이 적용된다. 적합한 조건을 갖춘 암반에 건설되는 처분연구용 지하시설의 확보는 이러한 처분개념의 타당성, 안전성, 안정성, 적합성에 대한 실험적 검증을 위해 반드시 필요하다.

### 2.2 처분연구 내용

처분연구용 지하시설의 건설은 방사성폐기물처분 연구개발을 위한 핵심 인프라 구축을 의미하며 지하시설을 통해 암석역학적 거동, 응력 및 불연속면 영향, 손상대 (EDZ) 발생연구, 불연속면을 통한 유체의 이동, 암반에서의 heater test, 공학적방벽의 열-수리-역학적 (THM) 거동, 완충재-암반 계면에서의 콜로이드 생성 및 이동, 지하 환원 환경에서 이온이동, 처분 시스템에서의 운반, 거치, 회수와 같은 처분 공정의 실증이 이루어질 수 있을 것이다. Table 1은 지하연구 시설

에서 2007년 이후 주로 수행하게 될 연구 항목들을 보여준다.

Table 1. Research items to be carried out at URT

R&D items
<b>Rock Mechanics</b> <ul style="list-style-type: none"> <li>- Rock Mass Classification</li> <li>- Rock Stress and Deformation Measurement and Analysis</li> <li>- Properties and Mechanical Effects of Rock Discontinuity and Fracture Zone</li> <li>- Effects of Stress Change on the Hydraulic Properties of Rock Discontinuity</li> <li>- Blasting Techniques and Blasting Effect on Adjacent Tunnels and EDZ</li> <li>- Evaluation of Tunnel Stability and Rock Support Design</li> <li>- Thermal Property of Rock (Heater Test)</li> <li>- Influence of Earthquake on Underground Facility</li> </ul>
<b>Geology</b> <ul style="list-style-type: none"> <li>- Prediction of Rock Boundaries</li> <li>- Distribution Rock Discontinuity and Fracture Zone</li> <li>- Groundwater network and Flow Characteristics in Rock Discontinuity</li> <li>- Flow Test through Fracture System</li> <li>- Prediction Technique of Flow Rate into Tunnel</li> </ul>
<b>Engineered Barrier System</b> <ul style="list-style-type: none"> <li>- Thermal-Hydro-Mechanical (THM) Behavior of EBS</li> <li>- Gas Migration in Engineered Barrier System</li> <li>- Contaminant Diffusion and Chemical Buffering of Buffer</li> <li>- Colloid Generation and Migration at the Interface between Buffer and Rock</li> </ul>
<b>Fluid Migration</b> <ul style="list-style-type: none"> <li>- Contaminant Migration in Rock Mass</li> <li>- Gas Migration in Shear Zone</li> <li>- Contaminant Diffusion in Rock Matrix</li> <li>- Colloid Migration and Retardation in Geosphere</li> </ul>
<b>System Design</b> <ul style="list-style-type: none"> <li>- Tunnel Sealing Technology</li> <li>- Verification of Deposition Hole Drilling</li> <li>- Concrete Plug Design and its Application</li> <li>- Verification of Transportation, Emplacement, and Retrieval Operation</li> </ul>

### 2.3 암반 조건

기준처분개념에 따르면 고준위폐기물 처분장은 결정질 암반에 위치하게 된다. 처분장을 지하 수백미터 아래 암반에 위치하게 함으로써 핵종이동 시간을 늘림으로써 장기 안전성을 확보할 수 있도록 한다. 원자력연구소 방사성폐기물 처분팀에서는 그동안 처분모양으로 고려되는 여러 종류의 암석중에서 국내에서 분포면적이 넓은 결정질 화강암을 위주로 연구를 수행해 오고 있다. 따라서 한국형처분개념 도출을 위한 처분개념의 실증 및 안전성 평가를 위해서는 결정질 화강암반에 지하연구시설을 건설하고 기존의 실험실 및 현장 시추공을 통해 얻어진 연구결과를 검증하는 것이 필요하다.

### 2.4 지구화학적 조건

고준위폐기물 처분장의 경우 지하수에서의 actinide의 화학적 물성, 처분용기의 부식과 산화우라늄의 용해 측면에서 환원환경의 확보가 중요하다. 스웨덴에서 수행된 연구결과에 따르면 30-40개 시추공 중에서 100m 이상의 심도에서 산소가 측정된 시추공은 1개였으며 이를 통해 심도 100m 이상의 지하수는 환원상태에 놓이는 것으로 보고 있다(SKB,1993). 따라서 처분지하연구터널의 심도가 100m 이상이 되도록 설계하는 것이 바람직할 것이다.

이와 같은 검토를 통해 지하처분연구시설의 최소 요구사항을 다음과 같이 도출하였다.

- 연구모듈은 고준위 처분장 모양으로 고려되는 결정질암에 위치하여야 한다.
- 처분관련 연구가 주로 수행될 연구모듈은 100m 두께 이상의 지반에 의해 격리한다.

- 연구모듈은 와이어메쉬나 록볼트와 같은 최소한의 지보로 장기간 유지가 가능한 양호한 암반에 설치되어야 한다.
- 진입터널에서의 암반 거동 및 지하수 유동 연구가 가능하여야 한다.
- 처분개념실증, 안전성평가와 관련된 연구 및 완충재의 THM 시험 등이 가능하여야 한다.

### 3. 설계요구서 주요 내용

최소한의 진입터널의 길이로 적정 심도를 확보할 수 있는 방안의 강구가 필요하며 이와 함께 연구시설이 연구소 부지내에 위치하도록 함으로써 민원발생이 없도록 해야 하며 또한 토지의 형질 변경과 그린벨트 훼손 허가와 관련된 업무의 원활한 진행을 위해 지하처분연구시설이 국가공업단지개발 계획선 내에 위치하도록 지하처분연구시설의 배치와 선형을 결정해야 한다. 이러한 전제조건과 시설의 요건을 동시에 만족시키면서 효과적으로 심도를 확보하기 위해 고도가 높고 경사가 급한 원자력연구소 부지 경계부에 위치하는 산지에 진입터널을 건설하는 방안이 제안되었으며 이를 위한 설계요구서가 다음과 같이 작성되었다.

#### 3. 진입터널 (Access tunnel)

예상 부지에서 산 정상부 아래에 연구모듈이 위치할 수 있도록 진입터널의 길이를 약 200m로 건설한다. 터널의 크기는 깨끗한 터널벽면을 얻을 수 있도록 하면서도 암반의 손상을 최소화하기 위해 기계식 굴착이 가능한 최소 크기인 6mx6m로 설정하며 발파기법으로 건설한다. 굴착단면의 경우 단면이 작고 시공성이 양호하며 여굴량이 적어 경제적인 말발굽형 단면을 가지도록 한다. 터널의 진행에 따라 심도를 확보할 수 있도록 하향 5 ~ 10%의 경사를 가지며 터널의 경사는 지반의 상태 및 작업성, 및 지형 등을 고려하여 확정하도록 한다. 터널 입구부근은 라이닝 등으로 충분히 보강하고, 터널 안쪽 부분은 안전에 지장이 없는 범위에서 가급적 rock bolt 등으로 지보를 최소화하여, 터널 벽면과 바닥의 암반이 노출될 수 있도록 한다. 터널은 가급적 직선으로 하되, 지질 상태를 고려하여, 일부 구간에서 약간의 곡선 구간을 허용하며 원활한 장비 및 작업원 진출입을 위해 바닥 콘크리트를 타설한다.

#### 3. 연구모듈 (Research module)

길이 약 25m의 연구모듈을 진입터널 양쪽에 2개소 설치한다. 원활한 작업을 위해 터널의 크기와 모양은 진입터널의 크기와 동일하게 6m (H) x 6m (W) 말발굽형 단면으로 한다. 터널 경사의 경우 상향 1 ~ 3%를 둠으로써 자연배수가 가능하도록 설계한다. 처분연구가 주로 수행되는 터널이기 때문에 안전에 지장이 없는 범위에서 가급적 록볼트 등으로 지보를 최소화하여 터널 벽면과 바닥의 암반이 노출될 수 있도록 한다. 연구모듈은 원칙적으로 진입터널 끝 부분에 좌우 양쪽에 하나씩 배치하되, 산 정상 바로 밑 부분에 위치하도록 하여 모듈의 지하 심도가 최대가 되도록 하여야 한다. 연구모듈 중 1개소에는 바닥에는 처분공 모사를 위한 직경 약 2m, 깊이 3m의 원통형 공동을 굴착한다. 이때 공동 주변 암반 및 지보재의 손상이 최소화될 수 있는 방법으로 굴착한다. 각 연구모듈 벽에는 계측장비를 설치할 수 있는 공동을 굴착한다.

#### 3.3 갱구부 및 터널 분기부

갱구부 설계시 지형, 입지조건, 근접시설물 등의 영향을 고려하여 구조 및 시공법을 선정하도록 한다. 지반조건이 불량한 경우, 라이닝을 설치하여 구조적 안정성을 확보하도록 한다. 갱문의 외관과 형상은 터널의 사용목적, 주변경관, 유지관리상의 편의, 지형 및 지반조건 등을 고려하여 선정한다. 터널 분기부는 지반조건이 양호하다고 예측되는 위치에 설치되도록 한다. 터널 크기와 지반조건에 적합하도록 설계하며 지반조건이 불량한 경우 강성이 충분한 지보재로 보강한다.

### 3.5 터널 설계시 기타 고려사항

심부암반으로의 추가확장을 가능하게 하는 터널 설계여야 하며 터널의 굴착은 암반의 손상을 최소화하도록 조절발파기법을 사용하도록 한다. 발파시, 터널입구에서 약 650미터 거리에 있는 연구용 원자로인 하나로에 미칠 수 있는 영향이 최소화 될 수 있도록 굴착공법 및 공정에 대한 설계를 실시한다. 진입터널과 연구모듈의 벽면에는 적당한 간격으로 배전반을 넣을 수 있는 공동을 설치하여야 하며 터널 굴착에 따른 지반의 거동과 지보재의 효과를 파악하기 위한 적합한 계측관리 계획이 수립되어야 한다.

### 3.6. Utilities

○ 전기시설은 배수, 환기, 조명 및 기타 지하연구시설의 안전 운영에 필요한 전기용량 외에 별도로 연구시설에 필요한 전기용량 50KW (추후 조정가능) 를 추가한 전기용량을 공급할 수 있도록 설계되어야 한다. 배전반의 수와 위치는 지하터널 표준 설계에 따른다.

○ 진입터널의 적절한 위치에 집수정(sump) 을 설치하여, 진입터널 및 연구모듈에서 발생한 지하수를 모아서 지상으로 배출할 수 있도록 해야 한다. 연구모듈 내에는 집수정을 설치하지 않고, 발생한 지하수는 자연배수에 의해 진입터널 내의 집수정으로 모이도록 한다.

집수정의 수와 크기, 위치, 배수펌프의 용량 등은 지하터널 표준설계에 따른다.

○ 환기와 제습설비는 계측장비가 설치된 공간의 온도와 습도를 각각 26°C, 70% 로 유지시키기에 충분한 용량을 갖추도록 한다. 진입터널과 연구용 모듈은 송풍시설을 통해 환기토록 한다.

○ 진입터널에서는 통행에 지장이 없는 정도의 조명이 유지되어야 하며, 연구모듈에서는 실험실 정도의 조도를 가진 조명시설이 설치되어야 한다. 진입터널과 연구모듈에서는 비상시를 대비한 유도등 설비를 갖추어야 한다.

### 3.7. 부속시설

기계실을 설치하여 공기조화 및 환기 설비, 통신시설 등이 위치할 공간을 확보하도록 하며 전기시설을 설치하여 변압기, 비상발전기, 조명설비, 자동 화재탐지 설비, CCTV 및 방호설비, 접지설비 등을 배치한다. 펌프실을 설치하여 배수터널의 지하수 펌핑, 생활용수 공급 및 생활 하수 펌핑이 수행될 수 있도록 하며 시설의 제어, 관리를 위한 Control room 을 적합한 위치에 설치한다. 공사중 버려 상차를 위한 회전 공간확보를 위해 turning shelter 를 설치하며 진입도로, 주차시설, 공사용 가설도로의 확보 계획이 포함되어야 한다.

이러한 설계 요구서에 따른 설계를 위해 Fig. 1 에 표시된 개념과 같이 지하처분연구시설을 건설하는 경우, 최소 요건을 만족하는지를 확인하기 위해 2003년 11월부터 2004년 2월까지 수송용기 시설 좌측 부지에 대한 부지조사가 실시되었다. 조사지역 우측은 1996년 수행되었던 "처분 기술모의시험" 연구를 위해 조사된 바 있다 (김진웅 외, 1996).



Fig.1. Areas of site investigation in 1996 and 2003.

#### 4. 부지조사 주요 내용

##### 4.1 지표지질조사

지하에 지질구조나 기반암의 분포 상태 등 본 지역을 구성하고 있는 지반의 암석학적 및 공학적 특성을 파악하기 위해 지표상에 드러난 지형/지질상의 특징을 관찰, 분석하였다. 조사 지역의 지질은 복운모화강암과 이를 관입한 안산암질 암맥 그리고 제4기 풍화산류토층으로 구성되어 있다. 조사지역에서는 풍화토층 구간이 두껍게 발달하고 있다.

##### 4.2 굴절법 탄성과 탐사

지하처분연구시설 부지에 분포하는 지질구조대의 예상위치와 규모를 파악하고 전반적인 지층 분포 상태를 조사하여 설계에 반영하기 위해 굴절법 탄성과 탐사가 실시되었다. Fig.2에서 보듯이 진입터널을 횡단하는 방향으로 4개 측선을 등간격으로 배열하고, 3개의 종측선을 진입터널 및 터널 좌우에 배열하여 격자상으로 되도록 측선을 설정하여 터널부지 인근에 대한 탐사를 시행하였다. 7개 측선의 총 연장은 1,645m이며 Fig. 2는 측선 배열을 보여준다. 측정결과 터널 진행 방향과 유사하게 놓이는 S-2 측선의 경우 상부 토사 및 풍화대에 해당하는 탄성파속도 1,200m/sec 이하의 지층은 측점 80~230m 구간을 제외하면 평균 15m 내외의 두께로 비교적 깊게 분포하고 있는 것으로 나타났다.

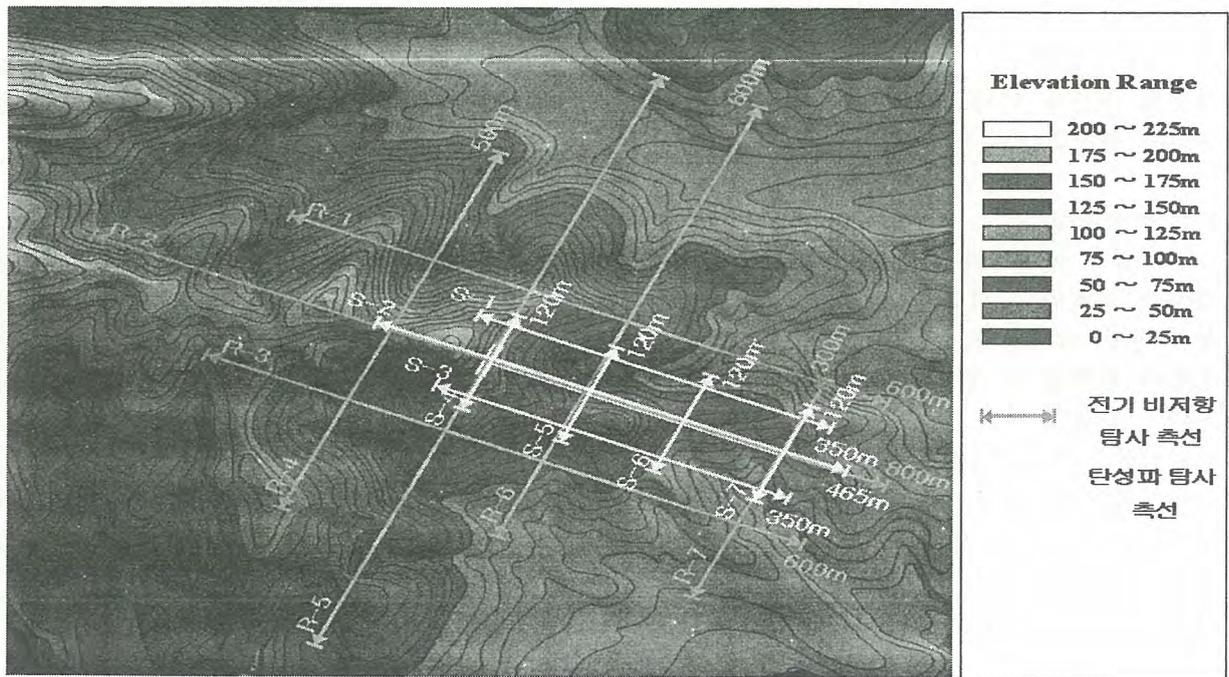


Fig.2. Seismic refraction survey(S) and electric resistivity survey lines(R)

##### 4.3 전기비저항탐사

단층/파쇄대 및 터널굴착 대상구간의 상대적인 암질평가를 목적으로 전기비저항탐사가 실시되었다. 진입터널을 횡단하는 방향으로 4개 측선을 배열하고, 3개의 종측선을 진입터널 및 터널 좌우에 등간격으로 배열하여 격자상이 되도록 측선을 설정하였다. 탐사결과 탐사지역에서는 진입터널을 사교하는 저비저항 이상대와 수직으로 발달하는 이상대가 나타나는데, 이들 저비저항대는 단층 또는 파쇄대로 추정된다. 연구모듈이 위치할 곳과 가장 인접한 곳에서 터널을 가로지르는 R-5 측선을 따른 전기비저항 탐사결과는 Fig.3과 같다. 그림에서 보듯이 연구모듈은 단단한 기반암 내에 위치할 것으로 예상되며 모듈의 안정성에 영향을 줄 수 있는 파쇄대에서 어느 정도의 거리를 두고 있음을 알 수 있다.

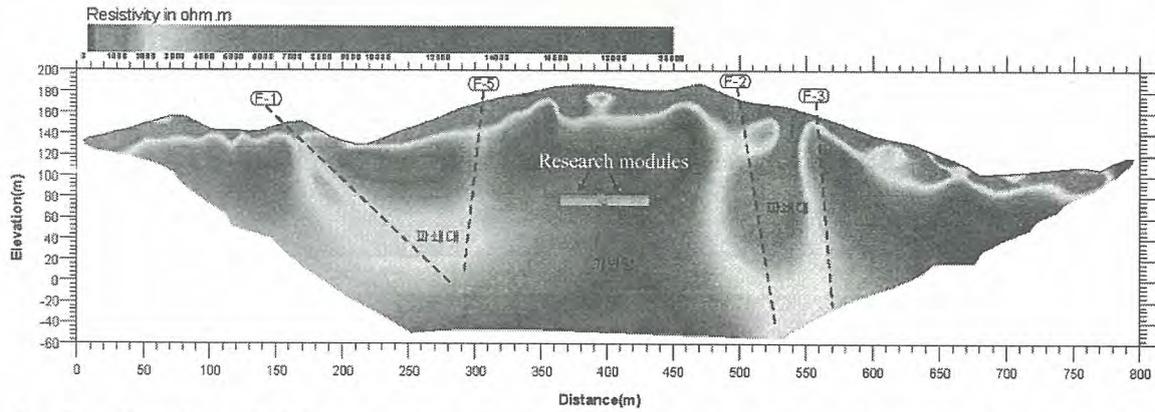


Fig. 3. Electric resistivity plot along R-5 survey line, which can show the rock condition around the research modules

#### 4.4 시추조사

지층의 상태와 지반공학적 특성, 기반암의 분포상태 및 풍화도 등 파악, 시료의 채취 및 각종 원위치 공내시험을 실시하여 설계에 필요한 지반자료를 파악하기 위하여 수직시추와 경사시추가 실시되었다. 수직시추는 터널의 입구부에서 160m 깊이로 실시되었으며 경사시추는 터널의 예상 경사인 10% (5.7o)로 터널의 진행방향과 동일하게 실시하였다. 수직공 시추결과 상부로부터 2.0m까지 풍화토, 4.2m까지 풍화암, 10.3m까지 연암, 19.8m까지 보통암, 그 하부로 경암이 존재하는 것으로 나타났다. 17.2m~17.6m, 19.5m~19.8m, 34.0m~34.3m 구간에서 파쇄대가 관찰되며 수직공에서의 지하수위는 지하 18.5m로 일정하게 유지되었다.

경사시추 결과 시추공 입구에서 4m 까지 풍화토, 14m 까지 풍화암, 28m 까지 연암이 나오며 이후 경암이 나타났다. 단층대는 70m 구간에서 0.8m 그리고 75m 구간에서 2m 폭으로 나타난다. 시추공을 따른 암반의 상태는 입구에서 90m까지 절리가 많다가 90~110m까지는 양호한 암반을 만나며 110~125m 구간에서 절리가 많아지고 이후 180m까지 양질의 경암구간이 나타난다. 180~190m에서 파쇄가 많으며 이후 252m까지는 양호한 암반을 구성하고 있는 것으로 나타난다. 시추 작업중 50m와 80m 구간, 그리고 180m에서 지하수의 유입이 많았으며 이는 그 구간에 위치하는 구조대의 영향으로 보인다. 수리시험 결과 180m에 위치하는 함수절리대의 수리전도도는 매우 높게 나타났으며 시공전 그라우팅 작업으로 지하수를 차단하는 것이 필요할 것으로 보인다. 경사공에서 얻어진 절리 방향을 통계처리한 결과 N30oE 방향과 NS 방향의 절리가 우세하게 나타나며 이는 현재 고려중인 터널의 방향(N56oW)과 직각에 가깝게 놓이기 때문에 터널 안정성을 유지하는데 유리할 것으로 보인다.

#### 5. 처분연구 터널의 주요 설계 내용

원자력연구소 부지내에 지하처분연구시설을 건설하는 경우에 대한 자료조사 및 부지조사를 통해 시설의 최소요건을 만족할 수 있도록 진입터널과 연구모듈의 개념을 도출하였다. 연구모듈은 원칙적으로 진입터널 끝 부분에 좌우 양쪽에 하나씩 배치하며, 산 정상부 아래에 위치하도록 함으로써 효과적으로 심도를 확보할 수 있도록 하였다(Fig.4). 연구모듈이 지표면에서 깊은 곳에 위치할 수 있도록 하면서 부지경계면에서 충분한 공간을 확보할 수 있도록 약 230m 길이의 진입터널을 굴착한다. 심도 확보와 함께 굴착 및 지보 작업, 운영시의 작업성을 고려하여 진입터널은 10% 하향 경사로 굴착하도록 한다. 진입터널 양쪽의 연구모듈의 길이는 각각 25m로 경사를 상향 2%로 함으로써 자연배수가 가능하도록 하였다. Fig.4에서 보는 것과 같이 작업차량의 교행을 위한 8m 길이의 turning shelter는 약 80m 간격으로 2곳에 설치한다.

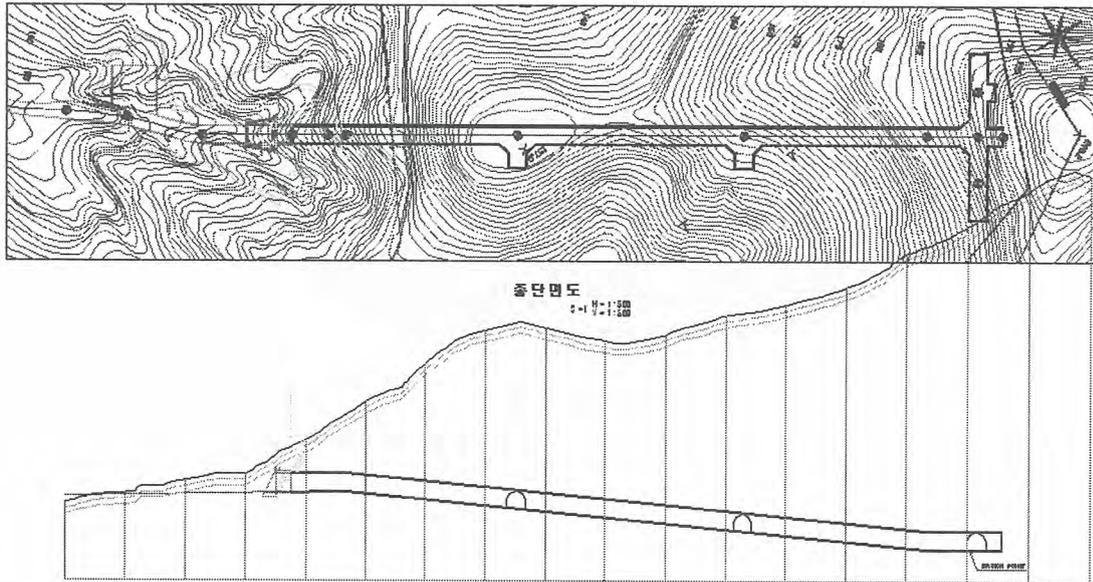


Fig. 4. Concept design of the underground research tunnel

Fig. 5 는 구간별 터널 지보를 보여준다. 모든 터널은 발파에 의해 굴착되며 진입터널과 연구 모듈은 6mx6m의 말뚝굽 형태를 갖도록 하였다. 발파 설계시 하나로 등 인접 시설에 대한 소음, 진동을 최소화하기 위해 지발당 장약량을 9kg 을 초과하지 않도록 하였다. 풍화대의 발달로 지반이 약한 진입터널의 입구부 50m 구간은 라이닝 등으로 충분히 보강하며 바닥 콘크리트는 30cm 두께로 타설한다 (Fig.5.a). 암반이 단단한 구간의 진입터널의 경우 라이닝을 설치하지 않으며 암반의 상태에 따라 숏크리트를 설치하고 원활한 장비 및 작업원 진출입을 위해 바닥에는 약 15cm 두께의 콘크리트를 타설한다. 암반을 이용한 연구가 수행되어지는 연구모듈은 양호한 암반에 위치하므로 Fig.5.c와 같이 숏크리트와 바닥 콘크리트를 설치하지 않도록 하여 터널벽면과 바닥의 암반이 노출될 수 있도록 한다. Fig.5.d 는 연구모듈과 진입터널이 만나는 교차지점을 보여준다. 작업장비의 회전을 위해 구석부분을 절개하며 중앙에 만들어지는 길이 5m 의 공간에는 공기조화가 가능한 컨테이너를 설치하여 연구모듈에서의 실험을 통제, 관리할 수 있도록 하였다.

## 6. 결론

지하처분연구시설은 처분 연구의 핵심 시설로서 처분개념의 실증과 안전성 평가 자료 생산을 위해 필수적이다. 본 연구에서는 원자력연구소내 화강암반에 소규모의 처분연구시설을 건설하는 방안의 타당성을 검토하기 위해 물리탐사, 시추, 암석시험을 비롯한 지질조사가 실시되었으며 이를 통해 얻어진 암반물성 자료를 이용하여 시설의 기본 설계를 작성하였다. 예상되는 터널방향과 동일한 방향으로 경사시추를 실시함으로써 터널 굴착시 예상되는 단층대, 함수절리군의 위치 및 크기, 주요 절리군의 분포와 같은 지질 변화를 파악할 수 있었으며 이를 통해 효과적인 설계가 이루어질 수 있었다. 지질조사결과 처분연구가 주로 수행될 연구모듈이 위치할 암반의 상태는 최소한의 지보로 암반의 유지가 가능할 것이며 따라서 암반에서의 각종 처분 관련 연구를 수행하는데 어려움이 없을 것으로 판단된다. 진입터널 입구부의 연약한 지반은 콘크리트 라이닝으로 보강하며 진입터널의 기타 부분은 숏크리트와 록볼트 설치로 보강하도록 설계하였다. 길이 230m의 진입터널을 하향 10% 경사로 굴착함으로써 연구모듈이 산정상부 아래쪽이 위치하도록 함으로써 연구모듈이 최소 100m 이상의 심도를 확보할 수 있도록 설계에 반영하였다.

감사의 글

이 연구는 과학기술부 주관 국가중장기 원자력 연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

1. 권상기, 김경수, 박정화, 조원진, 2003, Concept Development for HLW Disposal Research Tunnel, 2003추계원자력학회,용평.
2. SKB,1993,, Aspo hard rock laboratory annual report 1992, SKB technical report, SKB TR 93-08.
3. 김진웅 외, 1996, 고준위폐기물 처분기술개발-처분시스템엔지니어링 연구, 제 1차년도 연구보고서, KAERI/NEMAC/RR 174/96, 한국원자력연구소.

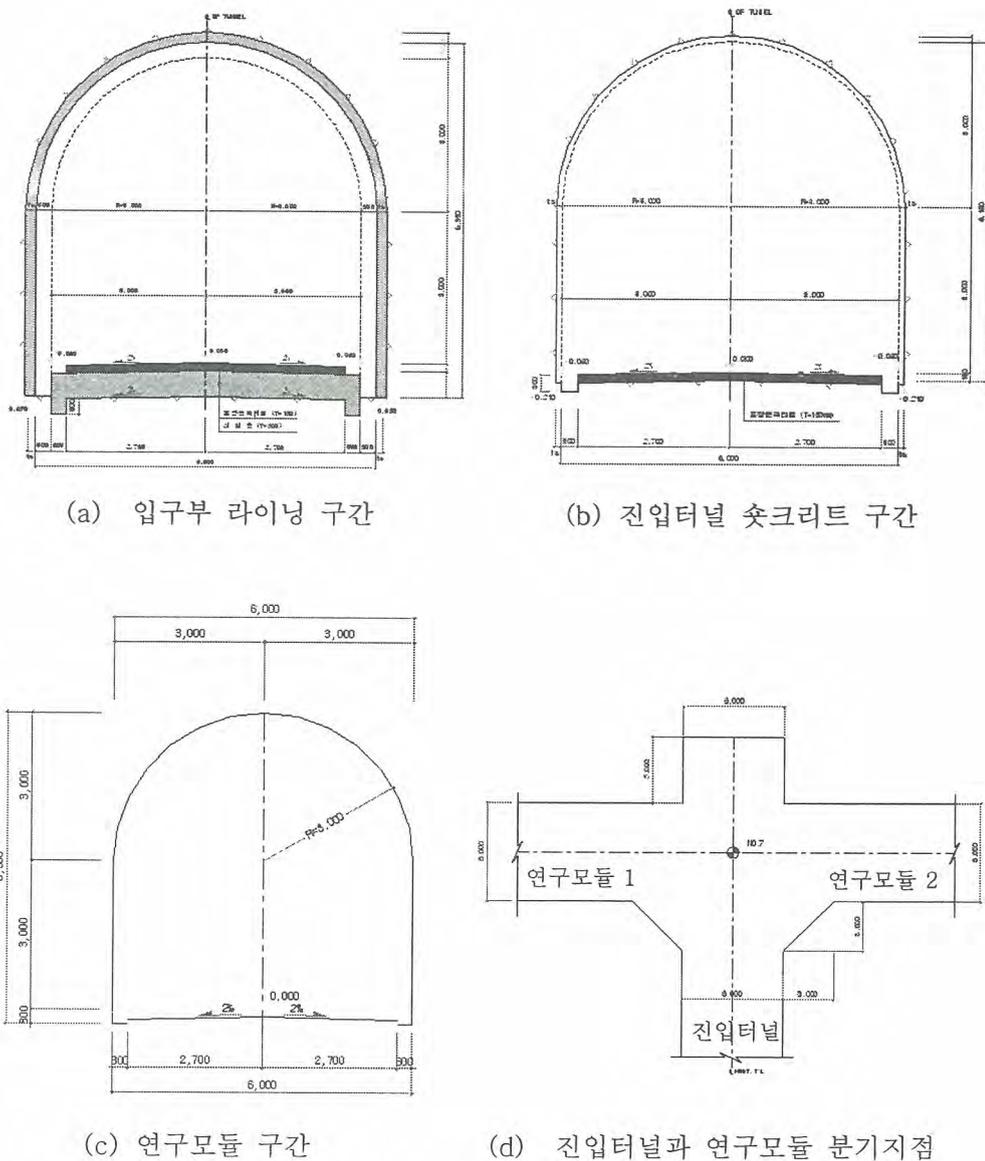


Fig.5. Tunnel design of the underground research tunnel

빈 면

**제2분과 (B)**  
**방사성폐기물 처리 및 처분**  
**(Poster)**

빈 면

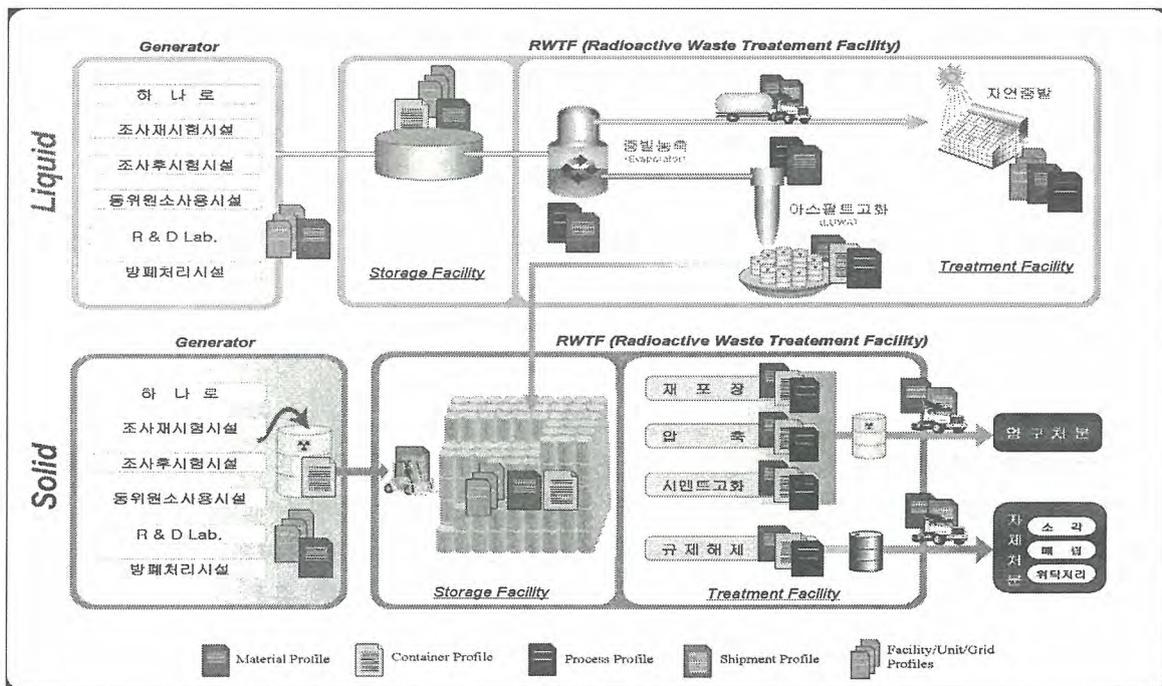
## 바코드 시스템을 이용한 방사성 고체폐기물 관리

이영희, 조한석, 손종식

한국원자력연구소  
 대전광역시 유성구 덕진동 150

### 요약

한국원자력연구소의 하나로, 방사성동위원소 생산건물 및 핵연료주기시설인 조사후 시험시설, 조사재 시험시설 및 방사성폐기물처리시설의 운영과정에서 혹은 방사성 동위원소를 이용하는 각실험실 등에서 여러 형태의 방사성 고체폐기물이 발생한다. 이들 방사성 고체폐기물의 효율적 관리를 위하여 데이터베이스 시스템을 구축하여 폐기물의 발생, 내역, 이동, 저장상태등 제반 자료를 저장관리하고 이를 기반으로 바코드 시스템을 도입하여 간단한 조작 만으로 다량의 방사성 폐기물에 대한 자료의 검색을 용이하게 하고자 한다. 본 연구는 소내에서 발생하는 방사성폐기물의 발생현황과 이를 수집하여 분류하고 관리하는 과정을 분석하여 도식화한 결과와 이를 토대로 업무에 필요한 관리 항목을 설정하여 개개의 폐기물 드럼에 대하여 바코드를 부여하고 데이터베이스에 저장하여 방사성폐기물에 대한 이력관리 및 업무의 효율성을 향상시키며 정확하고 신속한 정보를 제공하게 한다.



< 바코드를 이용한 관리 시스템 개략도 >

## 모의 저준위 방사성폐기물 동굴 지하수 유동 평가

황용수, 서은진, 강철형  
yshwang@kaeri.re.kr

### 요약

저준위 방사성폐기물 안전성 평가를 위해 대상 부지를 선정하고 경계 조건을 도입하였다. 연안에 처분장이 위치할 경우를 가상하여 처분장 심도 및 단열까지의 거리 등에 대한 지하수 유동 민감도를 분석하였다. 또한 처분장 진입 터널이 지하수 유동에 미치는 영향을 평가하였다. 이를 통하여 각 암반별 이동 거리 및 시간을 CONNECTFLOW를 이용해 산정하고, 그 결과들이 방사선적 안전성 종합 평가 코드인 MASCOT의 입력 자료로 활용되도록 하였다.

**Key Words:** 지하수 유동 평가, 방사선적 종합 안전성 평가, 이동 시간, Connectflow

### 1. 서론

2008 년 준공 예정인 저준위 방사성폐기물 처분장의 인허가를 위해서는 관련 서류들과 함께 안전성분석보고서와 환경영향평가서의 평가서 작성이 필요하다. 안전성분석보고서 중 가장 중요한 처분장 폐쇄 후 장기 방사선적 안전성 평가에서 고려되어야 할 주요 사항들은 아래와 같다.

- (1) 처분 동굴 터널 배치도와 같은 처분 터널 및 주변 공학적 방벽 설계 자료
- (2) 처분 터널에 거치될 18 가지 평가 대상 핵종들에 대한 선원항(inventory) 정보
- (3) 처분 용기에 함유된 핵종들의 유출 및 인간 생태계로의 이동을 기술하는 사건 (FEP: Features, Events, Processes) 목록 개발
- (4) 사건들로 구성된 처분 핵종 이동 시나리오(Scenario) 구성
- (5) 각 시나리오 별 안전성 평가를 위한 방법론 설정
- (6) 공학적/천연 방벽의 불확실성을 고려한 입력 인자 설정
- (7) 연간 개인 선량(Annual individual dose)이나 위험도(Risk) 평가
- (8) 수정 설계 및 수정 설계안에 대한 평가

본 논문에서는 상기 8 단계의 저준위 방사성폐기물 동굴 처분 안전성 평가 단계 중 (6) 항에 해당하는 지하 매질에서의 지하수 유동 평가 단계에 대해 방법론 및 결과물을 제시하고자 한다. 저준위 방사성폐기물 처분 안전성 평가에 있어서 지하수 유동 평가는 처분 동굴, 공학적 방벽, 천연 방벽, 천연 방벽과 생태계 접면(Geosphere Biosphere Interface: GBI)에서의 지하수 이동 거리(path length), 시간(travel time), 유입 속도(Darcy velocity) 등을 2차원 혹은 3차원 유동 평가를 통해 산정해 종합 안전성 평가 코드인 MASCOT-K나 AMBER의 입력 자료로 최종적으로 사용된다.

## 2. 평가 대상 지역 경계 조건

평가 대상 지역은 왼쪽에 육지가 오른쪽에 바다가 존재하므로 해수 존재를 고려한 경계 조건들을 설정해야 한다. 모델링 대상 지역 선정 시 왼쪽 경계 조건은 높은 산의 존재로 인해 불투수 경계 조건이 유효하며, 육지 상부 지역에서는 지하수위에 따라 경계 조건이 설정되어야 하며, 바다에서는 염수를 고려한 경계 조건이 오른쪽에서는 지형 특성을 고려해 불투수 경계 조건이, 하부는 불투수층의 존재를 고려해 불투수 조건이 설정되어야 한다.

## 3. 평가 입력 자료

그림 1은 평가 지역의 단면 모식도이다. 단열(폭 50m)은 중앙부 30m, 양 측면으로 단열 후광 지역(Fault halo)이 각각 10m씩 발달한 것으로 가정하였다. 설계 자료에 따라 본 연구에서는 처분장 길이 140m, 처분 동굴은 높이 19.7m로 하며 처분장의 심도는 각각 60, 80, 120m로 선정하였다.

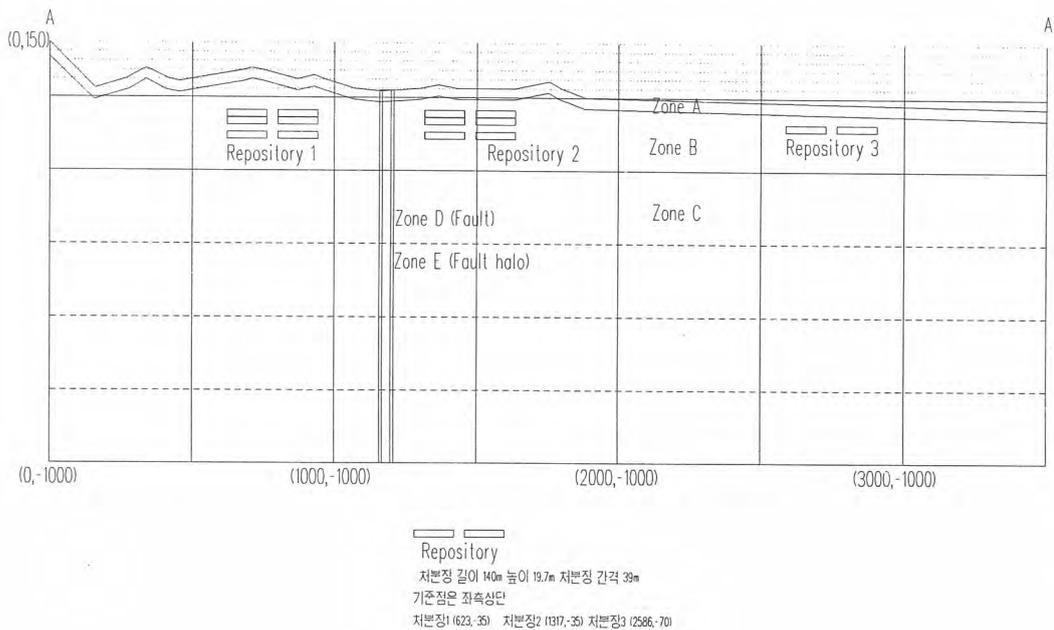


그림 1. 평가 지역 모식도

표 1은 본 연구에서 사용한 입력 자료인 투수 계수와 공극률을 나타낸다.

표 1. 지하수 유동 평가 입력 자료

Items		Permeability(m <sup>2</sup> )	Porosity
Zone A		1.0E-14	0.05
Zone B		1.0E-15	0.01
Zone C		1.0E-16	0.005
Fault zone	Zone A	1.0E-13	0.05
	Zone A Halo	1.0E-14	0.025
	Zone B	1.0E-13	0.02
	Zone B Halo	1.0E-14	0.005
	Zone C	1.0E-14	0.01
	Zone C Halo	1.0E-15	0.0025

#### 4. 지하수 유동 평가

처분 동굴의 심도와 위치에 따른 지하수 이동 및 그에 따른 방사선적 영향을 평가하기 위해서 본 연구에서는 그림 2에 도시된 바와 같이 처분장의 위치를 3곳으로 고려하였다. 즉 단열 왼편에 위치한 처분장 R1과, 단열 오른쪽에 위치한 처분장 R2와 해저에 위치한 처분장 R3를 고려해 지질 지형 조건에 따른 지하수 유동 및 그에 따른 방사선적 안전성을 평가하고자 하였다. R1, R2, R3는 그림에 도시된 바와 같이 2열의 처분 동굴로 구성되어 각 열별로 총 40 만 드림의 방사성 폐기물을 처분한다고 가정하였다. 처분장 주변 암반 분포는 상부에는 풍화된 응회암, 그 하단의 처분장 위치에는 상대적으로 신선한 응회암이 하단에는 핵종 흡착능이 높은 화강암으로 이루어져 있다고 가정한다.

수리 평가에 사용된 처분장 이름은 U는 상단, R은 중간, L은 하단에 위치한 처분장을 각각 나타내며 왼쪽 열을 2, 오른쪽 쪽을 5로 표시하였다. 즉 단열 왼쪽 처분 동굴을 단열로부터 먼 것을 12 가까운 것을 15가 되며, 단열 오른쪽 처분장에 대해서는 단열에 가까운 처분 동굴을 22 먼 것을 25가 된다.

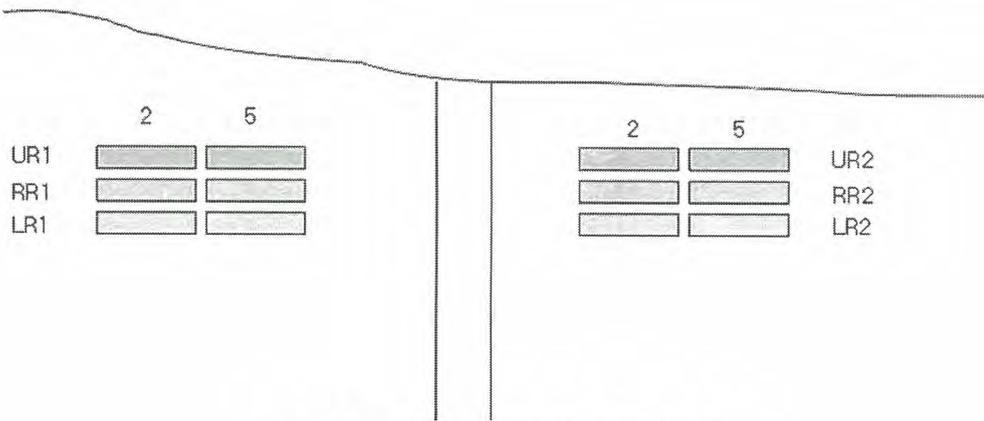
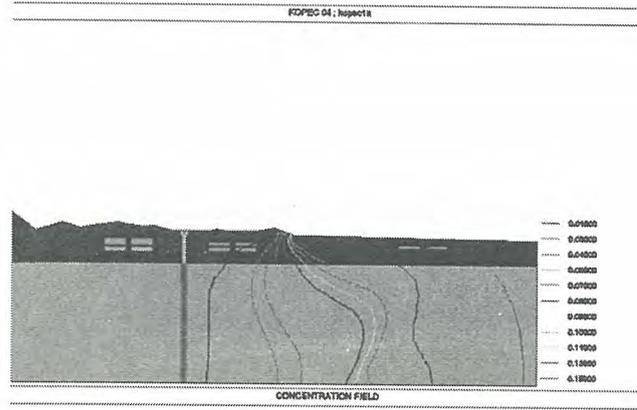


그림 2. 각 위치 별 심도에 따른 명명법

그림 3은 평가 대상 지역에서의 해수 침투 현상을 NAMMU로 해석한 것이다. 담수 이동과 해수 이동은 서로 커플링 되어 있으며 이와 같은 해석을 위해서 NAMMU에는 Newton-Ralphason 방법을 기초로 해수 침투를 규명할 수 있는 기능이 있다.

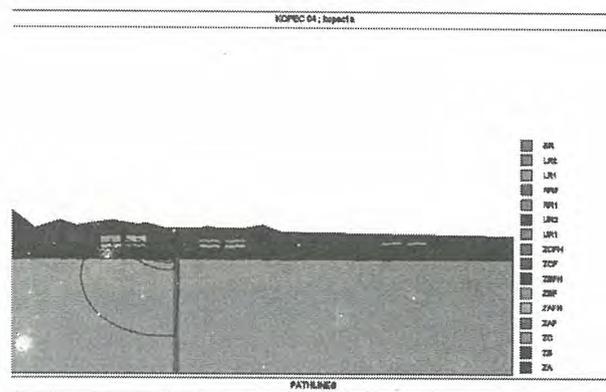
평가 대상 처분장은 연안에 위치하고 있으므로 해수 침투에 의한 영향을 평가하는 것이 필요하다. 해수 침투는 담수 지하수의 분포를 변화시킬 뿐 아니라 처분장 내 시멘트 및 철 구조물의 열화를 촉진시키고 벤토나이트 방벽의 팽윤을 저지하며 흡착능을 저감시키기도 한다. 그림에 나타난 바와 같이 3 군데 처분장 중 해저에 위치한 처분장의 경우 해수의 농도가 매우 높으나 단열 우측에 위치한 처분장의 경우 염수의 농도가 1% 정도이며 단열 왼편에 위치한 처분장의 경우 해수 침투의 영향은 무시할 수 있다.



KOPEC 1a Salt

그림 3. 해수 침투 평가 결과

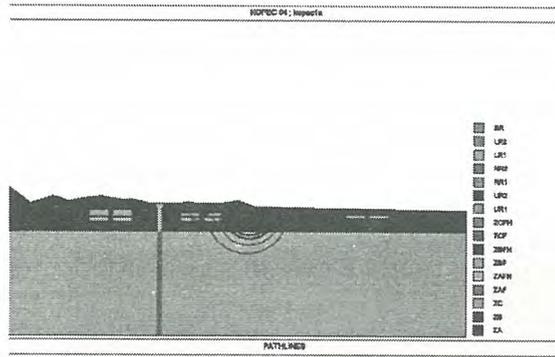
그림 4는 단열 우측 처분장에서 지하수 유동 경로를 나타낸 것이다. 그림에서 도시된 바와 같이 UR, RR 동굴로부터의 좌측 가장 자리로부터의 유출 경로는 처분장 좌측 골짜기로 연결되며 그 외의 유출 경로는 처분장 우측에 위치한 단열로 연결되어 최종적으로 지표면으로 나오게 된다.



KOPEC1aR1

그림 4. R1 처분장으로부터의 지하수 이동 경로 해석 결과

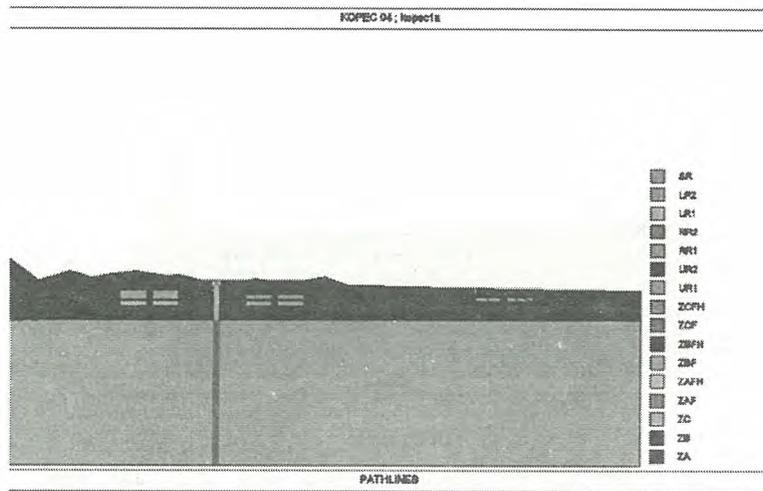
그림 5는 R2 처분장에서의 지하수 이동 경로 해석 결과를 도시한 것이다. 이 그림에서 나타난 바와 같이 처분장이 연안에 위치하게 되고 또한 내륙에 투수 계수가 상대적으로 높은 단열이 존재하고 지표 지형이 단열로의 국지적인 지하수 유동을 유도하게 되면 같은 처분 심도에서도 미세한 횡축으로의 위치 변화에 따라 지하수 유동 경로가 변화하게 되어 일부는 내륙으로 일부는 해양으로 향하는 복잡한 지하수 유동 경로가 발생하게 된다. 또한 국지적인 표고 분포로 인해 일부 지하수 이동 경로는 단열이나 해양 쪽이 아니라 처분장 상부로 바로 올라갈 수 있다. 이와 같은 경우 비교적 긴 이동 거리가 긴 다른 이동 경로들의 장점이 무시되게 되므로 보다 정확한 평가를 통해 처분장 동굴 위치 및 심도를 정하는 작업이 요구된다.



KOPEC1aR2

그림 5. R2 처분장으로부터의 지하수 이동 경로 해석 결과

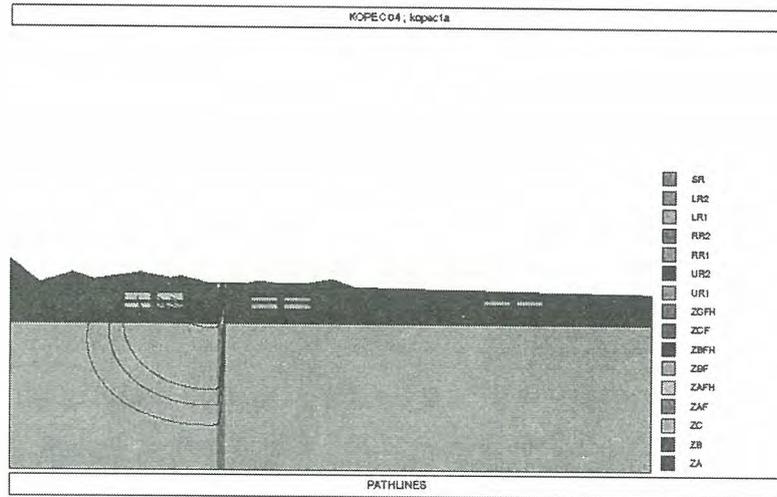
그림 6은 해저에 위치한 R3 처분장으로부터의 지하수 이동 경로를 예측한 것이다. 본 연구에서는 해저 퇴적층의 투수 계수에 대한 정보가 없어 본 연구에서는 퇴적층의 투수 계수를 보수적인 관점에서 일반 표토층의 투수 계수로 가정하였다. 이와 같은 입력 자료를 사용한 결과 퇴적층의 차수 효과가 반영되지 못해 R3 처분장으로부터 이동 경로 거리와 이동 시간이 짧게 산출되었다.



KOPEC1aR3

그림 6. 해저 처분장으로부터의 지하수 이동 경로 해석 결과

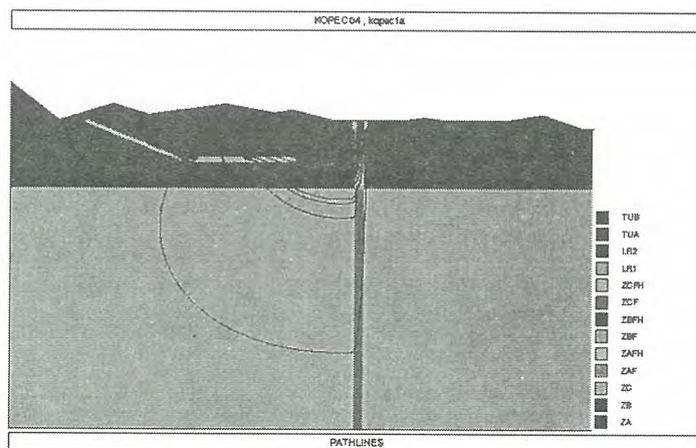
그림 7은 ZA층의 투수 계수를 10 배 감소 시켰을 경우 지하수 이동 경로 및 시간에 대한 평가 결과이다. 평가 결과 표토층의 투수 계수 변화는 해수 침투 및 각 R1, R2, R3 처분장에서의 지하수 이동 경로에 거의 영향을 미치지 못하였다.



KOPEC 4c R1 – ZA k 1 order lower

그림 7. ZA 층의 투수 계수를 10 배 를 10배 낮출 경우 R1 처분장에서서의 지하수 이동 해석 결과

그림 8은 진입 동굴을 고려한 경우 지하수 이동 경로 및 시간의 변화를 평가한 것이다. 진입 동굴의 경우 일반적으로 주변 암반과 같은 투수 계수를 가지도록 충전하는 것이 이상적이나 현실에서는 투수 계수가 주변 암반보다 높게 시공될 수도 있다. 그림에 나타난 바와 같이 진입 동굴의 투수 계수 변화는 진입 동굴 근처 국지적인 지역에서만 지하수 이동 경로에 영향을 미쳤다. 이는 진입 동굴이 좌측 내륙 지방으로 위치하였고 현재 지표 지형 조건에서는 진입 동굴 투수 계수 변화로 인한 영향이 처분장 좌측 경계면과 가까운 지역에만 영향을 미쳤기 때문이다.



KOPEC 16c – Tunnel k 1 order higher

그림 8. 진입 동굴의 투수 계수가 주변 암반보다 10배 증가할 경우 지하수 이동 경로 해석 결과

## 5. 결론

본 연구 결과 단열의 위치 및 투수 계수는 처분장 안전성에 큰 영향을 미친다. 처분장에서 단열의 위치가 너무 가까워지면 이로 인한 영향으로 처분장 안전성이 심대하게 영향을 받을 수 있으

므로 처분장이 이러한 위치에 입지해서는 안된다고 주장 할 수도 있으나 이러한 주장을 하기 위해서는 보다 세부적인 평가가 수행되어야 한다.

지하수 유동에 영향을 주는 주요 인자로는 단열 주변 암반 및 단열의 투수 계수와 지표 지형이 도출되었다. 이들의 영향은 독립적으로 나타나는 것이 아니라 서로 상호 결합되어 나타나므로 어느 부지가 적격인지 아닌지를 판정할 수 있는 단일 기준은 성립될 수 없고 예비 지하수 유동 평가를 수행해야지만 어느 부지가 다른 부지에 비해 상대적으로 천연 방벽의 역할을 적절하게 수행한다고 판정할 수 있을 것이다.

본 연구 대상 지역에서는 미세한 지표 지형 변화에도 처분장 지하수 유동 경로가 변화하였다. 이에 대한 원인은 왼쪽 경계면 선정에 있을 수 있다. 만일 충분히 높은 산을 왼쪽 경계면으로 지정했으면 현재 평가에서 나타나는 국지적인 지표 지형 굴곡으로 인한 국지적인 지하수 유동 현상이 사라지고 왼쪽 경계면으로 인해 좌측에서 우측으로 밀고 내려오는 지하수 흐름이 처분장 주변을 지배할 것이다. 장기적으로 큰 홍수나 해일 등이 발생하여 지층이 침식 등으로 변화하게 되면 처분장 안전성에 영향을 줄 수 있으므로 처분장 입지 시에 지표 지형이 지하수 유동 체계에 민감한 부지는 되도록 피해야 한다.

본 연구에서 사용한 투수 계수 값들은 스웨덴 SFR이나 핀란드 Loviisa와 VLJ 처분장의 동일 심도에서의 투수 계수 값들에 비해 1-2 order 씩 높다. 투수 계수가 높은 경우에는 지표 지형이 처분장 주위 지하수 유동에 상대적으로 큰 영향을 미치게 되며, 지화학적 측면에서도 산화 분위기의 강우수가 처분장으로 유입될 수 있어 안전성에 영향을 미칠 수 있다.

일반적으로 진입동굴은 주변 암반에 비해 투수계수가 상대적으로 높으므로 지하수 유동의 주요 통로 역할을 할 수 있다. 따라서 처분장 우측 해안 지방에 진입 동굴이 위치할 경우 처분장에서 유출된 방사성 핵종들이 진입 터널을 통과해 지표면으로 유출될 개연성이 높으므로 진입 동굴은 처분장 좌측인 내륙 지방에 위치하는 편이 안전하다.

본 연구에서는 처분장을 3 가지 다른 심도에 위치한다고 가정한 후 심도 변화에 따른 안전성을 평가해 보았다. 단열에 근접한 처분장 (R15)의 경우 유출 경로가 처분장 근방에 위치한 단열을 통한 것이어서 상대적으로 처분장 심도의 영향이 적었다. 그러나 처분장 위치가 단열로부터 상대적으로 먼 처분장(R12)의 경우는 심부 암반 지역을 통과하는 유동 경로가 형성되었다. 이와 같은 유동 경로가 형성되는 경우 처분장 안전성이 상대적으로 높아지며 미세하나마 심도에 대한 영향을 보이고 있다.

## 감사의 글

본 연구는 과학기술부가 주관하는 국가원자력중장기연구사업 및 (주)한국전력기술이 주관하는 연구 프로젝트를 통해 수행되었습니다.

## 원전고화폐기물 특성시험을 위한 시험법 선정방법

김기홍, 유영걸, 홍권표

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

정의영, 박종현, 김현

한국수력원자력(주) 원자력환경기술원

대전광역시 유성구 덕진동 150

### SUMMARY

국가의 규제기관과 처분장에서는 방사성 폐기물의 안전한 영구처분을 위하여 폐기물 수용(인수) 기준을 폐기물 발생자에게 준수토록 요구하게 되는데 이러한 폐기물 수용(인수)기준은 처분시설의 가동동안 인간과 환경 보호 그리고 최대 300년간의 제도적 통제기간을 고려하여 처분장의 안전성 확보를 위하여 설정되어진다.

폐기물 수용(인수)기준중 고화체의 안정성 평가와 관련하여 미국(NRC/BTP)은 폐기물의 종류와 고화매질에 따라 유리수, 압축강도, 방사성 조사특성, 미생물 영향 특성, 침수 및 침출 특성, 열순환 특성 등에 대하여 표준시험법을 제시하였으며, 또한 그의 기술기준치도 제시하고 있다. 그리고 프랑스(DRDD/ BECC)에서는 미국보다 매우 세밀하게 평가항목들을 분류하는 등의 처분장 운영 국가에서는 고화체의 안정성관련 평가시험들을 처분 환경과 처분방식에 맞게 표준화하고 있다.

한편 국내에서는 과기부 고시 제2001-32호 “중·저준위 방사성폐기물 인도규정”이 있으나 이에 는 고화체 관련하여 정성적인 안정성에 대하여서만 기술되어 있다. 이에 따라 원전폐기물 고화체에 대한 안정성 평가를 위한 시험법을 선정하기 위하여 아래 그림과 같은 절차에 따라 수행토록 하였다. 우선 대표적인 천층처분 운영국가인 미국과 프랑스의 시험법 그리고 IAEA 권고 시험법과 유사관련 한국 산업표준법들을 조사하고, 이들 시험법들의 주요 차이점을 기술적 관점에서 비교 평가하고, 이어서 모의 방사성 및 비방사성 고화체를 이용하여 상기 시험법들을 각각 적용하고 또한 이들 시험법들간의 차이(시험 조건, 시편의 크기 등)에 기인한 상호 비교시험을 통하여 얻어진 시험결과들을 종합적으로 비교 검토하여 보수적 관점에서 시험법을 선정하는 것으로 방향을 잡았다. 이때 시험결과를 얻기 위한 모든 과정에 품질보증 활동을 적용키로 하였으며, 시험결과 분석/평가 과정과 시험법 선정에 각계(규제기관, 학계, 발전소 현장 및 산업계 등) 전문가로부터 기술 자문회의를 통하여 자문 의견을 받기로 하였다. 특히 현재 폐기물 인수 기술기준치가 설정된 국가의 시험법을 심층있게 검토하기로 하였다.

고화체 안정성관련 주요 시험항목에서의 국가간 시험법의 차이는 다음과 같다.

#### 1. 압축강도

시멘트와 같은 rigid형 고화체에 대하여서 미국(ASTM C-39)은 시편의 크기를  $1.8 < \text{직경/높이}(D/L) < 2.2$ , 재하속도는 0.24 ~ 0.34 MPa/s를, 프랑스(FT-02-010)에서는 직경/높이(D/L, D = 110mm) = 2.0, 재하속도는 0.5 MPa/s 그리고 한국의 KS F 2405에서는 직경/높이(D/L, D = 100mm) = 2.0, 재하속도는 0.65 MPa/s를 제시하고 있다.

한편 파라핀과 같은 flexible 형 고화체에 대하여서는 미국 (ASTM D-1074)은 시편의 크기를 직경/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. 한국의 시험법인 KS F 2351은 미국의 시험과 동일하다.

## 2. 열순환 시험

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°C(1시간) → +60°C(1시간) → -30°C(1시간)을 1주기로 하여 총 30회의 주기 시험을 요구하고 있으며, FT-02-031에서는 +5°C(2시간) → -20°C(24시간) → +5°C의 동결과정을 1주기로 하여

총 5회를 수행한 후 이어서 +5°C(2시간) → +40°C(24시간) → +5°C의 용해과정을 1주기로 하여 총 5회를 시험토록 하고 있다. 한편 한국의 KS-F-2456은 토건에 사용되는 콘크리트의 급속 동결 용해에 대한 콘크리트의 저항 시험방법에 관한 것으로서 시험방법 A와 B는 서로 다른 환경을 갖게 되며, 동결-용해 사이클은 A 시험법은 4°C → -18°C, B 시험법은 -18°C → 4°C를 1 사이클로 하여 총 300회의 사이클에 고화체를 노출시키게 한다. 본 시험법에서는 매 36 사이클 마다 시편을 시험 장치로부터 꺼내어 주파수 시험(KS-F-2437)을 하게 된다.

## 3. 침수 시험

현재 고화체의 침수 특성에 대하여서는 어떠한 시험법도 없다. 이에 따라 본 시험에서는 각국에서 표준시험법으로 채택하고 있는 침출시험법을 이용하여 내침수성을 시험코자 하였다.

## 4. 침출 시험

중저준위 폐기물 고화체에 널리 이용되는 시험법으로는 IAEA 시험, ANS 16.1 및 프랑스의 FT-04-020 등이 있다. 이들 시험법의 주요 차이점은 침출수에 대한 시편의 노출상태, 침출수 교체주기 및 총 시험일수 및 결과 표현방법에 있다.

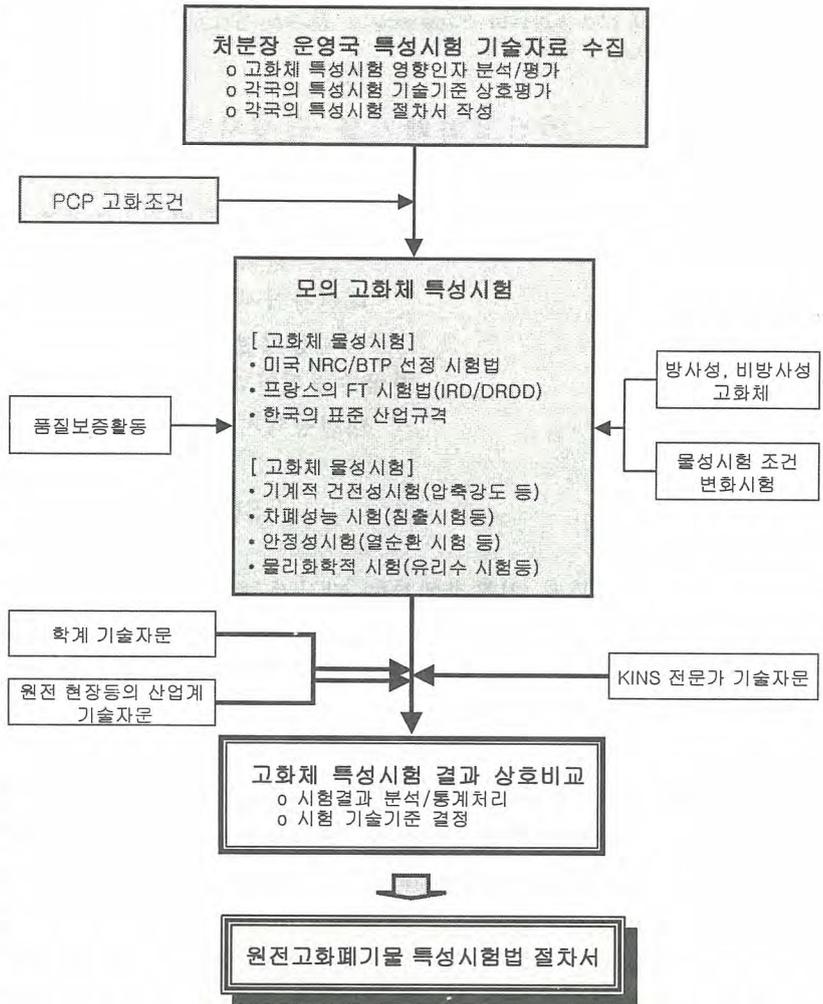


그림 1 원전고화폐기물 특성시험을 위한 시험법 선정절차

## 5. 방사선 조사 시험

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  $10^9$  rads 이상이 되지 않을 경우,  $10^8$  rads 까지, 프랑스에서는  $10^7$  rads까지 고화체 시편이 피폭될 때까지 조사하여 고화체의 건전성을 평가토록 하고 있다. 특히 프랑스에서는 조사 선량을  $5 \times 10^2 < \text{dose rate} < 5 \times 10^3$  Gy/hr로 할 것을 요구하고 있다.

## 수소동위원소 운반용기의 건전성 평가

임성팔, 이민수, 방경식, 김광락, 서기석, 정홍석

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

가압 중수로형 원자력발전소에서는 중수 중의 중수소와 중성자의 반응에 의하여 수소동위원소인 삼중수소(트리튬)가 불가피하게 생성되는데 발전소의 가동 년수가 증가함에 따라 계통내 중수 중의 삼중수소 농도도 증가하게 된다. 따라서 계통내 삼중수소화 중수로부터 삼중수소를 분리하여, 중수는 원자로로 순환하고 분리된 삼중수소는 별도로 저장할 필요가 있다. 이 과정에서 분리·농축된 삼중수소는 방사성 물질일 뿐만 아니라 앞으로 핵융합 연구에 매우 중요하게 이용되어야 할 자원이기 때문에 이를 안전하게 저장하기 위한 기술(저장기술)과 경우에 따라 지정된 장소로 운반하기 위한 기술(운반기술)이 필요하다.

한국원자력연구소에서는 수소동위원소의 활용을 위하여 삼중수소가 저장된 용기(저장용기)를 원하는 목적지까지 안전하게 운반할 수 있는 운반용기를 개발하였다. 이 용기는 삼중수소 500 kCi를 운반할 수 있는 B형 운반용기로 크게 본체, 2차용기, 저장용기 세부분으로 구성되어 있다. 본체는 단순한 스테인레스 스틸 드럼으로 외부의 충격과 열로부터 내용물을 보호하기 위한 단열재와 충격흡수재가 내장되어 있다. 본체 안에는 2차 용기가 위치하는데 2차 용기는 저장용기를 보호하고, 사고 시 저장용기로부터 누출되는 기체를 차단하는 역할을 한다. 가장 안쪽에는 운반 목적물인 저장용기가 위치한다. B형 운반용기로 제작된 수소동위원소 운반용기는 운반 도중의 사고 시에도 내용물을 안전하게 보호하여야 하므로 사고시를 가정한 9m 자유낙하 시험, 열시험(800℃, 30분, 화재조건) 등의 엄격한 시험 방법과 기준이 적용된다.

본 연구에서는 실제 크기로 제작된 수소동위원소 저장용기와 운반용기에 대하여 사고조건에서의 시험항목인 9 m 자유 낙하시험, 1 m 봉 위 낙하시험, 열시험을 과학기술부 고시 제 2001-23호(2001)에 따라 실시한 후 외관검사 및 헬륨 누설시험 등을 통하여 그 건전성을 입증하였다.

## 처분환경에서 처분용기 재질의 부식

김승수, 전관식, 김영복, 연제원, 최종원, 한필수  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

### 요약

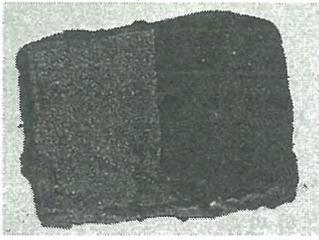
고준위폐기물 혹은 사용후핵연료의 처분용기 재질은 각 국의 처분개념과 처분공의 주위 환경에 따라 달라질 수 있다. 용기의 후보재질로는 탄소강, 스텐레스 강, 구리, 니켈, 티탄 혹은 이들의 합금이 주로 고려되고 있으나, 국내에서는 아직 선정되지 않았다.

국내 처분환경에서 이들 재질의 부식특성을 조사하고자 모의 화강암 지하수를 가해 만든 겔 상태의 경주 벤토나이트에 탄소강, 스텐레스 강, 구리 시편을 넣고, 70°C, 아르곤 분위기에서 530일 경과한 후 시편의 표면 변화 (그림 1) 및 무게 감소를 측정하였다. 철 부식시편은 검정색의 철 화합물 층으로 덮여 있었으며, 구리표면에는 노란색의 부식층이 형성되었는데, 이를 XRD로 분석한 결과  $Cu_2O$ 로 판명되었다. 그러나 700°C에서 각각 0, 24, 96시간동안 예민화시킨 스텐레스 강 시편들은 모두 초기상태 그대로 광택을 유지하고 있었으며, XRD에서 다른 화합물의 형성을 발견할 수 없었다 (그림 2).

시편의 무게 감소가 균일부식에 기인한 것으로 가정하여 환산한 결과, 구리와 스텐레스 강 모두 0.3~0.4  $\mu\text{m}/\text{yr}$ 의 부식속도를 나타내었다. 그러나 구리는 부식생성물이 표면에 부착되어 있기 때문에 실제 부식두께는 이 값보다 더 클 것으로 생각된다. 용기가 초기 530일간과 같은 속도로 처분용기의 부식이 진행된다면 한국에서 기준처분 개념으로 삼고 있는 50 mm 두께의 내부식성 외벽 금속용기는 적어도 만년이상 견딜 수 있을 것으로 추정된다. 한편, 검정색 부식층을 제거한 무게감소로부터 계산한 철의 부식속도는 구리의 약 30배에 해당하였다.

금속 재질의 정확한 부식 거동을 파악하기 위해서는 보다 장기간의 실험이 요구된다.

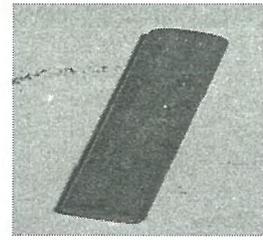
**중심단어** : 부식, 용기, 처분, 구리, 스텐레스 강, 철



(a) 철



(b) 스테레스 강



(c) 구리

그림 1. 겔 상태의 벤토나이트 속에서 530일이 경과한 금속 시편들의 표면 변화.

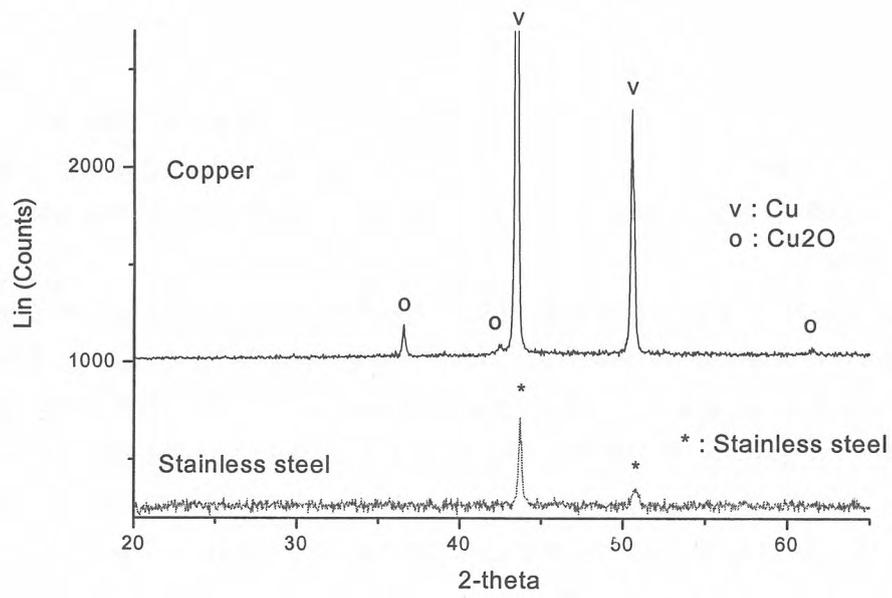


그림 2. 부식 실험후 구리와 스테레스 강 시편의 XRD 그래프.

## $^{14}\text{C}$ 를 함유한 톨루엔의 산화반응 및 액체섬광계수를 이용한 정량적 분석

이흥래, 안홍주, 송병철, 김정석, 박순달, 한선호, 지광용  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

원전 1차 냉각계통내 화학첨가제인 amine 또는 과산화수소를 사용하면서  $^{14}\text{N}$ (n, p) $^{14}\text{C}$ 와  $^{17}\text{O}$ (n, a) $^{14}\text{C}$ 의 핵반응으로 생성된  $^{14}\text{C}$ 는 냉각수내에서 방사성 폐기물로 존재하게 된다. 이들 방사성 폐기물은 pH에 따라 다르지만 수용액상에서는 대부분  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{HCO}_3^-$  및  $\text{CO}_3^{2-}$ 로 존재하고, 나머지 약 20% 정도는 유기성 탄소로는 메탄이 존재하는 것으로 알려져 있다. 폐이온 교환수지 내에 존재하는  $^{14}\text{C}$ 는 시간이 경과함에 따라서 방향족 화합물로 이온교환이 발생할 수가 있다. 따라서 본 연구에서는 방사성 폐기물중의  $^{14}\text{C}$  함량을 정량하기 위하여 유기물의 산화반응을 검증하고자  $^{14}\text{C}$ -톨루엔 (7000Bq/ml)을 표준물로 사용하여 용출법으로 산화제인  $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_8$ 의 양과 매질인  $\text{HNO}_3$ 의 농도를 변화시키면서 산화 반응 과정을 FT-IR 분광기와 액체섬광계수기를 통하여 조사하였다. 산화반응 동안 수층은 FT-IR 분광기를 통해서 피크 변화를 조사하였는데, 이때 변화되는 C=O 결합 신축 띠를 관찰할 수 있었다. 다양한 산화 반응 조건 중  $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_8/\text{C}_7\text{H}_8$ 의 몰비가 2이고  $\text{HNO}_3/\text{C}_7\text{H}_8$ 의 몰비가 9.5에서 가장 효율적인 C=O 결합 신축 띠를 관측하였고, 이 산화 조건에서 흡착제에 포집된  $^{14}\text{CO}_2$ 를 액체섬광계수기를 이용하여 측정된 결과 높은 계수효율을 보여 산화 반응 효율이 가장 우수한 것으로 평가되었다.

## 고준위 폐기물 지하처분연구시설 부지 특성에 관한 연구

김건기, 권상기, 조원진, 박정화

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

본 연구에서는 원자력 연구소 내에 건설할 고준위 폐기물 지하처분연구시설 부지에 관한 특성을 파악하고, 연구시설의 위치를 선정하기 위한 지질학적 연구를 실시하였다. 지표지질조사를 통하여 연구소 내에 분포하는 암석들의 분류와 선구조 분석을 실시하였고, 지구물리탐사와 시추조사를 통한 지하 암반의 분포양상과 연구시설 주변의 추정되는 파쇄대의 분포를 확인하였다.

지표지질조사결과 복운모화강암과 화강섬록암질 편마암이 점이적인 관계로 분포하고 있으며 (Fig.1, 3), 이들 화강암류 내에는 암맥상으로 중성 혹은 염기성 암맥들이 절리의 방향과 동일하게 관입 분포한다. 절리의 방향성은 N30E, N80W, NS방향으로 분포하고 있다(Fig. 2).

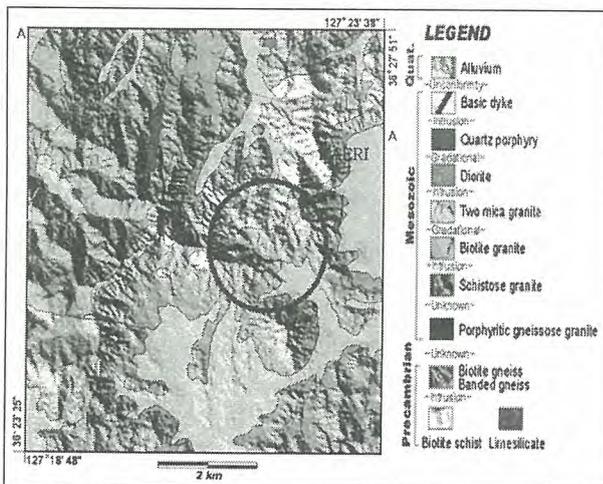


Fig. 1. Geological map of study area.

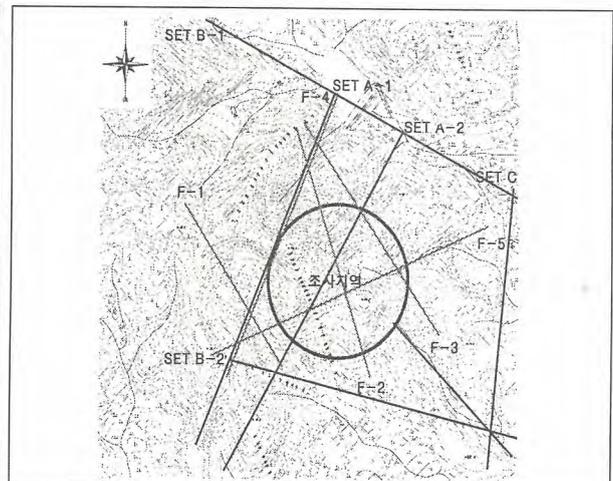


Fig. 2. lineament analysis of study area.

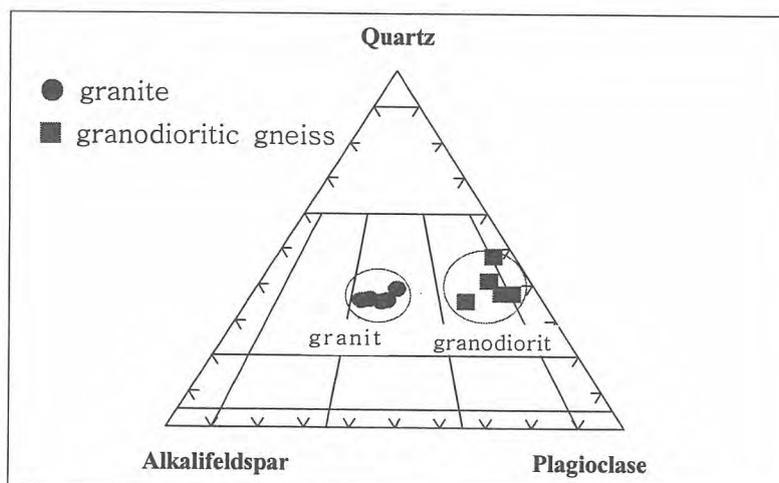


Fig. 3. QAP diagram of granitic rocks in the study area.

기존자료와 지표조사결과를 이용하여 연구시설의 예상 부지를 선정하고, 선정된 부지를 중심으로 격자형으로 탐사 축선을 배치하고 지구물리탐사를 실시하였다. 탄성과 탐사는 암반의 경계면을 탐사하기 위해 굴절법 탄성과 탐사를 실시하였고, 전기비저항탐사는 수직구조 탐사에 적합한 단극-쌍극자배열(pole-dipole)을 적용하여 탐사를 실시하였다. 탐사 결과는 탄성과 속도에 따라 토사는 평균 2~4m 내외의 두께, 풍화암은 평균 3~4m 내외의 두께, 연암은 평균 5~8m 내외의 두께로 분포하고 있으며(Fig. 4), 그 아래에 경암이 분포하고 있음을 확인할 수 있고, 저비저항대를 통하여 5개의 이상대를 추정하였다(Fig. 5).

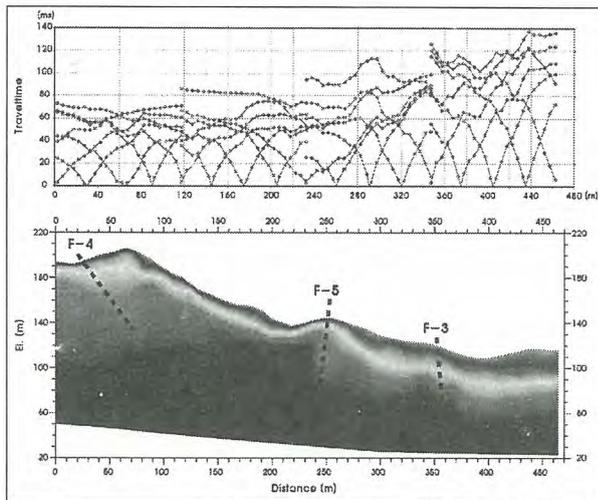


Fig. 4. Result of Seismic exploration.

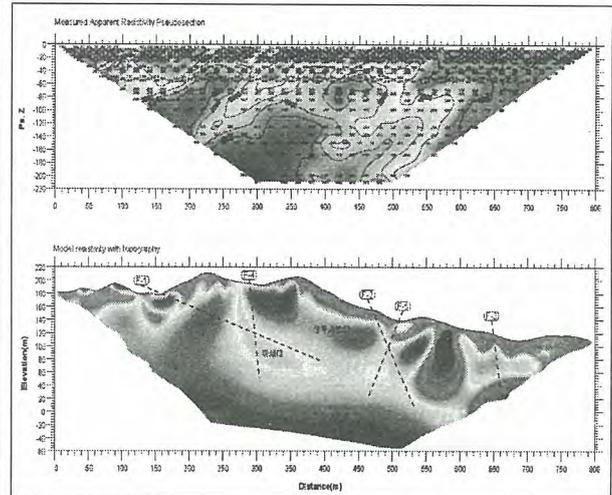


Fig. 5. Result of Resistivity exploration.

지표지질조사와 물리탐사 결과를 확인하기 위하여, 예상 부지에 터널 입구부에 수직시추를 설치하였고, 터널의 방향과 동일하게 수평시추를 실시하였다. 수평시추결과 풍화도 및 풍화대층 경계는 4.0m 정도이며 파쇄대 구간은 69~77m 구간과 177~190m 시추 후 많은 양의 지하수가 유출되는 것을 확인하였다(Fig. 6). 수직시추결과 풍화도 및 풍화대층 경계는 4.1m 정도이고, 복운모화강암과 화강섬록암질 편마암이 주를 이룬다. 또한 안산암질 암맥이 분포한다. 파쇄대 구간은 52~55m에 분포한다(Fig. 7). 수직공과 경사공을 이용하여 수압파쇄시험, 수리시험, BHTV, BIPS, 공내재하시험, 시추공전단시험을 실시하여 암반의 수리적, 역학적, 물리적 물성을 결정하고 이를 시설의 설계자료로 활용하였다.

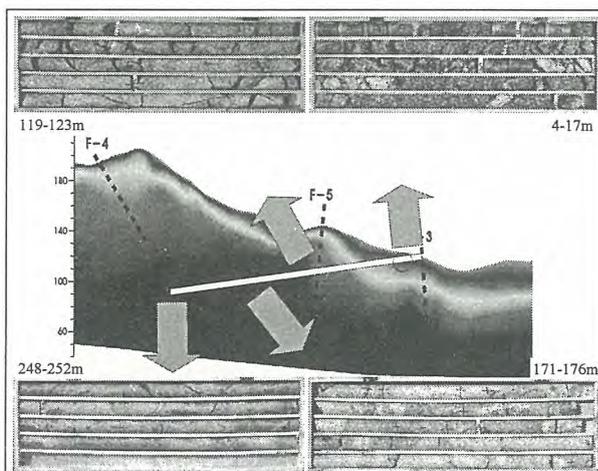


Fig. 6 Result of Horizontality drilling.

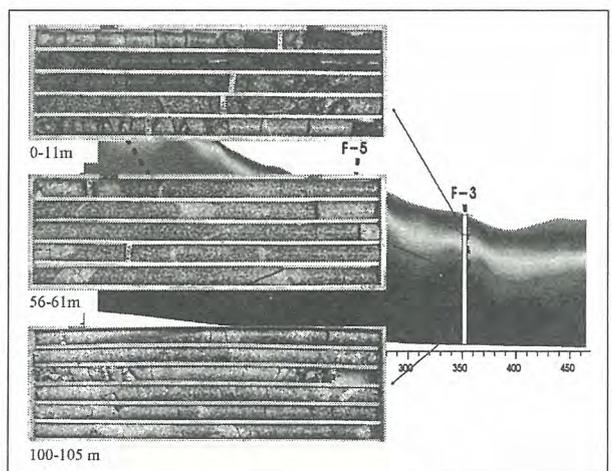


Fig. 7. Result of Verticality drilling.

## **Effect of the Repository Configuration on Radionuclide Transport with the Multi-compartment Model for the LILW Repository Performance**

**Jin Beak Park, Joo Wan Park and Chang Lak Kim,**

Nuclear Environment Technology Institute, P.O.BOX 149 Yuseong, Daejeon, Korea

**Joonhong Ahn and Daisuke Kawasaki**

Univ. of California, Berkeley, CA 94720-1730, USA

Nuclear Environment Technology Institute (KHNP-NETEC) developed the conceptual design of the low and intermediate-level radioactive waste (LILW) repository. Among many engineering challenges, it is of particular importance to find out an optimum arrangement of near-surface disposal vaults in the repository area to minimize the radionuclide flux and concentration at the interface between the geo-sphere and bio-sphere. For this purpose, VR-KHNP (Virtual Repository-Korea Hydro & Nuclear Power) is developed for the radionuclide transport in the near- and the far-fields by formulating the continuities of mass flux and concentration with the multi-compartment model. VR-KHNP evaluates the mass transfer rates from the repository to the far field, and to the bio-sphere. The spatial distribution of radionuclide mass as a function of time can also be calculated. With the code, the radionuclide transport has been calculated and the results have been successfully benchmarked against those from SAGE. Effect of repository configuration in relation to the groundwater flow has been investigated. For some radionuclides such as Ni-63, Tc-99 and Cs-137, it is shown that repository configuration has significant effects on their release rate at the interface between the near field and the far field.

## 용존산소 제거용 중공사 탈기막의 방사선장하에서의 영향평가에 대한 연구

김문수, 이두호, 강덕원

한국전력공사 전력연구원, 대전광역시 유성구 문지동 103-16

원자력발전소에서 원자로 냉각재 중의 용존산소 제어는 원자로 냉각재 계통에서의 전면 부식과 다양한 형태의 응력부식균열(SCC)을 완화시키는데 기여한다. 원자로 냉각재 계통내에 용존 되어 있는 산소는 발전소 기동 시에는 하이드라진( $N_2H_4$ )을 넣거나 인위적 배기를 통해 제거하고, 정상 운전 중에는 체적제어탱크(VCT)에 수소를 가압하여 제거시킨다. 계통내로 유입되는 용존산소를 최대한 억제하기 위하여 대부분의 원자력발전소는 원자로 보충수 탱크 상층부에 질소를 주입하여 탱크로 유입되는 공기를 차단하고 있으나, 이 과정에서 일부 수중에 용해되어 들어가는 질소는 계통 내에서  $NH_3$ 를 형성하여 화학체적제어계통(CVCS)의 이온교환 수지탑에 치환됨으로서 기포화 되어있는 Li를 계통으로 빠져나오게 하여 계통 pH에 영향을 미친다. 원자로 보충수 계통의 주목적은 반응도 제어를 위한 붕산 용액의 희석수로 사용될 뿐만 아니라 타계통의 공급수나 기기세정 및 제염 시에 사용된다. 원자로 보충수중의 용존산소 최소화는 원자로의 장기간 희석 운전에 따라 발생할 수 있는 잠재적 영향을 최소화 시킬 수 있을 뿐 아니라 계통내 크러드(CRUD)침적을 억제하여 계통 방사선량의 저감화에도 기여하기 때문에 원자로 보충수 탱크수중의 용존산소 관리는 최근들어 EPRI 1차측 수화학 지침서 Rev.5 에서 상세하게 다루고 있으며 원자력발전소에 더욱 중요한 관리항목으로 부각되고 있다. 최근에는 각국의 원전에서 계통수중의 용존산소 관리를 위해 대규모 고비용 촉매수지식 DO 제거기술에서 소규모 고효율의 중공사 멤브레인(Membrane)을 이용한 기술을 보다 선호하고 있다. 이러한 중공사를 이용한 탈기 방법은 별도의 화학물질 공급이 불필요하고, 환경 유해물질인 하이드라진 사용의 억제로 환경친화적인 기술이며 경량단박한 장치 제작으로 운용비용이 저렴할 뿐 아니라, 산소 이외의 기체( $CO_2$ ,  $N_2$ ) 탈기 효과로 source term 제어를 통한 계통내 C-14 생성을 억제하는 등 부가적인 잇점이 많다. 본 연구에서는, 미국 등 선진국에서 주로 사용하고 있는 탈기 멤브레인과 국내에서 개발한 멤브레인을 방사선장하에서도 제 성능을 그대로 유지하는지를 평가하기 위해 일정 방사선량(0.7 Mrad)을 조사시키면서 멤브레인 재질의 건전성 평가를 수행하였다. 주된 평가시험 내용은, 열적특성(DSC, TGA)의 분석, 작용기(FT-IR)의 분석, 접촉각 분석 및 인장시험 등으로 평가결과, 막의 성질변화는 두 타입 모두 크지 않았으며 방사선 조사에 따른 특별한 경향성을 갖지 않았음을 확인하였다. 탈기효율 측정에서도 비방사선장하에서 운용되는 탈기막의 평균효율인 72%의 제거 효율과 비슷한 효율을 나타내 방사선장하에서의 장시간 운전에도 충분히 사용가능할 것으로 판단되었다. 이러한 연구결과는 기체 방사선장하에 아직은 본격적인 시험이 진행되고 있지는 않지만 멤브레인을 이용한 탈기기술은 용존된 방사성기체 제거 시에도 매우 유용하게 활용될 수 있을 것으로 기대되며 또한, 계통의 방사성 크러드 생성 저감화를 통한 작업자 피폭저감 및 방사성폐기물 발생량 저감에도 크게 기여할 수 있을 것으로 기대된다.

