

Proceedings of the  
Korean Radioactive Waste Society  
Spring 2005

한국방사성폐기물학회  
학술논문집  
- 2005년 봄 -

- 일시 및 장소 : 2005. 6. 23~24 (목~금), 조선대학교
- 주관 : 한국방사성폐기물학회, 조선대학교



사단  
법인 한국방사성폐기물학회

ISSN 1738-1142

Volume 3(1) 2005

Proceedings of the  
Korean Radioactive Waste Society  
Spring 2005

한국방사성폐기물학회  
학술논문집  
- 2005년 봄 -

- 일시 및 장소 : 2005. 6. 23~24 (목~금), 조선대학교
- 주관 : 한국방사성폐기물학회, 조선대학교



사단  
법인 한국방사성폐기물학회

# 빈 면

# 목 차

제1분과 : 방사성 폐기물 정책 및 제염해체

좌장 : 최왕규 · 정재학

09:00	Arc Furnace에서 알루미늄 폐기물의 용융 특성 .....	19
	최왕규 · 송평섭 · 민병연 · 정종현 · 오원진 [한국원자력연구소]	
09:20	하나로 1차 냉각펌프 제염에 대한 고찰 .....	21
	안정석 · 이경호 · 김광득[(주)데콘엔지니어링]	
	박용철 [한국원자력연구소]	
09:40	연구로 해체시 발생하는 중성자 조사 흑연폐기물 처리방안 설정을 위한 특성평가 .....	30
	이동규 · 정경환 · 오원진 · 박진호 · 이근우 [한국원자력연구소]	
10:00	PFC 제염 후 발생한 제염폐액 내 오염입자의 제거 .....	32
	김계남 · 이성열 · 원휘준 · 정종현 · 오원진 · 박진호	
	M. narayan [한국원자력연구소]	
10:50	해체계획서 및 심사지침서 항목에 관한 고찰 .....	40
	김학수 · 손중권 · 박경록 · 강기두 · 김경덕 · 하중현 [한국수력원자력(주)]	
	정찬우 [한국원자력안전기술원]	
11:10	Unconditional Clearance Levels for Releasing Radioactive Materials Contaminated with Major Radionuclides from Regulatory Control .....	49
	Jae-Hak Cheong, Chan-Woo Jeong and Won-Jae Park [KINS]	
11:30	Multilateral Nuclear Approaches(MNAs), Factors and Issues Lessons from IAEA Study to Regional Cooperation .....	56
	Yong-Soo Hwang [KAERI]	

제1분과 : 방사성 폐기물 정책 및 제염해체(Poster)

P01A01	PFC Ultrasonic Decontamination Performance on the Various Types of Metal Specimen .....	69
	Hui-Jun Won, Gye-Nam Kim, Chong-Hun Jung, Jin-Ho Park and Won-Zin Oh [KAERI]	

P01A02	Separation and Extraction of Hot Particulate from Contaminated Perfluorocarbon Solution .....	70
	Gye-Nam Kim, Mathuresh Narayan, Hui-Jun Won, Chong-Hun Jung and Won-Zin Oh [KAERI]	
P01A03	CO <sub>2</sub> Pellet 건식분사 제염공정에 관한 연구 .....	72
	정종현 · 이증명 · 오원진 · 황성태 · 박진호 [한국원자력연구소]	
P01A04	Hot Cell 내부에 분포한 Hot Particulate 제거를 위한 사이클론 필터 시스템 개발 .....	74
	김계남 · 이성열 · 원휘준 · 정종현 · 오원진 · 박진호 [한국원자력연구소]	
P01A05	방사성금속폐기물의 전해제염에 대한 연구 .....	76
	김광득 · 이정석 · 이경호 · 김영주 [㈜데콘엔지니어링]	
P01A06	반응성 플라스마를 이용한 금속 코발트 제염과 바이어스전압의 영향 연구	78
	전상환 · 이승훈 · 고성남 · 차대현 [중앙검사(주)]	
P01A07	스팀젯을 이용한 해체 폐기물의 제염연구 .....	80
	윤청현 · 이근우 · 이동규 · 정경환 · 박진호 [한국원자력연구소]	
P01A08	드라이아이스 눈 입자를 이용한 표면오염 세척 .....	82
	주민수 · 고문성 · 유재룡 · 양성우 · 박광현 [경희대학교]	
P01A09	TBOD(tetrabutly-3-oxapentanediamide)를 이용한 초임계 이산화탄소 내 우리늄 이온 추출 .....	84
	고문성 · 유재룡 · 박광현 · 김홍두 · 김학원 [경희대학교]	
P01A10	A Study on Wigner Energy Release Spectrum of Irradiated Graphite ...	86
	Gyeong-Hwan Jeong, Sei-Hun Yun, Dong-Gyu Lee, Won-Zin Oh and Kune-Woo Lee [KAERI]	
P01A11	연구로 1호기 해체를 위한 시설 현황 및 방사선량 측정 .....	87
	홍상범 · 박승국 · 정운수 · 박진호 [한국원자력연구소]	
P01A12	Korea Research Reactor-2 Decommissioning Activities .....	89
	Seung-Kook Park, Sang-Bum Hong, Un-Soo Chung and Jin-Ho Park [KAERI]	
P01A13	우리늄 변환시설 해체활동 .....	91
	황두성 · 오종혁 · 이규일 · 최운동 · 황성태 · 박진호 [한국원자력연구소]	
P01A14	해체 폐기물의 알파/베타선 오염도 동시 측정을 위한 검출기 특성 평가 ...	92
	김계홍 · 서범경 · 우주희 · 박진호 · 오원진 · 이근우 [한국원자력연구소]	