## EPMA를 이용한 증기발생기 내부 침적물 분석

### The analysis of the deposit on inner steam generator by EPMA

유병욱, 정양홍, 김도식, 백승재, 김기하, 주용선, 박남홍, 이종현  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

#### 요 약

경수로형 원자로의 증기 발생기 내부에 방사화 된 침적물을 smear paper로 시료를 채취하여 핵종 분석 및 화학조성을 분석하였다. 상용발전소의 증기 발생기 외부에서 발견된 고 준위 방사성 물질의 화학 조성 분석은 극미세 성분분석기(EPMA)를 이용하였다. 본 시험에 사용된 EPMA(Electron Probe Micro Analyzer, SX-50R, CAMECA, Paris, France)는 고 방사능을 띤 조사 핵연료 및 재료 시험을 수행할 수 있도록 기기의 시편 stage 주위를 납과 텅스텐으로 차폐하여 시편의 방사능 세기가  $3.7 \times 10^{10}$  Bq 까지 시험 가능한 기기이다. 방사화 된 침적물은 smear-paper로 문질러 침적물의 시료를 그림 1과 같이 채취하였다. 고준위 방사선을 띤 시료의 시편 작업은 그림 2와 같이 조사재시험시설 (KAERI, IMEF)에 설치한 글로브 박스(glove box)에서 smear paper에 접촉된 시료의 일정부분을 EPMA 기기의 시편 홀더에 silver paint로 두껍게 입힌 후 그 위에 접촉하였다. 시료를 접촉한 후, carbon coating을 100Å로 시도하였으나 전자빔의 산란현상인 charging이 심하여 500Å으로 coating 하였다. 준비한 시편을 그림 3과 같이 납으로 만든 운반용기(cask)로 이송하여 시험기기에 장착했다. 시험시편을 금속성 물질과 비금속 물질과의 밀도차이에 의해 형성되는 BSE (Back scattered Image) 기능으로 시료의 표면을 관찰하여 시험부위를 찾으려 했으나, 그림 4에서 보는 것과 같이 먼지나 기름 등에 의해 묻혀져 금속성 물질을 찾을 수가 없었다. 이러한 시편은 시료 자체가 워낙 작을 뿐만 아니라, BSE 사진에서도 시료를 분간하기 어려워 시험부위를 찾는 데 많은 시간이 소요되었다. 또한 시료가 허공에 떠 있는 형상이므로 입사전자빔의 전도도가 시편 홀더에 이르는 시간 등의 복합적인 문제로 시료를 코팅하는데 어려움이 많았다. 시험 조건에 적합한 부위 (약 3~10  $\mu\text{m}$  크기)를 찾기 위해 일정한 방향으로 Image Tracing을 실시하여 그림 5와 같이 약 10  $\mu\text{m}$  크기의 시험부위를 찾아 산소 퍼텐셜에 대한 분포를 확인했다. 그림의 3개 시료 중 왼쪽 시료는 Fe를 주성분으로 하는 시료이고, 가운데와 오른쪽은 Si, Ca, O등의 물질로서 금속 시료에 대한 시험시편으로는 부적당하여 정량시험은 하지 않았다. 표 1에 핵종 분석한 자료를 나타내었다. Fe가 주성분인 왼쪽 시료의 조성은 P 0.059, Mn 0.015, Fe 32.8, Cr 2.29, Ni 23.68, Cu 0.27, O 39.27 wt%였다. 시험 결과 증기 발생기의 세관(U-tube) 재료인 인코넬과 튜브를 제외한 부분에 사용된 저합금강의 조성과 상당한 차이를 나타낸다. 이는 시험 시편의 표면 기율기와 산화정도의 차이가 기인하기 때문으로 사료된다. smear paper로 채취된 분석 시료의 정확한 조성을 확인하기 위해서는 충분한 양의 시료를 시험하여 그 평균값으로 결과를 도출해야 할 것으로 판단한다.

## 결 론

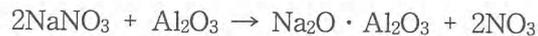
1. 경수로형 원자로의 증기발생기 내부에 방사화된 침전물 분석에 대한 시험절차 및 기술을 개발하였다.
  - 시료의 채취방법으로는 현장의 접근성을 고려할 때 문지름방법(smear method)이 가장 유용한 방법임.
  - 분석시험 중 시험결과에 영향을 미치는 방전현상(charging)을 방지할 수 있는 전도성물질(silver paint)의 도포두께는 약 500 Å이 최적조건임.
  
2. 증기발생기 내부 침전물 시험 시편의 정량분석 결과는 다음과 같다.
  - Fe 32.8, Cr 2.29, Ni 23.68, O 39.27 wt%의 화학조성
  - 본 침전물에 대한 조성결과는 세관(U-tube)의 재질인 인코넬(Inconel600)과 주변 재료인 저합금과의 화학조성이 일치하지 않음.

## U 포함 질산염 용액의 안정화에 미치는 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 영향

오종혁, 황두성, 김연구, 이규일, 최운동, 황성태, 박진호

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

우라늄 변환시설 내의 라군 슬러지의 처리를 위해 슬러지의 물 첨가 용해를 실시하고, 여과후 발생한 질산염의 안정적 처리를 위한 열분해를 실시하였다. 라군 슬러지의 질산염 및 우라늄 제거 공정은 후속처리공정에서의 부담을 최소화 할 수 있도록 1.5배의 물을 첨가 용해하였으며, 두개의 라군에 저장된 슬러지 처리방법의 효율성 평가를 위하여 각 라군의 개별적, 혹은 혼합하여 실험을 실시하였다. 우라늄을 포함하는 질산염 용액에서 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>는 용액중의 수분을 제외할 때 70~80 wt%의 비율을 차지하고 있으며, 고온에서 폭발의 위험성 등이 있으므로 일차적으로 250℃에서 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>를 열분해하고, 900℃에서 최종적으로 열분해하였다. NaNO<sub>3</sub>의 열분해 생성물인 Na<sub>2</sub>O는 수분과 쉽게 반응하는 불안정한 물질로 알려져 있으며 따라서 Na<sub>2</sub>O의 안정화를 위하여 적절한 첨가제를 선정하고 사용량을 결정하여야 할 것이다. 첨가제로는 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub> 등의 물질이 사용될 수 있으나 SiO<sub>2</sub>의 경우 상대적으로 다량의 첨가량이 요구되며, 열분해 후 유리상의 물질이 생성되어 반응기 벽에 코팅되는 등의 문제점을 나타내어, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가하는 것이 효과적이라고 판단되었다. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>는 다음과 같은 반응식에 의해 Na<sub>2</sub>O와 반응하여 안정한 화합물을 이루는 것으로 알려져 있다.



처분장에서 장기 보관되어야하는 우라늄 함유 열분해 잔류물은 TG/DTA 분석을 통해 불안정한 것으로 평가되었으며 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가하여 열분해를 실시할 경우 위 반응식과 같은 경로를 통해 안정한 화합물로 변환되는 것으로 나타났다.

## 원전 humidifier 제어용 감압 밸브 제염 및 방사능 inventory 평가

김진태, 지준화, 김진길, 강덕원  
전력연구원, 대전광역시 유성구 문지동 103-16

최근 들어 국제 방사선 방호위원회(ICRP; International Commission on Radiological Protection)의 ICRP-60에서는 원전 작업종사자의 연간 허용 피폭량을 현행값인 5 rem보다 연 평균 2 rem으로 제한 운영토록 권고하고 있다. 이렇게 엄격해지는 방사선 관리규정에 능동적으로 대처할 수 있도록 새로운 방호차원에서 관련 계통 및 기기들의 방사선량을 낮출 수 있는 기술 개발이 절실한 실정이다. 각국의 원전에서는 방사능을 효과적으로 제거하기 위한 연구에 초점을 맞춰 왔으며 방사능을 제거하기 위한 다양한 방법들을 강구하고 있는 실정이다. 전력연구원에서 개발한 저농도 화학제염공정(DCD; Dilute Chemical Decontamination)은 운전 완료후 발생되는 제염폐기물 발생량이 소량이라는 것과, 시약을 혼합하거나 배수 및 세척하는 과정 배제로 대규모의 저장 탱크가 필요치 않으며 모든 공정이 짧은 시간 내에 행해져 일반적으로 2~3일이면 제염 작업이 완료되는 간결한 공정이다. 또한, 사용되는 시약의 농도가 타 제염공정에 비해 낮기 때문에 특별한 내식성 재질이 아니어도 제염 공정에 따른 재질의 부식은 거의 무시해도 된다. 이 공정은 낮은 농도의 화학제염 공정이기 때문에 원자로에 핵연료가 장전된 상태에서도 제염 작업이 가능한 공정이다. 이러한 이유로 DCD공정은 각국 원전에서 전계통 제염시 널리 사용되어 오고 있다. 전력연구원에서 개발한 화학제염공정(일명 KEBA 공정이라 함)은, 킬레이트제, 산화제, 환원제 등으로 구성된 제염제를 사용하며, 제염제의 총 농도가 1.0% 미만으로 제염제의 농도 자체도 낮을 뿐 아니라, 실제 제염공정에 사용되는 제염제의 사용량도 타 공정에 비해 비교적 적어 양이온 및 음이온교환수지의 사용량이나 기타의 제염 폐기물의 발생량이 상대적으로 적다. 제염제는 유기산을 주성분으로 하는 새로운 제염제인 C-5 유기산과 EDTA(EthyleneDiamine Tetraacetic Acid) 및 유기산의 분해를 위한 옥살산(Oxalic Acid)으로 구성되어 있다. 본 논문에서는 이 KEBA공정을 이용하여 기준선량 이상의 방사능으로 오염되어 있는 원자로 제어실 공기정화 계통의 humidifier 감압밸브를 대상으로 화학제염을 실시한 내용을 기술하였다. 제염 효과의 향상과 취급의 용이성을 확보하기 위해 먼저 제염코자 하는 총 14개의 감압밸브를 펄스형 초음파 세정조(그림 1참조)에 넣어 1단계 제염을 실시하여 표면선량률을 약 1/3 정도로 낮추었으며, 이를 다시 화학 제염조(그림 2참조)에 넣은 다음 산화 → 환원 → 제염 → 제염제분해 → 이온교환의 5단계 공정을 걸쳐 총 38시간 동안 화학제염을 수행하였다. 1차 화학제염 결과 약 250정도의 제염 계수값을 얻었으며 밸브의 오염 현상에 따라 제염효과도 각각 다르게 나타났다.(표 1참조). 일부 제염이 덜된 밸브들은 허용 표면 오염도(40 kBq/m<sup>2</sup>)값 이하로 낮추기 위해 2차 화학제염을 수행하였다. 수행 결과, 2개의 밸브를 제외한 모든 밸브의 표면오염도를 허용 표면오염도 이하로 낮출 수 있었다. 또한, 대상밸브들에 대한 제염효과를 핵종별로 보다 상세히 평가하기 위해 이동형 감마선 계측기(In-Situ Object Counting System, ISOCS)를 이용하여 제염 전·후의 핵종별 방사능 농도를 평가 하였으며 평가 결과, 몇 개의 밸브를 제외하고는 모두 자연준위와 유사한 핵종별 방사능 준위를 나타내었다. 이와 같은 실증시험 결과를 통해, 본 연구원에서 개발한 공정의 제염 효율이 매우 양호함을 입증할 수 있었으며, 이러한 실증 실험 결과는 향후 전 원전의 기기 제염에 확대 적용할 수 있을 것으로 기대된다.

표 1. 제염 공정 수행 전 · 후 벨브의 표면방사선량을 측정 결과

벨브번호	제염 전 표면 방사선량률 ( $\mu\text{Sv/hr}$ )	1차 제염 후 표면 방사선량률 ( $\mu\text{Sv/hr}$ )	제염계수 (DF)	2차 제염 후 최종 방사선량률 ( $\mu\text{Sv/hr}$ )	제염계수 (DF)
1	260	2.3	113.0	0.3	866.7
2	22.7	0.9	25.2	0.3	75.7
3	255	2.2	115.9	0.3	850
4	72.5	1.4	51.8	0.3	241.7
5	1.11	1.1	1.0	0.3	3.7
6	153	1.5	102.0	0.3	510.0
7	241	2.0	120.5	0.3	803.3
8	700	3.0	233.3	0.4	1750.0
9	1.27	0.5	2.5	0.3	4.2
10	9.3	0.7	13.3	0.3	31.0
11	1000	4.0	250.0	0.6	1666.7
12	1.02	0.9	1.13	0.3	3.4
13	1.22	1.0	1.22	0.3	4.0
14	2.57	1.3	1.98	0.3	8.6

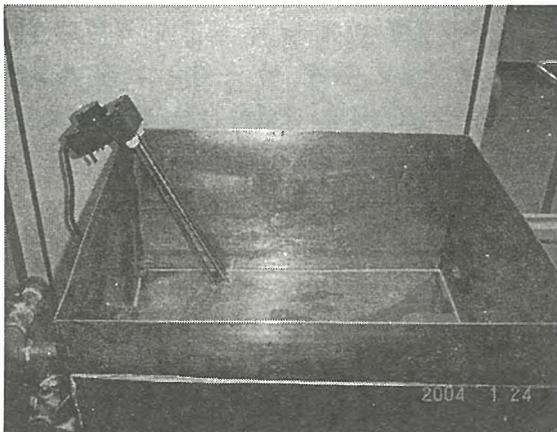


그림 1. 1.5 KW급 pulse 초음파 제염

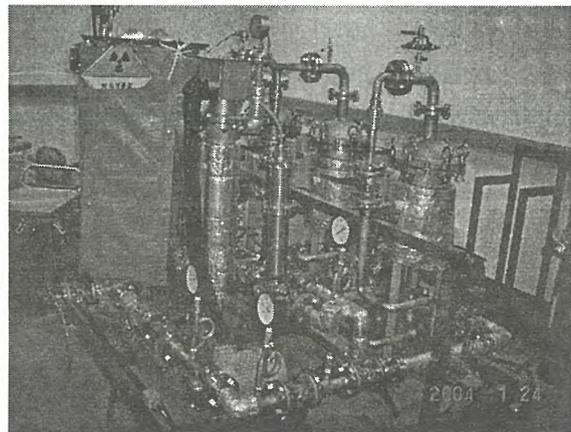


그림 2. 표준화학 제염장치

## 밀봉선원폐기물 처분을 위한 분류방안 도출

이지훈, 이태범, 박주완, 김창락

한국수력원자력(주) 원자력환경기술원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

밀봉선원 폐기물은 크기가 작지만 특별한 관리 및 처분을 요하는 방사성폐기물이다. 특히 수거된 폐라듐선원의 경우 장기간의 관리가 필요하며, 음식물 보존이나 살균에 사용된 대형 밀봉선원 폐기물의 경우도 처분보다는 재활용도 고려하여야 한다. 이러한 밀봉선원의 특징은 작은 크기와 고건전성물질로 되어 있고 높은 비방사능을 갖는다는 것이며 따라서 처분시 보통의 방사성폐기물과는 달리 비균질폐기물의 특성을 고려한 안전성 평가가 필요하다. 그러므로 밀봉선원 폐기물의 안전관리 및 처분을 위하여 국내 현실에 맞는 방사능량 설정제한치 및 핵종 특성을 고려한 적절한 처분대책 수립이 요구된다. 대부분의 단반감기 밀봉 선원의 경우 천층처분이 가능하지만, Ra-226과 Am-241과 같은 장반감기 선원이나 조사시설에서 사용된 대형 선원들은 별도의 처분이 불가피하다. 현재 국내에서 발생된 밀봉선원폐기물은 Ir-192 등 17 개 핵종, 약 20,000 여개이다. 이중 Ir-192, I-125 및 Po-210 등 대부분의 단반감기 핵종은 자체처분이 가능한 수준이어서, 자체처분 또는 집중저장용기에 저장후 중저준위처분장에 처분할 것이다. Co-60, Cs-137 등 반감기 30년 이하의 밀봉선원폐기물은 중저준위 처분장에 처분할 계획이다. 밀봉선원 폐기물중 Co-60, Cs-137, Am-241/Be, Am-241등의 일부 선원은 의료, 산업계에서 재활용할 수 있다. borehole 처분 대상 폐기물은 상기 3 그룹에 적용되지 않는 밀봉선원폐기물에 대하여 적용할 계획이다.

## 삼중수소수 처리를 위한 전기분해-촉매교환 결합공정 모델링

김광락, 안도희, 백승우, 이민수, 임성팔, 정홍석  
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

삼중수소수 오염처리의 선행공정으로 적합한 전기분해-촉매교환 결합공정(CECE process)은 수소동위원소 산화물의 수소화 전환을 위한 전해셀과 다단 액상촉매 교환탑으로 이루어진 탈삼중수소 공정이다(그림 1). 촉매탑은 수소 흐름에 수증기를 동반하도록 하는 친수층과 수증기-수소간의 수소동위원소 교환반응을 유도하는 촉매층으로 구분되며, 탑 상부에는 수소의 산화 반응기 그리고 하부에는 물의 수소화 전해셀로 구성되어 있다(그림 2). 본 연구에서는 CECE 공정 설계와 최적 운전조건 도출과 관련된 공정 변수들의 영향을 알기 위해 모델링 및 모사시험을 수행하였다. 모델은 각 친수층에서의 기-액 평형을 Bubble point 방법으로 조성 및 온도를 구하고, 각 촉매층으로 유입된 수소흐름과 동반된 수증기 흐름과의 촉매반응 평형조성을 만족하면서 주어진 각 친수층 경계에서 삼중대각행렬의 연립 선형식으로 표현되는 물질수지식을 설정할 수 있었다. 전체적으로 친수층에서의 액상 조성들을 독립변수로 구성되는 비선형 연립식들의 해를 안정된 수렴을 확보하는 Modified Newton-Raphson 계산기법으로 구할 수 있었다. 주어진 삼중수소수의 처리급수 유량에서의 환류비와 분리탑내 수소 및 수증기 유량은 탈삼중수소 분리성능에 영향을 주는 주요 인자임이 확인되었고, 수소 유량 증가는 분리계수 상승효과를 가져올 수 있으나 전해셀의 처리 용량이나 효율에 좌우됨을 알 수 있었다. 또한 이 모델은 친수층과 촉매층으로 구분된 분리형 및 구분되지 않는 적하층형 반응탑 둘다 적용가능함을 알 수 있었고, 탈삼중수소 반응탑에 소요되는 다단탑의 단수, 최적운전조건 (온도, 압력, 수소유량 등) 그리고 운전중 반응탑의 효율을 결정할 수 있는 용도로 활용될 것이다.

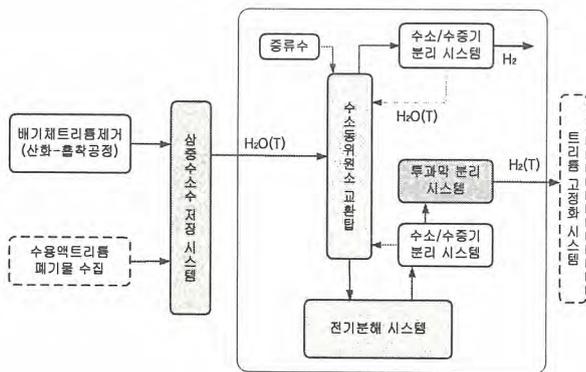


그림 1. 트리튬 오염 처리공정

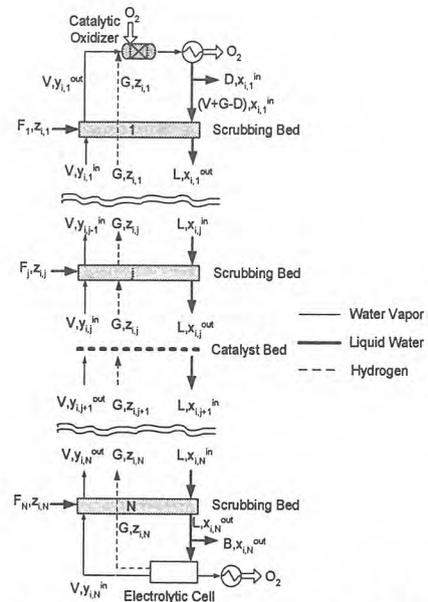


그림 2. 전기분해-촉매교환 결합공정의 다단 모델

## 염폐기물의 전처분

김준형, 김환영, 김인태, 박환서  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

사용후핵연료를 건식처리하여 핵연료성 물질을 제거하고 또한 장반감기 핵종을 제거하면 처분 대상의 폐기물이 남게 된다. 이 폐기물의 양을 줄이고 관리기간을 단축시키는 방안을 강구하는 것이 처분전에 수행하는 전처분(pre-disposal)의 주 목표이다. 처분후에는 건식처리된 과정과는 달리 장기적으로 관리하여야 하며, 물의 유입에 의한 침출 문제등 습식 환경도 고려하여야 한다. 따라서 궁극적으로 처분되어지는 폐기물에 대해서는 물의 영향을 파악하는 것이 필수적이다. 고온의 건식처리에 고려하지 못한 물의 영향을 줄이는 방안을 연구하였다. 사용후핵연료의 건식처리 시에는 처분 대상의 폐기물로 용융염 폐기물이 발생한다. 염폐기물의 용해특성과 인회석 매질을 통한 염화물의 전처리, 염폐기물의 겔화 반응을 통한 감용 및 안정화 가능성을 제시하였다.

## 라군슬러지 처리 공정 평가 및 개선

황두성, 오종혁, 김연구, 이규일, 최윤동, 황성태, 박진호  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

우라늄 변환시설은 중수로용  $UO_2$  분말 제조 시설로서 2001년도부터 제염 해체를 통한 변환시설 환경복원사업을 시작하였다. 변환 공정의 운전 중 발생하여 라군(lagoon)에 저장되어 있는 방사성 슬러지 폐액의 처리는 시설의 해체과정에서 매우 중요한 업무 중의 하나이다. 라군 슬러지의 주성분은  $NH_4NO_3$ ,  $NaNO_3$ ,  $Ca(NO_3)_3$ ,  $CaCO_3$  및 U 화합물과 소량의 Fe, Mg, Al, Si 및 P 화합물로 구성되어있다. 라군 슬러지의 특성과 개발되고 있는 공정 기술을 기초로 하여 라군 슬러지 처리 공정을 제안하였다. 라군 슬러지는 탈염, 고액 분리, 건조, 우라늄 제거, 탈질 공정에 의해 처리된다. 먼저 우라늄, 질산염 및 기타 금속이온으로 구성된 슬러지에 물을 첨가하여 질산염을 용해한 후 고액 분리한다. 분리된 질산염 폐액에는 함께 용해된 미량의 우라늄이 존재하게 되므로 이를 활성탄소섬유를 이용한 전기흡착법으로 분리 제거하고 미량의 우라늄을 제거한 질산염 폐액은 열분해 등을 이용하여 탈질 처리한다. 한편 질산염 용해 후 고액 분리된 우라늄 함유 고체폐기물은 건조 후 안정화시킨다. 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. 이 폐액 내에는 약 1ppm 이하의 우라늄이 함유되어 있어 방사성 폐기물로 분류되어 일반 산업 폐기물로의 처리가 어려운 실정이다. 기존의 방사성 질산염 폐액 처리 기술 중 상용 규모로 입증된 기술인 열분해 탈질 기술을 적용코자 본 폐액의 열분해 탈질 특성을 조사하여 라군슬러지 처리공정연구를 실험실 규모로 수행하였다. 공정 평가 결과 질산염 폐액 내 수분의 함량이 약 70% 가량 되어 처리 장치의 규모 뿐 아니라 에너지 비용이 커서 비효율적으로 나타나 물에 의한 질산염을 분리 시 최대한 물의 사용을 지양해야 할 것으로 분석되었다. 따라서 슬러지 처리 시 질산염 분리가 용이한 라군 2 슬러지와 라군 1 슬러지를 분리 처리하고, 라군 1 슬러지 또한 질산염 분리가 어려운 바닥 층의 슬러지에만 소량의 물을 첨가하는 방법으로 공정을 개선할 경우 슬러지 처리 비용을 상당히 줄일 수 있을 것으로 판단된다.

## 삼중수소 활용: 자발광유리관 (SLGT) 제조기술

김경숙, 김광신, 정은수, 손순환

한국전력공사 전력연구원, 대전광역시 유성구 문지동 106-16번지

작년 2월에 착공식을 가진 월성의 WTRF (Wolsung Tritium Removal Facility)에서 2005년 후반기부터 매년  $2.6 \times 10^{16}$  Bq (7 MCi) 이상의 삼중수소가 생산될 예정이므로 이제 우리나라에서도 삼중수소를 활용하는 연구를 본격적으로 할 수 있게 되었다.

현재 우리나라는 삼중수소를 전량, 수입하여 37 MBq (1 mCi) 혹은  $3.7 \times 10^{10}$  Bq (1 Ci) 미만의 매우 적은 양으로 생물, 생화학, 농학 및 의약품 합성연구 등의 연구에 이용하고 있는 정도이고, 삼중수소의 활용에 관한 국내의 연구는 거의 전무한 상태이다. 한편, 국외에서는 삼중수소를 생산하는 캐나다에서 이 분야에 대한 연구가 가장 활발히 진행 중이다. 캐나다의 Shield Source, SRB Technology, 미국의 Safety Light 그리고 유럽의 MTB Technologies, rc Tritec 및 남아프리카 공화국의 AEC 등에서 민수용과 군사용으로 삼중수소를 이용한 여러 가지 제품을 생산하는 등 이 분야에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다. 한전 전력연구원에서는 2003년 9월부터 산자부 기반기금과제로 전원공급 및 유지보수가 필요없이 10년 이상 사용할 수 있는 삼중수소를 이용한 자발광유리관 (self-luminous glass tube, SLGT)을 개발하는 과제를 진행 중에 있다.

방사성물질인 삼중수소는 붕괴하면서 베타입자를 방출하게 되는데 이러한 베타입자는 에너지 분포를 가진 전자군으로 이 전자들이 코팅된 형광체와 충돌할 때 형광체로부터 빛을 발하게 되므로 별도의 전원의 공급이 필요없는 SLGT를 제조할 수 있다. SLGT의 원리는 우선 여기원에서 에너지를 흡수하여 activator 중심 내에서 에너지 준위가 여기되는 excitation 과정, 여기상태가 완화되는 relaxation 과정과 기저상태로 천이에 기인하여 빛이 방출되는 emission 과정 등으로 나눌 수가 있다. 이러한 SLGT 제조를 위해서는 유리관 코팅기술, 유리관에 삼중수소 주입기술, 유리관 밀봉/절단 기술 및 삼중수소 취급기술의 4가지 핵심기술을 확보해야 하며, 이미 지난 학회에서 삼중수소 취급기술에 대해서 발표한 바 있으며, 이번에는 유리관 코팅기술에 대해서 소개하고자 한다.

삼중수소를 이용한 SLGT 제조개발을 위한 시뮬레이션 기반 설계패키지 구축을 위해서는 회도에 영향을 미치는 중요한 인자인 기하학적 구조 및 상용제품에 적용되고 있는 형광체 분석과 SLGT 제조개발에 적용될 형광체의 분석 및 선정이 선행되어야 한다. 이를 위해 시판중인 민수용과 군수용 제품 중에서 각각 1가지를 선정하여 생산공정을 확립하기로 결정하였다. 우선 민수용으로는 미국 Everlite사에서 비상구 (12개 유리관으로 제조)를 구입하였고, 군수용도 한 제품을 구입하여 크기분석 및 내부에 코팅되어 있는 형광체의 성분을 분석하였다.

SLGT에 코팅된 형광체의 코팅두께 및 코팅된 형광체 분말의 크기분석을 위해서 유리관 단면을 SEM (scanning electron microscope)으로 관찰하였다. 또한 내부에 코팅된 형광체의 성분을 분석하고자 EDX (energy dispersive X-ray spectrometer)를 이용하였다. 선정된 형광체는 입자크기 및 분포를 알아보려고 SEM을 통해 관찰하였고, 또한 모체의 성분을 EDX로 분석하였다. 그 외 보다 정확한 activator와 co-dopant 성분은 ICP-AES (inductively coupled plasma-atomic emission spectrometer)로 분석하였다.

한편, 진공 계통에서 SLGT 내부의 압력을 측정했으며, 비활성 기체를 포함하여 삼중수소 이외

의 성분의 존재여부를 확인하기 위해 정밀가스 질량분석기 (mass spectrometer for precision gas analyzer)로 분석하였다.

SLGT의 유리 두께는 민수용의 경우 약 760  $\mu\text{m}$ 이고, 내경이 약 3.5 mm, 외경이 5.0 mm인 반면에, 군수용의 경우 약 240  $\mu\text{m}$ 으로 내경이 약 1.0 mm, 외경이 1.4 mm이다. 내부에 적용된 형광체 코팅두께는 균일하지 않으며 민수용의 경우 최대 45  $\mu\text{m}$ 이고, 군수용은 대략 18  $\mu\text{m}$ 인 것으로 관찰되었다. 형광체 분말 크기의 균질도는 떨어지나 민수용과 군수용 모두 대략 4~5  $\mu\text{m}$ 으로 관찰되었다. 적용된 형광체의 조성을 알아보기 위해 EDX 분석을 실시한 결과 Zn와 S를 모체로 하는 ZnS 계열의 형광체이며 ICP 분석을 통해 activator와 co-dopant는 각각 Cu와 Al인 것으로 분석되었다. 또한 정량적인 첨가량은 민수용의 경우, Cu가 ZnS 모체 대비 약 0.03 mol%, Al이 0.04 mol%이고, 군수용의 경우, Cu가 ZnS 모체 대비 약 0.018 mol%, Al이 0.249 mol%로 분석되었다. 이를 바탕으로 실험에 적용할 형광체 분말을 선정하기 위해 입수된 Kasei사의 형광체 분말을 분석하였다. 분말의 크기분포는 비교적 고른 편이며, 입자가 작은 것끼리 응집 (aggregation)이 부분적으로 발생하였다. Green 형광체 분말크기는 3~4  $\mu\text{m}$  정도이며 EDX로 모체의 주성분을 분석한 결과 역시 Zn와 S이며 미량의 산소는 native oxygen layer인 것으로 XRD에서 관찰할 수 있었다. 또한 dopant의 함유량을 분석하기 위해 ICP 분석을 실시한 결과 Cu의 양은 SLGT의 형광체와 거의 비슷하게 0.015 mol% 검출되었고, Al은 다소 적은 0.040 mol%가 검출되었다. 분말의 크기나 성분 및 조성 등의 분석결과를 비교할 때 Kasei사의 ZnS: Cu,Al 형광체는 SLGT 제조개발에 적용이 가능하다고 판단되었다.

현재, SLGT를 코팅할 수 있는 유리관 도포기 및 소성기를 제작, 완료하였으며, 코팅조건의 확립을 위한 실험 중에 있다.



그림 1. 삼중수소 응용제품

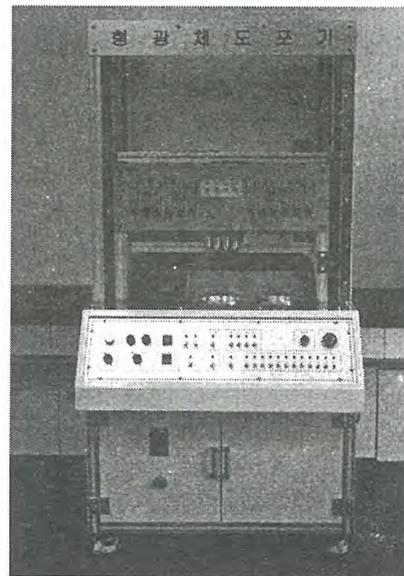


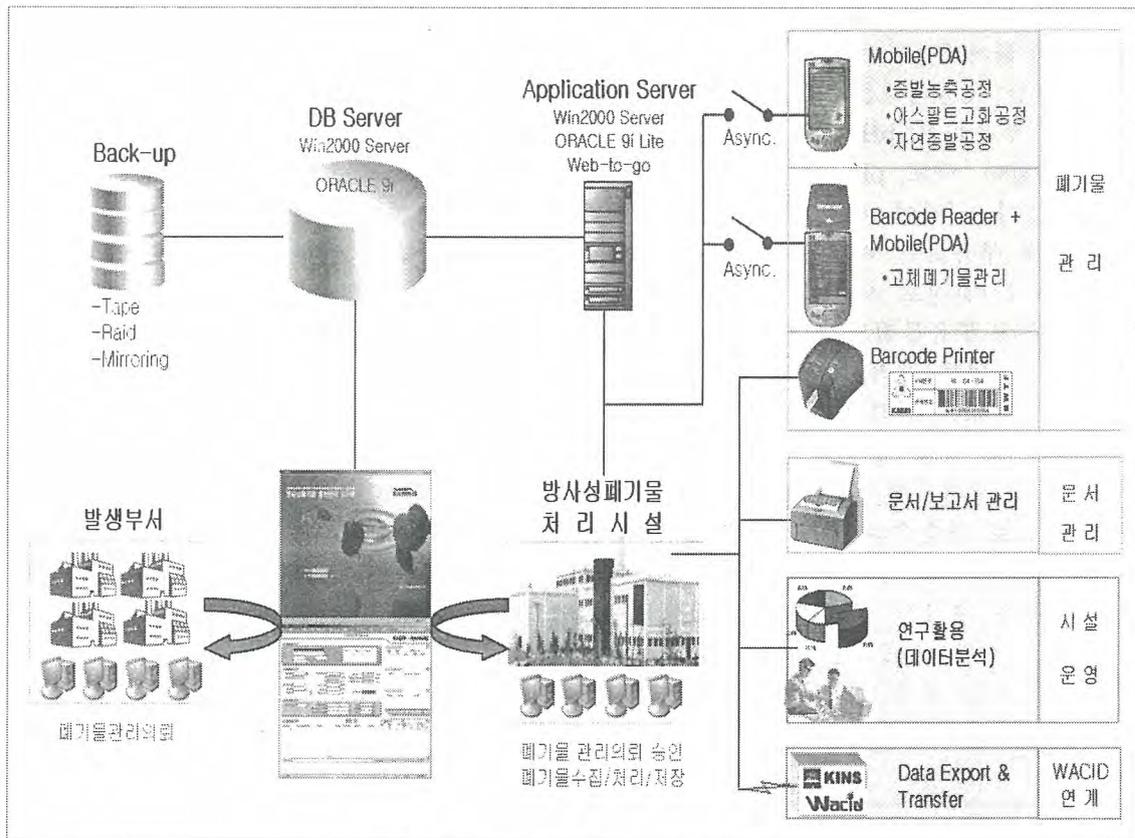
그림 2. 형광체 도포기

## 방사성폐기물 통합관리 시스템의 구축과 활용

이영희, 조한석, 손중식,  
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

### 요 약

한국원자력연구소에서 발생하는 방사성폐기물은 다양한 형태, 다양한 핵종으로 구성되며 소량씩 불규칙한 시기에 발생하는 특성을 갖는다. 이러한 폐기물의 효율적인 관리와 처리를 위하여 체계적인 이력관리와 신속한 통계를 도출할 수 있는 데이터베이스 시스템 구축이 선행과제로 대두되었다. 이에 방사성폐기물 통합관리 시스템(Radioactive Waste Management Integration System ; RAWMIS)을 구축하였으며, 이 시스템은 방사성폐기물의 발생부터 수집, 이동, 처리, 저장 등 처분까지의 이력을 관리하고, 서류간소화 및 인적자원 절약 등의 관리효율성을 제고하여 구현되었다. 또한, 한국원자력안전기술원에서 추진하는 국가적 방사성폐기물 통합 안전관리 체계(Waste Comprehensive Information Database : WACID)와 연계를 할 수 있도록 연구개발의 착수 단계에서부터 공동으로 진행하였다. 본 논문에서는 구축된 시스템의 구현사항과 실제 방사성폐기물 관리에 활용하는 사항을 제시한다. 본 연구를 통하여 구축된 시스템은 방사성폐기물 발생기관의 관리와 처리에 있어서 투명성과 효율을 증가시키고, 정확하고 신속한 정보를 도출할 수 있으며, 방사성폐기물의 관리와 처리공정의 데이터를 확보하여 방사성폐기물 처리 분야 연구의 토대를 제공할 수 있다.



< RAWMIS 시스템 전체 구성도 >

## 토양제염 실증실험을 위한 세척수 재순환장치의 성능시험

손중권, 이강원, 강기두, 김학수, 박경록, 김경덕  
원자력환경기술원, 대전광역시 유성구 덕진동 150

원자력발전소의 운전과정에서 계획적 혹은 비계획적으로 방출되는 미량의 입자상 방사성 물질들은 대부분 원전 부지내 토양에 침적되게 된다. 이러한 과정속에서 오염토양이 발생하게 되면 수거되어 단순 격리관리하고 있는 실정이지만 앞으로 원전의 해체과정 등으로 인한 오염토양이 상당량 발생할 것으로 예상되기 때문에 적절한 제염을 통하여 폐기물량을 최소화 시킬 필요가 있다. 이를 위해 오염토양 제염공정으로 물을 이용한 토양세척법을 선정하여 제염장치를 제작하였으며 실증시험을 수행하였다. 오염토양 제염시 다량의 액체폐기물이 발생하기 때문에 세척수를 재순환하는 장치(이하 폐액 재순환처리장치)를 제작하였다. 폐액 재순환처리장치는 토양 세척후 배출되는 폐액을 정화시켜 재사용하기 위해 부착한 장치로 토양 세척시에는 세척액의 양이 토양에 비례하여 늘어나 1회 사용 후 폐액을 버리면 너무 많은 양의 폐액이 발생하게 되기 때문에 이를 재사용하고 액체폐기물 발생량을 최소화하기 위해 고안되었다. 폐액 재순환처리장치는 크게 MF막과 이온교환수지탑, 흡입펌프 및 공기공급기, 제어장치로 구성되며 발생된 폐액은 폐액저장조에 설치된 MF막을 통과하여 1차로 부유물질 등 미세입자가 제거되고, 미세입자가 제거된 폐액은 흡입펌프에 의해 2차로 이온교환수지탑을 거치며 방사성 입자가 제거된다. 양이온교환수지 및 음이온교환수지를 통한 폐액은 다시 세척수 저장조로 이송되어 토양 세척에 활용된다. 본 연구에서는 이 폐액 재순환처리장치의 제작을 위한 기초실험과 제작된 폐액 재순환처리장치의 성능시험을 통해 토양세척시 폐액의 처리량과 처리속도 등을 알아보는 실험을 수행하였다.

폐액 재순환처리장치의 제작을 위한 기초실험을 수행하기 위해 Co와 Cs로 오염된 토양을 물로 1시간 제염한 제염폐액을 사용하였다. 제염실험 후에 폐액을 sampling하여 정치상태에서 시간에 따른 탁도, 부유물질, pH, 전도도를 측정하였으며, 초순수의 탁도, 부유물질, pH, 전도도를 측정하여 비교 하였다. 탁도, pH, 전도도는 측정장비를 사용하였으며, 부유물질은 수질 공해공정시험법으로 분석하였다. 시간에 따른 제염폐액의 탁도와 부유물질 변화를 보면, 초기 약 10시간 동안에 제염폐액 내에 부유하던 대부분의 입자들이 침전됨을 알 수 있다. 전도도(153.7  $\mu\text{S}/\text{cm}$ )와 pH(7.57)는 제염 후 2시간정도 시간이 경과한 후에 계속 일정한 값을 보였는데 제염폐액의 이온 성분들의 농도는 탁도나 부유물질과 상관없이 거의 일정함을 알 수 있다.

성능시험을 위해 제작된 폐액 재순환처리장치를 제염실험장치에 부착시킨 후에 제염실험을 진행하면서 20~30분 간격으로 탁도, 흡인압력(cmHg), 처리수 유량( $\ell/\text{min}$ )을 측정하였고, 폐액 재순환처리장치의 핵종 제거 성능을 알아보기 위해 폐액과 처리된 재생수를 방사능계측하였다. 재순환처리장치는 투과 7분, 역세 1분으로 설정하여 가동 시켰다. 재순환처리장치를 거친 제염수의 탁도는 0 NTU로 초순수와 같게 나타났으며 나머지항목도 초순수와 비교될 정도로 우수한 수질상태를 보여주었다. 탁도 이외에 폐액에 녹아있을 방사능 물질의 경우 우선 전도도만을 보더라도 폐액속에 이온들은 제거가 된 상태를 확인할 수 있었으나 보다 정확히 알기위해 폐액과 제염수를 방사능 측정해 보았다. 두 번의 Cycle동안 제염장치를 거친 폐액에서는 방사능이 검출되지 않았다. 실험결과 제작된 폐액 재순환처리장치는 미세입자 및 방사성 핵종 제거에 우수한 성능을 보여줌으로써 토양제염공정에 활용할 수 있음이 확인되었다.

## 플라즈마를 이용한 고체방사성 폐기물 건식제염기 개발

김종화, 박승현, 백승훈, 김용수\*, 전상환\*

한일원자력(주), 경기도 안양시 만안구 안양7동 202-4 동영벤처스텔(3차) 301호

\* 한양대학교, 서울특별시 성동구 행당동 17번지

금속성 방사성폐기물을 제염하는 설비의 조건으로는 제염계수, 2차 폐기물 발생량, 모재의 회수 가능성, 작업자의 안전성(원격조정) 등을 고려하여야 한다. 금속성 방사성폐기물의 오염제거 방법으로 습식제염 방법을 손쉽게 생각할 수 있으나 습식제염은 모재로부터 오염 물질을 선택적으로 제염이 불가능하고 강산 용액을 사용하므로 제염후 발생하는 2차 액체폐기물로 인해 최근 그 적용이 제한되고 있다. 플라즈마 건식제염기는  $CF_4/O_2$  등 혼합기체 플라즈마를 원활히 발생시킨 후 플라즈마와 오염 물질과의 원활한 제염반응을 유지하도록 설계하였으며 loading 챔버, processing 챔버 및 unloading 챔버 등으로 구성하였다. 제염 반응을 일으키는 processing 챔버는 제염 대상물의 설치대와 플라즈마 전원공급 시스템 그리고 반응 기체의 공급 및 배기장치가 있고, 반응온도를 유지할 수 있는 히터가 부착되어 있다. 제염 대상물 설치대는 unloading 챔버로부터 롤러로 이동되고 이 설치대에는 지그가 있어 제염 대상물을 장착하도록 되어 있다. 이 설비는 운전 및 자료의 수집 등 전체적인 운영이 PC를 기반으로 이루어지도록 설계되어 있으며 배기장치에는 2차 폐기물의 제거를 위해 3종류의 여과기를 설치하였다. 부식생성물(CP) 및 핵분열생성물(FP)에 대한 건식 제염공정 확보를 위해 Co, Mn 및 Mo의 기체 플라즈마 식각반응 실험결과  $CF_4/O_2$ 가 반응기체로 가장 우수하며  $O_2$ 의 몰비는 온도에 관계없이 20%일 때 최대의 식각율을 나타냈다. 반응율은 Mo이 가장 높고 Co가 가장 낮았으며 Co의 경우 290℃에서는 반응이 일어나지 않지만 350~380℃에서 식각율은 온도에 따라 거의 선형적인 증가를 보였다. 따라서 부식생성물인 Co와 Mn, 핵분열생성물인 Mo의 최적 제염공정은  $CF_4/O_2$  기체 플라즈마에서 20%  $O_2$ 의 몰비와 380℃ 이상의 온도 그리고 220W 이상의 출력일 때가 최적 제염공정임을 도출하였다.

본 연구는 산업자원부 전력산업연구개발사업의 일환으로 수행된 것입니다.

표-1. 플라즈마 건식제염기 주요설비의 사양

주요설비	사 양
▪ Process Chamber	1100(W)×650(D)×550(H) mm
▪ Loading Chamber / Unloading Chamber	825(W)×700(D)×650(H) mm
▪ 제염 대상물의 크기	Max. $\phi 300 \times 800(L)$ mm
▪ 사용가스	$N_2, O_2, CF_4$
▪ 도달진공도	$5.0 \times 10^{-3}$ Torr
▪ 상용진공도	$9.0 \times 10^{-3}$ Torr
▪ 진공배기시간	$9.0 \times 10^{-3}$ Torr까지 30분 이내
▪ 설치공간	3400(W)×2500(D)×2200(H) mm
▪ 소비전력	220V, 3상, 60Hz, 45kW
▪ 냉각수 압력	3~4 kg/cm <sup>2</sup>
▪ 냉각수 온도	10~25 ℃

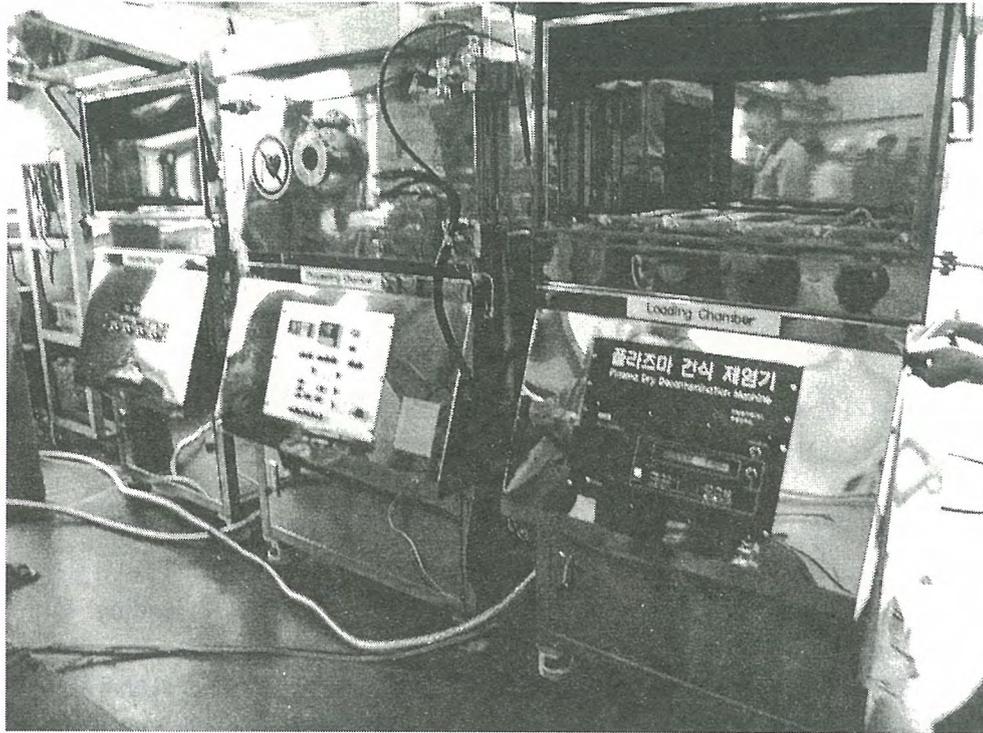


그림-1. 플라즈마 건식제염기



그림-2. 플라즈마 진행 상태

## 염폐기물 고정화 생성물의 PCT 침출 및 고정화 특성

이재희, 김정국, 김준형

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

현재 한국원자력 연구소에서 개발되고 있는 사용후 핵연료의 차세대관리기술은 산화물 핵연료를 전해환원시켜 금속으로 관리하는 기술이다. 이 공정에서 발생된 LiCl 폐용융염은 Cs, Sr과 같은 핵분열 생성물을 함유하고 있으며, 그 자체로서 수용성이고 방사선에 분해가 잘 되므로 처분 수용 기준에 맞게 안정화시켜 처리해야 한다. 현재 이를 처리하기 위한 방법으로 고온에서도 핵분열 생성물의 이온교환 및 흡착이 가능한 제올라이트 A를 이용한 이온교환 및 단순혼합 방식이 주로 적용되고 있다. 폐용융염과 제올라이트의 혼합비,  $r(=LiCl/Zeolite)$ 의 변화에 따라 Cs, Sr 및 Cl의 제거 및 고정화 특성은 큰 차이가 있는 것으로 알려져 있다. 본 연구에서는  $r=4.5$  이상인 경우는 회분식 이온교환 방식으로, 1.0 이하인 경우는 단순혼합 방식인 블렌딩 방식으로 고정화 생성물 (Salt-Loaded Zeolite; SLZ)을 제조하였다. 제조된 SLZ는 PCT-7 (Product Consistency Test-7day)을 이용한 단기 침출 특성시험을 수행하였으며, SLZ의 단위 셀당 고정화된 Cs-, Sr- 및 Cl-이온의 수를 분석하였다. 고정화 생성물에 함유된 Cs- 및 Sr-이온의 수는 이온교환방식으로 제조된 SLZ 보다 블렌딩으로 제조된 SLZ에서 훨씬 더 적게 나타났으며, 블렌딩 방식으로 제조된 SLZ의 경우 Cs에 비해 Sr이 더 많이 침출되었다. 또한 단위 셀당 이온교환된 Cs과 Sr의 수를 이온가를 고려하여 비교하였을 때 블렌딩 방식으로 제조한 SLZ에서 더 큰 값을 보였다. 이러한 결과를 감안하면 제올라이트-A를 이용하여 Cs과 Sr을 고정화시키는 경우 적정 조업조건은 블렌딩 방식을 이용한 혼합조건인  $r = 0.5\sim 1.0$  이다.

## 발포유리 조성물 및 이를 이용한 발포유리 전구체의 제조방법

이민수, 최현순, 정홍석, 안도희, 백승우, 김광락, 임성팔

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

본 연구는 발포유리 조성물 및 이를 이용한 발포유리 전구체의 제조방법에 관한 것으로, 구체적으로 알칼리 히드록시, 실리카 및 붕산으로 이루어진 발포유리 조성물 및 이를 이용한 발포유리 전구체의 제조방법에 관한 것이다. 본 연구에 의해 제조된 발포유리 전구체는 발포제의 사용없이 우수한 발포성능을 발휘하며, 특히 저온에서 발포성능을 나타내어 방열 및 방음용 유리 발포체로 사용할 수 있으며 각종 도료 및 페인트에 첨가하여 사용할 수 있다. 특히 각종 도료 및 페인트에 첨가하여 사용할 경우, 도포된 재료의 표면에 난연성을 부여할 뿐만 아니라 화재시 발포되어 소화 기능을 지니는 발포유리 방열막을 형성하는 효과를 나타낸다.

## 수소동위원소의 회분식 저장특성

백승우, 안도희, 김광락, 이민수, 임성팔, 정홍석  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

가압 중수로형 원자력발전소에서는 원자로의 감속재 및 냉각재로 사용하는 중수(heavy water)로 인한 삼중수소(tritium)의 생성이 전체 방사선 준위 상승의 가장 중요한 원인이 되고 있다. 따라서 4기의 중수로가 운전 중인 우리나라에서도 월성원자력 발전소에 삼중수소 제거 설비(Tritium Removal Facility)가 건설 중에 있다. 이 시설로부터 99% 이상의 순도인 삼중수소가 회수되며, 회수된 삼중수소는 장기적인 저장을 위하여 안전하게 포장되어야 한다. 삼중수소 제거공정의 최종 생성물인 삼중수소 가스는 주로 titanium tritide의 형태로 저장되고 있다. 본 연구에서는 월성 TRF에서 사용하기 위한 삼중수소 저장용기의 개발을 위해 500kCi급 저장용기를 제작하였으며, 회분식 수소저장실험을 수행하여 저장용기의 수소저장 성능을 평가하였다. 트리튬 저장용기는 316L 스테인레스 스틸로 제작하였다. 이 저장용기의 체적은 약 6.5liter 이며 티타늄 스폰지 1kg을 충전하였다. 수소와의 반응이전에 티타늄 금속은 진공계통에 연결하여 500℃까지 가열한 후 계통의 압력을  $1 \times 10^{-6}$  torr 까지 진공 처리하는 활성화 과정을 수행하였다. 수소와 티타늄 금속의 반응은 저장용기의 온도상승과 함께 매우 빠른 속도로 진행되며 10분 이내에 거의 모든 반응이 종료되었다. 매회 50kCi의 트리튬에 해당하는 수소의 회분식 저장실험을 상온에서 10회 수행한 결과 반응속도의 차이는 없었으며, 저장용기의 트리튬 저장용량은 월성 TRF에서 사용하기에 충분함을 보였다.

## 하나로의 방사성 폐기물 저감 대책에 대한 연구

강태진, 임인철, 최호영, 이번현

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

하나로는 1995년 2월에 첫 임계(criticality)에 도달한 이후로 핵연료의 조사시험, 동위원소 생산, 중성자 빔을 이용한 연구, 중성자 방사화 분석 등에 활용되고 있다. 하나로에서 발생하는 폐기물은 성상에 따라 기체, 액체, 고체 폐기물로 분류되며, 모두 극저준위 폐기물이다. 고체 폐기물은 방문자 및 종사자들이 원자로실에 출입하여 업무 수행 과정에서 발생하며, 액체 폐기물은 계통의 누설, 보수 작업, 실험 장비 등의 세척으로 발생한다. 또한 기체 폐기물은 하나로 운전 시 실험 시설에서의 공기 방사화로 인하여 발생되거나 1차 냉각재 내의 방사화된 물질, 원자로 노심 구조물로부터 유리되어 발생된다.

본 논문에서는 하나로 원자로 구역에서 발생된 고체, 액체 폐기물의 발생 저감 대책과 원자로실 및 RCI에서 굴뚝을 통해 환경으로 방출된 배출 공기 중 방사성 가스 농도를 저감하기 위하여 취한 조치와 그 효과를 기술하였다.

고체 폐기물은 작업자와 방문자가 사용했던 작업복, 휴지, 덧신, 장갑, 폐부품 등의 가연성 폐기물과 수조수 정화 계통에서 배출되는 폐수지, 폐필터 및 계통 또는 기기의 작업 후 발생하는 철제 류 등의 비가연성 폐기물로 분류된다. 폐기물 저감을 위하여 그림 1과 같은 폐수지 건조장치를 개발하여 정화계통에서 발생한 폐수지에 포함된 수분을 건조장치에서 건조시킴으로써 폐수지의 부피를 약 40% 감소시켰다. 추가로 일반 방문객의 원자로실 입실 금지에 따른 덧신 사용량 감소와 작업자들이 작업 시 꼭 필요한 물건만 가지고 들어가기 등의 폐기물 저감 노력이 있었다. 액체 폐기물은 원자로실 출입자가 출입 후 오염 또는 오염 발생 가능부분의 세척 시 발생하는 hot shower sump 폐기물과 수조상부 세척실에서 수조에 들어가는 실험 장비 및 구조물 등을 세척하고 발생하는 reactor sump 폐기물로 분류된다. 원자로실에서 수행하는 보수작업 또는 실험의 작업 공정(세척 및 배수)을 개선하여 폐기물 발생을 저감하였는데 첫째, 열 교환기 또는 펌프 점검 및 보수, 체크 밸브의 상태 점검 시에 배출되는 1차 냉각수는 작업수조로 되돌려 보낼 수 있도록 조치 후 작업을 수행, 둘째, 정화계통 수지 및 필터 교체 시 배수되는 물을 최소화하기 위해서 격리 밸브의 누수를 차단, 셋째, 핵연료 이동용 캐스크의 제염작업은 작업수조에서 실시함으로써 폐기물 발생을 저감하였다.

기체 방사성폐기물은 원자로실, RCI(Reactor Concrete Island)의 관리시설에서 발생하는 입자, 옥소, 불활성 기체로서 허용농도 제한치 이내에서 배기설비를 통해 환경으로 방출된다. 이에 대한 저감대책으로 실험시설 중 하나인 PTS(Pneumatic Transfer System: 공압이송장치) 계통에서 방사화된 공기의 일부가 원자로실로 누설되어 Ar-41의 농도를 증가시키므로 Ar-41 농도를 줄이기 위해 조사관으로써 기능을 상실한 PTS-2/3 조사관의 원자로 수조 유입 배관을 격리하였다. 격리

후 3일 동안 원자로를 운전하면서 원자로실에서 배출되는 공기중 Ar-41의 농도를 측정 한 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 2). PTS 조사관의 누설 부위를 봉합하고, 조사관으로 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 측정 한 평균값  $8.92 \times 10^{-6} \mu\text{Ci/cc}$ 에 비해 1/10 수준으로 감소하였다(그림 3).

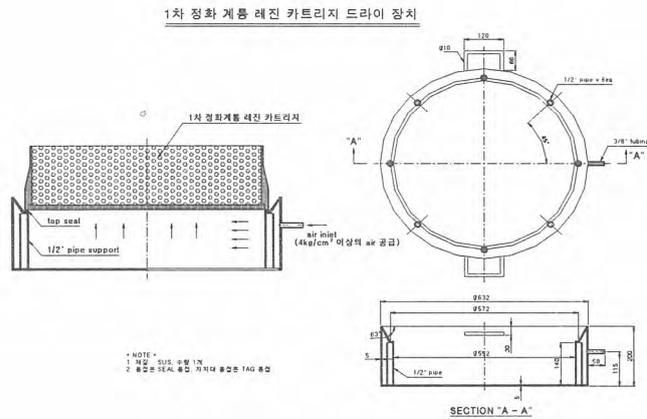


그림 1. 폐수지 건조장치 도면

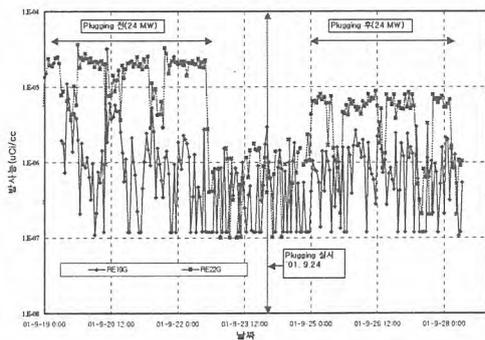


그림 2. NAA의 plugging 전, 후 Ar-41의 변화량

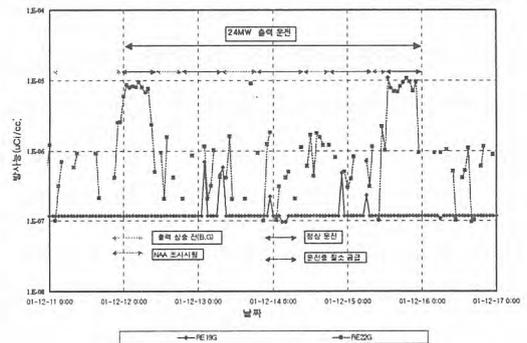


그림 3. NAA 계통에 질소를 연속 공급한 효과

## 수조고온층의 사용 후 이온교환수지 처리 시 작업자의 피폭 방사선량 최소화를 위한 연구

강태진, 임인철, 김명섭, 최호영, 이의규

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

하나로(HANARO) 수조고온층 정화 계통은 수조고온층에 유입되는 원자로 수조수의 방사성 이온을 거르는 장치이다. 주기적인 수조고온층 계통의 이온교환수지 교체 및 폐기물 처리 작업은 원자로실에서 행하는 작업 중 방사선 피폭이 큰 작업 중의 하나이다. 지금까지 교환되어 일정기간 붕괴된 수조고온층 이온교환수지의 시료를 채취하고 HPGe MCA를 이용하여 수지에 흡착된 방사성 핵종의 종류 및 농도를 측정하고 이를 토대로 붕괴 추세선을 작성하였다. 본 논문에서는 이 추세선을 이용하여 향후 폐수지의 방사선량을 예측함으로써 방사선 작업 계획을 사전에 수립할 수 있으며 작업자의 피폭을 최소화할 수 있음을 보였다.

하나로 운전 중 일차 냉각수에서 발견되는 주요 핵종은 Na-24, Ar-41, Mn-56, W-187 등이다. 일차 냉각수의 방사성 핵종 중 반감기가 3시간 이하인 Ar-41, Mn-56은 수조 표면에서 거의 사라지고 반감기가 15.02시간인 Na-24와 23.09 시간인 W-187이 어느 정도 검출된다. 냉각수 방사능의 약 60 % 정도를 차지하는 Na-24는 일차 냉각수가 정화 계통의 이온교환수지를 지나면서 대부분은 흡착되어 없어지며 반감기가 짧으므로 레진 교환 시에는 거의 없어진다. 그러나 핵분열 생성물로 생기는 핵종인 Zr-95, Nb-95, Ru-103, Ag-110m, I-131, Ba-140, Ce-141 등은 이온 교환 수지에 흡착되어 있기 때문에 이온 교환 수지 교체 시 높은 선량을 나타낸다.

수조고온층 정화계통 수지 교체는 2001년 6월(시료-1)과 2004년 2월(시료-2) 두 번 있었으며 수지 사용기간은 각각 4년 5월과 2년 6월이었다. 수지교체 시 시료-1 및 시료-2의 선량은 각각  $900\mu\text{Sv/h}$ ,  $800\mu\text{Sv/h}$ 였다. 임시 저장조에 보관 중인 시료-1과 시료-2의 수지를 2004년 2월 26일 채취하여 HPGe MCA로 핵종을 확인하고 감마선분광분석법으로 각 핵종의 농도를 계산하여 조사선량으로 환산하였다. 그림 1과 그림 2는 시료-1과 시료-2의 환산된 조사선량을 누적한 후 일차별 선량 변화추이를 나타낸 그림이다. 시료-1에 대한 예측 선량이 시료-2보다 높은 이유는 이 기간 동안 원자로 운전 중 핵연료 다발에서 우라늄 오염으로 핵분열 생성물들이 증가하여 이로 인한 핵분열 생성물이 이온교환수지에 많이 흡착되었기 때문이다. MCA 핵종 분석결과에서도 시료-1의 Cs-137 계수가 약 10배 이상 높았음을 알 수 있었다. 시료-2에서는 수조표면 방사능준위의 대부분을 차지하는 Na-24가 충분히 붕괴한 뒤에 측정되는 방사성 핵종인 Cr-51, Sb-125, Cs-137, Co-58 등이 발견되었다. 또한 구조재의 방사화로 생기는 물질은 노심을 구성하고 있는 재질에 따라 다르지만 Cr-51은 스테인레스 스틸에 함유되어 있는 크롬의 방사화로 생긴다. Co-58은 코발트 또는 니켈의 방사화로 생기는데 스테인레스 스틸에 니켈이 들어있다.

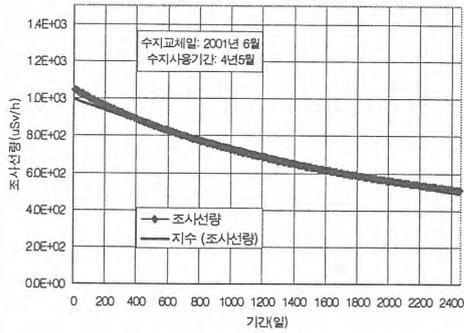


그림 1. 시료-1의 붕괴 추세선

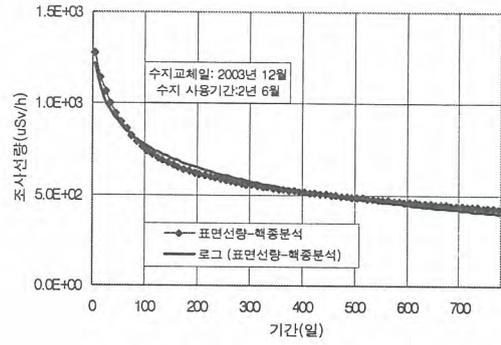


그림 2. 시료-2의 붕괴 추세선

그림 3 및 그림 4는 시료-1과 시료-2의 핵종 분포도이다. 시료-1의 핵종은 Cs-137 68%, Cs-134 14%, Co-60 11% 순으로 약 8종의 핵종이, 시료-2는 Nb-95 21%, Ru-103 18%, Co-60 17%, Zn-65 및 Cs-137 9% 순으로 약 16종이 검출되었다.

작업자가 임시저장조에 보관 중인 이온교환수지를 하나로의 폐기물 저장조로 이송하기 위해서는 근접한 거리에서 사용후 수지를 드럼 통에 담아야 하기 때문에 작업자의 피폭이 우려된다. 이 붕괴 추세선에서 향후 폐수지의 방사선량을 예측함으로써 방사선 작업 계획을 사전에 수립할 수 있다. 작업자의 피폭을 최소화하기 위해서는 그림 1 및 2의 추세선량 곡선에서 400μSv/h가 되는 2006년 1월(시료-1) 및 2005년 6월(시료-2)에 작업을 하면 작업자의 피폭을 최소화할 수 있음을 알 수 있다.

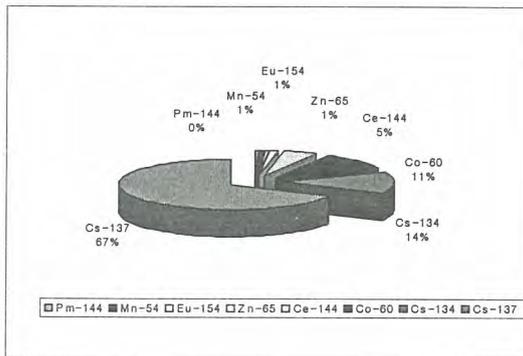


그림 3. 시료-1의 핵종 분포도

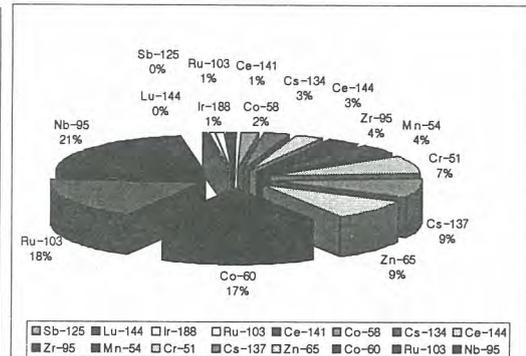


그림 4. 시료-2의 핵종 분포도

## 방사성 금속오염물의 표면오염제거를 위한 초임계 이산화탄소내 마이크로이멀전 적용연구

주민수, 고문성, 박광현, 김학원, 김홍두  
경희대학교, 경기도 용인시 기흥읍 서천1

원자력발전소를 가동한지 25년이 지나고 있는 현재 방사성 폐기물에 대한 대책이 시급한 실정이다. 가동한지 오래된 국내 원자력발전소의 경우 가까운 장래에 일차 냉각 계통의 제염이 요구될 것이며, 특히 앞으로 해체를 해야 할 시설들이 생기고 철거를 해야 할 필요성이 제기 되면서 엄청나게 발생할 금속 폐기물의 처리에 대한 문제가 주목을 받고 있다. 금속 폐기물의 처리를 위해 부피를 최소화하여 처분관리하는 방법과 금속 폐기물을 제염하여 재사용하는 방법 등이 고려되고 있다. 세계적으로 금속 폐기물에 대한 자원 재활용 기술을 활발하게 추진 중에 있다.

현재 방사성 금속폐기물 제염방법을 크게 분류하면 표면오염에 적용되는 표면제염기술과 휘발성 및 비중의 차이를 이용하는 용융제염으로 크게 분류할 수 있다. 기존의 제염방법은 다량의 유해한 화학물질을 사용하거나 복잡한 공정이 요구되어 여러 가지 해결해야할 문제점들을 안고 있다. 특히 제염 후 발생하는 다량의 2차 폐기물은 또 다른 오염물질로 관리가 되어야 한다. 따라서, 청정 원자력을 위한 새로운 제염방법이 필요한 시기이다.

초임계 이산화탄소는 밀도, 점도, 확산계수가 액체와 기체의 중간정도의 값을 갖으며 이러한 특성으로 인하여 초임계 유체의 밀도는 액체의 조건에 가까워 용질에 대해 매우 높은 용해능력을 갖게 되며, 이상기체에 비해 103~106배의 용해력을 지니거나 때로는 그 이상인 경우도 있다. 확산계수는 액체에 비해 매우 크기 때문에 물질전달 속도가 향상되며, 높은 압축성과 지수적 용해도로 인하여 매우 작은 압력 변화에 의해 용매의 분리가 용이하다. 점도의 경우에는 일반적으로 낮기 때문에 고체가 침전하는 동안 침강 속도를 향상시켜 주는 장점을 가지게 된다.

이산화탄소는 무극성물질로서 극성물질인 금속에 대해 제한적인 용해도를 갖는다. 따라서, 본 연구에서는 초임계 이산화탄소내 마이크로 형성법을 이용하여 금속표면의 오염물을 제염하고자 한다. 질산과의 마이크로이멀전 형성압력을 측정하고 실제 방사능에 오염된 금속폐기물을 교반기와 초음파를 이용하여 비교제염하고 제염효율을 분석하였다.

마이크로이멀전을 위해 비이온성 계면활성제인 NP-4를 사용하여 물과의 이멀전형성을 확인하고 질산의 농도에 따른 형성압력을 측정하였다. 질산을 이용한 실험에서는 형성압력이 물보다 50~100기압정도가 높은 압력에서 형성되었다. 마이크로이멀전을 형성할 때 교반방법을 교반기와 초음파를 사용해서 비교실험 해본 결과 초음파를 사용했을 때 탁월하게 안정적으로 이멀전이 형성되었다(그림 1, 2). 실제 방사성폐기물인 너트, 볼트를 대상으로 질산 1몰과 6몰의 마이크로이멀전을 제염을 수행하였다. 질산 6몰의 경우에 95% 이상으로 1몰의 실험효율인 85%보다는 높은 제염효율을 나타내었으나 대상물의 표면이 일부 부식이 되어 손상이 되었다(표 1, 2). 교반방법의 차이에 따른 제염율을 비교해본 결과 교반기를 사용하였을 경우에는 3번의 실험 후 75%의 제염율을 보였으나 초음파를 사용한 실험에서는 한번의 실험으로 85% 이상의 제염효율을 얻을 수 있었다. 초음파의 경우에 교반기보다 2배 정도의 제염 향상효율이 나타났다. 이러한 결과를 이용하여 실제 방사성 오염물을 제염한다면 환경친화적인 제염법을 개발할 수 있을 것이다.

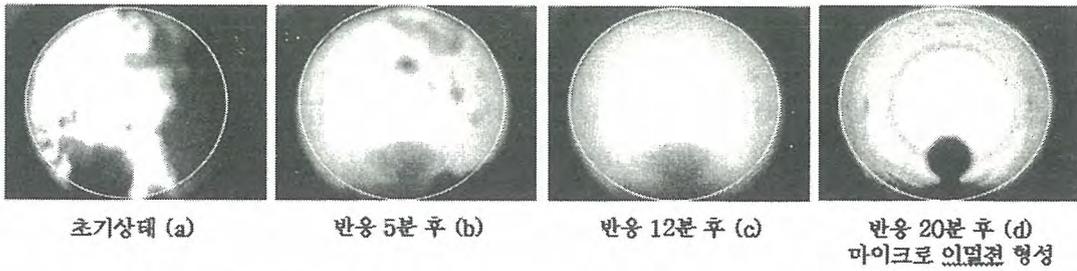


그림 1. 교반기를 이용한 시간에 따른 초임계 이산화탄소내 마이크로이물질 형성사진

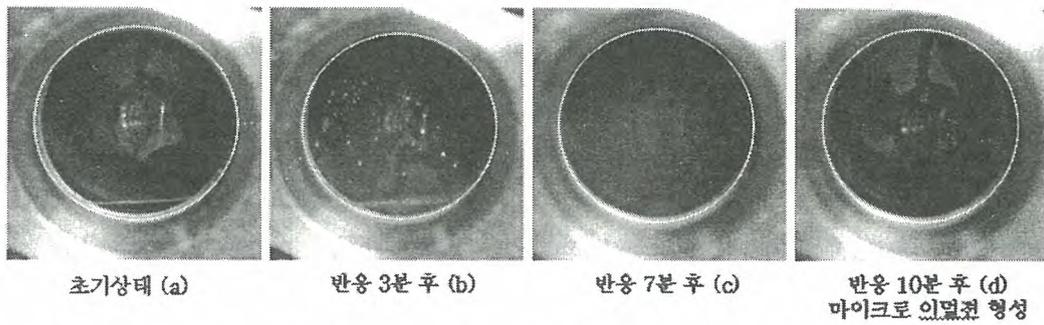


그림 2. 초음파 혼을 이용한 시간에 따른 초임계 이산화탄소내 마이크로이물질 형성사진

Nuclide	Energy keV	Half Life	Efficiency %	
			1st	2nd
Mn-54	834.8	312.7d	66±5	92±5
Co-60	1173.2	5.271y	88±1	88±3
Co-60	1332.5	5.271y	86±1	83±3

표 1. 1몰 질산을 이용한 방사성 금속폐기물 제염효율

Nuclide	Energy keV	Half Life	Efficiency %	
			1st	2nd
Co-60	1173.2	5.271y	>95±5	>95±5
Co-60	1332.5	5.271y	>95±5	>95±5

표 2. 6몰 질산을 이용한 방사성 금속폐기물 제염효율

## **Optimization of Artificial Neural Network Model in Scaling Factor Determination Method**

**Sang Chul Lee, Ki Ha Hwang, Sang Hee Kang, Kun Jai Lee**

Korea Advanced Institute of Science and Technology, 373-1, Gusong-dong, Yuseong-gu, Daejeon

Final disposal of radioactive waste generated from Nuclear Power Plant (NPP) requires the detailed information about the characteristics and the quantities of radionuclides in waste package. Most radionuclides are difficult to measure and expensive to assay. Thus it is suggested to the indirect method by which the concentration of the Difficult-to-Measure (DTM) nuclide is estimated using the correlations of concentration—it is called the scaling factor—between Easy-to-Measure (Key) nuclides and DTM nuclides with the measured concentration of the Key nuclide. In general, the scaling factor is determined by the log mean average (LMA) method and the regression method. However, these methods are inadequate to apply to fission product nuclides and some activation product nuclides such as  $^{14}\text{C}$ . To improve this conventional SF determination method—the LMA method and the regression method, the artificial neural network (ANN) method can be used. To apply the adequate ANN model in SF determination, it is important to determine the adequate size of hidden layers of the ANN model. In this study, to determine the optimum size of hidden layers of ANN models, the ANN models having the various hidden layers and nodes are assessed by the root mean squared errors (RMSE) in two parts divided by a training part and a validation part. The arithmetic mean values of the RMSEs for each ANN model make little difference. However, the dispersions of the RMSEs depend on the number of hidden layers and the number of hidden nodes. Sometimes the ANN models having 12 or less hidden nodes in one hidden layer and those having 8x7 or less hidden nodes in two hidden layers make very poor predicted values of the activities of DTM nuclides. In case of a poor case, the RMSE is larger than those in a general case. Therefore, the RMSEs of the ANN model which sometimes makes poor cases are dispersed widely and those of the ANN model which never makes poor cases are dispersed narrowly. It is concluded that the ANN model having 14 or more hidden nodes in one hidden layer and those having 10x9 or more hidden nodes in two hidden layers are suitable for SF determination method.

## 금속 킬레이트제의 시너지효과를 이용한 신용매(CO<sub>2</sub>)내 금속이온 추출연구

고문성, 박광현, 김학원, 김홍두  
경희대학교, 경기도 용인시 기흥읍 서천1

청정에너지원인 원자력은 화력연료의 대체에너지원으로 높은 에너지 효율의 중요한 역할을 하고 있다. 그러나 발전시 필연적으로 발생하는 방사성 오염물에 대한 환경적 관심은 점점 고조되고 있는 실정이다. 따라서, 방사성 오염물에 대한 관리 및 처리는 청정원자력으로서의 발전을 위해 매우 중요하다. 원자력 발전소내의 주요 방사성 제염 대상물은 오염된 의복, 부품, 장비 등이다. 기존의 화학 및 물리 제염법은 다량의 2차 폐기물을 발생시키는 문제점이 있어 이를 최소화 할 수 있는 방법이 요구되고 있다.

방사성 오염물질은 금속염, 금속수화물, 금속산화물 등의 형태가 대부분이다. 이러한 금속오염물의 제염은 오래전부터 용매추출이 잘 알려져 있다. 그러나 사용되는 대부분의 용매들이 환경규제 물질이므로 대체용매의 개발이 절실하다. 현재 대체용매로 주목받고 있는 초임계 이산화탄소를 이용한 금속추출 연구가 많이 이루어지고 있다. 이산화탄소는 다른 용매에 비해 낮고 안전한 임계조건(73.8 bar, 31.06 °C)으로 쉽게 적용할 수 있으며, 초임계 영역에서는 액체의 높은 용매특성과 기체의 침투특성을 동시에 갖기 때문에 탁월한 추출효과를 갖는다. 또한, 제염 후 간단한 압력한 온도조절로 이산화탄소와 오염물을 분리하여 이산화탄소는 다시 재사용하고 소량의 오염물만을 포집하여 처리할 수 있으므로 2차 폐기물 발생을 근원적으로 줄일 수 있다.

이산화탄소는 무극성이므로 기름과 같은 오염물에 탁월한 효과를 보인다. 그러나, 극성물질이나 금속물질에 대한 용해도가 극히 제한적이다. 초임계 이산화탄소내에서의 극성물질에 대한 추출율을 높이기 위해 이산화탄소에 잘 용해되고 극성물질을 효과적으로 추출할 수 있는 리간드 개발 연구가 중요하다. 따라서, 본 연구에서는 organophosphorus 계열인 bis(2,4,4-trimethylpentyl)phosphinic acid(Cyanex 272)와 dithiocarbamate 계열인 sodium diethyldithiocarbamate(NaDDC)를 이용하여 모의 방사성 오염시편인 5가지의 금속(Cu<sup>2+</sup>, Cd<sup>2+</sup>, Zn<sup>2+</sup>, Pb<sup>2+</sup>, Co<sup>2+</sup>) 추출 실험을 수행하고, 금속추출에 나타나는 리간드들 간의 시너지 효과를 보고 비슷한 리간드를 이용한 추출실험을 통해 증명하였다.

추출실험결과 리간드를 단독으로 각각 사용하였을 때, NaDDC는 Cu의 경우만 70%의 추출율을 보였고, 나머지는 30~50%의 추출율을 나타내었다. Cyanex272는 모든 금속에 대해 20%미만의 낮은 추출율을 나타내었다. 반면 함께 사용했을 경우에는 두 리간드의 시너지 효과로 인해 90%이상의 높은 효율을 보였다(그림 1). 이는 NaDDC가 초임계 이산화탄소내에서 물이 존재할 때 분해되어 CS<sub>2</sub> 과 NHR<sub>2</sub> 형태로 되어 NHR<sub>2</sub>이 Cyanex272의 이온화를 도와서 추출율을 향상시키게 되기 때문이다. 이를 고압내에 UV-Vis 측정장치를 이용하여 확인하였다(그림 2). NaDDC가 분해되는 반응식을 증명하고 NaDDC 대신 diethylamine을 사용하여 같은 실험을 수행한 결과 동일한 시너지 효과를 확인할 수 있었다(그림 3). 또한 비슷한 amine류의 리간드와 organophosphorus 리간드들

이용하여 시너지효과를 증명하였다. 본 연구를 통해 다양한 종류의 이산화탄소용 금속추출제를 밝혀냈고, 이를 이용하여 실제 방사성 제염에 응용하면 높은 제염효율을 얻을 수 있을 것이다.

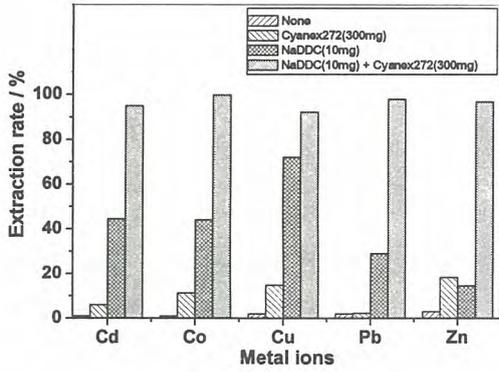


그림 1 Cyanex272와 NaDDC를 이용한 금속추출효율

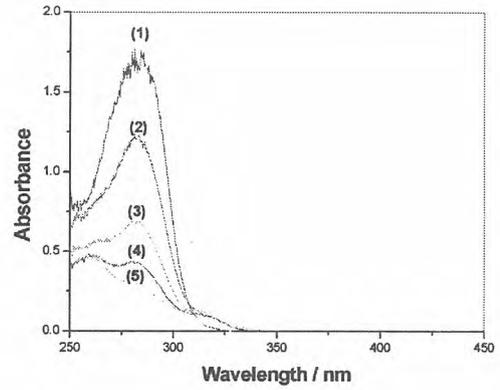


그림 2 초임계 이산화탄소내 NaDDC의 시간의 변화에 따른 UV-Vis 스펙트럼 변화 (200 bar, 60℃)

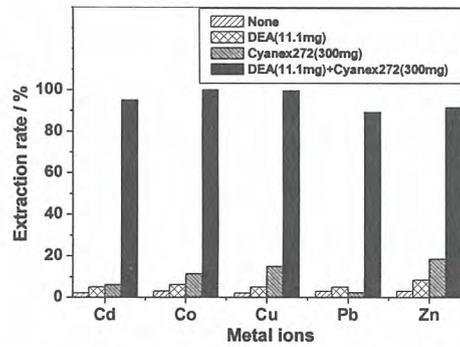


그림 3 NaDDC 분해형태인 diethylamine을 이용한 금속추출효율

## Glass Dissolution Rates From MCC-1 and Flow-Through Tests

Seung-Young Jeong

Korea Institute of Nuclear Safety (KINS)  
P.O.BOX 114, Yuseong, Daejeon, 305-600, S. Korea

### Summary

The dose from radionuclides released from high-level radioactive waste (HLW) glasses as they corrode must be taken into account when assessing the performance of a disposal system. In the performance assessment (PA) calculations conducted for the proposed Yucca Mountain, Nevada, disposal system, the release of radionuclides is conservatively assumed to occur at the same rate the glass matrix dissolves. A simple model was developed to calculate the glass dissolution rate of HLW glasses in these PA calculations [1].

For the PA calculations that were conducted for Site Recommendation, it was necessary to identify ranges of parameter values that bounded the dissolution rates of the wide range of HLW glass compositions that will be disposed. The values and ranges of the model parameters for the pH and temperature dependencies were extracted from the results of SPFT, static leach tests, and Soxhlet tests available in the literature. Static leach tests were conducted with a range of glass compositions to measure values for the glass composition parameter.

The glass dissolution rate depends on temperature, pH, and the compositions of the glass and solution. The dissolution rate is calculated using Eq. 1:

$$\text{rate} = k_0 10^{(\text{pH})\eta} \cdot e^{(-E_a/RT)} \cdot (1-Q/K) + k_{\text{long}}$$

where  $k_0$ ,  $\eta$ , and  $E_a$  are the parameters for glass composition, pH,  $\eta$  and temperature dependence, respectively, and  $R$  is the gas constant. The term  $(1-Q/K)$  is the affinity term, where  $Q$  is the ion activity product of the solution and  $K$  is the pseudo-equilibrium constant for the glass. Values of the parameters  $k_0$ ,  $\eta$  and  $E_a$  are the parameters for glass composition, pH, and temperature dependence, respectively, and  $R$  is the gas constant. The term  $(1-Q/K)$  is the affinity term, where  $Q$  is the ion activity product of the solution and  $K$  is the pseudo-equilibrium constant for the glass. Values of the parameters  $k_0$ , and  $E_a$  are determined under test conditions where the value of  $Q$  is maintained near zero, so that the value of the affinity term remains near 1. The dissolution rate under conditions in which the value of the affinity term is near 1 is referred to as the forward rate. This is the highest dissolution rate that can occur at a particular pH and temperature. The value of the parameter  $K$  is determined from experiments in which the value of the ion activity product approaches the value of  $K$ . This results in a decrease in the value of the affinity term and

the dissolution rate.

The highly dilute solutions required to measure the forward rate and extract values for  $k_0$ ,  $\eta$ , and  $E_a$  can be maintained by conducting dynamic tests in which the test solution is removed from the reaction cell and replaced with fresh solution. In the single-pass flow-through (SPFT) test method, this is done by continuously pumping the test solution through the reaction cell. Alternatively, static tests can be conducted with sufficient solution volume that the solution concentrations of dissolved glass components do not increase significantly during the test. Both the SPFT and static tests can be conducted for a wide range of pH values and temperatures.

Both static and SPFT tests have short-comings. The SPFT test requires analysis of several solutions (typically 6-10) at each of several flow rates to determine the glass dissolution rate at each pH and temperature. As will be shown, the rate measured in an SPFT test depends on the solution flow rate. The solutions in static tests will eventually become concentrated enough to affect the dissolution rate. In both the SPFT and static test methods, a compromise is required between the need to minimize the effects of dissolved components on the dissolution rate and the need to attain solution concentrations that are high enough to analyze.

In this paper, we compare the results of static leach tests and SPFT tests conducted with simple 5-component glass to confirm the equivalence of SPFT tests and static tests conducted with pH buffer solutions. Tests were conducted over the range pH values that are most relevant for waste glass dissolution in a disposal system. The glass and temperature used in the tests were selected to allow direct comparison with SPFT tests conducted previously. The ability to measure parameter values with more than one test method and an understanding of how the rate measured in each test is affected by various test parameters provides added confidence to the measured values.

The dissolution rate of a simple 5-component glass was measured at pH values of 6.2, 8.3, and 9.6 and 70°C using static tests and single-pass flow-through (SPFT) tests. Similar rates were measured with the two methods. However, the measured rates are about 10X higher than the rates measured previously for a glass having the same composition using an SPFT test method. Differences are attributed to effects of the solution flow rate on the glass dissolution rate and how the specific surface area of crushed glass is estimated. This comparison indicates the need to standardize the SPFT test procedure.

**제3분과 (C)**  
**사용후핵연료 및 핵연료주기**

빈 면

## 국내 사용후핵연료 현황 분석

### Projection and Burnup Trends of Spent Nuclear Fuel in Korea

조동건, 최종원

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

이희환

한국수력원자력(주), 서울특별시 강남구 삼성동 167번지

#### 요 약

처분시스템 설계 시 기초 자료로 사용되는 국내 사용후핵연료의 발생량, 특징 및 연소이력 등의 현재 및 향후 현황을 파악하였다. 2055년까지 PWR 및 CANDU 사용후핵연료 발생량은 각각 20,500 및 14,800MTU로 나타났다. 17×17 핵연료 집합체의 사용후핵연료 발생량 비율은 2003년 기준으로 전체대비 60%를 점유하는 것으로 나타났으며, 2012년 이후부터는 16×16 KSFA 사용후핵연료 발생량이 17×17 핵연료를 능가하기 시작하여 최종시점인 2055년에는 70% 정도를 점유할 것으로 보인다. 사용후핵연료의 평균 연소도는 90년대 후반에는 36GWD/MUT 정도, 2000년대 초반에는 40GWD/MTU를 나타냈으며, 2000년대 중·후반부터는 45GWD/MTU를 초과할 것으로 보인다. 따라서, 현재는 1997년에 선정한 제원을 기준 핵연료 제원으로 사용하되, 2010년을 기점으로 기준핵연료를 16×16 KSFA 4.5w/o, 55GWD/MTU로 반영하는 것이 타당해 보인다.

#### Abstract

Inventories, projections, and characteristics of spent nuclear fuel(SNF) generated from domestic nuclear power plants were updated to support high-level waste disposal system design. The historical and projected inventory by the end 2055 is expected to be 20,500 and 14,800MTU for PWR and CANDU spent nuclear fuel, respectively. The ratio of quantity for 17×17 SNF was shown to be 0.6 as of 2003. The amount of 17×17 SNF, however, will be less than that of 16×16 KSFA after 2012, while the quantity of 16×16 KSFA will reach to 70% of the total spent fuels in the 2055. Average burnup of SNF revealed ~36GWD/MTU and ~40GWD/MTU for the period of 1994-1999 and 2000-2003, respectively. It is expected that the average burnup of SNF will exceed 45GWD/MTU at the end of 2000's. Therefore, it seems reasonable to use the 17×17 4.5w/o, 45GWD/MTU as the Reference SNF at present state. The 16×16 KSFA 4.5w/o, 55GWD/MTU, however, should be Reference SNF after ~2010.

## 1. 서론

한국원자력연구소에서는 고준위폐기물인 사용후핵연료를 안전하게 처분하고자 1997년부터 중·장기 기술개발 프로그램에 따라 우리나라의 실정에 맞는 심지층 처분시스템을 개발하고 있다.

사용후핵연료에는 반감기가 긴 악티늄족 원소들과 악티늄족 원소에 비해 비교적 반감기가 짧은 핵분열생성물이 포함되어 있다. 이러한 방사성 핵종들에 의해 방출되는 붕괴열과 방사선은 처분용기, 완충재 및 주변환경의 온도를 상승시키는 열원과, 처분용기 주변물질에 방사선 분해를 일으켜 처분용기의 부식을 가속시키는 요인으로 각각 작용하여 처분시스템 내에 존재하는 공학적 방벽 및 천연방벽의 성능을 저하시킨다. 따라서, 붕괴열은 공학적 방벽의 성능이 확보되는 온도 제한치 이하로 소산시켜야 하며, 처분용기의 표면선량률은 주변 물질의 방사분해 산화물을 최소화하기 위하여 제한치 이하가 되도록 차폐설계 하여야 한다. 10CFR60.131(h) 항목에서 언급하고 있는 처분장에서의 핵임계 안전성도 매우 중요한 설계인자중의 하나이다.

이처럼 붕괴열, 방사능 및 핵임계는 안전성 측면에서 매우 중요하나, 이 인자들은 사용후핵연료의 연소도에 매우 종속적이므로 이 인자들을 타당성 있게 산출하기 위해서는 국내 사용후핵연료 발생량 및 연소도 분포 등의 현황을 정확히 파악하여야 한다. 처분시스템 개발 시 처분시나리오 및 시설의 용량을 정확히 산정하기 위해서도 현재 및 향후 발생될 사용후핵연료 현황을 정확히 추정하는 것이 필요하다. 1997년도에 국내 사용후핵연료현황을 파악하고 이로부터 대표 값을 갖는 기준사용후핵연료를 선정한 바 있으나[1], 그 이후로 많은 시간이 경과되어 사용후핵연료에 대한 자료가 많이 축적된 상태이므로 이를 보완할 필요성이 있다.

이에, 본 연구에서는 국내 사용후핵연료 현황을 새로이 파악하였으며, 기존에 선정한 기준 사용후핵연료의 타당성 및 향후 개선방안 등을 분석하였다.

## 2. 사용후핵연료 발생량

### 2.1. 국내 원전수급계획

국내에는 현재 가압경수로 14기와 중수로 4기가 운영중이며, 현재까지 정부에서 확정고시한 2015년까지의 제1차 전력수급기본계획[2]을 반영하면, 2008년부터 1,000MW급 원자로가 4기, 1,400MW급 원자로가 4기, 즉, 향후 2015년까지 올린 5,6호기를 포함하여 10기의 원전이 추가 건설될 예정으로 있어, 2013년에 폐로예정인 월성 1호기를 고려하면 2015년에는 총 27기의 원전이 가동될 예정이다.

### 2.2. 국내 사용후핵연료 발생량 추이

앞서 언급한 2015년까지의 전력수급기본계획을 근거로 사용후핵연료 연도별 발생량 및 누적량을 추정하였다. 2003년까지 발생한 사용후핵연료는 실제 발전소에 저장되어 있는 사용후핵연료 자료[3]를 근거로 산출하였으며, 현재 운영중인 원전에서 향후 발생될 사용후핵연료의 예상발생량은 예측을 통해 2055년까지 발생될 사용후핵연료의 추이를 파악하였다. 향후 건설되어 2008년부터 운영될 8기의 원자로는 PWR로 가정하였으며, 고리 1호기는 2018년에, 월성 1호기는 2013년에 폐로됨을 가정하였다. 그 외의 호기에 대해서는 운영기간을 40년으로 가정하였다. 1,000MW급 원전에 적용될 핵연료는 한국표준형연료(Korean Standard Fuel Assembly, KSFA)를 가정하였으며, 1,400MW급 차세대원자로의 사용후핵연료 발생량은 '차세대원자로 설계개발(II)'[4]에서 제시한 값을 사용하였다.

이와 같은 방법으로 산출된 사용후핵연료 발생량 추이는 그림 1 및 2와 같다. 처분시작 시점인 2040년 시점에서 누적량은 PWR 17,400MTU 및 CANDU 14,800MTU 임을 볼 수 있으며, 다발 기준으로는 PWR 4만, CANDU 78만여 다발 정도임을 볼 수 있다. 총 처분물량인 2055년까지의 사용후핵연료 발생량은 PWR의 경우 20,500MTU, CANDU의 경우는 약 14,800MTU 정도인 것으로 나타났다. 이 값은 1997년에 추정된 값과 큰 차이가 없다.

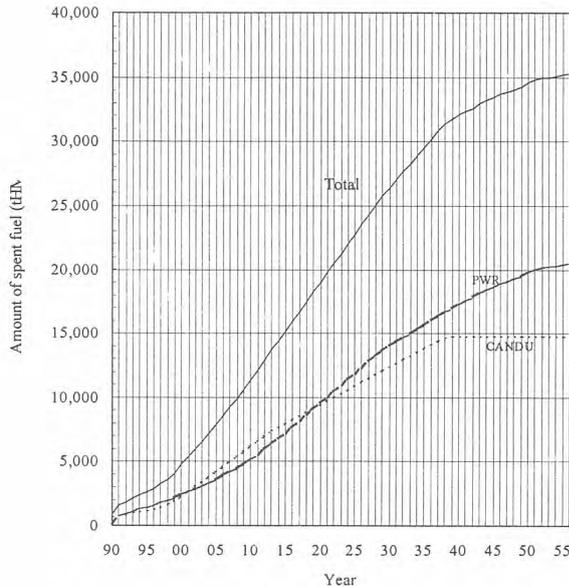


Fig. 1 Spent fuel arising from the existing reactors and the planned by 2015 during 40 years-lifetime, except for Kori #1 and Wolsung #1.

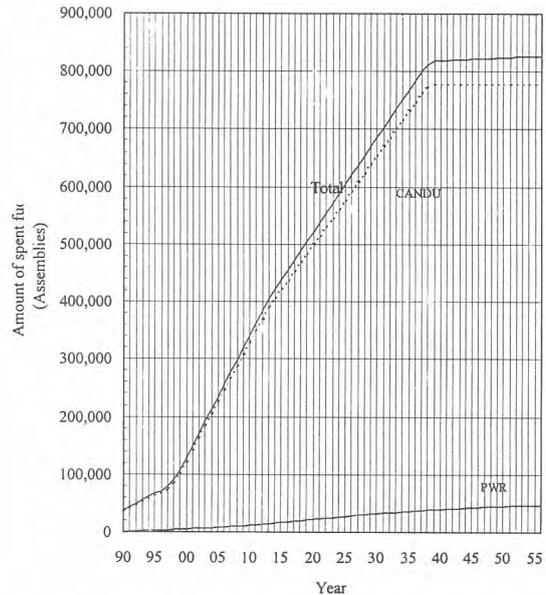


Fig. 2 Spent fuel arising from the existing reactors and the planned by 2015 during 40 years-lifetime, except for Kori #1 and Wolsung #1.

### 3. 사용후핵연료 특성

#### 3.1 국내 사용후핵연료의 물리학적 제원

사용후핵연료의 기하학적 구조, 크기, 무게, 냉각기간, 연소도, 방사선원, 붕괴열량, 방사성물질 농도 등은 심지층 처분시스템의 성능 및 안전성평가에 필요한 기본 입력자료이다. 그런데, 우리나라의 PWR 원전에 사용되는 핵연료의 종류 및 연소이력은 매우 다양하다. 따라서, 처분시스템을 설정하기 위해서는 이 다양한 특성을 갖는 모든 핵연료를 대표하는 기준 사용후핵연료를 타당하게 선정하는 것이 매우 중요하다.

우리나라에서 지금까지 사용된 사용후핵연료 제원을 보면, 14×14, 16×16 및 17×17 등의 세 가지 집합체 형태가 있다. 14×14는 현재 고리 1호기에 웨스팅하우스(이하, WH) 14×14 [19.7cm<sup>2</sup>×405.7cm] OFA(Optimized Fuel Assembly) 핵연료가 사용되고 있다. 16×16은 두 종류의 핵연료집합체가 현재 사용되고 있는데, 하나는, WH 표준형 연료[19.7cm<sup>2</sup>×405.8cm]로서 고리 2호기에 사용되고 있으며, 다른 하나는 한국표준형 연료[20.7cm<sup>2</sup>×452.8cm](Korea Standard Fuel Assembly)로서 한국표준형 원전인 울진 3,4,5,6호기 및 영광 3,4,5,6호기에 현재 장전되고 있다. 현재 사용되고 있는 17×17 연료는 Vantage 5H[21.4×21.4cm<sup>2</sup>×405.8cm]로서 고리 3,4호기, 울진 1,2호기, 및 영광 1,2호기에 장전되고 있다. 17×17 연료가 KOFA(Korean Optimized Fuel Assembly)에서 Vantage 5H로 대체되면서 두드러진 변화는 고연소도 정책에 따라 농축도가 3.7~3.8w/o에서 4.1~4.2w/o 정도로 상향조정된 것이다. 지금까지 사용된 핵연료 집합체의 중

류는 10개이며, 캐니스터 바스켓은 모든 핵연료 집합체를 수용해야 하는데, 핵연료 집합체 단면적은 17×17 연료가 21.4×21.4cm<sup>2</sup>로 가장 크며, 축방향 길이는 16×16 KSFA 연료가 453cm로 다른 집합체에 비해 50cm 이상 큰 특징이 있다.

평균 방출연소도 48GWD/MTU를 목표로 개발된 Vantage 5H를 대체할 17×17 개량형핵연료는 평균 방출연소도가 55GWD/MTU 이상으로서 고연소도를 추구하였으며 열적성능은 현재 사용중인 Vantage 5H 연료에 비해 10% 이상 향상되었다. 이 연료는 약 2008년경에 상용원자로의 연료로 쓰일 예정이다. 한국표준형 원전에 사용되는 KSFA 핵연료 집합체를 대체할 16×16 개량형핵연료 역시 평균 방출연소도 55GWD/MTU 이상, 열적성능을 10% 이상 향상시켰으며, 2008년경에 장전될 예정이나 기존 핵연료와 비교하여 농축도 및 방출연소도를 제외한 물리학적 제원의 변화는 거의 없다.

표 1에는 지금까지 발생한 핵연료 종류별 발생량이 기재되어 있는데, 기존에 기준사용후핵연료로 선정한 17×17 핵연료가 약 60%를 차지하고 있으며, KSFA 핵연료가 약 30% 정도를 차지하고 있다. 그림 3에는 향후 발생될 핵연료를 예측한 것인데, KSFA의 다량 방출로 인해 17×17 핵연료가 감소하여 2012년 후부터는 16×16 핵연료가 17×17 핵연료에 비해 더 많이 발생하게 되고 최종적으로는 총 처분물량의 약 70% 정도 차지하게 된다. 따라서, 현재는 기준 사용후핵연료를 17×17 KOFA 핵연료로 선정하여 사용하고 있으나, 지금부터 KSFA의 물리학적 제원, 초기 농축도 및 방출연소도를 단계적으로 반영하면서 처분시스템의 개념을 설정하는 것이 바람직해 보이며, 약 5년 후부터는 기준핵연료로서 KSFA의 제원을 기준핵연료로 선정하는 것이 타당해 보인다. 여기서 각 핵연료 종류별 발생량 예측시 향후 건설될 원자로[4]의 핵연료는 16×16 KSFA 핵연료를 가정하였다.

Table 1. 원전별 방출핵연료의 종류 및 발생량

(단위:집합체)

핵연료 종류	고리1	고리2	고리3	고리4	영광1	영광2	영광3	영광4	울진1	울진2	울진3	울진4	합계
14×14	STD <sup>1)</sup>	386											386
	OFA <sup>2)</sup>	274											274
	KOFA <sup>3)</sup>	189											189
16×16	STD		639										639
	KOFA		292										292
	KSFA <sup>4)</sup>						460	378			242	242	1322
17×17	STD			157	149								306
	OFA			216	155	317	253						941
	FRAMA <sup>5)</sup>								200	153			353
	KOFA			182	223	345	233		284	357			1624
	V5H <sup>6)</sup>			306	221	244	251		205	184			1411
합계		849	931	861	748	906	737	460	378	689	694	242	7737

1):Westinghouse Standard, 2):Westinghouse Optimized Fuel Assembly, 3):Korean Optimized Fuel Assembly, 4):Korean Standard Fuel Assembly, 5):Framatome, 6):Vantage 5H

### 3.2 사용후핵연료의 연소도 분포

사용후핵연료 연소도 분포를 정확히 추정하는 것은 핵임계, 방사선차폐, 안전성 평가 측면에서 매우 중요하다. 그림 4는 현재까지의 사용후핵연료 발생량과 발생한 핵연료의 평균연소도를

나타내고 있는데, 그림에서 보듯이 연간 발생하는 사용후핵연료는 가동원자로의 증가와 더불어 꾸준히 증가하여 PWR의 경우 현재 연간 ~200MTU 정도가 발생하고 있다. 방출되는 핵연료의 평균연소도는 1980년대 중반에는 약 30GWD/MTU 정도이었으나, 80년대 말부터 핵연료의 평균농축도를 3.2→3.5→3.8w/o로 순차적으로 늘리면서 90년대 중반부터는 약 37GWD/MTU 정도에 이르다가, 90년대 중·후반부터 초기농축도가 4.1~4.2w/o인 Vantage 5H 핵연료가 장전되면서 2000년대 초반에는 방출되는 핵연료의 평균연소도가 약 40GWD/MTU 정도를 상회하고 있다. 방출핵연료의 최대 연소도 또한 90년대 후반에는 45GWD/MTU 정도이었으나, 2000년대 초반에는 55GWD/MTU 정도인 것으로 나타났다. 이 추세를 바탕으로 볼 때, 초기농축도가 4.5w/o인 KSFA의 핵연료가 본격적으로 방출되는 2000년대 중·후반부터는 평균연소도가 45GWD/MTU를 상회할 것으로 판단되며, 최대 방출연소도는 60GWD/MTU를 상회할 것으로 예측된다. 따라서, 2000년대 중·후반부터는 기준핵연료를 4.0w/o, 45GWD/MTU에서 단계적으로 4.5w/o, 55GWD/MTU에 가중치를 두어 처분시스템의 개념설정에 반영하는 것이 타당할 것으로 보인다.

그림 5에는 국내에서 1996년까지 발생한 자료를 바탕으로 1997년에 추정된 기준핵연료가 저연소도 방출핵연료의 적절하게 대표하고 있는지를 평가하기 위해 1997년 이후부터 발생한 사용후핵연료 전체를 대상으로 초기농축도와 연소도와의 관계를 도식화하였다. 그림에서 보듯이, 지금까지 발생한 사용후핵연료의 대부분은 1997년에 설정한 4.0w/o, 45GWD/MTU 이하 영역에 모두 위치하고 있어 1997년에 추정된 저연소도 사용후핵연료는 고연소도 핵연료가 본격적으로 방출되는 시점까지는 사용하는데 무리가 없어 보인다. 이 그림에는 고연소도인 4.5w/o 핵연료의 방출연소도도 함께 도식화되어 있는데, 이 역시 1997년에 산정한 4.5w/o, 55GWD/MTU 이하의 영역에 모두 포함되는 것으로 나타났다.

그림 5의 자료를 이용하여 1997년에 산정한 기준 사용후핵연료에 대한 예비 책임계 해석결과[5]를 분석해 보면, 그림의 좌측 하부에 위치한 점선은 처분시스템이 최초 처분형태를 유지하고 감속재인 지하수가 포화되었을 때, 책임계 안전성이 확보되는 농축도 및 연소도를 나타내는데, 그림에서 보듯이, 지금까지 발생한 사용후핵연료는 모두 이 선 위에 위치하므로 어떠한 핵연료를 처분하더라도 처분상태가 유지되고 물이 포화되는 조건에서의 책임계 안전성은 확보되는 것으로 분석된다. 이처럼 본 연구를 통해 산출된 사용후핵연료의 현황은 책임계, 방사선 차폐, 안전성 평가분야에 널리 활용될 것으로 기대된다.

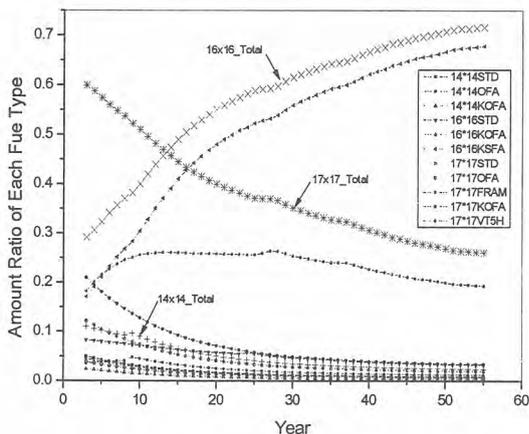


Fig. 3. 향후 사용후핵연료 종류별 발생량

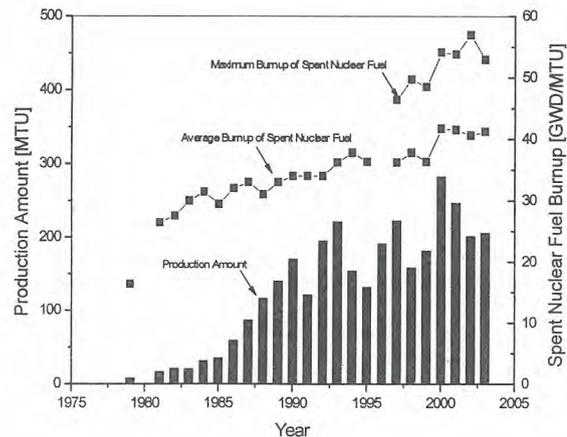


Fig. 4. 사용후핵연료 발생량과 연소도 변화 추이

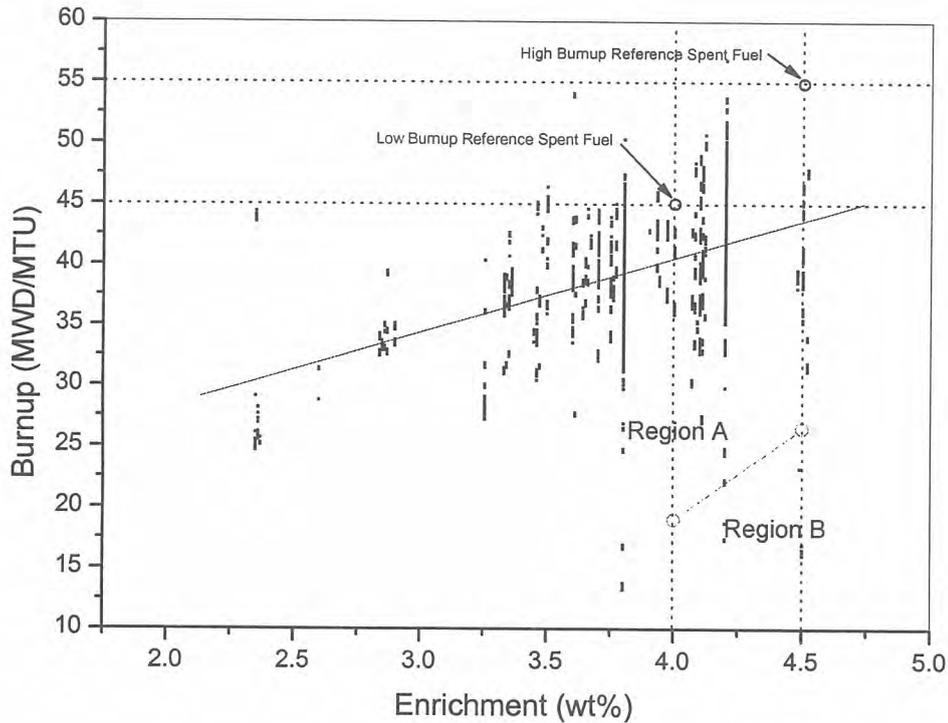


Fig. 5. 2003년까지 발생한 사용후핵연료의 초기농축도와 연소도 분포

#### 4. 결과요약 및 결론

처분시스템 설계를 위한 기초 자료로 사용되는 국내 사용후핵연료의 발생량 및 연소이력 현황을 파악하였다. 2055년까지 PWR 및 CANDU 사용후핵연료 발생량은 각각 20,500 및 14,800MTU로 나타났다. 17×17 핵연료 집합체의 사용후핵연료 발생량 비율은 2003년 기준으로 전체대비 60%를 점유하는 것으로 나타났으며, 2012년 이후부터는 16×16 KSFA 사용후핵연료 발생량이 급격히 증가하여 최종시점에서는 70% 정도를 점유할 것으로 보인다. 사용후핵연료의 평균연소도는 2000년대 초반에는 40GWD/MTU 정도이며, 2000년대 중 후반부터는 45GWD/MTU를 초과할 것으로 보인다. 따라서, 현재는 1997년에 선정한 제원을 기준 사용후핵연료 제원으로 사용하되 향후 5년 후를 기점으로 기준핵연료를 16×16 KSFA 4.5w/o, 55GWD/MTU로 반영하는 것이 타당해 보이며, 본 연구에서 도출된 사용후핵연료 현황은 방사선차폐, 핵임계 및 안전성 평가 시 매우 중요한 자료로 활용될 수 있을 것으로 판단된다.

#### Acknowledgements

본 연구는 과학기술부가 지원하는 원자력연구개발 중장기과제 중 “처분시스템개발” 과제의 일환으로 수행되었습니다.

## REFERENCES

1. 최종원 외, "심지층 처분시스템 개념설정을 위한 기준 사용후핵연료 선정 및 특성 분석, KAERI/TR-914/97, 한국원자력연구소(1997).
2. "제1차 전력수급기본계획(2002~2015)," 산업자원부 공고 제2002-158호(2002).
3. "2002년도 방사선관리 연보." (주)한국수력원자력(2002).
4. 최영상 외, "차세대원자로 설계개발(II) : 초기노심 설계개발," MOCIE-044/98, 산업자원부 (1998).
5. 조동건 외, "사용후핵연료 처분시스템의 예비 핵임계 안전성 평가," 2004 춘계학술발표회논문집, 경주, 5월27일-5월28일(2004).

## Analysis of AM and AEM Oxides Behavior in a SF Electrolytic Reduction Process

사용후핵연료 전기환원 공정에서의 알카리,  
알카리토 금속 산화물들의 거동 분석

Byung Heung Park, Dae Seung Kang, Chung Seok Seo and Seong Won Park  
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

박병홍, 강대승, 서중석, 박성원  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

### Abstract

As a basic study for nuclides behavior and distribution in a metalization process by electrolytic reduction which is a key unit process of the advanced spent fuel conditioning process (ACP), electrochemical properties of high heat-generating alkali and alkali earth oxides in molten salt were measured and the behavior of those elements were analyzed. The reduction potentials of Cs, Sr, and Ba in a molten LiCl-Li<sub>2</sub>O system were more cathodic than that of Li and closely located one another. Thus, it is expected that the alkali and alkali earth would not hinder the reaction mechanism which is via lithium reduction. Alkali and alkali earth metals are likely to recycle into molten salt when the process is operated beyond metal reduction potentials and the effect of electric current on the mass transport is also determined by measuring the metal concentrations in the molten salt phase at different current conditions.

**Key words** : Spent Fuel, Electrolytic Reduction, Alkali Oxide, Alkali Earth Oxide, Molten Salt, Reduction Potential

### 요약

사용후핵연료 차세대 관리공정의 주된 단위 공정인 전기 환원에 의한 금속 전환 공정에서의 핵종 거동 및 분포에 관한 기초 연구의 일환으로 고방열성 핵종인 알카리, 알카리토 금속 산화물들의 고온 용융염에서의 전기 화학적 특성을 측정 분석함으로써 전기 환원 공정에서의 거동을 예상하였다. LiCl-Li<sub>2</sub>O 용융염계에서 Cs, Sr 및 Ba은 Li 보다 높은 전위에서 환원되며 환원 전위는 서로 근접해 있는 것으로 측정되었다. 이에 따라 사용후핵연료의 전기 환원 과정에 Li 환원을 매개로 한 반응 메카니즘에 저해를 일으키지 않을 것으로 예측되었다. 알카리, 알카리토 금속의 환원 조건에서 공정이 운전될 경우 자유에너지 변화의 계산을 통해 알카리, 알카리토 금속이 용융염으로 재순환됨을 확인 하였으며 전류 범위에 따른 금속 원소의 농도 변화를 측정하여 알카리, 알카

리튬 금속의 물질 전달에 대한 전류의 영향을 평가하였다.

**중심단어** : 사용후핵연료, 전기환원, 알카리 산화물, 알카리토 산화물, 용융염, 환원전위

## 1. 서 론

한국원자력연구소에서 개발하고 있는 사용후핵연료 차세대 관리공정에서는 PWR 산화물 SF의 부피저감과 방사능 및 발열량 감소를 통해 장기저장의 효율성 증대와 사용후핵연료의 가용성 확보를 위하여 전기환원을 주요 공정으로 하는 conditioning 공정을 확립 추진하고 있다. 전기환원 공정에서는 건식분말화공정을 거친 산화물 사용후핵연료의 구성 성분들이 일체형 환원전극(cathode) 내에 충전되어 고온 용융 LiCl-Li<sub>2</sub>O계에서 전기적, 화학적 환원 분위기에 놓여지게 된다. 이 때, 각 구성 성분은 용융염에 대한 화학적 반응 특성 및 전기적 퍼텐셜 차이에 의해 자기 안정적인 형태로 변화하며 그 결과 크게 세가지 최종적 형태를 예상할 수 있다. 첫번째로는 U 및 TRU 원소들로 산소 원자를 잃어 환원된 금속 형태로 환원전극을 구성하는 다공성 필터 내에서 회수되어 전해정련 공정으로 보내지는 것들이다. 두번째는 전기적 환원 과정이 종결되었을 때 용융염에 용해되어 용융염과 함께 재순환 되는 알카리 및 알카리토 금속 계열 원소들로 용융염의 재순환 이전 일정 수준의 농도를 유지시킬 목적으로 제거된다. 마지막으로 희토류 원소들은 산화리튬과 상호 작용을 통해 일부는 반응하여 염화리튬에 소량 용해되며 나머지는 환원전극 내에 잔존하게 된다. 고방열성 핵종인 Cs과 Sr은 알려진 바와 같이 발열량과 방사능이 다른 핵종에 비해 상당히 큰 주요 제거 대상 핵종들이다. 리튬 환원 공정에서 이들 핵종의 산화물들은 염화리튬과 반응함으로써 염화물로 전환되는 것으로 보고[1]되고 있다.

용융염에서 산화물 사용후핵연료를 금속 리튬과 접촉시킴으로서 환원된 금속 형태를 얻는 리튬 공정은 외부로부터 가해지는 반응 추진력(driving force) 없이 평형 상태로 진행되어 내부 반응 추진력이 지속적으로 감소되는 단순 과정인 반면 전기 환원 공정의 경우에는 외부로부터 일정한 전기적 추진력이 계에 부여되므로 공정 조건을 화합물들의 최종적 평형 조건과 일정한 차이로 유지시킬 수 있는 시스템이다. 그러므로 전기 화학적 환원 공정에서 AM, AEM 산화물들의 거동은 단순 화학 반응이 진행되던 리튬 환원 공정과는 다른 양상을 보일 것이 예상되며 리튬 환원 금속 전환 공정에서는 고려되지 않았던 AM, AEM의 환원 전위와 같은 전기 화학적 물성에 대한 연구는 필수 불가결하게 된다.

본 연구에서는 전기 환원 금속 전환 공정의 일체형 환원전극에서 용융염으로 용출되어 나오는 알카리, 알카리토 금속 원소들의 공정 조건 하에서의 환원 전위를 측정하여 일체형 환원전극에서 발생하는 AM, AEM의 전기 화학적 거동을 규명하고자 하였다. 이와 함께 전류밀도와 같은 공정 변수에 따른 금속 산화물의 물질전달 거동을 파악하고자 하였다.

## 2. 알카리, 알카리토 금속 산화물들의 환원 전위

AM, AEM 산화물들이 LiCl 용융염 전기 환원 조건에서 겪게 되는 분위기는 리튬 환원 공정에서와 동일하게 용융 LiCl과 접촉함으로써 발생하는 화학 반응 및 cathode에 충전되어 있는 분말 사이에 존재하는 용융염으로 용해되어 농도차에 의해 cathode 밖으로 용출 되어 나가는 물리화학적 분위기와 전자의 흐름에 의한 전기화학적 환원 분위기로 구분 할 수 있다. 산화수 변화를 동반하는 전기화학적 과정에 필요한 에너지 변화는 전기적 퍼텐셜에 의해 발생하며  $\Delta G = -nFE$ 의 관계를 갖고 있다. Table 1에서는 본 실험의 대상 물질인 Cs<sub>2</sub>O, SrO 및 BaO와 각 산화물들과 용융 LiCl에서의 반응 생성물인 염화물들의 표준 분해 전위를 공정 온도인 650°C에서 나타내었다.

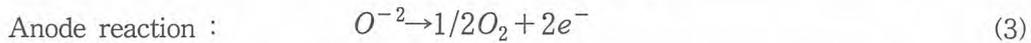
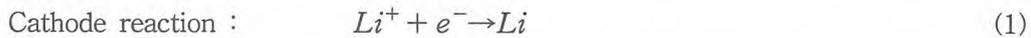
Table 1에서 Cs<sub>2</sub>O의 분해 전압이 가장 낮은 것으로 표기되었지만 이는 고체 상태의 값을 공정 온도로 외삽한 가상적인 표준 상태를 기준으로 계산하여 나온 값이기 때문이다. 그러므로 실제 공정에서 Cs<sub>2</sub>O는 순수한 액체로 존재하지 않으며 용융 LiCl에 용해되어 해리되면 각기 상대 이온으로 싸여 안정한 형태로 존재하게 된다.

Table 1. Standard State Decomposition Potentials at 650 °C

Reactions	$\Delta G(\text{kJ/mol})$	E(V)
$\text{Li}_2\text{O}(s) \rightarrow 2\text{Li}(l) + \frac{1}{2}\text{O}_2(g)$	477.1714	-2.4728
$\text{LiCl}(l) \rightarrow \text{Li}(l) + \frac{1}{2}\text{Cl}_2(g)$	333.8291	-3.4599
$\text{Cs}_2\text{O}(l)^* \rightarrow 2\text{Cs}(s) + \frac{1}{2}\text{O}_2(g)$	222.2282	-1.1516
$\text{CsCl}(s) \rightarrow \text{Cs}(s) + \frac{1}{2}\text{Cl}_2(g)$	353.6578	-3.6654
$\text{SrO}(s) \rightarrow \text{Sr}(s) + \frac{1}{2}\text{O}_2(g)$	498.9912	-2.5853
$\text{SrCl}_2(s) \rightarrow \text{Sr}(s) + \text{Cl}_2(g)$	683.7514	-3.5433
$\text{BaO}(s) \rightarrow \text{Ba}(s) + \frac{1}{2}\text{O}_2(g)$	465.7898	-2.4138
$\text{BaCl}_2(s) \rightarrow \text{Ba}(s) + \text{Cl}_2(g)$	711.7672	-3.6885

\*Extrapolated value

산화물 사용후핵연료의 금속 전환 공정은 일종의 deoxidation 공정으로 cathode의 전위를 리튬 이온의 환원 전위 보다 더 cathodic하게 유지할 경우 deoxidant로 사용되는 Li<sub>2</sub>O로부터의 Li 금속 환원과 환원된 Li 금속에 의한 화학적 반응에 따른 산화물 환원 반응의 연속 반응으로 해석된다.



우라늄과 TRU 산화물들은 식(2)에 의해 금속으로 전환되는 반면 용융염상에 용해되어 이온으로 존재하는 AM, AEM 원소들은 cathode에서 Li 이온의 환원반응과 경쟁을 하게 된다.

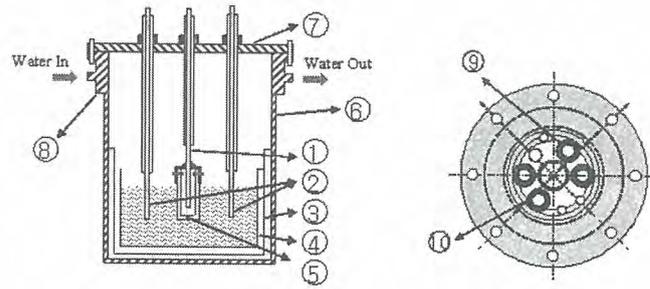
### 3. 실험장치 및 방법

#### 3.1. 실험장치

고온 용융염에 비교적 안정한 것으로 알려진 마그네시아(MgO) 반응기와 외부 용기와 열적 전기적 충격을 막기 위한 알루미늄 반응기의 2중 반응기로 구성된 실험장치는 Fig. 1과 같이 STS 재질의 용기에 담겨진다. STS 외부 용기 상부 플렌지는 전극을 설치 할 수 있도록 설계되었으며 용기 입구에는 반응기의 열이 설치된 전극 연결 부위로 전해지는 것을 막고 증발되는 염을 기벽에 응축시키기 위한 냉각수 자켓이 용기 외부에 설치되었다. 자켓 아래 부분은 저항식 가열로에 삽입되며 용융염에 담겨진 열전대에 의해 가열로의 온도를 조절하여 반응 온도를 유지시켰다.

반응기 상부 플렌지에는 전극들과 열전대가 삽입되며 반응 진행에 따른 용융염 조성을 분석하기 위한 샘플링 포트, LiCl 투입을 위한 시료 주입구와 반응 과정에 발생하는 기체를 반응기 밖으로 제거하기 위한 불활성 아르곤 가스 배관이 연결되었다.

Cathode에 충전되는 우라늄 산화물을 포함한 금속 산화물과 통전을 위해 직경 5mm의 STS conductor가 마그네시아 필터 홀더에 연결되었으며 홀더 위로 뺏어나와 반응기 외부의 전력 공급 장치에 연결된다. 내경 10mm 다공성 마그네시아 필터(평균 기공 지름 ~8 $\mu\text{m}$ )는 상부 측면에 구멍을 내어 홀더에 접속되어 고정된다. STS conductor와 마그네시아 필터 사이는 환원되어지는 금속



- ① Cathode ② Anode (Pt,  $\Phi 6 \times 2$ ) ③ Alumina Container (70OD $\times$ 4T $\times$ 152H)  
 ④ Magnesia Reactor (64OD $\times$ 4T $\times$ 118H) ⑤ Magnesia Filter (16OD $\times$ 3T $\times$ 80H)  
 ⑥ STS Container ⑦ Flange ⑧ Water Jacket ⑨ Reference Electrode ⑩ Thermocouple

Fig. 1. Experiment Apparatus

산화물로 충전되어 conductor, 마그네시아 필터와 함께 일체형 cathode를 구성한다. 전도성과 고온 용융염에 대한 안정성을 고려하여 백금을 anode로 사용하였으며 cathode와의 전극 면적을 고려하여 직경 6mm의 백금 tube를 사용하여 두개의 anode를 제작 설치하였다. 각 전극의 전위 측정을 위해서는 기준 전극을 설치하여 3극셀을 구성해야한다. 용융염계 전위 측정을 위해 일반적으로 Ag/AgCl 또는 Ni/NiO와 같은 금속/금속 염화물 또는 산화물로 기준 전극을 제작 사용하지만 본 실험에서는 제작의 어려움과 전극 재생의 편의를 위해 anode와 동일한 재질의 3mm 백금 rod를 사용하여 준기준전극(quasi-reference electrode)을 제작 측정하였다. 기준전극, cathode, anode와 열전대는 반응 용기와의 전기적 독립성을 유지시키기 위해 반응 용기에 삽입되어 접촉되는 부분은 알루미늄 tube에 싸여 고정되었다. 전기 환원 과정은 반응기 외부에 연결된 potentiostat/galvanostat를 사용하여 통제되었으며 potentiostat/galvanostat는 컴퓨터와 연결되어 software를 이용 전압-전류 데이터를 저장하였다.

### 3.2. 실험방법

불활성 분위기 글로브 박스 내에서 실험 조건에 따라 일정 양(3~5g)의 우라늄 산화물( $U_3O_8$ )과 AM, AEM 산화물들이 정량 혼합되어 마그네시아 필터에 충전된다. 마그네시아 필터는 cathode의 홀더에 부착되어 cathode를 구성하며 cathode와 다른 전극들은 반응기 상부에 고정 설치된다. 이후 반응 조건에 맞춰 정량된(~125g) LiCl을 주입구를 통해 반응기 내부로 투입한다. 반응기 내부는 기체 아르곤으로 치환되며 20여회의 purge과정으로 LiCl에 포함되어 있는 수분과 반응기 내부 산소를 지속적으로 제거한다. 가열로를 작동시켜 반응 온도 (650 $^{\circ}C$ )로 서서히 상승시키며 반응기 온도가 300 $^{\circ}C$ 와 650 $^{\circ}C$ 에 이르렀을 때 다시 한번 20여회 아르곤 가스로 purge를 수행하였다. 반응기 온도가 반응 조건에 안정화되었을 때 글로브 박스 내에서 3wt% 용융염이 되도록 정량한  $Li_2O$ 를 LiCl 주입에 사용된 투입구를 이용하여 용융염 상으로 투입하였다.

$Li_2O$  용해에 필요한 약 2시간 경과 후 매 5시간 간격으로 용융염상을 석영관을 사용하여 약 0.8 ml 취해 증류수로 용해시킨 뒤 Cs 금속 원소는 원자 흡수 분광법(Atomic Absorption Spectrophotometry, AAS), Sr과 Ba 금속 원소는 유도 결합 플라즈마 분광법(Inductively Coupled Plasma-Atomic Emission Spectrometry, ICP-AES)을 이용하여 조성을 분석하였으며 페놀프탈레인 지시약을 사용하여 시료내의  $Li_2O$  농도를 HCl 용액으로 적정 분석하였다.

### 4. 실험결과 및 고찰

전기환원에 의한 금속 전환 공정의 일체형 cathode에서는 계에 존재하는 모든 양이온들이 전자

를 얻기 위해 경쟁을 하게 된다. 그러나 전자를 얻어 금속으로 전환되는 원소는 각 금속 이온들의 환원 전위에 의해 결정된다. 양이온의 대부분을 차지하는 리튬 이온은 금속 전환이 이루어짐에 따라 산화물 전극이 금속 전극으로 변화되는 외부적 요인을 제외하면 이온 농도의 감소에 의한 환원 전위 변화는 거의 발생하지 않는다. 그러나 소량 존재하는 AM, AEM 이온들의 환원 전위는 무한 희석 상태를 표준 상태로 정의하지 않는 한 표준 환원 전위와 크게 어긋나게 된다. 그러나 무한 희석 상태에 대한 값은 실험적으로 측정하기 어렵기 때문에 공정 온도에서 순수한 액체 또는 과냉각된 액체 상태를 기준으로 하여 환원 전위를 측정하여 활동도 계수와 같은 열역학 물성들을 결정하는 것이 일반적이다. 이번 실험에서는 전기 환원에 의한 금속 전환 공정에서 AM, AEM들의 일체형 cathode에 대한 환원 전위를 측정하여 리튬 환원 전위에 대한 상대적인 위치를 파악함으로써 AM, AEM 원소의 용융염에서의 분리 가능성과 전기 환원의 진행에 따른 AM, AEM 산화물들의 용해 용출 과정에 의한 농도 변화 등 전기 화학적 거동을 확인하고자 하였다.

#### 4.1. AM, AEM의 환원 전위 측정

일반적으로 금속 원소의 환원 전위는 전극의 성질, 기준 전극의 종류 및 전해질 내의 금속 이온의 농도와 종류에 의해 상대적으로 결정되며 대상 핵종인 Cs, Sr 및 Ba에 대한 용융염에서의 환원 전위에 관한 자료들은 상당히 부족한 편이다. 수용액상의 표준 상태 환원 전위 데이터[2]를 참조하면  $Cs/Cs^+$ ,  $Sr/Sr^{+2}$ 와  $Ba/Ba^{+2}$ 의 전위가 용융 LiCl계에서 상당히 가까이 있을 것으로 추정할 수 있으며  $Li/Li^+$ 에 비해 먼저 환원되는 것으로 예측할 수 있다. 그러나 금속 이온의 낮은 농도 영역이므로 대부분의 양이온을 차지하는 용융 LiCl-Li<sub>2</sub>O의  $Li/Li^+$  값과의 비교는 반드시 실험적으로 판단해야 한다.

고온 용융염계에서 환원 전위를 얻기 위해 정성적 및 반정량적 측정에서 매우 편리하며 전극 표면 또는 전극 표면 근방에서 어떠한 반응이 일어나고 있는가를 가장 직접적으로 파악할 수 있는 방법 중의 하나인 순환전압전류법(cyclic voltammetry, CV)을 사용하였다. 각 실험은 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>과 14wt%의 금속 산화물로 이루어진 일체형 cathode를 650°C 용융 LiCl-3wt% Li<sub>2</sub>O 전해욕에서 0.0V 부터 -2.5V (vs. Pt)로 10mV/sec의 주사 속도로 순환하여 수행되었다. 주사 속도는 비슷한 계에서의 실험 방법들[3-5]을 참조하여 결정하였으며 얻어진 파형 분석을 위해 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>로만 충전된 일체형 cathode를 용융 LiCl-3wt% Li<sub>2</sub>O 전해욕과 순수 LiCl 전해욕에서 각각 순환 주사하여 Fig. 2에 함께 나타내었다.

Fig. 2의 (a), (b) 및 (c)와 (d)를 비교하였을 때 각 곡선에서 (a), (b), (c)의 3, 4번으로 표시된 파형은 각각  $Cs/Cs^+$ ,  $Sr/Sr^{+2}$ 와  $Ba/Ba^{+2}$ 의 환원 및 산화에 의한 것임을 알 수 있다. 나머지 파형을 분석하기 위해 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>만으로 충전된 cathode로 순수한 LiCl 전해질계에서 실험한 Fig. 2(e)와 비교하면 약 -0.7V에서 나타나는 1번 파형과 이에 대응하는 산화 파형인 7번은 산화우라늄에 의한 거동이며 모든 그림에서 나타나는 것을 확인할 수 있다. 2, 5, 6번 위치에서 측정된 파형의 전기화학적 거동은 Fig. 2(e)에 굵은 실선으로 표시된 주사범위를 -1.8V까지 확장한 전압-전류 곡선과 Fig. 2(d)를 비교하여 결정하였다. Fig. 2(a)~(d)에서 공통으로 나타나는 2번 파형은 약 -1.6V 근처에서 발생하였으나 이를 확인하기 위한 (e)의 -1.8V 범위에서의 곡선에는 나타나지 않았으며 5, 6번 파형 또한 관찰되지 않았다. 이러한 실험 결과에 따라 2번은  $Li/Li^+$ 의 환원에 의한 거동이며 5, 6번은 각각  $Li/Li^+$ 의 산화와 전극으로부터의 탈착에 의해 생성된 것으로 판단된다. 또한 (d)와 (e)의 비교를 통해 LiCl-Li<sub>2</sub>O에서의  $Li^+$  이온과 순수 LiCl의 양이온인  $Li^+$ 는 다른 환원 전위를 갖는 것을 알 수 있는데 이것은 산화 리튬의 첨가 즉 산소 이온에 의해  $Li^+$ 의 활성도가 크게 영향을 받기 때문이다.

반정량적인 CV 방법을 이용해 추정된 일체형 cathode에 대한  $Cs/Cs^+$ ,  $Sr/Sr^{+2}$ 와  $Ba/Ba^{+2}$ 의 환원 전위는 대략 -2.2V(vs. Pt)였으며 서로 근접해있었다. 반면 LiCl-3wt% Li<sub>2</sub>O의  $Li/Li^+$  환원 전위는 -1.6V 근처에서 나타났다. 그러므로 cathode 경쟁 반응에서 cathode 전위를 -1.6V와 -2.2V

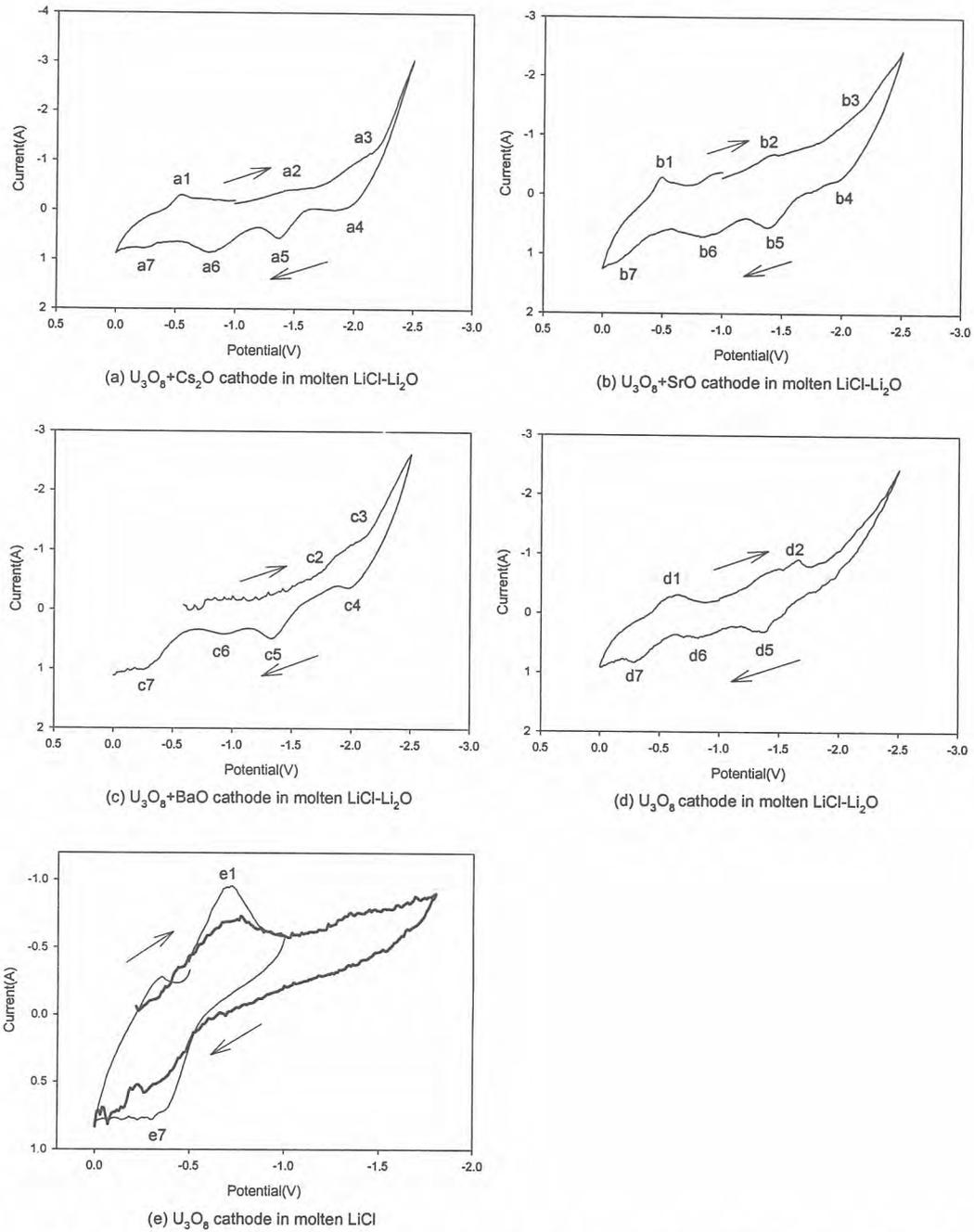


Fig. 2. Cyclic Voltammograms of  $U_3O_8$  with (a)  $Cs_2O$  (b)  $SrO$  and (c)  $BaO$  in  $LiCl-3wt\% Li_2O$  and  $U_3O_8$  in (d)  $LiCl-3wt\% Li_2O$  and in (e)  $LiCl$

사이에서 유지한다면  $Li^+$ 만을 금속으로 환원시킬 수 있으므로 리튬의 금속 전환 반응을 Cs, Sr 및 Ba의 환원에 의한 전류 효율 저하 없이 진행시킬 수 있다. 이러한 운전 범위는 실제 사용후핵연료와 같이 낮은 AM, AEM의 농도 영역에서는 더욱 크게 벌어지게 될 것이다. 그러나 cathode 전위가  $Cs^+$ ,  $Sr^{+2}$ 와  $Ba^{+2}$ 의 환원 가능한 영역에 들어서면 리튬 금속의 경우에서처럼 환원된 금속과 시스템내의 다른 물질들과의 화학 반응이 일어난다. 이 때 발생할 수 있는 반응에 대해  $650^\circ C$ 에서의 표준 상태 자유에너지 변화를 Table 2에 정리하였다.

Table 2에 제시된 계산 결과에 의해 cathode에 환원되어 금속 형태로 존재하게 되는 Cs는  $LiCl$ 과 Sr은  $U_3O_8$ ,  $Li_2O$  및  $LiCl$ 과 Ba는  $U_3O_8$ ,  $LiCl$ 과 각각 표준 상태에서 반응하여 산화물 또는 염화

물로 전환 될 것이 예상된다. 그러나 생성된 산화물과 염화물은 용융 LiCl에 용해되어 다시 이온 상태로 존재하게 될 것이다. 이런 경우 Cs, Sr와 Ba는 금속 전환 메커니즘의 Li과 마찬가지로 cathode 근처에서 순환하게 되며 이런 현상은 우라늄 금속 또는 리튬 금속이 생성되는 반응들의 결과이므로 시스템의 전류 효율을 떨어뜨리지는 않는다. 그렇지만 용융염 속으로 용해되어 cathode로부터 제거되어야 하는 핵종들의 농도가 cathode 내에서 높아지므로 바람직하지 않은 결과를 초래하게 된다.

Table 2. Standard Reaction Gibbs Energy Change of Metals with Oxides and Chloride

Reactions	$\Delta G(\text{kJ})$
$16\text{Cs}(l) + \text{U}_3\text{O}_8(s) \rightarrow 8\text{Cs}_2\text{O}(l) + 3\text{U}(s)$	1169.7604
$2\text{Cs}(l) + \text{Li}_2\text{O}(s) \rightarrow 2\text{Li}(l) + \text{Cs}_2\text{O}(l)$	253.2109
$\text{Cs}(l) + \text{LiCl}(l) \rightarrow \text{Li}(l) + \text{CsCl}(l)$	-20.4764
$8\text{Sr}(s) + \text{U}_3\text{O}_8(s) \rightarrow 8\text{SrO}(s) + 3\text{U}(s)$	-1030.6396
$\text{Sr}(s) + \text{Li}_2\text{O}(s) \rightarrow 2\text{Li}(l) + \text{SrO}(s)$	-21.8391
$\text{Sr}(s) + 2\text{LiCl}(l) \rightarrow 2\text{Li}(l) + \text{SrCl}_2(s)$	-16.2234
$8\text{Ba}(s) + \text{U}_3\text{O}_8(s) \rightarrow 8\text{BaO}(s) + 3\text{U}(s)$	-765.8252
$\text{Ba}(s) + \text{Li}_2\text{O}(s) \rightarrow 2\text{Li}(l) + \text{BaO}(s)$	11.2627
$\text{Ba}(s) + 2\text{LiCl}(l) \rightarrow 2\text{Li}(l) + \text{BaCl}_2(s)$	-44.2405

#### 4.2 전기 환원 공정에서의 AM, AEM 물질전달

공정 운전 조건이 앞서 언급한  $\text{Li}^+$ 의 환원 전위와  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Sr}^{+2}$ ,  $\text{Ba}^{+2}$ 의 환원 전위 사이에서 결정된 다면 비록 금속 이온들이 양의 전하를 지니고 있지만 cathode 외부로의 농도차에 의한 물질 전달을 크게 떨어뜨리지는 않을 것이 예상되었다. 그러나 전류의 입가에 따른 시스템의 대응이 순수 용해 용출 과정과는 다른 분위기에서 진행되므로 실험적으로 각 금속 원소의 물질전달 거동을 측정하였다.

$\text{Cs}_2\text{O}$  0.5g과  $\text{U}_3\text{O}_8$  5g으로 충전된 일체형 cathode에서 용융염으로 용출되는  $\text{Cs}_2\text{O}$ 의 농도 변화 및 용융염 내에서의  $\text{Li}_2\text{O}$  농도 변화를 물리 화학적 과정이 발생하는 무전류 조건과 전기 화학적 조건이 부과되는 0.4A 정전류 조건에서 비교하여 Fig. 3를 얻었다. 전류의 흐름에 따라  $\text{Li}_2\text{O}$ 의 분해가 진행되어  $\text{Li}_2\text{O}$ 의 농도가 급격히 감소하는 반면 전류의 조건에 무관하게  $\text{Cs}_2\text{O}$ 의 용출이 진행되는 것을 확인 할 수 있었다.

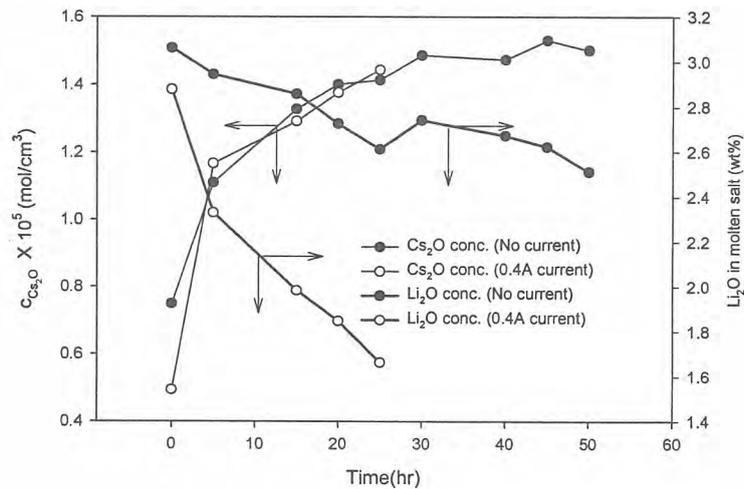


Fig. 3. Concentration changes of  $\text{Cs}_2\text{O}$  and  $\text{Li}_2\text{O}$  in molten LiCl from 9wt% cathode at no current and 0.4A constant current conditions

SrO계에 대해 수행한 앞선 Cs<sub>2</sub>O계와 동일한 전류 영향 평가를 위한 비교 실험에서 SrO의 용출이 0.4A 조건에서 크게 증가하는 것을 알 수 있었다. Fig. 4에서 보인 것과 같이 0.4A 조건의 실험 시작 후 5시간과 15시간에 분석된 SrO의 농도는 시료 제조 또는 분석에서 발생한 오차로 판단되며 타당하지 않은 거동을 나타낸다. 그러나 이 후 얻은 결과에 비추어 SrO 용출 속도 증가는 전하 이동에 따른 Li<sub>2</sub>O 농도 감소에 기인하는 것으로 유추된다.

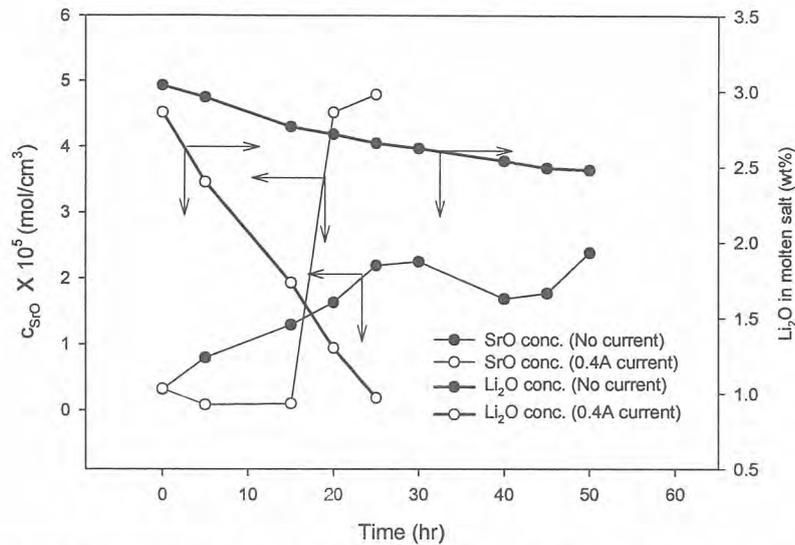


Fig. 4. Concentration changes of SrO and Li<sub>2</sub>O in molten LiCl from 9wt% cathode at no current and 0.4A constant current conditions

이어서, Li<sub>2</sub>O 농도에 의해 용출 속도가 영향을 크게 받는 SrO와 BaO에 대해 cathode의 조성을 낮춤과 동시에 낮은 전류 조건을 유지하여 공정 조건의 영향을 평가하기 위한 실험을 수행했다. 일체형 cathode에 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 5g과 SrO와 BaO 0.1g을 각각 충전하여 무전류 조건과 0.05A 저전류 조건에서의 농도 변화를 관찰하여 얻은 결과를 Fig. 5과 6에 각각 도시하였다. SrO와 BaO 모두 전류의 영향을 받지 않고 cathode로부터 용융염으로 용출되는 것을 알 수 있으며 이는 낮은 cathode 조성에서 Li<sub>2</sub>O 농도 변화에 의한 금속 산화물의 반응 및 용출이 독립적임을 의미한다.

일체형 cathode의 전기 환원 공정에서 AM, AEM의 용출은 Li<sup>+</sup>의 환원 전위와 Cs<sup>+</sup>, Sr<sup>+2</sup>, Ba<sup>+2</sup>의 환원 전위 사이에서 전류 밀도에 의존하지 않으며 고농도 SrO는 오히려 용출 속도가 증가하였다. 이는 Li<sub>2</sub>O 농도에 SrO의 용출이 크게 의존하기 때문이며 실제 사용후핵연료에서와 같이 낮은 조성에서 AM, AEM 산화물들은 전류 효율의 저하 없이 용융염으로 용출되며 이는 전기장에 의한 금속 이온의 이동 보다 농도차에 의한 금속 이온의 확산 분포가 우세하게 일어난다는 것을 나타낸다.

## 5. 결론

산화물 사용후핵연료의 전기화학적 금속전환 공정의 일체형 cathode에 존재하는 AM, AEM 산화물은 용융 LiCl에 용해되어 제거된다. 용융 LiCl-3wt% Li<sub>2</sub>O에서 반정량적인 방법에 의해 측정된 Cs, Sr, Ba의 환원 전위는 Li에 비해 cathodic한 것으로 측정되었으며 금속 전환 공정에서 공정 조건에 따라 금속 전환 과정에 저해를 가져오지 않을 것으로 판단되었다. 높은 전류 영역에서 Cs<sub>2</sub>O의 용출은 전류의 영향을 받지 않았으며 SrO는 Li<sub>2</sub>O 농도의 감소와 cathode 형태 변화에 의해 용융염으로의 물질 전달 속도가 증가하는 것으로 관찰되었다. 낮은 전류 영역에서는 금속 산화물의 용출이 전류 밀도에 대해 독립적임을 확인하였다.

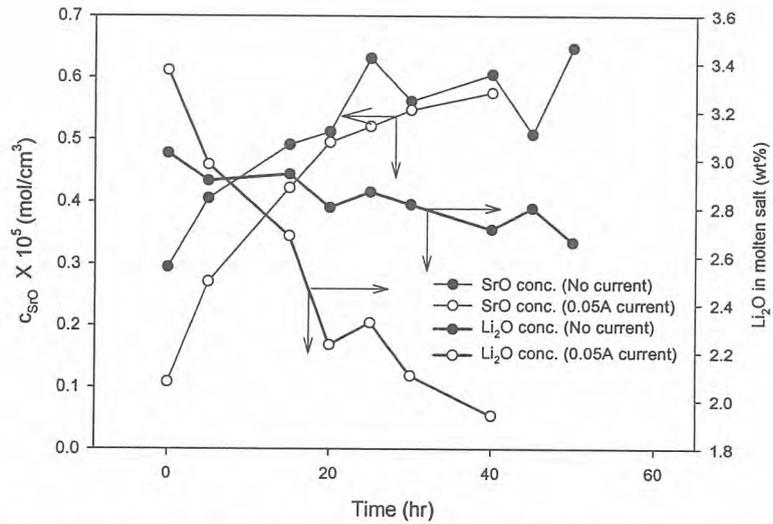


Fig. 5. Concentration changes of SrO and Li<sub>2</sub>O in molten LiCl from 2wt% cathode at no current and 0.05A constant current conditions

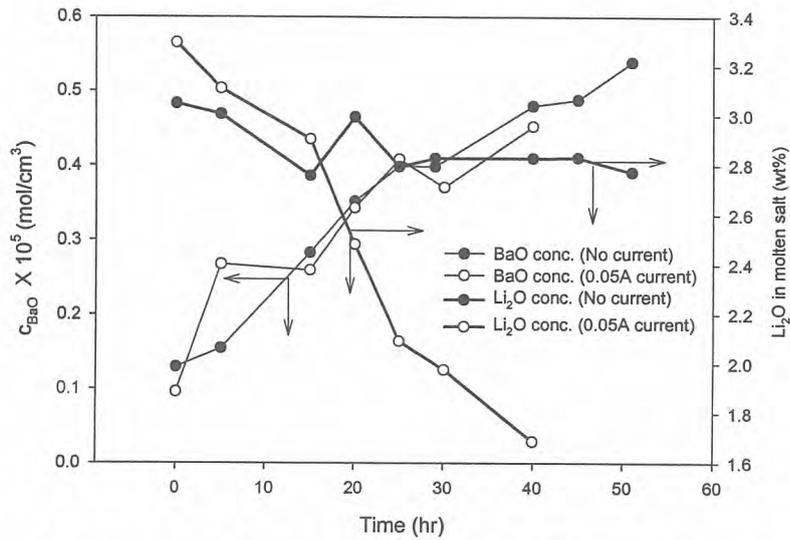


Fig. 6. Concentration changes of BaO and Li<sub>2</sub>O in molten LiCl from 2wt% cathode at no current and 0.05A constant current conditions

일체형 cathode에서의 AM, AEM 산화물의 거동 분석을 통해 실제 산화물 사용후핵연료에서와 같이 AM, AEM의 낮은 조성에서는 AM, AEM 원소들이 금속 전환 공정에 저해를 일으키지 않으며 농도 차이에 의한 물질 전달이 전기장에 의한 금속원소의 이동 보다 우세하게 발생하는 것으로 판단된다. 이에 따라 전기 환원에 의한 금속 전환 공정 종료 시점에서는 리튬 금속 환원 공정에서와 동일하게 AM, AEM 원소의 대부분은 일체형 cathode로 부터 용출 되어 용융 LiCl에 분포하게 된다는 것을 실험적으로 결론지을 수 있었다.

#### 참고 문헌

- [1] M. Fujie, Y. Shoji, and T. Kobayashi, Proceedings of GLOBAL '95, (1995).

- [2] P. W. Atkins, "Physical Chemistry", 7th ed., Oxford, New York, (2002).
- [3] G. Z. Chen, D. J. Fray, and T. W. Farthing, Nature, 407, 361 (2000).
- [4] M. Kurata, M. Iizuka, T. Inoue, J. Serp, M. Ougier, and J.-P. Glatz, Korea-Japan Workshop on Nuclear Pyroprocessing, Seoul, October 23, (2003).
- [5] S. X. Li, S. D. Herrmann, M. F. Simpson, and D. R. Wahlquist, Proceedings of GLOBAL 2003, (2003).

## Post Process Associated with the Electrochemical Reduction Process - Smelting of a Metal Product and Solidification of a Molten Salt

전해환원공정 관련 후처리공정 - 금속전환체 Smelting 및 용융염 고화

Jin-Mok Hur, Myoung-Soo Jeong, Won-kyoung Lee, Soo-Haeng Cho,  
Chung-Seok Seo, and Seong-Won Park

Korea Atomic Energy Research Institute, P.O.Box 105, Yuseong, Daejeon, 305-353

허진목, 정명수, 이원경, 조수행, 서중석, 박성원  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

### Abstract

The processes for the smelting of a metal product and the solidification of a molten salt were developed respectively to treat the products from the electrochemical reduction process. The method for the separation of a metal product in a magnesia container from the residual salt and consequent smelting of it to a metal ingot by the multi step heating in vacuum was proposed. The new concept using a dual vessel and a salt valve was also suggested for the solidification of a molten salt into a regular size and shape which is suitable for the transport and measurement. The results obtained in the study will be applied to the design of the hot cell demonstration system of the Advanced Spent Fuel Conditioning Process of KAERI.

**Key Words** : Smelting, Metal Ingot, Molten Salt, Solidification, Magnesia

### 요약

전해환원공정에서 발생하는 금속전환체와 용융염을 각각 smelting하고 고화시키는 공정을 개발하였다. 진공조건에서 다단계 가열에 의하여 마그네시아 용기에 담긴 금속전환체를 잔류 용융염과 분리하고 용융시켜 금속 잉곳을 제조하는 운전방법을 제시하는 한편, 금속전환체의 분석을 수행하였다. 전해환원 공정에서 감압이송된 용융염의 경우에는 이송과 계량에 적합하게 이중 용기와 염 밸브를 사용하여 일정 형상과 크기로 고화하는 신개념을 도출하였다. 본 연구의 결과는 한국원자력연구소 Advanced Spent Fuel Conditioning Process의 hot cell 실증시스템 설계에 적용되었다.

**중심단어** : Smelting, 금속 잉곳, 용융염, 고화, 마그네시아

### 1. 서론

한국원자력연구소에서는 1997년 이래로 사용후핵연료 관리·이용 기술개발(Advanced Spent

Fuel Conditioning Process(ACP))에 대한 연구를 수행하고 있다 [1]. 공정의 개념은 산화물 형태 사용후핵연료를 고온 용융염에서 금속으로 환원시키는 과정에서 Cs, Sr 등의 고방열핵종을 염에 녹여 분리하고, 이를 통해서 사용후핵연료의 발열량, 부피 및 방사능을 1/4로 감소시키는 것이다. 최근 금속전환의 방법을 기존의 Li reduction 방법에서 LiCl-3 wt% Li<sub>2</sub>O 용융염상에서 전해환원시키는 방법으로 수정하고 2007년 hot cell 실증을 목표로 연구를 추진중이다 [2-4].

전해환원 공정의 결과물인 금속전환체는 금속 잉곳 형태로 만든 다음, 장기 저장이나 최종 처분 등의 목적에 맞게 후처리되어야 한다. 그런데 5 kgU/batch 규모의 전해장치에서 fresh U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>을 사용하여 전해환원 실험을 수 차례 수행한 결과, 금속전환체가 담긴 다공성 마그네시아 용기 내에는 ~40 wt%의 용융염이 잔류하고 있는 것으로 분석되었으며, 이 잔류 용융염은 금속전환체가 대기와 접촉하여 재산화되는 현상을 억제하는 역할을 하는 것으로 판단되었다. 그러나 금속 ingot을 제조하기 위해서는 염을 제거한 다음 용융시키는 과정이 필요하다. 본 연구에서는 전해환원장치에서 잔류염과 함께 다공성 마그네시아 용기에 담겨 이송된 금속전환체의 특성을 분석하는 한편, 금속 잉곳으로 제조하기 위한 운전조건을 제시하여 ACP hot cell 실증시스템 설계자료로 활용하고자 하였다.

전해환원 공정의 반응매질인 LiCl-Li<sub>2</sub>O 용융염에 고방열 핵종인 Cs, Sr 등이 축적되면, 용융염 처리 공정으로 이송하여 고방열 핵종을 제거한 다음, 다시 전해환원공정으로 이송하여 재사용하여야 한다. 그런데 용융염은 대기 중에서 쉽게 조해되고 용융점(무수 LiCl의 경우에는 613 °C) 이하의 온도에서는 고화되는 특성을 가지고 있다. 따라서 용융염을 취급하는 공정은 이들 측면을 고려하여 설계 및 운전되어야 한다. 선행연구에서는 고온의 저장용기에서 용융된 염을 노즐을 통하여 원기둥 모양의 형틀(mold)에 붓고 일정 시간동안 방치, 냉각시켜 염 펠렛으로 제조하는 개념을 도출하고, 50 kg LiCl/batch 규모의 용융염 재순환용 펠렛 제조장치를 설계/제작하여 성능평가를 수행하였다. 그런데 저장 용기에서의 용융염 액위가 변함에 따라 노즐에서의 용융염 배출속도가 변하고 이에 따라 염 펠렛 크기 제어가 어려운 현상이 발생하는 한편, 부식에 의해서 밸브에 의한 노즐 개폐에 지장이 발생하였다. 이에 본 연구에서는 전해환원공정이 끝난 후 용융염을 용융염 고화장치로 감압이송하여 금속전환체와 용융염의 분리를 달성한 다음, 이중 용기와 염 밸브를 사용하여 용융염을 취급이 용이한 형태로 고화시켜 재사용을 위한 이송, neutron counter를 사용한 계량, Padirac Cask를 이용한 용융염 반출 등의 단위공정에서의 용융염 취급성을 향상시키고자 하였다.

## 2. 금속전환체 Smelting

사용후핵연료의 성분은 화학적 물성에 따라 다음과 같이 네 개의 그룹으로 분류될 수 있다: (a) 우라늄과 TRU, (b) 알칼리, 알칼리 토금속, Eu, Se, Te, (c) 희토류 (REE), 그리고 (d) 귀금속 (NM). 한국원자력연구소에서 수행한 실험실 규모 (5 kgU/batch) inactive test 결과에 따르면 우라늄 산화물은 전해환원 공정에 의하여 99% 이상 우라늄 금속으로 전환될 수 있다. 귀금속의 경우에도 쉽게 금속으로 전환될 수 있을 것으로 판단된다. 고방열 핵종인 알칼리, 알칼리 토금속의 경우에는 전해환원 과정에서 염화물로 전환되어 염상에 존재하게 되어 금속전환체로부터 분리되게 된다. 그런데 전해환원과정에서 사용후핵연료는 다공성 마그네시아 용기 내에 위치하게 되는데, 상기하였듯이 다공성 마그네시아 용기 내에는 ~40 wt%의 용융염이 잔류하므로 금속전환체의 smelting 과정에서는 전해환원 공정의 반응매질인 LiCl과 Li<sub>2</sub>O 뿐만 아니라 CsCl과 SrCl<sub>2</sub> 등의 휘발에 대해서도 고려하여야만 한다. 희토류의 경우에는 LiCl 용융염에서의 낮은 용해도 때문에 산화물 형태로 금속전환체에 동반하게 되는 것으로 판단된다.

Smelting에 영향을 미칠 것으로 추정되는 주요 대상물의 녹는점을 Table 1에 나타내었다. 알칼리와 알칼리 토금속의 염화물이 금속전환체와 그와 동반한 희토류 산화물보다 낮은 온도에서 용

용됨을 알 수 있다. 고온 진공가열에 의하여 염화물을 금속전환체와 쉽게 분리한 다음 염 트랩에 가두어 후속처리공정으로 이송할 수 있을 것으로 판단되었다. 이상기체를 가정한다면 휘발되는 양은 아래 식에 의해서 계산할 수 있다.

$$W = cP\left(\frac{M}{2\pi RT}\right)^{1/2} = 0.0583P\left(\frac{M}{T}\right)^{1/2}$$

P : vapor pressure at T (torr)

M : molecular weight (g/mol)

T : temperature (K)

W : 초당 단위 면적 1 cm<sup>2</sup>에 부딪치는 기체량 (g · cm<sup>-2</sup> · sec<sup>-1</sup>)

Table 1. Melting Points of the Key Target Materials of Smelting [5]

U	Am	CsCl	SrCl <sub>2</sub>	LiCl	Li <sub>2</sub> O	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
1132 °C	1173 °C	646 °C	868 °C	613 °C	1570 °C	>2000 °C

문헌값을 바탕으로 계산한 LiCl과 CsCl의 증기압 변화를 Fig. 1에 나타내었다 [6]. SrCl<sub>2</sub>의 증기압 변화에 대해서는 알려진 자료를 찾을 수 없었다. 950 °C에서의 LiCl과 CsCl의 증기압이 각각 12.32 torr와 30.68 torr이므로, smelting의 1단계 과정으로 950 °C의 온도에서 10 torr 이하의 진공을 유지한다면 염의 대부분을 차지하는 LiCl과 고방열핵종인 CsCl를 금속전환체로부터 제거할 수 있음을 알 수 있다.

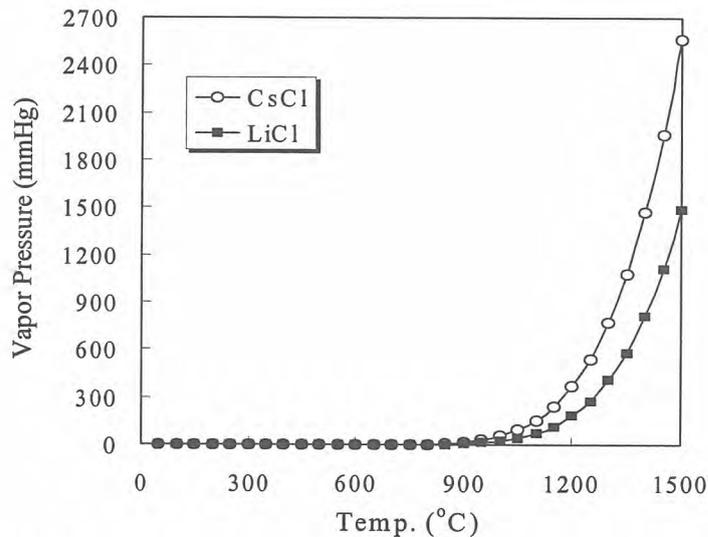


Fig. 1. Variation of vapor pressure of LiCl and CsCl as a function of temperature.

금속전환체의 경우에는 녹는점 이상의 온도에서 순조롭게 용해되어 mold에서 잉곳 형태로 제조될 것으로 기대되었다. 그런데 사용후핵연료에 포함된 악티나이드 원소 중 Am은 기상 기저상태에서 매우 안정한 5f<sup>7</sup>7s<sup>2</sup> configuration을 가지므로 고온에서 용융할 경우 상당량이 휘발될 수 있다. Trybus의 보고에 따르면, T>1400 °C와 진공 ~670 Pa의 조건으로 ANL-W에서 수행한 U-20% Pu-10% Zr-2.1% Am-1.3% Np의 injection casting에서 ~40%의 Am 손실이 관찰되었다 [7]. 따라서 1단계 과정으로 염화물을 휘발시킨 다음, 2단계로 1150 °C의 온도에서 Am 등의 휘발을 막기 위하여 상압에 약간 못 미치는 압력에서 금속전환체의 용융을 진행시켜야만 한다고 판단

된다. 그런데 휘발된 염은 다공성 마그네시아 용기의 기공을 통하여 smelter 외부로 배출되어 염 트랩에 모이게 된다. 본 연구에서는 surrogate 물질을 사용하여 Am 등의 휘발을 모사하는 한편, 염의 휘발이 다공성 마그네시아 용기에 미치는 영향에 대해서도 분석을 진행 중이다.

0.1 N HCl과 페놀프탈레인 지시약을 사용한 적정법으로 금속전환체에 포함된  $\text{Li}_2\text{O}$ 의 양을 분석한 결과,  $\text{Li}_2\text{O}$ 가 염의 ~20 wt%를 차지함을 알 수 있었다. 전해환원 반응에서 염내  $\text{Li}_2\text{O}$  농도는 3 wt% 미만이었다. 따라서 금속전환체와 동반한 잔류염에 존재하는  $\text{Li}_2\text{O}$  대부분은 전해환원 반응 과정에서 과량으로 생성되었던 Li 금속이 산소와 접촉하여 생성되었을 것으로 유추되었다. Table 1에서 알 수 있듯이 산화물 형태로 금속전환체와 동반하는 원소들은 녹는점이 매우 높으므로 1400 °C 이하로 설정하고 있는 금속전환체 용융온도에서는 용융되지 못하고 고체 상태로 존재하게 된다. U의 밀도가 19.07 g/cm<sup>3</sup>인데 반해서  $\text{Li}_2\text{O}$ 와  $\text{La}_2\text{O}_3$ 의 밀도는 각각 2.013 g/cm<sup>3</sup>와 6.51 g/cm<sup>3</sup>에 불과하다. 따라서 smelting 후  $\text{Li}_2\text{O}$ 와 희토류 산화물은 금속 잉곳 상부에 slag로 존재하게 된다.

### 3. 용융염 고화

전해환원 장치에서 발생된 혼합용융염은 라인히터가 장착된 이송관과 고온 글로브 밸브로 이루어진 이송시스템을 이용하여 용융염 고화장치의 저장용기에 감압이송되게 된다. 선행연구에서는 중력에 의하여 노즐을 통하여 저장용기로부터 일정량 배출되는 고온 용융염이 원기둥 모양의 형틀에서 일정 시간동안 냉각되어 실린더 모양의 펠렛으로 고화되게 하였다. 그런데 두 가지 개선 보완 사항이 도출되었다. 즉, 1) 저장용기에서의 용융염 액위 변화에 따른 펠렛 크기 변화, 2) 염 배출 밸브 (stopper)를 닫았음에도 불구하고 관찰되는 노즐에서의 염 누출이다. 본 연구에서는 이를 해결하기 위하여 이중용기와 염밸브를 사용한 새로운 용융염 고화장치 개념을 도출하였다.

용융염 액위 변화에 따른 고화염 크기 변화에 대해서 살펴보면 다음과 같다. 용융염의 표면장력과 점도 영향을 무시한다면 노즐에서 용융염이 배출되는 속도는 에너지 보존법칙에서 유도된 베르누이 정리에 의해서 아래와 같이 계산 가능하다. 유체의 레이놀즈 수가 크면 contraction coefficient  $c$ 는 노즐의 형상에 의존하게 되고, 원형 노즐의 경우 노즐직경 ( $d$ )와 입구부의 직경 ( $D$ )의 비가 0.3 이하이면  $c$ 는 0.62가 된다. 50 kg의 용융염을 펠렛으로 제조한 선행연구의 경우, 전해환원 장치로부터 용융염이 저장용기에 이송된 순간의 용융염 액위는 37 cm이었다. 노즐부 길이가 12 cm이었으므로  $h_1$ 은 0.49 m가 된다. 윗 식에 의해서 노즐에서의 용융염 배출속도를 구하면,  $V_2$ 는 1.9 m/sec가 된다. 그런데 펠렛 제조공정이 진행됨에 따라 저장용기에서의 용융염 액위는 낮아졌고 따라서  $V_2$ 는  $h_1$ 의 공급근에 비례하여 감소하였다. 최종적으로 노즐부에만 용융염이 차 있는 경우에는  $h_1$ 이 12 cm이므로  $V_2$ 는 0.95 m/sec이고, 따라서 제조된 펠렛의 크기가  $V_2$ 는 1.9 m/sec인 경우에 비해서 절반에 불과하게 되었다.

$$\frac{V_1^2}{2g} + h_1 = \frac{V_2^2}{2g}$$

$$V_2 = c\sqrt{2gh_1}$$

$V_1$  : 저장용기 액위면에서의 용융염속도 = 0

$V_2$  : 노즐에서의 용융염 배출속도

$h_1$  : 저장용기 액위면 높이

$c$  : contraction coefficient

본 연구에서는 이송 및 계량에 적합하게 고화되는 염의 양을 일정하게 조절하는 방안으로 이중 용기를 사용하는 개념을 도출하였다. Fig. 2에 그 개략도를 나타내었다. 운전절차를 간략히 살펴보면 다음과 같다.

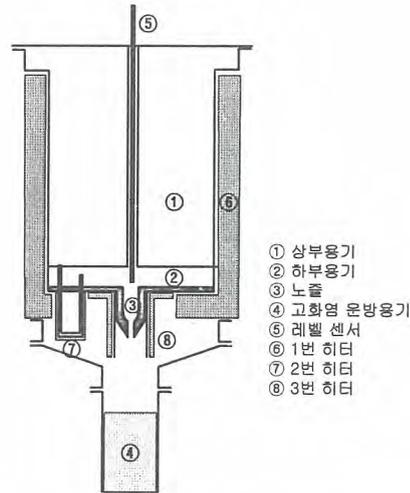


Fig. 2. Schematic diagram of the apparatus for the solidification of a molten salt.

전해환원 장치로부터 이송된 염은 용융된 상태로 상부용기에 저장되게 된다. 이때 2번 히터와 3번 히터는 off 상태에 있다. 그 다음 단계로 2번 히터를 작동하여 상부용기와 하부용기 사이 연결도관의 온도를 염의 용융점 이상으로 올리게 되면 액위를 맞추기 위해서 상부용기로부터 하부용기로 용융염이 이동하게 된다. 하부용기의 크기는 고화염 운반용기의 체적을 고려하여 설정되어 있다. 2번 히터를 off 시켜 상부와 하부 용기 사이 연결도관의 온도를 염의 용융점 이하로 낮춘 다음 3번 히터를 작동시키면 하부 용기에 채워진 염만이 노즐을 통하여 고화염 운반용기로 이송되게 된다.

노즐부의 용융염 배출밸브로 에어실린더로 구동되는 stopper를 사용한 선행연구에서는 앞서 기술하였듯이 염누출이 관찰되었다. 그 원인으로서는 불순물에 의한 밸브면의 손상 또는 고온 용융염과 접촉한 밸브와 노즐 부위에서의 부식 발생 등을 들 수 있다. 이에 본 연구에서는 염의 녹는점을 이용한 염밸브 개념을 도입하였다. 즉, 노즐부의 온도를 염의 녹는점 이상으로 유지하면 노즐이 열리고, 녹는점 이하로 유지하면 노즐이 닫히는 것이다. 본 개념의 타당성을 확인하기 위해서 Oak Ridge National Laboratory에서 개발한 HEATING 7 프로그램을 사용하여 열해석을 수행하였다. 원통형 노즐에서 열분포가 대칭적이라는 점을 고려하여 r-z 2차원 좌표를 사용하였다. 본 해석에서 사용한 노즐의 치수 및 경계조건을 Fig. 3에 나타내었다. 초기에 650 °C의 LiCl 용융염이 STS 304 재질의 노즐을 채우고 있고, 경계에서는 아래에 나타낸 자연대류와 복사에 의해서 열전달이 일어난다고 가정하였다.

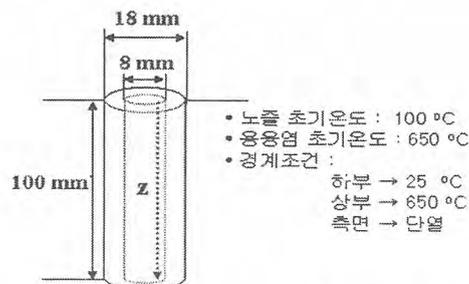


Fig. 3. Schematic diagram of the nozzle used for the modeling by HEATING 7.

- Natural convection

$$h_{nc} = 1.80(\Delta T)^{0.250}$$

- Radiation

$$q = A\sigma\varepsilon(T_s^4 - T_a^4)$$

q : heat flow (W)

A : heat transfer area (m<sup>2</sup>)

σ : Stefan-Boltzmann constant (=5.669 × 10<sup>-8</sup> W/m<sup>2</sup>K<sup>4</sup>)

ε : emissivity of surface material

T<sub>s</sub> : surface temperature (K)

T<sub>a</sub> : ambient temperature (K)

염밸브에서 r = 2 mm인 지점의 염 온도변화를 z축 방향으로 시간의 함수로 조사하여 Fig. 4에 나타내었다. 5 초 경과후 노즐 하단부에서 염이 고화됨을 알 수 있다. 이는 LiCl 염의 용융에 4.75 kcal/mole의 상대적으로 큰 열량이 소모됨에 기인한다. 염고화 시간을 줄이기 위하여 노즐의 길이, 노즐의 두께, 경계조건 등을 변화시키면서 전산모사를 수행한 결과, 노즐 길이보다는 STS 304 재질의 노즐 두께를 크게 하는 것이 염고화 시간 단축에 보다 효과적임을 확인하였다. 이는 STS 304의 전도도가 ~20 Wm<sup>-1</sup>K<sup>-1</sup>인데 반해서 694 °C의 LiCl 열전도도가 0.567 Wm<sup>-1</sup>K<sup>-1</sup>로 보고되고 있는 데서 알 수 있듯이 열전달이 주로 STS를 통해서 이루어지기 때문이라고 해석된다 [8].

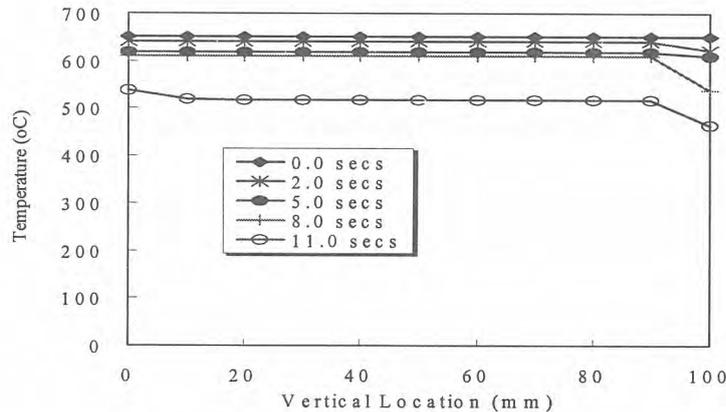


Fig. 4. Temperature variation in a salt valve calculated by using HEATING 7.

ACP 실증을 위하여 다단히터와 염밸브를 사용하여 용융염을 한번에 모두 처리할 수 있는 장치를 개발 중이다. 그 장치의 안정성 및 신뢰성을 높이기 위하여 염밸브의 특성을 보다 정확하게 모사할 수 있는 모델개발 연구가 반응시스템 전체의 열해석과 더불어 진행 중이다.

#### 4. 결 론

전해환원공정에서 발생하는 금속전환체와 용융염을 각각 smelting하고 고화시키는 공정을 개발하였다. 사용후핵연료의 smelting 과정에서 염화물은 휘발되어 금속전환체와 분리되는 반면 희토류 산화물 및 Li<sub>2</sub>O는 금속 ingot 상부에 slag으로 존재하게 됨을 밝히는 한편, 다단계 진공 가열

에 기반한 smelting 운전조건을 설정하였다. 또한 전해환원 공정에서 감압이송된 용융염을 이송과 계량에 적합하게 이중 용기와 염밸브를 사용하여 일정 형상과 크기로 고화하는 신개념을 도출하고 장치 설계조건을 도출하기 위하여 전산모사를 통하여 열해석을 수행하였다. 본 연구의 결과는 한국원자력연구소 Advanced Spent Fuel Conditioning Process의 hot cell 실증시스템 설계에 적용되었다.

## 감사의 글

본 논문은 과학기술부의 원자력 중장기 연구개발 사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

## 5. 참고문헌

1. S. W. PARK et al., "Development of Advanced Spent Fuel Conditioning Process", The 3rd Korea-China Joint Workshop on Nuclear Waste Management (2002).
2. J. M. Hur, C. S. Seo, S. S. Hong, D. S. Kang, and S. W. Park, "Metallization of  $U_3O_8$  via Catalytic Electrochemical Reduction with  $Li_2O$  in  $LiCl$  Molten Salt", *React. Kinet. Catal. Lett.*, **80**, 217 (2003).
3. 오승철, 서중석, 허진목, 박성원, "A Study on the Electrolytic Reduction Mechanism of Uranium Oxide in a  $LiCl-Li_2O$  Molten Salt", 한국방사성폐기물학회지 **1(1)**, 25 (2003).
4. 오승철, 허진목, 서중석, 홍순석, 이원경, 박성원, "5kg  $U_3O_8$ /Batch Scale Mock-up Test for the Electrochemical Reduction of Spent Oxide Fuel" 한국방사성폐기물학회지 **1(1)**, 47 (2003).
5. S. Budavari et al., "The Merck Index", 12th edition, Merck & Co., Inc, 1996.
6. O. Kubaschewski and C. B. Alcock, "Metallurgical Thermochemistry", 5th edition, Pergamon Press, 1979.
7. C. L. Trybus, "Injection casting of U-Zr-Mn, surrogate alloy for U-Pu-Zr-Am-Np" **224**, 305, *J. of Nuclear Materials*, (1995).
8. Y. Nagasaka et al., "Experimental Determination of the Thermal Diffusivity of Molten Alkali Halides by the Forced Rayleigh Scattering Method. I. Molten  $LiCl$ ,  $NaCl$ ,  $KCl$ ,  $RbCl$ , and  $CsCl$ ", **13(4)**, 555, *Int. J. Thermophys.*, (1992).

## 고온용융염계 산화분위기에서 초합금의 부식거동 Corrosion Behavior of Superalloys in Hot Molten Salt under Oxidation Atmosphere

조수행, 임종호, 정준호, 이원경, 오승철, 박성원  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

### Abstract

As a part of assessment of the structural material for the molten salt handling system, corrosion behavior of Inconel 718, X-750, Haynes 75 and Haynes 263 alloys in the molten salt of LiCl-Li<sub>2</sub>O-O<sub>2</sub> was investigated in the range of temperature; 650°C, time; 24 ~ 168h, Li<sub>2</sub>O; 3wt%, mixed gas; Ar-10%O<sub>2</sub>. In the molten salt of LiCl-Li<sub>2</sub>O-O<sub>2</sub>, the order corrosion rate was Haynes 263 < Haynes 75 < Inconel X-750 < Inconel 718. Haynes 263 alloy showed the highest corrosion resistance among the examined alloys. Corrosion products of alloys were as follows: Haynes 75; Cr<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, LiNiO<sub>2</sub>, Li<sub>2</sub>NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, Inconel 718; Cr<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, Haynes 263; Li(Ni,Co)O<sub>2</sub>, NiCr<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, LiTiO<sub>2</sub>, Inconel X-750; Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, FeNi<sub>3</sub>, (Al,Nb,Ti)O<sub>2</sub>. Haynes 263 showed local corrosion behavior and Haynes 75, Inconel 718 and Inconel X-750 showed uniform corrosion behavior.

**Key Words** : Molten Salt Corrosion, High Temperature Corrosion, Molt Salt

### 요 약

LiCl-Li<sub>2</sub>O-O<sub>2</sub> 용융염계에서 용융염 취급장치의 구조재료를 위한 평가의 일환으로 Inconel 718, X-750, Haynes 75, 263 합금의 부식거동을 분위기온도; 650°C, 부식시간; 24 ~ 168h, Li<sub>2</sub>O농도; 3wt%, 혼합가스농도; Ar-10%O<sub>2</sub>에서 조사하였다. LiCl-Li<sub>2</sub>O-O<sub>2</sub> 용융염계에서 부식속도는 Haynes 263 < Haynes 75 < Inconel X-750 < Inconel 718 순서로 나타났으며, Haynes 263 합금이 가장 우수한 내부식성을 나타내었다. Haynes 75의 부식생성물은 Cr<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, LiNiO<sub>2</sub>, Li<sub>2</sub>NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, Inconel 718의 부식생성물은 Cr<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 및 NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>이며 Haynes 263은 Li(Ni,Co)O<sub>2</sub>, NiCr<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 및 LiTiO<sub>2</sub>, Inconel X-750은 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, FeNi<sub>3</sub>, (Al,Nb,Ti)O<sub>2</sub>의 부식생성물을 나타내었다. Haynes 263은 국부부식의 거동을 보이는 반면, Haynes 75, Inconel 718 및 Inconel X-750은 전면 부식 거동을 나타내었다.

**중심단어** : 용융염부식, 고온부식, 용융염

### 1. 서 론

용융염은 수용액과는 달리 비교적 새로 알려진 용매이며, 금속화합물의 용해 이외에도 고온에서 증기압이 낮고 조업온도에서 액상으로 존재하며 전기화학적, 열적으로 안정하기 때문에 금속제조

와 전기화학분야에 널리 응용되고 있다. 특히 최근에 와서는 제트엔진, 연료전지, 촉매, 태양에너지 그리고 금속정제 등의 기술분야에서 관심의 대상이 되고 있다<sup>1-3)</sup>. 따라서 이러한 고온 용융염을 취급하는 기기 및 구조재료의 부식에 대한 연구도 지속적으로 진행되어 왔다. 그 중 연료전지에서는 주 구성물인 용융탄산염과 금속 피복판 사이의 부식에 관한 연구<sup>4,5)</sup>와 염화물계 용융염부식에 관한 연구<sup>6-8)</sup>가 보고되고 있다. 사용후핵연료 차세대관리공정은 LiCl-Li<sub>2</sub>O 용융염계에서 산화우라늄이 우라늄 메탈로 환원되는 공정이며, 또한 anode에서 산소가 발생하는 산화성분위기이기 때문에 이러한 공정운전조건에서 용융염 취급 장치재료로서의 최적 재료 도출의 일환으로 기존의 오스테나이트 합금인 Inconel 718, Inconel X-750, Haynes 75, 263을 선정하여 용융염 LiCl-Li<sub>2</sub>O계 산화성분위기에서 부식시험을 수행하였다.

## 2. 실험방법

본 연구에 사용한 부식시험재료는 상용의 Ni-base 합금인 Inconel 718, Inconel X-750, Haynes 75, 263이며, 이들의 화학조성을 Table 1에 나타내었다. 부식시험 시편은 내부결함 제거와 탄화물 분해를 위해 1,150℃에서 1 시간동안 열처리 후 수냉 한 판상을 15(W) x 70(H) x 2.0 mm(T)의 크기로 절단한 후 950℃에서 1 시간동안 안정화 처리를 행하였다. 부식시험은 고온 전기로내에 혼합용융염 LiCl-Li<sub>2</sub>O를 MgO 도가니에 넣고 시편을 침적시켜 Ar-10%O<sub>2</sub>를 주입하는 분위기에서 부식시험을 행하였다. 시편은 부식시험 직전에 에머리 페이퍼 2000까지 연마하여 증류수와 아세톤으로 탈지시킨 후 건조시켜 사용하였다. 부식환경온도는 650℃를 선택하였으며, 부식시간은 24 ~ 168시간, Li<sub>2</sub>O의 농도는 3% 무게중량, 혼합가스의 농도는 Ar-10%O<sub>2</sub>로 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	Ni	Cr	Fe	Co	C	Si	Mn	P	S	Al	Ti	Nb	MoI
Inconel X-750	71.90	15.39	7.89	0.36	0.03	0.10	0.10	<0.005	0.002	0.54	2.41	0.94	-
Haynes 263	51.35	20.0	0.50	19.2	0.05	0.13	0.10	<0.005	0.0001	0.45	2.39	-	5.8
Haynes 75	74.80	20.3	3.28	<0.1	0.12	0.47	0.29	<0.005	<0.002	0.22	0.41	<0.05	<0.05
Inconel 718	54.12	17.88	17.22	0.22	0.02	0.11	0.1	0.007	0.001	0.51	0.99	5.42	2.97

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 부식속도 및 부식생성물

Fig. 1에는 650℃, 72시간 및 168시간동안 부식실험 한 Haynes 75, 263, Inconel X-750 및 Inconel 718 합금의 무게변화를 나타낸 것이다. Fig. 1에서 보는 바와 같이 반응시간이 증가함에 따라 무게감소가 증가하는 것으로 나타났다. 반응시간 72시간 및 168시간의 조건에서 Inconel 718 합금이 가장 무게 감소율이 크게 나타났으며, Haynes 263 합금이 가장 낮은 무게 감소율로 보아

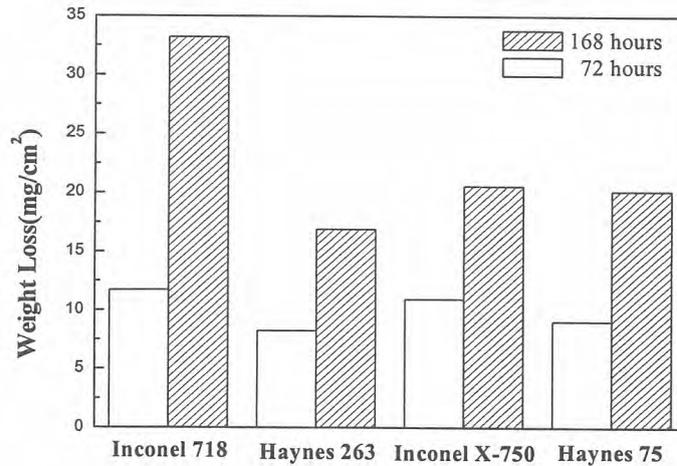


Fig. 1. Weigh loss of alloys corroded at 650°C for 72 and 168 hours.

가장 우수한 내부식성의 경향을 보였다. Fig. 2에 시편표면에서 박리된 부식침전물의 X-선 회절 분석 결과를 나타내었다. 일반적으로 고온에서 금속의 부식현상은 금속표면에 생기는 부식생성물의 종류와 성질에 큰 영향을 받는 것으로 알려져 있다. Fig. 2에 시편표면에서 박리된 부식침전물의 X-선 회절분석 결과를 나타내었다. Fig. 2의 (a)로부터 72시간동안 부식실험 한 Haynes 75의 부식생성물은  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  및  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ 로 나타났으며, 168시간에서는  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  이외에  $\text{LiNiO}_2$  및  $\text{Li}_2\text{NiFe}_2\text{O}_4$ 의 피크가 관찰되었다. Ni-Cr-Fe계 합금에서 가장 안정한 산화물은 Cr계 산화물이므로 초기에 생성되는 산화물은  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 를 예상할 수 있다. 또한 산화물내에서 측정된 금속이온의 확산계수가  $\text{Fe}^{3+} > \text{Fe}^{2+} > \text{Ni}^{2+} > \text{Cr}^{3+}$ 이므로<sup>9)</sup>, 초기 생성된  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 층을 통해 Fe 및 Ni 이온이 외부로 확산하여 가장 외측에 Ni-Fe 스피넬형 산화물을 생성하는 것으로 생각된다. 따라서 72시간 경우 Haynes 75의 부식생성물은 외측으로부터  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ 를 이루고 그 직하에  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 를 형성하고 있는 것으로 판단된다. 그러나 168시간 경우 반응시간이 길어짐에 따라 산화피막의 crack면을 따라 용융염 중에 양이온으로 존재하는  $\text{Li}^+$ 이온이 산화물층을 통해 확산하여 스피넬형 산화물/ $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 계면에  $\text{LiNiO}_2$  및  $\text{Li}_2\text{NiFe}_2\text{O}_4$ 의 상이  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 와 함께 검출되는 것으로 판단된다. Fig. 2의 (b)는 Inconel 718 합금의 72시간 및 168시간동안 부식실험 한 부식생성물은  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  및  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ 로 나타났다. Fig. 2의 (c)는 Inconel X-750 합금의 72시간동안 부식실험 한 부식생성물은  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ ,  $\text{FeNi}_3$ 로 나타났으며, 168시간동안 부식실험 한 부식생성물은  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ ,  $(\text{Al}, \text{Nb}, \text{Ti})\text{O}_2$ 로 나타났다. Fig. 2의 (d)는 Haynes 263 합금의 72시간동안에서의 부식생성물은  $\text{Li}(\text{Ni}, \text{Co})\text{O}_2$  및  $\text{NiCr}_2\text{O}_4$ 의 피크가 관찰되었으며, 168시간 경우  $\text{LiTiO}_2$  및  $\text{Li}(\text{Ni}, \text{Co})\text{O}_2$ 의 부식생성물로 판명되었다.

### 3.2 부식 거동

Fig. 3에는 650°C, 168시간동안 부식실험 한 각 합금의 단면 SEM 조직을 나타내었다. Fig. 3에서 보는 바와 같이 Haynes 263 합금은 부식층의 두께가 매우 얇고 국부부식 거동을 보이고 있으며, 이는 위에서 언급한 부식속도의 결과와 일치하고 있다. Haynes 75, Inconel 718 및 Inconel X-750의 경우 부식층이 표면에서부터 고르게 발달되어있는 전면부식거동을 나타내었다. Fig. 4는 650°C, 72시간동안 부식실험 한 Haynes 75의 외부부식층이 박리되기 전의 부식층 단면 SEM 조직과 주요 구성원소 분석결과를 나타내었다. 부식층은 크게 두 부분으로 구분되며, 표면으로부터 형성된 부식층은 Cr 또는 Fe의 산화층으로 이루어져 있다. 따라서 Fig. 2의 (a)에 나타난 부식생성

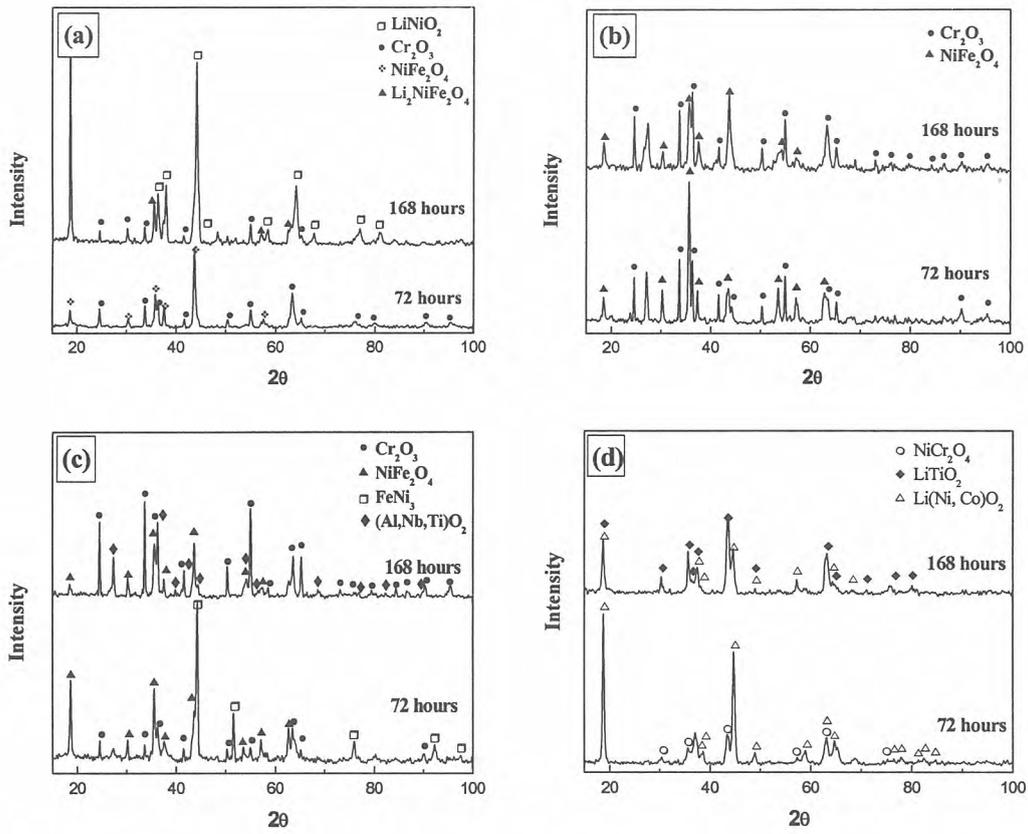


Fig. 2. XRD patterns of corrosion products of (a) Haynes 75, (b) Inconel 718, (c) Inconel X-750 and (d) Haynes 263 corroded at 650°C for 72 and 168 hours.

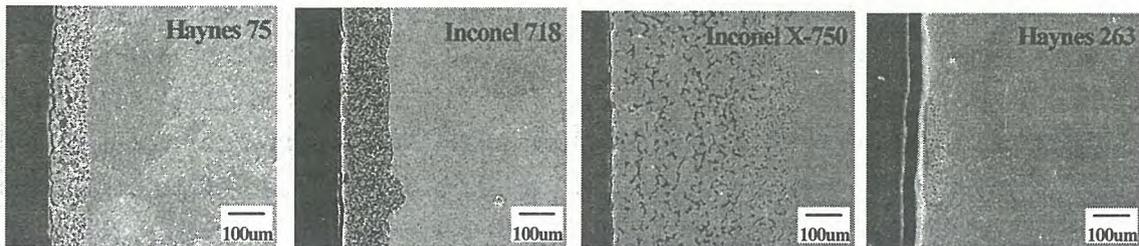


Fig. 3. Cross-sectional SEM images of alloys corroded at 650°C for 168 hours.