P01A15	중성자조사 흑연폐기물 고온분해 처리시 방사성 핵종들의 거동에 대한 열역학적 모델분석.....94
	양희철 · 이동규 · 오원진 · 이근우 [한국원자력연구소]
	은희철 [과학기술연합대학원대학교]
P01A16	방사성 탄소 흡수처리 성능 향상을 위한 2-amino-2-methyl-1-propanol과 Piperazine 혼합 조건 선정 .....96
	강영애 · 이동규 · 양희철 · 오원진 · 이근우 [한국원자력연구소]

제2-1분과 : 방사성 폐기물 처리

좌장 : 양호연 · 이일희

09:00	이온 교환막에서 이온의 비 평형 정상상태 이동을 이용한 단일 전해액의 배출만을 가지는 pH 조절용 연속식 전해 반응기 개발 .....101
	김광옥 · 유제욱 · 김인태 · 박근일 · 이일희 [한국원자력연구소]
09:20	모의 비방사성폐기물의 유리화시 발생 분진의 재순환처리장치 및 배관 내 침적 분진에 의한 막힘 방지용 제진장치의 개발 .....110
	최종서 · 유영환 [현대모비스(주)]
	박승철 · 최석모 · 황태원 · 신상운 [한국수력원자력(주)]
09:40	방사성 폐기물 내 <sup>59</sup> 63Ni의 선택적 분리 ..... 121
	이창현 · 최광순 · 지광용 · 김원호 [한국원자력연구소]
	정기철 [(주)ACT]
10:00	S/G 슬러지 중 구형입자의 특성 측정 ..... 129
	표형열 · 박양순 · 박순달 · 박용준 · 박경균 [한국원자력연구소]
10:50	막 분리 공정을 이용한 1차 계통 실리카 제거에 관한 연구 .....137
	김봉진 · 이상진 · 양호연 · 김정덕 · 정희철 · 조항래 [한국수력원자력(주)]
11:10	원전 운전환경을 고려한 방사성폐기물 내 Co-60 재고량 평가 방안 연구 ...145
	김태만 · 황주호 [경희대학교]
11:30	방사성 토양폐기물 시료의 통계적 대표성에 관한 연구 .....151
	조한석 · 김태국 · 이강무 · 안섬진 · 손종식 [한국원자력연구소]

제2-1분과 : 방사성 폐기물 처리(Poster)

P02A01	연구소 내 저장 중인 토양의 규제해제를 위한 방사능 분석.....161
	홍대석 · 김태국 · 강일식 · 조한석 · 손종식 [한국원자력연구소]