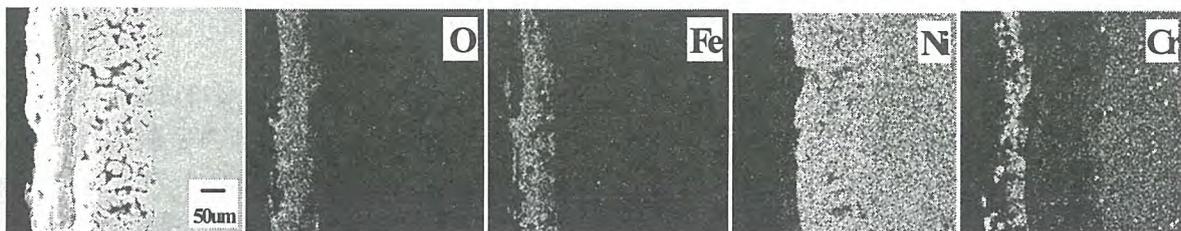


Fig. 4. Cross-sectional SEM image and maps of O, Fe, Ni and Cr of Haynes 75 corroded at 650°C for 72 hours.

물과 거의 일치하고 있음을 확인할 수 있다. 내부부식층의 경우 상당량의 Cr 및 Fe의 고갈현상과 Ni성분의 농축현상이 관찰되는데, Cr의 경우 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 산화피막을 형성하면서 산화물 형성을 위해 상당량의 Cr이 소모되어 내부 산화물에는 Cr 고갈지역이 관찰되었다. Fe의 경우 기지 금속내 격자 간 확산속도보다 산화층을 통한 외부확산속도가 빠르므로 내부 산화층에는 상당량이 고갈된 것으로 나타났다. 한편, Ni의 경우 산화층간의 계면이나, 산화층/금속 계면에 농축되어 산화속도를 감소시키는 원소로 알려져 있는데<sup>10)</sup>, 내부 산화층의 Ni성분의 농축현상으로부터 Ni는 산화속도를 감소시키는 것으로 생각된다. 따라서 고온 내부식성을 향상시키기 위해서는 임계함량 이상의 Ni성분이 첨가되어야 할 것으로 생각된다. Fig. 5에 650℃, 72시간동안 부식실험 한 Inconel 718의 단면 SEM 조직 및 주요 구성원소 분석결과를 나타내었다. Fig. 5에서 보는 바와 같이 부식층은 주로 Cr, Fe 및 Ni로 이루어진 산화물로 Fig. 2의 (b)에 나타낸 부식생성물과 잘 일치하고 있다. Nb 및 Mo는 Cr산화물 직하에서 농축되어 있음이 관찰되었다. 즉, Nb 및 Mo는 산화층/금속계면에서 내부피막에 농축되어 기지의 Cr이온 확산을 억제하여 산화속도를 감소시키는 원소로 판단된다. Fig. 6에는 650℃, 168시간동안 부식실험 한 Inconel X-750 합금의 부식층이 박리되지 않은 단면 SEM 조직과 EDS 분석결과를 나타내었다. Fig. 2의 결과에서 보면, Inconel X-750의 부식생성물로 Ni, Fe 및 Cr계 및 (Al, Ti, Nb)계 산화물로 판명되었는데, Fig. 6의 표면 부식층 EDS분석 결과와 일치하고 있음을 알 수 있다. Fig. 7에는 650℃, 168시간동안 부식실험 한 Haynes 263 합금의 박리 전 부식층의 단면 SEM 조직과 원소분포 결과를 나타내었다. Fig. 7에서 보는 바와 같이 Ni, Co, Cr, Ti 산화물을 형성하고 있으며, 이는 Fig. 2의 결과와 거의 일치하고 있음을 알 수 있다.

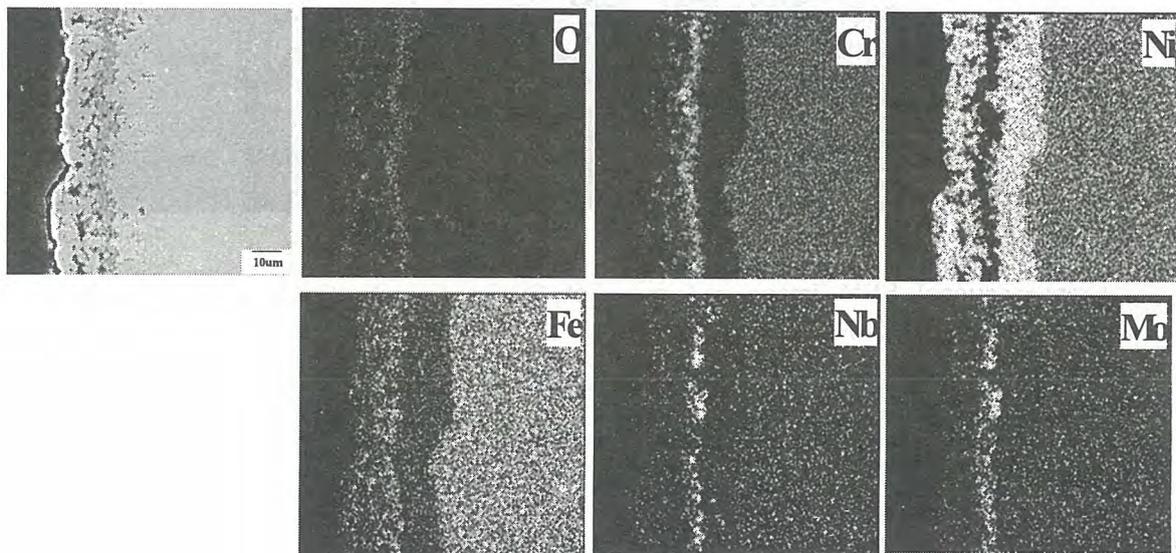
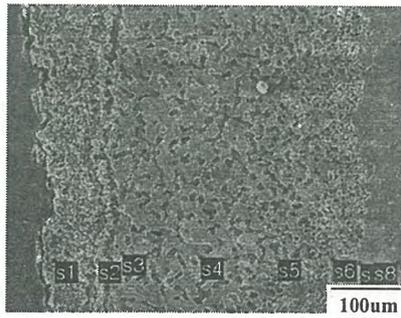


Fig. 5. Cross-sectional SEM image and maps of O, Cr, Ni, Fe, Nb and Mo of Inconel 718 corroded at 650℃ for 72 hours.



	O	Al	Ti	Cr	Fe	Co	Ni	Nb
Base	-	0.54	2.41	15.39	7.89	0.36	71.90	0.94
s1	18.56	5.57	9.69	10.70	1.73	-	49.24	4.50
s2	0.58	0.62	0.12	1.48	1.89	0.43	94.88	-
s3	-	0.29	0.57	5.63	3.62	0.29	89.60	-
s4	0.19	0.27	0.26	4.78	4.87	0.41	89.20	0.03
s5	0.52	-	0.12	0.60	3.71	0.44	94.62	-
s6	0.48	0.23	0.24	3.60	4.56	0.51	90.07	0.32
s7	-	0.66	2.57	15.82	8.33	0.56	71.71	0.35
s8	0.04	0.96	2.28	16.01	8.23	0.52	70.74	1.12

Fig. 6. Cross-sectional SEM image and spot chemical analysis results of Inconel X-750 corroded at 650°C for 168 hours.

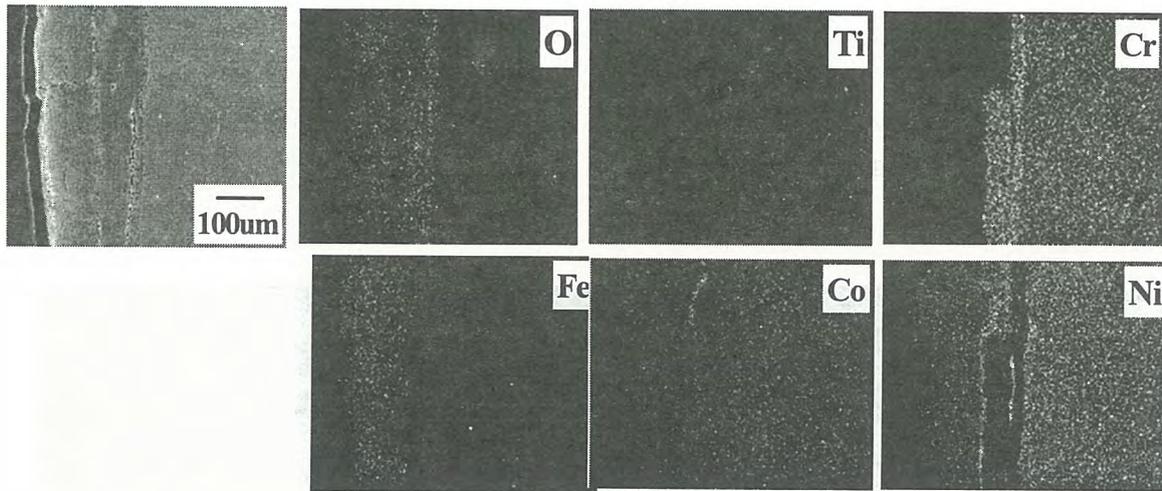


Fig. 7. Cross-sectional SEM image and maps of O, Ti, Cr, Fe, Co and Ni of Haynes 263 corroded at 650°C for 168 hours.

#### 4. 결론

이상과 같은 본 연구의 결과 다음의 몇 가지 결론을 얻을 수 있었다.

1. 부식속도는 Haynes 263 < Haynes 75 < Inconel X-750 < Inconel 718 순서로 나타났으며, Haynes 263 합금이 가장 우수한 내부식성 경향을 보였다.
2. Haynes 75의 부식생성물은  $Cr_2O_4$ ,  $NiFe_2O_4$ ,  $LiNiO_2$ ,  $Li_2NiFe_2O_4$ , Inconel 718의 부식생성물은  $Cr_2O_4$  및  $NiFe_2O_4$ 이며 Haynes 263은  $Li(Ni,Co)O_2$ ,  $NiCr_2O_4$  및  $LiTiO_2$ , Inconel X-750은  $Cr_2O_3$ ,  $NiFe_2O_4$ ,  $FeNi_3$ ,  $(Al,Nb,Ti)O_2$ 의 부식생성물을 나타내었다.
3. Haynes 263은 국부부식의 거동을 보이는 반면, Haynes 75, Inconel 718 및 inconel X-750은 전면부식 거동을 나타내었다.

## 감사의 글

본 연구는 과학기술부 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

## 참고문헌

1. E. G. Colgan, M. Nastasi, and J. W. Mayer, *J. Appl. Phys.*, 58, 4125 (1985)
2. A. Rahmel and H. J. Engell, *Corrosion*, 18, 320 (1966)
3. J. A. Geobel and F. S. Pettit and G. W. Goward, *Met. Trans.*, 4, 261 (1973)
4. S. Mitsushima, N. Kamiya and K. I. Ota, *J. Electrochem. Soc.*, 137, 2713 (1990)
5. M. Spiegel P. Biedenkopf and H. J. Grabke, *Corros. Sci.*, 39, 1193 (1997)
6. H. R. Copson, *J. Electrochem. Soc.*, 100, 257 (1953)
7. W. H. Smyrl and M. J. Blanckburn, *Corrosion*, 31, 370 (1972)
8. F. Colom and A. Bodalo, *Corros. Sci.*, 12, 73 (1972)
9. H. Izyta and Y. Komura, *J. Japan Inst. Metals*, 58(10), 1196 (1994)
10. Y. Harada, *Thermal Spray*, 33(2), 128 (1996)

## Improvement of the Exponential Experiment System for the Automatical and Accurate Measurement of the Exponential Decay Constant

### 지수감쇠계수의 자동 및 정밀 측정을 위한 지수실험장치 개선

Heesung Shin, Ji-hoon Jang, Yun-Hee Lee, Yong-hwa Hwang, Ho-Dong Kim  
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

신희성, 장지훈, 이윤희, 황용화, 김호동  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

#### Abstract

The previous exponential experiment system has been improved for the automatical and accurate axial movement of the neutron source and detector with attaching the automatical control system which consists of a Programmable Logical Controller(PLC) and a stepping motor set. The automatic control program which controls MCA and PLC consistently has been also developed on the basis of GENIE 2000 Library. The exponential experiments have been carried out for Kori 1 unit spent fuel assemblies, C14, J14 and G23, and Kori 2 unit spent fuel assembly, J44, using the improved systematical measurement system. As the results, the average exponential decay constants for 4 assemblies are determined to be 0.1302, 0.1267, 0.1247, and 0.1210, respectively, with the application of Poisson regression.

**Key words** : Exponential Experiment, Exponential Decay Constant, Poisson Regression, Spent Fuel Assembly.

#### 요약

기존의 지수실험장치에 PLC와 스텝핑 모터로 구성된 자동화 제어장치를 부착하여 중성자 선원과 검출기를 자동으로 정확하게 이동할 수 있도록 개선하였다. 또한 GENIE 2000 라이브러리를 기반으로 한 MCA와 PLC를 동시에 구동할 수 있는 통합자동화 프로그램을 개발하였다. 이와 같이 체계적인 장치로 개선된 실험장치를 사용하여 고리 1 호기의 사용후핵연료 집합체, C14, J14 및 G23과 고리 2 호기의 사용후핵연료 집합체, J44의 대한 지수실험을 수행하였다. 그 결과 4 개 집합체에 대한 평균 지수감쇠계수는 각각 0.1302, 0.1267, 0.1247 및 0.1210으로 결정되었다.

**중심단어** : 지수실험, 지수감쇠계수, 뽀아송회귀분석, 사용후핵연료 집합체

## 1. 서론

중성자 선속밀도의 지수감쇠인자와 버클링 반응도 전환인자(Buckling Reactivity Conversion Factor)의 결정을 통하여 유효증배계수를 실험적으로 결정한다. 그리고 사용후핵연료에 포함된 핵종량을 추정하여 이를 근거로 유효증배계수를 계산한다. 궁극적으로 유효증배계수의 실험값과 계산값을 비교함으로써 전산코드 검증의 목적을 달성한다. 1991년 이래 JAERI에서는 임계실험장치인 FCA에서 물감속 2.5 wt% 농축  $UO_2$  격자구조에 대한 지수실험을 수행하여 유효증배계수를 결정하였다[1]. Suzaki[2]는 TCA에서 물감속 저농축  $UO_2$  격자구조의 노심(다양한 크기)을 대상으로 한 지수실험을 통하여 중성자 증배계수를 측정하고 몬테카를로 전산코드를 써서 계산한 결과와 비교하였다. 또한 지수실험법을 써서 비 등사각형 구조의 복잡한 노심에 대하여 중성자 증배계수를 측정하고 그 결과를 MCNP 4A로 계산한 것과 비교·검토하였다[3]. 그리고 4 개의 미입계시스템에서 지수실험을 수행하여 노심의 축방향 중성자분포를 측정하고 MCNP4A에 의한 계산치와 비교하였다[4]. 최근에는 연소도 이득[5-13]을 적용하여 사용후핵연료를 핵입계관점에서 안전하게 수송, 저장 및 취급하기 위한 안전지침자료를 제공할 목적으로 지수실험을 실시하였다. Suzaki 등[12]은 PWR 사용후핵연료 집합체를 대상으로 하여 수중에서 축방향 지수감쇠인자를 측정하고 유효증배계수치를 결정한 후 MCNP 전산코드를 쓴 계산결과와 비교하였다. 이때 MCNP 계산입력자료를 ORIGEN2로 산출하였는데 일부 중원소 핵종에 대한 입력 자료의 신뢰성을 확인할 목적으로 몇 개 핵연료 봉을 취하여 화학분석을 하였다.

기존의 지수실험장치는 중성자 선원과 검출기를 5 톤 크레인에 매달고, 수동으로 축 방향으로 이동시켜서 실험을 수행해 왔다. 이 방법을 사용할 경우에는 축방향 이동거리가 정확하지 않아 측정오차가 유발되고 크레인을 사용해야 하기 때문에 PIEF의 풀의 다른 작업에 지장을 주게 된다. 일본 JAERI에선 크레인을 사용하지만 이동거리에 대한 정밀도를 높이기 위해서 눈금자와 바늘을 사용하여 0.3 mm의 정확도로 중성자 선원이나 검출기를 이용시킨다고 한다. 그러나 이 방법은 측정위치 이동에 많은 시간이 소요되어 전체 측정시간을 늘어나게 하여 비효율적이라고 생각된다.

본 연구에서는 기존의 지수실험장치에 자동화 장치를 부착하여 중성자 선원과 검출기 이동을 자동화하여 정밀도를 높이고, MCA 신호와 연계해서 작동 가능하도록 프로그램화하였다. 이와 같이 개선된 장치를 사용하여 사용후핵연료 집합체를 대상으로 중성자 계수치를 얻고, 이를 Poisson 회귀방법으로 처리하여 지수감쇠계수를 구하였다.

## 2. 지수실험 장치 구성 및 실험방법

### 가. 장치구성 및 특성

지수실험장치는 Fig. 1과 같이 구성했다. 지수실험장치는 중성자 선원, 중성자 검출기, MCA 및 계수치 분석 프로그램 GENIE 2000을 내장한 PC로 구성된다. 중성자 선원으로  $^{252}Cf$ 을 사용한다. 이것은 자발핵분열로 방출하는 중성자 수율이  $2.34 \times 10^{12}$  n/s.g로 비교적 커서 소형으로 쓸 수 있는 이점을 갖고 있기 때문이다[14]. 이 선원의 단점으로는 고가이고 방사능 감쇠반감기가 2.645년으로 비교적 짧다는 것이다. Suzaki[12]는 4 mm  $\phi$  × 20 mm 크기의 444 MBq(12 mCi)  $^{252}Cf$ 를 사용하였는데 본 연구에서는 390 MBq(10 mCi) 선원을 사용했다.

외부 중성자선원과 마찬가지로 9.5 mm O.D. × 0.5 mm(t는 두께를 뜻한다) 스테인리스강관에 삽입할 수 있는 소형 핵분열전리함(6 mm  $\phi$  × 25.4 mm eff)을 사용한다. 이때 중성자 검출효율을 증가시키기 위하여 핵분열전리함에는 고농축 235U(93 wt% 이상)을 쓴다. 외부 중성자선원 및 핵분열전리함을 삽입할 수 있는 9.5 mm O.D. 스테인리스강관은 제어봉 안내관이거나 핵연료봉을 꺼낸 빈 공간에 9.5 mm O.D.관을 꼽은 것일 수도 있다. 중성자 감지부인 핵분열전리함으로부터 나온 전자적 신호가 매우 작아 긴 신호전송케이블에서의 감쇠가 있을 것이므로 이에 대한 고려가 필요하다.

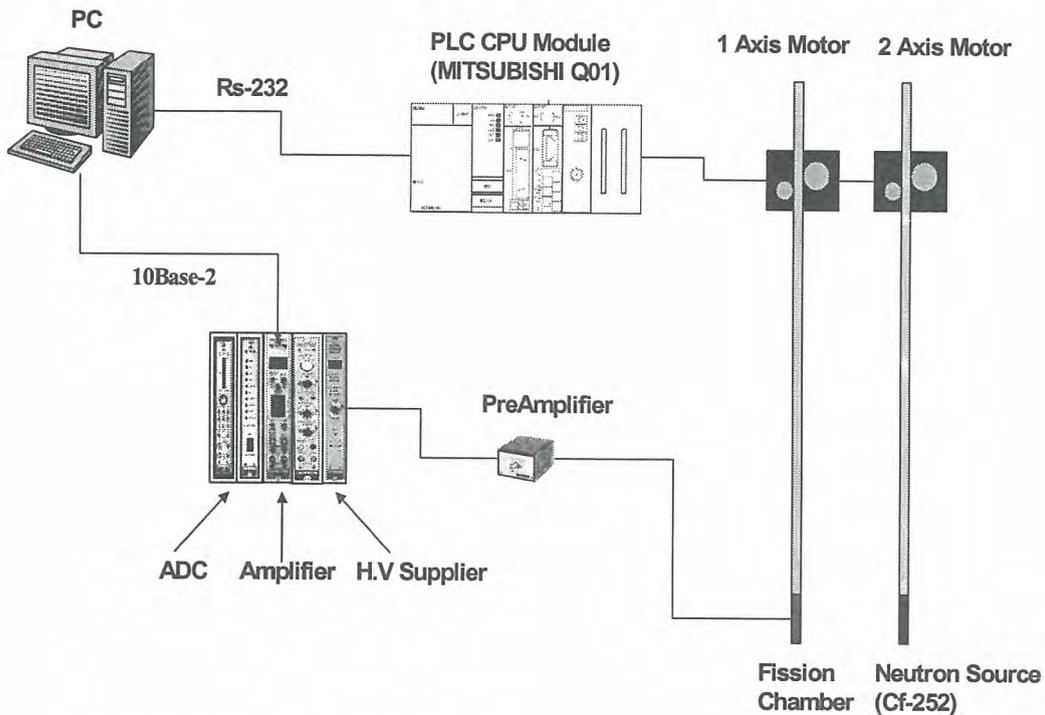


Fig. 1. Schematic description of the exponential experiment system.

#### 나. 실험 방법

지수실험은 집합체의 가이드튜브나 제어봉 안내관에 중성자 선원과 검출기를 설치하고, 둘 사이의 거리를 변화시키면서 중성자 선속밀도의 감쇠량을 측정하여 이의 기울기인 지수감쇠계수를 구하는 실험이다. 조사후시험시설 저장폴의 저장랙에 거치된 고리 1 호기의 사용후핵연료 집합체들은 상부노즐이 제거된 상태로 컨테이너에 삽입되어 조사후시험시설 저장폴(9402)의 저장랙에 거치된다. 물의 깊이는 10 m 이다. 상부노즐을 제거한 후 핵연료집합체내 핵연료봉을 일부 제거하였을 지라도 지수실험에는 영향을 주지 않는 것으로 알려져 있다. 다만 외부 중성자선원의 삽입위치와 대칭위치에 중성자 측정용 핵분열전리함을 삽입할 수 있도록 하는 것이 바람직하다고 한다.

먼저 사용후핵연료 집합체 속에 핵분열전리함을 삽입하여 이로부터 나오는 파고분포를 측정(외부 중성자선원 252Cf 유무에 관계없다)한다. 일반적으로 낮은 파고에서 높은 계수치를 보여주는 데 이는 주로 감마선에 기인한다. 이 파고분포자료로부터 감마선 기여를 제거하여 일정크기 이상의 파고를 갖는 펄스만을 측정할 수 있도록 파고선별기(discriminator)에서 바이어스(bias voltage)를

조정한다. 다음은 외부 중성자선원(여기서는 252Cf)을 삽입하지 않은 상태에서 사용후핵연료 축방향의 중성자 백그라운드를 핵분열전리함으로 측정한다. 이때 중성자 백그라운드는 주로 244Cm의 자발핵분열에서 기인한다. 과고선별기의 바이어스전압을 설정하고 중성자 백그라운드를 측정한 후, 외부 중성자선원 252Cf을 핵연료집합체에 삽입하여 축방향의 중성자 선속밀도 분포(상대적)를 핵분열전리함을 써서 측정한다. 이때 두 가지 방법으로 중성자 선속밀도의 분포를 측정하는데 외부 중성자선원을 일정지점(예:핵연료집합체의 아래부분)에 고정시키고 핵분열전리함을 축방향으로 구동하면서 중성자 선속밀도(상대적)의 변화를 측정하거나 반대로 핵분열전리함을 고정시키고 외부 중성자선원을 축방향으로 이동하면서 중성자 선속 밀도를 측정한다. Suzuki[12]에 의하면 후자의 방법이 전자보다 중성자 측정오차를 감소시킨다고 한다. 핵분열전리함을 써서 사용후핵연료의 축방향 중성자 선속밀도를 측정하여 백그라운드 값을 제외한 순수한 선속밀도(측정치 BG)의 기울기를 지수감쇠인자( $\gamma$ )라 정의한다. 지수감쇠인자와 유효증배계수와의 관계식은  $1-1/keff = -Kv^2$  로 표현할 수 있다.

### 3. 지수실험장치 개선

#### 가. 자동화 구동장치 개발

Fig. 2과 같이 스테핑 모터와 Programmable Logical Controller(PLC)로 구성된 지수실험 자동화 구동장치를 설계하여 제작하여 하였다. 이 장치는 기존의 수동으로 작동하는 지수실험장치를 개조하여 선원과 검출기를 축 방향으로 자동으로 구동하도록 하는 것에 목적을 두고 있으며, 아울러 대형 크레인을 이용하여 선원과 검출기를 집합체의 제어봉 안내관에 주입하던 번거로움을 피하기 위해서 X-Y table을 사용하여 보다 용이하게 주입하고자 하는데 그 목적이 있다.

선원(혹은 검출기)을 setting된 거리간격 단위로 지정된 회수만큼 반복하여, 축방향의 상향(혹은 하향)으로 이동시키는 기능을 갖도록 설계하였고, setting된 거리간격이 일정하지 않은 경우에도 작동이 가능하도록 설계하였다. MCA(기존 지수실험장치의 일부)에서 보내는 신호를 감지하여 이동을 시작하도록 설계하였고, 상하 이동 폭을 3,000 m/m(Max.)로 설정하였다. 선원(Neutron source)과 검출기(detector)의 축방향 이동거리의 정확도는  $\pm 0.1$  mm 이하가 되도록 하였고, 참고로 일본원자력연구소에서는 push button으로 크레인을 작동하여 0.3 mm 정확도로 이동시킨다고 한다. 이 장치는 조사후시험시설의 저장풀에 설치할 것이므로, 방사선 오염과 고습도에 내구성이 뛰어난 재질을 사용하였고, 이런 열악한 조건에서 정상적으로 작동될 수 있도록 제작하였다.

#### 장치장치의 각 부분별 제작내용.

Rack Gear 구동부: 2 Set. 재질 : 장치의 재질은 기본으로 Stainless Steel(STS 304)로 설정하였고, Rack Gear는 Stroke 3,000mm 이상이고, Pinion Gear는  $\varnothing 80 \times t 15$ mm로 설정하였다. 이와 함께, X-Y Table 3 Set, SUS304 pipe 50 X 50 X 3.2T 등으로 구성된다. PLC의 부품을 결합한 control 박스에는 PLC, 스테핑모터 드라이브, 전원공급기로 구성된다.

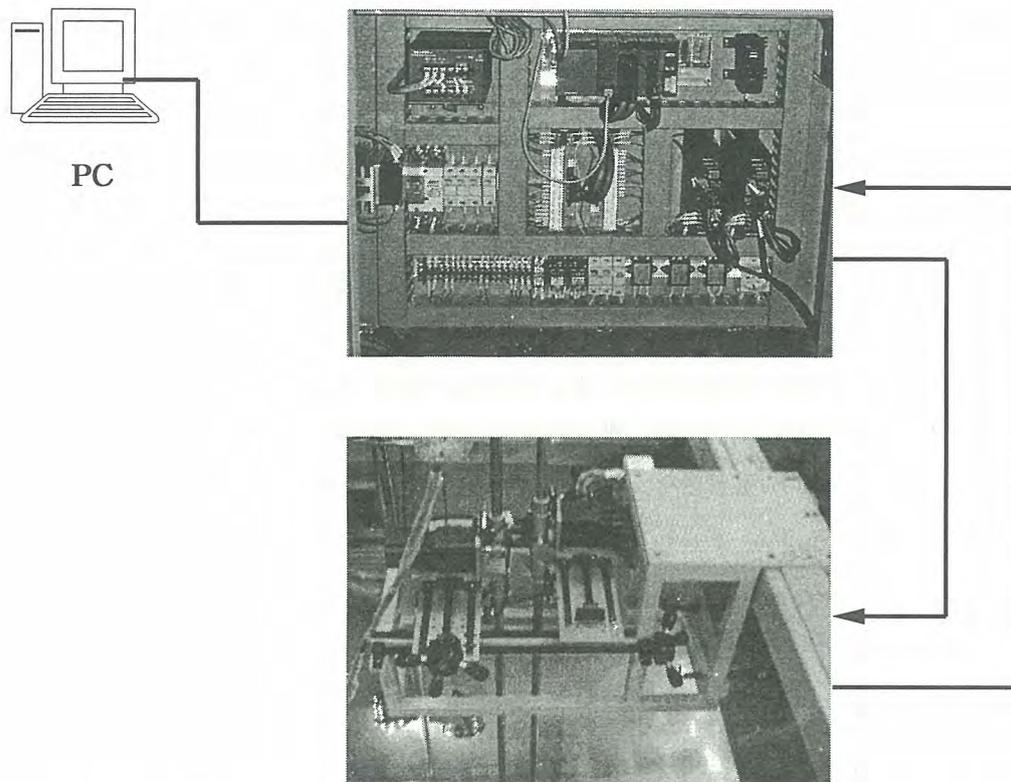


Fig. 2. Automatical movement system with PLC and stepping motor set.

#### 나. 자동화 구동 프로그램 개발

지수실험장치의 크게 두 부분으로 나누면 PLC와 스텝 모터로 구성된 중성자 선원과 검출기를 구동하는 부분과 MCA를 포함하는 측정시스템으로 나눌 수 있다. 지수실험을 정밀하게 수행하려면 이 두 장치를 통합 제어하는 프로그램이 필요하다. 이를 위해 개발된 프로그램의 알고리즘이 Fig. 3에 제시되었다. 본 프로그램은 사용후핵연료 집합체의 축 방향 거리별 중성자 선속밀도를 무인 및 연속측정을 실시함으로써 다량의 실험데이터 생산 및 다변의 측정조건을 실현하기 위해 제작되었다. 또한 지수감쇠계수의 측정에 있어서 측정오류 및 불확도 저감에 기여하도록 하기 위함이다.

지수실험 자동화 프로그램은 모터구동부분과 MCA 부분으로 구성되어있다. 모터 구동 부분은 PLC가 1축 및 2축 모터 드라이버를 제어함으로써 상하 축 방향으로 이동이 가능하게 한다. 또한 MCA 부분은 Canberra사가 제공하는 Programming Library Manual을 이용하여 작성되었으며 스펙트럼 데이터의 저장 및 Display가 가능하도록 되어있다. 통신방식에 있어서 모터구동부분의 경우 PLC Module 박스에 내장된 Rs-232C 통신포트를 이용한 전용 Protocol에 의한 통신이다. 이는 Computer측에서 미리 설정된 전문 Format의 전용명령어를 송신하여 PLC CPU Data의 Read/Write 등을 행하는 기능이다. MCA의 경우는 전용 LAN 카드를 이용한 10Base-2 BNC 케이블 통신이다.

모터구동의 경우 PLC를 이용한 전용 Protocol에 의한 통신이다. 이 Protocol의 전용규격은 다음과 같으며, 그 세부사항은 아래의 Table 1과 같다. 또한 PLC CPU내에 입력된 디바이스 번지는 다음 Table 2와 같다. 크게 Bit 쓰기, 읽기, Word 쓰기로 구분하며, Bit 쓰기는 PLC CPU 비트 디바이스에 대해 컴퓨터 키보드에서 ON(1)/OFF(0) 정보를 입력하여 PLC에 Write 한다.

ENQ 00 FF BW 0 M504 01 00

Table 1. Protocol Specifications for PLC CPU

ENQ	00	FF	BW	0	M504	01	00
	국번호	PLC 번호	명령어	대기시간	디바이스번지	개수	데이터

Table 2. Device Memory Address in PLC CPU

기능		구분	1축 디바이스 번지	2축 디바이스 번지	비 고
Bit 쓰기	PC-mode		M504	M504	ON(1)/OFF(0)
	축 설정		M506	M507	"
	Up		M501	M503	"
	Down		M500	M502	"
Bit 읽기	PC-mode		M604	M604	
	축 설정		M606	M607	
	이동 중		M602	M603	
	이동완료		M600	M601	
Word 쓰기	거리설정		D500	D502	16진수 값

Fig. 3에서 보는 바와 같이 지수실험장치 프로그램의 전체 알고리즘은 Motor구동과 MCA의 부분으로 결합되어있다. 실제 프로그램은 Fig. 4에서 보는 바와 같이 윈도우 내의 각 Frame 구성은 크게 3부분으로 나누어지는 데 운영모드 및 Motor, 방향 설정에 관한 초기 설정부분과 측정조건 입력에 관한 두 가지 모드에 대한 Frame으로 구성 되어있다. 프로그램 실행과 동시에 PLC와 PC 간의 Rs-232C 통신 Setting이 완료된다. Comport로서 Com1이 설정되어있고, 전송속도(19200 bps), Parity(None), Data Bit(8 bit), Stop bit(1 bit) 순으로서 Setting이 완료된다. 또한 각 기능별 초기화가 내부적으로 이루어진다.

본 지수실험장치 1 축에는 Cf-252 선원이 장착되어있고, 2 축에는 Fission Chamber Detector가 장착이 되어있다. 따라서 핵연료다발을 상, 하 축 방향으로 옮겨가며 측정할 경우 2가지 측정모드가 존재한다. 첫째 2축을 고정하고 1축을 이동시키는 모드(Source Scanning Mode), 둘째 1축을 고정시키고 2축을 이동시키는 모드(Detector Scanning Mode)가 그것이다.

이와 같이 결정된 측정방식에 따라 측정조건을 결정하는데도 2가지 모드가 있는데, 측정조건(간격, 시간, 반복회수)이 각 지점마다 모두 동일한 경우(등 간격 모드)와 사용자 측정조건 입력 모드 경우이다. 각각은 측정구간, 측정간격, 측정시간, 반복회수, 시작채널, 종료채널, 파일이름의 항목으로 구성되어 있다.

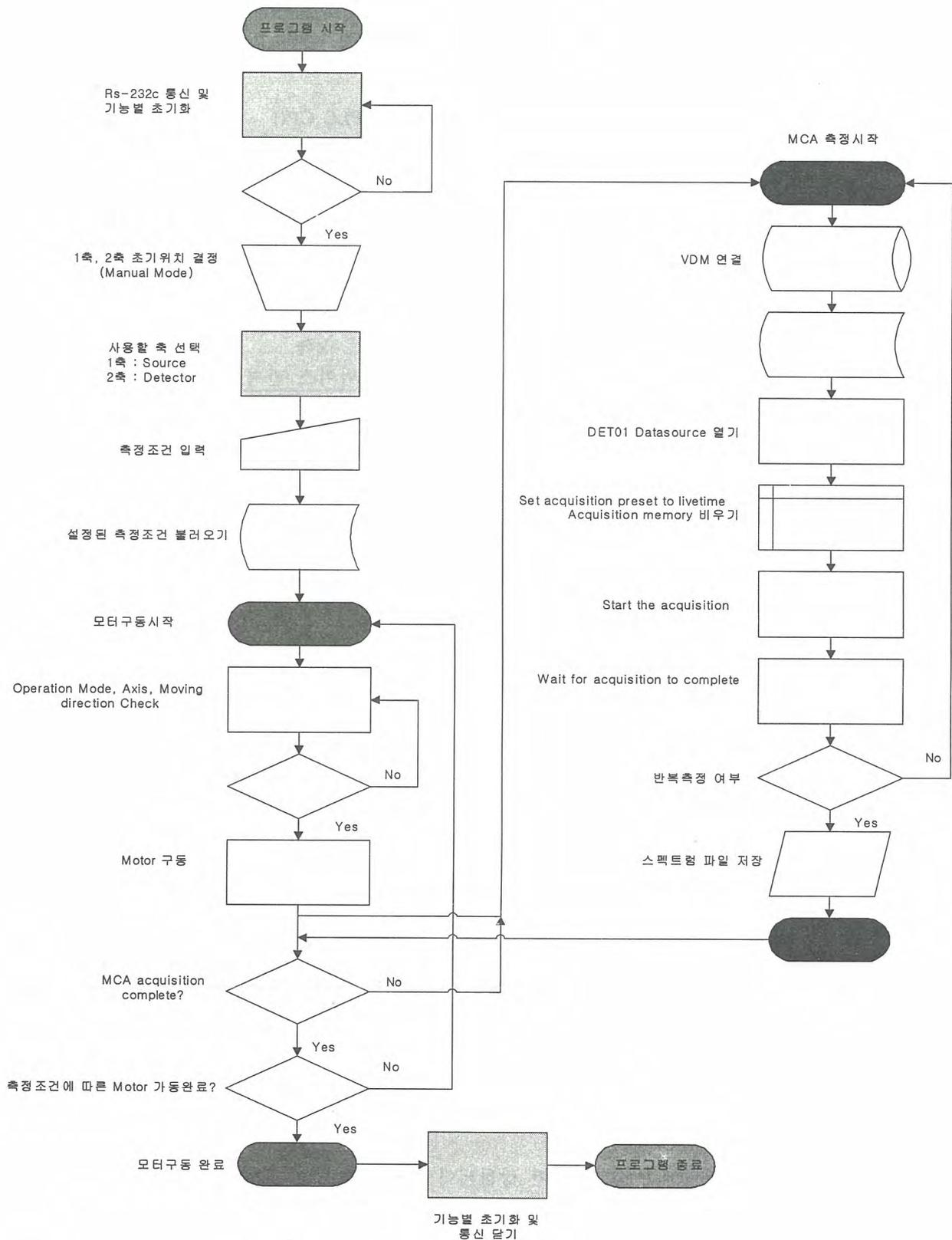


Fig. 3. Flow Chart for the automatic control system.

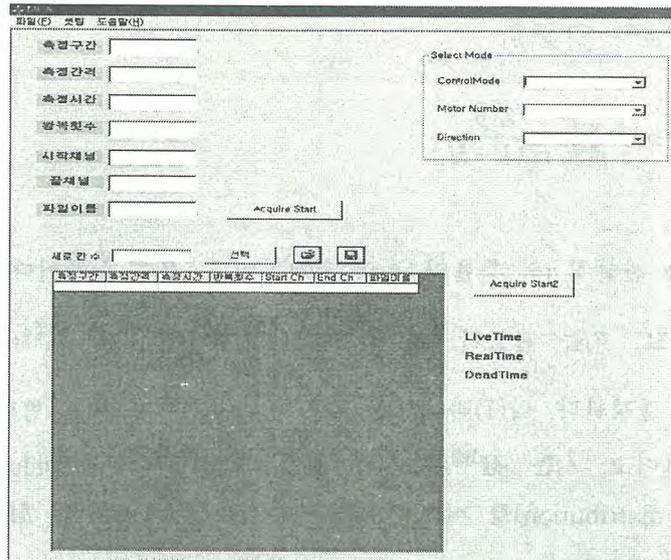


Fig. 4. Window for input data.

측정구간은 측정할 총 거리를 나타내며, 입력 단위는 0.1 mm이다. 측정구간은 측정할 거리 및 Limit Switch 간섭을 고려하여 설정하도록 되어있다. 등 간격 모드인 경우 총 측정구간을 측정간격으로 나누어서 측정지점의 개수를 설정하고 사용자 입력모드의 경우는 측정 조건표의 각 Row 별 간격조건에 따라 실행된다. 등간격의 모드의 경우 각 측정별 시간은 동일하고 사용자 입력모드의 경우 각 Row별 측정시간에 따라 실행된다. 측정시간은 MCA의 Live time이고 모터이동시간 및 대기시간 등은 포함되지 않는다. 반복횟수는 각 측정구간별 측정 반복회수 결정한다. 이는 Spectrum 측정의 반복을 의미하며, 등간격의 경우 모든 측정지점별로 모두 동일한 값을 가지고, 사용자 입력모드의 경우 Row별 반복횟수를 달리 할 수도 있다. 시작 및 종료채널은 MCA에서 Spectrum Data의 Channel Threshold Value를 의미하며, Background 혹은 Noise의 영향에 따라 사용자가 임의로 설정할 수 있다. MCA에 기록된 스펙트럼(채널별 계수치)은 일정한 파일(.txt or .dat)로 저장이 되도록 되어있다.

측정을 모두 종료한 이후에는 모든 기능들을 역순으로 초기화시키고, 측정에 사용했던 모든 측을 Off 시키고 Control mode를 Manual mode로 전환시킬 수 있다.

#### 4. 지수실험 및 지수감쇠계수 결정

4 개의 집합체 C15, J14, G23 및 J44에 대한 축방향 중성자 선속밀도 측정 결과를 이용하여 각 집합체에서의 검출기와 선원의 위치에 따른 지수감쇠계수를 결정하였다. 이 지수감쇠계수를 결정할 때 뽀아송(Poisson) 회귀방법을 적용하여 일반 회귀분석을 적용할 때보다 개선된 결과를 도출하였다. 지수실험으로부터 얻은 중성자 계수치는 기본적으로 뽀아송분포를 따른다고 가정한다. 이 점을 고려해서 중성자 계수치의 뽀아송분포에 대한 적합성 검정과 뽀아송회귀분석을 다음과 같이 수행하였다.

##### 가. 뽀아송분포에 대한 적합성 검정

###### 1) 이론적 배경

임의의 확률표본  $x_i, i=1, \dots, n$ 가 뽀아송분포를 따른다는 가설을 검정하기 위하여 다음과 같은 Cramer-von Mises 유형 검정통계량(test statistic)들을 정의할 수 있다.

$$W^2 = n^{-1} \sum_{j=M_l}^{M_u} Z_j^2 \hat{p}_j \quad (1)$$

$$A^2 = n^{-1} \sum_{j=M_l}^{M_u} \frac{Z_j^2 \hat{p}_j}{H_j(1-H_j)} \quad (2)$$

식(1)과 (2)에서  $\hat{p}_j$ 는 관찰치  $j$ 의 확률인  $p_j$ 의 추정치이고,  $H_j = \sum_{i=0}^j \hat{p}_i$ 이다. 또한  $o_j$ 는  $x_i$ 들 중에서  $j$ 인 관찰치의 수이고,  $e_j$ 는 관찰치  $j$ 의 기댓값  $np_j$ 일 때,  $Z_j = \sum_{i=0}^j (o_i - \hat{e}_i)$ 이다.  $M_l$ 과  $M_u$ 는 Spinelli 외[14]와 같이 결정한다. 식(1)과 (2)는 모두  $T = \sum_{i=1}^K \lambda_i z_i^2$ 과 같은 형태로 변환될 수 있으며, 이 때  $K = M_u - M_l + 1$ 이고,  $\lambda_i$ 는  $M^{1/2}(\Sigma - \mu p p')M^{1/2}$ 의 고유치(eigenvalue)이고,  $z_i$ 는 표준정규 분포(standard normal distribution)를 따르는 확률변수이다[14]. 여기서  $M$ 은 식(1)과 (2)에 따라 달라진다.

주어진 가설이 참이라면 검정통계량  $W^2$ 과  $A^2$ 의 분포는  $T$ 의 점근분포(asymptotic distribution)와 같다. 그러므로 주어진 표본을 대상으로 식(1)과 (2)를 이용하여 계산한 값은 각각의  $T$ 의 점근분포에 근거하여 유의확률  $p$  값을 결정하고 이 값을 주어진 유의수준과 비교하여 가설의 기각여부를 결정한다.

## 2) 적합성 검정결과

Table 3은 지수실험장치의 선원과 검출기를 고정시킨 상태에서 5 초 동안 발생하는 중성자 수를 50회 반복측정한 결과이다. 식(1)과 (2)에 의해 계산된 표본의  $W^2$ 과  $A^2$ 은 각각 .0503과 .4102 이고 각각의  $p$  값은 .3828과 .4576으로 나타났다. 따라서 보편적인 유의수준 5 %에서 중성자 계수치 표본은 뽀아송 분포를 만족하는 것으로 볼 수 있다.

Table 3. A sample of neutron counts obtained from the exponential experiment

9	7	4	7	5	6	8	3	6	8
12	11	7	8	11	10	12	6	8	5
6	12	8	8	2	8	5	8	6	6
9	9	12	6	2	8	5	7	3	8
6	10	9	7	11	10	7	6	9	7

## 나. 뽀아송 회귀분석

검출기를 고정시킨 상태에서 선원을 이동시킴에 따라 발생하는 중성자 계수치를 측정하여 뽀아송 회귀분석을 수행하였다. 중성자 계수치를  $y_i, i=1, \dots, n$ 라고 하면 중성자 계수치는 기댓값과 분산이 동시에  $\mu_i$ 인 뽀아송분포를 따른다. 검출기와 선원의 거리를 독립변수  $x_i$ 라 하면  $x_i$ 와 중성자 계수치  $y_i$ 는 다음과 같은 관계를 만족해야 한다.

$$E(y_i) = \mu_i = e^{\beta_0 + \beta_1 x_i} \quad (3)$$

식(3)의  $\beta_0$ 와  $\beta_1$ 은 뽀아송분포 가정하에 로그우도함수(log likelihood function)를 최대화하는 방법으로 추정할 수 있고 각각의 추정된 값을 최우추정치  $b_0$ 와  $b_1$ 이라 한다.

지수감쇠계수  $\beta_1$ 에 대한 Wald의 근사적인  $100(1-\alpha)\%$  신뢰구간은 다음 식으로 결정된다.

$$b_1 - z_{\alpha/2} se(b_1) \leq \beta_1 \leq b_1 + z_{\alpha/2} se(b_1) \quad (4)$$

식(4)에서  $z_{\alpha/2}$ 는 표준정규분포의  $\alpha/2$  분위수이고  $se(b_1)$ 은 다음과 같다.

$$se(b_1) = \frac{\sum_{i=1}^n \exp(b_0 + b_1 x_i)}{\left[ \left( \sum_{i=1}^n \exp(b_0 + b_1 x_i) \right) \left( \sum_{i=1}^n x_i^2 \exp(b_0 + b_1 x_i) \right) - \left( \sum_{i=1}^n x_i \exp(b_0 + b_1 x_i) \right)^2 \right]}$$

#### 다. 지수감쇠계수 결정

집합체 C15, J14, G23 및 J44에 대한 증성자 계수치에 대해 지수감쇠계수를 구하였다. 위에서 제시한 뽀아송 회귀분석을 적용하기 위해서 먼저 통계프로그램 SAS (Statistical Analysis System)을 사용하여 Chi-square test를 수행하여 데이터의 적합성을 확인하였다. 이어 뽀아송 회귀분석식을 사용하여 각 집합체에 대한 지수감쇠계수를 구하여, 그 결과를 Table 4에 제시하였다. 또한 95 % 신뢰도의 범위를 결정하기 위해서 식(4)을 사용하였고, 각 지수감쇠계수에 대한 95 % 신뢰도를 갖는 하한값과 상한값을 구하여 Table 4에 제시하였다. Table 4에서 볼 수 있는 바와 같이 95 % 오차범위인 하한값과 상한값의 상대오차는 매우 적게 나타났으며 이는 5 분 동안 측정된 증성자 계수치를 초당 계수치로 환산함으로써, 그 오차가 감소했기 때문이다. 그러나 동일한 집합체에 대해서 측정된 지수감쇠계수는 서로 큰 차이를 보이는 경우가 발생하였다. 이에 대한 원인은 앞으로 규명되어야 하며, 동일한 집합체에 대해 측정된 여러 가지 지수감쇠계수치를 이용하여 해당 집합체의 대표 지수감쇠계수를 결정하는 방법을 찾아야 할 것이다.

Table 4. Exponential decay constant and its 95 % confidence limit for four assemblies

Assembly ID	Detector Position	Exponential Decay Constant ( $\gamma$ )	95% Confidence Limits		
			Lower	Upper	Relative Error(%)
C15	E05	0.1350	0.1334	0.1366	1.15
	E10	0.1350	0.1334	0.1366	1.15
	J05	0.1200	0.1184	0.1216	1.35
	J10	0.1310	0.1296	0.1324	1.10
J14	E05	0.1320	0.1307	0.1333	0.96
	E10	0.1190	0.1178	0.1202	1.02
	J05	0.1230	0.1218	0.1242	0.99
	J10	0.1250	0.1237	0.1263	1.02
G23	C12	0.1250	0.1240	0.1260	0.83
	E05	0.1250	0.1238	0.1262	0.92
	J10	0.1280	0.1266	0.1294	1.08
	L03	0.1290	0.1277	0.1303	0.98
J44	F06	0.1190	0.1179	0.1201	0.92
	F11	0.1200	0.1188	0.1212	0.96
	K06	0.1220	0.1209	0.1231	0.90
	K11	0.1230	0.1220	0.1240	0.80

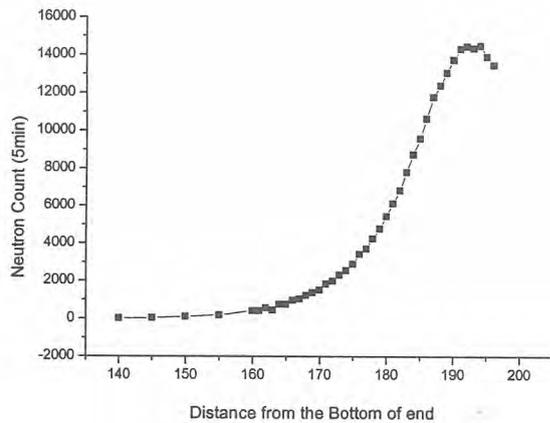


Fig. 5. Neutron net counts measured for the C15 assembly.

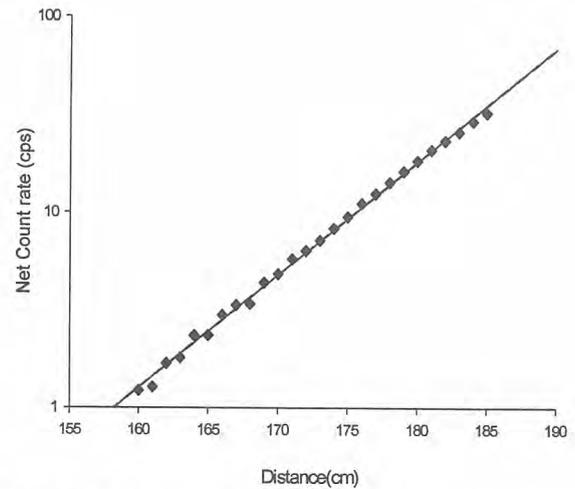


Fig. 6. Determination of the exponential decay constant for the C15 assembly.

## 5. 결 론 및 향후계획

기존의 지수실험장치에 자동화 구동장치의 부착과 PLC 및 MCA 통합제어시스템을 구축하고, 4 개 집합체에 대한 지수감쇠계수를 측정 한 후, 다음과 같은 결론을 얻었다. 측정위치에서의 95 % 신뢰도를 갖는 자체 측정오차는 매우 적은 1.5 %이하로 나타난 점에 비추 볼 때, 본 연구의 측정시스템 및 측정방법이 적합했다고 볼 수 있다. 그러나 동일한 집합체에 대해 측정위치별 지수 감쇠계수 측정값들은 서로 큰 차이를 보였기 때문에 집합체에 대한 대표 값을 결정하는데 문제가 있다. 앞으로 동일한 집합체에 대해 다양한 위치에서 지수감쇠계수를 측정하여 측정위치에 따른 경향 분석을 통하여 이에 대한 원인을 규명하고 궁극적으로 집합체별 지수감쇠계수 대표 값을 결정하는 방법을 확립할 계획이다. 또한 지수실험의 최종 목적인 중성자유효증배계수를 정확히 예측하기 위해 버클링-반응도 전환인자를 결정하는 방법을 연구할 계획이다.

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발사업의 일환으로 SF특성계량화 기술개발과제에서 수행한 것임.

## 참 고 문 헌

- [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 UO<sub>2</sub> 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] K. Sakurai, T. Arakawa, T. Yamamoto, and Y. Naito, "Estimation of subcriticality with the computed values(III)," Japan Atomic Energy Research Institute Rept. JAERI Research 96 045(1996).
- [5] Jens Christian Neuber, "Burnup credit applications to PWR and BWR fuel assembly wet

- storage systems," Proc. Int. Conf. on the Physics of Nuclear Science & Technology, Vol.1, pp.631-638, 5-8 Oct. 1998, Long Island, New York(1998).
- [6] R. T. H. Mayson and K. J. Gunston, "Challenges in the application of burn up credit to the criticality safety of the THORP reprocessing plant," Proc. 2nd NUCEF Int. Symp. NUCEF'98, Part I. pp.61-67, 16-17 November 1998, Hitachinaka, Japan(1998), JAERI Conf 99-004(1999).
- [7] Hee Sung Shin, Seung Gy Ro, Kang Mok Bae, Ik Soo Kim, and Young Joon Shin, "Application of burnup credit for PWR spent fuel storage pool," *ibid*, pp.68-76.
- [8] Chi H. Kang and Dale B. Lancaster, "Actinide only burnup credit for pressurized water reactor spent nuclear fuel III: bounding treatment of spatial burnup distributions," Nucl. Technol. 125, 292-304(1999).
- [9] Hee Sung Shin, Seung Gy Ro, Kang Mok Bae, Young Joon Shin, and Ik Soo Kim, "Application of SCALE 4.4 system for burnup credit criticality analysis of PWR spent fuel," Proc. Int. Symp. on Radiation Safety Management '99, pp.487-502, 4-6 November 1999, Taejon, Korea(1999).
- [10] Dale B. Lancaster, Emilio Fuentes, Chi H. Kang, and Meraj Rahimi, "Actinide only burnup credit for pressurized water reactor spent nuclear fuel I: methodology overview," Nucl. Technol. 125, 255-270(1999).
- [11] Emilio Fuentes, Dale B. Lancaster, and Meraj Rahimi, "Actinide only burnup credit for pressurized water reactor spent nuclear fuel II: validation," Nucl. Technol. 125, 271-291(1999).
- [12] T. Suzuki 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.
- [13] 노성기, "사용후핵연료 핵임계 안전관리에 관한 일본파견 연구보고서," 한국원자력연구소 해외출장보고서 KAERI/OT-387/98, p.51(1998).
- [14] Spinelli, John J. and Stephens, Michael A., "Cramer-von Mises tests of fit for the Poisson distribution, The Canadian Journal of Statistics, 25, 257-268(1997).

## 차세대관리 종합공정 실증시설의 핫셀 장비 및 핵물질의 반 출입 체계

이은표, 유길성, 정원명, 구정희, 조일제, 국동학, 박성원, 주준식  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

차세대관리 종합공정은 사용후핵연료를 안전하고 효율적인 관리를 위하여 제시된 공정으로 이 공정을 이용하여 사용후핵연료를 급속으로 전환하고 고발열성 핵종(Cs, Sr)을 효율적으로 제거할 경우 사용후핵연료의 부피, 발열량 및 방사선의 세기를 최대 1/4까지 감소시키고, 처분용기의 소요량과 처분장의 소요면적을 1/2 이상으로 축소함으로써 처분 안정성과 경제성을 높일 수 있다. 차세대관리 종합공정은 용융염 매질에서 사용후핵연료를 처리하는 건식핵연료주기 기술로서 중심적으로 연구개발을 추진하고 있는 공정기술의 일부이다. 현재 국내에서는 차세대관리 종합공정에 대한 기초연구를 완료하고 실증시험을 위한 구체적인 계획을 수립하였으며, 실증시험을 수행하기 위해서 필수적인 핫셀 시스템의 확보하기 위하여 기존 핫셀을 개조하기 위한 핫셀 시스템의 설계를 완료하였다. 차세대관리 종합공정 실증시험을 수행하는 공정은 사용후핵연료 Rod-cut 제조 및 운반, 제조된 Rod-cut을 사용하여 우라늄 급속전환체 제조 및 폐용융염 처리, 폐용융염 운반/저장 및 공정시료 이송 등으로 구분된다. 차세대관리공정을 수행하기 위하여 선정된 사용후핵연료봉은 기존 조사후시험시설 내의 핫셀과 장비를 활용하여 감마스케닝에 의한 특성을 분석하고 25cm로 절단된 후 Padirac cask(RD-15)에 담겨져 운반된 핵연료는 Rear door에 설치된 Padirac system을 통하여 차세대관리공정 핫셀로 반입되며, 폐용융염 및 공정 중에 발생하는 고준위 폐기물은 일정한 용기에 포장된 후 Padirac system을 통하여 차세대관리공정 핫셀에서 반출되어 조사재시험 시설의 M4 핫셀로 반입되며, 반입된 고준위 물질은 다시 고준위 폐기물 용기에 담겨져 Roof door에 설치된 Solid waste cask를 이용하여 Monolith로 보내어지는 시스템으로 설계되었다. 또한 공정시료는 일정한 용기에 포장되어 Padirac system을 통하여 차세대관리공정 핫셀에서 반출되어 분석용 핫셀로 보내어지는 시스템으로 설계되었다. 차세대관리공정 핫셀은 지하에 위치하여 Roof door를 구비할 수가 없으므로 부피가 크고 무거운 핫셀 장비는 Rear door를 통하여 반입되어야 하나 핫셀 Rear wall의 두께가 100cm이고 핫셀 내의 전용 크레인 및 서비스 구역의 Jib crane hook가 접근할 수 없는 역역이 각각 40cm 존재하므로 Rear door 앞부분을 가로 900cm 세로 900cm 넓이의 작업 테이블을 2단으로 하고 상부 작업 테이블을 이동형으로 하여 핫셀 장비의 반입 및 반출 시는 상부 이동형 작업 테이블을 제거하여 입구공간을 충분히 확보하고 Rear door 전면 하단부에 3단으로 상하 이동이 가능한 Rear door 테이블을 설치하였으며 차세대관리공정 핫셀 서비스 구역과 조사재시험시설 핫셀 서비스 구역의 Roof door 구간에 레일을 설치하여 중량물을 운반할 수 있는 전동대차를 구비하는 시스템으로 설계하였다. 차세대공정 장비의 핫셀 반출은 핫셀 내에서 고준위 핵연료와 항상 접촉되어진 장비로서 상당량의 방사선을 방출하여 접근이 곤란하고 작업자의 방사선 피폭을 줄이기 위한 설비 및 특수공구 등이 고려되어야 한다. 본 연구에서는 Roof door가 없는 차세대관리공정 핫셀에서 Rear door를 이용하여 핫셀 장비 및 핵물질의 핫셀 반 출입을 수행함으로써 Rear door의 이용을 극대화하고 관련 설비의 오염을 최소화함으로써 작업이 끝난 후 제염작업을 줄이고 서비스 구역의 오염을 최소화시킬 수 있는 시스템으로 설계된 자료에 따라 차세대관리공정 핫셀을 건설하여 활용할 것이다.

## 영상 및 방사선 신호를 이용한 핵물질 감시시스템

송대용, 이상윤, 하장호, 고원일, 김호동, 이태훈  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

핵물질을 취급하는 시설에서는 핵물질 안전조치 목적의 달성, 즉 핵물질의 군사적 전용 및 도난을 방지하기 위한 하나의 수단으로서 핵물질의 취급 및 이동을 감시하기 위한 감시시스템이 요구된다. 이 연구에서는 이러한 요구에 부응하기 위해 시설 내에서 핵물질이 이동 가능한 모든 경로에 중성자 모니터와 카메라 같은 감시 장비를 설치하고, 이들로부터 실시간으로 방사선 신호와 영상 데이터를 취득·분석하여 핵물질의 거동을 진단할 수 있는 핵물질 감시시스템을 개발하였다. 이 연구에서 제안하는 핵물질 감시 시스템은 한국원자력연구소의 경·중수로 연계 핵연료 제조 시설(DFDF: DUPIC Fuel Development Facility)을 대상으로 개발한 시스템이다. 이 시스템은 출입구 및 핵물질 운반용기의 움직임을 감시하기 위한 CCD 카메라, 핵물질의 이동을 인지하기 위한 중성자 모니터, 핵물질 계량관리를 위한 핵물질 측정 장치, 그리고 이들 장비로부터 영상 및 방사선 신호를 취득하기 위한 데이터 취득 장비(DAQ)로 구성되어 있다. 영상 및 방사선 신호는 PC를 기반으로 한 데이터 취득 장비에 의해 카메라와 중성자 모니터 및 핵물질 측정 장치로부터 실시간으로 동시에(time-synchronized) 취득되고, 취득된 데이터는 소프트웨어에 의해 처리되어 핵물질의 움직임을 자동으로 진단한다. 기능적인 관점에서의 핵물질 감시 시스템은 사용자 인터페이스, 데이터 취득, 데이터 처리, 판단 부분으로 구성되어 있다. 데이터 취득 부분은 DAQ 카드 및 영상보드를 제어해 방사선 데이터 및 영상 데이터를 취득한다. 데이터 처리 부분은 영상 데이터를 분석하여 움직임을 있는 영역을 찾아내고 방사선 데이터를 분석하여 방사능의 변화를 알아낸다. 판단 부분은 인공신경망 알고리즘에 의해 핵물질의 거동을 진단하여 데이터를 저장하고, 원격감시자에게 통보 여부 등의 판단을 한다. 이 연구에서 방사선 데이터를 이용한 핵물질의 거동진단은 핵물질의 양 또는 위치 변화만을 고려하였고, 영상 데이터를 이용한 핵물질 수송용기의 거동진단은 영상을 분석하여 핵물질 운반용기(cask)로 추측되는 객체(object)의 위치를 추출하여 운반용기의 이동상황을 진단하도록 하였다. 영상으로부터 운반용기를 직접 추출하기 위해 RGB 임계값을 이용하였다. 이 연구에서 제안한 감시 시스템은 수차례의 성능 시험을 거쳐, 현재 DFDF 시설에 설치하여 운영 중에 있으나, 조명이 흐리거나 상실될 경우 수송용기의 움직임을 감지하지 못하는 문제점을 가지고 있다. 또한, 원격감시 기능은 통신보안 문제로 인해 내부에서만 이용할 수 있다. 따라서 이러한 문제점을 해결하기 위한 추가적인 연구가 요구된다.

## Transmission Characteristics of a Wire-Driven Bridge Transported Servo Manipulator Prototype for the ACP Maintenance

### 차세대관리 공정장치 유지보수용 천정이동 서보 매니플레이터 시제품의 와이어 구동부 동작특성

Byung-Suk Park, Jae-Hyun Jin, Tae-Gil Song, Sung-Hyun Kim and Ji-Sup Yoon  
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yuseung-Ku, Daejeon

박병석, 진재현, 송태길, 김성현, 윤지섭  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

#### Abstract

A Bridge Transported Servo Manipulator (BTSM) for Advanced spent fuel Conditioning Process (ACP) has been developed to overcome the limitation of access that is a drawback of Mechanical master-slave manipulators (MSMs) for the equipment maintenance. Wire-driven mechanisms have been adopted to increase the handling capacity to weight. The main disadvantage of the wire driven mechanism is that if one link is in motion, other links can be affected because wires and links are coupled. In this paper, the relationship between pulleys and links are formularized to overcome this drawbacks. Derived equations are proven and analyzed through experiments.

**Key Words** : Advanced spent fuel Conditioning Process, Bridge Transported Servo Manipulator, Wire-driven

#### 요 약

MSM의 결점인 접근 지역의 제한을 극복하기 위해 차세대관리 공정장치 유지보수용 천정이동 서보 매니플레이터(Bridge Transported Servo Manipulator, BTSM) 시제품을 개발하였다. 시제품은 부분적으로 와이어 구동방식을 채택한 단일 팔 형태의 힘반영 마스터-슬레이브 서보 매니플레이터로 중량 및 규모에 비해 취급하중이 기존 마스터-슬레이브 서보 매니플레이터 보다 크다. 와이어 구동 메카니즘은 한 축이 움직일 때 다른 축도 영향을 받을 수 있다. 본 논문에서는 이의 현상을 극복하기 위해 와이어 길이 변화에 대한 관계식을 유도하였으며, 실험을 통해서 검증하였다.

**중심단어** : 차세대관리공정, 천정이동 서보 매니플레이터, 와이어 구동

## 1. 서 론

한국원자력연구소의 사용후핵연료 기술개발부에서는 사용후핵연료의 전처리 공정으로서 ACP(Advanced spent fuel Conditioning Process)를 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).

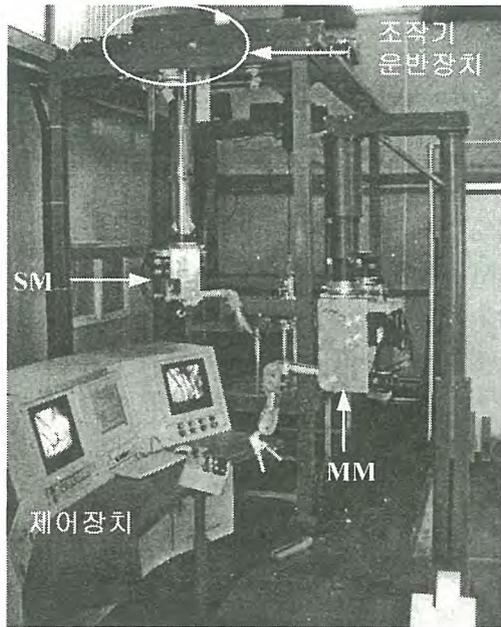
MSM의 이와 같은 단점 때문에, ACP 장치를 유지보수 하기 위한 장비로서 천칭이동 서보 매니플레이터(Bridge Transported Servo Manipulator, BTSM) 시스템이 효과적인 대안으로 대두되었다. 이는 MSM의 결점인 접근 영역과 슬레이브-마스터 간의 힘 전달비의 제한을 극복할 수 있게 한다. BTSM은 크기 및 중량대비 취급 용량을 크게 하기 위하여 토크전달력이 큰 1축, 2축, 3축은 기어 전달 방식을 채택하였고 토크전달력이 비교적 작은 4축, 5축, 6축, 그리고 축은 와이어 전달방식을 사용하였는데 와이어 구동축은 서로 결합(coupling)이 발생하게 된다.

본 논문에서는 BTSM 와이어 구동축에 대한 기구학적 유도식과 이의 분석내용 및 실험을 통한 검증 내용을 소개한다.

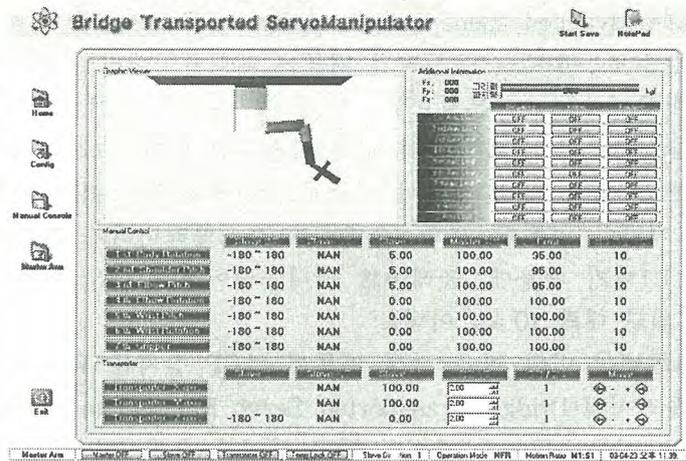
## 2. 천칭이동 서보 매니플레이터 시제품

### 2.1 천칭이동 서보 매니플레이터 시제품 개요

그림 1은 차세대관리공정장치의 유지보수를 위해 개발한 BTSM 시제품을 보여준다. BTSM 시스템은 이송장치, 슬레이브 매니플레이터, 마스터 매니플레이터 및 원격 제어장치로 구성된다. Mockup cell 내 상부에 이송장치가 놓여지며, 이송장치의 텔리스코핑 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(force reflection) 기능을 갖는 서보 매니플레이터이다. BTSM 시스템은 양방향 위치제어(bilateral-positioning control)를 통해서, 힘 센서를 사용하지 않고 접촉 힘을 피드백한다. 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 접촉이 성공의 중요한 요소가 된다.



(a) 천정이동 서보 매니플레이터



(b) 운전 소프트웨어

그림 1. 천정이동 서보 매니플레이터 시스템.

## 2.2 매니플레이터 와이어 구동부 분석

그림 2는 매니플레이터 구동부의 개략적인 모습과 운동 방향 및 축 번호를 보여준다. 비교적 부하가 큰 몸체 회전(1 축), 상부 팔 틸트(2 축) 및 하부 팔 틸트(3 축)는 기어로 구동되며, 나머지 축은 스틸 와이어로 구동된다.

와이어 구동 방식은 기어구동 방식에 비하여 힘반영 원격 조작기(매니플레이터)의 가장 중요한 기능인 힘반영 특성이 매우 우수하다. 이는 기어에서 발생하는 백래쉬(backlash)나 기어에 의한 마찰이 존재하지 않기 때문이다. 또한 적은 공간을 사용하여 원거리 제어가 가능하며, 조작기 하중은 기어를 사용할 때보다 훨씬 작다. 그러나, 와이어 구동 방식은 팔의 자세가 변함에 따라 다음과 같은 현상이 발생할 수 있다. 첫째는 와이어의 길이 변화가 일어날 수 있고, 둘째는 와이어의 길이 변화는 없지만 폴리의 회전이 일어날 수 있다. 이와 같은 현상은 링크(link) 1, 2 및 3이 운동할 때 이의 내부를 관통하는 와이어 및 폴리에서 일어난다. 즉, 링크들은 구조적으로 와이어 구동축들을 서로 결합(coupling) 시킬 수 있다. 따라서, 조작기 팔의 자세가 변하게 되면 와이어 길이가 강제적으로 늘어나 와이어를 파단 시키거나 조작기의 폴리를 파손시킬 우려가 있으며, 부하의 크기에 따라 와이어가 늘어나는 양이 달라 마스터와 슬레이브의 위치 차이가 일어날 수 있으며, 와이어가 통과하는 축의 회전시 와이어로 구동되는 축에도 영향을 주어 조작자의 명령과 다른 동작을 취할 수 있게 된다. 또한, 와이어 길이가 줄어들게 되면 와이어가 폴리로부터 이탈되며, 조작기 팔을 견고하게 지탱하지 못한다. 따라서, 와이어를 사용할 경우에는 조작기 팔의 자세 변화에 따른 와이어의 길이 변화를 최소화하여야 한다.

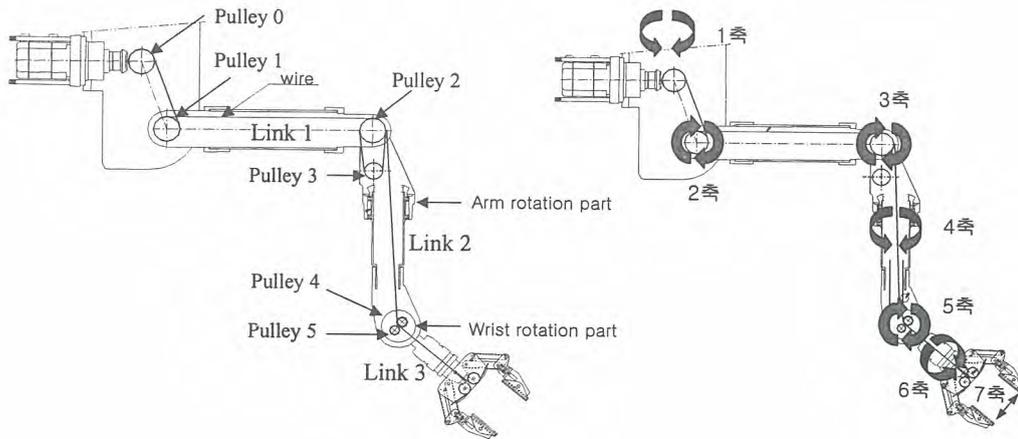


그림 2. 매니플레이터 구동부 개략도.

### 2.2.1 하부 팔 회전 와이어 구동부

풀리 0에서 출발한 와이어는 아이들 풀리(idle pulley) 1 및 2에 각각 1 바퀴씩 감기고 풀리 3에 4.5 바퀴 감긴다. 복귀하는 와이어는 다시 별도의 아이들 풀리 2 및 1에 1 바퀴씩 감기고 풀리 0에서 4.5 바퀴 감긴다. 하부 팔(lower arm)은 풀리 3에 연결된 베벨기어에 의해서 회전된다. 그림 3은 하부 팔을 회전시키는 4 번째 와이어와 풀리만을 표현한 기구학적 개략도이다. 링크 1 및 2의 동작에 따른 하부 팔 회전 운동 와이어의 길이 변화 및 풀리의 회전 현상에 대해서 분석한다. 링크 1 및 2가 각각  $\theta_{AL1}$ ,  $\theta_{AL2}$  회전할 때의 와이어 길이는 다음과 같이 된다.

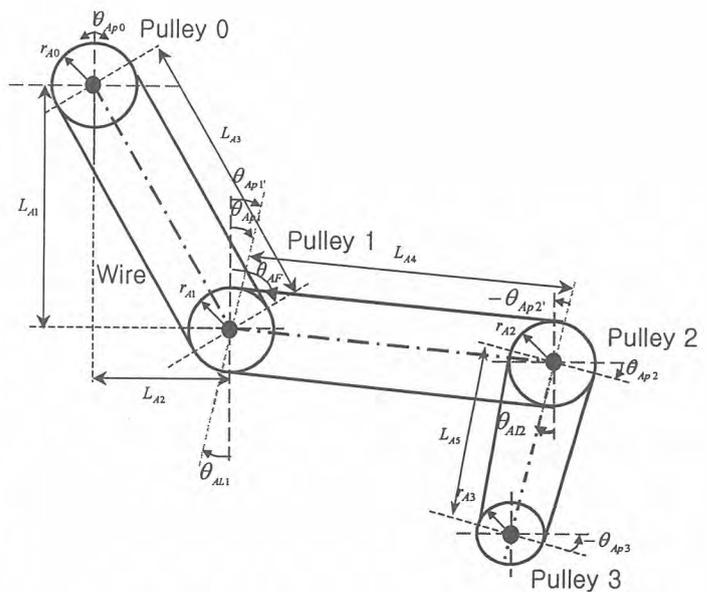


그림 3. 하부 팔 회전 구동부 개략도.

$$L_A = 2(L_{A3} + L_{A4} + L_{A5}) + 4(\pi r_{A1} + \pi r_{A2}) + 9(\pi r_{A0} + \pi r_{A3}) \quad (1)$$

식 (1)에서 볼 수 있듯이  $\theta$ 에 대한 항은 나타나지 않는다. 이는 링크 1과 링크 2가 운동하여도 하부 팔 와이어의 길이 변화가 발생하지 않는 것을 의미한다. 다음에는 링크 1 및 2가 각각  $\theta_{AL1}$ ,  $\theta_{AL2}$  회전할 때의 풀리 회전 현상에 대해 살펴본다.

첫째, 링크 1이 회전하면 링크 1에 연결된 아이들 풀리 1 및 2는 회전하지 않고, 단지 와이어가 아이들 풀리 1 및 2의 상부 및 하부를 각각  $\theta_{Ap1}$  및  $\theta_{Ap2}$  만큼 감싼다.

둘째, 링크 2가 회전하면 하부 팔을 회전 시키는 풀리 3이 회전 하던지, 풀리 0가 회전하게 된다. 즉, 풀리 0가 고정되면 아이들 풀리 2를 감고 있는 와이어 접촉부의 위치 변화에 대응하여 풀리 3이 회전하게 되고, 풀리 3이 고정되면 풀리 0가 회전하게 된다. 여기서 풀리 3이 고정되어 풀리 0가 회전하는 경우는 하부 팔 회전 부를 작업자가 붙잡는 경우이며, 풀리 3이 회전하게 되는 경우는 작업자가 하부 팔을 잡지 않은 상태에서 풀리 0 축의 부하 토크가 하부 팔 회전 토크 보다 큰

경우이다.

하부 팔 회전 부를 고정(이 때 풀리 3도 고정)시킨 상태에서 링크 2 및 1을 동작시키면 아이들 풀리 2의 회전에 의하여 풀리 0가 회전하게 된다. 링크 2의 동작만으로 풀리 0가 회전하는 양은 다음과 같다.

$$\theta_{A\beta 0} = \frac{r_{A2}}{r_{A0}} \theta_{A\beta 2} \quad (2)$$

식 (2)에서 보면, 링크 2의 동작으로 인해 아이들 풀리 2가 회전할 때 풀리 0에서의 회전량은 아이들 풀리 1의 크기와는 관계없이 풀리 0와 아이들 풀리 2의 크기에만 관계있다는 것을 알 수 있다. 링크 1의 동작만으로는 풀리 0가 회전하지 않기 때문에 링크 2 및 1이 동작하더라도 풀리 0의 회전량은 식 (2)가 된다. 이를 링크 2의 각도  $\theta_{AL2}$ 로 표현하면 다음과 같이 된다.

$$\theta_{A\beta 0} = \frac{r_{A2}}{r_{A0}} \theta_{AL2} \quad (3)$$

즉, 풀리 0의 회전량은 링크 1의 동작에 관계없게 된다. 만약 풀리 0가 고정되어 있다면 하부 팔이 회전 운동을 하게 되는데 그 양은 식 (4)와 같이 된다.

$$\theta_{A\beta 3} = \frac{r_{A2}}{r_{A3}} \theta_{AL2} \quad (4)$$

마스터 매니플레이터에 있어서는 작업자가 핸들(handle)을 붙잡고 있기 때문에 링크 2를 움직이면 풀리 0 축의 감속기의 낮은 감속비로 인해 풀리 0가 회전하여 모터가 회전하게 되고, 슬레이브 매니플레이터에 있어서는 링크 2를 움직일 때 풀리 0 축을 회전시키는 감속기 비의 크기에 따라 풀리 0 또는 하부 팔이 회전하게 된다.

그러나, 마스터 매니플레이터와 슬레이브 매니플레이터는 기구적으로 같은 구조이기 때문에 마스터 매니플레이터 풀리 0 축의 회전량을 슬레이브 매니플레이터 0축에 지령하여 일치시키면 두 시스템의 자세는 일치하게 된다.

### 2.2.2 손목 와이어 구동부

풀리 0에서 출발한 와이어는 아이들 풀리 1 및 2에 각각 1 바퀴씩 감기고 풀리 4에 4.5 바퀴 감긴다. 복귀하는 와이어는 다시 별도의 아이들 풀리 2 및 1에 1 바퀴씩 감기고 풀리 0에서 4.5 바퀴 감긴다. 손목은 풀리 4에 연결된 차동기어에 의해서 틸트 및 회전된다. 그림 4는 손목을 회전시키는 5, 6번 축 와이어와 풀리만을 표현한 기구학적 개략도이다.

하부 팔 회전부 및 손목부를 고정시킨 상태에서 링크 1 및 2의 동작에 따른 손목 구동 와이어의 길이 변화 및 풀리의 회전 현상도 식 (5), (6)에서 보는 바와 같이 전술한 하부 팔 회전 와이어 구동부의 분석 결과와 같다.

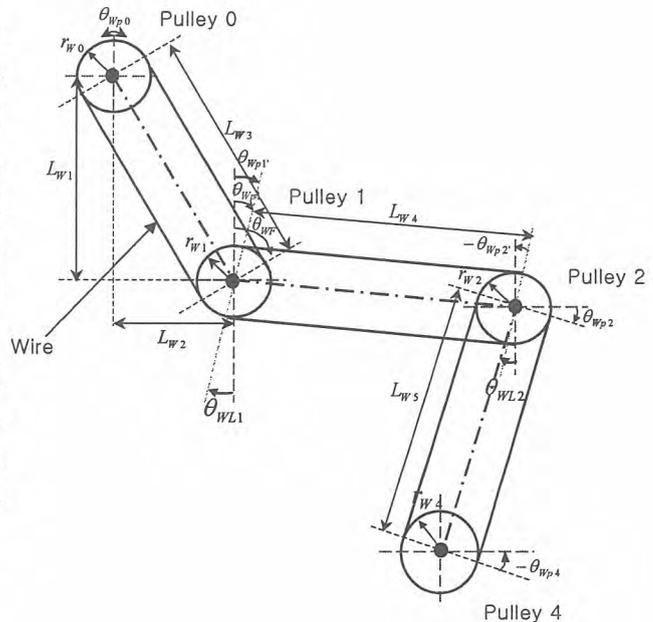


그림 4. 손목 구동부 개략도.

$$L_W = 2(L_{W3} + L_{W4} + L_{W5}) + 4(\pi r_{W1} + \pi r_{W2}) + 9(\pi r_{W0} + \pi r_{W3}) \quad (5)$$

$$\theta_{W0} = \frac{r_{W2}}{r_{W0}} \theta_{WL2} \quad (6)$$

### 2.2.3 그리퍼 와이어 구동부

폴리 0에 2 바퀴감고, 아이들 폴리 1 및 2에 1 바퀴씩을 감은 후 아이들 폴리 5 사이를 지나 그리퍼 집게(jaw) 운동부에 고정된다. 그림 5는 그리퍼의 집게를 운동시키는 7번 축 와이어와 폴리만을 표현한 기구학적 개략도이다.

하부 팔 회전부 및 손목부를 고정시킨 상태에서 링크 1 및 2의 동작에 따른 그리퍼 구동 와이어의 길이 및 폴리의 회전 현상에 대한 분석 결과는 식 (7) 및 (8)과 같다.

$$L_G = L_{G3} + L_{G4} + L_{G5} + L_{G6} + 4\pi r_{G0} + 2\pi r_{G1} \frac{360^\circ - \theta_{GF} + \theta_{GP1}}{360^\circ} + 2\pi r_{G2} + 2\pi r_{G2} \frac{90^\circ + \theta_{GP2} - \theta_{GL2}}{360^\circ} + 2\pi r_{G5} \frac{\theta_{GP2} - (-\theta_{GP5})}{360^\circ} \quad (7)$$

$$\theta_{G0} = \frac{r_{G2}}{r_{G0}} \theta_{GL2} \quad (8)$$

식 (7)에서 보는 바와 같이 링크 1 및 2가 동작할 때 그리퍼 와이어에 길이변화가 일어난다.

링크 3의 동작에 대한 개략도는 그림 6과 같다. 손목 내부 두개의 아이들 폴리 사이를 지나는 그리퍼 와이어는 링크 3이 + 방향(지면을 향한 수직선을 경계로 CW) 동작할 때와 - 방향(지면을 향한 수직선을 경계로 CCW)으로 동작할 때 길이 변화가 다르게 나타난다.

하부 팔 회전부 및 그리퍼 집게를 고정시킨 상태에서 링크 3의 동작에 따른 그리퍼 구동 와이어의 길이 변화에 대한 분석 결과는 식 (9)에서 (12)와 같다. 즉, 손목부가 - 방향으로 올라갈 때는 식 (11) 및 (12)가 되고, 손목부가 + 방향으로 내려갈 때는 식 (11) 및 (12)가 된다.

$$\Delta L_{\theta_{G3-}} = \sqrt{(l_{GW2} + l_{GW3})^2 + (l_{GW1} - l_{GW4})^2 - (r_{G2} + r_{G5})^2} - l_{GW1} + 2\pi r_{G5} \frac{|\theta_{GL3}| + \theta_{GP6}}{360^\circ} \quad (9)$$

$$\theta_{G0-} = \frac{\Delta L_{\theta_{G3-}} \times 360^\circ}{2\pi r_{G0}} \quad (10)$$

$$\Delta L_{\theta_{G3+}} = \sqrt{(l_{GW2} - l_{GW3})^2 + (l_{GW1} - l_{GW4})^2 - (r_{G2} - r_{G5})^2} - l_{GW1} + 2\pi r_{G5} \frac{\theta_{GL3} + \theta_{GP6}}{360^\circ} \quad (11)$$

$$\theta_{G0+} = \frac{\Delta L_{\theta_{G3+}} \times 360^\circ}{2\pi r_{G0}} \quad (12)$$

따라서, 마스터 매니플레이터의 하부 팔 및 핸들을 붙잡고 링크 1, 2, 및 3을 동시에 동작시킬 때, 슬레이브 매니플레이터 그리퍼에 다음과 같은 지령값을 사용하면 와이어 길이변화가 보상된다.

$$\theta_{G0-} = \frac{r_{G2}}{r_{G0}} \theta_{GL2} + \frac{\Delta L_{\theta_{G3-}} \times 360^\circ}{2\pi r_{G0}} \quad (13)$$

$$\theta_{G0+} = \frac{r_{G2}}{r_{G0}} \theta_{GL2} + \frac{\Delta L_{\theta_{G3+}} \times 360^\circ}{2\pi r_{G0}} \quad (14)$$

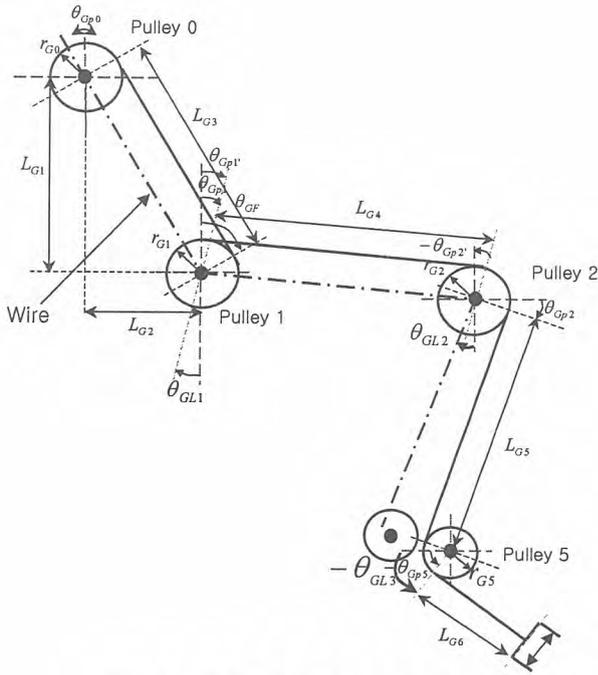


그림 5. 그리퍼 구동부 개략도.

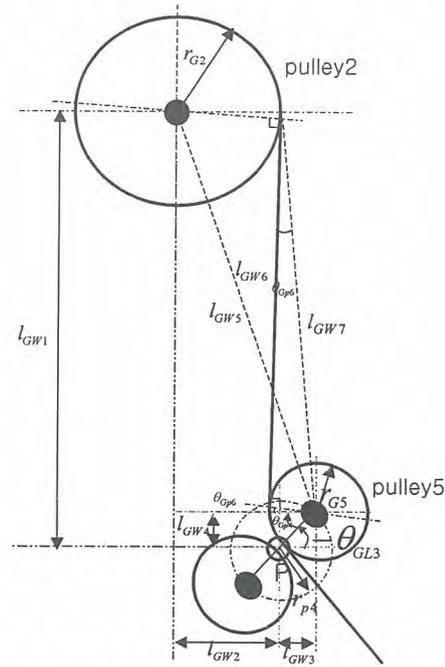


그림 6. 손목 운동시 그리퍼 와이어의 길이 변화.

### 3. 매니플레이터 와이어 구동부 성능시험

#### 3.1 하부 팔 와이어 구동부

링크 1 동작시 와이어 풀리 1의 호의 길이 위를 지나가는 와이어 길이는 풀리 2의 호 위를 지나가는 와이어 길이와 상쇄되어 영향을 받지 않으므로 링크 1의 동작에 따른 하부 팔의 회전각도를 구할 필요성은 없다. 그러나, 링크 2가 동작하게 되면 풀리 2가 회전( $\theta_{AL2}$ )하게 되어 풀리 3을 회전시킨다. 풀리 3은 1/2의 감속비를 갖는 베벨기어로 하부 팔 회전부와 연결된다. 만약 하부 팔 회전부의 풀리 0가 고정된다면 식 (4)에 1/2의 감속비, 풀리 2의 반지름 18 mm 및 풀리 3의 반지름 15 mm를 대입하면 하부 팔의 이론적인 회전량은 다음과 같이 된다.

$$\theta_A = 0.6 \times \theta_{AL2} \quad (15)$$

슬레이브 매니플레이터 링크 2의 수치적인 변화( $\theta_{AL2}$ )에 의한 하부 팔 회전각도와 실제 링크 2의 운동에 의한 하부 팔 회전각도는 그림 7에서 보여 준다. 여기서 보면 이론 식 값과 실제 슬레이브 매니플레이터의 구동에 의한 값은 약간의 차이가 있지만 거의 비슷하게 나타나는 것을 알 수 있다. 차이는 구동모듈의 감속기어와 베벨기어 등에서 발생하는 백래쉬와 와이어의 유연성 때문으로 추정된다.

$\theta_{AL2}$ 의 변화에 의한 하부 팔의 회전을 방지하기 위한 보상 식은 식 (5)로서, 풀리 0의 반지름 30 mm, 풀리 2의 반지름 18 mm를 대입하면 식 (16)과 같이 된다.

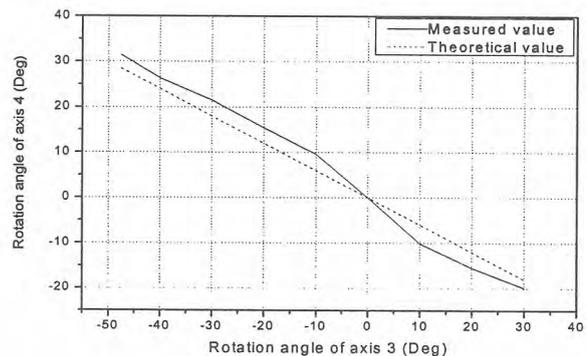


그림 7. 링크 2의 회전에 따른 하부 팔의 회전각도.

$$\theta_{A\theta 0} = 0.6 \times \theta_{AL2} \quad (16)$$

### 3.2 손목 와이어

링크 2의 동작에 따라 풀리 2가 회전( $\theta_{WL2}$ )하게 되고, 이는 다시 풀리 4를 회전시킨다. 만약 손목 구동부의 풀리 0가 고정된다면 식 (6)은 다음과 같이 된다.

$$\theta_W = \frac{r_{W2}}{r_{W4}} \theta_{WL2} \quad (17)$$

따라서, 풀리 2의 반지름 18 mm와 풀리 4의 반지름 33 mm를 대입하면 다음 식과 같이 된다.

$$\theta_W = 0.545 \times \theta_{WL2} \quad (18)$$

슬레이브 매니플레이터 링크 2의 수치적인 변화( $\theta_{WL2}$ )에 의한 손목 회전각도와 실제 링크 2의 운동에 의한 손목 회전각도는 그림 8에서 보여 준다.

여기서도 보는 바와 같이 이론 식에 의한 값과 실제 슬레이브 매니플레이터의 구동에 의한 값과는 약간의 오차가 발생하는 것을 알 수 있다. 이 또한 구동모듈의 감속기어와 손목부 차동기어 등에서 발생하는 백래쉬와 와이어의 유연성 때문으로 추정된다.

$\theta_{WL2}$ 의 변화에 의한 손목의 회전을 방지하기 위한 보상 식은 식 (6)으로서, 풀리 0의 반지름 18 mm, 풀리 2의 반지름 18 mm를 대입하면 식 (19)와 같이 된다.

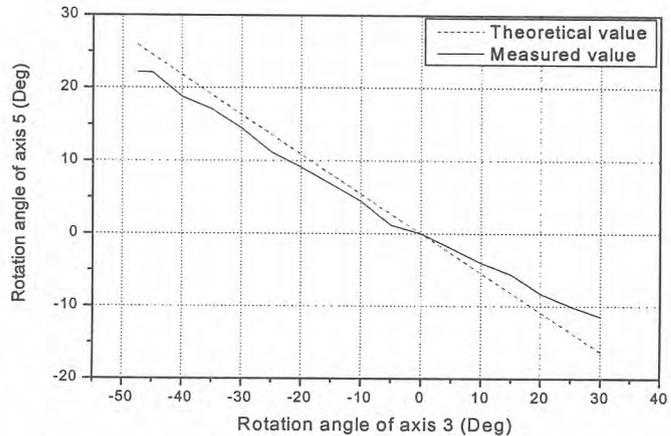


그림 8. 링크 2의 회전각도에 따른 손목의 회전각도.

$$\theta_{W\theta 0} = \theta_{WL2} \quad (19)$$

### 3.3 그리퍼 와이어

링크 2의 동작에 따라 풀리 2가 회전( $\theta_{GL2}$ )하게 되고, 이는 다시 풀리 5를 거쳐서 그리퍼의 집게를 움직이게 한다. 이 때 회전된 풀리 2의 호 길이의 3배가 식 (20)에 보는 바와 같이 그리퍼 집게의 변위로 작용한다. 여기서, 풀리 2의 반지름 18 mm를 대입하면  $\theta_{GL2}$ 에 대한 그리퍼 변위에 대한 식은 (21)과 같이 된다.

$$L_{G\theta 2} = 6\pi r_{G2} \frac{\theta_{GL2}}{360^\circ} \quad (20)$$

$$L_{G\theta 2} = 108\pi \frac{\theta_{GL2}}{360^\circ} \quad (21)$$

슬레이브 매니플레이터 링크 2의 수치적인 변화( $\theta_{GL2}$ )에 의한 그리퍼 변위와 실제 링크 2의 운동에 의한 그리퍼 변위는 그림 9와 같다. 여기서도 보는 바와 같이 이론 식에 의한 값과 실제 슬레이브 매니플레이터의 구동에 의한 값과는 약간의 오차가 발생하는 것을 알 수 있다.

링크 3이 (-)방향으로 동작할 때 ( $-\theta_{GL3}$ ), 풀리 5의 회전으로 인하여 와이어의 길이 변화가 발생하여 그리퍼에 전달되며, 이 때 변화된 길이의 3배가 그리퍼의 변위로 작용한다. 식 (9)에 아래의 변수 값을 대입하여  $-\theta_{GL3}$ 에 대한 그리퍼의 변위를 구하면 식 (22)와 같이 된다.  $l_{GW1} = 333.75\text{mm}$ ,  $l_{GW2} = 17.5\text{mm}$ ,  $r_{G2} = 18\text{mm}$ ,  $r_{G5} = 9.1\text{mm}$ ,  $r_M = 11\text{mm}$

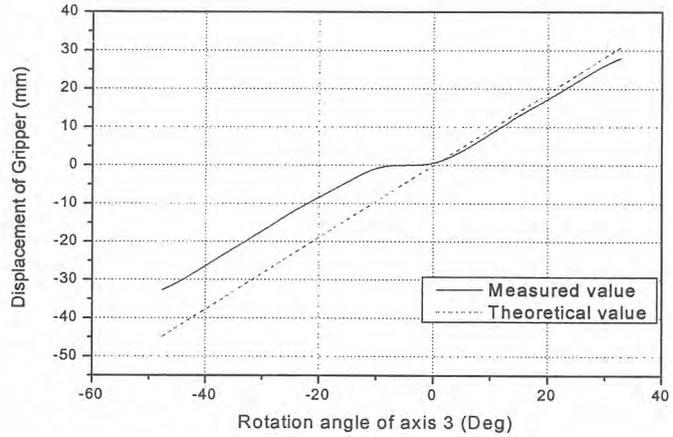


그림 9. 링크 2의 회전에 따른 그리퍼 변위.

$$\Delta L_{G\theta 3-} = 3(A + 18.2\pi \frac{|-\theta_{GL3}| + \tan^{-1} \frac{9.1}{A}}{360^\circ} - 333.75) \quad (22)$$

여기서,  $A = \sqrt{(17.5 + 11 \cos |-\theta_{GL3}|)^2 + (333.75 - 11 \sin |-\theta_{GL3}|)^2 - (18 + 9.1)^2}$ 이다. 링크 3이 (+)방향으로 동작할 때 식 (11)을 이용하여  $\theta_{GL3}$ 에 대한 그리퍼 변위를 구하면 식 (23)과 같이 된다.

$$\Delta L_{G\theta 3+} = 3(B + 18.2\pi \frac{\theta_{GL3} + \tan^{-1} \frac{9.1}{B}}{360^\circ} - 333.75) \quad (23)$$

여기서,  $B = \sqrt{(17.5 - 11 \cos \theta_{GL3})^2 + (333.75 - 11 \sin \theta_{GL3})^2 - (18 - 9.1)^2}$ 이다.  $\theta_{GL3}$ 의 변화에 의한 그리퍼 변위는 그림 10에서 보는 바와 같이 비선형 특성을 나타낸다.

$\theta_{GL2}$  및  $\theta_{GL3}$ 에 의한 그리퍼의 움직임을 방지하기 위한 보상식은 식 (13) 및 식 (14)에 풀리 0의 반지름 18 mm를 대입하면 다음과 같이 된다.

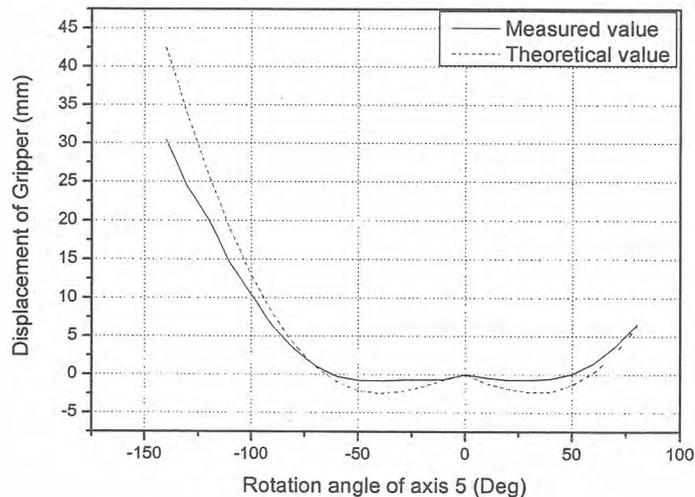


그림 10. 링크 3의 회전에 따른 그리퍼 변위.

$$\theta_{G\theta-} = \theta_{GL2} + \left( \frac{A}{36\pi} + \frac{18.2\pi \frac{|-\theta_{GL3}| + \tan^{-1} \frac{9.1}{A}}{360^\circ} - \frac{333.75}{36\pi}}{36\pi} \right) \times 360^\circ \quad (24)$$

$$\theta_{G\theta+} = \theta_{GL2} + \left( \frac{B}{36\pi} + \frac{18.2\pi \frac{\theta_{GL3} + \tan^{-1} \frac{9.1}{A}}{360^\circ} - \frac{333.75}{36\pi}}{36\pi} \right) \times 360^\circ \quad (27)$$

#### 4. 결 론

본 논문에서는 천정이동 서보 매니플레이터의 와이어 구동부를 분석하였다. 또한 와이어 구동축의 운동으로 인한 와이어 길이 변화식을 유도하고, 실제 실험에 적용하여 검증하였다.

- (1) 마스터 매니플레이터와 슬레이브 매니플레이터의 4번, 5번, 6번, 그리퍼 축이 와이어로 구동함에 있어서 매니플레이터의 자세에 따른 와이어 전체 길이 변화는 없음을 알 수 있었다.
- (2) 와이어를 사용하는 매니플레이터의 자세에 따른 다른 축과의 간섭을 파악 할 수 있었고, 이동량을 계산식으로 유도할 수 있었다.
- (3) 유도된 계산식으로부터의 계산량과 슬레이브 매니플레이터의 실제 이동량을 비교해 본 결과 감속기어와 베벨 기어, 와이어를 사용함으로 인하여 약간의 offset과 위치오차가 발생하는 것을 알 수 있었다.
- (4) 수학적 계산식으로부터 3번축 회전과 5번축 회전에 발생하는 4축, 5축, 그리퍼축 와이어의 이동량을 서보모터로 제어 할 수 있는 보상식을 유도 할 수 있었다.
- (5) 보상식을 이용하여 각도에 따른 보상값을 구하여 마스터의 입력값에 보상량을 더하여 슬레이브의 그리퍼를 제어하여 본 결과 3번축 회전에 의한 그리퍼 이동량에서는 5 mm이내로 나타났으며, 5번축에서는 5 mm이내의 오차를 보여 주었다.

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력 중장기연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

#### 참고문헌

- [1] 박병석, 진재현, 안성호, 최민규, 이종열, 윤지섭, "방사선 환경 작업용 힘반영 서보 매니플레이터 개발," 2003 ICASE 합동학술발표대회(부산경남울산지부)논문지, Dec., 2003.
- [2] M. Shugen "Development of coupled tendon-driven multijoint manipulator," IEEE/RSJ Int. Workshop. Intelligent Robots and Systems IROS '91, Nov, 3-5, OSAKA, JAPAN, pp. 725-730, 1991.
- [3] H. Shigeo "Coupled tendon-driven multijoint manipulator" Proceedings of the 1991 IEEE Int. Conf. Robotics and Automation Sacramento, pp. 1268-1278, 1991.
- [4] G. M. Prisco and M. Bergamasco "Dynamic modelling of a class of tendon driven manipulators," ICAR '97, IEEE, pp. 893-899, 1997.

## OREOX 공정에서 사용후핵연료로부터 핵분열기체 방출거동

박근일, 김웅기, 이도연, 이영순, 이정원, 양 명승  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

사용후핵연료를 이용한 건식 핵연료 원격 제조 공정중 OREOX공정으로부터 핵분열기체 방출특성 평가를 위한 실험을 수행하였다. 사용후핵연료 분말화 공정인 1차 산화 및 OREOX공정에서 방출되는 핵분열기체를 실시간으로 측정할 수 있는 장치를 제작·설치하였으며, 측정 대상 핵분열기체는 Kr-85를 포함하여 C-14( $^{14}\text{CO}_2$  형태), I-129, 기체상 트리튬 등이다. 그림 1은 방출되는 핵분열기체를 포집 또는 연속측정하기 위한 개념도이며, 그림 2는 핫셀구역에 설치된 장치 사진이다. 실험에 사용된 사용후핵연료는 평균 연소도 27,000 MWD/MTU, 냉각기간 16년인 사용후핵연료(G23-C13A)와 평균 연소도 65,000 MWD/MTU, 냉각기간 2.6년인 고연소도 사용후핵연료(K23-M03)였다. 분말화를 위하여 1차 산화(500°C, 5시간)처리후 OREOX 공정(500°C 산화 2시간, 700°C 환원 7시간, 3-cycles)을 거치게 되며, 두 공정에서 방출된 Kr-85 및 C-14( $^{14}\text{CO}_2$ )의 시간에 따른 방출거동을 분석하였다. 그림 3은 G23-C13A 사용후핵연료를 사용하여 1차 산화후 OREOX 공정에서 방출되는 Kr-85 핵분열기체의 count수 변화를 나타낸 결과로서, 1차 산화과정인 500°C에서 Kr-85가 방출되었기 때문에 OREOX 공정중 첫 번째 산화과정에서 방출되지 않는 것으로 나타났으며, 1-cycle OREOX과정에서 Kr-85는 전량 방출되는 것으로 확인되었다. 이러한 방출거동은 그림 4의 K23-M03 고연소도 사용후핵연료에서도 나타났는데, 1차 산화과정중 약 350°C부터 Kr-85가 방출되기 시작하여 500°C에 도달후 약 2시간동안 핵연료 외부 표면으로부터 방출되는 것으로 나타났다. Kr-85의 방출거동은 기체 분위기에 의존하지 않고 온도만의 함수임을 그림 5를 통하여 확인할 수 있었다. 그림 5는 K23-M03 사용후핵연료 산화분말을 OREOX 처리하는 과정에서 방출된 Kr-85 거동을 측정한 결과인데, 그림 3의 결과와 유사하게 1-cycle 산화 과정에서는 기체 방출이 이루어지지 않고 1-cycle 환원 단계로의 승온과정인 약 550°C부터 다시 방출이 되기 시작한 것으로 나타나 Kr-85 핵분열기체는 핵연료내 입체로부터 확산에 의하여 방출거동이 지배를 받고 있음을 확인하였고, K23-M03 고연소도 사용후핵연료는 G23-C13A와 다르게 Kr-85는 2nd-cycle OREOX공정을 거친 후 전량 방출되는 것으로 나타났는데, 이는 사용후핵연료내 total inventory의 차이에 의하여 기인된 것으로 여겨진다. 그림 6은 K23-M03 사용후핵연료 일차 산화분말의 OREOX 처리과정에서 시간에 따른 C-14( $^{14}\text{CO}_2$ )의 방출거동을 측정한 결과이다. C-14 핵분열기체는 1.5M NaOH 용액에 흡수시킨 후 LSC 분석을 통하여 구하였으며 그림 6의 결과는 시간에 따른 용액의 농도 변화로서 누적량을 나타내고 있다. 그림에서 보는 바와 같이 1-cycle 산화과정에서는 거의 방출이 되지 않았지만 환원과정인 700°C에 도달한 후 방출되기 시작하여 2nd-cycle OREOX 과정이후 거의 방출되지 않는다는 것을 확인하였다. 지금까지 500°C 산화분위기에서 사용후핵연료로부터 핵분열기체중 트리튬은 100%인 반면 C-14은 약 20% 정도를 방출되는 것으로 알려져 있는데, 본 결과를 바탕으로 사용후핵연료 분말화 공정에서 핵분열기체를 전량 방출시키기 위해서는 적어도 700°C에서 운전하여야 함을 간접적으로 유추할 수 있었다.

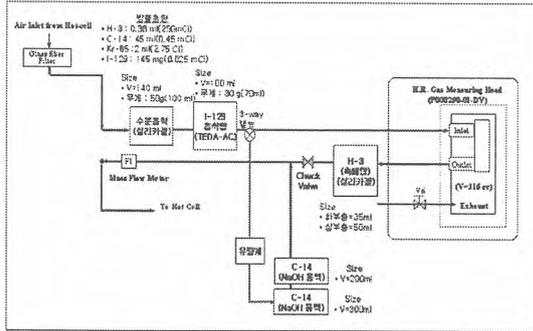


그림 1. 핵분열기체 방출거동 시험 장치흐름도

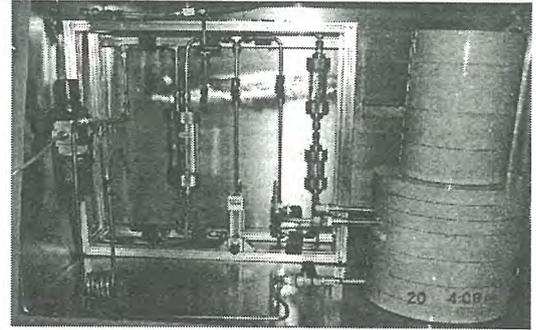


그림 2. 핫셀구역에 설치된 핵분열기체 방출 거동 시험장치

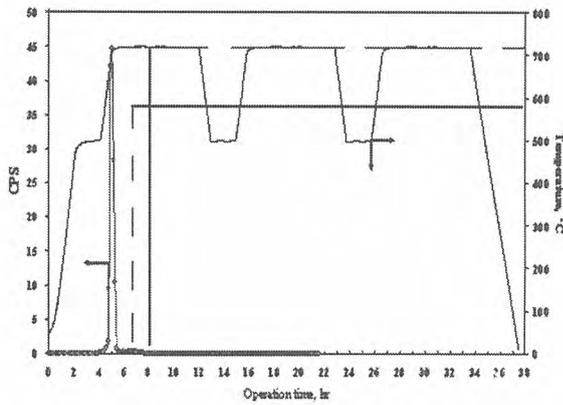


그림 3. G23-C13A 사용후핵연료 OREOX 공정중 시간에 따른 Kr-85 방출거동.

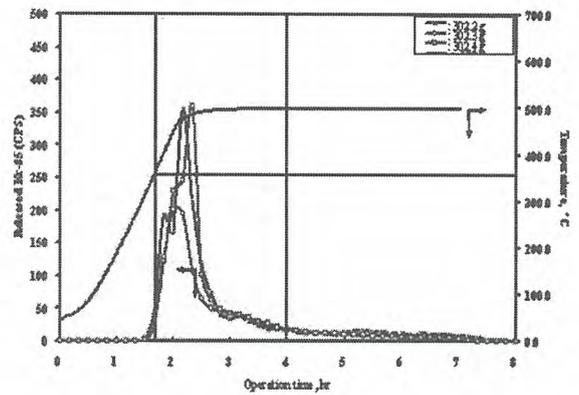


그림 4. K23-M03 사용후핵연료 1차 산화공정에서 시간에 따른 Kr-85 방출거동.

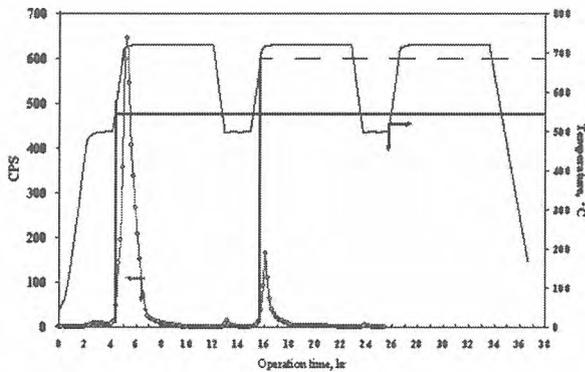


그림 5. K23-M03 사용후핵연료 OREOX 공정중 시간에 따른 Kr-85 방출거동.

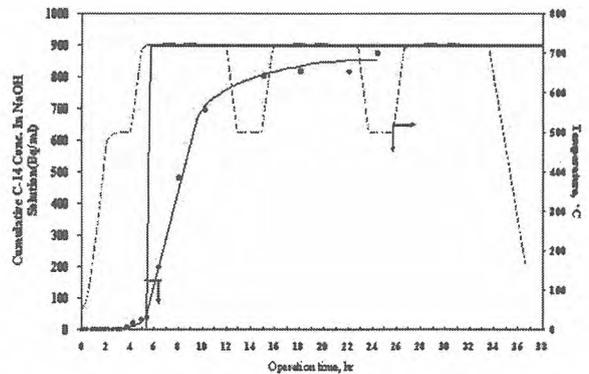


그림 6. K23-M03 사용후핵연료 OREOX공정에서 시간에 따른 C-14 방출거동.

## 참가신청서

참석자 성명	박 근일	
소속기관명	한국원자력연구소	
연락처	주소	(305-353) 대전시 유성구 덕진동 150 한국원자력연구소 핵연료 원격제조 기술개발
	전화	042-868-2290
	E-MAIL	ngipark@kaeri.re.kr
사전등록	사전등록여부	등록예정
	사전등록자명	박 근일, 이 정원
* 아래는 논문제출하시는 분만 작성하세요		
논 문 명	OREOX 공정에서 사용후핵연료로부터 핵분열기체 방출거동	
논문유형	ORAL(    ) / POSTER( ○ )	
논문발표 희망분과	방사성폐기물 정책 (    )    방사성폐기물 처리 (    ) 방사성폐기물 처분 (    )    사용후핵연료 및 핵연료주기 ( ○ ) 방사선안전 및 환경(    )	
※기타 문의사항은 학회사무국(042-861-5851)으로 해주시기 바랍니다. FAX 042-861-5852,    e-mail: krs@kaeri.re.kr		

## The Effect of Processing Parameters on the Deposition Behavior of a Spent Fuel Surrogate in the Molten Salt Electrorefining

Jong-Hyeon Lee, Young-Ho Kang, Sung-Chan Hwang, Eung-Ho Kim and Jae-Hyung Yoo

Korea Atomic Energy Research Institute

P.O. Box 105, Yuseong

Daejeon, 305-600, Korea

### Abstract

The electrorefining experiments with an anode composed of U, Y, Gd, Nd and Ce (or U, Gd, Dy and Ce) were carried out in the KCl-LiCl eutectic melt at 500 °C. Uranium was the major component in the cathode deposits at the high initial uranium concentration, and the separation factors of the uranium with respect to the rare earths (REs) were calculated according to the applied voltage and the uranium concentration in the molten salt. The current efficiency was inversely in proportion to the applied voltage in the range of 1.0 V to 1.9 V (vs. STS304L). The dependency of the applied voltage on the current efficiency as well as the deposition rate was discussed in terms of the microstructural feature and crystal structure of the deposit.

**Key Words** : electrorefining, eletrodeposition, molten salt, separation factor, dendrite

### 1. Introduction

During last decade, interests in the pyrometallurgical treatment of spent nuclear fuel have been drastically increased because of its relatively low processing cost as well as its proliferation resistance of the nuclear fuel cycles [1,2]. More recently it has become one of the important requirements to recover long-lived nuclides, since the geological disposal of high level waste is encountering big difficulties in obtaining public acceptance. Also, the recovered Uranium, transuranium (TRU) and rare earth elements (REs) can be utilized as a fuel source again and as functional materials. From this point of view, the recovering of long-lived nuclides is awakening new interests in the fuel cycle process not only for reprocessing but also for the partitioning and transmutation of transuranium elements. Among the proposed pyrometallurgical reprocesses, only a couple of methods based on electrochemical separations have been investigated intensively and developed to a plant

scale. The Argonne National Laboratory (ANL) and the Russian Institute for Atomic Reactors (RIAR) are pioneering groups who have developed the pyrometallurgical reprocessing routes. The main streams of these routes are divided into the electrorefining process of irradiated alloy fuel from the Integral Fast Reactor (IFR) concept and the electrochemical reduction of oxides from the chlorinated irradiated oxide fuel both in a molten salt.

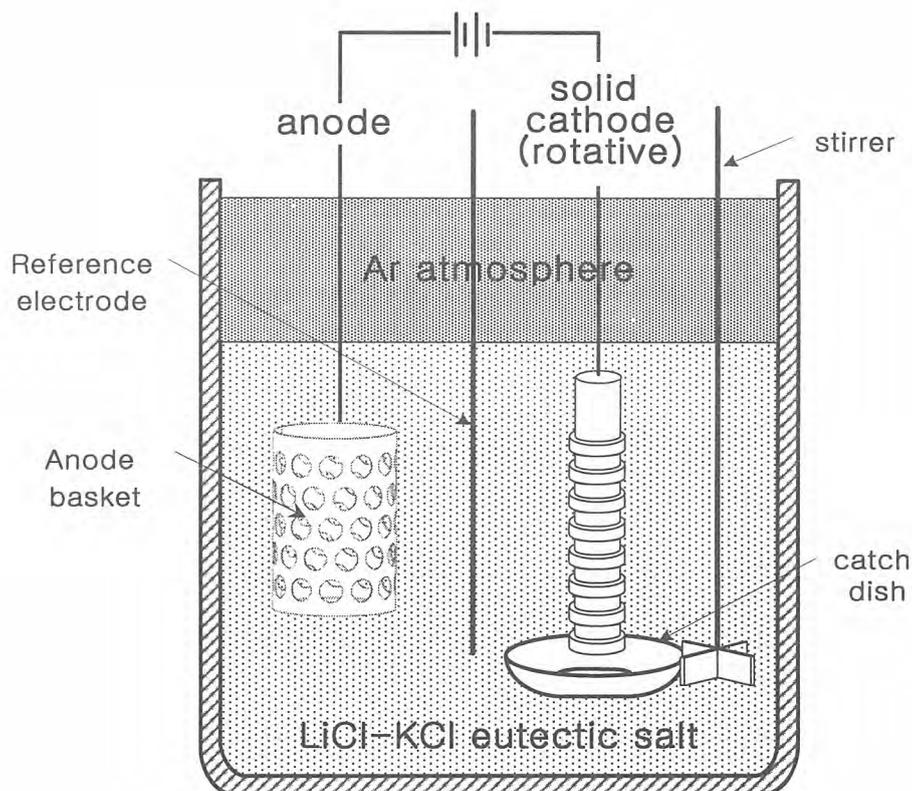
The main scientific and technological interests in the electrochemical process are how to effectively partition a spent fuel into Uranium, TRU and fission products (FPs). For this, vast researches have been conducted as a matter of national policy. However, there are still a few fundamental obstacles to be overcome such as understanding the interaction among the species in a molten salt, microstructural change of the deposits according to the processing parameters and its effect on the total yield. Furthermore the systematic investigation of the electrorefining characteristics of the uranium in a chloride coupled with crystal structural evaluation have not been reported [3~9]. Hence in this study, a series of electrorefining processes was performed on a spent fuel surrogate to obtain the optimum processing parameters for enhancing the partitioning efficiency of the components.

## 2. Experimental

The electrorefining apparatus is shown in Fig. 1 schematically. The solid cathode with a rugged groove can be rotated during electrodeposition to achieve a better recovery and the molten salt itself is also agitated by means of a submerged stirrer. An alumina catch dish was located underneath the cathode to collect any deposits dropping off. A deposition rate was calculated by weighing the deposit scraped from the cathode after washing and dividing it by the bare cathode surface area and deposition time. The anode, cathode and reference electrode were STS 304L for the chloride molten system. High purity LiCl-KCl eutectic (41.5–58.2 mol%,  $T_m$ : 355 °C) as a chloride electrolytes and rare earth salts of 99.9% purity were purchased from Sigma-Aldrich. All the chemicals were handled in the glove box in which both the oxygen and water contents in the argon atmosphere were maintained lower than 10 ppm. The alumina cell was located in a stainless steel thermowell which was heated externally with an electric furnace attached to the floor of a glove box.

The temperature was controlled at 500 °C and the melts were stirred at the rate of 75 rpm throughout the experiment. Electrodepositions were performed by the use of an Ecohemie Autolab. 30 potentiostat controlled by a data acquisition system. First preliminary solid cathode tests were carried out by using LiCl-KCl eutectic salt containing uranium, yttrium and three REs (Gd, Nd and Ce). The concentrations of the total metal ion were kept at 3~10 wt% throughout the experiment. The yttrium and three REs which have similar electrochemical characteristics with TRU were formulated as a spent fuel surrogate, since

there are difficulties in handling of the TRU in Korea. Especially, a series of electrorefining with the REs (Gd, Dy, Ce) was performed separately, in order to more precisely confirm the feasibility to use Ce and Dy as TRU surrogates. The concentration of the uranium and REs in the molten salt and deposits were determined by ICP-AES. The crystal structure was analyzed by X-ray diffractometer with  $\text{CuK}\alpha$ . The morphologies of the micro deposits were analyzed by a compact micro vision system (HIROX KH-2200MD2) after removing the attached salt from them.



**Fig. 1. Experimental apparatus for molten salt electrorefining**

### 3. Results and discussion

Typical cyclic voltammogram of the chloride molten salt system is shown in Fig. 2. Four peaks occur during the complete potential sweep cycle; two cathodics corresponding to the electrochemical reduction of the  $\text{UCl}_3$  and REs chloride at  $-1.4$  and  $-1.9\text{V}$  respectively, and two anodics corresponding to the dissolution of the uranium and REs as the potential sweep is reversed. Figure 3 shows the effect of an applied voltage on the current efficiency and deposition rate of the chloride molten salt systems containing uranium and REs. The current efficiency was calculated as follows;

$$\text{Current Efficiency}(\%) = \frac{Y_a}{Y_t} \times 100 \quad (1)$$

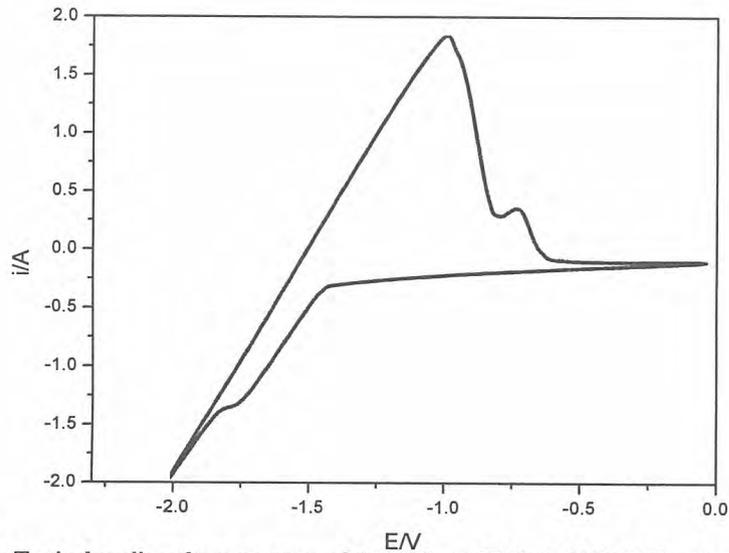


Fig. 2. Typical cyclic voltammogram of the  $\text{UCl}_3$  and REs in KCl-LiCl eutectic at 500 °C (scan rate: 100mv/s).

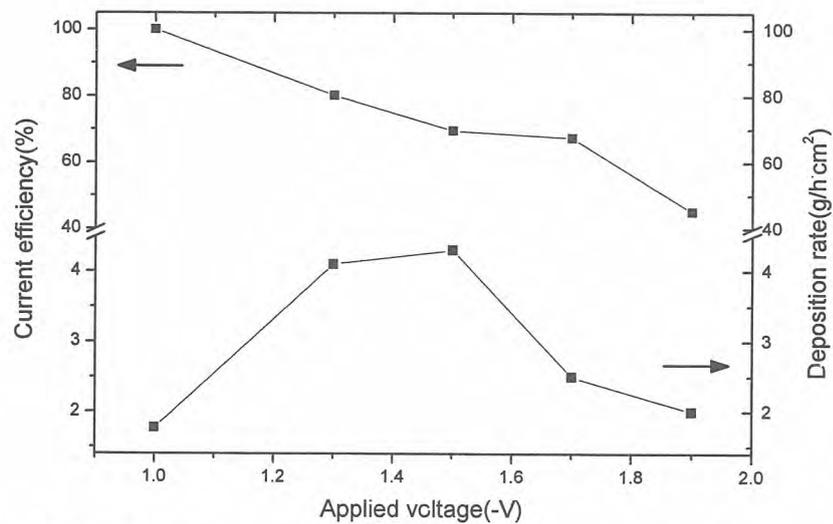
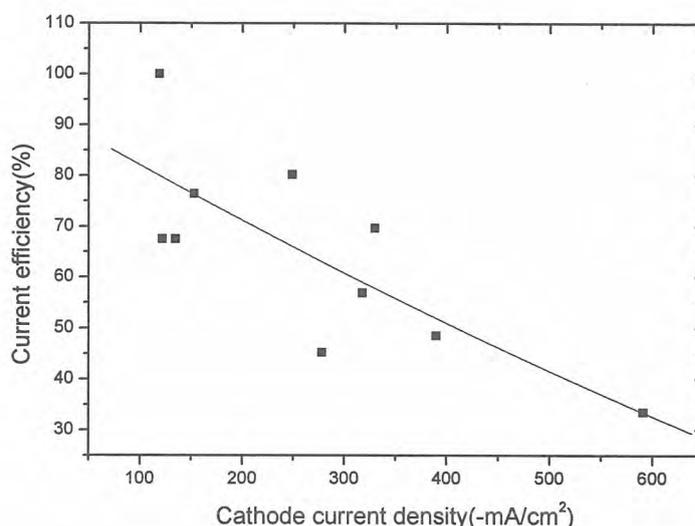


Fig. 3. Effect of the applied voltage on the current efficiency and deposition rate (initial U concentration in molten salt: 3wt%).

Where  $Y_a$  and  $Y_t$  are the actual yield and theoretical yield of the deposits that would have been collected based on the electrodeposition current (ampere-hours), respectively. The current efficiency was calculated as 80~100 % whereas it decreased as the applied voltage increased. The size of the deposit decreases as the applied voltage increases because the nucleation sites by the discharged metal ions increase on the cathode surface. Other possible reasons for the potential dependant morphology are the kinetic selection and twinning processes [11], however further explanations are not accessible for the present

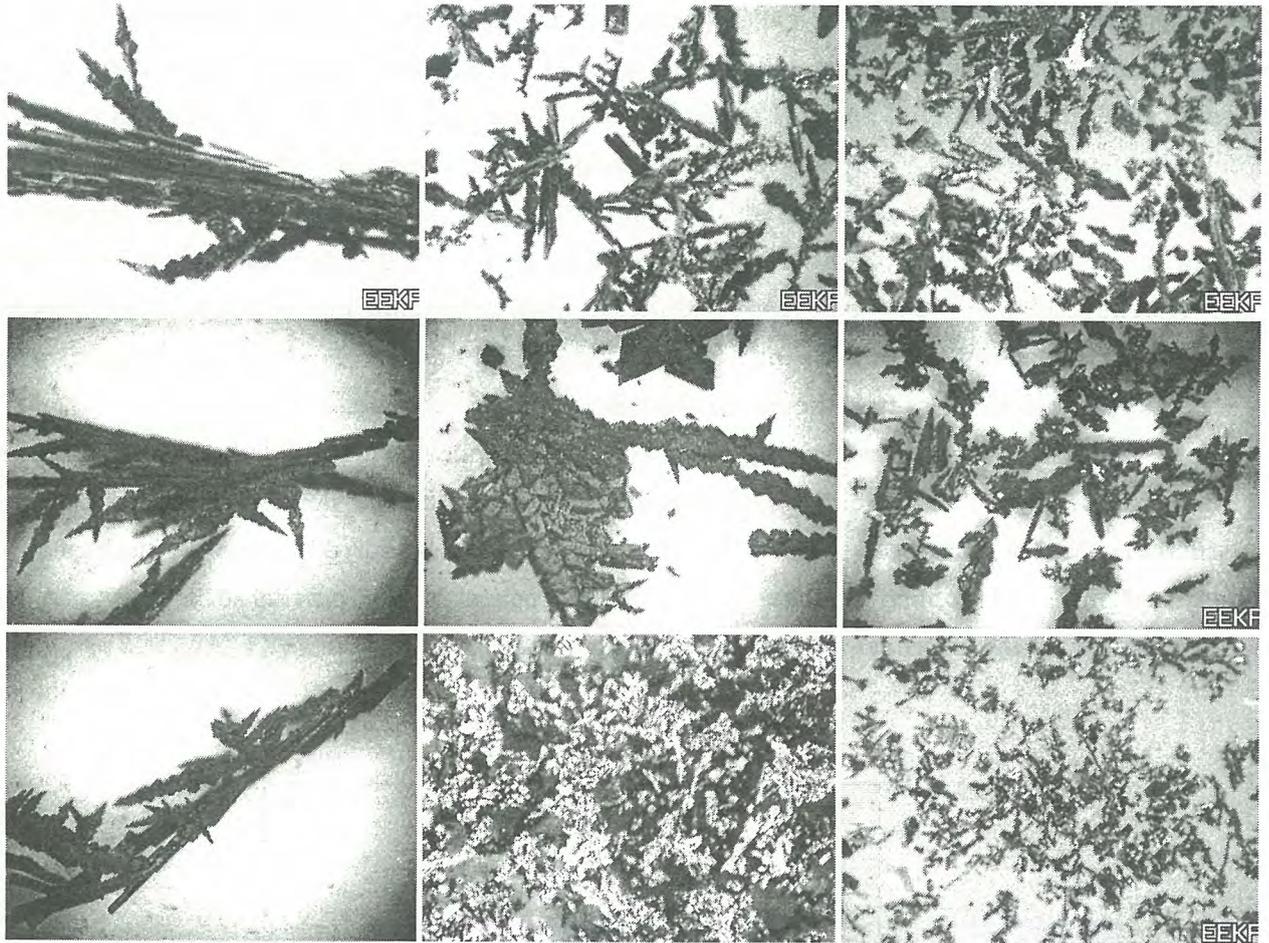
experiments. Hence, the lower yields of the deposits at a higher applied voltage are because the deposit particle size decreased as the applied voltage increased and then some of the deposits occasionally fell not only from the cathode but also out of the catch dish in the case of the finer particles. Generally a large quantity of eutectic salt adheres to the cathode deposits which could also decrease the metal fraction in the total deposit. The deposition rate increased as the applied voltage increased up to  $-1.5V$ , and then decreased after that. It is believed that  $-1.0V$  was too low for the uranium halogenides to decompose and deposit on the cathode, and the decreasing of the deposition rate at above  $-1.5V$  may connect with the morphological characteristic of the deposit as aforementioned.

The overall current efficiency according to the measured cathode current density is depicted in Fig. 4. It is clearly seen that the current efficiency decreases as the cathode current density increases. Based on the ohm's law, a current density increases in proportion to an applied voltage. Hence the decrease of the current efficiency can be interpreted by the decrease of the deposit particle size.



**Fig. 4. Effect of the current density on the current efficiency  
(initial U concentration in molten salt: 3wt%).**

In order to closely check the effect of the current density on the morphology of the deposit, microphotographs of the deposit on the cathode were taken after removing the adhered salt as shown in Fig. 5. The deposits formed by electrorefining are generally observed as a dendrite structure. The morphology of the deposit drastically changes according to the current density as well as the initial uranium concentration in the molten salt. A whisker like dendrite structure was found at a relatively low uranium concentration



**Fig. 5. The microstructure of the deposited uranium according to the current density at different initial uranium concentrations (electrorefining time:1800sec).**

a) -97 mA/cm <sup>2</sup>	b) -174 mA/cm <sup>2</sup>	c) -310mA/cm <sup>2</sup>	at 3wt% of U
d) -87 mA/cm <sup>2</sup>	e) -156 mA/cm <sup>2</sup>	f) -326mA/cm <sup>2</sup>	at 6wt% of U
g) -35 mA/cm <sup>2</sup>	h) -109 mA/cm <sup>2</sup>	i) -373mA/cm <sup>2</sup>	at 9wt% of U

(3 wt%) and a low applied current density (50 mA/cm<sup>2</sup>), see Fig. 5 a), d) and g). In this case, the deposition rate is low. It should be noted that the current density also changes the needle like dendrite shape into a rhombic crystal. When the current density is relatively low below 100 mA/cm<sup>2</sup>, the formation of a whisker like dendrite is dominant, whereas the rhombic dendrite structure is formed predominantly at a higher current density above 300 mA/cm<sup>2</sup>. In the middle of the current density, whisker like and rhombic dendrite were formed simultaneously as shown in Fig. 5 b), e) and h). In order to clarify the crystal structural change with the current density, X-ray diffraction patterns were obtained on the uranium deposit as shown in Fig. 6. It was confirmed that the deposit on the cathode is  $\alpha$ -uranium(JCPDS No. 24-0748) with (021) and (002) equally developed. The (021) plane was drastically decreased, practically invisible, as the applied current increased and any other peaks are also eliminated. It is believed that that the growth of (002) plane should be

relatively easy in terms of the accumulation of electric charge, hence leads the formation of plate like rhombic uranium crystal structure. However the determinant step of the deposit morphology is not clear with this data, so the morphological change of the deposit with electrorefining time was investigated as shown in Fig. 7. In the initial period (900 sec) of the formation of the deposit, Fig. 7 a), fine dendrite pieces are formed on the surface of the cathode. Succeeding the dendritic growth a metallic crystal starts to form from the sharp edge of the deposit on which an applied current is concentrated, Fig. 7 b). As the deposition time increased to 1800 sec, rhombic or whisker like dendrite grow, Fig. 7 c), and a further increase of the deposition time promoted the formation of the rhombic dendrite chain, Fig. 7 d).

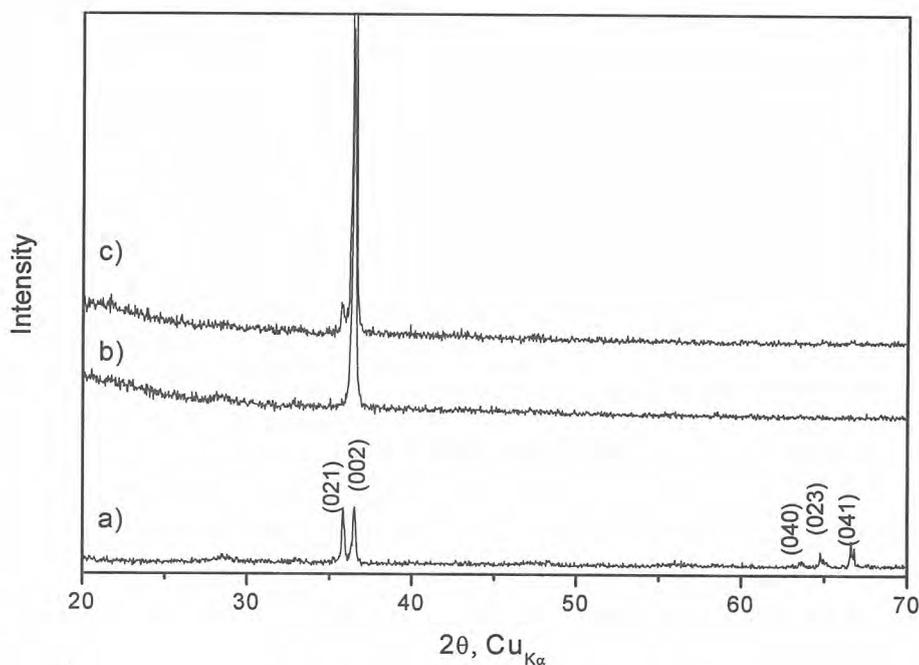


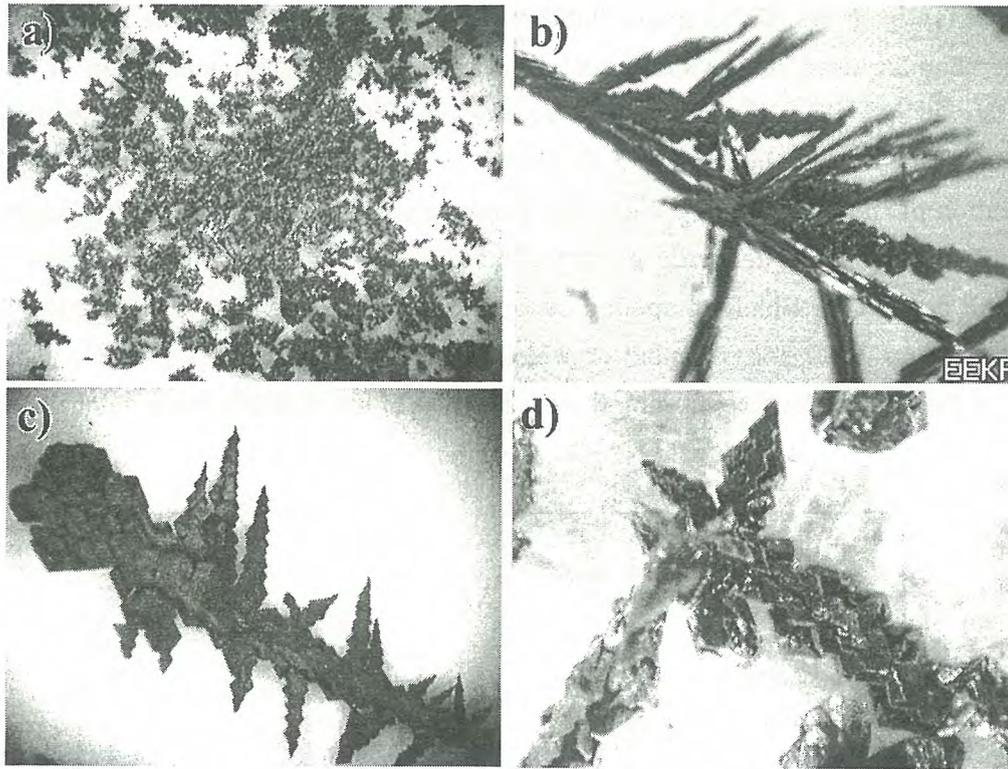
Fig. 6. X-ray diffraction patterns of uranium obtained from different current density.

a) 40mA/cm<sup>2</sup>

b) 100mA/cm<sup>2</sup>

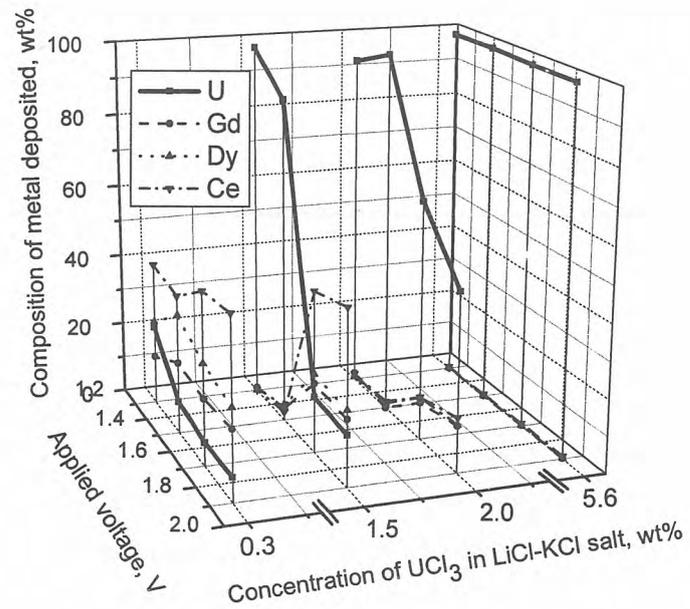
c)200mA/cm<sup>2</sup>

A series of electrorefining with the REs(Gd, Dy, Ce) according to an initial U concentration in the molten salt to precisely confirm the feasibility to use Ce and Dy as TRU surrogates. In the relatively high initial U concentration of 5.6 wt%, nearly pure U was deposited on the cathode surface in the whole range of applied voltage and Gd, Dy and Ce were hardly observed in the deposit as shown in Fig. 8. However, REs concentration on the cathode surface increased especially at relatively high applied voltage, as the initial U concentration decreased. It was observed that the fraction of U in the deposit in the range of 1.5~2.0 wt% up to -1.5V was generally observed high, however sharply decreased as the applied voltage increased. The REs content in the deposit at above -1.7 V in the 1.5 wt% of UCl<sub>3</sub> exceed the U content. Furthermore, all the REs except Gd were main deposit in



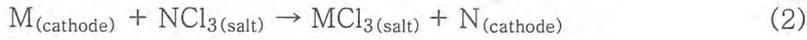
0.5mm

**Fig. 7. Dendrite development pattern according to the electrorefining time**  
 (initial U concentration in molten salt: 3wt%, current density:-242mA/cm<sup>2</sup>).  
 a) 900 sec      b) 1200 sec      c) 1800 sec      d) 3600 sec



**Fig. 8. Dependences of applied voltage and initial UCl<sub>3</sub> concentration in LiCl-KCl salt on the composition of metal deposited at 500 °C.**

the whole range of the applied voltage at 0.3 wt% of initial  $\text{UCl}_3$  concentration. Also, it should be noted that the deposition rate of Dy and Ce are found to be higher than U at this concentration of  $\text{UCl}_3$  regardless of the applied voltage. This is because trivalent REs such as Dy and Ce deposits are oxidized in the presence of sufficient uranium chloride as follows;



where M and N are REs as a TRU surrogate and U respectively.

From these phenomena, it could be interpreted that Dy and Ce exhibit the similar characteristic with REs at the high U concentration, while they behave like TRU chloride as U concentration decreases.

The partitioning characteristic between two elements is estimated by introducing separation factor defined by Sakamura et al. [13,14] as follows;

$$SF_M = \frac{(X_{M \text{ in Salt}})/(X_{M \text{ in Deposit}})}{(X_{N \text{ in Salt}})/(X_{N \text{ in Deposit}})} = \frac{D_M}{D_N} \quad (3)$$

Where  $X_{M,N \text{ in Deposit}}$  and  $X_{M,N \text{ in salt}}$  are the mole fractions of M or N in a cathode deposit and in salt,  $D$  is the distribution coefficient. Separation factor of the U vs. REs as a function of an initial U concentration at 1.5V of applied voltage is shown in Fig. 9. It is clearly seen that the separation factors of REs to U below 2 wt% of initial U concentration are not high and nearly same each other, whereas they increased as the U concentration increased above 2 wt%. Hence the U concentration in the LiCl-KCl eutectic molten salt should be kept more than 2 wt% to effectively separate pure metallic U on the cathode surface.

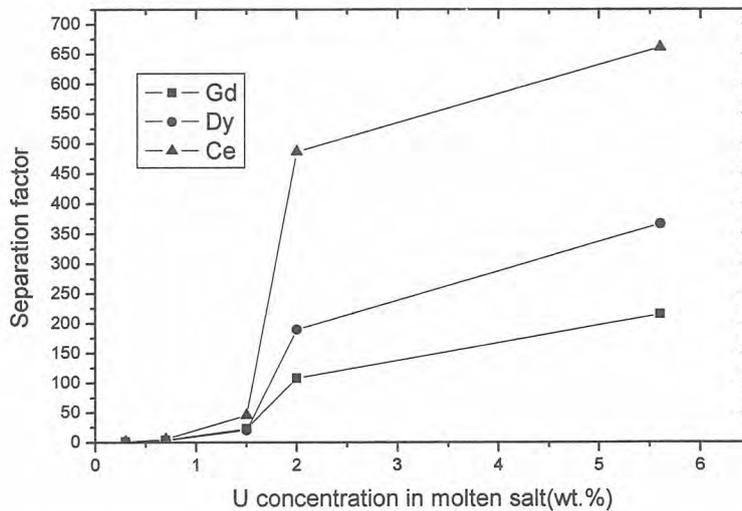


Fig. 9. Separation factor on U concentration in salt (applied voltage : -1.5V)

Electrorefining experiments were carried out in LiCl–KCl eutectic molten salt containing uranium and RE chlorides. The cathode current efficiencies rapidly decreased as the applied voltage increased, and the highest separation factor was achieved at  $-1.5V$  which is little higher value than the reduction voltage of the uranium chloride. The efficiency decreases according to the applied voltage were attributed to the morphological features of the deposits. The fraction of REs in the deposit sharply increased as the applied voltage reached the reduction voltage of the RE chlorides,  $-1.9V$ . When the initial U concentration in molten salt was more than 2 wt%, Ce and Dy exhibited REs behavior while the deposition behavior started to change to that of TRU as the concentration decreased under the 2 wt%, which means they are codeposited with U on the cathode surface. Hence Ce and Dy could be applied as TRU surrogate materials and the U concentration in molten salt electrorefining process should be kept more than 2 wt% in order to clearly separate U from spent fuel.

#### Acknowledgement

This work was funded by the National Mid- and Long-term Atomic Energy R&D Programme supported by the Ministry of Science and Technology of Korea.

#### References

- [1] L. Burris, R. K. Steunenberg, and W. E. Miller, The application of electrorefining for recovery and purification of fuel discharged from the Integral Fast Reactor, AICHE Symposium Series, Electrochemical Engineering Series, 83 (1987) 135~142.
- [2] L. S. Chow, J. K. Basco, J. P. Ackerman, and T. R. Johnson, Continuous extraction of molten chloride salt with liquid cadmium alloys, Global '93 (1993) 1080~1085.
- [3] K. H. Stern and D. R. Rolison, Studies of chromium carbide electrodeposition in molten fluorides, J. Electrochem. Soc. 137 (1990) 178~183.
- [4] T. Yoko and R. A. Bailey, Electrochemical studies of chromium in molten LiF–NaF–KF(FLINAK), J. Electrochem. Soc., 131 (1984) 2590~2595.
- [5] D. Elwell and G. M. Rao, Mechanism of electrodeposition of silicon from  $K_2SiF_6$ –FLINAK, Electrochimica Acta, 27 (1982) 673~676.
- [6] M. Matsumiya, R. Takagi, and R. Fujita, Recovery of  $Eu^{2+}$  and  $Sr^{2+}$  using liquid metallic cathodes in molten NaCl–KCl and KCl system, J. Nucl. Sci. & Tech., 34 (1997) 310~317.
- [7] T. Koyama, M. Iizuka, N. Kondo, R. Fujita and H. Tanaka., Electrodeposition of uranium in stirred liquid cadmium cathode, J. Nucl. Mater., 247 (1997) 227~231.

- [8] G. W. Mellors, The electrodeposition of coherent deposits of refractory metals, *J. Electrochem. Soc.*, 113 (1966) 60~66.
- [9] G. J. Kiprouros and S. N. Flengas, Electrorefining of zirconium metal in alkali chloride and alkali fluoride fused electrolytes, *J. Electrochem. Soc.*, 132 (1985) 1087~1098.
- [10] M. Matsumiya, W. Shin, N. Izu and N. Murayama, Investigation on the electrical properties of molten quaternary systems (Li, Na, K, Cs)Cl and (Li, Na, K, Cs)F by MD simulation, *J. Electroanal. Chem.* 528 (2002) 103~113.
- [11] F. Oberholtzer, D. Barkey and Q. Wu, Kinetic selection of morphology and growth velocity in electrochemical deposition, *Phys. Rev. E* 57(1998) 6955~6961.
- [12] J. G. Reavis, Experimental studies of actinides in molten salts, LA-10340(1985).
- [13] Y. Sakamura, T. Hijikata, K. Kinoshita, T. Inoue, T.S. Storvick, C.L. Krueger, J.J. Roy, D.L. Grimmitt, S.P. Fusselman and R.L. Gay, Measurement of standard potentials of actinides (U, Np, Pu, Am) in LiCl-KCl eutectic salt and separation of actinides from rare metals by electrorefining, *J. Alloys and Compds*, 271-273 (1998) 592~596.
- [14] Y. Sakamura, T. Hijikata, K. Kinoshita, T. Inoue, T.S. Storvick, C.L. Krueger, L.F. Grantham, S.P. Fusselman, D.L. Grimmitt and J.J. Roy, Separation of actinides from rare earth elements by electrorefining in LiCl-KCl eutectic salt, *J. Nucl. Sci. and Tech.*, 35 (1998) 49~59.

빈 면

**제3분과 (C)**  
**사용후핵연료 및 핵연료주기**  
**(Poster)**

빈 면

## 고온 용융염에 활용 가능한 Ag/AgCl 기준전극 제조 및 이를 이용한 Cd 액체음극에서의 란타늄 염화물의 순환 전압 전류 특성

안병길, 심준보, 김응호, 유제형

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

고온의 용융염 매질에서 전해 정련 또는 전해제련에 의해 원하는 물질을 회수하기 위한 공정에 있어서 정확한 산화/환원 전위 측정 및 안정된 전위를 인가하기 위해서는 재현성과 내구성이 확보된 기준 전극이 필요하다. 용융염 매질에서 많이 사용되는 기준 전극은 Ag/AgCl 전극으로서 온도 사이클에 대한 전위의 히스테리시스가 작고 고온에서도 전위가 안정하다. Ag/AgCl 기준전극으로 pyrex 봉 하단부를 수 마이크론 두께의 pyrex 박막으로 제작된 것은 고온 용융염에 접촉 시 열 충격, 전극류와 충돌에 의한 물리적 취약성 및 고온의 용융염에 의한 부식과 같은 단점이 있다. 그 외의 기준 전극으로는 밀이 막힌 알루미늄이나 또는 보론 나이트라이드 봉 하부에 수백 마이크론 구멍을 내어 사용하는 경우도 있으나 전해 정련시 발생하는 환원 금속에 의해 막힘 현상이 발생하는 단점이 있다. 러시아에서 주로 사용되는  $Cl_2/Cl^-$  기준전극은 석영관 하단부에 asbestos를 충전하고 관 내부에 glassy carbon tube를 장착하여 이곳을 통해 염소가스를 통과시키는 구조로서 석영관의 직경이 크며(=16mm) 하단부에 asbestos의 충전 밀도를 일정하게 할 수 없고 quartz 부와 asbestos의 열팽창률 차이로 인해 파열 현상이 일어날 수 있으며, 일정량의 고순도 염소가스를 흘려보내야 함으로 이에 따른 장치의 복잡한 단점이 있다. 본 연구에서는 이러한 단점들을 해결하기 위해서 알루미늄 튜브 하단부에 SiC 다공막이 소결 접합된 Ag/LiCl-KCl-AgCl(=1wt%) 기준전극을 개발하였다. SiC는 약 2700°C에서 분해되어 승화하는 특성이 있으므로 소결 조제에 의해 SiC 입자를 소결시켜 다공 막을 만들었다. 제조된 소결 조제는 SiC와 열팽창 계수가 유사하며 알루미늄 튜브 표면과도 소결 접착 특성이 우수하였다. 소결조제와 선별된 SiC 입자를 잘 섞은 후 여기에 성형 조제인 methyl cellulose와 증류수를 섞어서 성형체를 제조하였다. 그 후 성형체를 알루미늄 튜브에 넣고 STS 봉으로 압축하여 green body를 제조하였다. 그리고 tubular furnace를 이용하여서 1200°C에서 약 5시간 소결하여 성형조제와 그 외 가연성 물질을 제거하여 알루미늄 튜브 하단부에 SiC 입자를 기본 물질로 한 다공성 막을 제조하였다. 그리고 LiCl-KCl 과 접촉하는 Ag 선(직경 1mm) 표면은 1M HCl 용액에서 1 mA로 3시간 동안 양극 산화시켜 AgCl 피막을 형성시킴으로서 안정된 AgCl 고체층이 형성되도록 하였다. 제조된 기준전극을 이용하여 LiCl-KCl 용융염 내에 Nd, La 및 Zr 염화물이 첨가된 계에서 액체 Cd 음극에 대한 환원 전위를 파악하기 위하여 순환 전압 전류(Cyclic Voltametry) 실험을 하였으며 Pyrex 형 기준전극과 상호 비교하였다. 실험 결과 재현성과 내구성이 우수하고 안정된 전위 특성을 확인할 수 있었다.

## 방사성환기설비 운전에서 있어서의 부압변동 요인 및 대응 방안

이강무, 이범철, 이영희, 김태국, 손종식, 홍권표  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

김홍태\*

한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 구성동 19

### 요 약

원자력 관련시설에서는 방사선 오염공기가 시설 밖으로 누출되지 않도록 시설 내부를 상시 부압으로 유지하고, 또한 내부를 방사선 준위 별로 구분하여 구역 간 차압을 유지하는 것이 중요하다. 환기설비 운영 중에 부압의 변동이 일어나기 쉬운데 HEPA 필터의 눈메꿈과 각 구역 간 출입문 개폐의 영향이 가장 크다. 환기계통운전에 있어서는 출입문 개폐상태 감시확인 및 HEPA 필터 등의 각뱅크에 차압계를 설치하여 필터의 눈메꿈 상태를 주기적으로 측정하고 교체함으로써 방사성폐기물처리시설 내 부압 및 각 구역 간 차압을 일정하게 유지할 수 있었다.

### Abstract

It is important that the contaminated air is not revealed to the outside of the facility. The inside of the facility should be classified into several zones according to the radioactivity and each zone should maintain the differential negative pressure between the zones also. It is not easy to equilibrate the pressure during the operation. On the normal operation, the clogging of the HEPA filter and the opening of the doors/shutters influence very much. We could maintain the differential negative pressure between the zones by the constant watching and periodical replacement of the filters.

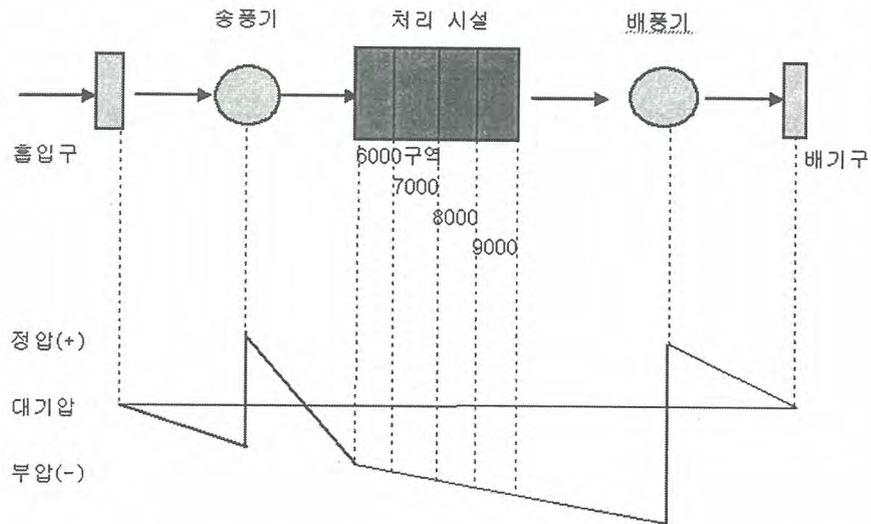


Fig. 1 Schematic diagram of pressure status in the facility

Table 2. Response against the variation of negative pressure caused by the system itself

부압변동 요인	계통에 미치는 영향	영향의 정도	현장조치 내용
1. 외기 제진용 필터의 눈메꿈	급기 풍량의 저하에 의한 환기량의 감소	서서히 일어나기 때문에 감시에 의해서 저지할 수 있음	필터실에 차압계를 설치하여 상시 감시 및 주기적 교체 실시
2. 외기 제진용 필터의 조해현상에 의한 눈메꿈	급기 풍량의 저하에 의한 환기량의 감소	조해현상은 급격히 일어나므로 영향이 큼	당 시설 해당 없음
3. 냉각기 필터에 과도한 응축수 부착	급기 풍량의 저하에 의한 환기량의 감소	외기습도가 특히 높을 때 발생. 기류에 의해 단시간 내에 비산함	영향이 미미하여 별도조치 불필요
4. 배기 제진용 필터의 눈메꿈(HEPA 필터)	허용범위 내에 있으면 영향 없음.	조정밸브의 제어가능 범위를 넘을 경우에는 부압 및 배기량 저하	각 필터마다 차압계 설치하여 상시 감시 및 주기적 교체 실시
5. 배기가스 흡착필터 눈메꿈(활성탄 필터)	상 동	상 동	당 시설 해당 없음

## **Decomposition of Fe-EDTA in Nuclear Waste Water by using Underwater discharge Plasma**

Jin-Kil Kim, Han-Yong Lee \*, Duk-Won Kang and Han-Sup Uhm \*

Korea Electric Power Research Institute(KEPRI), 103-16 Munji-dong, Yuseong-gu, Daejeon, 305-380, Korea

\* Ajou University, San 5, Wonchon-Dong, Paldal-Gu, Suwon, 442-749, Korea

EDTA contained in decontamination wastes can cause complexation of radioactive cations resulting from its various treatment process such as chemical precipitation, and ion exchange etc. It might also import for elevated leachability and higher mobility of cationic contaminants from conditioned wastes such as waste immobilized in cement or other matrices. Therefore, various chelated or unchelated EDTAs must be treated to environmentally safe materials. AOPs(Advanced Oxidation Processes) using ozone, hydrogen peroxide, ultrasound, ultraviolet radiation, photocatalytic oxidation, and gamma-ray radiation alone or in combination in this respect are considered as possible methods of ecologically safe remedial treatment for the degradation of non-biodegradable organics including EDTA. In the present study, an underwater discharge system, one of the AOPs, was applied to degrading aqueous Fe-EDTA which is one of the major products of decontamination processes. An underwater discharge system produces shockwave, ultraviolet radiation, and various radical species during plasma-discharge in water. An 1L batch reactor with continuous gas bubbling was used in this study. Peak voltage and repetition rate of pulse were fixed with 16kV and 6kHz, respectively. It was found that Fe-EDTA degradation could be raised considerably by adding H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> solution. The maximum Fe-EDTA degradation yields were obtained by the synergistic action of underwater discharge in the presence of ozone and H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> at pH 7. By adding 10mL H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> at pH 7 to an aqueous solution of Fe-EDTA and passing through 1.2×10<sup>3</sup> mg L<sup>-1</sup> O<sub>3</sub> at 200 mL min<sup>-1</sup> rate, we could get maximum degradation efficiency. In these optimum operating conditions, Fe-EDTA decomposition percentage attained maximum 98.5% when its residence time was 90 minutes, while the TOC degradation percentage of aqueous solution was maximum 66.5%. Analysis of by-products resulting from Fe-EDTA degradation in underwater discharge system was performed by HPLC(Waters). In this analysis, we could observe that Fe-EDTA was replaced with more degradable compounds such as nitrilotriacetic, glycolic, formic, oxalic, and iminodiacetic acids.

## **Electrolytic Deposition of Metal Ions Using A Liquid Cadmium Cathode**

**Joon-Bo Shim, Byung-Gil Ahn, Sang-Woon Kwon, Eung-Ho Kim and Jae-Hyung Yoo**  
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duckjin-dong Yuseong-gu Daejeon

### **Abstract**

As one of researches for the P & T purposes, a basic experiment on the recovery of actinide elements from the mixture with rare earth elements by means of electrorefining using a liquid cadmium cathode in the LiCl-KCl eutectic melt was carried out. In order to examine the behaviors of electrodeposition of metal ions on a liquid electrode, recovery experiments of rare earth metals resulting from forming electrodeposits were performed by a galvanostatic electrolysis method at various current densities. A cyclic voltammetric technique was applied to determine reduction-oxidation potential of each metal element in the melt and to detect the changes of the multi component melt composition for on-line monitoring. Also, a collaboration study with RIAR was completed to test the preliminary feasibility on a recovery of actinide elements from the mixture with rare earth elements using a liquid cadmium cathode and actinide metals. Experimental results showed that the ratio of actinides to rare earths, 9: 0.5~1 led to the rare earth content of about 5~10 wt% in the deposit.

**Key Words** : liquid cadmium cathode, electrodeposition, eutectic salt, galvanostatic electrolysis, cyclic voltammetry

## 전해정련 공정에서 지르코늄 및 세륨의 고체음극에 대한 전착특성

권상운, 강영호, 김응호, 유재형

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

건식공정 (pyrochemical process 혹은 pyroprocessing)은 장수명 핵종의 소멸처리를 위해서는 장수명 핵종을 분리한 뒤 연료로 제조하여야 하며, 분리 공정은 습식공정과 건식공정으로 크게 나누어진다. 용융염을 사용하는 습식공정에 비해 2차 방사성폐기물의 발생량이 적고 공정이 간단하고, 핵확산에 대한 저항성이 매우 크다는 장점 때문에 미래의 핵주기 기술로서 주목받고 있다. 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, 용융염 중에서 전기화학적으로 분리하는 전해정련 공정이 이용되고 있다. 본 연구에서는 LiCl-KCl 용융염계에서 지르코늄(우라늄 대체물질)과 세륨(TRU 대체물질)을 고체음극을 이용하여 회수하기 위해 이들 원소들의 cyclic voltammogram 분석과 전착실험을 통하여 회수 특성을 조사하였다. 실험에 사용된 장치는 Fig. 1.에서처럼 열전대, 교반기, reference electrode, anode 및 cathode 등으로 구성하였으며, 실험온도는 450°C 이었다. CeCl<sub>3</sub>의 경우 확산이 속도 결정단계이며, 단일 cathodic peak가 관찰되어 환원 반응은  $Ce(III) + 3e^- = Ce(0)$ 의 one-step process임을 알 수 있었다.

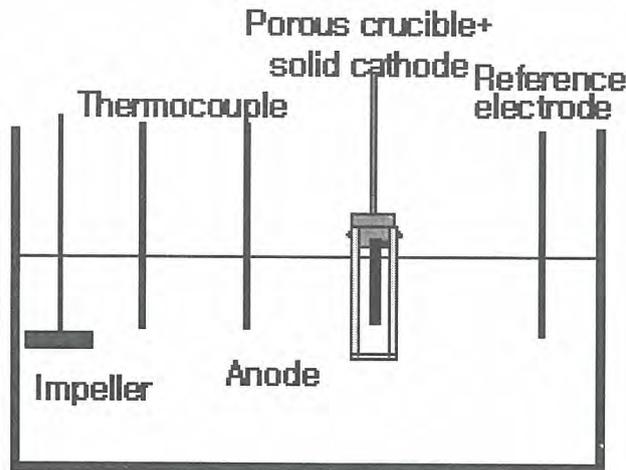


Fig. 1. Schematic drawing of experimental set-up for electrorefining process.

## LiCl-KCl 용융염에서 Cd-Li 금속을 이용한 U 및 란타늄족의 환원반응 Reductive reaction of U and Lanthanides using Cd-Li metal in LiCl-KCl Molten Salt

우문식, 이병직, 김응호, 유제형

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

원자료를 이용하여 장수명핵종(long lived nucleus)을 소멸처리하는 과정에서 초우라늄(TRU, transuranium)과 희토류(RE, rare earth) 금속에 포함되어 있는 소량의 핵분열성(fissile) 물질인 우라늄을 제거할 필요가 있다. 본 실험은 LiCl-KCl 용융염계에서 전해제련법(Electrowinning)을 이용하여 용융염속에 존재하는 우라늄을 제거하기 위하여 필요한 Cd-Li 양전극 물질을 제조하였고, 제조된 금속을 이용하여 우라늄 및 란타늄족(Dy, Ce, Y, Nd, Gd) 금속의 환원 특성을 파악하였다. 제조에 사용된 시약은 순도 99.9%인 카드뮴금속 (일, Hayashi)과 순도 99.5%인 리튬금속(미, Aldrich)을 사용하였다. 반응용기는 graphite 용기(ID:60 x H:100)와 Alumina 용기 (ID:60xH:100) 용기를 각각 사용하였다. 금속제조를 위하여 Cd 금속은 286 g 그리고 Li 금속은 18.54 g를 사용하였고, 가열온도는 450, 600, 700°C에서 실험하였다. 이때 반응기 내부는 고순도 아르곤분위기에서 3시간동안 반응시켰다. 그리고 교반을 위하여 교반기와 graphite plate를 사용하였다. 실험 결과 graphite는 손상이 없었고, 반응온도가 높을수록 Cd와 Li 금속의 휘발이 많았다. 제조된 Cd-Li 합금의 리튬농도는 초기 주입량(6wt%)보다 낮은 농도(3.6wt%)의 합금이 제조 되었다. 이는 리튬금속이 반응용기 표면에 흡착 및 일부 휘발에 기인하는 것으로 판단된다. 그리고 용융염에 용융된 우라늄을 선택적으로 제거하기 위하여 양극물질인 리튬 금속을 우라늄 농도 대비 0.5, 1.0, 1.5배인 화학당량비로 실험하였다. 실험 결과 리튬 금속을 0.5배 주입하고 5시간 -1.0 volt로 전착시킬 경우 우라늄 농도는 선택적으로 감소하였다. 그러나 리튬금속 농도를 우라늄농도 대비 1.0배 주입시 우라늄 금속과 함께 Ce, Y, Nd 금속이 동시에 감소하였고, 1.5배 주입시 모든 금속의 농도가 감소하였다.

## 모의 사용후 핵연료를 이용한 건식재가공 핵연료 분말 및 소결 특성 연구

이재원, 신원철, 김용기, 조광훈, 이정원  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

최근에는 경수로 핵연료의 연소도를 높이고 있으며 연소도가 증가함에 따라서 핵분열생성물(불순물)의 양은 증가하게 된다. 핵분열생성물의 함량은 산화속도 및 분말특성에 영향을 주는 것으로 알려져 있다. 소결성을 갖는 분말의 제조 및 특성 실험은 사용후 핵연료가 고방사능을 가져 실험수행상에 제한이 많아 실제 사용후 핵연료를 모사한 모의 사용후 핵연료를 사용하여 수행하고 있다. 본 연구에서는 연소도가 35,000 MWD/MTU 및 60,000 MWD/MTU인 모의 사용후 핵연료를 제조하여 연소도에 따른 산화·환원처리 분말 및 미분쇄 분말의 분말특성, 소결온도 및 성형압력에 따른 소결성을 조사하였다. 연소도의 증가에 따라서 분말의 평균 입자크기(그림 1)는 감소하며 비표면적(그림 2)은 증가하였다.  $UO_2$  소결체에 고용되는 불순물중에 Nd, La 및 Y는 +3가, Sr은 +2가의 이온들이 있어 전하 균형(charge balance)을 유지하기 위해서  $U^{4+}$ 의 일부가  $U^{6+}$ 로 산화되며, 연소도가 증가함에 따라서  $U^{6+}$ 이온의 함량이 커지게 된다. 산화시에 이들 불순물 원소의 이온가는 변하지 않기 때문에 전하균형을 유지하기 위해서  $U_3O_8$ 로 완전히 산화되지 못하고 일부는 중간상인  $U_4O_9$ 로 남아있게 되므로, 연소도가 증가할수록 산화과정에 분말의 비표면적 증가율이 낮게 된다. XRD분석을 통해 불순물이 함유된  $UO_2$ 에서는  $U_4O_9$  상의 생성을 확인할 수 있었다. 반면에 환원과정 중에 연소도가 높을수록 비표면적이 매우 크게 증가하였다. 연소도가 높을수록 환원과정 중에  $U_3O_8$  상이 입자표면으로부터 내부로  $UO_2$  상으로 변태됨에 따라서 부피수축에 의해 발생된 압축응력이 더욱 크기 때문에  $U_3O_8$  상이 더 많이 파쇄와 균열이 일어나 비표면적이 커진 것으로 생각된다. 연소도가 높을수록 산화·환원처리 분말 입자에 미세 기공들이 생성되어 있음을 알 수 있었다. 연속공정으로 3회 산화·환원처리 분말 및 미분쇄 분말의 분말특성은 표 1과 같으며, 미분쇄에 의해서 입자크기는 매우 작아지며, 비표면적 및 충전성은 크게 증가하였다. 연소도 60,000 MWD/MTU 미분쇄 분말의 비표면적은 천연  $UO_2$ (ADU분말)의 비표면적 5.27  $m^2/g$  보다 높았다. 따라서 미분쇄에 의해서 성형성 및 소결성이 매우 좋은 분말을 얻을 수 있었다. 성형압력의 증가에 따라 성형밀도는 증가하였으며(그림 3), ADU 분말과 비슷한 경향을 보였다. 연소도가 높은 분말의 성형밀도가 낮은 것은 비표면적이 클수록 분말 입자간의 마찰에 의해 압축에 대한 저항이 커지기 때문에 성형밀도는 감소하는 것으로 생각된다. 소결온도의 증가에 따라서 소결밀도는 거의 선형적으로 증가하였으며 연소도 35,000 MWD/MTU 분말의 소결밀도는 이론밀도의 96%에서 96.8%까지 증가하였으며, 연소도 60,000 MWD/MTU 분말은 98.0%에서 98.1%로 거의 증가하지 않았다. 본 실험범위 내에서 성형압력에 따라서 소결밀도는 증가하였으나 소결온도가 높아짐에 따라 소결밀도에 대한 성형압력의 영향은 적었다(그림 4). 그림 5는 연소도에 따른 결정립구조를 나타낸 것으로 연소도가 높은 경우 결정립크기가 작는데 이는 금속석출물 양이 증가하여 결정립 성장을 방해하기 때문인 것으로 생각된다.

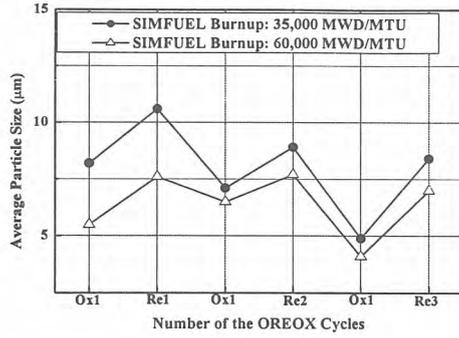


그림 1. 분말의 평균입자크기 변화

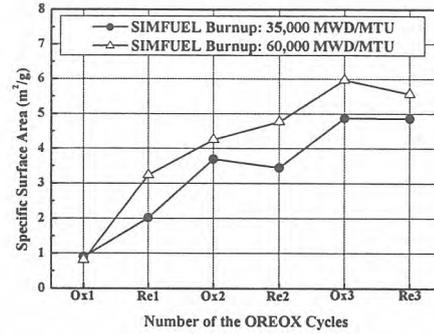


그림 2. 분말의 비표면적 변화

표 1. 연소도에 따른 산화·환원처리 분말 및 미분쇄 분말의 특성

분말 물성	35,000 MWD/MTU		60,000 MWD/MTU	
	밀링전	밀링후	밀링전	밀링후
평균입자크기 (μm)	7.6	0.6	7.0	0.7
비표면적 (m²/g)	4.55	4.99	4.82	5.88
겉보기 밀도 (g/cm³)	0.71(6.6%TD)	1.63(15.1%TD)	0.72(6.8%TD)	1.95(18.4%TD)
탭 밀도 (g/cm³)	1.87(17.3%TD)	3.05(28.3%TD)	1.83(17.2%TD)	3.12(29.3%TD)

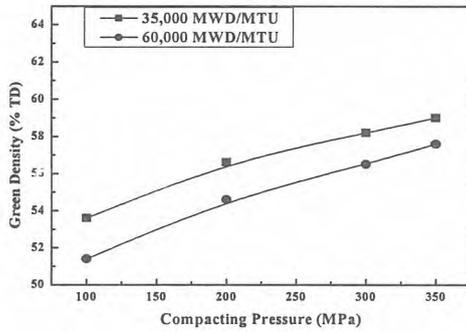


그림 3. 성형밀도 변화

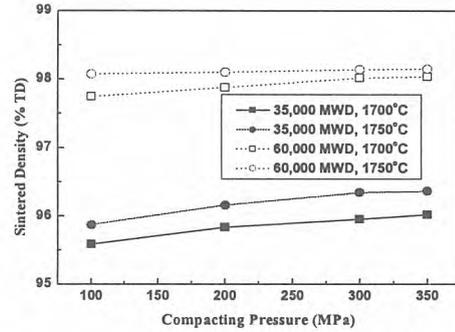
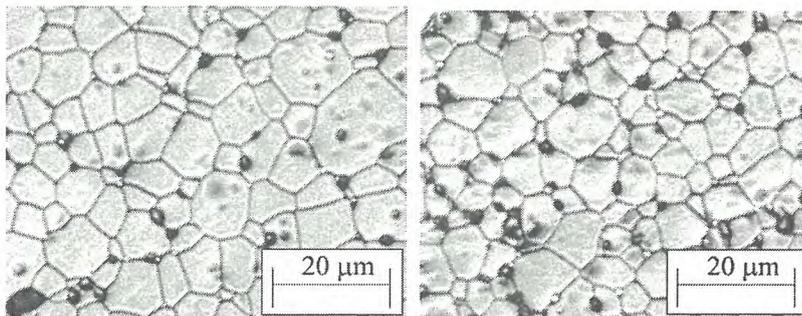


그림 4. 성형압력 및 소결온도에 따른 소결밀도



(a) 연소도 35,000 MWD/MTU, 소결밀도 : 96.9% TD

(b) 연소도 60,000 MWD/MTU, 소결밀도 : 98.1% TD

그림 5. 소결체의 결정립 구조

## 조사재시험시설 풀물속에 설치된 1톤 버켓 엘리베이터 고찰

송웅섭, 이종현, 이흥기, 주용선, 홍권표  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

조사재시험시설내 풀 (3x6x10 m<sup>3</sup>) 속에는 풀과 핫셀간에 조사재 및 연료를 핫셀로 이송할 수 있는 버켓 엘리베이터(bucket elevator)가 설치되어 있다. 허용하중은 1톤이고, 버켓의 제원은 25x25x150 cm<sup>3</sup> 이다. 버켓의 상하 운동은 체인구동 시스템으로 약 63도의 경사도를 갖고 움직이며, 체인은 사각 튜브의 내측면에 고정되어 있는 상하 가이드 레일 사이에서 특수 제작된 체인이 로울러 슬라이딩 방식으로 버켓의 lug를 잡고 상하로 움직이며 핫셀 작업대(working table) 하부에 설치되어 있는 스프로킷 휠(sprocket wheel)에 감기어 구동하도록 되어 있다. 스프로킷 휠은 M1 핫셀밖의 우측면에 설치되어 있는 기어 감속모타(gearred motor)에 의해 2단의 종축으로 구동된다. 구동조작은 M1 핫셀 전면 조작반에서 조작 버튼을 누름으로써 구동된다. 본 논문에서는 향후 건설하여 운용할 유사한 풀물 속에서의 버켓 엘리베이터의 장치에 대한 기술사양(technical specification)등을 기술 하였다.

1톤 버켓 엘리베이터는 5개의 부분으로 구성되어 있다.

가. 사각튜브 나. 가이드 레일 다. 체인 라. 버켓 마. 구동부  
제1장 각 장치의 기술사양

1. Rectangular Tube Quality Standards
2. 각 장치별 상세설계

제2장 장치의 제작

1. 제작검사
2. NDT 검사

제3장 장치의 설치

1. 설치절차서에 따른 설치
2. 설치검사
3. 시운전 검사

제4장 장치의 종합시운전

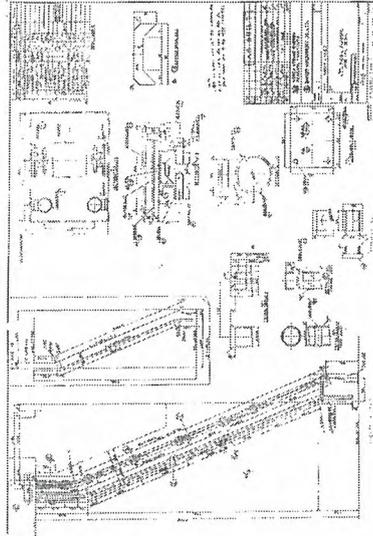


그림 2. Square Tube Detail of 1-Ton Bucket Elevator.

-24-

그림 1. 사각튜브 상세도.

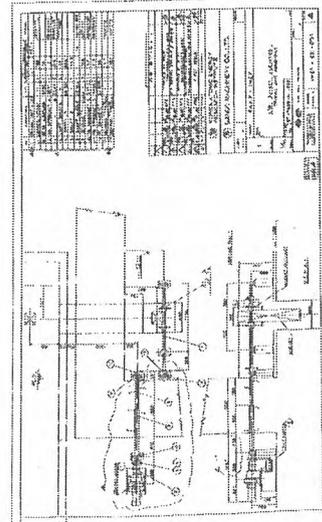


그림 3. Driving Unit Assembly of 1-Ton Bucket Elevator.

-25-

그림 2. 1톤 B.E 구동부.

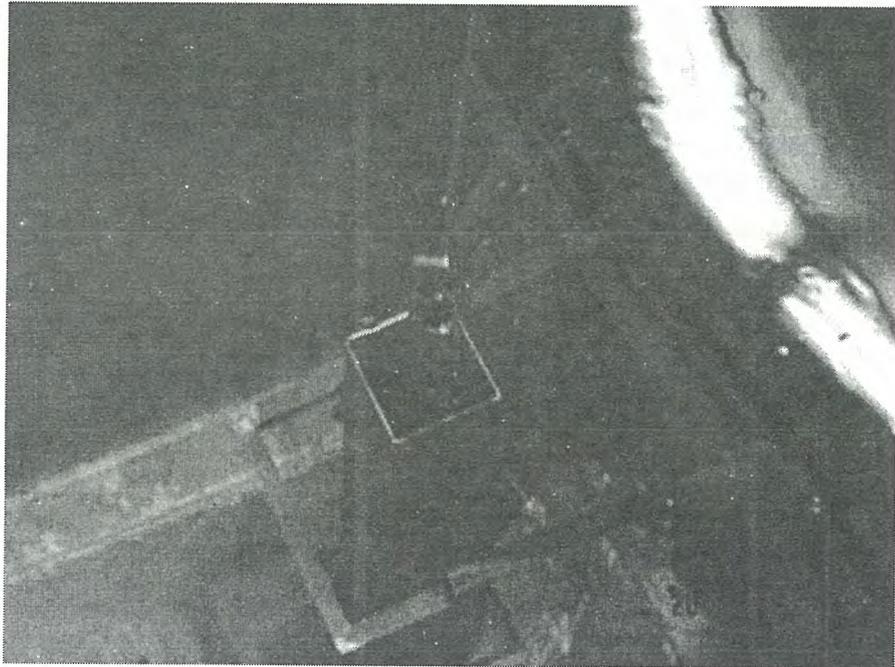


그림 3. 조사시료를 1톤 버킷에 장작하는 모습.

## 사용후핵연료 차세대관리 종합공정 실증시설 개발 현황

유길성, 정원명, 구정희, 조일제, 국동학, 이은표, 박성원

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

한국원자력연구소에서는 사용후핵연료의 체적을 감소시켜 저장 안전성 및 경제성을 확보키 위한 사용후핵연료 차세대관리 공정(ACP)을 개발하고 있다. 이 기술의 개발을 위해서는 사용후핵연료를 사용한 실증시험이 필수적이며, 이를 위한  $\alpha$ - $\gamma$  type의 hot cell 시설 및 부속시설이 필요하다. 연구소는 별도의 실증시설에 요구되는 고 비용을 줄이기 위해 현재 연구소가 보유하고 있는 조사재시험시설(IMEF)의 지하에 위치한 예비 hot cell을 활용키로 하고 차세대관리 종합공정의 특성 및 용도에 맞는 시설의 수정/보완 업무를 수행해오고 있다. 2002년에 수행된 시설의 기본 및 상세설계, 안전성 분석 자료를 바탕으로 2003년에는 시설 인허가 업무가 추진되었고, 또한 2004년의 시설보완 건설에 대비한 주요 hot cell 설비 및 기기의 구매/발주가 추진되었다. 실증시설의 인허가 업무는 안전성 분석 자료를 기준으로 원자력법에 규정된 실증시설 공사와 운영을 위한 관련 인허가 서류를 작성하고 과학기술부와 한국원자력안전기술원과의 약 2개월간의 사전협의를 거친 후 조사재시험시설 건설·운영 변경허가서를 2003년 10월에 과학기술부에 접수하였으며, 원자력안전기술원으로부터의 시설의 안전성 심사를 거친 후 2004년 4월 22일 정부로부터의 시설 변경허가를 정식 취득하였다. 또한 실증시설의 hot cell 에 설치되는 종합공정 장치들의 효율적인 조작에 필요한 원격조종기와 실증시설의 필수 설비인 방사선 차폐창을 공정장치들의 운전특성 분석과 vendor 자료, 견적서 등을 검토하여 구매/발주를 완료하였다. 이 때 ASME NQA-1의 기준을 적용한 실증시설 품질보증계획서 및 절차서에 따라 구매/발주를 수행하여 구매 물품에 대한 품질 신뢰성도 확보하였다. 이와 같이 3년에 걸친 2단계 연구를 성공적으로 종료함에 따라 여기서 나온 결과물들을 활용하여 2004년부터 수행되는 실증시설 hot cell 보완공사 및 공정장치 설치와 2005년의 시운전 및 2006년의 사용후핵연료를 사용한 차세대관리 종합공정 실증시험도 성공적으로 수행할 수 있을 것으로 판단된다.

## 사용후핵연료 수송저장 용기의 운전 및 유지보수 Operation and Maintenance of Spent Fuel Storage and Transport Casks

구정희, 서기석, 정원명, 유길성, 박성원  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

### 요 약

사용후핵연료 수송용기는 원자력발전소의 운영에 있어서 매우 중요한 구성요소의 하나로서 역할을 해왔으며, 근래에 들어서는 발전소 부지 또는 저장시설에서의 저장용기로 함께 사용되면서 그 숫자가 급속히 증가하고 있다. 아직 엄청난 양의 사용후핵연료가 발전소 내의 사용후핵연료 저장조와 같은 수조에 저장되어 있지만, 최근에는 사용후핵연료의 단기 또는 장기 저장을 위한 효과적인 수단으로 수송용기를 이용한 저장을 채택하는 국가가 계속 증가하고 있다.

사용후핵연료 수송용기의 운전 및 유지보수에 대한 오랜 기간의 경험에서 얻은 기술적 노하우는 저장용기의 운전 및 유지보수에도 잘 활용될 수 있을 것이다. 수송저장 겸용용기 및 다목적용 용기의 증가는 이러한 겸용용기의 운전 및 유지보수에 대한 국제적 표준화를 요구하고 있다. 이에 대한 노력의 일환으로 국제원자력기구에서는 이들 겸용 용기에 대한 설계요구사항들을 지침의 형태로 마련하고 있다.

**중심단어** : 수송저장 겸용용기, 운전, 유지보수, 지침

### Abstract

The spent fuel transportation casks have been used as one of the most essential component in the nuclear industry. And, the number of the cask has been significantly increased in recent years. While the bulk amount of spent fuel in the world is still kept in the storage pool, the number of countries which have chosen the advantages of dual purpose cask for transportation and storage is rapidly increasing.

The technical experience in the area of spent fuel transportation cask operation and maintenance for long period is also available and will be well utilized also in storage casks. The increasing use of casks for dual and multiple purposes raises an issue of long term consideration by international standardization. Accordingly IAEA is providing a regulatory requirements and guidelines as an effort for this standardization.

**Key Words** : dual purpose cask, operation, maintenance, guideline

## 차세대관리 종합공정 실증시설 안전성 평가

정원명, 구정희, 조일제, 국동학, 이은표, 유길성, 박성원  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

차세대관리 종합공정(ACP)은 사용후핵연료의 안전하고 효율적인 관리를 위하여 제시된 건식처리공정으로 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 있는 장점으로 인해 연구개발 중에 있으며, 현재 기초연구가 완료되어 실증시험 수행을 위한 상세계획이 확정되었다.

ACP 공정의 실증시험을 수행하기 위해서는  $\alpha$ -v type의 핫셀 및 부대시설의 확보가 필수적이거나 필요한 재원을 최소화하기 위하여 기존시설의  $\beta$ -v type 핫셀을 ACP 공정의 특성 및 용도에 맞게 개조하여 활용하기로 하고 핫셀 개조를 위한 상세설계를 완료하였으며, 설계된 실증시설의 안전성 확보를 위한 환경영향평가 등의 안전성분석을 수행하였다.

실증시설의 공사와 실증시험 수행을 위한 시설운영을 위해서는 인허가 과정에서 보수적 안전성 확보를 입증하여야 하므로 이를 위하여 ACP 공정에서 취급하게 되는 핵물질 또는 공정 유해물질의 안전한 취급과 공정장치의 정상운전 및 예측 가능한 사고의 경우 운전 및 제어를 위한 안전성 평가를 수행하였다. 그리고 이와 연계하여 핫셀 및 부대시설의 안전성 평가를 수행하여 그 결과를 공정 및 실증시설 설계에 반영함으로써 ACP 공정의 실증시험을 수행하게 되는 실증공정 및 실증시설의 안전성을 확보하였으며, 이를 근거로 ACP 실증시설의 건설 및 운영을 위한 인허가에 필요한 안전성 심사를 완료하고 인허가를 획득하여 ACP 실증시설 개조공사에 착수할 수 있게 됨으로써 계획된 ACP 공정의 실증시험을 수행하기 위한 실증시설의 확보가 가능하게 되었다.

## 핫셀 운영을 위한 부속 설치물의 차폐능 평가

조일제, 국동학, 구정희, 정원명, 유길성, 이은표, 박성원

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

차세대관리 종합공정 실증시설의 핫셀 차폐벽은 중량콘크리트 재질로서 외벽의 두께는 90 cm 이상으로 설계되었으며, 차폐벽의 모든 부위는 이와 동일한 차폐능을 확보하도록 하여야 한다. 그러나 핫셀 운영을 위하여 불가피하게 설치되는 여러 가지 부속 시설물들에 의하여 원래 계획한 핫셀 차폐벽의 차폐능 저하를 가져오게 되며, 이런 부속 시설물로는 차폐 출입문, 방사성 물질을 핫셀 내부로 반입하거나 반출하기 위한 수송용기 접합부, 소형물 투입구, 슬리브 및 매설관 등이 있다. 본 연구에서는 부속 시설 설치에 따라서 차폐능 저하가 예상되는 부위에 대하여 보강 차폐체의 재질, 두께 및 치수를 결정하기 위한 차폐 계산을 수행하였으며, 차폐 계산 결과에 따라 핫셀 주요부위에 대한 차폐 설계를 완료하였다. 또한 폐용융염 및 방사성물질을 임시로 저장하기 위한 storage vault에 대한 차폐 설계를 수행하였다. 차폐 보강 재료로서 중량콘크리트, 납 등을 선택하여, 각 부위별로 핫셀의 방사선 선량 설계기준을 만족시키는 보강 차폐체의 두께를 결정하였다.

핫셀의 주요 부위에 대한 선량 평가 결과를 토대로, 핫셀에 설치되는 각각의 부대설비에 따라 핫셀 설계 기준치를 모두 만족시키도록 설계에 반영하였으며, 본 결과는 핫셀 시설을 보강하기 위한 상세 설계 자료로 사용될 것이다.

### 1. Rear Door for Hot Cell

핫셀의 차폐벽에는 핫셀의 운영 및 운전을 편리하게 하기 위한 rear door 및 inter-cell door 등 차폐문이 설치되게 되며, 특히 문과 문틀 사이에 방사선 누출이 없도록 고려하여야 한다. Rear door 중앙에 핵물질의 반·출입을 위한 padirac transfer tube가 설치되게 되며, rear door의 주 차폐체는 차폐벽 후면과 두께를 맞추기 위하여 중량콘크리트로 설계되었다.

### 2. Penetrations

핫셀 운전에 필요한 배선, 급배수 설비 및 소화 설비 등 각종 유틸리티 공급에 필요한 penetration으로는 S자 및 L자형의 두 종류가 설치되게 된다. S자형은 핫셀의 전면부 및 후면부에 집합체 형태로 삽입되며, L자형의 경우 전면부 우측 가장자리에 설치되게 된다.

Penetration 위치에 따른 차폐능 저하 감소분을 보상하기 위한 납 차폐체의 두께를 결정하였다. Penetration의 경우 방사선이 관통을 따라 streaming될 확률이 존재하나, 실제 선원 위치를 고려한 결과 그 양이 미미한 것으로 평가 되었다.

### 3. Protection Screw

환기 덕트가 차폐벽을 관통해야 하는 경우 관통 부분에 차폐벽과 동일한 차폐능을 확보하거나 protection screw를 설치하게 되며, protection screw의 내부는 나선형 구조로서 납으로 제작된다. 본 시설에는 90 cm 및 70 cm 두께의 중량콘크리트에 해당하는 2가지 종류의 protection screw가

사용되며, 나선형 구조로 구성된 납의 두께를 26 cm 및 21 cm 2 종류를 사용한다.

#### 4. Toboggan

핫셀 벽에 toboggan이 설치될 경우, toboggan 설치로 인해 생기는 공간을 통한 방사능을 차폐하기 위해 나선형 모양으로 설계를 하고 toboggan 주위를 납 보강 차폐한다. 본 시설에 설치 될 toboggan의 경우, helicoid 형태를 가지도록 설계되었으며, 차폐가 취약할 것으로 예상되는 부분은 각 각의 경우별로 나누어 차폐 해석을 수행하였다.

#### 5. Storage Vault

실증시설 내에 차세대관리 종합공정에서 발생하는 금속우라늄 또는 폐용융염 등의 공정폐기물 등 고준위 방사성물질을 임시 저장하기 위한 storage vault가 M8a 및 M8b cell의 작업테이블 밑에 설치되며, 각 각 6개의 독립된 저장소로 구성되어 있다. M8a cell의 storage vault에는 직경 150 mm, 길이 250 mm의 원통형 캐니스터 12개를 저장할 수 있는 용량을 가지며, M8b cell의 storage vault에는 직경 150 mm, 길이 250 mm의 캐니스터 8개와 직경 150 mm, 길이 100 mm의 캐니스터 10개를 동시에 저장할 수 있는 용량을 가진다. Storage vault의 독립된 6개의 저장소 중 실증시험에서 발생하는 폐용융염은 0.5 batch(총 폐용융염 방사선원항의 1/10)씩 5개의 저장소에 들어가며, 나머지 한 개의 저장소에 5 batch 분량의 금속전환체가 저장된다고 가정하여 차폐 해석을 수행하였다.

## ACP 핫셀의 방사선안전관리 시스템

국동학, 정원명, 구정희, 조일제, 이은표, 유길성

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

차세대관리 종합공정(Advanced spent fuel Conditioning Process)은 사용후핵연료의 안전하고 효율적인 관리를 위하여 제시된 건식처리공정으로 사용후핵연료를 금속으로 전환하고, 고발열성 핵종(Cs, Sr)을 효율적으로 제거하여 사용후핵연료의 부피, 발열량 및 방사선의 세기를 최대 1/4 까지 감소시키고, 처분용기의 소요량과 처분장의 소요면적을 1/2 이상으로 축소함으로써 처분 안전성과 경제성을 높일 수 있는 장점으로 인해 연구개발 중에 있으며, 이의 실증시험 수행을 위하여 a-v type의 핫셀을 건설중에 있다.

사용후핵연료를 취급하게 되는 핫셀 내부와 시설의 운영을 위한 운전구역 및 서비스구역에는 공정운영중 발생하는 방사선에 대한 안전성을 확보하기 위해 방사선안전관리시스템(RMS)을 반드시 설치하여야 하며 본 공정에서 취급하게될 방사능의 평가와 방사선안전관리 규제치를 바탕으로 ACP 핫셀에 필요한 시스템의 사양을 도출하였다.

IMEF(Irradiated Material Examination Facility)의 지하에 설치될 ACP Hotcell은 Process Cell 과 Maintenance Cell로 구성되어 각 핫셀 내부에 Hotcell Door Monitor가 설치되며 핫셀을 중심으로 앞부분(운전구역)과 뒷부분(서비스구역)에 Area Monitor와 Room Air Monitor가 각각 설치된다. 또한 본 공정 자체에서 발생하여 배기덕트로 빠져나가는 방사능량을 측정하기 위하여 Duct Monitor와 함께 Iodine Monitor를 설치하여 환경으로의 방출량도 점검하게 된다. 이와같은 방사선안전관리 시스템을 통하여 ACP공정의 원활한 진행을 위한 안전성 확보를 얻을 수 있다.

## 사용후연료 저장용기 캐니스터의 낙하평가

서기석, 신동필, 박성원, 정성환\*, 이홍영\*

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

\*원자력환경기술원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

국내 사용후연료는 중간저장시설 확보가 지연됨에 따라 점차 각 발전소의 사용후연료 저장조가 포화상태에 이르고 있다. 국가정책에 따른 사용후연료 중간저장시설의 운영이 시작되는 시점까지 발전소에서 사용후연료 저장용기가 하나의 대안으로 고려될 수 있다. 경수로 사용후연료의 저장용기의 구조설계는 취급사고의 한 형태로서 낙하조건에 대한 안전성을 요구하고 있다. 경수로 사용후연료 24 다발을 적재하는 캐니스터는 콘크리트 외부용기(overpack)의 상부로부터 하향 방향으로 삽입된다. 이 경우에 캐니스터의 취급은 캐니스터의 낙하 사고의 가능성을 배제할 수 없다. 이 조건은 ANSI 57.9 및 NUREG-1536 등에 명시되어 있으며, 캐니스터의 낙하에서 격납경계 유지와 미입계판을 지지하고 있는 바스켓의 구조 안전성을 평가되어야 한다. 캐니스터의 수직방향 및 수평낙하에 대한 구조 안전성평가는 ABAQUS/EXPLICIT 전산코드를 활용하여 수행하였다. 전산 모델은 전체의 1/2크기에 대해 3차원 모델을 적용하였다. 낙하 높이에 따른 에너지와 충돌 후 탄소성 변형에너지 등을 비교하여 입력 건전성 평가를 하였으며, 특히 응력평가는 캐니스터가 격납 경계에 해당하므로 ASME sec III NB, 캐니스터 내부의 바스켓은 NG을 각각 적용하였으며 사고 조건인 level D의 요건에 따라 평가하였다. 낙하 높이 30 -40 cm 범위에 대해 수직방향은 480 g, 수평방향은 50 g의 하중을 받으며, 허용응력 범위이내로 평가되었다.