P02A02	방사성폐기물 유리고화체의 화학적 특성 .....	167
	김지연 · 김천우 · 최종락 · 문영표 · 지평국 · 박종길 · 신상운 [한국수력원자력(주)]	
P02A03	방사성폐기물 유리화 공정 고온영역에서 배기체 유동해석 .....	169
	박승철 · 김병렬 · 박병철 · 황태원 · 신상운 [한국수력원자력(주)]	
	이진욱 · 강원구 [ATE(S)기업부설연구소]	
P02A04	염폐기물 고정화처리 생성물의 핵종 및 침출 거동 특성 .....	171
	김정국 · 이재희 · 김준형 [한국원자력연구소]	
P02A05	삼중수소 버블러의 포집효율에 대한 고찰 .....	172
	신재신 · 이승호 [한국수력원자력(주)]	
	박광렬 [한국원자력엔지니어링(주)]	
P02A06	충진 촉매탑의 수소동위원소 교환반응 특성 .....	182
	백승우 · 최희주 · 안도희 · 김광락 · 이민수 · 임성팔 · 정홍석 [한국원자력연구소]	
P02A07	수소동위원소 분리용 GC 충진재 제조 .....	184
	이민수 · 정홍석 · 김광락 · 백승우 · 임성팔 · 안도희 [한국원자력연구소]	
P02A08	합성제오라이트의 모의 트리튬 산화물 흡착특성 .....	186
	김광락 · 이민수 · 백승우 · 안도희 · 임성팔 · 정홍석 [한국원자력연구소]	
	심명화 [과학기술연합대학원대학교]	
P02A09	Pd합금 투과막 운전특성 연구 .....	188
	정홍석 · 김광락 · 백승우 · 이민수 · 임성팔 · 안도희 [한국원자력연구소]	
	심명화 [과학기술연합대학원대학교]	
P02A10	원전 계획예방정비시 방사성폐기물 감용처리 표준화 공정 개발 .....	190
	고영우 · 김영식 [한국수력원자력(주)]	
	김효철 [하나검사기술(주)]	
P02A11	SIES 성능 개선을 위한 전처리 방안 연구 .....	192
	김상수 · 이상진 · 심성보 · 양호연 · 김경덕 · 조항래 · 정희철 [한국수력원자력(주)]	
P02A12	공기정화필터 프레임 재사용과 그에 따른 효과 고찰 .....	194
	윤철중 · 송대원 · 장동철 [한일원자력(주)]	
P02A13	울진 5,6호기 액체방사성폐기물 처리설비 원심분리기 성능 고찰 .....	196
	강현태 · 황수동 [한국수력원자력(주)]	
	이화석 [거제대학]	
P02A14	다양한 지르코늄 열전달 표면에서의 니켈 부착 .....	200
	정용주 · 연재원 · 최광순 · 최계천 · 김원호 [한국원자력연구소]	

제2-2분과 : 방사성 폐기물 처분

좌장 : 지광용 · 이병식

09:00	방사성폐기물인증프로그램 개발 방안 .....	205
	정희준 · 이재민 · 황주호 [경희대학교]	
	김 현 · 정의영 [한국수력원자력(주)]	
09:20	중 · 저준위 방사성폐기물 처분 콘크리트 구조물의 장기적 내구성 확보를 위한 방안 검토 .....	211
	김영기 · 이병식 · 이용호 [한국전력기술(주)]	
09:40	삼국시대 고분의 봉분특징과 천층처분시설 처분묘개에 활용 : 고분의 발굴문헌을 중심으로 .....	221
	박진백 · 이지훈 · 박주완 · 김창락 [한국수력원자력(주)]	
	양시은 · 이선복 [서울대학교]	
10:00	단열-다공성반에서 유동저항 이론을 이용한 지하수 유동 평가에 관한 연구 ...	231
	한지웅 · 황용수 · 강철형 [한국원자력연구소]	
10:50	벤토나이트 콜로이드에 대한 우리늄(VI) 수착특성에 대한 실험적 연구 .....	239
	백민훈 · 조원진 · 한필수 [한국원자력연구소]	
11:10	<sup>90</sup> Sr, <sup>241</sup> Am, <sup>239, 240</sup> Pu 및 <sup>238</sup> Pu 동위원소들을 분리하기위한 축차분리법에 대한 고찰 .....	248
	이명호 · 송병철 · 박영재 · 지광용 · 김원호 [한국원자력연구소]	
11:30	Migration of THO & Np in a Fractured Granite Core at Deep Underground Laboratory .....	255
	Chung-Kyun Park, Won-Zin Cho, Pil-Soo Hahn and B. Kienzler [KAERI]	

제2-2분과 : 방사성폐기물 처분(Poster)

P02B01	Long-Term Leaching Test of 200L Cemented Waste Drum Incorporated Spent Filter .....	267
	Ki-Hong Kim, Young-Gerl Ryue, Young-Yong Ji and Kyung-Kil Kwak [KAERI]	
	He-On Kim and Duck-Sin Kim [KHNP]	
	Whan-Gyeong Je [Hanil Nuclear Co., Ltd.]	