## 사용후핵연료 금속전환체 저장용기의 열전달해석 평가

이주찬, 방경식, 신희성, 서기석, 김호동

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

원자력연구소에서는 PWR 사용후핵연료를 건식 개질함으로써 관리 부피를 줄이고 안전상에 문제를 일으키는 고방사성 핵종인 세슘과 스트론튬 등을 선택적으로 제거하여 방사능 및 냉각부하를 줄일 수 있는 사용후핵연료 차세대관리 공정개발에 대한 연구를 수행하고 있다. 이는 세라믹 형태의 PWR 핵연료를 금속으로 전환시켜 관리하는 방법으로 금속전환체는 PWR 사용후핵연료와 비교하여 체적, 방사능 및 발열량을 약 1/4로 줄일 수 있는 이점이 있다. 본 연구에서는 범용 열유동해석 코드인 FLUENT를 이용하여 사용후핵연료 금속전환체 저장용기의 열전달해석을 수행하였다. 사용후핵연료 저장방식은 크게 건식 및 습식 저장방식으로 구분되며, 최근에는 안전성 측면에서 이점이 있는 건식 저장방식이 널리 이용되고 있다. 특히, 금속전환체는 산화성이 강하고 물 또는 수증기와 반응하면 수소 또는 수소화물이 생성되어 반드시 건식 저장방식이 적용되어야 한다. 금속전환체 저장용기는 내부에 불활성 기체를 채우는 건식 냉각방식이며, 저장용량은 28 다발의 PWR 사용후핵연료 집합체에 상당하는 금속전환체를 저장할 수 있다. 금속전환체의 단위저장 캐니스터의 용량은 PWR 핵연료집합체 1개에 해당되며, 열전달 효율을 증대시키기 위하여 육각형 형태의 알루미늄 재질을 사용하였다. 단위저장 캐니스터는 핵연료 바스켓에 장전되며, 7개의 바스켓을 4단으로 적재하여 1개의 저장용기에 총 28개의 단위저장 캐니스터를 저장할 수 있도록 하였다. 열전달해석을 위한 해석조건은 정상, 비정상 및 화재사고조건을 고려하였다. 정상운전조건은 저장용기가 주변온도 27 °C 및 10 CFR 71에서 규정하는 태양열 조건에 노출되는 조건이며, 비정상조건은 주변온도 38 °C를 적용하였다. 화재사고조건은 10 CFR 71에서 규정하는 800 °C의 화재조건에서 저장용기가 30분 동안 노출된 후 자연냉각되는 조건이다. PWR 사용후핵연료를 금속전환할 경우 붕괴열이 약 1/4로 감소되어 28개의 금속전환체로부터 방출되는 붕괴열은 5.04 kW를 고려하였다. 저장용기 표면으로부터 외부 대기로의 자연대류 및 복사열전달을 고려하였으며, 저장용기 본체를 통한 열전도를 고려하였다. 저장용기의 열전달에서 가장 중요하게 고려할 사항은 장기 저장시에 금속전환체 연료봉의 온도제한이며, 금속연료는 고온에서 발화 가능성이 있으므로 PWR 사용후핵연료에 비하여 연료봉 허용온도가 낮은 특성을 갖는다. 금속연료의 일종인 Magnox 연료를 기준으로 금속전환체의 저장 허용온도를 설정하였으며, 정상운전조건에서 150 °C, 비정상 및 사고조건에서 200 °C로 설정하였다. 열해석 결과 정상조건에서 연료봉의 최고온도는 139 °C로 계산되어 허용치인 150 °C보다 낮게 나타났다. 비정상 환경온도는 38 °C로 정상온도에 비하여 11 °C 높으며, 저장용기 및 연료봉의 온도도 정상조건에 비하여 약 10 °C 정도 높게 나타났다. 화재사고조건에서 연료봉의 최고온도는 168 °C로 허용온도로 설정된 200 °C보다 낮게 나타났다. 따라서 열적 건전성 측면에서 저장용기의 안전성이 충분히 유지될 것으로 판단된다.

## SnO<sub>2</sub> 양극을 이용한 전기화학적 금속전환 mock-up(5 kg U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>/batch) 시험

오승철, 홍순석, 이원경, 허진목, 서중석, 박성원  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

산화물 형태의 사용후핵연료를 고온 용융염계에서 금속 형태로 전환하는 전기화학적 금속전환 공정 개발의 일환으로 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말로 충전된 다공성 마그네시아 용기 및 스테인레스강 고체전극으로 구성된 일체형 음극과 SnO<sub>2</sub> 재질의 양극을 사용하여 5 kg U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>/batch 규모의 mock-up 시험을 수행하였다. 백금 재질의 양극을 사용하였을 때 99% 이상의 금속전환율을 보인 동일한 전하량을 공급하고 실험을 중단한 결과 X-선 회절분석(XRD) 및 열중량 분석(TG)으로부터 스테인레스강 고체전극 부분에서는 거의 금속으로 전환되었으나 다공성 마그네시아 용기 부분에서는 비교적 금속전환율이 낮은 경향을 나타내었다. 이는 백금과 SnO<sub>2</sub>의 전기전도도 차이에 의한 전압강하에 기인하는 것으로 결국 SnO<sub>2</sub>의 경우에는 운전시간이 더 요구되는 것으로 나타났다. 사용된 SnO<sub>2</sub> 전극의 SEM 분석 결과 SnO<sub>2</sub> 전극 내부로 LiCl 용융염이 침투한 것으로 나타났으며, 장시간의 실험에도 불구하고 전극의 구조적인 건전성이 유지되었음을 확인하였다. 한편, 실험 종료 후 사용된 복합용융염은 진공시스템을 이용하여 반응기 외부로 원활하게 이송할 수 있었다.

## 비증착 방법에 의한 사용후 핵연료의 EPMA 분석

정양홍, 송용섭, 김도식, 김희문

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

### 요약

사용후 핵연료의 조성을 분석하거나 또는 반사전자상과 2차 전자상 등으로 시료를 관찰하기 위해서는 핫셀(Hot cell)에 증착기(coater)를 설치하여 시료표면을 전도성 물질인 탄소 등으로 증착시켜야 한다. 그러나 원격조정기(manipulator)를 이용하여 수행되는 핫셀에서의 증착작업은 사용후 핵연료 시험의 선진분석기술을 갖고 있는 원자력 선진국에서도 핫셀내에 설치되어 있는 증착기의 탄소봉을 교체하는 작업과 진공장치의 성능 유지가 까다로워 시료표면에 균질하게 전도성 물질을 증착시키는 작업에 많은 어려움을 겪고 있다.

본 연구는 통상적으로 이용되는 증착기를 사용하지 않고 Silver Paint를 사용하여 사용후 핵연료를 분석할 수 있는 새로운 방법에 대한 연구를 수행하였다. 산화물 핵연료는 전기전도도가 매우 낮아( $3 \times 10^{-1} \sim 4 \times 10^{-8} / \text{ohm.cm}$ ) 입사된 전자의 이동이 원활하지 못해 일어나는 들뜸(charging) 현상이 발생한다. 그러나 Silver Paint에 사용후 핵연료를 접착하면 모세관(capillary)현상에 의해 시료 주위와 핵연료의 결정립계로 Silver가 스며들어 입사된 전자의 이동이 원활해져 전도성이 극히 낮은 시료의 분석이 가능하게 된다. 본 시험에 사용된 EPMA는 (Electron Probe Micro Analyzer, SX-50R, CAMECA, Paris, France) 고 방사능을 띤 조사 핵연료의 시험을 수행할 수 있도록 기기의 적절한 부위에 납과 텅스텐으로 차폐되어 시편의 방사능 세기가  $3 \times 10^{10} \text{Bq}$  까지 시험 가능한 기기이다. 그림 1은 JAERI에 설치 운영중인 증착기 설비 사진이다. 그림에서 핫셀에 설치된 증착기의 진공을 유지하기 위해 핫셀 벽을 관통하여 증착기 본체까지 연결된 배출관의 형상과 복잡한 주변 장치들을 볼 수 있다. 그림 2는 비조사 핵연료 시편을 Silver Paint에 접착한 사진이다. 그림은 시료 주위와 시료 표면까지 Silver Paint가 도포된 모습을 보여주고 있다. 상용발전소에서 연소도가 50,000 MWd/tU인 사용후 핵연료를 상기와 같은 방법으로 만든 시편의 표면을 관찰한 사진을 그림 3~8에 나타내었다. 그림 3은 핵연료 중앙부위의 결정립을 나타낸 그림이다. Silver Paint만으로 접착한 시료의 표면관찰 및 정량분석이 그림에서 보듯이 가능함을 확인하였다. 그림 4는 사용후 핵연료시료를 중앙부위에서 가장자리까지를 다섯 부위로 나누어 그 중 중앙부위(1/5) 지점의 입계 및 형상을 관찰한 사진이다. 결정립의 크기가 다른 부위보다 상대적으로 크고, 결정립에 생성된 기공이 발달되어 있음을 볼 수 있다. 그림 5와 6과 7은 중심부위와 rim부위 사이 지점을 관찰한 사진으로서 결정립과 기공의 분포가 비슷한 형상을 나타내고 있음을 관찰할 수 있었다. 그림 8은 rim 부위 사진으로 전형적인 rim 영역 현상을 관찰할 수 있었다. 표 1은 그림 2와 같이 비조사 산화물 핵연료를 Silver Paint로 접착한 시편을 정량 분석한 결과이다. 시편의 조성은 33.6 at% U, 66.4 at% O의 결과를 얻었다.

산화물 핵연료의 표면 관찰 및 정량 분석 시험시 시편 표면을 전도성 물질로 증착시키지 않고, Silver Paint에 시편을 접착하는 방법으로도 만족한 시험 결과를 얻을 수 있었다.

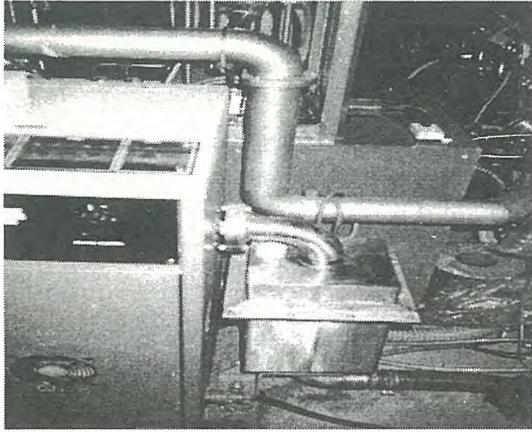


그림 1 JAERI에 설치 운영중인 증착기

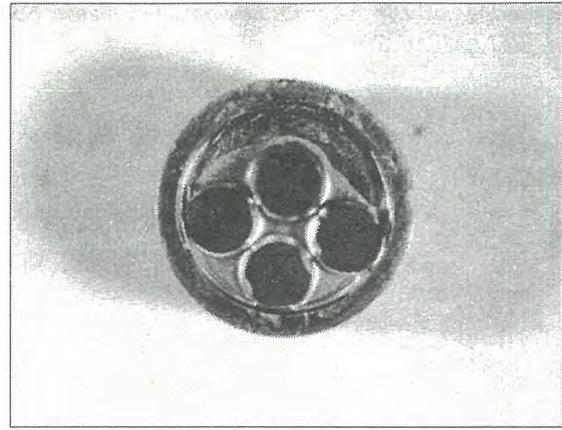


그림 2 Silver Paint에 접착된 비조사 시편

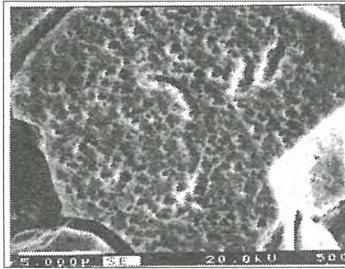


그림 3 핵연료 중앙부위

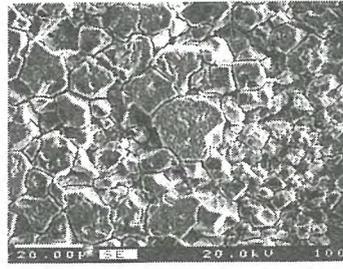


그림 4 1/5 중앙부위 사진

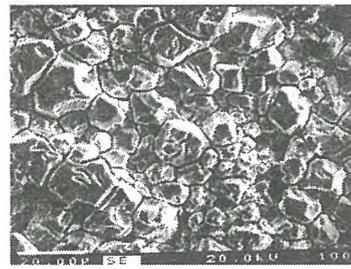


그림 5 2/5지점 핵연료사진

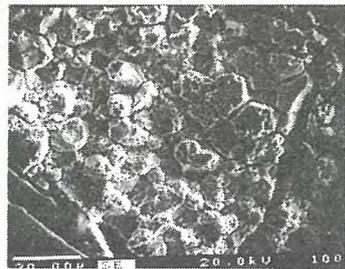


그림 8 5/5지점 Rim영역

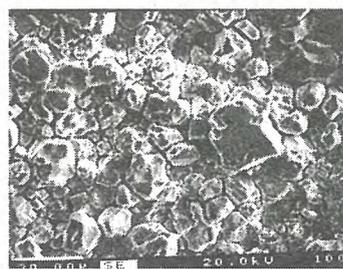


그림 6 3/5지점 핵연료사진

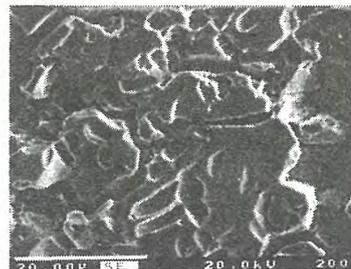


그림 7 4/5지점 핵연료사진

표 1 비조사 UO<sub>2</sub> 핵연료의 정량분석 결과

	Weight %		Atomic %	
	aver	dev	aver	dev
U	88.5	0.55	33.6	0.37
O	11.9	0.25	66.4	0.37
Total	100.4		100	

## 모의 금속전환체 U-1wt%Nb 합금의 공기중 산화거동

이은표, 주준식, 유길성, 조일제, 국동학, 김호동  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

사용후핵연료 금속전환체는 세라믹형 사용후핵연료를 리튬용융염으로 금속전환하여 생성한 우라늄금속으로 상온에서도 표면산화가 진행될 정도로 매우 불안정한 상태이다. 이에 대한 저장 안정성 향상방안을 도출하기 위해 금속전환체의 주성분인 금속우라늄과 산화 안정화물질인 Nb를 첨가한 모의 금속전환체 합금을 제작하여 200 °C ~ 300 °C 온도구간에서 열중량분석기(TGA)를 이용해 순수 산소분위기로 산화시험을 수행하였다. U-1wt%Nb 합금의 시험 결과 200 °C에서는 시료의 모양은 변화가 없고 표면 산화만 진행되었고, 250 °C에서는 시료 외부에서 부피팽창이 진행되어 변형이 되었으나, 시료의 원형은 유지되었으며, 300 °C에서는 시료가 여러 조각으로 분리되어 시료 표면으로부터 산화막이 떨어지고 약간의 산화분말이 형성되었다. 순수금속우라늄에 비해 온도가 200 °C일 경우에는 1.61배, 250 °C에서는 1.45배, 300 °C에서는 1.33배 산화저항성이 향상되는 것으로 나타나 온도가 상승될수록 산화저항성은 감소하는 경향을 나타내었다. U-1wt%Nb 합금에 대한 48시간 시험 후 산화속도식 및 활성화에너지를 구하였다.

$$U-1wt\%Nb : k = 1.3 \times 10^4 \exp \left( - \frac{17,130}{RT} \right) \quad [wt \% / h]$$

Activation Energy = 17.13 [kcal/mol]

시험 후 시편에 대한 미세성분 및 조직을 광학현미경, SEM, EPMA 등을 통해 분석하였고, 시험결과는 사용후핵연료 금속전환체의 저장 안정성 평가를 위한 기초자료로 활용될 것이다.

## 원격 작업환경에서 3차원 디지털 가상모형(Digital Mock-Up)의 활용

송태길, 김성현, 윤지섭

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

새로운 제품 또는 프로세스를 개발하기 위해서는 수없이 많은 결정을 해 나가야 한다. 이 과정에서 어떤 결정하나가 잘못되면 우리는 시행착오를 겪거나 경우에 따라 크게 잘못된 결과를 감당해야 한다. 또한 원자력 분야와 같이 작업자의 안전과 건강에 직결되는 작업환경도 수많은 요소들을 고려하여 여러 가지 대안들 중에서 하나를 결정해야 한다. 이러한 결정을 위해, 가상적인 예측 실험인 시뮬레이션(simulation)을 수행하게 된다. 시뮬레이션의 기초적인 요구조건은 시뮬레이션을 구성하는 요소의 많고 적음과 정교함이다. 요건이 갖추어졌다 해도 그 요소의 수가 많으면, 컴퓨터의 힘을 빌려야만 시뮬레이션을 해 볼 수 있다.

사용후핵연료를 취급하는 핫셀에서의 작업은 원격 취급 장비인 크레인, 기계식 마스터/슬레이브 매니플레이터(master-slave manipulator), 서보 매니플레이터(servo manipulator) 등을 이용하여 원격으로 작업을 수행하게 된다. 따라서 실증용 장치의 설계뿐만 아니라 핫셀 내 장치의 설치 전에 원격 작업에 대한 철저한 분석이 요구된다. 이러한 분석은 2차원적으로 수행하는 데는 한계가 있으며, 따라서 대부분 실제 환경과 유사한 시험시설(mock-up)을 설치하여 사전에 검증을 수행한다. 그러나 이러한 시험시설의 설치에는 많은 시간과 비용이 요구된다.

따라서 본 연구에서는 사용후핵연료 차세대관리공정을 대상으로 원격 작업환경과 유지보수성을 평가하기 위해 다쏘사의 ENVISION을 이용하여 3차원 디지털 가상모형(Digital Mock-Up, DMU)을 (Fig. 1, Fig. 2 참조) 구축하고, 3차원 시뮬레이션을 통한 다양한 분석을 수행하였다.

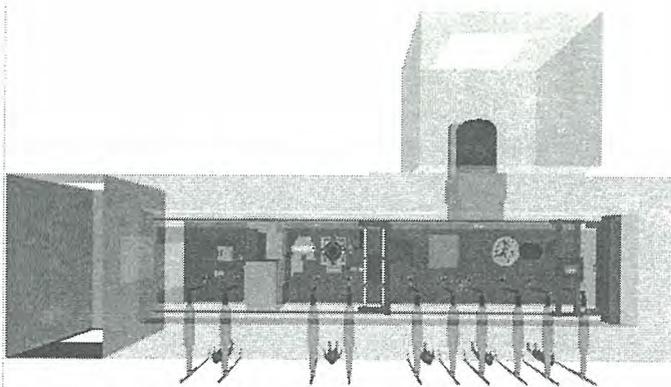


Fig. 1. DMU for Advanced Conditioning Process.



Fig. 2. DMU for Remote Handling Test for ACP

DMU의 구축은 작업환경인 핫셀, 각각의 공정장비, 유지보수 장비 및 공구 등에 대한 3차원 모델을 구축하고, 이러한 모델에 기구학적 특성(kinematics)을 부여하여 가상 장치(device)를 설정한다. 그리고 이러한 가상장치를 작업환경과 같이 배치한 가상작업환경(work-cell)의 구축을 통해 DMU가 완성된다. 이렇게 구축된 DMU 상에서 GSL(Graphic Simulation Language)과

CLI(Command Line Interpreter)를 이용하여 Program을 작성하거나 또는 메뉴 방식으로 3차원 시뮬레이션과 분석을 수행한다.

DMU 상에서 실제 작업 환경에서와 같이 다양한 분석을 수행할 수 있으며, 엔지니어들은 많은 가치 있는 일들을 손쉽게 수행할 수 있다. 즉 크기는 적당한지, 부품과 부품간의 공간은 적당한지, 혹시 작동할 때 서로 닿아서 문제가 생기지는 않는지, 또 조립은 잘 될지, 해체하거나 수리하기는 쉬운지 등(Fig. 3 참조)을 비교적 손쉽게 파악할 수 있다.

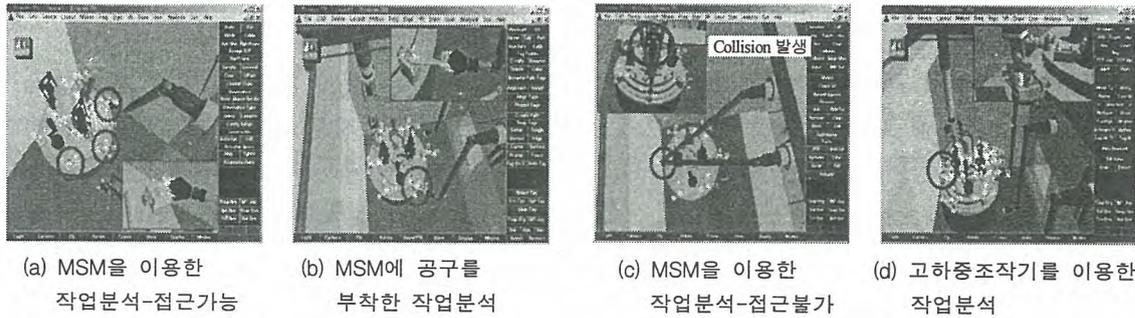


Fig. 3 Analysis of Remote Handling and Operation.

또한 DMU 상에서 Fig. 4와 같이 전반적인 공정흐름에 대한 3차원 그래픽 시뮬레이션을 구현함으로써 공정 전반에 대한 분석 및 공정의 가시화를 통해 이해의 폭을 증진시킬 수 있다. 향후 원자력과 같이 원격작업과 작업자의 안전성이 요구되고 대국민 홍보가 필요한 분야에서는 이러한 DMU의 활용이 보다 폭넓게 활용되어야 할 것으로 보인다.

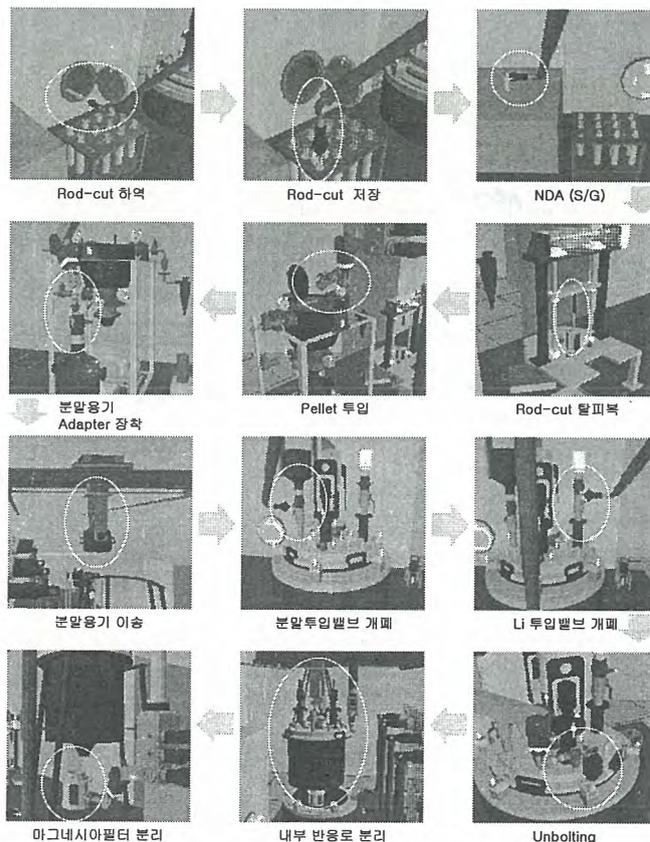


Fig. 4 3D Graphic Simulation for Main Process of ACP.

## 차세대관리 종합공정 실증시설의 핵물질 이동 감시 체계 설계

송대용, 이상윤, 하장호, 고원일, 김호동, 이태훈  
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

핵물질 안전조치의 목적은 핵물질을 평화적인 원자력 활동 이외의 목적을 위해 전용하지 않는다는 것을 국제사회에 보장하는 것이다. 이와 같은 안전조치의 목적을 달성하기 위한 기본적인 접근 방안은 계량관리이며, 중요한 보조적 수단으로 격납/감시를 이용한다. 격납/감시 기법은 핵물질 계량관리를 보완하고 시설의 운전에 관한 간섭을 최소화하여, 효율적이고 효과적인 방법으로 안전조치의 목적을 달성하기 위한 수단이다. 이 연구에서는 원자력 연구개발 중장기 계획사업으로 한국원자력연구소에서 수행하고 있는 사용후핵연료의 고온 용융염 금속전환 공정 연구의 원활한 수행을 위해 사용후핵연료 차세대관리 종합공정 실증시설의 핵물질 이동 감시 체계를 설계하였다. 이를 위해, 시설에서의 격납 특성 분석 및 격납 경계 설정 작업을 진행하였으며, 시설의 격납 구역에서의 전용 경로를 설정하였다. 또한, 각 전용 경로에서의 전용 가능성 수준을 분석하였고, 이에 따른 격납/감시수단을 제시하였다. 차세대관리 종합공정 시설은 실험실 규모의 실증 시설이므로 기존의 핵물질 안전조치 장비 및 기술을 활용하여 격납/감시 체계 구축이 가능한 것으로 분석되었다. 이 연구에서 제안된 핵물질 이동 감시 체계 설계 내용은 차세대관리 종합공정 실증시설의 감시 시스템 체계 수립을 위해 활용될 것이며, 나아가 국내 유사 연구시설의 핵물질 이동 감시체계 수립을 위한 기초자료로도 유용하게 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

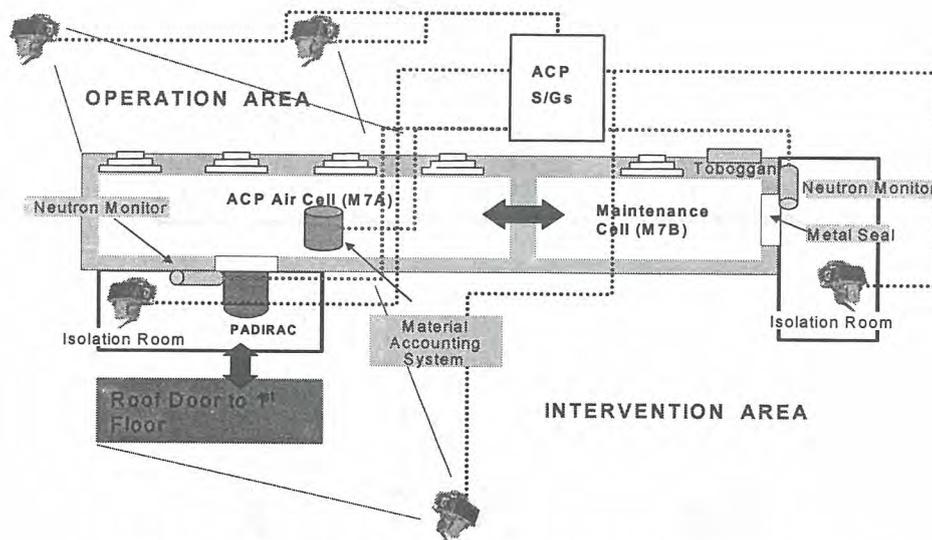


그림 1. 차세대관리 종합공정 실증시설의 격납/감시 개념 설계도.

**제4분과 (D)**  
**방사선안전 및 환경**

빈 면

국내 원자력발전소 주변  
삼중수소 및  $^{14}\text{C}$  섭취선량 평가 경로인자 분석

Analysis of Parameters for the Off-Site Dose Calculation  
Due to HTO, OBT, and Radioactive Carbon Ingestion

이갑복, 정양근, 방선영, 엄희문  
한전 전력연구원, 대전광역시 유성구 문지동 103-16

Abstract

For assessment of tritium and radiocarbon ingestion dose to off site individuals, water, hydrogen, and carbon content of main farm produce of Korea were investigated to replace the existing data in K-DOSE60, the Offsite Dose Calculation Manual(ODCM) of Korea Hydro & Nuclear Power Co. Ltd.(KHNP). Main items and weighting factors of farm produce were determined with the nationwide food intake data in 2001, 2002. Main farm produce were sampled around Kori, Wolsong, Ulchin, Younggwang nuclear power sites. Content of each produce was multiplied by weighting factor and summed up to make the weighted mean group value. For grains, water, hydrogen, and carbon content was not much different from the existing data currently used in K-DOSE60, but root vegetables had 3.5 times more hydrogen, and leafy vegetables and fruits had 0.7 ~ 1.3 times more or less water, hydrogen, and carbon contents than K-DOSE60.

Key Words : Tritium, Radiocarbon, ODCM, Ingestion dose, Pathway

요 약

원전 주변 주민들의  $^3\text{H}$  및  $^{14}\text{C}$  섭취선량을 평가하는데 필요한 농작물중  $^3\text{H}$ 와  $^{14}\text{C}$ 농도를 계산하기 위하여 국내 4개 원전 주변 10개 지역에서 채취한 채소 및 과일류의 수분, 수소 및 탄소함량을 분석하였다. 조사 대상 농작물은 2001 ~ 2002년 보건복지부 국민건강·영양 조사결과에 근거하여 결정하였고, 그것들의 섭취량 백분율을 식품가중치로 취하여 그룹 대푯값을 산출하였다. 원전 주변 농작물 시료들의 수분, 수소 및 탄소함량을 분석한 결과, 곡류는 현재 원전의 주민피폭선량 평가코드인 K-DOSE60에 적용중인 값과 유사하게 나타났다. 무 등의 근채류는 현행 ODCM의 채소류보다 3.5배정도 높은 수소함량을 보였고, 엽채류 및 과일류의 수분, 수소 및 탄소함량이 현행 ODCM과 비교하여 약 0.7 ~ 1.3배정도의 값을 보였다.

중심단어 : 섭취선량, 삼중수소, 방사성탄소, 주민피폭선량, 섭취선량, 피폭경로인자

## 1. 서 론

국내 원자력발전소의 원전주변 주민 피폭 방사선량은 2001년까지는 한국에너지연구소(현재는 한국원자력안전기술원(KINS)과 한국원자력연구소로 분리)가 1989년에 미국의 GASPARD와 LADTAP을 수정·보완한 GASDOS와 LIQDOS 코드를 이용하여 평가하였고, 2002년부터는 한전 전력연구원에서 개발한 K-DOSE60 코드로 평가하고 있다. 본 코드에서는 삼중수소와 C-14의 피폭경로에 대한 입력변수는 캐나다 AECL(Atomic Energy of Canada Limited)의 연구결과[1]를 이용하고 있다.

원전주변 주민들의  $^3\text{H}$  및  $^{14}\text{C}$  섭취선량 계산시 필요한 농작물의 HTO, OBT(Organically Bound Tritium) 및  $^{14}\text{C}$  농도는 비방사능 모델로 구한다[2]. 국내에서는 2002년부터는 HTO와 OBT 형태 모두에 대한 섭취선량을 평가하고 있다[3]. 원전 주변 주민들이 섭취하는 음식물의 HTO는 어느 한 장소의 모든 환경매질에서 3H/1H비는 똑같다고 가정[4]하는 비방사능 모델을 이용하여 농작물의 수분함량으로부터 계산할 수 있고, 음식물의 OBT는 식물체 유기질 중의 수소가 모두 OBT가 된다고 가정하면 식물체 유기질 중의 총 H 함량으로부터 이론적으로 계산할 수 있다[5~6].  $^{14}\text{C}$  역시 비방사능 모델을 이용하여 대기 중의  $^{14}\text{C}$  농도로부터 농작물의  $^{14}\text{C}$  농도를 계산할 수 있다[2]. 따라서 음식물로부터의  $^3\text{H}$  섭취선량과  $^{14}\text{C}$  섭취선량을 계산하기 위해서는 음식물의 수분 및 수소 함량, 그리고 탄소함량을 알아야 한다.

Killough 등[8]은 식품의 단백질, 지방, 탄수화물 함량으로부터 이론적으로 탄소함량을 산출하였고, Diabate 등[6]은 음식물의 단백질, 지방, 탄수화물 함량으로부터 수소함량을 산출하는 계산식을 제시하였다. 현재까지 국내에는 농작물의 수소함량과 탄소함량을 분석한 자료가 없었기 때문에 현행 원전 ODCM(이하 ODCM)은 AECL(Atomic Energy of Canada, Limited)이 Diabetes 등의 방법과 Killough 등의 방법을 이용하여 산출한 수소 및 탄소함량을 적용하였다[3]. 그러나 ODCM의 수소 및 탄소함량은 보리, 옥수수, 밀 등의 곡류와 아스파라거스, 브로콜리, 양배추, 셀러리, 치커리, 케일, 사탕무, 당근 등 우리나라 사람들이 일상적으로 섭취하는 농작물과는 다소 상이한 농작물들을 대상으로 조사된 것이어서 국내 원전주변 주민들의 실질적인 섭취선량 평가를 위해서는 한국인의 섭취특성을 고려한 정확한 대푯값이 필요하다. 이에 문헌조사 및 이론적인 방법과 실제로 원전 주변의 환경시료를 채취하여 상기 변수들의 값을 분석하였다.

## 2. 분석방법 및 결과

### 가. 주요 농작물 및 섭취가중치

우리나라 사람들이 섭취하는 주요 농작물의 종류와 섭취가중치를 조사하였다. 보건복지부에서 조사하여 발표한 2001~2002년 계절별 섭취량 조사결과 보고서[8~9]를 이용하여 곡류, 엽채류, 근채류, 과일류의 주요 섭취 농작물과 섭취가중치를 도출하였다.

6개 연령군 중 모유와 분유만을 섭취하는 1세 미만의 영아를 제외한 5개 연령군에 대하여 식품별 1일 섭취량을 조사하고 연령군비를 곱하여 연령군 통합 섭취량을 도출하였다. 연령군비는 통계청의 2002년 추산인구[10] 중 1세 이상 인구를 대상으로 도출하여 성인, 15세, 10세, 5세, 1세 인구에 각각 0.778, 0.066, 0.075, 0.069, 0.013을 적용하였다. 바나나, 오렌지 등 국내에서 생산되지 않는 식품과 떡, 죽, 인스턴트식품 등과 같은 가공식품은 조사대상에서 제외하였다. 곡류, 엽채류, 근채류, 과일류 그룹별로 섭취량 백분율 누적치 95%까지의 품목을 주요 섭취 농작물로 선정하고 그 섭취량 백분율을 식품 가중치로 취하여 농작물군 대푯값 산출에 이용하였다. 이렇게 하여 도출된 계절별 주요 섭취 농작물 및 섭취가중치는 <표 1>과 같다. 한국인이 주로 섭취하는 농작물의 종류는 과일류를 제외하면 계절에 따른 변동은 거의 없으나 섭취가중치는 계절별로 차이를 보였다. 주로 섭취하는 농작물들은 쌀, 배추, 오이, 파, 무, 감자, 수박, 사과, 감 등이었다. 연간 섭취식품 및 가중치는 계절별 자료를 평균하였다.

<표 1> 계절별 주요 섭취 농작물의 종류 및 식품가중치\*

식품군	겨울	weight	봄	weight	여름	weight	가을	weight
곡류	백미	0.952	백미	0.955	백미	0.948	백미	0.961
	보리	0.018	보리	0.020	보리	0.017	보리	0.017
	찰쌀	0.018	찰쌀	0.013	찰쌀	0.021	찰쌀	0.013
	대두	0.012	대두	0.012	대두	0.013	대두	0.009
계		1.000		1.000		1.000		1.000
엽채류	배추	0.622	배추	0.590	배추	0.495	배추	0.595
	파	0.100	오이	0.079	오이	0.111	애호박	0.095
	시금치	0.064	파	0.078	토마토	0.088	파	0.074
	애호박	0.048	시금치	0.071	애호박	0.080	시금치	0.046
	무청	0.035	애호박	0.048	파	0.060	오이	0.040
	오이	0.031	토마토	0.039	상추	0.042	양배추	0.035
	양배추	0.031	풋고추	0.026	풋고추	0.039	무청	0.033
	풋고추	0.027	상추	0.026	시금치	0.027	상추	0.030
	상추	0.021	양배추	0.023	양배추	0.022	고사리	0.028
	늪은호박	0.020	무청	0.020	아욱	0.018	풋고추	0.025
계		1.000		1.000		1.000		1.000
근채류	무	0.557	무	0.526	무	0.436	무	0.543
	양파	0.156	양파	0.167	감자	0.307	양파	0.166
	감자	0.129	감자	0.158	양파	0.165	감자	0.147
	고구마	0.058	마늘	0.061	마늘	0.053	마늘	0.052
	마늘	0.056	당근	0.058	당근	0.039	당근	0.047
	당근	0.045	고구마	0.030			고구마	0.044
계		1.000		1.000		1.000		1.000
과일류	감	0.392	딸기	0.371	수박	0.667	배	0.316
	사과	0.323	사과	0.322	참외	0.220	감	0.231
	배	0.145	배	0.125	복숭아	0.063	포도	0.230
	포도	0.141	참외	0.105	자두	0.050	사과	0.206
계		1.000		1.000		1.000		1.000

\*보건복지부 [2001, 2002]의 계절별 섭취량조사결과에 기초

#### 나. 농작물의 수분, 수소 및 탄소 함량 분

한국인이 주로 섭취하는 농작물을 대상으로 원전 주변 지역에서 채취한 농작물의 수분, 수소, 및 탄소함량을 분석하고 농작물군별 대표함량을 도출하였다. <표 1> 주요 섭취 농작물 중 대표적으로 엽채류 7종, 근채류 2종, 과일류 1종을 선정하여 6월 말~7월 중순과 12월에 4개 원전 주변 10개 지역과 대전 지역에서 시료를 채취하였다. 채취된 농작물의 종류와 채취지점은 <표 2>와 같다.

채취한 농작물은 수분 증발을 최소화하기 위하여 얼음주머니를 담은 아이스박스에 넣어 운반하였다. 적당한 크기로 자른 시료를 직경 20cm의 은박접시에 담아 드라이오븐에서  $110 \pm 0.5^\circ\text{C}$ 에서 향량이 될 때까지 건조시키고 무게를 측정하여 건조 감량을 수분 함량으로 취하였다.

수소와 탄소함량은 원소분석기를 이용하여 분석하였다. 수분을 제거한 농작물을 분쇄기로 곱게 분쇄하고 100mesh(aperture size  $150\mu\text{m}$ )체로 걸러 균질하게 혼합된 분말을 분석시료로 취하였다. 원소분석기(LECO-CHN 1000, LECO Co.)에는 EDTA(C 41.0%, H 5.51%, N 9.57%, Leco. Co.)를 표준시약으로 이용하였고, 농작물 건조시료는 약 0.8g을 사용하였다.

<표 2> 시료채취 지점 및 채취 농작물

대상 농작물	영광	고리	월성	울진	대조구
	장성/홍농	서생/월내/울산	나산/양북	부구/매화/나곡	대전
곡류	쌀**	○	○	○	
엽채류	배추***	○	○		○
	오이	○	○	○	○
	토마토	○	○		○
	애호박	○	○		○
	파	○	○	○	○
	상추	○	○	○	○
	풋고추	○	○	○	○
근채류	무***	○	○	○	○
	감자	○	○	○	○
과일류	수박	○			○
	사과**	○	○	○	○
	배**	○	○	○	○

주) 시료채취기간 : 2003. 6. 26 ~ 7. 24(\*\*2003. 12. 4 ~ 12. 12, \*\*\*2003. 6. 26 ~ 7. 24, 2003. 12. 4 ~ 12. 12)

농작물 시료의 수분 함량을 분석한 결과는 <표 3>과 같다. 각 농작물의 원전별 편차는 0.1 ~ 1.0% 범위로서 지역적 차이는 작았다. 4개 원전 평균 배추의 수분함량은 94.7%였고 무는 95.2%였다. 근채류 중에서 2번째로 많이 섭취되는 감자는 81.0%의 수분을 함유하였다. 감자를 제외하면 채소 및 과일의 수분함량은 92 ~ 97% 범위로 작물의 종류에 따른 수분 함량의 차이는 작았다.

<표 3> 국내 원전 주변지역 농작물들의 수분함량 (%)

농작물	영광	월성	고리	울진	평균	표준편차	시료수
쌀	-	13.9	14.3	12.8	13.7	0.8	3
배추	95.1	95.1	94.7	94.2	94.7	0.4	36
오이	96.2	96.6	96.6	96.2	96.5	0.2	23
토마토	94.6	-	94.8	-	94.8	0.1	9
애호박	94.9	-	93.7	94.2	94.0	0.6	18
파	92.3	92.8	92.9	94.4	93.4	0.9	30
상추	94.3	92.0	92.7	93.0	92.6	1.0	17
풋고추	91.8	91.7	92.1	91.9	91.9	0.2	24
무	95.4	95.0	95.1	95.4	95.2	0.2	40
감자	81.6	80.6	81.3	81.1	81.0	0.4	15
수박	94.5	-	-	-	94.5	-	3
사과	88.0	89.1	88.3	87.4	88.3	0.7	12
배	89.5	88.2	88.0	89.4	88.5	0.8	12

<표 4>와 <표 5>는 건조기준 수소 및 탄소 함량을 각각의 수분 함량을 적용하여 생체 기준 함량으로 환산한 것이다. 감자를 제외하면 생체 기준으로 채소들의 수소 함량은 0.2 ~ 0.8%, 탄소 함량은 1.6 ~ 3.6%이었다. 감자의 수소 함량은 4.4%, 탄소 함량은 7.6%로 다른 채소들보다 함유량이 많아 섭취선량 평가 시 선량에 상당히 큰 영향을 줄 수 있다.

<표 4> 국내 원전 주변지역 농작물들의 수소함량 (% , 생체기준)

농작물	영광	월성	고리	울진	평균	표준편차
쌀	-	5.6	5.6	5.8	5.7	0.1
배추	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.0
오이	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.0
토마토	0.3	-	0.3	-	0.3	0.0
애호박	0.3	-	0.4	0.3	0.4	0.1
파	0.4	0.5	0.4	0.3	0.4	0.1
상추	0.3	0.4	0.4	0.3	0.4	0.0
풋고추	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.0
무	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.0
감자	1.1	1.1	1.1	1.2	1.2	0.0
수박	0.3	-	-	-	0.3	-
사과	0.7	0.6	0.7	0.8	0.7	0.1
배	0.6	0.7	0.8	0.7	0.7	0.1

<표 5> 국내 원전 주변지역 농작물들의 탄소함량 (% , 생체기준)

농작물	영광	월성	고리	울진	평균	표준편차
쌀	-	38.2	37.6	38.5	38.1	0.5
배추	2.1	1.9	2.1	2.5	2.2	0.3
오이	1.4	1.9	1.4	1.6	1.6	0.2
토마토	2.5	-	2.2	-	2.4	0.2
애호박	2.2	-	2.9	2.4	2.5	0.3
파	3.1	3.1	3.1	2.3	2.9	0.4
상추	2.2	2.9	2.8	2.5	2.6	0.3
풋고추	3.6	3.6	3.7	3.5	3.6	0.1
무	2.0	2.4	2.1	2.4	2.1	0.2
감자	7.4	7.9	7.5	7.6	7.6	0.2
수박	2.7	-	-	-	2.7	-
사과	5.4	4.8	4.9	5.7	5.2	0.4
배	4.8	5.2	5.3	4.6	5.0	0.3

농작물군 대표 함량은 각 농작물의 함량에 해당 식품가중치를 곱하여 산출하되, 본 조사에서 분석되지 않은 작물에 대해서는 농촌생활연구소의 식품성분표 제6차개정판[11]의 성분표를 토대로 Diabates 등[1]과 Killough 등[7]의 계산식에 따라 단백질, 지방, 탄수화물 함량으로부터 산출한 탄소 및 수소 함량을 적용하였다. <표 6>은 산출된 주요섭취 농작물의 수분, 탄소, 수소 함량과 현행 ODCM에 사용되고 있는 함량을 비교한 것이다.

원전주변 농작물의 수분 함량은 ODCM에 사용되고 있는 값과 유사한 결과를 보여주고 있다. 음식물 섭취량이 가장 높은 곡류는 현행 ODCM의 적용값과 거의 유사하게 나타났다. 수분함량은 배추 등의 엽채류는 ODCM의 채소류 수분 함량과 대동소이하였으나, 무 등의 근채류는 ODCM의 채소류보다 약 9% 낮았다. 수박을 비롯한 과일류는 ODCM의 과일류보다 수분함량이 약 10% 높았다. 수소함량은 근채류는 ODCM의 채소류보다 3.5배 높았으며, 과일류는 약 30% 낮았다. 탄소함량의 경우, 엽채류는 ODCM 보다 약 30% 낮고 근채류는 약 34% 높았다. 과일류의 탄소함량은 ODCM보다 약 24% 낮았다.

<표 6> 식품군별 분석값 및 비교

농작물군	수분(%)			수소(%)			탄소(%)		
	분석치	ODCM*	RG1.109	분석치	ODCM*	RG1.109	분석치	ODCM*	RG1.109
곡류	13.6	12.0	75.0	5.7	5.5	-	38.3	40.3	11.0
엽채류/김장채소	94.2	95.1		0.3	0.2		2.4	3.5	
근채류	88.7	95.1		0.7	0.2		4.7	3.5	
과일류	89.0	84.0		0.7	1.0		4.8	6.3	

\*) ODCM : 현행 원자력발전소 주변 주민 피폭선량 평가 지침(Off-site Dose Calculation Manual)

### 3. 결 론

HTO와 OBT, <sup>14</sup>C 섭취선량을 평가하기 위해서는 음식물의 수분, 수소, 탄소함량에 대한 정확한 정보가 중요하다. 한국인이 주로 섭취하는 채소 및 과일류에 대하여 원전 주변지역에서 채취한 농작물들의 수분, 탄소, 수소함량은 캐나다 AECL의 연구 결과를 적용하고 있는 현행 원자력발전소 ODCM의 값과는 다소 상이한 결과를 보여주고 있다. 근채류를 제외하고는 현행 ODCM에 비해 약 30%정도 작거나 크게 나타나고 있어 결과적으로 섭취선량 평가결과는 현행 적용값과 유사하게 나타날 것으로 예상된다. 그러나 근채류에 대한 분석결과는 기존의 적용 값과 매우 다른 양상을 보여주고 있다. 현행 ODCM에서는 근채류를 엽채류, 김장채소류 등에 통합하여 평가하고 있어 OBT 및 <sup>14</sup>C 섭취선량이 다소 과소평가될 수 있다. 따라서 향후 근채류를 별도의 농작물군으로 분류할 필요가 있다고 판단된다.

감사의 글 : 본 연구는 과학기술부에서 시행하는 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

### 참 고 문 헌

- [1] AECL, "Modeling doses from tritium and C-14 in the environment", Separated supplement II of TR.95ZJ15.J1998.71, KEPRI, 1998.
- [2] Killough G. G. and P. S. Rohwer, "A new look at the dosimetry of C-14 released to the atmosphere as carbon dioxide", Health Physics, Vol. 34, pp. 141-159, 1978.
- [3] 한전 전력연구원 및 한국수력원자력(주), "원자력발전소 주변 주민선량 계산지침서(안), Rev. 1", 2001.
- [4] Evans, A. G., "New dose estimates from chronic tritium exposures", Health Physics, Vol. 16, pp. 57-63, 1969.
- [5] Diabate S. and S. Strack, "Doses due to tritium releases by NET-data base and relevant parameters on biological tritium behavior", Prepared for NET under Contract No. NET 89-195, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe, 1990.
- [6] Diabate S. and S., Stract "Organically bound tritium", Health Physics, Vol. 65, pp.

698-712, 1993.

- [7] Killough G. G., j. E. Till, E. L. Etnier, and B. D. Murphy, In press. "Dose equivalent due to atmospheric releases of carbon-14", chapter 11 in Models and parameters for environmental radiological assessment, DOE/TIC-11468, 1984.
- [8] 보건복지부, "2001년도 국민건강·영양조사 - 영양조사부문", 2002.
- [9] 보건복지부, "2002년도 계절별 국민영양조사", 2002.
- [10] 통계청, "1998년도 추산인구", 1999.
- [11] 농촌진흥청 농촌생활연구소, "식품성분표 제 6개정판", 2001.

## Data Assimilation Techniques Applied to Estimate the Dispersion of the Pollutant in the Atmosphere

### 자료동화기술을 이용한 대기중 오염물질 확산평가

M.H. Han, H.J. Jeong, E.H. Kim, K.S. Suh, W.T. Hwang and S.M. Lee

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

한문희, 정효준, 김은한, 서경석, 황원태, 이선미  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

#### Abstract

The estimation of the diffusion coefficients of the Gaussian plume model and the release rate by assimilation of tracer-gas measurements on Younggwang site was tested. Diffusion coefficients were modified by linear programming of both the measurements and the simulated using the Gaussian plume model. The application of the modified diffusion coefficients improved the prediction ability of the Gaussian plume model on both 3 km and 8 km arc lines. And, the release rate of tracer gas was estimated using least squares method. The optimal source rate was estimated by minimizing the errors between the measured concentrations and the computed ones by the Gaussian plume model. The obtained release rate showed a good agreement with the real release rate of the Younggwang experiment in 24%.

**Key Words** : Data Assimilation, Diffusion Coefficient, Release Rate, Linear Programming, Least Squares Method

#### 요약

영광부지의 추적자 확산실험결과의 자료동화를 통하여 Gaussian plume 모형의 확산인자의 수정과 추적자 방출률 평가를 수행하였다. 부지 주변의 여러 지점에서 관측한 실험결과에 선형계획법을 적용하여 확산평가에 있어서 가장 불확실성이 크다고 알려진 확산인자를 수정하였다. 원자력 비상시 초기 대응평가에 사용되는 정보 가운데 가장 큰 불확실성을 포함한 선원항 정보를 추적자 농도 분포로부터 추정하였다. 실험 당시의 추적자 방출량을 모른다고 가정하고 Gaussina plume 모형의 예측치와 확산실험의 실측치를 이용한 최소자승법을 적용하여 방출률을 추정하였다. 확산인자를 수정한 후 Gaussian plume 모형의 예측력은 방출점으로 3km 및 8km 떨어진 포집선 두 경우 모두 증가하는 것으로 나타났다. 실험당시의 방출률을 모른다고 가정하고 관측지점의 농도에 최소자승법을 적용한 결과 24%이내에서 실제 방출률을 양호하게 추정하고 있음을 확인할 수 있었다.

**중심단어** : 자료동화, 확산인자, 방출률, 선형계획법, 최소자승법

## 1. 서 론

환경에 누출된 오염물질의 영향은 측정된 자료와 모형 예측 결과를 토대로 평가할 수 있다. 그런데 측정 자료는 시공간적으로 제약을 받고, 모형 예측결과는 사용된 수식과 변수들에 기인한 불확실성을 포함하게 된다. 모형을 이용하여 환경영향을 평가하는 경우 실제 관측된 결과와 차이를 나타낼 수 있다. 이는 자연현상의 수식화 과정에서 발생할 수 있는 모형의 한계와 모형의 입력자료 및 확산인자의 부적절한 사용에 기인한다. 따라서 제한된 측정값을 이용하여 모형 예측의 불확실성을 최소화하기 위한 연구가 진행되어 왔다. 오염물질의 대기중 거동은 기상자료를 반영하여 수학적으로 묘사된 확산 모형을 이용하여 평가한다. 비교적 평가 기간이 긴 경우에는 정상상태를 가정한 Gaussian Plume 모형이 사용되고 있다. 사고의 경우에는 실시간 평가를 위해 선원항의 시변(time varying)상태와 실시간 기상장을 고려한 동적모형이 사용된다.

평가대상 지역에서 관측된 자료를 이용하여 모형의 예측력을 증가시키는 방법은 관측자료를 모형으로 피드백(Feedback)하여 모형이 가지고 있는 불확실성을 줄여가는 방법이 있을 수 있다. 이러한 기술을 자료동화(Data assimilation)라 하며 기상현상의 예측을 비롯하여 해양환경의 평가, 대기 오염물질의 거동 해석 및 수문자료의 해석 등의 환경 일반에 널리 쓰이고 있다[1-2]. 자료동화 기술에는 관측벡터를 이용하여 시스템 방정식을 설정한 후 관측값과 예측값의 차이를 이용하여 시스템 방정식을 쇄신하는 순환알고리즘인 칼만필터링(Kalman filtering) 방법을 비롯하여 [3-4], 단순히 관측값과 예측값의 오차를 최소화하도록 모형 입력값의 수정을 유도하는 최소자승법(least squares method) [5], 어느 시간의 관측 자료가 전후 시간의 관측치에 영향을 주고 받는다고 가정하여 기상자료 및 대기환경의 예측에 이용되고 있는 4-DVAR 방법(4 dimensional variational method) [6] 등이 있다.

본 연구에서는 영광부지 추적자확산 실험자료를 이용하여 Gaussian plume 모형의 확산인자를 수정하였다. 또한 여러 지점에서 실측된 추적자 농도를 이용하여 정상상태의 선원항을 추정할 수 있는 기술을 개발하여 환경영향평가에 자료동화 기술의 활용가능성을 검토하였다.

## 2. 자료동화기술

모형 예측의 불확실성을 최소화하기 위해 측정자료를 모형 예측에 반영하는 기술을 포괄적으로 자료동화 기술이라 칭할 수 있다. 자료동화에는 최소자승법, 전이함수모형, 인공신경망, 칼만필터링 그리고 유전자 알고리즘 등 다양한 기술이 적용되고 있다. 본 연구에서는 최소자승법과 칼만필터링의 개념과 활용현황을 소개한다.

### 2.1 최소자승법

최소자승 추정법은 최소분산추정법의 일종으로 통계적인 가정에 의존하지 않는 방법이기 때문에 다른 자료동화 기법에 비해 그 적용이 비교적 용이하다. 관측된 자료들과 모형이 계산한 계산값의 차를 최소화하도록 모형의 입력치를 수정하는 것으로 시스템 방정식은 식 (1)이나 식 (2)의 형태로 표시할 수 있다.

$$\begin{bmatrix} h_{11} & h_{12} & h_{13} & \cdots & h_{1n} \\ h_{21} & h_{22} & h_{23} & \cdots & h_{2n} \\ h_{31} & h_{32} & h_{33} & \cdots & h_{3n} \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ h_{l1} & h_{l2} & h_{l3} & \cdots & h_{ln} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} x_1 \\ x_2 \\ x_3 \\ \vdots \\ x_n \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} z_1 \\ z_2 \\ z_3 \\ \vdots \\ z_n \end{bmatrix} \quad (1)$$

$$Hx = z \quad (2)$$

여기서 H는 관측연산 행렬, x는 상태벡터를 의미한다. 위와 같은 시스템 방정식에서 상태벡터 x의 추정치를  $\hat{x}$ 라고 하면 관측오차의 추정치는  $H\hat{x} - z$ 이다. 이러한 관측오차를 Euclidean vector norm의 형태인  $|H\hat{x} - z|$ 와 같이 나타낼 수 있다. 따라서 오차의 제곱항은 식 (3)과 같이 표현 가능하다.

$$\begin{aligned} \epsilon^2(\hat{x}) &= |H\hat{x} - z|^2 \\ &= \sum_{i=1}^m \left[ \sum_{j=1}^n h_{ij} \hat{x}_j - z_i \right]^2 \end{aligned} \quad (3)$$

여기서 상태벡터의 추정벡터인  $\hat{x}_1, \hat{x}_2, \hat{x}_3, \dots, \hat{x}_n$ 은 미분가능 형태이다. 오차의 제곱항을 상태벡터항으로 미분한 값이 0을 만족하는 방정식의 해를 구하면 오차를 최소로 하는 상태벡터의 추정치를 얻을 수 있다.

$$\begin{aligned} 0 &= \frac{\partial \epsilon^2}{\partial \hat{x}_k} \\ &= 2 \sum_{i=1}^m h_{ik} \left[ \sum_{j=1}^n h_{ij} \hat{x}_j - z_j \right] \end{aligned} \quad (4)$$

위의 식 (4)에서  $k = 1, 2, 3, \dots, n$ 일 때 식 (4)의 후반부는 식 (5)와 같이 나타낼 수 있으며 이를 이용하여 식 (4)를 수정하면 아래의 식을 얻을 수 있다.

$$\sum_{j=1}^n h_{ij} \hat{x}_j - z_j = \{H\hat{x} - z\}_i \quad (5)$$

$$\begin{aligned} 0 &= 2H^T[H\hat{x} - z] \\ &= 2H^T H\hat{x} - 2H^T z \end{aligned} \quad (6)$$

여기서,  $H^T$ 는 H의 전치행렬을 나타내며 식 (6)으로부터 식 (7)을 얻게 된다.

$$H^T H\hat{x} = H^T z \quad (7)$$

여기서  $H^T H$ 는 그래미 행렬(Gramian matrix)을 나타내며 추정상태벡터  $\hat{x}$ 의 해는 식 (8)과 같이 표현된다.

$$\hat{x} = (H^T H)^{-1} H^T z \quad (8)$$

## 2.2 칼만필터링

동적 시스템의 모르는 정보를 측정치를 이용하여 평가하기 위한 수학적 도구로, 통계평가 이론 중 20세기 가장 위대한 발견으로 알려진 방법이다. 측정값으로부터 실체를 유추하여 실체에 대한

정보를 확률분포로 표현한다. 구하고자 하는 변수  $x$ 의 최적 평가값  $\hat{x}$ 은 아래의 식들을 순환하여 얻을 수 있다.

측정값 반영 전  $x$ 의 estimate : (9)

$$\text{Variance of the error in } \bar{x} : \bar{P} = P\Phi^2 + Q \quad (10)$$

측정값 반영 후  $x$ 의 estimate :  $\hat{x} = \bar{x} + K[y(1) - \hat{y}] = \bar{x} + K[y(1) - M\bar{x}]$  (11)

$$\text{variance of the error in } \hat{x} : P = \bar{P}(1 - KM)^2 + RK^2 \quad (12)$$

$$K = M\bar{P}(\bar{P}M^2 + R)^{-1} \quad (13)$$

여기서  $\Phi$ 와  $M$ 은 각각  $x$ 의 평가값과 측정값  $y$  표현에 사용되는 상수,  $Q$ 와  $R$ 은 각각  $x$ 의 평가값과 측정값  $y$ 의 오차의 분산 그리고  $K$ 는 Kalman gain을 나타낸다.

### 2.3 외국의 적용사례

다양한 적용 사례 가운데 방사성물질의 대기중 확산과 피해예측과 관련된 연구를 조사하였다. 스위스에서는 추적자 실험결과에 최소자승법을 적용하여 추적자 실험 당시의 추적자 가스 방출률을 평가하였다. 스위스 북부 원전부지에서 수행된 SIESTA 실험의 풍하방향 5 Km에서 30km 사이의 6개의 arc 라인의 105개 관측자료를 이용하여 선원항 추정을 시도한 결과 일정 방출의 경우 2배 이내에서 실제와 일치하는 것으로 나타났다[7].

미국의 LLNL 에서는 Savannah River Lab.에서 실시한 추적자 실험결과에 회귀방법을 적용하여 선원항 방출률을 평가하였다. 회귀방법은 모델 입력변수를 합리적인 불확실성 범위 안에서 변화시켜 가면서 측정값과 예측 농도 사이의 일치를 최적화시켜준다. 평가결과 측정된 추적자 방출률을 일반적으로 2배 이내에서 실제값과 일치하는 것으로 나타났다[5].

유럽공동체에서는 환경으로 방사능이 누출되는 경우 모델 예측결과와 방사선/능 감시자료 및 관측자료 사이의 연계를 통해 효율적인 대응책 수립 지원을 목적으로 칼만필터를 적용한 연구를 수행하였다. 연구의 주목적은 자료동화 기술개발을 통하여 유럽 방사능방재체제인 RODOS의 예측 능력을 향상시키기 위함이다[8].

## 3. 영광부지 추적자 실험결과의 자료동화

본 연구에서는 한국원자력연구소에서 실시한 국내 원전부지에서의 추적자 실험 가운데 추적자 농도분포가 정규분포와 가장 유사한 1996년 실시된 영광부지 실험결과를 적용하였다. 실험 당시 추적자 가스로 사용한 SF6의 방출량은 115.2kg/hr였고 총방출량은 172.8kg이었다. 평균풍속은 1.684m/s였으며 대기안정도는 Pasquill-Gifford 분류로 B 등급이었다. 본 연구에서는 영광부지 실험결과의 자료동화를 통하여 Gaussian Plume 모형의 확산계수 평가와, 추적자 가스의 방출률을 모르는 경우로 가정한 방출률 평가를 실시하였다. Fig. 1에 영광부지 지형도와 실험 당시 포집기를 배치했던 추적자 포집점 분포를 나타냈다.

### 3.1 선형계획법을 이용한 Gaussian plume 모형의 확산인자 수정

Gaussian 모형을 이용하여 포집점에서의 농도를 계산하기 위하여 방출점을 중심으로 하여 풍하방향으로 0.1km부터 20km구간을 10m간격으로 구분하고, 수직성분인  $y$ 는 상하측 5km씩 총 10km의 구간을 10m로 구분하여 1,990×1,000×1의 격자(grid)를 구성하여 지상에서의 추적자 농도가 10m×10m단위로 계산되도록 하였다. 지표면에서 높이 방향인  $z$ 는 샘플의 포집점이 지표면인 점을 감안하여 격자를 구분하지 않고 하나의 볼륨으로 간주하였다.

확산인자  $\sigma_y$  및  $\sigma_z$ 는 식(14)와 (15) 그리고 Table 1에 제시한 상수값으로 계산하

였다[9]. 모든 계산은 MATLAB 6.5를 이용하여 M화일로 작성하였으며, 1,990×1,000×1격자 (grid)의 농도값이 한번의 계산을 통하여 이루어지도록 하였다.

$$\sigma_y = a x^{b+c \ln x} \tag{14}$$

$$\sigma_z = d x^{e+f \ln x} \tag{15}$$

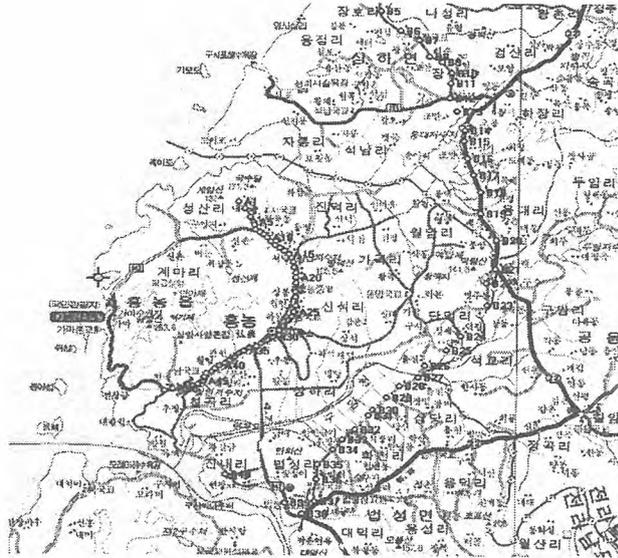


Fig. 1. Sampling Points around Younggwang Site

Table 1. Variables used in evaluating the horizontal dispersion parameter,  $\sigma_y$ , and vertical dispersion parameter,  $\sigma_z$ , for atmospheric Gaussian plume modeling

Stability class	Sigma y			Sigma z		
	a	b	c	d	e	f
B	154.7	0.8932	-0.006271	109.8	1.064	0.01163
B <sup>1</sup>	154.6987	0.6622	-0.003135	109.7996	1.015	0.00581
B <sup>2</sup>				109.74407	0.59660	0.01739

B : Parameters for P-G equation

B1 : Modified parameters for P-G equation(Sigma y applied at 0km≤x≤10km, Sigma z applied at 0km≤x≤3km)

B2 : Modified parameters for P-G equation(Sigma z applied at 3km≤x≤10km)

Gaussian 모형은 지표면의 성질이 균질한(homogeneous) 지역을 적용대상으로 하나 본 실험이 이루어진 영광원자력시설은 토지이용이 균질한 지역으로 보기에 는 무리가 있다. 따라서 격자형 가우시안 모형을 이용한 정확한 농도예측을 위해서는 확산폭을 결정하는 방법을 단순히 P-G방법에 의존하기보다는 실측된 데이터를 이용한 지형특성을 반영된 식으로 변환하여 모형의 예측력을 살펴보았다. 확산인자를 수정하기 위한 최적화 함수는 관측값과 실측값의 차이의 합을 최소로 하는 목적함수를 설계하였다. 관측값과 계산값의 차이의 절대값을 취해 유클리디안 거리의 개념으로 표시한 것은 관측값과 계산값의 차이의 쌍의 합이 양의 값과 음의 값의 상쇄로 인해 실제로 차이가 크에도 불구하고 “0”에 근접하는 효과를 방지하기 위함이다. 풍하방향에 길이 방향으로의

수직 확산인자인  $\sigma_y$ 와 높이방향으로의 수직 확산인자인  $\sigma_z$ 의 값이 비음 (non-negative)조건을 만족시키도록 한 것은 어느 순간에도 대기중에서 추적자인 SF6입자가 정지하지 않고 진행한다고 가정한 것이다. 한편, 가우시안 모형에서 확산의 정도 및 형태를 결정하는  $\sigma_y$  및  $\sigma_z$ 를 직접적으로 정의하는 P-G식의 파라미터인 a, b, c 및 d, e, f는 P-G 식에서 대기안정도의 등급에 따라 제시하는 값의 범위에서 최대 50%를 초과하지 않는 범위에서 설정하였다. 이는 과도한 파라미터의 조정으로 인해 상위개념으로 설정한 대기안정도의 개념을 파괴하지 않기 위함이다.

$$\text{Min. } Z = |C_1 - P_1| + |C_1 - P_2| + \dots + |C_n - P_n| \quad (16)$$

subject to

$$\sigma_y > 0$$

$$\sigma_z > 0$$

bounded to

$$0.5 \times \text{P-G value} < a, b, c < 1.5 \times \text{P-G value}$$

$$0.5 \times \text{P-G value} < d, e, f < 1.5 \times \text{P-G value}$$

위와 같은 목적함수의 최적화를 위한 해를 구하는 방법은 카마카의 투영축적법(Karmarkar's projective scaling algorithm), 심플렉스법(simplex method) 및 도표해법(graphical method) 등이 사용되고 있다[10,11]. 도표해법은 2차원선상에 작성된 도표를 통하여 분석하는 것으로 의사결정변수의 수가 둘일 경우에만 사용가능하며 변수의 수가 셋 이상일 때에는 평면좌표에 제약조건과 풀이결과를 나타내기 힘들다. 따라서 변수와 제약조건의 수가 많을 때에는 일반적으로 컴퓨터를 이용한 심플렉스법이 사용되는데 본 연구에서도 심플렉스법을 이용하여 해를 구하였다 (Table 1의 B1, B2). 이를 이용한 각 지점별  $\sigma_y$  및  $\sigma_z$ 를 Table 2에 나타내었다.

Table 2 Dispersion range of the  $\sigma_y$  and  $\sigma_z$  for the P-G and modified P-G

	x좌표	y좌표	sigma y		sigma z	
			P-G	Modified	P-G	Modified
A-line	3,732	314	496.1639	368.0542	454.8918	422.6714
	3,669	410	488.8124	363.9783	446.4943	415.3163
	3,510	570	470.1808	353.5795	425.3751	396.7775
	3,402	634	457.4596	346.4205	411.0921	384.2049
	3,831	91	507.6818	374.4100	468.1210	434.2400
	2,680	-1,899	370.8972	296.2848	316.9905	300.5987
	2,032	-2,432	290.5083	247.0214	234.8401	226.2990
	3,243	826	438.6301	335.7321	390.1584	365.7256
B-line	7,620	-295	924.7424	2,026.9923	999.6141	396.0286
	7,528	-834	915.0457	1,898.9634	986.2135	392.8326
	6,807	-1,779	838.4323	1,131.5998	881.9561	367.3894
	6,429	-2,029	797.7992	859.1550	827.8587	353.7464
	5,469	-3,100	692.9904	423.3658	692.3373	318.0083
	7,795	84	943.1400	2,293.6017	1,025.1632	402.0783
	7,394	1,866	900.8911	1,726.2238	966.7339	388.1579
	6,373	5,082	791.7505	824.6371	819.8784	351.7060

모형이 계산한 값과 추적자 확산실험을 통하여 얻어진 값을 비교해 보면 방출점에서 3km근방에 위치한 지점이 방출점에서 상대적으로 거리가 먼 8km 근방보다 P-G방법, 선형계획법에 의해 수정된 P-G방법 모두 양호한 예측력을 나타내고 있음을 알 수 있다. 격자형 가우시안 플룸모델에 의한 예측의 정확도는 방출점에서 가까운 A-line이 우세한 것으로 판단된다. 수정된 확산인자

를 적용한 경우 3km, 8km 모두 모형의 예측력이 증가하였으며 소스에서 가까운 3km 근방은 일치도 계수 및 상관계수가 거의 1에 근접함을 확인할 수 있었다(Table 3). 그러나 8km 근방의 값들은 수정된 확산인자를 적용한 경우 P-G방법보다는 일치도계수, 상관계수등이 증가하고 평균 제곱오차는 감소하였으나, P-G방법 및 선형계획법에 의해 수정된 P-G방법 모두 방출점에서 거리가 증가함에 따라 예측력은 감소하고 있음을 확인할 수 있었다.

Fig. 2는 가우시안 모형의 확산인자를 결정하는 전통적인 방법인 P-G방법으로 계산된 풍하방향의 지표농도와 선형계획법을 이용하여 수정한 확산인자를 이용한 추적자의 농도를 나타내었다. 풍하방향의 농도변화를 직접 비교하기 위하여 y방향으로의 확산은 배제하고 표시하였다. 지표에서의

Table 3 Coefficients of the forecasting ability for the P-G and the modified P-G.

	A-line		B-line	
	P-G	Modified	P-G	Modified
AI	0.8839	0.9772	0.6223	0.7556
r	0.8877	0.9656	0.5818	0.6882
RMSE	7.7793	4.0281	4.5876	3.9278

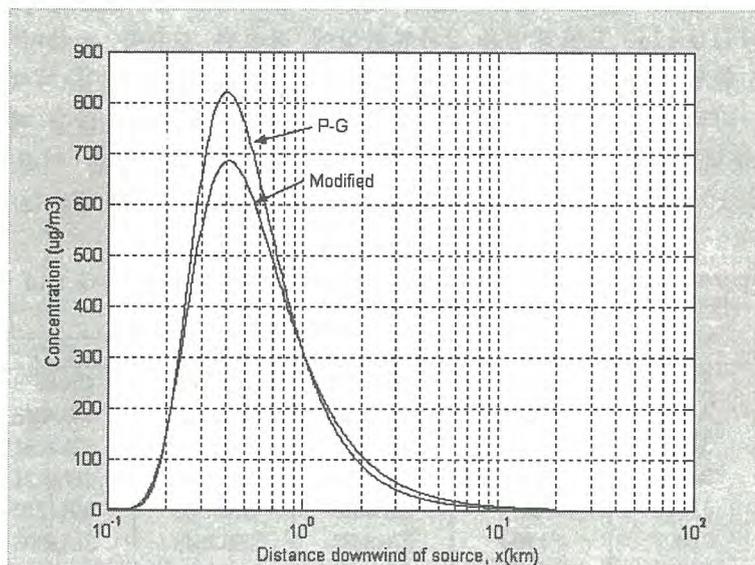


Fig. 2. Concentration of downwind according to the atmospheric stability

최고농도는 400m 근방에서 나타나고 있으며 P-G방법으로 계산된 농도는  $819\mu\text{g}/\text{m}^3$ 이었으며, 수정된 확산인자를 적용한 경우는  $684.5\mu\text{g}/\text{m}^3$ 를 나타내었다. 이는 가우시안 모형이 장애물이 없는 평평한 지형을 가정한 것이나 수정된 확산인자에는 실제 지형적인 영향에 의한 확산특성의 국지적 변화가 반영된 것으로 판단된다.

### 3.2 최소자승법에 의한 선원항의 추정

가우시안 모형으로 계산한 추적자의 농도값과 실제 샘플링한 시료를 분석한 결과값과의 비교를 통하여 이들간의 오차를 최소로 하는 선원항  $x$ 를 계산하도록 Fig. 3과 같이 반복계산을 실시하였다. 본 연구에서는 추적자를 일정시간 동안 동일한 양을 연속적으로 방출하였으므로  $x$ 행렬은 시간에 관계없이 동일한 값으로 가우시안 모형으로 입력된다. 열벡터(column vector)인  $z$ 와  $y$ 의 열벡터는 Table 4의 A와 B에 해당되는 행렬이다.

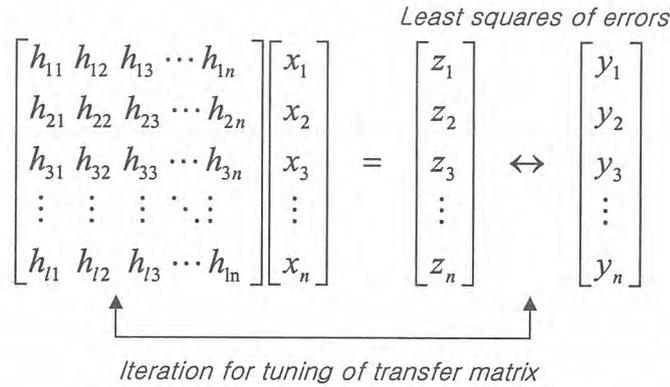


Fig. 3. Schematic diagram of least squares method.

Table 4 Gaussian-calculated and measured concentrations for selected coordinates to estimate source term

x(m)	y(m)	predicted; A( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	measured; B( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
3,732	314	21.9209	26.9764
3,669	410	19.4775	15.3130
3,510	570	14.4814	10.4902
3,402	634	12.2855	10.8210
3,831	91	25.0369	45.3440
2,680	-1,899	0.0001	1.4500
2,032	-2,432	5.2720E-14	0.0469
3,243	826	5.9845	3.0361
7,620	-295	6.2443	7.4361
7,528	-834	4.4425	16.2586
6,807	-1,779	0.8644	4.2117
6,429	-2,029	0.3620	0.0693
5,469	-3,100	0.0006	0.0038
7,795	84	6.2571	2.3331
7,394	1,866	0.8162	0.0284
6,373	5,082	1.0579E-08	0.1493

화학물질의 누출이나 방사성 물질의 사고시, 대기확산 모형의 입력인자인 초기 선원항은 정확하게 알려지지 않는 경우가 많으므로 본 연구에서는 초기 선원항을 사고가 발생하지 않았다는 전제하에 0으로 가정하고 오차의 역전파를 통하여 선원항인 상태벡터와 관측행렬이 조정되도록 반복 계산하였다. 시료의 분석결과의 단위가  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 이므로 모형의 입력인자인 선원항이  $\mu\text{g}/\text{sec}$ 의 단위를 가지도록 하였다. 따라서, 실제 방출률인 115.2 kg/hr은 32,000,000  $\mu\text{g}/\text{sec}$ 에 해당된다. 초기 선원항을 0으로 가정했을 때의 각 관측지점에서의 오차의 제곱합은 3599.61이었다.

Table 4의 A 및 B를 이용하여 최소자승법에 의해 추정된 선원항은 39,783,163  $\mu\text{g}/\text{sec}$ 이었으며 이때의 오차의 제곱합은 535.23으로 나타났다. 이것은 실제 방출된 추적자의 1.24배에 해당하는 것으로 최소자승법의 의한 선원항 추정이 상당히 양호한 결과를 나타냄을 증명하여 준다.

#### 4. 요약 및 결론

본 연구에서는 영광부지 추적자 확산실험 결과를 이용하여 Gaussian Plume 모형의 확산인자를 선형계획법을 이용하여 수정하였으며, 미지의 선원항을 최소자승법을 이용하여 추정하였다. 가

우시안 모형의 확산을 평가하는 대기안정도에 따른 확산폭을 결정하는 P-G방법은 방출점으로부터 멀어질수록 P-G에 의한 확산인자의 정확성이 떨어지는 것으로 나타났는데 이를 수정하기 위하여 관측값과 실측값의 차이를 최소화시키는 목적함수를 설정하고 이를 만족시키는 해를 구한 후, P-G식을 수정하여 가우시안 모형을 수행한 결과 예측의 정확도가 향상됨을 확인할 수 있었다. 또한 추적자 확산실험 자료에 최소자승법을 적용하여 선원항을 추정하였다. 추적자 확산 실험 자료 중 결측이 발생하지 않은 양호한 자료를 선택하여 실험오차에 의한 오차의 전이를 최소화하였으며 초기 조건은 선원항을 "0" 으로 설정하였다. 관측지점의 추적자 농도를 이용하여 선원항이 수정되도록 프로그램을 작성하였다. 오차의 역전파를 통하여 계산된 선원항은 실제 확산실험에 적용된 값보다 24 %정도 큰 값으로 나타나 비교적 근사하게 실제값을 추정하고 있는 것으로 판단되었다.

#### 참고문헌

1. M.J. Bell, R.M. Forbes and A. Hines, "Assessment of the FOAM global data assimilation system for real-time operational ocean forecasting", *Journal of Marine Systems*, 25(1), 1-22(2000)
2. W.F. Dabberdt and E. Miller, "Uncertainty, ensembles and air quality dispersion modeling: applications and challenges", *Atmospheric Environment*, 34(27), 4667-4673(2000)
3. G.E. Serafy, R.H. Eskes and H. Kelder, "Assimilation of 3D ozone field in global chemistry-transport models using Kalman filter", *Advances in Space Research*, 30(11), 2473-2478(2002)
4. X.F. Zhang and A.W. Heemink, "Data assimilation in transport models", *Applied Mathematical Modelling*, 21(1), 2-14(1997)
5. L.L Edwards, R.P. Freis, L.G. Peters and P.H. Gudiksen, "The use of nonlinear regression analysis for integrating pollutant concentration measurements with atmospheric dispersion modeling for source term estimation" *Nuclear technology*, 101, 168-180(1993)
6. H. Elbern, H. Schmidt, O. Talagrand and A. Ebel, "4D-variational data assimilation with an adjoint air quality model for emission analysis", *Environmental Modelling & Software*, 15(6-7), 539-548(2000)
7. M. Hutter-Keller and V.R.D. Herrnberger, "Testing a source rate estimation method by application to a dispersion experiment" *Atmospheric Environment*, 31(20), 3283-3290(1997)
8. C. Rojas-Palma et. al., Technical framework and practical considerations for data assimilation in off-site nuclear emergency management, DAONEM DIKR-CT-2000-00025 (2001)
9. G.A Davidson, A modified power-law representation of the Pasquill-Gifford dispersion coefficients, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 40, 1146-1147(1990)
10. S.C. Chapra, R.P. Canale, *Numerical Methods for Engineers: 3rd edition*, McGraw-Hill Inc(1997).
11. S.C. Albright, W.L. Winston, C. Zappe, *Data analysis & decision making with Microsoft Excel*, Duxbury press(2002)

## The Status of Radioactive Waste Generation in HANARO

### 하나로의 방사성 폐기물 발생 현황

Tai-Jin Kang, In-Cheol Lim, Ho-Young Choi and Yong-Seob Lee

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

강태진, 임인철, 최호영, 이용섭

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150 번지

#### Abstract

The quantity of radioactive waste generated from HANARO operation for the years of 1996 to 2003 has been analysed. It was found that the solid waste of 72,999 ℓ and liquid waste of 263,576 ℓ have been generated for the past 8 years. The amounts of Ar-41, I-131 and H-3 exhausted to the environment were 1,225.6 Ci, 1.612E-2 Ci and 210 Ci, respectively.

**Key words :** Radioactive waste, HANARO, Solid waste, Liquid waste, Ar-41, I-131, H-3

#### 요약

하나로의 출력운전이 시작된 이후 1996년부터 2003년까지 하나로에서 발생한 방사성 폐기물의 양을 성상별로 정리하였다. 이 기간 동안 고체 폐기물과 액체 폐기물은 각각 72,999ℓ, 263,576ℓ가 발생하였으며 원자로실 및 RCI 굴뚝을 통해 환경으로 방출된 기체 방사성 폐기물은 Ar-41 이 1,225.6 Ci, I-131 이 1.612E-2 Ci, H-3 이 210 Ci 인 것으로 나타났다.

**중심단어 :** 방사성폐기물, 하나로, 고체폐기물, 액체폐기물, Ar-41, I-131, H-3

#### 1. 서론

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. 또한 성상에 따라 기체, 액체, 고체 폐기물로 분류되는데 하나로에서 발생되는 방사성 폐기물은 대부분 저준위 또는 극저준위 폐기물 이다. 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. 액체 폐기물은 원자로실 출입자가 출입 후 오염 또는 오염 발생 가능부분의 세척 시 발생하는 hot shower sump 폐기물과 수조상부 세척실에서 수조에 들어가는 실험 장비 및 구조물 등을 세척하고 발생하는 reactor sump 폐기물로 분류된다. 기체 폐기물은 원자로실, RCI(Reactor Concreate Island)의 관리시설에서 발생하는 입자, 옥소, 불활성 기체로서 허용농도 제한치 이내에서 배기설비를 통해 환경으로 방출된다.

본 논문에서는 1996 년부터 2003 년까지 하나로 원자로 구역에서 발생된 고체, 액체 및 기체폐기물의 발생량을 기술하였다.

## 2. 본론

### 2.1 폐기물 발생원

하나로 원자로실에는 하나로 본체와 이용시설이 있다. 원자로실 내에 있는 이용시설로는 빔 포트를 이용하는 중성자 실험시설, 시료의 중성자 조사를 위한 수직조사공, 공기이송 장치 및 수력이송장치가 있다. 이를 운영 및 이용하는 과정에서 방사성 폐기물이 발생되며 성상에 따라 고체, 액체 및 기체 폐기물로 분류된다. 고체 폐기물은 방문자 및 종사자들이 원자로실에 출입하여 업무 수행 과정에서 발생하며, 액체 폐기물은 계통의 누설, 보수 작업, 실험 장비 등의 세척으로 발생한다. 또한 기체 폐기물은 하나로 운전 시 실험 시설에서의 공기 방사화로 인하여 발생되거나 1 차 냉각재 내의 방사화된 물질, 원자로 노심 구조물로부터 유리되어 발생된다.

#### 2.1.1 고체 폐기물

하나로의 운전 및 보수, 실험시설 이용자들의 원자로실 작업, 실험 등의 업무 수행 과 정에서 발생하는 것으로서 다음과 같이 분류할 수 있다.

##### 1) 가연성 폐기물

작업자 및 실험자의 작업복, 신발, 덧신과 작업 후 부산물로 발생하는 비닐, 휴지, 호스, 장갑, 고무장갑, 실끈, 플라스틱류 등이 있다.

##### 2) 비가연성 폐기물

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.

##### 3) 폐수지 및 폐필터

1 차 냉각수 및 사용후 저장조 냉각수의 수지 및 필터 교체 작업 후 발생하는 폐수지와 폐필터, 환기계통에서 배출되는 HEPA, medium, charcoal 필터 등이 있다.

##### 4) 수집 위치

원자로 실 3 층과 지하층에 가연성 및 비가연성 폐기물 임시 수집용기가 있으며, 작업자가 작업 후 분류하여 수거한다.

#### 2.1.2 액체 폐기물

하나로에서 발생하는 모든 방사성 액체 폐기물은 23 톤 용량의 원자로실 배수조 (reactor sump)와 10 톤 용량의 핫샤워 배수조(hot shower sump)로 분리 수집된다. 위치별 폐기물 발생원은 다음과 같다[1].

1) 원자로실 배수조에 수집되는 폐기물

- 가. 1 차 계통 기계실에 있는 열교환기, 냉각펌프, 밸브류 등의 누수와 보수작업 시에 다량 발생한다.
- 나. 1 차 냉각수 정화계통의 수지 및 필터 교체 시 계통과 격리된 이온교환기 와 필터 하우스 내부의 물을 배수시킬 때 발생한다.
- 다. 새 핵연료의 세척, 원자로 수조에 들어가는 실험 장비 및 구조물의 세척, 조사된 NTD(Neutron Transmutation Doping) 인코트의 제염, 실험 후 반출되는 장치 들의 제염 작업이나 원자로실 청소 시에 발생한다.

2) Hot shower sump 에 수집되는 폐기물

원자로실 출입자가 출입 후 오염 부위를 제염할 때 발생한다.

2.1.3 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 1 차 냉각재 내의 방사화된 물질 등이 수조를 통해서 원자로실 공기 중으로 방출된다. 그러나 대부분의 기체 폐기물은 공압이송장치와 같은 실험 장치에서 발생하고 있다. 이들 장치와 냉각수에서 방출된 방사성 입자, 가스, 삼중 수소 등은 RCI 내에 존재하는 방사성 물질과 함께 배기설비를 통하여 공기여과장치를 거친 후 최종적으로 굴뚝을 통해서 환경으로 방출된다.

그림 1 은 원자로실과 RCI 에서 발생한 기체 폐기물의 배출 경로를 보여 주고 있다. 원자로실과 RCI 굴뚝의 방출량은 각각 51,200 CMH, 6,660 CMH 이다[2].

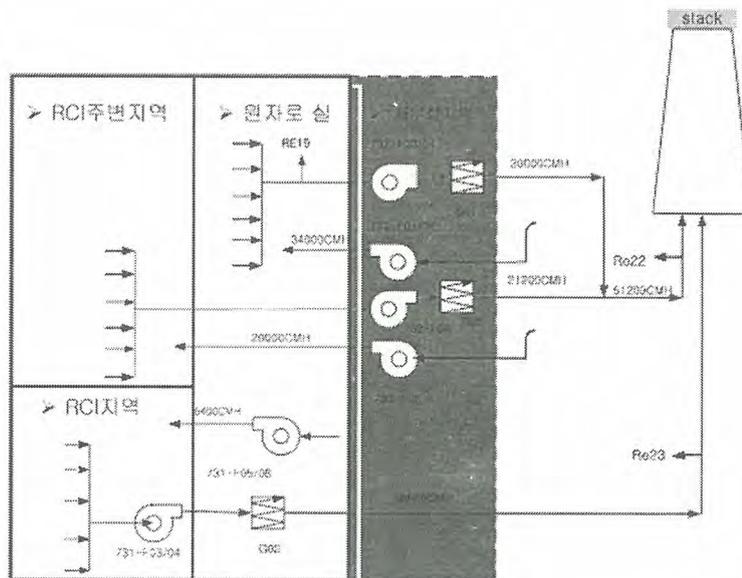


그림 1. 원자로 건물의 환기 계통

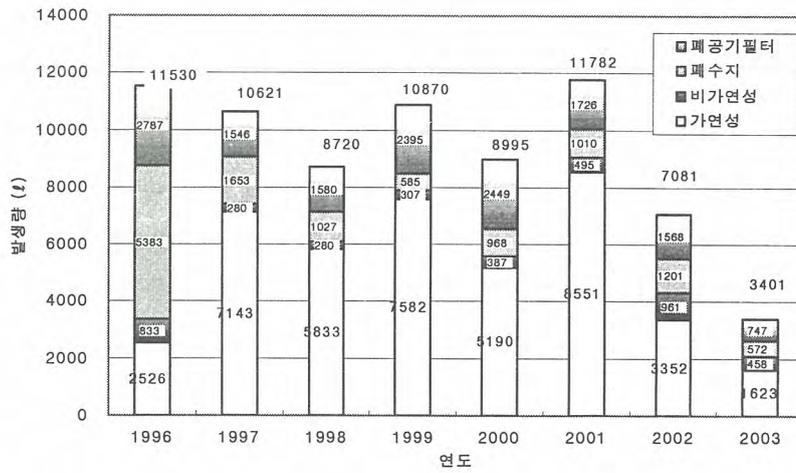
## 2.2 연도별 폐기물 발생 현황

### 2.2.1 고체 폐기물

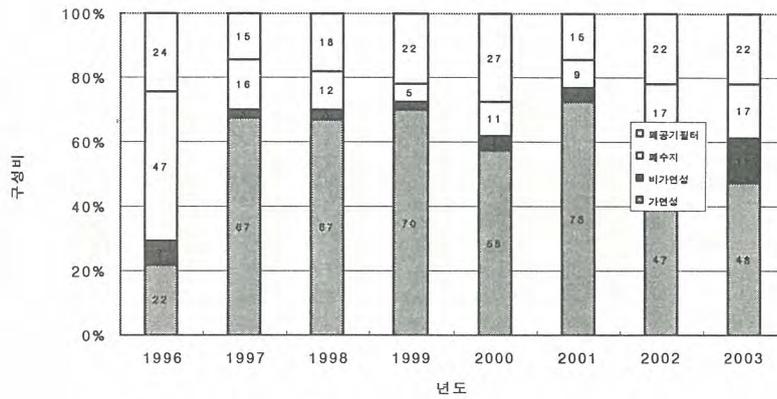
표 1 은 1996 년부터 2003 까지 하나로에서 발생한 고체 폐기물 발생량이며 발생한 총 폐기물량은 72,999ℓ 이다. 그림 2 는 연도별 고체 폐기물의 발생량 및 구성 비율을 나타낸 그림이다. 1996 년도 폐수지 증가는 원자로 시운전 과정에서 수조 및 1 차 계통의 이물질 흡착 등으로 수지 교체가 많았기 때문이다. 1999 년도에 가연성 폐기물이 증가한 이유는 BNCT(boron neutroncapture therapy) 조사시설 설치와 원자로실 바닥 확장 공사, 열 교환기 전열판 교체 작업과 하나로 시설 정기 검사로 시설 및 계통의 점검이 있었고 또한 원자로실 방문객이 늘어 덧신 사용량이 많았기 때문이다. 2001 년도는 BNCT 차폐체, 원자로 수조 덮개 등의 설치 작업 등으로 가연성 폐기물이 증가하였다. 또한 2002 년도 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. 폐기물 발생 총 구성비는 가연성 폐기물이 69%, 비가연성이 8%, 폐공기 필터가 19%, 폐수지가 4%를 차지하고 있다. 가연성 및 비가연성은 추가로 설치되는 이용 시설의 수가 줄고 작업 종사자의 저감 노력으로 점차 감소 되고 있다. 그러나 폐수지의 배출량은 원자로 운전 일수 및 출력량의 증가에 따라 점진적으로 증가하고 있는 추세이다[3].

표 1. 연도별 고체 폐기물 발생 현황

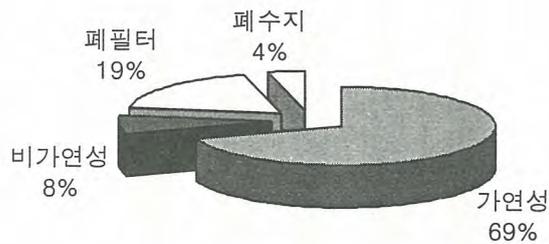
연도	가연성 (ℓ)	비가연성 (ℓ)	폐공기필터 (ℓ)	폐수지 (ℓ)	계 (ℓ)
1996	2,526	833	2,787	5,383	11,530
1997	7,143	280	1,546	1,653	10,621
1998	5,833	280	1,580	1,027	8,720
1999	7,582	307	2,395	585	10,870
2000	5,190	387	2,449	968	8,995
2001	8,551	495	1,726	1,010	11,782
2002	3,352	961	1,568	1,201	7,081
2003	1,623	458	748	547	3,401
계	41,800	4,000	14,801	12,399	72,999



1) 발생량



2) 구성 비율

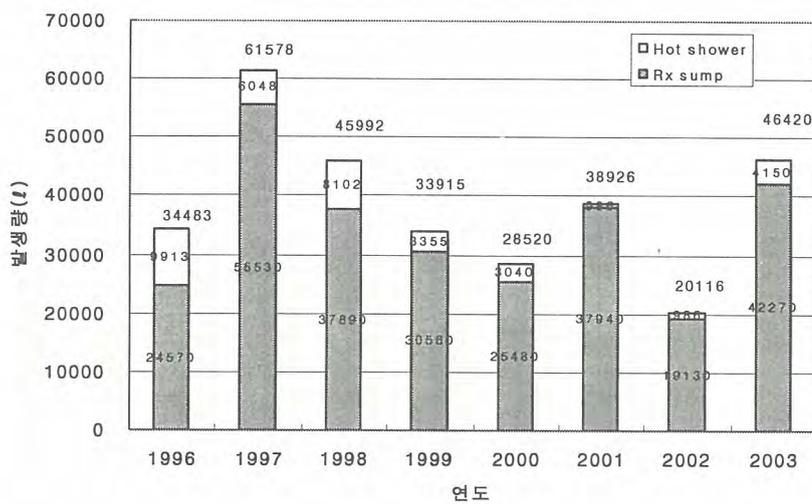


3) 발생비

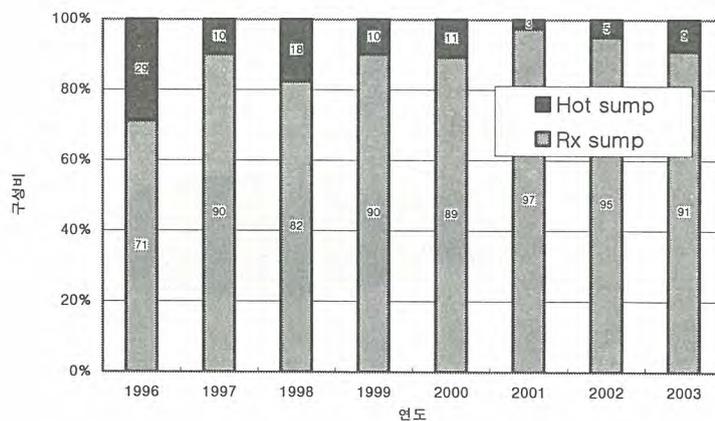
그림 2. 고체폐기물 발생량

### 2.2.2 액체 폐기물

표 2 는 1996 년부터 2003 년까지 하나로에서 발생한 액체 폐기물 발생량 및 처리 비용이다. 발생된 양은 263,576ℓ이다. 그림 3 은 연도별 액체 폐기물의 발생량과 수집된 액체 폐기물의 수집원 별 구성 비율을 보여 주고 있다. 운전 시작 후 2 년이 경과된 1999 년부터는 hot sump 에서 발생하는 액체 폐기물이 급감하고 있다. 이는 원자로실의 작업 절차가 확립되어 발생량이 줄었기 때문이다. 1997 년도에 원자로실 액체 폐기물 발생량이 급증한 이유는 1 차 열교환기의 분해, 청소가 있었기 때문이다. 2001 년 Rx sump 발생량 증가는 수조 덮개 설치 작업시 설비의 세척, 열교환기 전열판 제염 작업 등으로 배수량이 증가하였기 때문이다. 2003 년 발생량 증가는 NTD 상업 서비스 실시에 따른 제염 작업의 증가와 비상보충수 주입 실험을 여러 차례 실시하였기 때문이었다[3].



1) 발생량



2) 구성 비율

그림 3. 액체폐기물 발생량

### 2.2.3 기체 폐기물

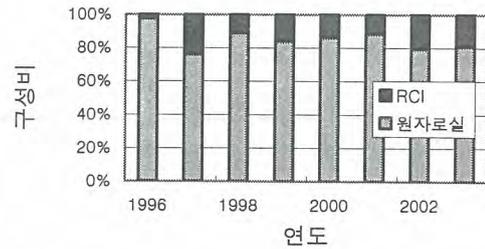
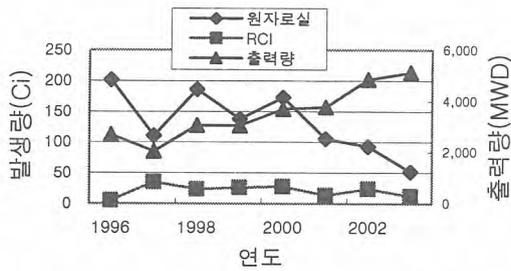
하나로에서 발생하는 기체 폐기물의 주 핵종은 Ar-41, I-131, H-3 이다. 발생한 방사성물질은 배기에 대한 허용농도 제한치 이내에서 원자로실 굴뚝과 RCI 굴뚝을 통해 환경으로 방출된다. 표 3 은 1996 년부터 2003 년까지 하나로에서 발생한 기체 폐기물 현황이며, 총 발생량은 Ar-41 이 1,225.6 Ci, I-131 이 1.612E-2 Ci, H-3 이 210 Ci 이다. 그림 4 는 원자로실, RCI 시설에서 발생한 기체 폐기물의 연도별 발생량을 나타낸 그림이다. 2000 년 원자로실의 Ar-41 배출량이 증가한 것은 방사화 분석을 위한 공압 이송 장치에서 누설이 있었기 때문이며, 누설 부위를 봉합하고 질소가스를 공급하기 시작한 2001 년 이후 Ar-41 은 매년 감소하고 있다.

표 2. 연도별 액체 폐기물 발생 현황

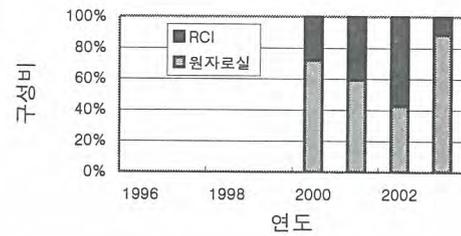
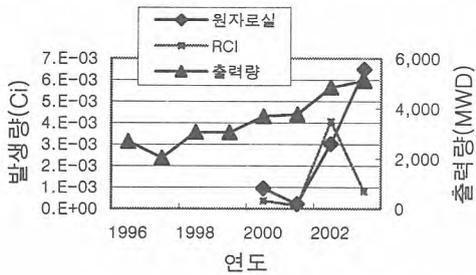
연도	Rx Sump(ℓ)	Hot Sump(ℓ)	계(ℓ)
1996	24,570	9,913	34,483
1997	55,530	6,048	61,578
1998	37,890	8,102	45,992
1999	30,560	3,355	33,915
2000	25,480	3,040	28,520
2001	37,940	986	38,926
2002	19,130	986	20,116
2003	42,270	4,150	46,420
계	273,370	36,580	309,950

표 3. 연도별 기체 폐기물 발생 현황

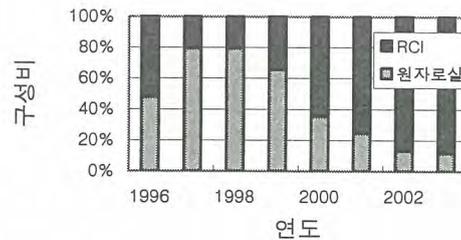
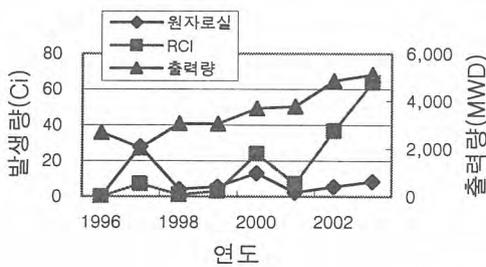
항목	원자로실 굴뚝(Ci)			RCI 굴뚝(Ci)		
	Ar-41	I-131	H-3	Ar-41	I-131	H-3
1996	201.6	*	0	5.2	*	0
1997	110.8	*	27.8	35.1	*	7.2
1998	185.9	*	4.1	23.4	*	1.1
1999	137.6	*	5.6	25.9	*	3.0
2000	172.7	9.52E-4	13.1	27.8	3.7E-4	24
2001	105.5	2.24E-4	2.3	13.7	1.53E-4	7.2
2002	92.7	3.03E-3	5.6	23.9	4.07E-3	36.7
2003	51.6	6.5E-3	8.38	12.1	8.27E-4	63.9
계	1058.5	1.07E-2	66.9	167.1	5.42E-3	143.1



1) Ar-41 발생량 및 비율



2) I-131 발생량 및 비율



3) H-3 발생량 및 비율

그림 4. 원자로실, RCI 시설의 기체방사성폐기물

### 3. 결 론

하나로의 출력운전이 시작된 이후 1996 년부터 2003 년까지 하나로에서 발생한 고체 폐기물과 액체 폐기물은 각각 72,999l, 263,576l 이다. 이 기간 동안 원자로실 및 RCI 굴뚝을 통해 환경으로 방출된 기체방사성폐기물은 Ar-4 이 1,225.6 Ci, I-131 이 1.612E-2 Ci, H-3 이 210 Ci 인 것으로 나타났다. 하나로의 운전일수 및 출력량 증가에 비례하여 기체방사성폐기물은 매년 증가하고 있지만 고체폐기물은 추가로 설치되는 이용 시설의 수가 줄고, 방문객 및 작업자의 덧신 사용량 감소로 점차 감소하는 추이를 보이고 있다. 그러나 액체 폐기물은 NTD

상업 서비스 실시에 따른 제염 작업 때문에 증가하였으며 향후 상업 서비스가 많아지면 이에 비례하여 매년 증가할 것이다.

#### 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] “2003 년 하나로 운영”, 한국원자력연구소, KAERI/MR-411/2003
- [4] 대덕 원자력관련시설의 운영중 방사선환경영향평가, KAERI/CR-169/2003,  
한국원자력연구소

## **Dynamic Modeling of the Korean Nuclear Fuel Cycle**

Chang Joon Jeong, Joo Hwan Park and Hangbok Choi

Korea Atomic Energy Research Institute

P.O. Box 105, Yuseong, Daejeon, Korea 305-600

### **Abstract**

The Korean fuel cycle scenario has been modeled by using the dynamic analysis method. For once-through fuel cycle model, the nuclear power plant construction plan was considered, and the nuclear demand growth rate from the year 2016 was assumed to be 1%. After setup the once-through fuel cycle model, the DUPIC and fast reactor scenarios were modeled to investigate the environmental effect of each fuel cycle. Through the calculation of the amount of spent fuel, and the amounts of plutonium and minor actinides were estimated and compared to those of the once-through fuel cycle. The results of the once-through fuel cycle shows that the demand grows to 64 GWe and the total amount of the spent fuel would be 100 kt in the year 2100, while the total spent fuel can be reduced by 50% when the DUPIC scenario is implemented

**Keywords:** fuel cycle, dynamic analysis, once-through, nuclear demand, DUPIC cycle, spent fuel

### **I. Introduction**

The Korean fuel cycle has been modeled and analyzed using the dynamic analysis code of DYMOND [1, 2]. During the current century, the nuclear power was assumed to grow from 13.716 GWe in 1999 to 27.32 GWe in 2015 [3]. From the year 2016 to 2100, the growth rate was assumed to be 1%.

In the once-through model, the current operating reactors (12 PWR and 4 PHWR) are considered. And, there will be no construction of PHWR after 2000. After setting up the once-through model, the DUPIC scenario was analyzed.

The DUPIC (Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors) scenario involves a partial recycle of LWR spent fuel (SF) materials in CANDU reactors. The LWR SF is mechanically separated into two major streams: (1) the UO<sub>2</sub> with fission products and actinides and (2) the SF cladding. The UO<sub>2</sub> with fission products and actinides is fabricated into CANDU fuel assemblies. These fuel assemblies are then used to feed CANDU reactors and then disposed of as SF in a geological repository. For the DUPIC scenario, the deployment time was assumed 2015 (with the DUPIC fabrication start time of 2010).

## II. Once-Through Fuel Cycle

In this fuel cycle, current operating reactors are considered: 12 PWRs and 4 PHWRs. In the fuel cycle model, the reactor life time was assumed to be 40 yr for both the PWR and PHWR. Also, all the PHWRs were assumed to be shutdown after their life time.

Figure 1 shows the deployment of fuel cycle services and reactors needed to meet energy demand. In 2100, the demand was expected to be 63.7 GWe. Though, the deployed capacity varies with the demand, it is not exactly same as the demand. After 2040, PWR dominates the demand. The number of PWRs in the year 2100 was expected to be 67 with the reactor power of 1 GWe. The number of PWR orders is varied with the deployed capacity.

Figure 2 gives the amount of the SF, U and PU in the SF. The SF increases with time, and the total SF will be 100.8 kt in the year 2100. Beyond 2049, the PHWR SF remains constant at ~17 kt. The total amount of U and Pu in SF will be 94.2 kt and 1.2 kt, respectively. The amount of MA and FP are shown in Fig. 3. It can be seen that the total amount of MA and FP in the SF will be 0.13 kt and 5.2 kt, respectively.

## III. DUPIC Scenario

The DUPIC scenario [4, 5] has been analyzed too. It is assumed that the current PHWRs are operated as PHWR itself, while the new DUPIC reactor will be constructed from 2015. The DUPIC reactor capacity with time is shown Table I.

Figure 4 shows the deployment of fuel cycle services and reactors needed to meet energy demand. The demand and deployed capacity are almost the same as those of the once-through case. Beyond 2020, the PWR sharing of the capacity decreases, ultimately it goes down to ~80% in 2100. On the other hand, the remaining DUPIC capacity increases to ~20% in 2100. The number of PWR and DUPIC reactors increase, and they reach 53 and 19, respectively in 2100. The number of PWR and DUPIC reactor orders vary with the deployed capacity.

Figure 5 represents the amount of the SF, U and PU in the SF. The PWR SF decreases with time and becomes ~0 kt, while the DUPIC SF dominates after 2040. The total SF will be 49.2 kt in 2100. Beyond the year 2049, the PHWR SF remains constant at ~17 kt. The total amount of U and Pu in SF will be 46.6 kt and 0.53 kt, respectively. The amount of MA and FP are shown in Fig. 6. It can be seen that the total amount of MA and FP in the SF will be 0.08 kt and 2.1 kt, respectively.

## IV. Summary and Conclusion

The Korean nuclear fuel cycles have been investigated. After setting up the once-through model, DUPIC scenario was analyzed.

From the once-through scenario, it can be summarized as follows:

- The demand grows up to 63.6 GWe in the year 2100.
- The total SF and U in SF are 100.8 kt and 94.2 kt , respectively in the year 2100.
- The amount of Pu, MA and FP in SF are 1.2 kt, 0.13 kt and 5.2 kt, respectively in the year 2100.

From the DUPIC scenario, it can be summarized as follows:

- The amount of total SF and U in SF are reduced by ~50% compared with the once-through cycle.
  - The amount of total Pu and FP in SF are reduced by ~60% compared with the once-through cycle.
- And, the amount of MA in SF is reduced by ~40%

From the above results, it is known that the DUPIC or FR scenario can drastically reduce the spent material which can affects environment.

## References

1. US-Department of Energy, "A Technology Roadmap for Generation IV Nuclear Energy Systems," GIF-002-00, Dec. 2002.
2. J. H. PARK and A. M. YACOUT, "Modeling Report of DYMOND Code (DUPIC Version)", KAERI/TR-2472/2003, KAERI (2003)
3. "2002 Nuclear Energy Year Book", Korea Atomic Industrial Forum (July 2003)
4. J.S. LEE, K.C. SONG, M.S. YANG et al., "Research and Development Program of KAERI for DUPIC (Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors)," *Global'93*, Seattle, Washington, Sept. 12-17, 1993.
5. W.I. KO, H. CHOI and M. S. YANG, "Economic Analysis on Direct Use of Spent Pressurized Water Reactor Fuel in CANDU Reactors (IV) – DUPIC Fuel Cycle Cost", *Nuclear Technology*, **134**, 167 (2001)

Table I DUPIC Reactor Capacity (%) with Time

Time	DUPIC Capacity
2000	0
2005	0
2010	0
2015	25
2020	25
2025	25
2030	25
2035	22
2040	22
2045	22
2050	22
2055	20
2060	20
2065	20
2070	20
2075	20
2080	20
2085	20
2090	20
2095	20
2100	20

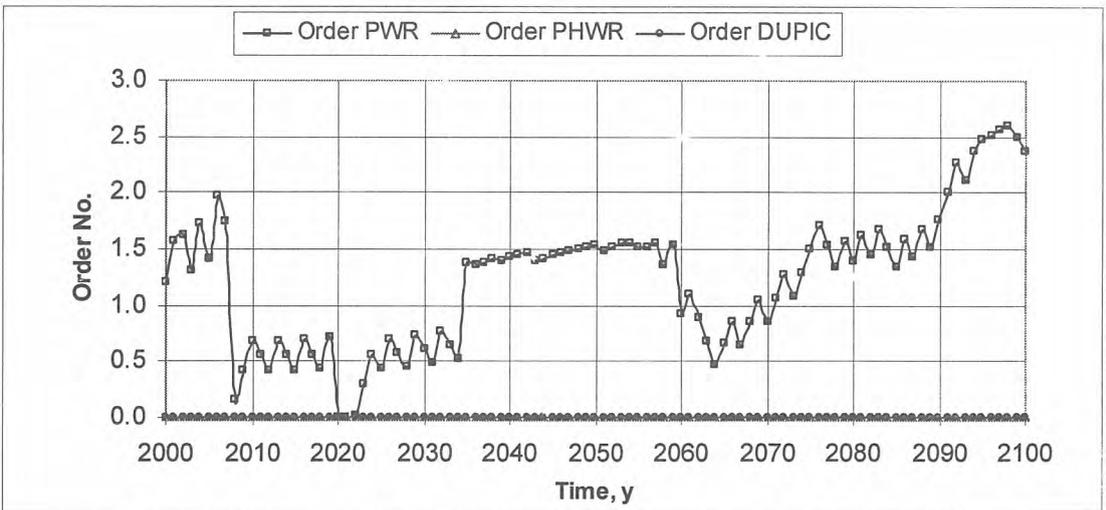
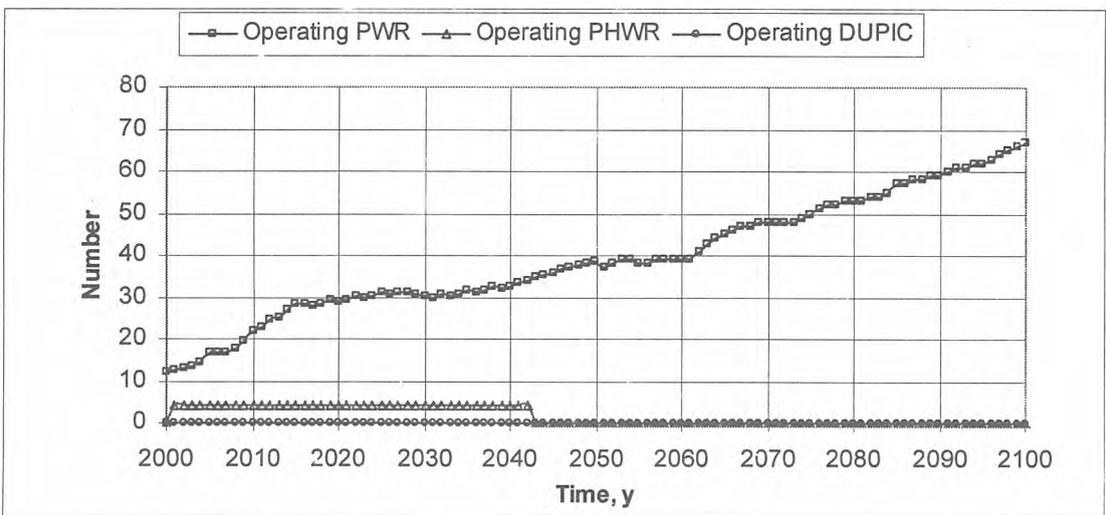
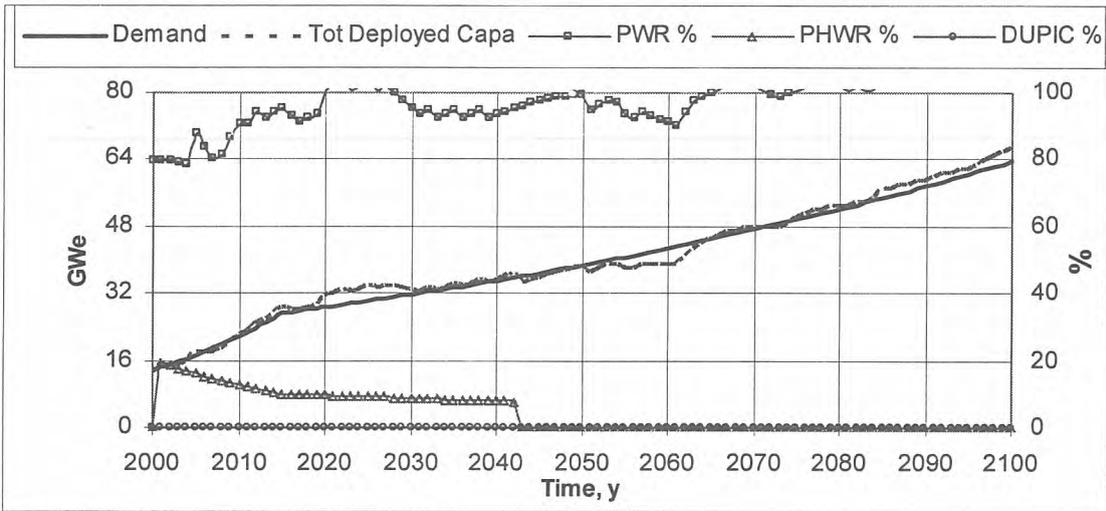


Fig. 1 Reactor with Demand (Once-through)

Table I DUPIC Reactor Capacity (%) with Time

Time	DUPIC Capacity
2000	0
2005	0
2010	0
2015	25
2020	25
2025	25
2030	25
2035	22
2040	22
2045	22
2050	22
2055	20
2060	20
2065	20
2070	20
2075	20
2080	20
2085	20
2090	20
2095	20
2100	20

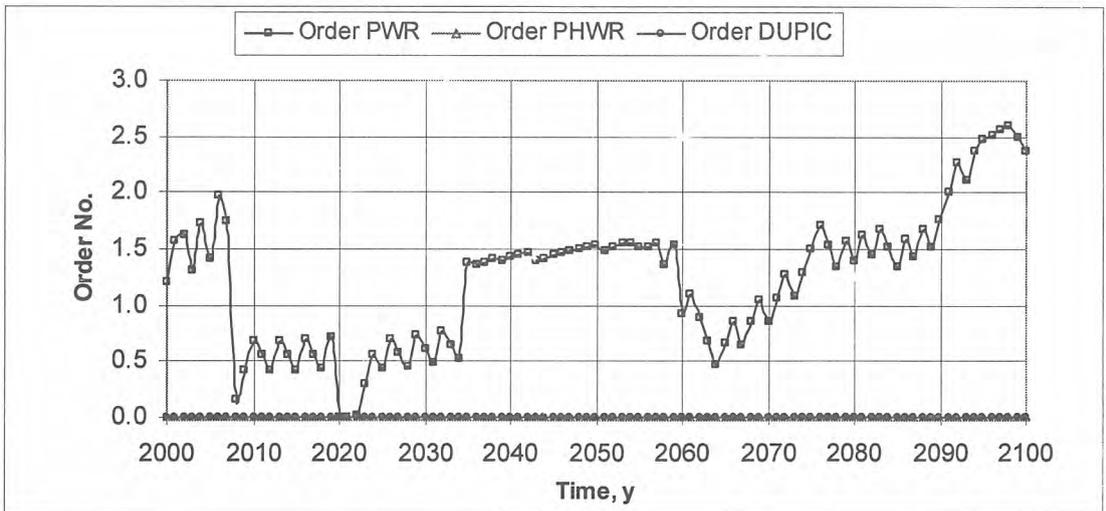
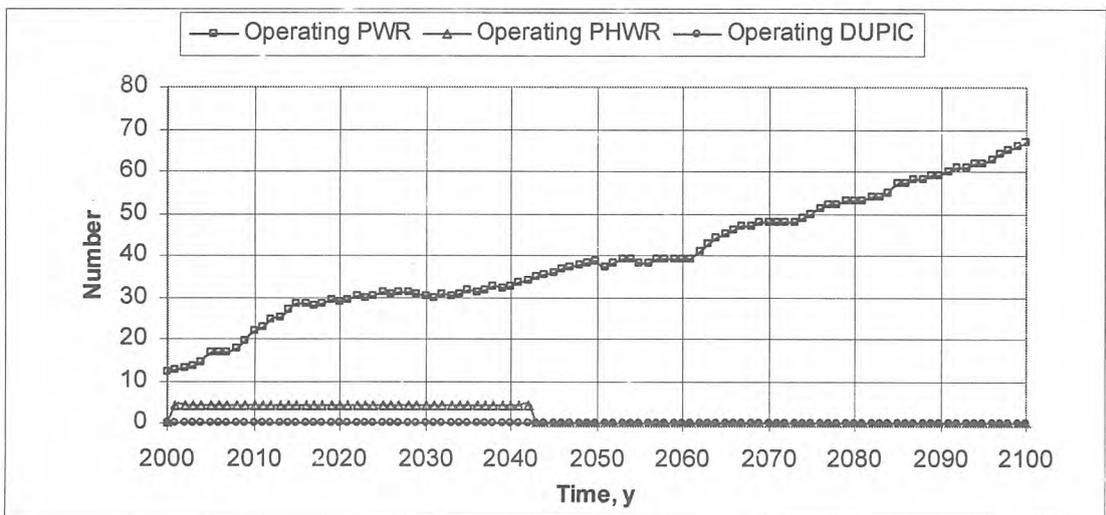
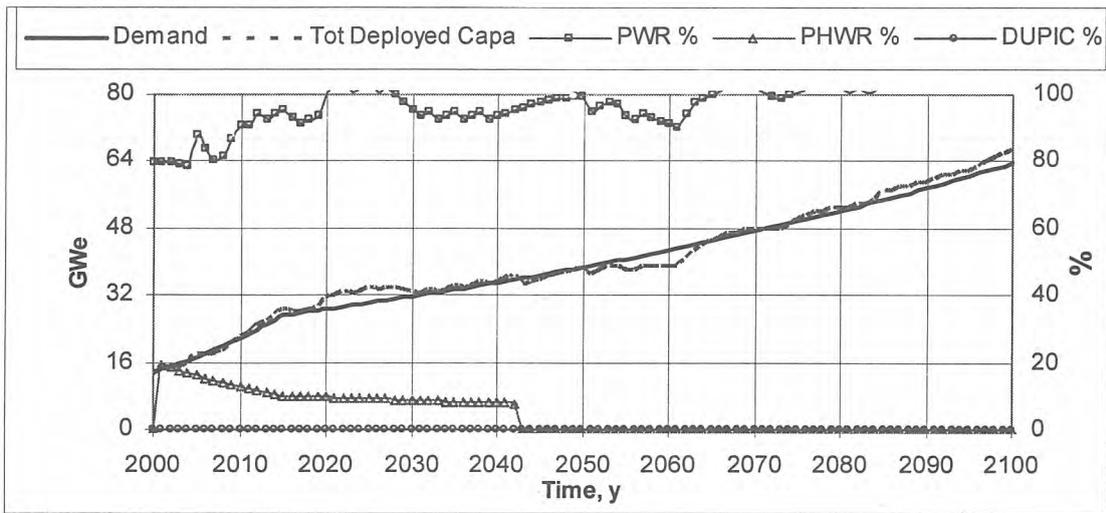


Fig. 1 Reactor with Demand (Once-through)

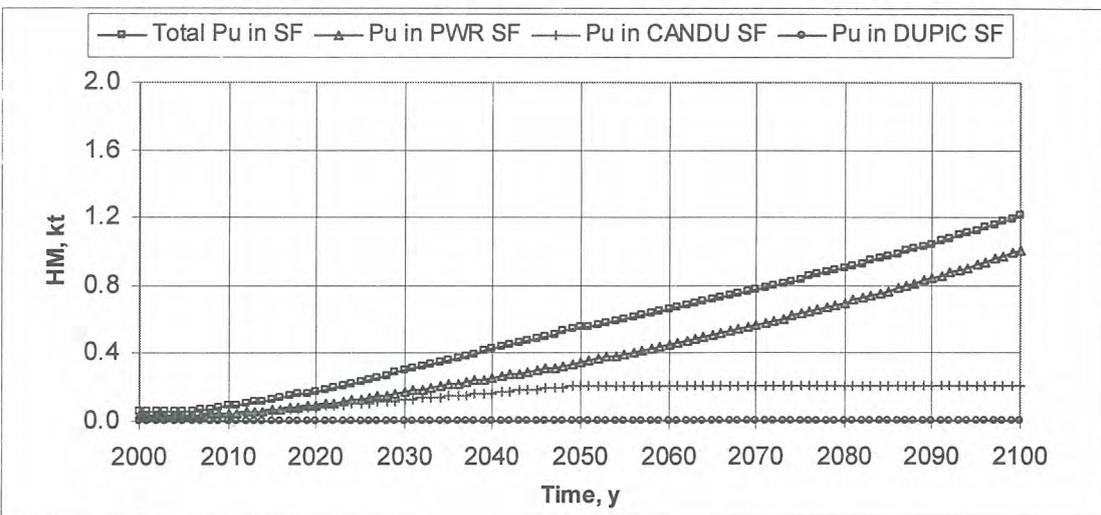
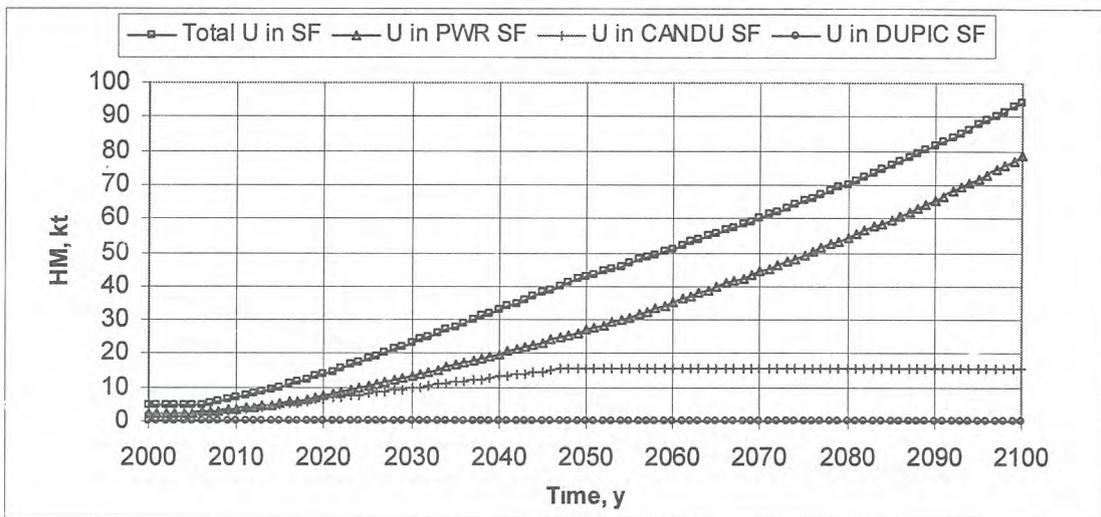
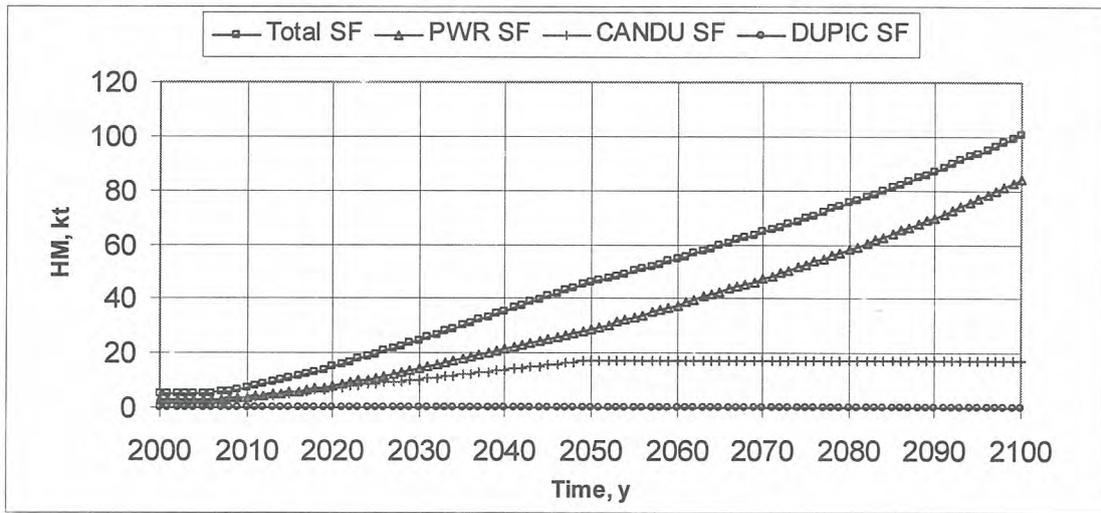


Fig. 2 Spent Fuel and Heavy Element (Once-through)

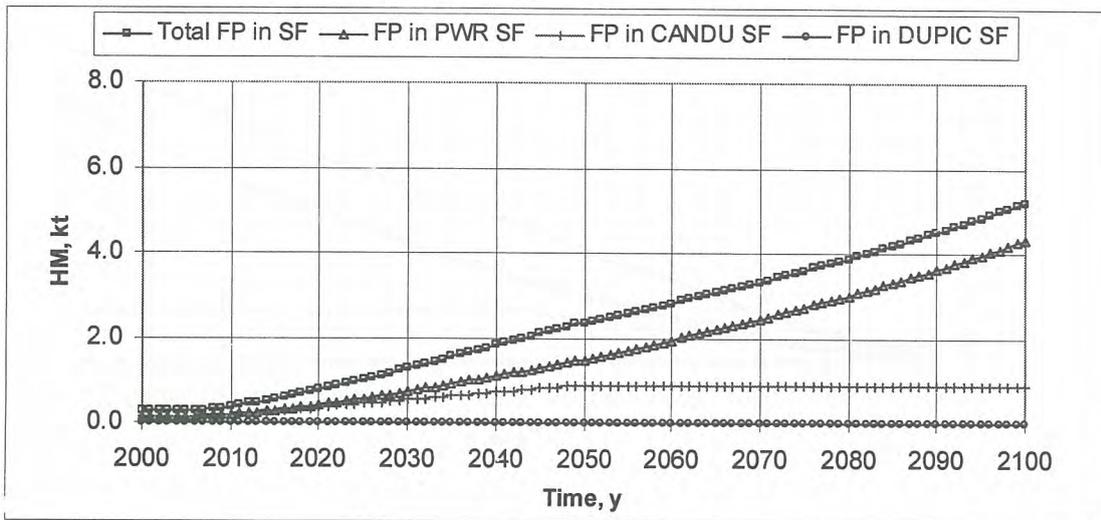
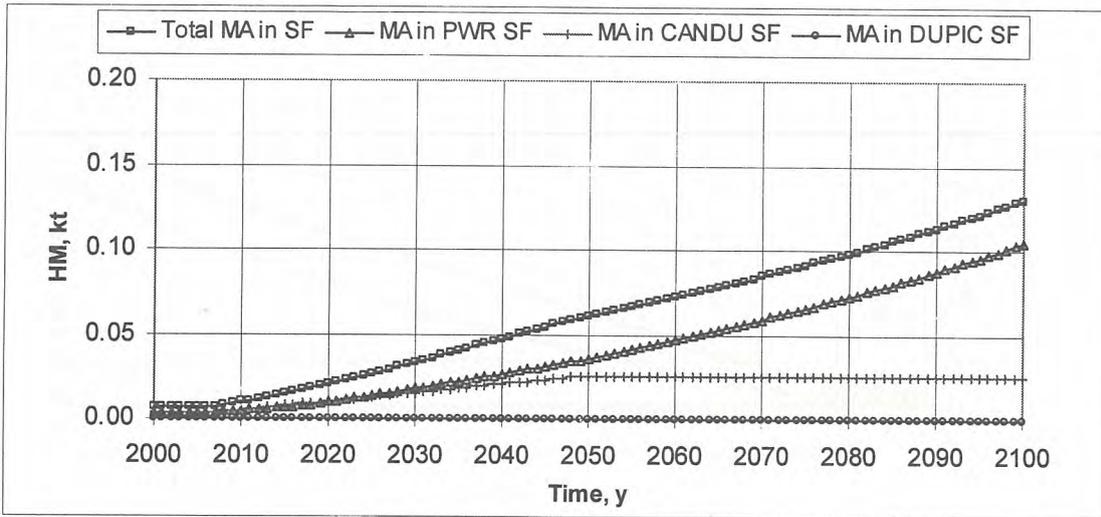


Fig. 3 Heavy Elements (Once-through)

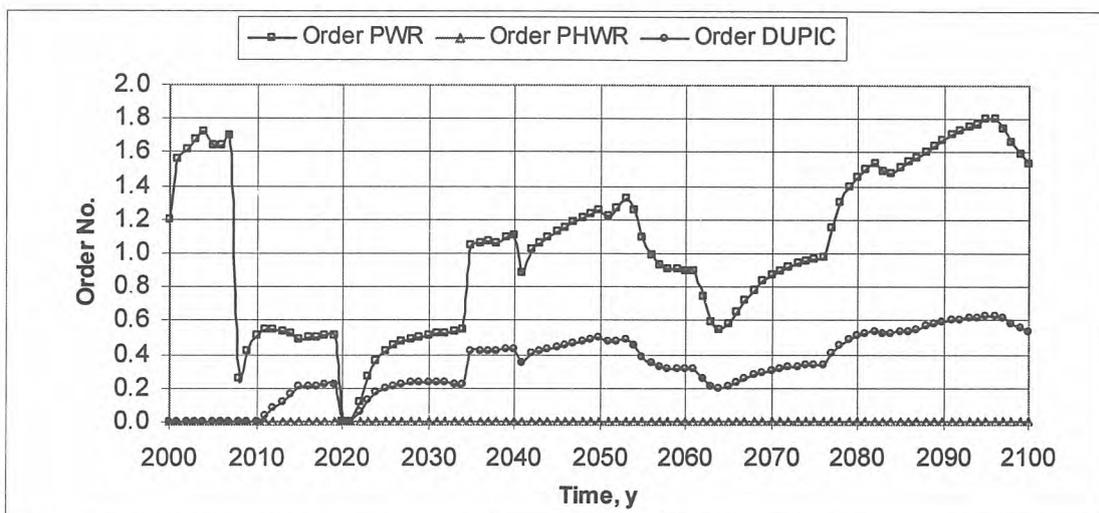
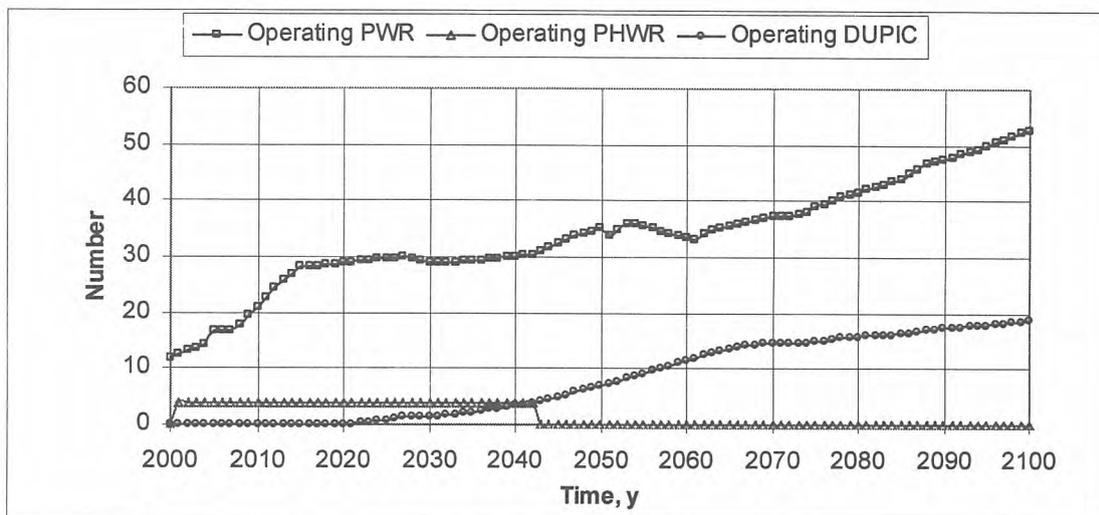
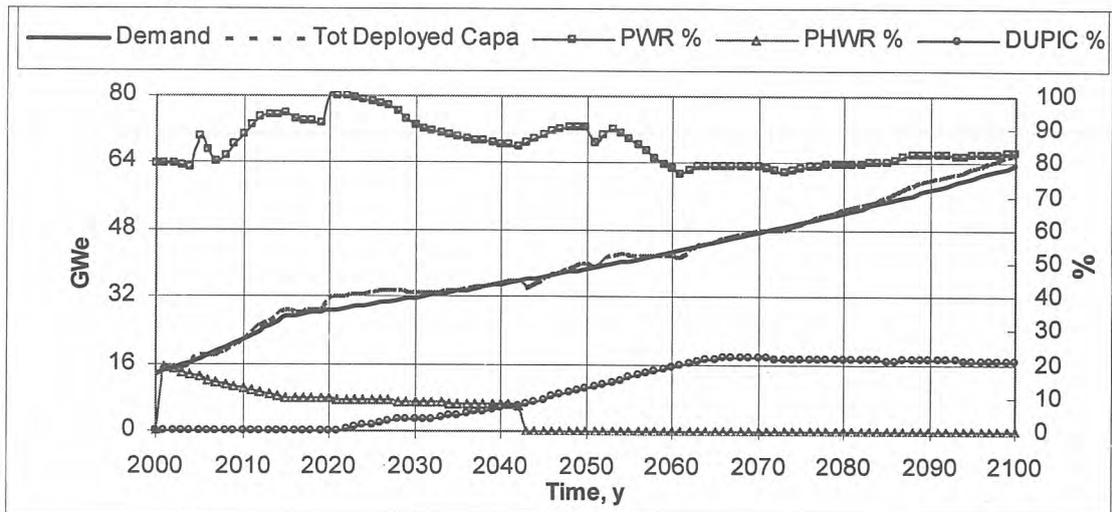


Fig. 4 Reactor with Demand (DUPIC)

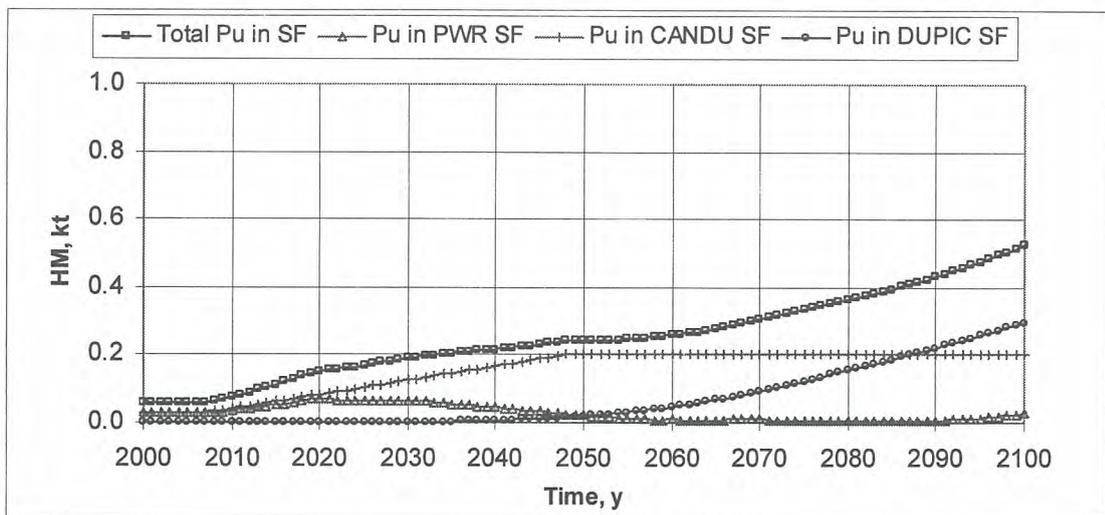
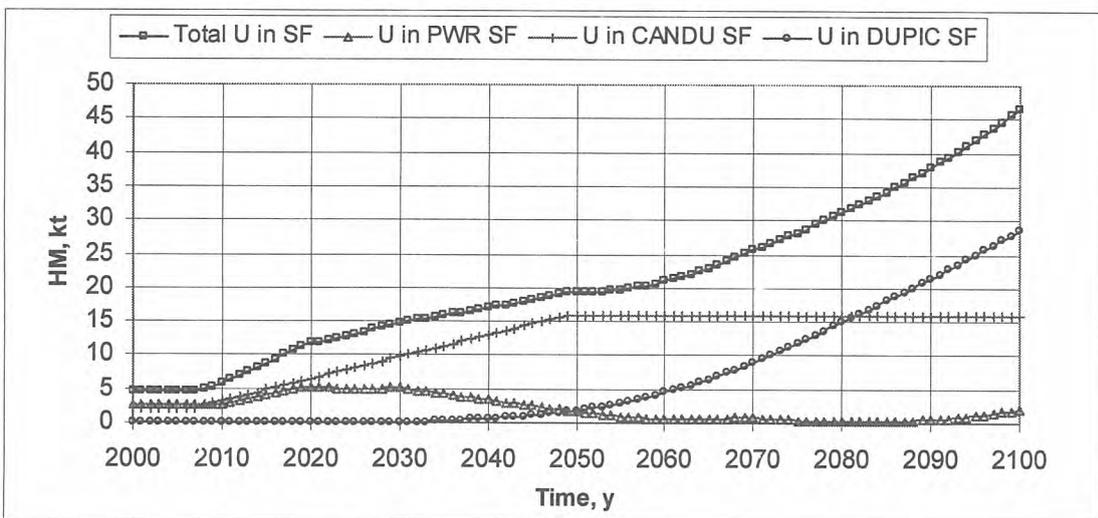
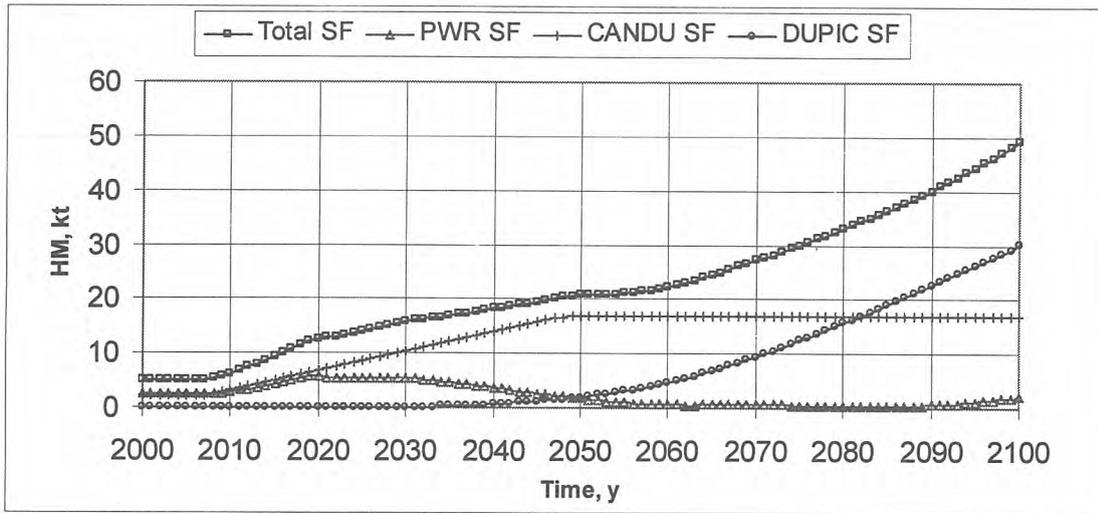


Fig. 5 Spent Fuel and Heavy Elements (DUPIC)

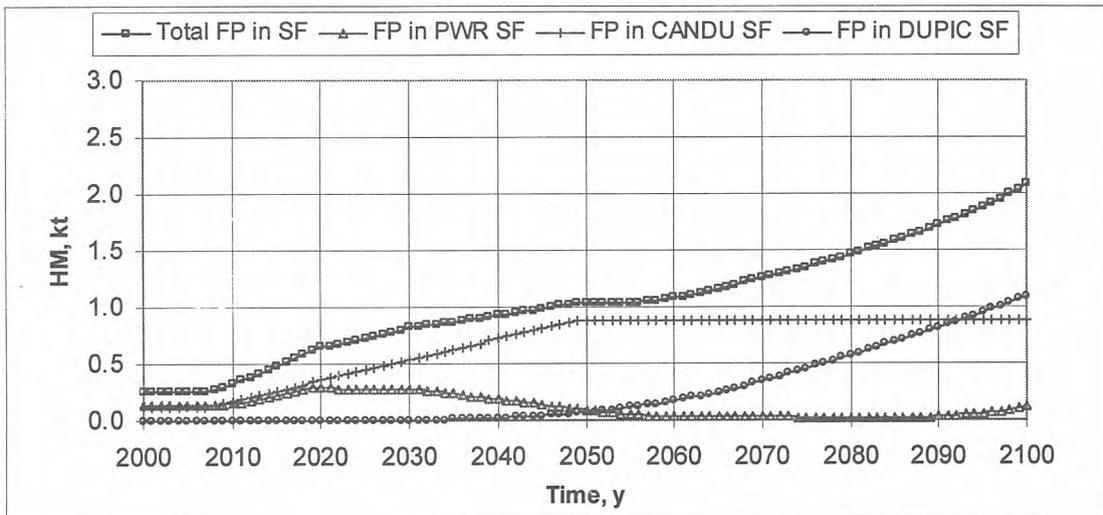
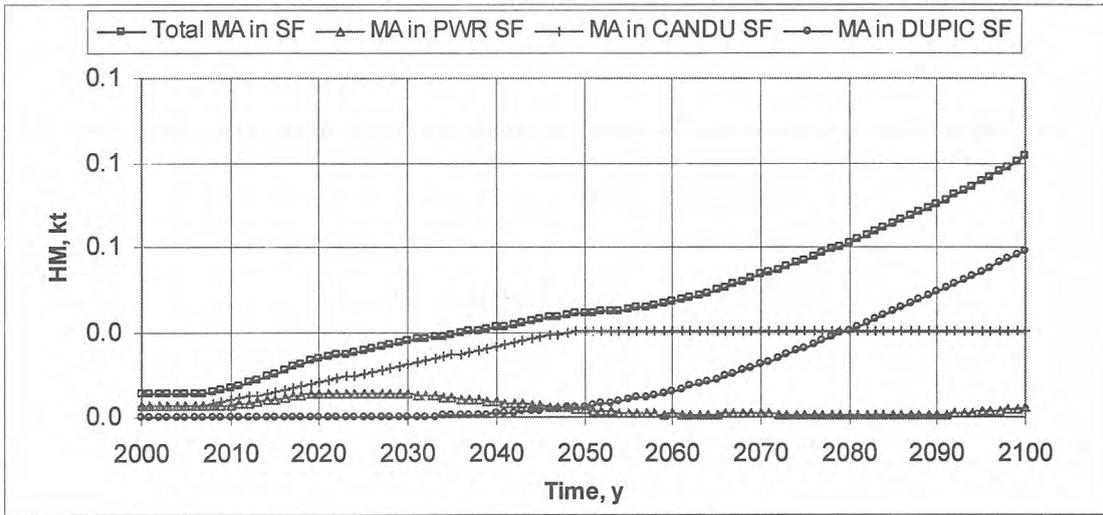


Fig. 6 Heavy Elements (DUPIC)

## 화석연료 및 원자력 발전원의 전과정 환경영향평가 비교

김태운\*, 김성호, 하계주, 정중태  
 한국원자력연구소, 대전시 유성구덕진동 150  
 (\*연락할 저자: twkim2@kaeri.re.kr)

최근 국가 에너지 정책은 다양한 발전원들의 대중보전, 환경성, 경제성, 사회기여도 등을 고려하여 결정되고 있다. 이는 원자력을 포함한 여러 발전원들에 대한 종합 위험도 평가 체계에 기반을 두어 구체화된다. 세계적으로는 화석연료-의존 에너지 정책에서 벗어나 좀 더 지속가능 에너지 개발에 관심이 집중되고 있다.

이 연구의 목적은 국내 주요 발전원별 환경성 데이터베이스를 구축하고 LCA 방법론을 사용하여 발전원별로 건설, 운영(연료주기), 폐기단계 등 전반에 걸쳐서 전과정 환경영향을 평가하여 발전원의 환경적 영향부하를 비교하려는 것이다. 이 연구에서 발전원별 환경성 평가 내용은 다음과 같다: 원자력은 경수로, 중수로로 LNG는 기력, 복합화력으로 구분되었다. 석탄은 유연탄이 고려되었다. 지역적 경계는 국외 활동(연료채굴, 해상수송) 단계 및 국내 활동(저장, 수송, 발전) 단계로 구분되었다. 수행된 발전원별 환경성 비교평가는 다음과 같다: (1) 3 개 발전원별 건설단계 대비 운영단계, 국외활동대비 국내활동 환경영향이 비교되었다; (2) 지구온난화에 대한 전과정 환경영향이 단계별로 비교되었다.

국내 발전원에 대한 전과정평가가 수행되었다. 경수원자력, 중수원자력, 유연탄, 기력LNG, 복합LNG 발전에 대한 특성화 영향 및 정규화 영향이 계산되었다. 각 발전원의 지배적 환경 이슈가 파악되었다. 발전원별로 전과정에서 지구온난화에 대한 상대적 기여도가 평가되었고, 운영단계, 건설단계, 폐기단계에서 지구온난화에 미치는 정도가 알려졌다. 전과정평가 방법으로 좀 더 실제적 결과를 얻기 위해 지속적인 데이터베이스의 갱신이 바람직하다고 판단된다. 이 방법론은 또한 설계 또는 건설중인 에너지원(예: 수소생산형 원자력 설비)의 환경영향을 예측하는 데 적용될 수 있다. Figure 1에 발전원별 영향범주의 상대적 환경영향이 주어진다.

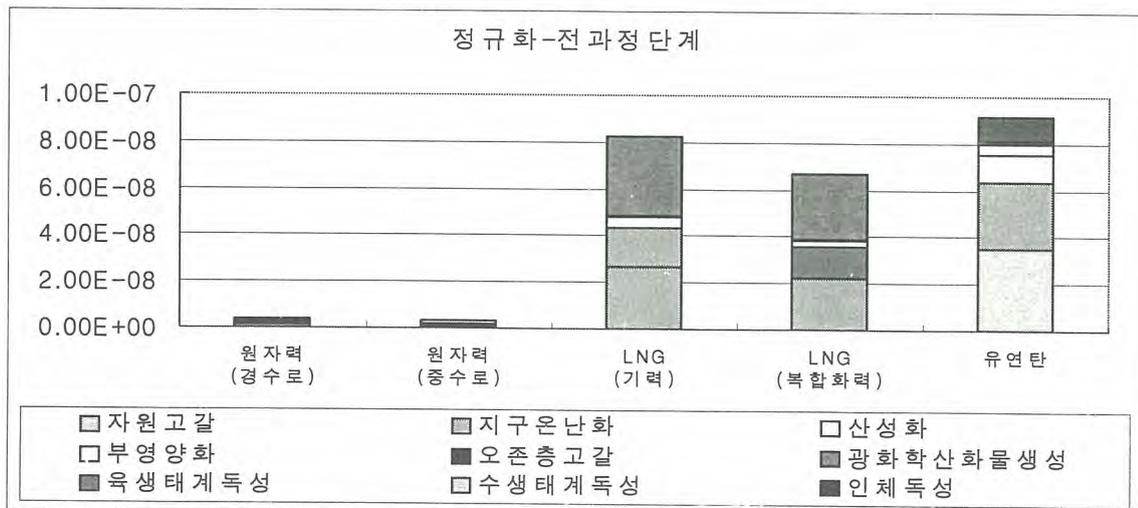


Figure 1. Normalized impacts for various power sources (Unit: Year/GWh)

## **Radiation Activity of Safety-Related Fission Products of DUPIC Fuel**

**Ho Jin Ryu, Chang Je Park, Hangbok Choi and Kee Chan Song**

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

### **INTRODUCTION**

It is important to estimate the radiation activity of the nuclear fuel which is a source term of the loss of coolant accident. The purpose of this study is to identify the most important parameters of the source term calculation based on three fuel types: typical natural uranium CANDU fuel, slightly enriched uranium and DUPIC fuel. The characteristics of the radiation source term were analyzed through sensitivity calculations of the linear power, fuel burnup, and the power shape.

### **RESULTS**

For the analysis of the radiation source term, the fission products gap inventory and total inventory were calculated based on ANS5.4 fission gas release model employed in the ELESTRES performance evaluation code. Fractional release of isotopes with half lives greater than 1 year was calculated. The total inventory estimated by the ELESTRES code was then compared to the results obtained by the ORIGEN-2 code as shown in Table 1. It can be seen that the radiation activity prediction by the ELESTRES code is similar to that by the ORIGEN-2 code except for a few isotopes, which can be attributed to the difference of the detailed burnup chains implemented in these two codes.

The radiation activity of the DUPIC fuel was also calculated by the ORIGEN-2 code and compared to the results of slightly enriched uranium oxide fuel. As shown in Table 2, both fuels show similar results as far as the total radiation inventory is concerned. The result indicates that the total fission products inventory is strongly dependent on the linear power and fuel burnup.

In order to get the fission products release to the fuel gap, the ELESTRES code should be used. In the ELESTRES code, the material properties such as thermal conductivity and thermal expansion of the DUPIC fuel were already included on the experimental data. The results of fission products gap inventory are summarized in Table 3 and Table 4. It can be seen that the gap inventory increases as the fuel burnup increases while the total inventory of major isotopes is saturated at the early burnup. It was also found that the gap inventory increased at a higher linear power condition for natural UO<sub>2</sub> fuel due to the enhanced diffusion of fission gas elements at higher centerline temperature. For the DUPIC fuel, the gap inventory was higher due to the higher centerline temperature caused by the lower thermal conductivity.

## CONCLUSIONS

Fuel performance analysis was carried out to investigate the most important parameters that determine the magnitude of the fission products source term. It can be concluded that the linear power determines the source term regardless of the initial fission products inventory and fuel burnup. The gap inventory is mostly determined by the fission gas release associated with higher centerline temperature.

**Table 1. Comparison of Total Inventory Activity from the Calculation Results of ELESTRES Code and ORIGEN-2 Code for Natural UO<sub>2</sub> Fuel. (unit : Ci/ton)**

Burnup	150MWh/kgU		
	ELESTRES	ORIGEN-2	ratio
I-131	1.08.E+06	1.44E+06	0.75
I-132	1.66.E+06	2.09E+06	0.79
I-133	2.60.E+06	2.88E+06	0.90
I-135	2.44.E+06	2.67E+06	0.91
I-137	1.29.E+06	1.13E+06	1.14
KR-85M	4.92.E+05	3.91E+05	1.26
KR-87	9.56.E+05	7.49E+05	1.28
KR-88	1.35.E+06	1.06E+06	1.28
KR-89	1.75.E+06	1.29E+06	1.36
SR-89	1.47.E+06	1.08E+06	1.36
TE-131	9.87.E+05	1.26E+06	0.78
TE-132	1.65.E+06	2.06E+06	0.80
TE-133M	1.13.E+06	1.05E+06	1.07
TE-133	1.51.E+06	1.61E+06	0.94
TE-135	1.31.E+06	1.09E+06	1.20
XE-133	2.40.E+06	2.75E+06	0.87
XE-135M	4.18.E+05	5.98E+05	0.70
XE-137	2.37.E+06	2.49E+06	0.95
XE-138	2.39.E+06	2.29E+06	1.04

**Table 2. Comparison of Total Inventory Activity between DUPIC fuel and SEU fuel(1.638wt%) from the Calculation Results of ORIGEN-2 Code. (unit : Ci/ton)**

Burnup	150MWh/kgU		
	DUPIC	SEU	ratio
I-131	1.37.E+06	1.30E+06	1.05
I-132	1.96.E+06	1.91E+06	1.03
I-133	2.78.E+06	2.83E+06	0.98
I-135	2.60.E+06	2.63E+06	0.99
I-137	1.16.E+06	1.26E+06	0.92
KR-85M	3.54.E+05	4.55E+05	0.78
KR-87	6.81.E+05	9.01E+05	0.76
KR-88	9.56.E+05	1.27E+06	0.75
KR-89	1.17.E+06	1.59E+06	0.73
SR-89	1.09.E+06	1.51E+06	0.73
TE-131	1.19.E+06	1.15E+06	1.03
TE-132	1.93.E+06	1.88E+06	1.02
TE-133M	1.04.E+06	1.16E+06	0.90
TE-133	1.59.E+06	1.60E+06	0.99
TE-135	1.15.E+06	1.24E+06	0.92
XE-133	2.70.E+06	2.74E+06	0.99
XE-135M	5.51.E+05	5.22E+05	1.06
XE-137	2.43.E+06	2.48E+06	0.98
XE-138	2.29.E+06	2.46E+06	0.93

**Table 3. Comparison of Total and Gap Inventory Activity Summation from the Calculation of ELESTRES Code for Natural UO<sub>2</sub> Fuel at a linear power of 44 kW/m and 55 kW/m. (unit : Ci)**

Linear Power	Burnup (MWh/kgU)	50	100	150	200
44 kW/m	Total Inventory	14634.93	14883.83	15015.4	15090.11
	Gap Inventory	48.274	75.315	107.302	137.152
55 kW/m	Total Inventory	18186.02	18506.22	18682.17	18792.26
	Gap Inventory	681.067	1212.911	1783.966	2131.832

**Table 3. Comparison of Total and Gap Inventory Activity Summation from the Calculation Results of ELESTRES Code for SEU(1.638%) and DUPIC Fuel at a Burnup of 150MWh/kgU. (unit : Ci)**

Fuel	SEU			DUPIC Fuel		
	Total Inventory	Gap Inventory	% Release	Total Inventory	Gap Inventory	% Release
Activity Summation	13832.42	37.097	0.268189	13827.68	536.774	3.881881

## 지형 및 지질에 따른 Cs-137 분포 및 거동에 관한 연구

### A Study on the Distribution and Behavior of Cs-137 in the Environment According to Topography and Nature of the Soil

한상준, 이경진\*, 박용섭, 이홍연, 김희근\* \*

영광원전 환경·안전 감시센터, 전남 영광군 영광읍 무령리 83-44

\* 조선대학교, 광주광역시 동구 서석동 375

\* \* 전력연구원, 대전시 유성구 문지동 103-16

#### 요 약

본 연구에서는 국내 원전이 위치한 지역의 토양에서  $Cs^{137}$ 의 축적 경향을 파악하기 위하여 원전이 위치한 영광군 관내의 평지와 고산지대인 금정산, 불갑산 및 영광원전으로부터 원거리에 위치한 내장산 등을 대상으로 토양 중  $Cs^{137}$ 의 화학적인 특성과 고도에 따른  $Cs^{137}$ 의 축적 경향을 평가하기 위하여 실험을 통한 연구를 수행하였다.

일반적으로 국내 토양 중  $Cs^{137}$ 의 농도는 불검출 ~ 252Bq/kg-dry의 범위 내에 포함되었으며 본 연구에서 수행한 평지부분과 고산지대인 원전으로부터 2km 떨어진 금정산, 약 20km 떨어진 불갑산 및 원거리에 위치한 내장산에서도 지금까지의  $Cs^{137}$  농도 범위에 들었다. 그러나 고산지대는 평지에서와는 다르게 고도가 증가함에 따라  $Cs^{137}$  농도도 증가하는 경향을 보이고 있고, 정상 부분의  $Cs^{137}$ 의 농도가 하부 부분보다 더 높게 나타났고 영광원전 인근 일반평지부분보다는  $Cs^{137}$ 의 방사능 농도가 2~6배 정도의 높은 경향을 나타내었다.

연구결과  $Cs^{137}$ 의 분포는 지형적 요인(고도, 강수량등)과 토양의 화학적 요인(양이온치환용량)과 상관성이 큰 것으로 나타났다. 지형적 요인으로는 주로 고도를 들수가 있는데 높은 고도의 산의 경우 대기중  $Cs^{137}$ 이 토양에 침투되는 기회가 커짐으로 동일한 토질 조건의 평지 토양에 비해 높은  $Cs^{137}$  준위를 나타내었다. 토양의 화학적 요인으로는 양이온치환용량이 주요 인자임이 규명되었다. 양이온치환용량은 침적된  $Cs^{137}$ 을 토양에 고정시키는 능력을 나타내며 같은 지형조건에서 높은 양이온치환용량을 가진 시료가 낮은 양이온치환용량을 가진 토양에 비해  $Cs^{137}$  농도가 높은 값을 보였다

#### 1. 서 론

환경에는 크게 천연방사성핵종과 인공방사성핵종으로 분류할 수 있다. 천연방사성핵종은 인간의 의지와는 상관없이 자연적으로 생성되는 것으로서 환경측면에서 중요하게 고려되지 않는 반면, 대기 중 핵폭발실험, 원자력발전소 및 기타 방사성물질 사용기관으로부터 방출되는 인공방사성핵종의 경우 환경 문제에 대한 인식이 점차 높아짐에 따라 배출이 엄격히 제한되어 있기 때문에 이에

대한 감시 및 분석의 정확성이 요구되고 있다.

원자력발전소에 대한 환경 감시측면에서 보면 원자력발전소 주변지역에서의 방사성핵종은 주로 천연 방사성핵종과 핵폭발 실험에 의해 대기권에서 침적된 방사성핵종 및 발전소에서 배출된 핵종 등으로 구성되어 있다.

핵폭발이나 원자력발전소에서 생성되는 인공방사성핵종들은  $H^3$ ,  $C^{14}$  등 몇 가지 핵종을 제외한 나머지는 대부분 핵분열생성물들이고, 이 중  $Cs^{137}$ 은 선량 평가 시 특히 주목받는 핵종이다.  $Cs^{137}$ 은 환경에서 손쉽게 발견되는 핵종으로서 과거 선진국의 핵실험이나 구소련의 체르노빌 원전의 사고에 의해 방출된 이후에 현재까지도 환경에 영향을 주고 있는 핵종으로서 특히 토양에 집중적으로 분포되고 있다.

현재 국내에서 토양방사능을 분석하는 기관인 한국원자력안전기술원에서는 포괄적인 분석 결과(국내 토양  $Cs^{137}$  방사능 농도범위 : 불검출 ~ 약 252Bq/kg-dry)만을 제시하였고, 주요 현안이 되고 있는 토양의 성질 및 고도에 따른 영향을 고려하지 않았다. 지난 1994년 한국원자력안전기술원에서는 원전이 위치한 지역을 제외한 지역에 대해서 토양의 방사능 농도와 물리·화학적인 인자들을 고려하여 연구를 수행하였다. 그 결과 화학적인 인자인 유기물과 양이온 치환용량 사이에 상관성이 있다는 결론을 도출하였지만 원전이 위치한 지역에 대한 연구가 아니었으며, 현재까지도 원전 인근에 대한 분석결과는 방사능 농도 분석값만을 제시하였기 때문에 인근 주변지역 주민들에게는 뚜렷한 신뢰감을 심어주지 못하고 있는 실정이다.

따라서 본 연구에서는 영광원전 인근지역과 고산지대를 대상으로 한 실험을 통해 토양에서  $Cs^{137}$ 의 화학적인 거동 특성 및 고도에 따른 방사능 농도를 비교적 정확하게 분석함으로써 원전 주변의 지역 주민들에게 분석 근거 및 결과를 제시하고, 분석에 따른 신뢰성을 확보하고자 본 연구를 수행하였다.

## 2. 재료 및 방법

원전이 위치한 지역에 대해서 특히 영광 원자력발전소 주변을 대상으로 토양중 환경방사능 분석에 대해서 영광원전 인근지역과 인근에 위치한 고산지대인 불갑산, 금정산과 영광원자력발전소로부터 원거리에 위치한 내장산의 신선봉과 서래봉을 대상으로 토양중  $Cs^{137}$ 의 농도 및  $Cs^{137}$ 의 농도와 화학적인 인자중 가장 관계가 깊은 유기물과 양이온치환용량과의 관계를 알아보았다.

## 3. 결과 및 고찰

먼저 영광원자력발전소가 위치한 인근 평지와 고산지대인 불갑산과 금정산에 대해서 알아보았다. 표 1에서 보여지듯이 영광원전이 위치한 평지부분에 대해서는 원전으로부터 거리에 상관없이 지금까지 분석전문기관에서 분석한  $Cs^{137}$ 의 농도와 차이가 없음을 알 수가 있었다. 그리고 인근 고산지대인 영광원전으로부터 2km 떨어진 금정산과 약 20km 떨어진 불갑산에 대한 방사능 농도 분석 결과 또한 지금까지의 토양중  $Cs^{137}$ 의 농도범위인 불검출 ~ 252Bq/kg-dry의 범위에는 들었지만 고산지대의 특성인 고도가 증가함에 따라  $Cs^{137}$ 의 농도도 증가하는 경향을 나타내었다. 또한 표 2 및 표 3에서 보여지듯이  $Cs^{137}$ 의 농도에 따라 화학인자인 수소이온농도, 유기물, 유효인산, 양이온치환용량, 치환성양이온과의 관계를 알아보았는데 화학인자중 유기물과 양이온치환용량이  $Cs^{137}$ 과 상관성이 나타나는 것을 알 수가 있었다. 그림 1은 고도별  $Cs^{137}$ 의 경향을 나타

낸 것이고 그림 2와 그림 3은 화학인자와의 관계를 도시한 것이다.

표 1. 영광원전 인근 거리별 및 고도에 따른  $Cs^{137}$  농도

구 분	지 점 명	$Cs^{137}$ 농도(Bq/kg-dry)
평지부분 (원전으로부터 반경10km 이내)	발전소 전시관	6.05 ± 0.16
	신 광 초 교	4.68 ± 0.13
	법 성 인의산	5.47 ± 0.14
	영 산 성 지	11.47 ± 0.29
	영 광 서초교	4.49 ± 0.12
평지부분 (원전으로부터 반경10~20km 이내)	신 앙 초 교	1.18 ± 0.05
	사 창 초 교	5.37 ± 0.14
	대 산 초 교	4.38 ± 0.12
	군 남 초 교	2.24 ± 0.07
	백 수 중학교	1.65 ± 0.06
금정산 (원전으로부터 2km 거리)	정 상	24.44 ± 0.59
	중 턱	22.72 ± 0.54
	입 구	22.16 ± 0.53
불갑산 (원전으로부터 20km 거리)	정 상	75.19 ± 1.77
	중 턱	33.45 ± 0.80
	입 구	13.18 ± 0.33

표 2. 영광원전 인근지역 토양 중 화학분석 결과

지 점	$Cs^{137}$ 농도 (Bq/kg-dry)	pH(수소 이온농도)	유기물(%)	유효인산 (P, ppm)	양이온 치환용량 (cmol/kg)	치환성 양이온		
						K	Ca	Mg
발전소전시관	6.05±0.16	4.4	3.54	7.97	14.95	0.30	2.05	0.91
영산성지	11.47±0.29	4.9	8.13	77.20	22.05	1.11	10.32	1.64
백수 초교	6.31±0.16	7.2	2.17	67.27	6.50	0.22	11.39	0.35
불교대학교	9.18±0.23	5.3	5.35	6.57	12.50	0.37	5.03	1.00
인의산	5.47±0.14	5.0	3.61	1.99	17.65	0.54	3.98	0.73
새생명마을	5.64±0.15	7.2	0.84	15.84	5.85	0.28	5.29	0.56
사창 초교	5.37±0.14	4.6	2.14	150.43	12.20	0.46	4.74	0.94

과표 3. 영광원전 인근 고산지대 토양 중 화학분석 결과

지 점	$Cs^{137}$ 농도 (Bq/kg-dry)	pH(수소 이온농도)	유기물 (%)	유효인산 (P, ppm)	양이온 치환용량 (cmol/kg)	치환성 양이온			
						K	Ca	Mg	
금 정 산	정 상	24.44±0.59	6.4	14.37	94.74	30.55	0.45	20.71	3.38
	중 턱	22.72±0.54	4.6	8.47	31.00	24.75	0.48	7.95	2.47
	하 부	22.16±0.54	5.1	8.47	15.15	22.50	0.33	9.07	2.52
불 갑 산	정 상	75.19±1.77	4.6	22.28	210.56	39.05	1.00	9.86	1.84
	중 턱	33.45±0.80	4.4	11.03	37.18	16.15	0.41	2.11	0.86
	하 부	13.18±0.33	3.9	4.28	141.65	14.00	0.46	3.17	0.66

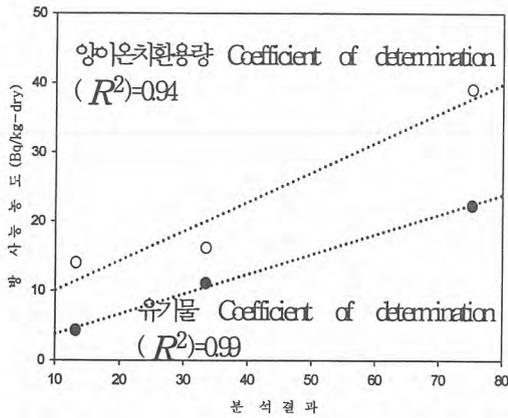


그림 1. 불갑산에서의  $Cs^{137}$  농도와 유기물, CEC와의 관계

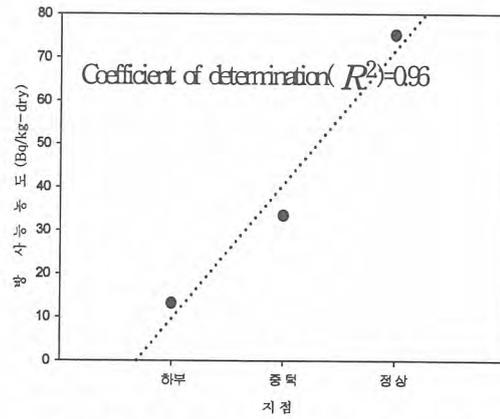


그림 2. 불갑산에서의 고도별  $Cs^{137}$  농도

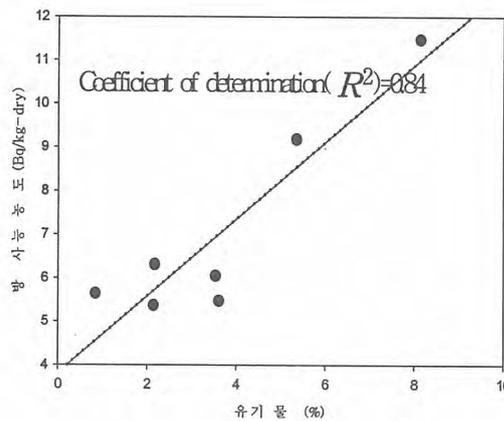


그림 3. 일반평지에서의  $Cs^{137}$  농도와 유기물과의 관계

두 번째는 표 4와 같이 내장산 토양에 대해서는 신선봉은 해발 763m인 정상부근에서  $Cs^{137}$ 의 농도는 90.48Bq/kg-dry로 나타났고 정상보다 아래쪽에 위치한 해발 653m 부근에서는 103.10Bq/kg-dry로 정상보다 약간 높게 나타난 반면, 신선봉에서 고도가 가장 낮은 해발 200m인 내장사 방향과 해발 356m인 백양사 방향에서는 각각 36.43Bq/kg-dry, 15.91Bq/kg-dry로 정상보다 적게 나타남을 알 수가 있었다. 해발 622m인 서래봉은 정상에서 가장 높은 값인 58.94Bq/kg-dry로 나타났고, 서래봉에서 고도가 가장 낮은 해발 252m인 임시대표소 방향과 해발 200m인 내장사 방향에서는 각각 18.79Bq/kg-dry, 20.54Bq/kg-dry의 농도 값을 나타내었다. 또한 그림 4와 그림 5에 도시한것과 같이 신선봉과 마찬가지로 서래봉 또한 정상보다 고도가 낮을수록  $Cs^{137}$ 의 농도는 적게 검출되었으며 신선봉과 서래봉에 대한 고도별 상관계수는 각각 0.62, 0.76로 나타났다. 그리고 표5의 신선봉 토양에 대한 화학분석결과는 수소이온농도는 4.54~5.70, 유기물함량은 8.07~20.15(%), 유효인산은 8.0~31.0(ppm), 양이온치환용량은 10.5~27.6(cmol/kg)로 분포 되었고, 치환성양이온 중 칼륨은 0.21~0.64(ppm), 칼슘은 1.4~20.2(ppm), 마그네슘은 0.7~2.3(ppm)의 분포를 보였다.

그리고 표 6의 서래봉의 화학분석 결과중 수소이온농도는 4.41~5.54, 유기물함량은 7.20~21.62(%), 유효인산은 9.0~39.0(ppm), 양이온치환용량은 11.8~23.6(cmol/kg)로 각각 분포되어 있음을 알 수 있고, 치환성양이온 중 칼륨은 0.32~1.02(ppm), 칼슘은 1.9~8.8(ppm), 마그네슘

은 0.7~1.9(ppm)의 범위로 분포하고 있음을 확인 할 수 있다. 신선봉과 서래봉 두 지점에 대해 치환성양이온을 제외한 각 화학인자별 분석 값을 비교 분석한 결과 적게는 2.8%에서 크게는 20% 정도의 차이를 보였다. 신선봉에서  $Cs^{137}$ 의 농도와 화학인자별 상관성을 도출한 결과는 수소이온농도, 유효인산 및 치환성양이온과 방사능 농도와는 0.07, 0.13, 0.20의 상관관계를 가지고 있으며, 유기물과 양이온치환용량은 내장사 방향과 백양사 방향에 대해서 각각 분석한 결과는 유기물은 0.93, 0.30을 나타냈고 양이온치환용량은 0.03, 0.82의 상관성을 나타냈다. 서래봉에서는 유효인산, 치환성양이온과 방사능 농도와는 0.16, 0.05의 상관관계를 가지고 있으며 양이온치환용량은 임시대표소 방향과 내장사 방향이 각각 0.87, 0.80을 나타내었다. 이러한 토양중  $Cs^{137}$  농도와 화학인자와의 관계를 그림 6, 그림7 및 그림 8과 그림 9에 나타내었다.

표 4. 내장산 토양  $Cs^{137}$  농도 분석결과

지 점	고도(m)	$Cs^{137}$ 농도(Bq/kg-dry)	비고
신선봉 토양	200	36.43 ± 0.99	신선봉에서 동쪽으로 내장사 방향
	321	45.15 ± 1.23	
	411	24.11 ± 0.68	
	509	34.33 ± 0.95	
	620	85.58 ± 2.28	
	763	90.48 ± 2.43	신선봉 정상
	653	103.10 ± 2.76	신선봉에서 서쪽으로 백양사 방향
	583	59.86 ± 1.62	
	502	69.53 ± 1.86	
	433	55.34 ± 1.50	
356	15.91 ± 4.55		
서래봉 토양	252	18.79 ± 0.53	서래봉에서 동쪽으로 임시대표소 방향
	356	40.60 ± 1.25	
	420	31.83 ± 0.87	
	518	39.60 ± 1.08	
	622	58.94 ± 1.59	서래봉 정상
	500	48.21 ± 1.31	서래봉에서 서쪽으로 내장사 방향
	421	30.67 ± 0.85	
	318	36.88 ± 1.01	
	200	20.54 ± 0.58	

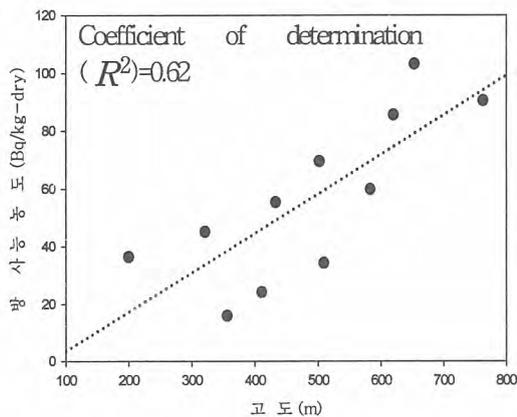


그림 4. 신선봉에서 고도별  $Cs^{137}$  농도

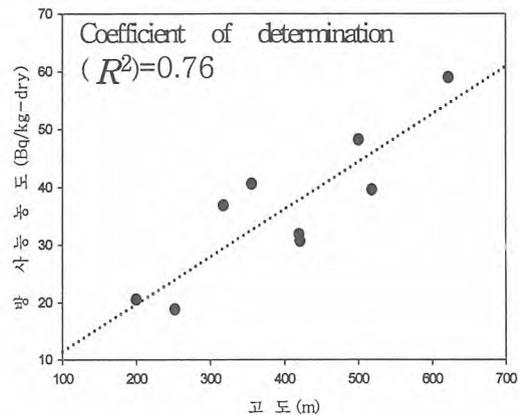


그림 5. 서래봉에서 고도별  $Cs^{137}$  농도

표 5. 내장산 신선봉의 화학분석결과

지점	고도 (m)	$Cs^{137}$ 농도 (Bq/kg-dry)	pH(수소 이온농도)	유기물 (%)	유효인산 (P, ppm)	양이온 치환용량 (cmol/kg)	치환성 양이온		
							K	Ca	Mg
내장사방향	200	36.43 ± 0.99	4.81	8.07	17.0	11.1	0.32	2.6	1.2
	321	45.15 ± 1.23	5.70	13.82	18.0	27.6	0.54	20.2	2.3
	411	24.11 ± 0.68	5.42	8.42	8.0	12.8	0.64	4.6	1.4
	509	34.33 ± 0.95	5.19	9.23	19.0	12.2	0.54	4.3	1.2
	620	85.58 ± 2.28	4.79	20.15	13.0	19.7	0.43	6.4	1.2
정상	763	90.48 ± 2.43	4.72	19.49	13.0	15.0	0.43	2.0	0.5
백양사방향	653	103.10 ± 2.76	4.80	13.92	31.0	16.0	0.21	1.9	0.5
	583	59.86 ± 1.62	4.64	18.12	11.0	15.0	0.38	2.5	0.7
	502	69.53 ± 1.86	5.19	11.98	9.0	13.5	0.32	2.6	0.7
	433	55.34 ± 1.50	5.15	10.72	8.0	14.0	0.43	4.1	1.4
	356	15.91 ± 4.55	4.54	10.01	13.0	10.5	0.32	1.4	0.7

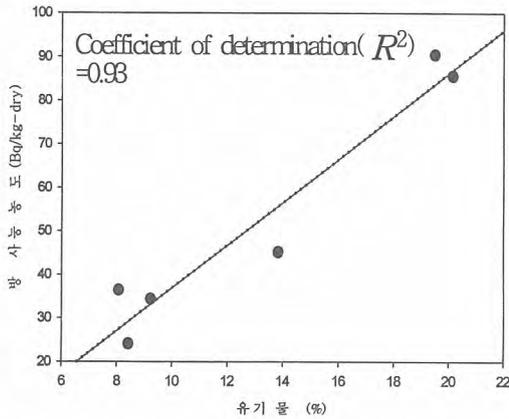


그림 6. 신선봉에서  $Cs^{137}$  농도와 유기물과의 관계

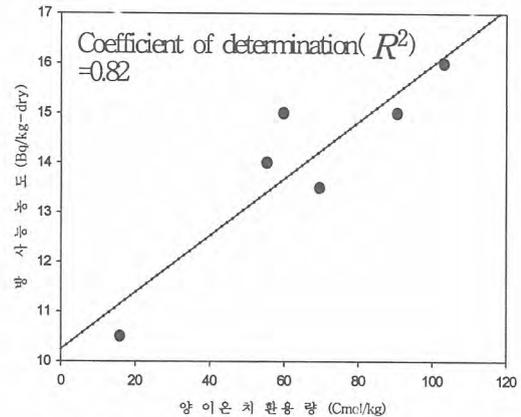


그림 7. 신선봉에서의  $Cs^{137}$  농도와 CEC와의 관계

표 6. 내장산 서래봉의 화학분석결과

지점	고도 (m)	$Cs^{137}$ 농도 (Bq/kg-dry)	pH (수소 이온 농도)	유기물 (%)	유효인산 (P, ppm)	양이온 치환용량 (cmol/kg)	치환성 양이온		
							K	Ca	Mg
임시매표소 방향	252	18.79 ± 0.53	5.24	18.05	39.0	12.2	0.54	4.8	1.4
	356	40.60 ± 1.25	4.78	12.00	16.0	15.3	0.59	4.3	1.2
	420	31.83 ± 0.87	5.21	7.20	23.0	13.5	0.64	4.2	1.0
	518	39.60 ± 1.08	5.10	17.92	15.0	15.0	0.32	2.2	0.8
정상	622	58.94 ± 1.59	4.91	18.39	14.0	23.6	0.80	8.8	1.9
내장사 방향	500	48.21 ± 1.31	5.54	21.27	15.0	17.6	0.54	4.4	1.0
	421	30.67 ± 0.85	5.35	15.45	13.0	15.5	1.02	6.5	1.4
	318	36.88 ± 1.01	4.41	9.62	23.0	20.2	0.54	2.9	1.0
	200	20.54 ± 0.58	4.63	21.62	9.0	11.8	0.38	1.9	0.7

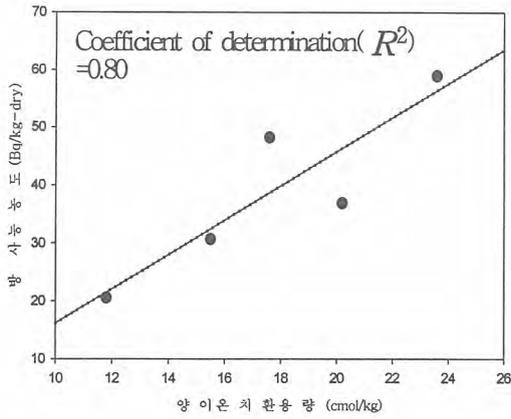


그림 8. 서래봉(임시대표소)에서의  $Cs^{137}$  농도와 CEC와의 관계

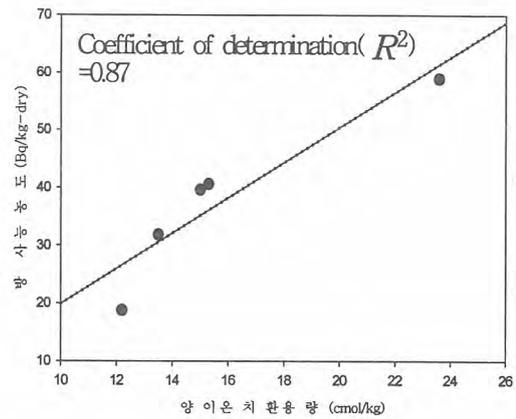


그림 9. 서래봉(내장사)에서의  $Cs^{137}$  농도와 CEC와의 관계

#### 4. 결과 및 결론

##### 가. 결 과

지금까지의 연구에서 일반평지에서의 토양방사능 농도는 전국토  $Cs^{137}$ 의 농도범위인 불검출 ~ 252Bq/kg-dry 범위에 들었다. 그러나 고산지대에서는 고도가 증가함에 따라 방사능 농도도 증가하는 경향을 나타냈으며, 또한 토양의 화학적인 특성인 유기물과 양이온치환용량이 밀접한 관계가 있음을 알 수가 있었다. 그리고 어느 지점에서나 방사능 농도와 화학적인 인자와의 관계가 일정한 것은 아니며 그림 10과 그림 11에서와 같이 그 지역의 지형과 기후 특성에 따라 다르게 나오는 것임을 판단할 수가 있었다.

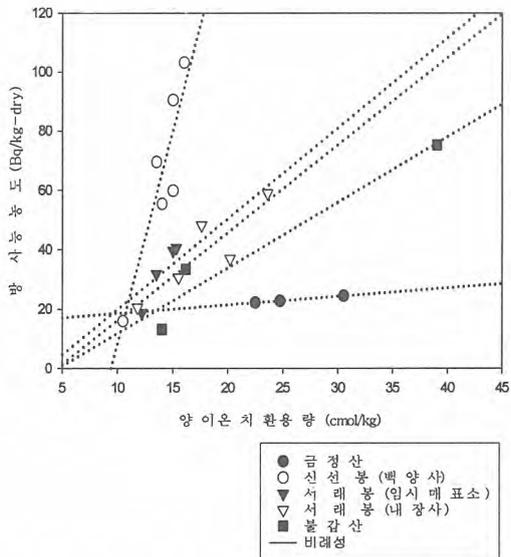


그림 10. 각 지형별  $Cs^{137}$  농도와 CEC와의 관계

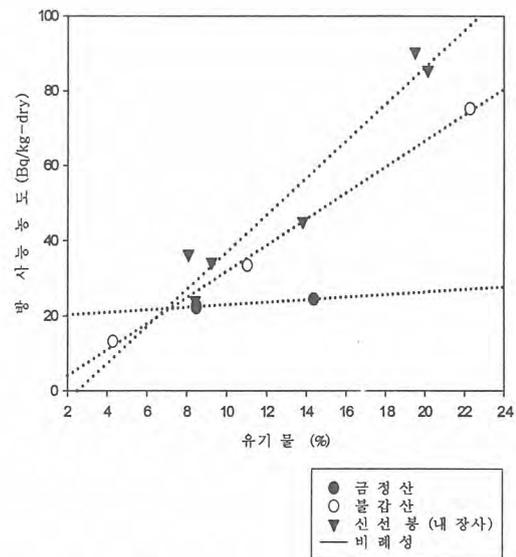


그림 11. 각 지형별  $Cs^{137}$  농도와 유기물과의 관계

## 나. 결론

영광원전이 위치한 주변지역의 토양과 원거리에 위치한 내장산 토양, 고산지대인 금정산 및 불갑산 토양을 채취하여 시료 내의  $Cs^{137}$  농도와 화학적인 특성 분석을 수행하였다.

$Cs^{137}$ 의 농도 분석결과에 의하면 영광 원전 주변지역의 농도는 시료채취 지역에 상관없이 일정한 분포를 보였으며 이는 1992~2002년 한국원자력안전기술원에서 분석한 결과와 유사한 경향을 보였다.

그리고  $Cs^{137}$ 의 분포는 지형적 요인(고도, 강수량등)과 토양의 화학적 요인(양이온치환용량)과 상관성이 큰 것으로 나타났다. 지형적 요인으로는 주로 고도를 들 수 있는데 높은 고도의 산의 경우 대기 중  $Cs^{137}$ 이 토양에 침투되는 기회가 커짐으로 동일한 토질 조건의 평지 토양에 비해 높은  $Cs^{137}$  준위를 나타내었다. 토양의 화학적 요인으로는 양이온치환용량이 주요 인자임이 규명되었다. 양이온치환용량은 침적된  $Cs^{137}$ 을 토양에 고정시키는 능력을 나타내며 같은 지형조건에서 높은 양이온치환용량을 가진 시료가 낮은 양이온치환용량을 가진 토양에 비해  $Cs^{137}$  농도가 높은 값을 보였다

이는 향후 원전이 위치한 지역의 토양에 대해서 정확한  $Cs^{137}$ 의 축적경향을 파악하고 기초자료를 마련하기 위해서는 고도에 대한 특성과 함께 화학적인 거동특성도 같이 병행해서 자료를 축적해야 좀 더 정확한 데이터로 활용을 할 수 있을 것으로 판단된다.

## 참고문헌

1. 고리원전주변의 토양내 Cs-137 농도 - 한국원자력학회(2002)  
(Cs-137 concentration in soil around Kori Nuclear Power Plant)
2. 한국수력원자력주식회사, 원자력방사선 관리연보
3. 한국수력원자력주식회사, 원자력발전소 주변 환경방사선 조사보고서, 1996-2003
4. 원자력발전소 주변토양에 존재하는 휴믹산의 물리·화학적 특성 규명  
- 대한방사선방어학회(2002)
5. 토양 풀빅산의 형광 특성연구 : 토양내 방사성핵종 거동 예측 연구  
- 대한방사선방어학회(2002)
6. 한국원자력안전기술원, 전국환경방사능 조사
7. 원자력발전소 주변 환경에서 방사성물질의 핵종·화학형·경로별 중요도 평가  
- 대한방사선방어학회 (2002)
8. 환경방사능 분석법 연구 - 한국전력공사 기술연구원
9. 환경시료의 화학분석
10. 고산지대 토양 중 방사성핵종의 고농도 축적 특성 - 한국원자력안전기술원(2004)
11. 방사선안전성능 및 환경방사선 감시기술 개발 - 한국원자력연구소 (2002)
12. 고리원전 민간 환경 감시기구 회보
13. 영광원전 민간 환경 감시기구 연보

## A Study on the Natural Uranium Contamination Measuring Technology

### 천연우라늄 오염에 관한 방사선/능 측정기술 연구

Un-Soo Chung, Sang-Bum Hong, Bum-Kyung Seo and Jin-Ho Park

Yong-Woo Cho\*, Song-Won Cho\* and Jung-Min Lee\*

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

\*Korea Radiation Technology Institute, 19 Ku-Sung Dong, Yusung-Ku, Daejeon

정운수, 홍상범, 서범경, 박진호, 조용우\*, 조성원\*, 이정민\*

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지,

\* 한국방사선기술연구소, 대전광역시 유성구 구성동 19번지,

#### Abstract

This study is to verify radiation detection method by using  $\alpha$ -spectroscopy and  $\gamma$ -spectroscopy for concretes and components which will be generated during the decommissioning of the uranium conversion plant. Components and inside walls of the building were contaminated with natural uranium materials. Some parts of the stainless steel pipes and concretes of the walls were sampled and analyzed their alpha and gamma activities respectively. Alpha and gamma activities are well matched each other in the range of high activity region to 0.01 Bq/g and gamma activities are over estimated comparing alpha activities corresponded in below 0.005 Bq/g region for the natural uranium of AUC sample. The  $^{238}\text{U}$  originated from natural products of conversion process could be distinguished by measuring  $^{214}\text{Pb}$  or  $^{214}\text{Bi}$  and  $^{234}\text{Th}$  or  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ . Uranium contaminations mainly are in the wall surface of the plant. Decontamination process of generating wastes which can be reached to background level gamma activities measured by gamma spectroscopy can also be used to conservative assessment data.

**Key words** : uranium conversion plant, natural uranium,  $\alpha$ -spectroscopy,  $\gamma$ -spectroscopy

#### 요약

본 연구는 우라늄변환시설의 해체과정에서 발생하는 콘크리트 및 구성부품에 대한 알파분광과 감마분광에 대한 방사선계측방법의 타당성을 입증하고자 한다. 우라늄변환시설내의 구성부품 및 내부벽면은 천연우라늄 물질로 오염되어있다. 스테인레스 스틸 파이프와 벽면의 콘크리트의 일부에 대하여 시료를 채취하고 알파분석과 감마분석을 수행하였다. 천연우라늄 시료(AUC)의 측정에서 0.01 Bq/g 이상에서는 알파선 측정결과와 감마선 측정결과가 잘 일치하지만, 0.005 Bq/g의 낮은 농도에서는 감마선 측정결과가 상대적으로 높게 평가된다. 변환공정의 천연우라늄인  $^{238}\text{U}$ 은  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  와  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ 을 비교 측정하여 그 농도를 구할 수 있다. 우라늄변환시설의 벽면은

대부분 우라늄으로 오염되어 있다. 우라늄변환시설 해체과정에서 발생하는 배경방사능 준위의 폐기물을 감마분광법을 이용하여 계측하여 보수적인 평가 자료로 활용할 수 있다.

중심단어 : 우라늄변환시설, 천연우라늄, 알파분광, 감마분광

## 1. 서 론

우라늄 변환시설은 연간 100톤의 생산규모로 1982년에 준공하여 당초에는 ADU(Ammonium Diuranate Uranyl Carbonate) 공정으로 시운전하였으나 핵연료의 기술요건을 만족하지 못하여 1988년에는 AUC(Ammonium Uranyl Carbonate)공정을 추가하여 이산화우라늄(UO<sub>2</sub>)분말을 제조하였고, 월성1호기에 공급하였다. 1992년 원자력연구소 방침에 의하여 공정이 운전정지 될 때까지 320톤의 이산화우라늄 분말이 생산·공급되었다. 1992년 말에 운전정지가 결정된 이래 변환시설은 최소한 규모로 시설을 유지하여 왔으나, 시설의 노후화로 인하여 주변이 오염될 염려가 있다는 판단으로 원자력연구소는 동 시설이 위치한 건물의 재이용을 위하여 동 시설을 해체하기로 결정하였다.

우라늄변환시설의 해체과정에서 발생하는 대부분의 폐기물은 그 오염도가 매우 낮다. 이러한 폐기물을 처리하기 위하여 대상폐기물에 대한 방사능 농도의 정확한 측정과 평가가 필요하지만 모든 시료에 대하여 화학적 분리를 수행하는데 어려움이 많아 비교적 취급방법이 용이한 감마스펙트럼으로 분석한 후 농도가 높거나 의심스러운 시료 및 낮은 농도의 대표시료에 대해서만 화학분리를 수행한 후 비교·측정한다.

우라늄변환시설과 같이 우라늄만을 취급하는 시설에서는 정련과정을 거친 우라늄을 사용하기 때문에 오염도를 측정하기 위해서 표준선원을 제작하고 측정의 가능성과 결과의 타당성 그리고 측정용기와 측정기에 따른 측정범위와 최소검출방사능(MDA)를 파악하고 화학분석과 기기분석의 장단점 및 시료의 량을 검토하고 변환시설 내에 각종 공정에 사용된 철재의 제염 후 방사능 측정법의 타당성을 파악하여 오염제거에 따른 방사능 농도를 측정하였다. 측정시료에 대해서는 그 오염도를 측정하고, 제염과정을 통해서 시료오염의 기초자료와 오염방법에 따른 제염율을 제시하고 대표시료에 대한 알파분석과 감마분석을 통해 시료의 해석결과를 비교·검토하여 감마선 측정의 장단점 및 측정조건을 제시하였다.