P02B02	표준토양과 혼합토양의 수리특성 연구 .....	269
	이재민 [(주)ACT]	
	신상화 · 황주호 [경희대학교]	
	박주완 · 김창락 [한국수력원자력(주)]	
P02B03	천층처분 안전성평가를 위한 불포화매질에서의 핵종이동 특성 시험 및 분석 .....	271
	신상화 · 황주호 [경희대학교]	
	이재민 [(주)ACT]	
	박주완 · 김창락 [한국수력원자력(주)]	
P02B04	천층처분 시설 처분덮개의 수리특성 분석을 위한 실험 및 고찰 .....	274
	김수곤 · 황주호 [경희대학교]	
P02B05	Assessment on Reliability of Scaling Factor Depending on the Size of the Database for the Activity of Radionuclides .....	276
	Sang-Chul Lee, Ki-Ha Hwang and Kun-Jai Lee [KAIST]	
	Tae-Wook Kim, Kyoung-Doek Kim and Myung-Jae Song [KHNP]	
P02B06	원전 발생 고화체 폐기물 핵종분석을 위한 침출 조건 .....	278
	이정진 · 안홍주 · 표형열 · 김도양 · 지광용 [한국원자력연구소]	
	전종선 [(주)ACT]	
P02B07	농축폐액 시멘트 고화체로부터 C-14 회수 특성 .....	284
	안홍주 · 이홍래 · 이정진 · 표형일 · 한선호 · 지광용 [한국원자력연구소]	
P02B08	<sup>65</sup> Ni 실험실 표준물 제조 및 적용 .....	290
	송병철 · 김영복 · 손세철 · 지광용 [한국원자력연구소]	
	정기철 [(주)ACT]	
P02B09	Formation of a Secondary Phase on the Leached Waste Glass in Contact with Bentonite under Synthetic Granitic Groundwater .....	291
	Kwan-Sik Chun, Seung-Soo Kim and Jong-Won Choi [KAERI]	
P02B10	Leaching Test of 200L Cemented Waste Drum Incorporated Spent Resins .....	293
	Young-Geul Ryue, Young-Yong Ji, Kyung-Kil Kwak and Ki-Hong Kim [KAERI]	
	He-On Kim and Duck-Sin Kim [KHNP]	
	Whan-Gyeong Je [Hanil Nuclear Co.,Ltd]	

P02B11	중저준위 방사성폐기물 포장용기의 파손모델 비교연구 .....	295
	박주완 · 박진백 · 김현주 · 김창락 [한국수력원자력(주)]	
P02B12	An Evaluation of Climate Change Scenario for Safety Assessment of a HLW Repository .....	297
	Youn-Myung Lee, Yong-Soo Hwang, Chul-Hyung Kang and Pil-Soo Hahn [KAERI]	
P02B13	처분시스템 설계를 위한 ORIGEN2 및 ORIGEN-ARP 선원항 비교 분석 ...	299
	조동건 · 최종원 · 이종열 · 최희주 · 김성기 [한국원자력연구소]	
P02B14	고준위방사성폐기물 처분장의 원계(far-field) 열역학적 거동 분석 .....	302
	이 양 · 김진웅 · 이종열 · 최희주 · 최종원 [한국원자력연구소]	
P02B15	사용후핵연료 심지층 처분을 위한 처분구역 배치 분석 .....	304
	이종열 · 이 양 · 조동건 · 김성기 · 최희주 · 최종원 [한국원자력연구소]	
P02B16	동적광산란 방법에 의한 칼슘벤토나이트 콜로이드의 안정성에 대한 연구 ...	306
	백민훈 · 박종훈 · 조원진 · 한필수 [한국원자력연구소]	
P02B17	사용후핵연료 배열을 개선한 고준위폐기물 처분용기 개발 .....	307
	최희주 · 이종열 · 조동건 · 이 양 · 김성기 · 최종원 [한국원자력연구소]	
P02B18	자연재해 사건에 대한 방사성폐기물처분장 안전성 평가 방법론.....	309
	황용수 · 한지웅 · 서은진 · 이연명 · 강철형 [한국원자력연구소]	
P02B19	고준위 방사성폐기물 처분 종합 성능 평가(TSPA)를 위한 Cyber R&D Platform 개발 ; 시나리오 도출 과정에서의 품질보증 적용 사례 .....	311
	서은진 · 황용수 · 강철형 [한국원자력연구소]	
P02B20	완충재 첨가재에 의한 응액중 요오드 농도의 감소 .....	319
	김승수 · 전관식 · 최종원 · 한필수 [한국원자력연구소]	
P02B21	Swelling Pressures of an Untreated and a Na-treated Bentonite .....	321
	Jae-Owan Lee and Won-Jin Cho [KAERI]	
P02B22	Hydrochemistry, Origin and Residence Time of Deep Groundwater in the Yuseong Area .....	323
	Yong-Kwon Koh, Geon-Young Kim, Dae-Seok Bae and Kyung-Woo Park [KAERI]	
P02B23	방사성폐기물처분연구를 위한 화강암지역내 심부시추코아의 암석화학 및 단열충전광물 특성 .....	324
	김진영 · 고용권 · 박경우 · 배대석 [한국원자력연구소]	