우라늄변환시설은 해체 후 연구실 및 일반실험실로 사용하기 위하여 시설내의 콘크리트 벽과 바닥에 대한 오염도를 분석하였다. 시설내의 벽과 바닥에 대해서 감마선과 알파선을 측정함으로써 위에서 언급한 감마선 측정방법의 타당성과 신뢰도를 파악하여 제염평가 및 폐기물관리의 기본자료로 활용하고자 한다.

## 2. 본 론

변환시설과 같이 우라늄을 취급하는 시설에서는 정련과정을 거친 우라늄을 사용하였기 때문에 평형상태에 도달하기 위해서는 수십억년이 소요될 뿐만 아니라, 오염량을 측정하기 위해서는 미량의 우라늄을 측정하고 분석하여야 한다. 이와 같은 목적을 위하여 농도를 알 수 있는 시료를 이용하여 표준선원을 제작하고, 측정의 가능성과 결과의 타당성, 그리고 측정용기와 측정기에 따른 측정범위와 최소검출방사능(MDA)를 파악하였다.

일반적으로 감마선에 의한 우라늄의 분석에 있어서는 U-235에서 방출되는 감마선을 직접 측정하여 U-235의 방사능 농도와 함유량을 파악할 수 있으며, U-238은 영구평형에 도달한 경우에는 Pb-214와 Bi-214에서 방출되는 감마선을 이용할 수 있다. 그러나 평형상태가 아닌 경우에 대한

우라늄의 방사선 농도측정은 어려움이 많다. 평형상태에 도달하지 못한 우라늄의 자연방사능 (Background)준위나 변환시설의 폐기물과 같이 낮은 준위의 방사능 측정은 핵사찰 등의 일부에서만 사용되고 있으며, 일반적으로 화학적 분리를 통한  $\alpha$ -spectrometry 나 Activation(중성자 또는 가속기) Analysis 방법을 이용하고 있다[1].

### 2-1. 측정방법

본 연구에 적용된 분석방법에 대한 특징을 살펴보면 다음과 같다.

$\gamma$ -spectrometry 에 의한 방사능 분석방법은 전반적으로 잘 알려져 있으며, 짧은 시간 내에 비교적 저렴한 가격으로 분석을 수행할 수 있다. U-238의 측정시에는 방사평형의 도달 유무에 따라 측정방법이 달라진다. 영구평형에 도달한 경우라면 감마선 방출율이 큰 Pb-214나 Bi-214에서 방출되는 감마선을 측정하여 농도를 측정하지만 영구평형에 도달하지 못한 경우에는 수개월 내에 평형상태를 이루는 Th-234이나 Pa-234m의 감마선을 측정하여 우라늄의 농도를 구할 수 있다. 우라늄의 농도가 낮은 시료를 측정하는 경우에는 토륨이나 칼륨과 같이 주위환경 속에 많이 함유된 핵종에서 방출되는 감마선이나 X-선에 의한 방해로 인하여 측정결과에 많은 오차가 수반된다. 우라늄과 같이 붕괴가 계열을 이루고 있는 경우에는 시료에 존재하는 모든 감마선 방출체에 대한 측정이 가능하므로 시료의 이력을 판단하는 데 도움을 줄 수 있으며, 여러 가지 핵종의 측정치와 비교함으로써 측정의 오류를 판단할 수도 있다.

화학적 분리를 통한  $\alpha$ -spectrometry 방법은 매우 낮은 농도의 알파선 방출핵종을 측정할 수 있는 반면에 많은 시간과 비용이 소요되며, 원소의 종류(Pu, Am, Th 등)에 따라 화학적 분리방법이 상이하므로 특정된 원소의 측정만이 가능하다. 화학적 분리를 수행하는 과정에 일반적으로 강한 산을 사용하게 되며, 인체에 유해한 가스가 방출될 수 있다. 따라서 분석을 수행하기 위해서는 충분한 안전장치를 구비하여야 한다. 또한 시료를 직접 측정하지 않고 시료를 용해시켜 특정핵종을 분리하는 과정을 거치게 되므로 전과정에 대한 회수율의 파악이 필요하다. 우라늄의 측정에 있어서는 불순물이나 동일한 붕괴계열의 다른 핵종에서 방출되는 알파선의 방해로 인해 농도측정이 어려워진다. 또한 불순물이 많이 함유되어 있는 경우에는 시료의 두께가 두꺼워지기 때문에 발생하는 자체흡수에 의해 정확한 농도를 구할 수가 없다.

ICP mass 분석법은 질량분석법으로 매우 낮은 농도의 우라늄 측정에 용이하므로 시료량의 확보가 어려운 경우에는 매우 유용한 방법이지만, 원자량의 차이가 적은 핵종을 구분하기 위해서는 고도의 전문적인 지식이 요구된다. 특히 원자량의 차이가 적은 U-238과 U-235의 구분, U-235와 Th-232의 구분 등이 어려우며, 화합물의 형태에 따라 차이가 발생된다. 변환시설의 폐기물과 같은 자연 우라늄의 분석에 있어서는 U-238의 분석에 비해 함유량이 적은 U-235와 U-234의 분석에 어려움이 많다. 일반적으로 우라늄의 분석에 있어서는 U-238을 측정하게 되며, 특수한 경우에 U-234나 U-235의 양을 동시에 측정하게 된다.

### 2-2. 우라늄농도의 측정 및 표준시료의 제작

우라늄 광산이나 자연시료와 같이 U-238이 영구평형에 도달한 경우에는 Pb-214와 Bi-214에서 방출되는 감마선을 이용하여 U-238의 농도를 측정할 수 있다. U-238의 붕괴계열을 살펴보면 U-234, Th-230, Ra-226 그리고 Pb-210은 반감기가 매우 길기 때문에 원소를 분리시킨 이후에는 평형상태에 도달하기 까지 100만년 이상이 요구된다. 우라늄 광산이나 자연시료는 영구평형 상태를 유지하고 있으므로 Pb-214나 Bi-214를 측정하고 다음 식1에 의해 U-238의 양을 계산할 수 있다.

어미핵종의 반감기  $T_a$ 가 딸핵종의 반감기  $T_b$ 에 비해 충분히 길고, 핵종을 분리한 후 충분한 시간  $t$ 가 경과한 이후에

$$Nb = \frac{\lambda a}{\lambda b - \lambda a} Na \exp(-\lambda a * t) \text{ 로 부터}$$

$$\lambda a * Na = \lambda b * Nb \text{ 또는 } \frac{Na}{Nb} = \frac{Ta}{Tb} \dots \dots \dots (\text{식 1})$$

를 얻게 된다.

정련한 후 수 백년 동안은 Pb-214나 Bi-214의 핵종에서 방출되는 감마선은 강도가 매우 낮으므로 측정이 불가능하다. 따라서 변환시설과 같이 평형상태에 도달하지 않은 시료의 오염도를 측정하기 위해서는 새로운 방법의 개발이 필요하다. 새로운 방법의 개발을 위해 변환시설에서 사용한 AUC (Ammonium Uranyl Carbonate)를 이용하여 v-spectrum을 측정하고, spectrum을 분석하여 오염도 측정에 사용될 수 있는 핵종과 측정방법을 확립시키는 방법으로 선택하였다.

그림 1에 AUC 시료의 감마선 스펙트럼을 보여주고 있다. 스펙트럼에서 U-235와 Pa-234m의 피크들이 명확히 나타나며, Th-234, Pb-214 그리고 Bi-214의 피크가 약하게 나타남을 볼 수 있다. 스펙트럼에 나타난 Pb-212와 Tl-208 피크는 주위의 환경이나 시료 중에 함유된 불순물에서 방출된 것으로 보이며, Pb-214나 Bi-214의 피크는 주위의 환경과 시료 내에 존재하는 미량의 핵종에서 방출된 것으로 보인다. U-238의 붕괴계열과 그림 1의 스펙트럼을 통하여 Th-234와 Pa-234m으로 U-238의 농도를 측정할 수 있음을 알 수 있다. Th-234와 Pa-234m은 반감기가 25일 미만으로 1년 이내에 U-238과 평형상태를 이루어 (식 1)로부터 U-238의 농도를 계산할 수 있다.

스펙트럼의 측정에 사용된 AUC는 농축을 수행하지 않았기 때문에 자연상태의 우라늄과 동일하게 U-235의 함유량이 U-238의 0.7%에 불과하지만 스펙트럼에서는 U-235에서 방출되는 감마선의 강도가 Pa-234m에서 방출되는 감마선보다 매우 높게 나타나고 있다. 이는 핵종이 붕괴할 때 방출되는 감마선의 방출분율에 기인한 것이다. 또한 U-235의 딸핵종의 피크가 관측되지 않는 것은 U-235의 함유량이 적을 뿐만 아니라 U-235의 붕괴계열에서 알 수 있는 바와 같이 Pa-231의 반감기가 매우 길기 때문에 평형상태에 도달하지 못하였기 때문이다.

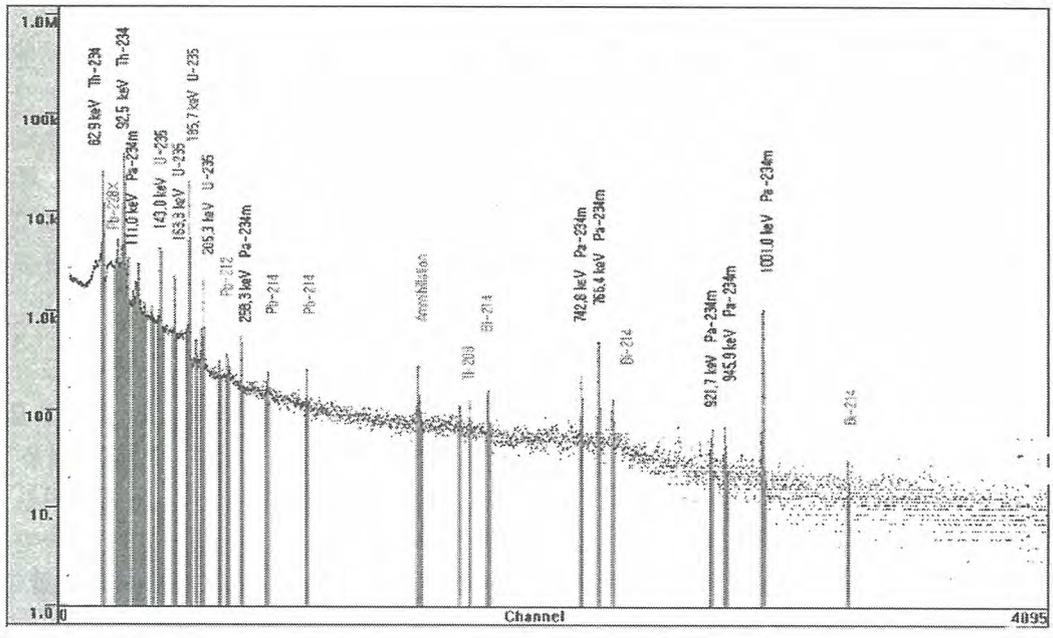


그림 1. AUC의 감마선 스펙트럼 분포.

변환시설의 우라늄 오염도를 측정하는 데 이용될 수 있는 피크는 Th-234의 62.9 keV와 92.5 keV, U-235의 185.7 keV, Pa-234m의 766.4 keV와 1001.0 keV 뿐이다. 스펙트럼에 나타난 Bi-212나 Tl-208의 피크는 10cm이상의 납차폐에도 불구하고 나타나는 백그라운드들이다. Th-232의 딸핵종인 이들은 감마선 측정에 항상 방해피크로 작용한다.

일반적으로 사용하고 있는 Standard Coaxial Germanium Detector는 100 keV로 부터 3000 keV까지의 영역에서 주로 사용하며, 100 keV 이하의 낮은 에너지에서 검출효율이 급격히 낮아진다. 100 keV 이하의 낮은 에너지를 측정하기 위해서는 특별히 제작된 LEPD(Low Energy Photon Detector)를 사용하여야 한다.

표준시료를 제조하여 앞에서 조사된 자료를 이용하여 우라늄의 농도를 알고 있는 시료를 측정함으로써 측정범위와 측정결과의 타당성을 파악하고자 하였다. 농도를 알고 있는 시료는 측정방법의 개발에 사용된 AUC를 사용하여 제조하였고, 그 특성은 AUC 558.28g 속에 우라늄이 238.03g 함유되어 있으며 물에 매우 잘 용해된다.

AUC 1g 내에 함유된 U-238과 U-235의 질량을 이용하여 원자의 수를 계산하여 대입시킴으로써 AUC 1g 내 핵종에 따른 방사능 농도를 계산할 수 있다. 계산된 비방사능과 AUC 1g에서의 방사능 농도를 표 1에서 보여주고 있다.

표 1. 우라늄의 방사능 특징 (단, U-234와 U-238은 영구평형에 있다.)

핵종	반감기 (Year)	비방사능 (Bq/g)	AUC 1g내의 방사능 (Bq)	비고
U-238	4.468E9	1.245E4	5.269E3	
U-234	2.455E5	2.304E8	5.269E3	
U-235	7.038E8	8.002E4	2.426E2	

AUC에 함유된 우라늄의 방사능 농도를 알고 있으므로 일정량을 채취하여 용액을 제조함으로써 농도가 파악된 시료를 얻을 수 있다. 또한 용액 중에서 일부를 취해 희석시키는 방법을 이용하여 매우 낮은 농도의 시료를 제작할 수 있다. 변환시설의 오염도를 0.04 Bq/g까지 정량하여야 함으로 0.004 Bq/g까지의 측정가능성을 파악하여야 한다. 따라서 시료는 다음과 같이 만들었다.

- 1) AUC 화합물 1.2 g을 취하여 6 M 질산으로 녹인 후 용액을 1.2 L로 만들었다. 질산을 이용한 것은 AUC가 물보다 질산에서 용이하게 용해되기 때문이다. 이와 같이 제작한 시료의 U-238 농도는 5.269 Bq/cc가 된다.
- 2) 농도를 1/10로 줄이기 위해 1)용액중 120 mL를 취하여 1.2 L로 희석시킨다.
- 3) 2)의 과정을 반복함으로써 시료내의 U-238 농도를 계속하여 줄일 수 있다. 제조된 시료는 5.269 Bq/cc로부터 0.0005269 Bq/cc까지 각기 다른 농도의 5가지 시료를 조제하였다,
- 4) 제작된 시료를 각각 1 L씩 취해서 1L의 marinelli 비이커에 채워서 측정을 수행한다.

표준시료의 제작이 문헌에 의존하여 제작하였으므로 측정에 의한 농도의 확인이 필요하다. 그러나 모두 동일한 방법에 의한 것이므로 특정한 시료 한가지만 선정하여 측정을 수행하면 된다. 이러한 목적을 위해 0.5269 Bq/cc인 시료를 선정하여 감마와 알파분광, 그리고 ICP mass로 측정하였으며, 측정결과를 표 2에서 보여주고 있다.

표 2. 표준시료의 측정결과

[단위 : Bq/cc]

	Calculation	감마분광	알파분광	ICP mass	비교
U-238	0.5269	0.501	0.504	0.564	
U-234	0.5269		0.491		
U-235	0.0243	0.033	0.021		

모든 측정방법의 측정결과는 계산에 의한 방법과 10%이내의 편차 범위 내에서 일치하고 있다. 여기서 ICP mass에 의한 측정결과는 45.35 ppm으로 측정된 질량을 방사선 농도로 환산한 것이다. 측정결과에 의하면 표준시료의 제작과 농도의 계산방법은 정확하게 이루어졌음을 확인할 수 있으며, 감마분광에서 U-235의 농도를 과대평가하는 원인은 U-235의 가장 강한 피크인 135 keV 피크에 Ra-226의 피크가 겹치고, 또한 U-235의 143.8 keV 피크는 감마선의 방출강도가 적고 background가 높기 때문으로 판단된다.

### 2-3. 표준시료에 의한 우라늄 농도의 측정

우라늄 농도의 측정에 적합한 측정기로서는 앞의 U-238 측정원리에서 언급한 바와 같이 Reverse-Electrode (REGE)가 Standard Coaxial Germanium Detector에 비하여 우수하지만, 모든 시료는 Standard Coaxial Germanium Detector로 측정하고 REGE는 한정된 시료에 대하여 확인 및 검토용으로 사용하였다.

예비측정과 분석결과에 의하면 Pa-234m 피크를 이용한 모든 해석결과에서 방사능 농도를 과대평가하는 경향을 보였으며, 여러 가지 원인을 분석한 결과 Library에서 사용되고 있는 방출율의 차이에서 발생된 것임을 확인할 수 있었다. 우라늄분석에 사용되는 핵종의 감마선 방출분율을 문헌에 따라 비교하여 보여주고 있다. 현재 사용중인 em1300.lib[8]에서 Pa-234m의 1001 keV의 방출분율이 최근에 입수한 Master.lib[3]에 비해 약 20% 정도 낮게 되어 있다. 반면에 Table of Isotope[4]에는 감마선들의 상대강도만이 표시되어 있어서 정확한 방출분율을 파악할 수 없었다. 또한 Th-234의 92.38과 92.80 keV의 피크는 스펙트럼 상에서 분리가 되지 않으므로 em1300.lib에서와 같이 하나의 피크로 간주하여도 무방하다. 대부분의 Library들을 생산할 때 사용되는 참고자료들이 거의 동일하기 때문에 가능한 최근의 자료를 포함한 library를 사용하였다.

표준시료 농도의 계산값과 측정값의 관계를 그림 2에서 보여주고 있다. 사용된 측정기는 Standard Coaxial Germanium Detector (Detector-#9)와 REGE (Detector-#4)이며, 우라늄 농도는 Th-234와 Pa-234m에서 방출되는 감마선을 이용하였다. 여기서 Th-234D는 Th-234의 분리되지 않는 92.38과 92.80 keV를 이용한 것이다.

그림 2에서 0.1 Bq/g 이상의 농도를 측정하는 경우에는 오차도 적고 측정기의 종류에 따른 효과도 적은 반면에 0.01 Bq/g 이하의 농도를 측정하는 경우에는 측정기의 종류에 따라 정확도가 낮아지고 오차도 매우 커지게 된다. 그림 3에 측정기와 핵종에서 방출되는 감마선의 에너지에 따른 최소검출방사능(MDA)를 보여주고 있다. Standard Coaxial Germanium Detector의 MDA가 대부분 0.01 Bq/g 정도인 반면에 REGE Detector는 0.005 Bq/g 정도이다.

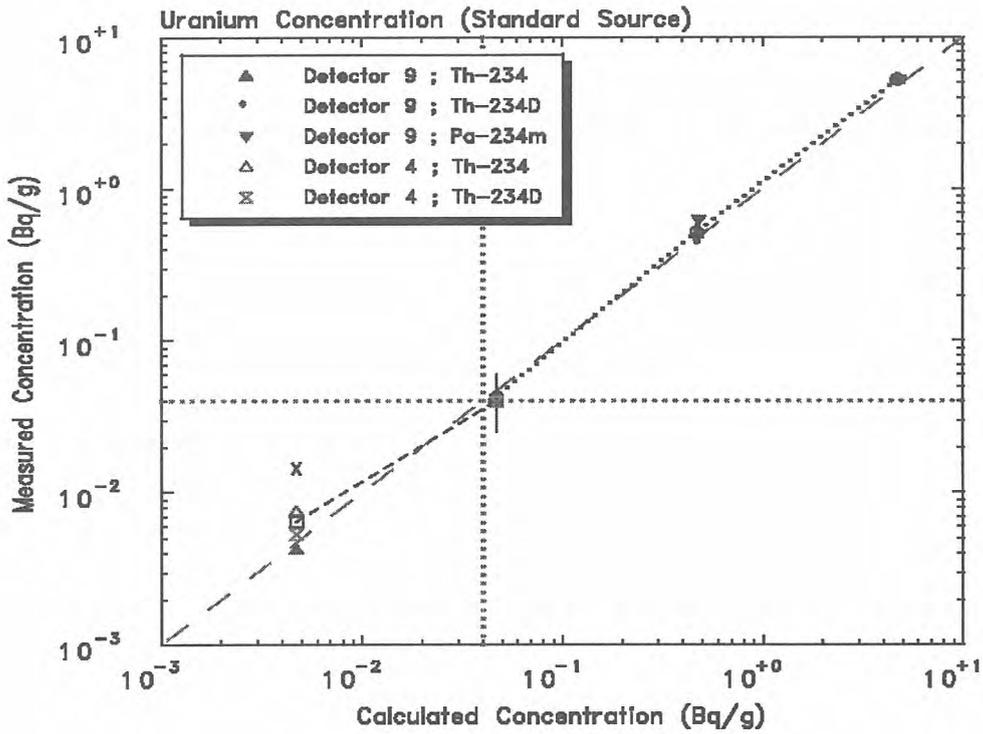


그림 2. 계산결과와 측정결과에 의한 우라늄 함유량 비교

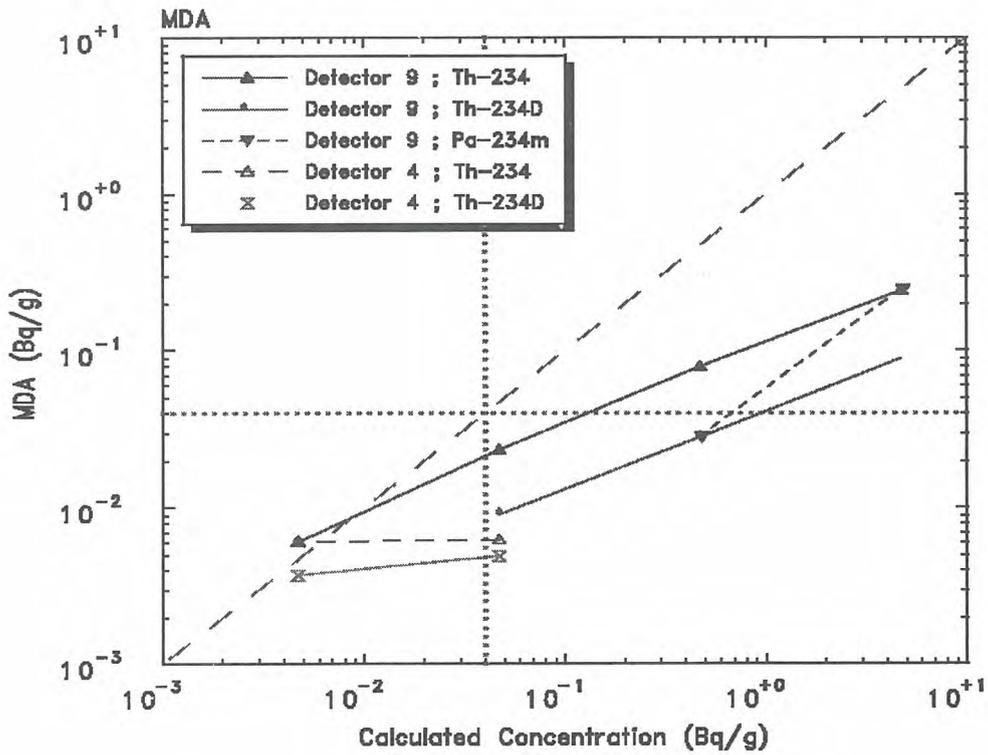


그림 3. 측정기와 핵종에 따른 우라늄 함유량의 MDA.

## 2-4변환시설 콘크리트의 우라늄 측정

우라늄변환시설 내의 벽과 바닥에 대한 방사선/능 측정을 통하여 앞에서 언급한 표준시료 측정에서 언급한 감마선 측정방법에 의한 우라늄 측정방법의 타당성과 신뢰도를 파악하기 위하여 측정대상 시료를 선택하여 감마와 알파분석에 의한 해석결과를 비교하여 측정하였다.

표 3. 변환시설 콘크리트의 방사능 측정결과

분 류	핵 종	시설내 벽면 (표면)	시설내 벽면 (10mm 깊이)	시설내 벽면 (50mm 깊이)	건물 외벽 (표면)	건물 외벽 (10mm 깊이)	
감마 분석	U-238 (일부평형)	Th-234	1.6000±0.1787	0.0482±0.0143	0.0354±0.0163	0.0194±0.0154	0.0207±0.0104
		Th234D	1.8020±0.1302	0.0592±0.0086	0.0291±0.0085	0.0355±0.0095	0.0608±0.0063
		Pa-233m	2.3140±0.7067	-	-	-	-
		평균	1.9053±0.2468	0.0537±0.0083	0.0323±0.0092	0.0275±0.0090	0.0408±0.0061
	U-238 (영구평형)	Pb-214	0.0177±0.0102	0.0204±0.0028	0.0230±0.0029	0.0243±0.0029	0.0192±0.0016
		Bi-214	-	0.0163±0.0042	0.0205±0.0050	0.0215±0.0041	0.0180±0.0031
		평균	0.0177±0.0102	0.0184±0.0025	0.0218±0.0029	0.0229±0.0025	0.0186±0.0017
	U-235	측정	0.0996±0.0173	0.0053±0.0010	0.0036±0.0011	0.0047±0.0011	0.0037±0.0005
		보정	0.0996±0.0173	0.0021±0.0004	0.0015±0.0004	0.0019±0.0004	0.0015±0.0002
	농축도 (%)		0.8118±0.1779	0.6096±0.1534	0.6992±0.2945	1.0569±0.4305	0.5611±0.1156
	Th-232 (영구평형)	Tl-208	0.0135±0.0126	0.0209±0.0034	0.0297±0.0044	0.0233±0.0050	0.0345±0.0040
		Pb-212	0.0118±0.0076	0.0298±0.0016	0.0404±0.0026	0.0320±0.0030	0.0438±0.0020
		Bi-212	-	0.0276±0.0097	0.0395±0.0101	0.0351±0.0096	0.0400±0.0066
		Ac-228	-	0.0236±0.0055	0.0313±0.0070	0.0277±0.0064	0.0245±0.0060
		평균	0.0127±0.0074	0.0255±0.0029	0.0352±0.0033	0.0295±0.0032	0.0390±0.0025
		Background	K-40	0.4870±0.1194	0.8530±0.0327	0.8960±0.0336	0.8450±0.0507
	알파 분석	U-238	1.9732±0.2144	0.0677±0.0033	0.0304±0.0017	0.0251±0.0012	0.0263±0.0022
		U-234	1.9028±0.2068	0.0668±0.0032	0.0295±0.0017	0.0246±0.0011	0.0261±0.0022
		U-235	0.0813±0.0102	0.0030±0.0004	0.0015±0.0003	0.0010±0.0002	0.0013±0.0004
		농축도 (%)		0.6395±0.1061	0.6908±0.0955	0.7553±0.1352	0.6353±0.1092

우라늄 변환시설의 콘크리트 시료는 다음과 같은 방법에 의하여 시료를 채취하였다.

우선 변환시설 1층과 2층의 내부 벽 2군데를 선택하여 시료 1층은 두껍게 피막 된 에폭시 수지를 제거하고 그라인더로 5mm 이하의 두께로 벽면을 갈아 1차 시료를 채취한 후 먼지를 완전히 제거하였다. 먼지가 완전 제거된 벽면을 1cm 정도의 깊이로 취하여 2차 시료로 하였고 마찬가지로 먼지를 완전히 제거한 후 2cm이상의 깊이에서 시료를 채취하여 3차 시료로 하였다. 2층의 내부 벽은 에폭시 수지를 제거하지 않고 직접 그라인더로 5mm 두께로 취하여 1차 시료로 하였고 2,3차 시료는 1층 시료 채취 방법과 마찬가지로 시료를 채취하였다. 비교시료(Reference sample)로 변환시설 건물 외부 벽을 선택하여 내부 시료 2차와 3차 시료채취와 같은 방법으로 1cm와 2cm 이상을 채취하여 blank시료 1과 blank시료 2로 하였고, 채취한 시료는 잘게 분쇄하여 감마선 측정

용 용기에 충전하였다.

알파분석을 위하여 TBP용매 추출법으로 우라늄을 분리하고, 분리된 시료를 황산과 암모니아를 이용하여 pH를 약산성으로 맞춘 후 전기전착장치를 이용하여 스테인레스 전착판에 750mA로 전착한 후 가스토키를 이용하여 우라늄을 고정한 후 전착된 전착판을  $10^{-2}$ Torr이하의 진공에서  $\alpha$ -Spectrometer로 1000분이상 계측하였다. 시료의 양과 자기흡수, 시료자체에 함유된 우라늄을 고려하여 U-8용기에 100g 정도를 충전하여 24시간 측정하였다.

감마선분석에서는 전자재에 함유된 우라늄의 분석에 이용될 수 있는 Pb-214와 Bi-214, U-238과 단시간에 평형상태를 이루는 Th-234와 Pa-234m, 그리고 U-235의 3개의 그룹으로 나누어 계산하였으며, 전자재에 함유된 토륨을 별도로 취급하였다. 방사선 농도는 각 그룹별로 동일하여야 하지만 측정의 불확실성에 의해 많은 편차를 가지고 있으므로 전반적인 판단은 각 그룹의 평균값을 이용하였다. Th-234나 Pa-234m의 농도에서 Pb-214나 Bi-214의 농도를 제외시킴으로서 우라늄의 오염을 구할 수 있으며, U-235와 U-238의 농도를 이용하여 우라늄의 농축도를 판단하였다.

### 2-5 변환시설 내 철제시료의 측정

변환시설 내의 각종 공정에 사용된 철제 배관의 제염 후 방사능 측정법의 타당성을 파악하기 위하여 일부 시료를 채취하여 오염제거에 따른 방사능을 분석하였다. 분석방법은 아래의 그림5와 같다.

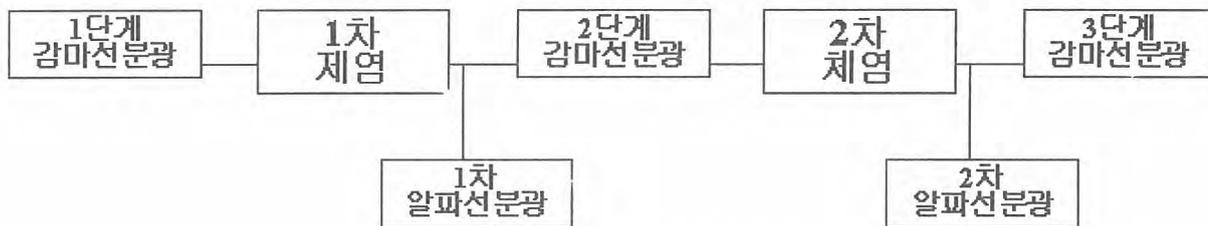


그림 4. 우라늄변환시설 철제시료의 분석방법.

측정대상 시료는 변환시설 내부 1층과 2층의 공정인 용해, 여과, 용매추출, ADU, AUC, 폐기물의 6개 공정에 대한 각 공정별로 오염이 많을 것으로 추정되는 2~3개 정도의 지점을 선정하여 18개의 시료를 채취하였다.

알파선분광을 위한 우라늄 순수분리 절차는 콘크리트 내의 우라늄분리법에 적용된 TBP 용매 추출법을 적용하였다. 우라늄이 순수 분리된 시료를 전기 전착장치를 이용하여 스테인레스 전착판에 전착하였다. 전착판을  $\alpha$ -Spectrometer로  $10^{-2}$ Torr이하의 진공상태에서 10000초 이상 계측하였다.

감마분석의 경우 Standard Coaxial Germanium Detector를 사용하여 측정방법의 문제점을 파악하고 필요한 경우에 REGE Detector를 사용하여 문제점을 확인하고 해결방법의 타당성을 검증하는 경우에 한해 제한적으로 사용하기로 하였다.

감마분석과 알파분석의 측정값의 비교를 그림 6에서 보여주고 있다. 알파분석에 사용된 방사선의 농도는 용액으로 추출된 양으로 가정하였으므로 이와 비교하기 위하여 사용된 감마선의 농도는 전 단계의 측정값과 현 단계의 측정값과의 차이를 사용하였다. 그림에서 알 수 있는 것은 대부분의 시료가 감마분석과 알파분석에서 큰 차이를 보이고 있지 않지만 일부는 알파분석에 의한

측정값이 높게 나타나고, 반면에 일부는 감마분석에 의한 측정값이 높게 나타났다.

그림 6의 1단계(1step)의 알파 농도는 알파의 1차 측정결과이며, 감마농도는 1차 측정결과와 2차 측정결과와의 차이를 비교하고 있다. 1단계의 알파와 감마선에 의한 농도가 대체

적으로 일치하고 있지만 콘크리트의 측정결과에 비하여 편차가 크게 나타나는 시료들이 있었다. 콘크리트의 측정에서는 시료 내에 오염물질이 균일하게 분포되어 있으므로 편차가 적은 반면에 철재시료에서는 오염물질의 분포가 균일하지 않으므로 오염물질의 위치에 따른 편차가 발생할 수 있다. 시료에서 오염된 부위는 대부분 파이프나 탱크의 내부이며 모든 위치에서 균일하지 못하기 때문에 측정용기에 충전하는 경우에 따라 오염부위와 측정기 사이의 거리가 변화될 수 있다. 그러나 용출된 용액을 사용하는 경우에는 용액내의 오염농도는 모두 균일하다.

2단계(2 step)의 알파농도는 2차 측정결과이며, 감마 농도 1단계의 비교와 동일하게 2단계의 측정값과 3단계의 측정값의 차이를 사용하였다. 모든 시료의 감마분석 측정값이 알파분석보다 높게 나타남을 볼 수 있다. 감마분석에 의한 측정값이 높게 나타나는 이유는 앞에서 언급한 우라늄 오염의 위치 또는 주위방사선(background, X-ray)의 방해효과에 의한 것으로 볼 수 있다.

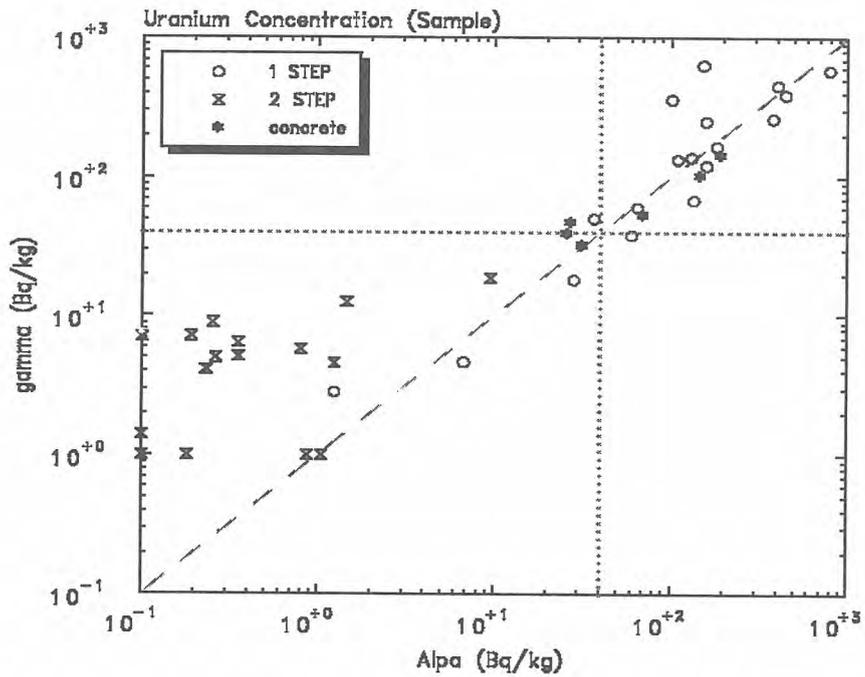


그림 5. 제염단계에 따른 알파분석과 감마분석에 의한 우라늄농도 비료

### 3. 결론

본 연구는 우라늄변환시설의 해체과정에서 발생되는 농도가 낮은 방사성폐기물 또는 제염 후 농도가 낮아진 방사성폐기물에 대해서 정확한 측정과 평가를 위하여 화학적 분리과정을 거쳐야 하는 알파분광과 취급방법이 용이한 감마분광에 대해서 비교측정 후 그 타당성을 입증하고자 한다. 일반적인 우라늄 농도의 측정방법에 대해 장단점을 검토하고, 자연우라늄 시료를 감마분광으로 측정함으로써 측정방법의 타당성, 측정기와 측정조건, 측정범위 등을 파악하였으며, 변환시설 내의 콘크리트와 철재 시료에 대한 오염도를 파악하였다.

자연우라늄 표준시료(AUC)의 측정에서는 U-238과 U-235 그리고 그들의 딸핵종 중에서 감마분광을 이용하여 우라늄 농도에 사용될 수 있는 핵종의 특성을 파악하고, 예비측정을 수행하여 측정조건을 결정하였다. 감마선 방출 핵종으로 Pa-234m, Th-234, U-235 등이 있지만 방출강도가 0.01 gamma/decay 이하로 매우 낮으며, 대부분의 경우에 감마선의 에너지가 매우 낮다. 0.5 Bq/g의 시료에 대한 감마선의 측정결과가 알파나 ICP에 의한 측정결과와 일치하며, 0.01 Bq/g 이상에서는 계산에 의한 농도와 비례성이 좋지만 0.005 Bq/g 이하의 낮은 농도에서는 감마선에 의한 측정결과가 과대평가된다. 측정결과로 측정기는 100 KeV 이하에서도 검출효율과 에너지 분해능이 우수한 LEPD(Low Energy Photon Detector)를 사용하며, 10cm 이상의 납 차폐가 요구된다. 차폐를 보완하기 위해서는 2cm 이상의 구리 차폐를 사용하는 것이 바람직하다는 것과 감마붕괴의 방출강도가 문헌에 따라 많은 차이를 보이고 있으므로 가능한 최신자료(1995년 이후)를 사용하여야 한다. 0.005 Bq/g 이하의 MDA를 달성하기 위해서는 시료의 양이 1kg 이상이어야 하고, 자체흡수를 고려하여 시료의 두께는 1.5 cm 이하여야 한다.

변환시설 콘크리트 벽면의 오염농도 확인 및 감마선 분광에 의한 우라늄 측정의 가능성을 파악하기 위하여 내부와 외부벽면에 대해 각각 2 곳을 선정하고 깊이에 따라 3가지 시료를 채취하였으며, 측정용기로 U-8 용기를 사용하였다. 스펙트럼의 분석은 영구평형에 도달하는 데 오랜 시간이 소요되는 Pb-214와 Bi-214, 짧은 시간 내에 평형에 도달하는 Th-234와 Pa-234m에 대하여 수행함으로써 오염에 의한 농도와 콘크리트 자체 내에 함유된 U-238의 농도를 구분할 수 있다. 감마분석에 의한 우라늄 분석결과에서 감마 방출핵종의 분포가 균일하므로 매우 낮은 농도를 제외하면 알파분석의 결과와 큰 차이가 없지만, 감마분석에서는 오차가 크기 때문에 측정값의 편차가 비교적 크다. 또한 오염은 벽면의 외부나 페인트에서만 관측되었다.

변환시설 내의 현장시료에 대한 우라늄 측정은 현장시료 측정 시 발생되는 문제점 파악, 측정결과의 신뢰성 검증, 제염효과의 확인 그리고 시설 내의 초기 오염도에 대한 자료생산 등을 목적으로 변환과정별로 3~4개(총 18개)의 시료를 채취하여, 오염제거를 수행하면서 감마선과 알파선으로 방사능을 측정하였다. 감마와 알파선에 의한 측정결과가 큰 편차를 갖고 있지만 전반적으로 일치하는 것으로 볼 수 있었고, 또한 농도가 낮은 경우에는 감마선의 측정결과가 과대평가하는 경향이 있다. 또한 본 실험에 사용된 제염방법이 1회의 처리만으로 금속표면에 부착된 오염물을 완전히 제거시키기에는 불충분하며, 3~4회의 제염을 거친 후에 모든 시료의 방사능 농도가 0.01 Bq/g 이하로 낮아진다. 방사선 농도의 해석에 있어서 시료의 자체흡수에 대한 보정은 반드시 수행하여야 한다. 보정을 수행하지 않는 경우에 50% 정도로 낮게 평가할 수도 있으며, 농도가 낮은 경우에 핵종과 감마선의 에너지 따라 편차가 크게 나타나므로 오염여부를 판단하는데 신중을 기하여야 한다.

### 참고문헌

1. D.Reilly, et al, "Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials," NUREG/CR-5550, LA-UR-90-732, Los Alamos National Labretory, 1991
2. EML, "EML300M.Lib," Environmental Measurements Laboratory, 1998
3. BNL, "Master.Lib. PCNUDAT Decay Radiation," NNDC., Brookhaven National Laboratory, 2003
4. R.B.Firestone, et al., "Table of Isotope, 8th Edition," John Willey & Sons Inc., 1966

## 핵분열 트래키입법을 이용한 환경 시료 중의 미량 우라늄 분석

표형열, 이상경, 이창현, 한선호, 박용준  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

### 요 약

풀, 토양 또는 지하수와 같은 환경시료 중에 포함된 미량 우라늄을 분석하기 위하여 핵분열 트래키입법을 이용하였다. 시료 전처리 방법으로 지하수 시료는 질산 산성으로 만든 후, 토양시료는 질산과 불산을 이용하여 용액화 하였으며, 풀 시료는 전기로를 이용하여 회화한 후, 질산과 불산을 이용하여 용액화 하였다. 이 환경시료 전처리용액들을 각각 0.1mL를 0.9mL Collodion 분산용액에 섞은 후, 우라늄 표준용액과 함께 플라스틱 판(6x6cm<sup>2</sup>) 위에 10 $\mu$ l씩 점적, 건조 시키고 핵분열 트래키입법을 이용하여 우라늄 농도를 분석하였다. 핵분열 트래키입법을 위한 중성자 조사는 한국원자력연구소 하나로 연구용원자로(열중성자 선속: 2.7 x 10<sup>13</sup> n/cm<sup>2</sup>. sec<sup>-1</sup>)에서 10분간 하였으며, 6.25M NaOH 용액(60 $^{\circ}$ C)을 이용하여 10분간 화학 에칭 하였다. 고체트래키검출기 표면에 생성된 핵분열 트래키들은 광학현미경과 image analyzer system을 이용하여 관찰하고 계수하였다. 시료와 같이 점적한 우라늄 표준용액을 이용하여 우라늄 농도에 대한 단위면적당 트래키 수의 상관관계를 구하였으며, 이를 이용하여 시료 내 우라늄 농도를 결정하였다. 본 실험의 결과에 대한 검증은 위하여 동일 시료용액을 분리관을 이용한 전처리 과정을 거친 후 ICP-MS를 이용하여 분석하였다. 우라늄의 선택적 분리를 위하여 U-TEVA 추출크로마토그래피 분리관을 이용하였다. 본 연구의 핵분열 트래키입법을 이용하여 환경시료를 분석하는 방법은 일반적인 분광법을 이용할 경우, 문제가 되는 방해 원소의 분리를 위한 전처리 과정이 불필요한 장점을 가지고 있으며, 1ng 정도의 미량 우라늄을 분석할 수 있었고, ICP-MS 결과와 20% 오차 이내에서 일치하였다.

중심단어: 환경시료, 미량 우라늄 분석, 핵분열 트래키입법

## Quality Control of Radiation Counting Systems and Measurement of Minimum Detectable Activity

### 방사선 계측기의 품질관리 및 최소검출방사능 측정

Byoung-Chul Song, Sung-Sim Han, Young-Bok Kim, Kwang-yong Jee, and Se-Chul Sohn  
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-ku, Daejeon

송병철, 한성심, 김영복, 지광용, 손세철  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

#### Abstract

Various radiation counters have been using to determine radioactivity of radwastes for disposal. A radiation counting system was set up using a radiation detector chosen in this study and its stability was investigated through the periodic determination of background and counting efficiencies in accordance with a quality control program to increase the confidence level. The average background level for the  $\gamma$ -spectrometer was 1.59 cps and the average counting level for the standard sample was 45248 dps within 2  $\sigma$  confidence levels. The average alpha background level for the low background  $\alpha/\beta$  counting system was 0.31 cpm and the efficiency for alpha counting was 34.38 %. The average beta background level for the  $\alpha/\beta$  counting system was 1.30 cpm and the efficiency for beta counting was 46.5 %. The background level in the region of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{14}\text{C}$  for the liquid scintillation counting system was 2.52 and 3.31 cpm and the efficiency for alpha counting was 58.5 and 95.6%, respectively. The minimum detectable activity for the  $\gamma$ -spectrometer was found to be 3.2 Bq/mL and 3.8 Bq/mL for the liquid scintillation counter, and 20.5 and 23.0 Bq/mL, respectively for the  $\alpha$  and  $\beta$  counting system,

Key Words : Quality Control, Minimum Detectable Activity, Radiation Counter.

#### 요약

방사성 폐기물 중에 함유된 핵종 및 방사능을 측정하기 위해서는 여러 가지 방사선 계측기가 이용되고 있다. 본 연구에서는 각각의 핵종에 대하여 측정 가능한 검출기를 선정하고 원전 방사성폐기물 중 방사능을 측정 하기위한 시스템을 구성하였다. 그리고 그 계측 시스템의 바탕 값 및 계측효율을 주기적으로 측정하고 품질관리를 위한 관리도를 작성하여 계측기의 안전성을 확보하고 분석결과에 대한 신뢰도를 향상시키고자 하였다. Gamma spectrometer의 바탕 값 평균은

1.59 cps이었으며 표준 시료에 대한 평균값은 45,248 dps로 거의 대부분의 측정값이  $2\sigma$  이내에 크게 벗어나지 않음을 나타냈다. Low background  $\alpha/\beta$  counting 시스템의 알파 바탕 값 평균은 0.31 cpm이고 알파선 계측효율은 34.38% 이었으며, 베타 바탕 값은 1.3 cpm이고 베타선 계측효율 46.5% 이었다. 또한 액체섬광계수기는 3H 영역에서 바탕 값이 2.52 cpm, 계측효율 58.5% 이었으며, 14C 영역에서의 바탕 값은 3.31 cpm 이었고 계측효율은 95.6% 이었다. 본 연구에서는 바탕 값 및 계측효율로부터 최소검출방사능을 설정함으로써 시료의 측정 가능한 범위를 구하였다. 측정결과, gamma spectrometer의 최소검출방사능은 3.2 Bq/mL이었으며,  $\alpha/\beta$  counting 시스템의 경우는 알파 및 베타 영역에서 각각 20.5 Bq/mL, 23.0 Bq/mL이고 liquid scintillation counter의 경우는 3.8 Bq/mL로 나타났다.

중심단어 : 품질관리, 최소검출 방사능, 방사선 계측기.

## I. 서론

원자력 발전소에서 발생하는 방사성 핵종 및 폐기물의 종류는 매우 다양하다. 이러한 핵종들이 원자로 내에서 어떻게 생성되고 폐기물 내에 어떤 형태로 존재하는지에 따라서 방사성 핵종의 종류 및 농도가 달라 질 수 있으며 폐기물의 종류에 따라서도 많은 차이를 나타낸다. 원전 공정에 따라 채취된 시료는 전처리 과정 및 핵종분리 과정을 거치고 나서 여러 가지 방사선 계측기에 의해 방사능이 측정된다. 각 시료의 유형과 시료에서 방출되는 방사선의 종류 및 에너지에 따라서 계측기 선정이 이루어져야 하며 분석방법 및 계측기를 선정할 때 핵종의 수, 방사선의 종류와 에너지 등 물리적 성질, 시료의 화학조성 및 물리적 형태, 모 핵종과 딸핵종의 붕괴사슬과 대상핵종의 반감기 및 방사능 준위 등이 고려되어야 한다. 본 연구에서는 대상핵종에 대한 핵자료와 측정 가능한 계측기를 선정하였으며 각각의 방사성 핵종분석을 위하여 방사능 측정 시스템을 구성하였다. 그리고 바탕 값 및 계측효율을 주기적으로 측정하고 품질관리를 위한 관리도를 작성하여 계측기의 안전성을 확보하고 분석결과에 대한 신뢰도를 향상시키고자 하였다. 또한 각 계측기의 바탕 값 및 계측효율로부터 계측기의 최소검출방사능을 설정하였다.

## II. 실험

### 1. 방사성 표준선원

#### 1.1 감마분광분석기의 바탕 값 및 계측효율 보정용 방사성 표준선원

- Cylindrical type mixed source 20 mL 감마선 표준물 (01-Nov-2003, 03MIX414, KRISS)

#### 1.2 액체섬광계수기의 바탕 값 및 계측효율 보정용 방사성 표준선원

- Background standard (Jan-2003, PPN 6008511, PPN 6008511, PACKARD)
- Unquenched 3H standard (278,200 dpm, 29-Jan-2002, PPN 6008511, PACKARD)
- Unquenched 14C standard (134,900 dpm, 29-Jan-2002, PPN 6008511, PACKARD)

#### 1.3 전알파/베타 계측효율 보정용 방사성 표준선원

- 210Po 2" planchet 선원 (506.5 Bq, 01-Apr-1996, GG472, OXFORD, NIST traceable)
- 90Sr 2" planchet 선원 (592 Bq, 01-Mar-1992, S-134, TENNELEC, NIST traceable)

### 2. 방사능 측정 시스템 구성

#### 2.1 Gamma spectroscopy 시스템 구성

원전 방사성폐기물의 핵종분석을 위한 gamma spectroscopy 시스템을 새로이 구성하였다. 이 시스템은 HPGe 검출기(GEM-30185-P, EG&G)와 주 증폭기(672, EG&G) 및 MCB(919, EG&G)로 구성하였으며 액체질소 공급을 원활히 하기 위하여 외부에 설치한 대용량 액체질소 통(180 L)과 검출기에 부착된 액체질소 통(30 L)을 보온재에 싸여진 stainless steel 관으로 연결하였다.

## 2.2 Low background $\alpha/\beta$ counting 시스템 구성

전알파 및 전베타 또는 개별 분리된 핵종들을 측정하기 위해서는 가스비례계수기가 사용되며 원전 방사성폐기물 핵종분석을 위하여 방사선 구역 내로 이전 설치하고 시스템 성능 검증을 위하여 바탕 값 및 계측효율을 측정하였다.

## 2.3 액체섬광계수기의 구성

액체섬광계수기는 두개의 광전자 증배관과 동시계수 회로로 이루어져 있으며 용액 형태의 시료를 직접 사용할 수 있고 계측효율이 뛰어나며 다수의 시료를 알파선 핵종과 베타선 핵종에 대하여 측정할 수 있다는 장점으로 인하여 널리 사용되고 있다. 이러한 베타 핵종 및 알파 핵종들의 정확한 분석을 위해서는 액체섬광계수기를 최적화할 필요가 있으며 계수영역, vial의 크기와 형태, cocktail의 선택, 계측시간, 바탕 값 등에 대하여 최적의 조건을 확립하였다.

## 3. 방사능 계측기의 바탕 값 측정

### 3.1 감마선 분광기의 바탕값 측정

- 전원을 켜고 감마분광분석기(HPGe, EG&G ORTEC)를 작동시킨 다음 검출기의 전압을 검출기의 특성에 따라 조절하였다. (LN2 확인)

- 시료가 없는 상태에서 일정시간(10,000 sec)동안 감마선 스펙트럼을 얻고 감마 스펙트럼으로부터 MCA의 전 채널에 대한 바탕 값을 얻었다.

### 3.2 전알파/베타 측정 시스템의 바탕 값 측정

- 알파 모드 및 알파/베타 모드에 동작전압을 설정하고 알파 및 베타 영역에서 각각 50분씩 10회 측정하여 바탕 값을 얻었다.

### 3.3 액체섬광계수기의 바탕값 측정

- Background standard (PPN 6008511 PACKARD)를 이용하여 3H(0~18.6 keV), 14C(0~156 keV) 영역에서 각각의 바탕 값을 얻었다.

## 4. 방사능 계측기의 계측효율 보정

### 4.1 감마선 분광분석기의 에너지에 따른 계측효율 측정

- 전원을 켜고 감마분광분석기 (HPGe, EG&G ORTEC)를 작동시킨 다음 검출기의 전압을 검출기의 특성에 따라 조절하였다. (LN2 확인)

- 측정하려는 시료와 같은 기하학적 구조를 갖는 혼합감마선 표준용액(20 mL)을 검출기에 올리고 일정시간(5,000 sec)동안 감마선 스펙트럼을 얻었다. 표준선원의 감마스펙트럼을 이용하여 MCA의 채널에 따른 에너지 보정곡선을 얻었다.

- 표준선원의 감마스펙트럼을 이용하여 에너지에 따른 검출기의 계측효율 보정곡선을 얻었다.

### 4.2 전알파/베타 측정 시스템의 계측효율 측정

- 시스템의 전원을 켜고 가스량을 주 밸브에서 8 psi, 기기에 부착된 밸브에서 0.2 SCH로 조절하고 동작 전압을 설정하기 위하여 210Po, 90Sr 표준물을 이용하여 알파 및 베타 영역에서 각각 플토우를 그린 다음 동작전압을 설정하였다. (알파 영역 : 900 V, 베타 영역 : 1,500 V)

- 210Po, 90Sr 표준 방사선원을 저준위 기체비례계수기에 넣고 10분 동안 3회 측정하여 계수 값을 측정하였다. 표준선원의 방사능 세기를 계측날짜로 방사붕괴 보정을 한 후 다음 식에

의해 계측효율을 측정하였다.

$$Efficiency = \frac{cpm}{dpm}$$

#### 4.3 액체섬광계수기의 계측효율 측정

- Unquenched 3H, 14C standard (PPN 6008512, 6008513 PACKARD)를 이용하여 3H (0 ~ 18.6 keV), 14C(0 ~ 156 keV) 영역에서 각각의 계측효율을 얻었다.

### III. 결과 및 고찰

#### 1. 방사능 계측기의 품질관리

##### 1.1 Gamma spectrometer의 관리도

감마선원(152Eu, 500 mL cylindrical bottle)을 이용하여 바탕 값, 표준시료, FWHM 및 실제 피크와 라이브러리 에너지 사이의 차이 등을 측정하였으며 이를 이용하여 관리도를 작성하고 1σ, 2σ 및 평균값을 표시하였다. 이때 바탕 값의 평균은 1.59 cps 이었으며 표준시료에 대한 평균은 45,248 cps로 대부분의 측정값이 2σ 이내에서 크게 벗어나지 않음을 나타냈다. 또한 분해능의 지표인 FWHM 비는 0.997로 거의 일정함을 나타냈다.

##### 1.2 α/β counting system의 관리도

전알파/베타 계측기를 동시 모드에서 동작 전압을 1,500V로 설정하고 바탕 값을 50분씩 11회 측정하였으며 이를 이용하여 관리도를 작성하고 1σ, 2σ 및 평균값을 표시하였다. 이때 알파 바탕 값의 평균은 0.31 cpm 이고 알파선 계측효율은 34.38% 이었으며 베타 바탕 값은 1.3 cpm 이고 베타선 계측효율 46.5% 이었다. 여기서 알파 바탕 값이 평균 0.32 cpm과 비교하여 최근에 상당히 낮은 바탕 값(1.9 cpm)을 나타낸 것은 low background α/β counting 시스템에 대한 해체 및 소지한 결과로 추측되며 향후 측정값의 경향은 계속 검토해야 할 것으로 판단된다.

##### 1.3 액체섬광계수기에 의한 3H 및 14C에 대한 관리도

Unquenched 표준물(H-3, C-14 및 BKG series, PACKARD)를 이용하여 3H 및 14C 영역에서의 바탕 값, 계측효율, figure of merit 및 Chi-Square 값을 구하여 관리도를 작성하고 1σ, 2σ 및 평균값을 나타내었다. 이때 3H 영역에서의 바탕 값은 2.52 cpm 이고 계측효율은 58.5% 이었으며 14C영역에서의 바탕 값은 3.31 cpm 이었고 계측 효율은 95.6% 이었다.

#### 2. 방사능 계측기의 최소검출방사능(Minimum Detectable Activity, MDA) 측정

방사능 계측기의 최소검출방사능은 주어진 신뢰도에서 검출될 수 있는 최소 시료 방사능을 말하며 이는 기기의 바탕 값, 계측효율, 계측시간 및 시료 량 등에 의하여 결정되고 계측기의 검출 한계를 구하는 방법에 따라서도 조금씩 달라질 수 있다. MDA를 낮출 수 있는 가장 효과적인 방법은 시료 량을 크게 하거나 계측시간을 길게 하는 방법이 있으나 실험조건에 따라서 상호보완적이어야 한다.

Decision Limit,

$$Lc = k_a (\mu_B + \sigma_B^2)^{1/2}$$

$$Lc = 1.645(2\sigma_B^2)^{1/2} = 2.33\sigma_B$$

Detection Limit,

$$L_D = k^2 + 2Lc$$

$$L_D = (1.645)^2 + 2Lc = 2.71 + 4.64\sigma_B \quad (K=1.64, \text{ at } 95\% \text{ confidence level})$$

$$MDA = \frac{2.71 + 4.66(B)^{1/2}}{EVTY}$$

여기서, B는 바탕 값의 총 계수, E는 계측효율이며 V는 시료 량(mL) 이다. 또한 T는 계측시간(min)이고 Y는 화학적 수율이다.

### 2.1 감마선 분광분석기의 최소검출방사능

감마선 분광분석기의 최소검출방사능은 NUREG 4.16에서 정의된 방법을 사용하였다

$$P = \frac{2.71 + 4.66\sigma_b}{LT} \quad \sigma_b = \sqrt{\frac{(bkg) \times (peak \ width)}{(width \ of \ low \ wave. + width \ of \ high \ ave.)}}$$

여기서, P = prak count rate,  $\sigma_b$  = error in background이다.

예로서 방사성폐기물 0.2 gram을 20 mL의 산에 용해한 후 용해용액 20 mL를 감마선 분광분석기를 이용하여 10,000 sec 동안 바탕시료에 대하여 방사능을 측정 하였을 경우에 137Cs 영역에서 의 검출 한계는 3.2 Bq/g 이었다.

### 2.2 전알파/베타 측정 시스템의 최소검출방사능

전알파/베타 측정 시스템에서 바탕 값은 알파/베타 동시모드에서 50분간 측정하였을 때 알파 0.31 cpm, 베타 1.3 cpm 이었으며 계측효율은 각각 36.4 %, 46.5% 이었다. 실 예로서 방사성 폐기물 0.2 gram을 20 mL의 산에 용해한 후 1 mL를 취하여 측정 하였을 때 최소검출방사능은 알파영역에서 1.9 Bq/g 이었고 베타영역에서 3.7 Bq/g 이었다.

### 2.3 액체섬광계수기의 최소검출방사능

3H영역에서 바탕 값은 2.52 cpm 이고 계측효율은 58.5% 이었으며 방사성폐기물 0.2 gram을 20 mL의 산에 용해한 후 1 mL를 취하여 50분간 측정하였다면 최소검출방사능은 3.1 Bq/g 이었으며, 또한 14C영역에서의 바탕 값은 3.31 cpm 이었고 계측 효율이 95.6% 일때 최소검출방사능은 2.2 Bq/g 이었다.

## IV. 결 론

방사능 계측기의 품질관리를 위하여 주기적으로 바탕 값, 계측효율 등을 측정하고 관리도를 작성함으로써 계측기의 안전성을 확보하고 방사성 시료에 대한 방사능 측정 신뢰도를 향상시켰다. Gamma spectrometer의 바탕 값의 평균은 1.59 cps 이었으며 표준 시료에 대한 평균은 45,248 cps로 거의  $2\sigma$  이내에서 크게 벗어나지 않았다. Low background  $\alpha/\beta$  counting 시스템의 알파 바탕 값의 평균은 0.31 cpm 이고 알파선 계측효율은 34.38% 이었으며 베타 백그라운드는 1.3 cpm 이고 베타선 계측효율 46.5% 이었다. 또한 액체섬광계수기는 3H영역에서 바탕 값이 2.52 cpm, 계측효율 58.5% 이었으며 14C영역에서의 바탕 값은 3.31 cpm 이었고 계측 효율은 95.6% 이었다. 또한 이들로부터 각 계측기의 최소검출방사능을 결정함으로써 방사성 시료의 방사능 측정 가능 여부를 가늠할 수 있었다. Gamma spectrometer 최소검출방사능은 137Cs 영역에서 3.2 Bq/g,  $\alpha/\beta$  counting system은 알파 및 베타 영역에서 각각 1.9 Bq/g, 3.7 Bq/g 이었으며 Liquid scintillation counter는 3H영역에서 3.1 Bq/g, 14C영역에서 2.2 Bq/g로 각각 나타났다.

본 연구에서는 검출 한계를 낮추고자 저준위 측정 시스템을 도입 하였으며 이를 이용하여 향후 시료의 량 및 측정시간을 적정 분배하고 주위의 바탕 값을 낮추고자 하는 실험을 계속 진행할 계획이다.

## V. 참고 문헌

1. Michael F. L'Annunziata, A Handbook of Radioactivity Analysis, pp. 316-318, Academic press, San Diego(1998).
2. C. W. Thomas, V. W. Thomas, D. E. Robertson, Radioanalytical Technology for 10 CFR Part 61 and Other Selected Radionuclides, U. S. Nuclear Regulatory Commission NUREG/CR-6230
3. J. A. Cooper, Factors Determining the Ultimate Detection Sensitivity of Ge(Li) Gamma-Ray Spectrometers, pp. 273-277, North Holland Publishing Co.(1970).

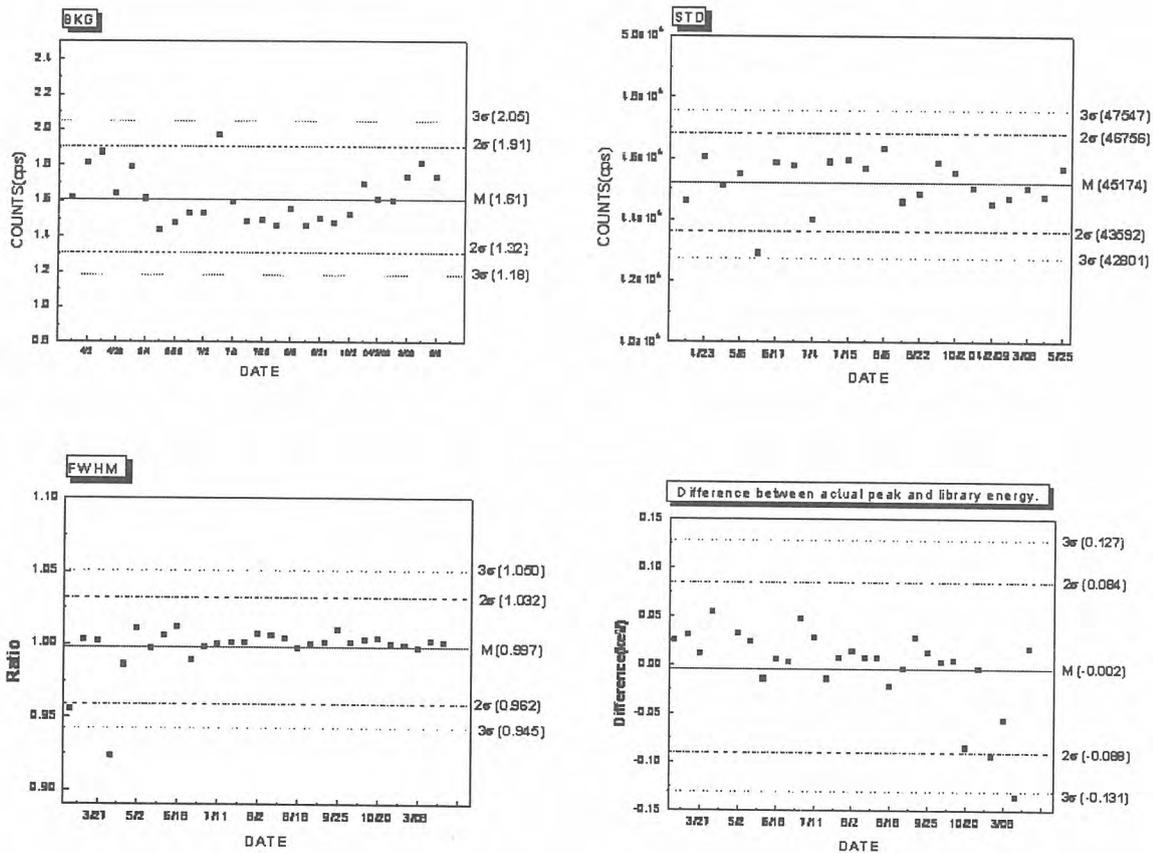


그림 1. 감마분광분석기의 품질관리를 위한 관리도

제4분과 (D)  
방사선안전 및 환경  
(Poster)

빈 면

## 3차원 그래픽 시뮬레이션 기술을 이용한 원자력 발전소 폐기물 처리 작업 중 동선에 따른 방사선 피폭 변화

박원만, 김윤희, 김경수, 황주호  
 경희대학교, 경기도 용인시 기흥읍 서천리 1번지

### 요 약 문

본 연구에서는 국내 방사선 작업 종사자의 연간 피폭량 중 상당부분(30%)를 차지하는 원자력 발전소 작업 종사자의 방사선 피폭량을 3차원 그래픽 시뮬레이션 기술 및 Java 프로그래밍과 수치 해석 방법을 이용하여, 보다 안전한 작업 계획 수립에 필요한 작업 동선에 따른 방사선 피폭 변화에 대하여 연구하였다. 원자력 발전소의 방사성 폐기물 처리 시설에 대해 3차원 그래픽으로 모델링 작업을 수행하고, 가상공간에서 선원과 작업자와의 거리 및 시간에 따른 방사선 피폭량을 수치 해석적으로 계산하였다. 선원의 종류에 따른 특정감마선( $\Gamma$ 상수)을 입력하여 가상 작업 시뮬레이션 동안의 피폭선량을 평가하였으며, 시간에 따른 가상 작업자의 위치와 이동거리, 방사선 피폭량 등의 결과데이터 파일을 이용하여 작업 결과를 분석하였다.

### 1. 방사선 피폭의 계산

선원과 가상작업자간의 거리에 따른 흡수선량률의 시간에 대한 적분값을 수치해석적 방법을 통하여 계산하였으며, 사용한 식은 다음과 같다.

$$\text{선량률 : } \dot{E} = \sum_T H_T W_T \quad (1)$$

$$\text{피폭선량 :} \quad (2)$$

$$= 0.877 \frac{(\mu/\rho)_m}{(\mu/\rho)_a} \sum_T W_T \sum_R W_R \int_0^t \frac{\Gamma_S}{r(t)^2} dt \quad (3)$$

이때, 인체인 경우,  $\frac{(\mu/\rho)_m}{(\mu/\rho)_a} \cong 1.1$ 이며,  $\sum_T W_T = 1$ ,  $\sum_R W_R = 1$  로 가정하였다. 또한 위 식은 결국 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$E_0 = 0 \quad , \quad E_n = E_{n-1} + E_n \Delta t = \sum_{n=0}^T E_n \Delta t \quad (4)$$

### 2. 작업 동선에 따른 방사선 피폭 변화 시뮬레이션 프로그램 제작

가상작업공간에서의 작업을 위한 시뮬레이션 프로그램을, 3차원 그래픽 언어인 VRML(Virtual Reality Modeling Language)과 Java™를 사용하여 작성하였으며, 시뮬레이션동안의 결과데이터를 Java EAI(External Authoring Interface)를 통하여 화면 및 데이터 파일로 출력 가

능하도록 제작하였다. 선원은 Antimony-22, Cesium-137, Chromium-51, Cobalt-60 등 8개, Ci 값은 5에서40까지 5씩 증가되는 8개의 값을 각각 입력하여 임의의 선택이 가능하도록 하였으며, 시뮬레이션의 시작 및 마침을 버튼 이벤트를 통해 제어하였다.

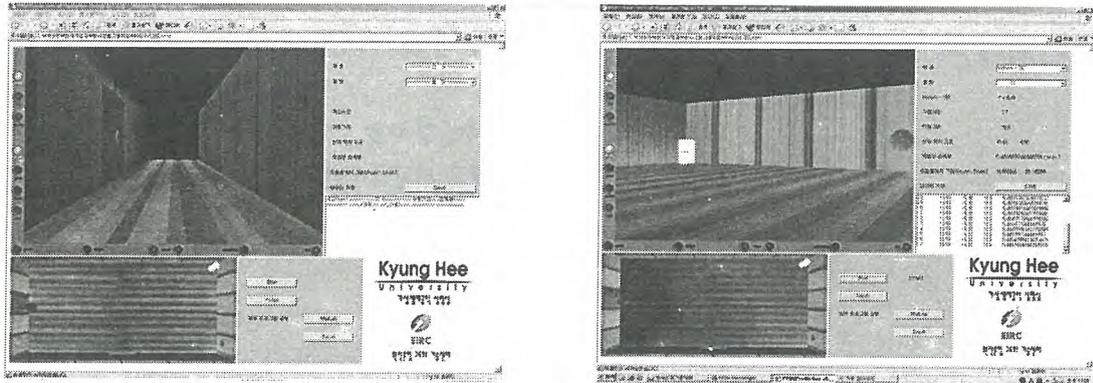


그림 1. 개발한 시뮬레이션 프로그램 : 초기화면(左)과 시뮬레이션 수행 중(右)

### 3. 시뮬레이션의 수행 및 결과 분석

위의 시뮬레이션 도구를 이용하여, 완전 차폐된 공간안에  $20\text{Ci}^{192}\text{Ir}$  점등방 선원(시뮬레이션 상에 드럼으로 표시) 2개가 있다고 가정하였다. 임의의 작업 임무에 대한 가상 작업 시뮬레이션을 동선에 변화를 주며 수행하였으며, 아래의 그래프들은 각각 시뮬레이션 동안 작업자의 이동경로(左)와, 작업간 방사선 피폭량 및 선량률(右)이다.

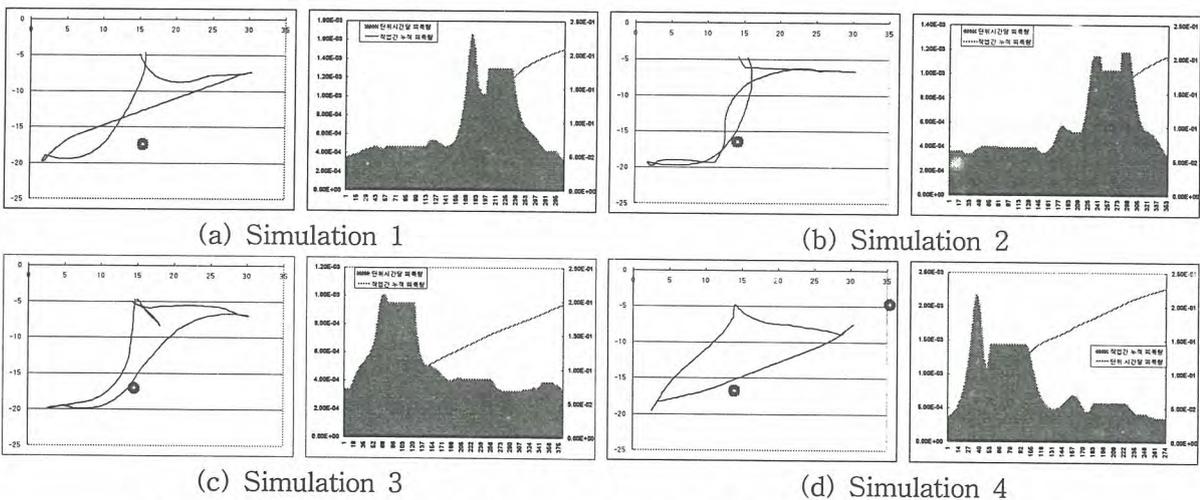


그림 2. 다양한 동선에 따른 방사선 피폭량 및 선량률의 변화 ( :출발 및 도착점)

Simulation No.	작업시간[sec]	이동거리[m]	피폭선량[mSv]
1	30.5	66.03	0.209
2	35.3	79.12	0.205
3	38.0	81.59	0.196
4	27.3	67.60	0.227

표 1. 시뮬레이션 결과분석

작업 중 받는 피폭선량은 작업시간, 이동경로에 따른 선원과 거리 등의 복합적 요소에 의해  
*Proceeding of the Korean Radioactive Waste Societz*

*Vol. 2(1), June 2004* 결정되는 값으로, 단순한 작업 시간의 단축만이 피폭선량을 작게 만드는 것은 아니다. 즉, 원자력 발전소 작업 중 피폭선량 평가에 있어 작업 동선이 현 상황에서는 비록 피폭 선량 평가에 중요한 작업설계 인자는 아니지만, 선원으로부터의 거리를 고려한 적절한 작업 경로를 통해 최적의 방사선 방호를 가져올 수 있을 것이다. 향후 연구에서는 현장에서 사용하고 있는 기존 방법에 따른 예측 결과와 비교 분석하고, 최적화 알고리즘 도입을 통한 최적 작업동선 확보를 수행할 예정이다.

#### 4. 감사의 글

이 논문은 산업자원부에서 시행한 전력산업 인프라구축지원사업으로 수행된 논문입니다.

## 방사선편폐기물 원격감시용 이동로봇 A Mobile Robot for Remote Inspection of Radioactive Waste

서용철, 김창희, 조제완, 최영수, 김승호  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

### Abstract

Tele-operation and remote monitoring techniques are essential and important technologies for the inspection and maintenance of the radioactive waste. A mobile robot has been developed for the application of remote monitoring and inspection of nuclear facilities, where human access is limited because of the high-level radioactive environments. The mobile robot was designed with reconfigurable crawler type of wheels attached on the front and rear side in order to pass through the ditch. The extendable mast, mounted on the mobile robot, can be extended up to 8 m vertically. The robust controller for radiation is designed in focus on electric components to prevent abnormal operation in a highly radioactivated area during reactor operation. This robot system will enhance the reliability of nuclear power facilities, and cope with the unexpected radiation accident.

### 1. 서론

근래에 로봇의 제조기술이 발달하고 각 분야에서 로봇의 필요성이 확대됨에 따라 방사능 지역과 같은 위험한 환경에서의 작업, 우주공간이나 심해에서의 작업로봇 등의 다양한 방면으로 이러한 로봇의 개발이 시도되고 있다. 이러한 지역에서의 로봇의 필요성에 비해 실제의 활용도가 낮은 것은 방사선의 노출, 고온, 장소의 협소함 등으로 인하여 로봇의 작업환경으로 어려움이 많기 때문이며, 또한 로봇을 작업장소까지 도달할 수 있게 하는 방법이 로봇의 활용에 큰 장애가 되었다. 인간이 접근하기 어려운 이와 같은 지역에 접근하여 감시점검 작업을 수행하기 위하여 이동로봇을 개발하였다. 개발된 로봇은 평지뿐만 아니라 도랑이나 장애물의 통과가 가능하며 고방사능 환경 내에서 견딜 수 있도록 내방사화하였다.

### 2. 로봇 시스템의 구성

방사선편폐기물 저장소 및 원자력발전소 시설과 같은 제한된 작업환경을 가진 장소에서 안정적으로 이동 가능하고, 작업 목적을 원활히 수행하기 위하여 크로러 암을 갖는 차륜구조의 이동 메카니즘을 설계하였다. 구동 휠의 중심거리는 40 cm 인 바퀴의 크기를 고려하여 48 cm로 설계하였으며 크로러 암의 길이는 폭 0.8 m의 도랑을 통과하기 위하여 54 cm로 설계하였다. 신축 마스트는 최종단에 점검장치인 카메라 팬/틸트(pan/tilt)를 탑재하고 일정한 높이까지 이동시키면서 주변의 시설들을 점검할 때에 점검장치를 요구하는 높이에 도달하기 위한 장치이다. 이동부에 탑재되어 감시 점검작업을 수행하는 카메라 장치를 상하 이동시키는 마스트는 최대 8 m 높이까지 이송시킬 수 있으며 작업현장까지의 접근이 용이하도록 하기 위하여 나선 홈을 이용한 다단 마스트 구조를 설계하였다. 설계된 신축형

마스트는 16 개의 링크로 구성되며 링크 하나의 높이는 0.55 m 로서 마스트의 최저 높이는 1.2 m 이고 최대 높이는 8 m 이다. 경량화를 위하여 탄소섬유 복합재료를 사용하여 마스트 전체의 무게는 29kg 이다. 신축마스트의 끝단에 장착된 점검 카메라는 일반 CCD 카메라를 사용하였다. 내방사선 카메라의 전체 길이와 중량이 마스트 끝단에 탑재하기 부적절하며, 카메라가 파손되었을 때에는 즉시 교체하여 점검임무를 수행하게 되므로 내방사선 카메라를 사용하는 것보다 경제적이어서 일반 카메라를 사용하였다.

### 3. 내방사선 제어기

로봇 내에 탑재되는 원격제어부는 제어시스템으로 관리제어부의 명령에 따라 이동부, 신축암, 팬/틸트의 서보모터 제어, 릴레이 구동 및 디지털 입출력, 방사선 센서 데이터 처리 등의 기능을 담당한다. 본 연구에서 이와 같은 기능을 담당하는 원격제어부의 프로세서 선정에 매우 어려움이 있었다. 프로세서의 내방사선화는 펜티엄 프로세서까지 가능한 상태이나 주로 우주 응용에 사용되는 것으로 가격이 매우 비싸고, 특히 금수 품목이라서 미국에서 수출을 금하고 있다. 따라서 현재 미국 국무성의 허가하에 유일하게 구입 가능한 제품이 UTMC 사에서 INTEL 8051을 내방사선화한 5962H563801QQX를 사용하였다. 원격제어부에 사용된 전자소자들 중 저항, 콘덴서 등의 수동소자들은 대부분이 1 Mrad 의 방사선 환경내에서 사용할 수 있다. 또한 다이오드, A/D 변환 IC, OP Amp, 멀티플렉서와 같은 소자는 1 MRad 누적방사선량에서 동작 가능한 Mil Spec. 전자소자를 사용하였다. 로봇이 작업도중 예기치 못한 오류로 인하여 비정상적으로 동작할 경우 제어반에서 작업자의 스위치 조작에 의하여 로봇에 탑재된 릴레이 회로를 직접 구동하여 로봇을 동작시킬 수 있도록 하였다.

이동로봇의 관리제어부는 싱글보드 컴퓨터를 사용하여 구성하였으며 운영체제는 사용자에게 익숙한 MS 윈도우를 사용하였다. 개발된 관리제어부는 현장적용을 고려하여 경량화 및 이동이 편리하도록 하였다. 이동 로봇을 운전하기 위한 프로그램은 정상운전 조작부의 스위치나 조이스틱 변화값을 취득하여 로봇의 운전값으로 연산하고, 연산 결과를 시리얼 통신포트를 통해 로봇으로 전송하는 루틴으로 구성된다. 모든 프로그램은 Labwindow/cvi 5.0을 사용하여 개발하였다.



그림 1. 제작된 이동로봇 외관



그림 2. 관리제어부

### 4. 결 론

본 논문에서는 방사능으로 인하여 인간이 접근하기 어려운 환경에 투입되어 감시점검 작업을 수행하기 위하여 개발된 이동로봇에 대하여 기술하였다. 다양한 이동환경에 대처할 수 있도록 크로라 암

이 이동시스템 전후면에 부착된 4륜 구동 바퀴 이동방식을 채택하여 기구부를 제작하였으며 지상의 높은 곳에 대한 관측을 용이하도록 하기 위하여 최대 8 m까지 가변신축이 가능한 다단 신축형 마스트를 개발하여 탑재하였다. 또한 고방사선 지역에서 작동하는 제어부는 안전성의 향상을 위하여 다양성을 도입하고 고방사선에서 작업이 가능하도록 내방사화 하여 설계하였다.

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

## Study in Background Reduction for the Neutron Induced Prompt Gamma-ray Spectroscopy

Byoung Chul Song, Kwang Yong Jee and Yong Joon Park

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

Neutron induced prompt gamma-ray spectroscopy(NIPS) system measures the prompt gamma-ray, emitting by the interaction of a neutron with various materials. This system will be of great benefit to scientists worldwide, since it provides the non-destructive measurement of many elements in either solid or liquid wastes. A NIPS facility has been developed in Nuclear Chemistry Research Division, at Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI) with the aim of analyzing the major component elements in both aqueous and solid samples. The facility is equipped with a  $^{252}\text{Cf}$  neutron source and coincidence set-up with two n-type coaxial HPGe detectors based on NIM spectrometric modules in association with data acquisition and spectral analysis systems. The neutron moderation and shielding materials were designed to minimized the background radiations. Two HPGe detectors were set horizontally at  $90^\circ$  with respect to the neutron beam direction to avoid unnecessary Compton scattering between two detectors. The coincidence system to reduce the interfering  $\gamma$ -ray background from the construction materials was used for the detection and measurement of coincidental events. The performance of the normal/coincidence/anti-coincidence NIPS system was tested by comparing signal-to-noise ratio in each mode. The prompt gamma characteristics of chlorine and nitrogen were observed using the chemical reagent of KCl and Melamine.

**Key Words** : Neutron, Prompt gamma-ray, Coincidence, Anti-Coincidence, HPGe detector

## Ir-192 100 ci용 조사기 열 시험

방경식, 이주찬, 김동학, 이재호, 서기석  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

하나로에서 생산되는 방사성 동위원소를 생산단계에서 소비단계까지의 유통체계를 확립하기 위해서는 방사성동위원소를 안전하게 운반하기 위한 운반용기를 개발하여야 한다. 따라서, 원자력연구소에서는 Ir-192 110 ci용 밀봉선원 조사기를 개발하고 있다. 이 조사기는 국내외 방사성물질 운반용기관련 법규의 운반용기 분류기준에 의하면 B형 운반용기로 분류된다. B형 운반용기는 관련법규에서 규정하고 있는 800 °C 열 조건에서 30분 이상 동안 견딜 수 있는 능력을 갖추어야 한다. 그러나, 조사기의 충격완충체로 사용하기 위한 폴리우레탄은 열에 매우 약한 특성을 갖고 있다. 따라서, 800 °C 열 조건에서 폴리우레탄은 연소하게 되므로 차폐체인 감손 우라늄을 보호하기는 매우 어렵다. 따라서, 난연성 우레탄 및 우레탄을 열로부터 보호할 수 있는 방화재들을 조합 적용한 시편을 제작하여 800 °C 열 조건에 대한 실험적 평가를 수행하여 선택한 조합형 충격완충체를 적용하여 조사기 시편을 제작하고 가장 취약한 부분에 열전대를 설치하여, 800 °C 에서 30분 동안 열 시험을 수행하였다. 시험결과 온도는 각각 98 °C, 65 °C, 143 °C 및 298 °C로 측정되었다. 그러나, 이 온도결과는 전기로가 열린 상태에서 주변온도가 약 700 °C 정도 밖에 되지 않았기 때문에 상당히 높은 불확도 요인이 있으므로 온도 보상을 약 100~150 °C 정도를 해주어야 하며, 온도보상을 해준 최고온도는 약 450 °C 정도에 이를 것으로 예측할 수 있다. 따라서, Ir-192 110 ci용 밀봉선원 조사기는 800 °C 열 조건에서 열적 건전성이 유지됨을 예상할 수 있다.

## 국내 발전원의 전과정 환경평가의 조감: 방사성 물질 영향범주의 고려

김태운\*, 김성호, 하재주, 김경표  
한국원자력연구소, 대전시 유성구덕진동 150  
(\*연락할 저자: twkim2@kaeri.re.kr)

국가 장기 전원개발 계획 수립에 있어서 객관적인 환경영향의 평가는 매우 중요하다. 원자력발전은 방사성 물질을 배출하는 반면, 화석연료에 의한 발전은 지구온난화 물질을 배출하는 특성을 지니고 있다. 전과정 평가방법은 연료의 채굴, 수송, 가공, 연소 그리고 폐기의 전체 과정에 걸친 환경 부하를 정량적으로 평가하는 수단이다. 본 연구는 우리나라에서 수행된 원자력발전원을 포함한 여러 전력 생산시스템에 대하여 전과정 평가방법 (LCA; Life Cycle Assessment)을 통한 환경영향을 비교하고, 앞으로 수행되어야 할 방향을 제시하는 데 목적이 있다. 기존의 관련 연구에서 분석된 발전원별 제반 환경영향을 비교하면 표와 같다. 타발전원과 원자력의 공정한 평가를 위해서는 방사성 물질의 환경 영향을 보다 객관적으로 심층 분석한다. 본 연구는 방사성 물질의 환경 영향 측면에서 평가하려는 발전원의 대상발전소, 평가단계, 영향범주, 평가범위 등의 유사성 및 차별성을 비교하고, 각 평가시 고려된 가정사항 및 제한사항들이 검토하였다. 향후 원자력연료의 폐기에 대한 정책 수립을 위해서는 원자력연료 폐기단계에 대한 전과정 환경영향평가기법의 도입하여 체계적인 분석을 수행해야 할 것이다.

< 표 > 환경 영향 평가 관련 기존 연구의 특성 비교

구분	수행기관	과제명/보고서명	특성비교
국외	국제원자력기구 (IAEA)	DECADES	에너지원별 사회성, 환경성, 위해성 비교분석 프레임 구축
	OECD/NEA	The Role of Nuclear Energy in Sustainable Development	지속가능 성장 체계하에서 원자력발전의 역할
	유럽공동체 (EC)	ExternE (Externalities of Energy Systems, 1995)	발전, 수송 에너지원에 대한 외부비용 산정
국내	한국인정원 (이건모)	환경영향평가 지수개발 I (1999)	발전원별 국내 생산전력 LCI-DB 작성
	한국가스공사	천연가스 전과정 환경영향평가 기술용역 최종보고서 (1999)	LCA 기법에 의한 천연가스 에너지원의 환경부하 산출
	한국과학기술원 (이영일, 이진재)	원자력발전 시스템에 대한 신 환경경영 기법의 개발 및 적용 (2000)	원자력에너지원의 채굴, 가공, 발전 단계에서의 방사능 영향 범주를 특성화 인자로 고려
	한국원자력연구소 (정환삼 외)	전수명주기평가를 통한 원전의 환경영향분석 모형 구축 (2002)	원자력, 유연탄, LNG 건설, 운영, 폐기 단계

## 사용후연료 건식 저장용기의 전복 응력해석

신동필, 서기석, 최병일\*, 이홍영\*

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

\*원자력환경기술원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

사용후 연료 건식 저장 용기가 낙하, 토네이도, 미사일, 홍수 및 지진으로 인한 사고에 대하여 전복이 발생되었을 때 강체 평면과 충돌에 의한 충돌 하중시의 구조 응력 평가하였다. 이를 위해 저장 용기의 무게 중심이 한계를 넘었을 때의 초기 전복 시작각을 무게 중심을 계산을 통해 구하였다. 상용 코드를 사용하여 전복 응력 해석 수행시 저장 용기의 강체 운동에 의하여 계산 시간이 길어지는 데, 이런 계산 시간을 줄이기 위해 일차 충돌 직전까지의 모델의 속도와 각속도 계산식을 이론적인 방법으로 구하여 해석 초기 조건으로 사용하는 방법에 대하여 제안하였다. 단순 모델에 대해 해석적 방법과 수치해석 방법을 통해 얻어진 용기의 전복 발생시 일차 충돌 직전까지의 속도, 각속도, 각가속도 값을 구하여 비교하였으며, 같은 모델에 대해 상용코드인 ABAQUS/Explicit를 이용하여 해석적인 방법과 수치 해석적 방법에 의해 계산된 상당 각속도 값을 적용하여 응력 해석을 수행하여 계산 시간과 결과 값을 강체 운동을 포함하는 모델의 해석 값과 비교하였다. 사용후연료 건식 저장 용기의 콘크리트 설계 모델에 대하여 상당 전복 각속도를 적용한 모델과 강체 운동을 포함하는 모델을 상용 코드인 ABAQUS/Explicit를 사용하여 해석을 수행하여 결과를 비교하였다. 이 전체 해석 시간에서 충돌 직전까지의 강체 운동 부분이 제외시킬 수 있어서 해석 시간이 10%이하로 감소하였으며, 응력 값 측면에서도 낮은 오차를 가지는 결과를 나타내었다.

## 원자력시설의 정상운영시 주민피폭선량평가 입력자료의 개선

전제근, 이관희

한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 구성동 19번지

### 1. 서론

원자력시설의 정상운영시 방사성물질이 기체 및 액체상의 형태로 소외로 배출되며, 일정기간별로 배출된 핵종별 총량을 이용하여 주민피폭선량 평가를 수행함으로써 규제요건의 준수 여부를 확인한다. 이러한 원자력시설 주변 주민피폭선량평가에 적용되고 있는 주요 입력자료인 음식물섭취자료 등은 1988년 원자력연구소의 현장조사, 실험, 문헌조사 등을 통하여 결정되었으나 시간이 지남에 따라 일부자료의 경우 최신경향을 반영할 수 있도록 개정이 요구된다. 또한 대기확산인자 계산에 있어서 발전소 부지별로 풍속등급의 분류 및 각종 보정의 사용여부가 상이하여 이에 대한 개선이 요구된다. 본 연구에서는 주민피폭선량 평가 입력자료의 개선현황과 개정 필요성에 대하여 검토하여보았다.

### 2. 주민피폭선량평가 입력자료의 개선

#### 가. 음식물섭취자료

주민피폭선량평가에 적용되는 주요 입력자료인 음식물섭취자료는 1987년 10월부터 1988년 8월에 걸쳐 고리주변 80km이내의 지역중, 대도시(부산시), 중소도시(울산시), 어촌(양산군 고리주변 어촌계), 농어촌(울주군) 4개지역을 대상으로 조사되었다. 당 자료는 조사된지 15년 정도 지남에 따라 한국인의 음식물섭취경향도 변하여 과거에 비해 섭취음식물 종류가 다양해지며, 곡류, 과일, 김치, 엽채류, 쇠고기, 돼지고기, 닭고기, 우유, 어류, 연체/갑각류, 뿌리농작물 등 음식물의 섭취량도 변화하였을 것으로 추정된다. 따라서 현재 원전주변주민들의 식생활을 적절히 반영하기 위하여, 일정주기로 원전주변주민들의 음식물섭취경향을 재검토할 필요성이 대두되었다. 당 필요성에 따라 관련전문가과들의 협의결과 음식물섭취자료 구축방법으로는 전국민을 대상으로 조사한 국민영양조사보고서를 기본으로 활용하며, 원전 지역별 특성을 반영할 경우에는 지역별 섭취빈도를 조사해서 지역특성을 반영하거나 지역별 식품수급표의 적용이 제안되었다. 또한 미국 규제지침 1.109에는 주민피폭선량평가의 보수성을 위하여 피폭받는 개인을 최대개인으로 가정하고 있으므로, 최대개인에 대한 자료를 평가하기 위하여 국민영양조사보고서의 대규모 자료를 활용할시 통계자료가 정규분포를 이룬다면 평균개인값에 2~3배의 표준편차를 적용하는 방법이 바람직하나 자료가 정규분포를 이루지 않을 경우에는 자료의 식품군별 평균값에 일정한 factor를 곱해서 최대값을 구하는 것이 바람직한 것으로 전문가들은 의견을 제시하였다. 한편 주민들의 음식물섭취경향은 점차 바뀔 수 있으므로 향후 주기적으로 섭취경향을 조사하여 섭취경향이 일정범위이상 바뀔 경우 음식물섭취자료를 개선하도록 할 예정이다.

#### 나. 피폭대상자의 정의

상술한바와 같이 현재 우리나라에서는 미국 규제지침의 개념을 적용하여 주민 피폭선량 평가시

최대피폭개인이라는 개념을 도입·사용하고 있다. 최대개인은 발전소 인근 지역중 음식물 소비량, 거주기간 및 다른 생활습관이 최대인 개인으로서, 평균 일반인과 어느 정도의 차이를 나타낸다. 최근에는 IAEA 및 EC를 중심으로 결정그룹의 개념을 점차 도입하고 있는 추세이다. 최대피폭개인개념은 최대피폭을 받는 개인들의 집단인 결정그룹을 적용하고 있는 타국에 비하여 음식물섭취량이 어느정도 과대평가되고 있다. 또한 IAEA 60 권고에서도 결정그룹에 대한 평균선량이 선량한도 및 선량제약치와 비교되어야 한다고 기술하고 있어, 차후 타국의 결정그룹 사례의 구체적 비교분석을 통하여 결정그룹을 도입여부에 대하여 검토 할 필요가 있다.

### 3. 대기확산인자평가 입력자료의 개선

현재 국내 원자력시설의 정상운영시 대기확산인자평가를 위하여 Gaussian 모델인 XOQDOQ 모델이 사용되고 있다. 본 모델은 미국 NRC에서 개발한 Constant Mean Wind Direction 모델이며, 주요 입력변수는 풍향, 풍속, 대기안정도 자료이다. 그러나 본 모델을 이용하여 대기확산인자를 계산함에 있어서 발전소 부지별로 풍속등급의 분류 및 각종 보정의 사용여부가 상이하여 이의 표준화가 요구된다. 주요입력변수인 풍속의 경우 고리,울진,월성 부지의 경우 표1과 같이 5개 등급으로 분류하고 있다. 그러나 대부분의 풍속이 3m/s 미만임을 고려할 때 정확한 대기확산인자의 계산을 위해서는 저풍속에서 풍속등급을 보다 세분화 할 필요가 있다. 또한 Constant Mean Wind Direction의 한계를 보정하기 위하여 XOQDOQ 모델에는 재순환보정 옵션이 있는데 일부 발전소에서만 이를 적용하고 있다. 기류의 재순환 및 정체, 해륙풍 등에 의하여 플룸의 시간과 공간에 따른 변화가 있을 때에는 이를 반영하기 위하여 재순환 보정 옵션이 만들어져 있다. 국내발전소가 모두 해안가에 위치하고 있어 해륙풍 등에 의한 기류의 변화가 있음을 고려할 때 재순환 보정 옵션을 사용할 필요가 있다. 위에서 언급한 사항들에 대해서는 사업자측과 개선방향에 대해서 협의가 진행중에 있다.

표 1. 고리,울진,월성 부지의 풍속등급의 분류

풍속(m/s)	3.3 미만	3.4-7.9	8.0-13.8	13.9-20	20 이상
대표값	1.65	5.6	10.85	16.9	20

### 4. 결론

원자력이용시설의 정상가동시 소외로 배출되는 기체 및 액체상 방사성유출물에 의한 주민피폭 선량평가가시 적용되는 주요 입력자료의 개선현황 및 개정필요성에 대하여 검토하여 보았다. 음식물 섭취자료의 경우에는 최신 음식물섭취경향을 반영하기 위한 자료의 개선이 진행되고 있다. 피폭대상자로서 우리나라에서는 최대피폭개인 개념을 적용하고 있으나, 최대피폭개인 개념은 과도한 피폭결과를 초래할 수 있으므로 국내외 경향의 추가적인 검토를 통하여 도입여부가 결정되어야 할 것이다. 또한 대기확산인자 평가시에 풍속등급을 저풍속에서 보다 세분화하고, 재순환보정 옵션을 사용할 필요가 있다.



## 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 <http://www.krws.or.kr>