P02B24	고준위 방사성폐기물 처분을 위한 연구지역의 수리지질학적 예비모델 -연구지역의 Reference Pathway를 기준으로-	326
	박경우 · 김천수 · 배대석 · 김경수 · 고용권 · 김건영 [한국원자력연구소]	
P02B25	단 · 복층 처분장의 지하시설에 대한 비용평가	328
	김성기[한국원자력연구소]	
P02B26	알파분광법에 의한 방사성폐기물 시료중 $^{241}\text{Am}$ , $^{244}\text{Cm}$ , $^{242}\text{Cm}$ 및 $^{238}\text{Pu}$ 의 정량	330
	조기수 · 전영신 · 박영재 · 지광용 · 김원호 [한국원자력연구소] 김태현 [㈜ACT]	

### 제3분과 : 사용후핵연료 및 핵연료주기

좌장 : 윤지섭 · 김호동

09:00	EPMA를 이용한 사용후핵연료의 연소도 측정에 관한 연구	335
	정양홍 · 유병욱 · 오완호 · 이흥기 · 주용선 · 홍권표 [한국원자력연구소]	
09:20	Neutron Count Rate Measurement of $\text{UO}_2$ Powder by Neutron Source	344
	Hee-Young Kang, Gil-Mo Koo, Jang-Ho Ha, Ho-Dong Kim and Myung-Seung Yang [KAERI]	
09:40	MCNPX 코드를 이용한 CANDU 사용후연료 조밀건식저장시스템 (MACSTOR/ KN-400)의 방사선차폐 안전성평가에 관한 연구	350
	김병수 · 정재학 · 이재성 · 정찬우 [한국원자력안전기술원]	
10:00	Feasibility Study on the Development of Alternative Methods for the Treatment of TRISO Fuels	352
	Jong-Hyeon Lee, Joon-Bo Shim, Byung-Gil Ahn, Sang-Woon Kwon and Eung-Ho Kim [KAERI]	
10:50	Reaction Analysis of an Electrolytic Reduction Process of the ACP by Means of a Theoretical Approach	362
	Byung-Heung Park, Sung-Bin Park, Hee-Sung Shin, In-Kyu Choi and Chung-Seok Seo [KAERI]	
11:10	차세대관리 종합공정 실증시설(ACPF) 개발	363
	유길성 · 정원명 · 구정희 · 조일제 · 국동학 · 권기찬 이원경 · 이은표 · 정기정 [한국원자력연구소]	

11:30 Development and Performance Tests of the Bridge Transported Servo Manipulator System for Remote Maintenance Jobs in a Hotcell .....365  
 Jae-Hyun Jin, Byung-Suk Park, Byung-Seung Ko, Ji-Sup Yoon  
 and Ki-Jung Jung[KAERI]

**제3분과 : 사용후핵연료 및 핵연료주기(Poster)**

P03A01 핫셀간 사용후 연료봉 수송용기 설계 및 안전성평가 .....379  
 이주찬 · 김동학 · 방경식 · 신희성 · 서기석 · 김호동 · 정기정 [한국원자력연구소]

P03A02 사용후연료 수송용기의 누설평가방법 .....381  
 정진세 · 조천형 · 정성환 · 백창열 · 양계형 · 이홍영 [한국수력원자력(주)]

P03A03 중저준위 방사성폐기물 소내용 운반용기 설계개념 .....383  
 이경호 · 윤정현 · 조천형 · 정성환 · 김성환 · 이홍영 [한국수력원자력(주)]

P03A04 사용후연료 건식저장용기의 전복예비해석 평가 .....385  
 김동학 · 서기석 · 이주찬 · 정기정 [한국원자력연구소]  
 최병일 · 이연도 · 이홍영 [한국수력원자력(주)]

P03A05 가압중수로 사용후핵연료 건식저장시설에 대한 방사선안전성 예비 검증평가 .....387  
 정재학 · 김병수 · 정찬우 [한국원자력안전기술원]

P03A06 건식 저장용기 피동 열 제거시스템의 실험적 평가 .....390  
 방경식 · 이주찬 · 서기석 · 정기정 [한국원자력연구소]  
 조천형 · 최병일 · 이홍영 [한국수력원자력(주)]

P03A07 20kg U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>/Batch 급 반응기에서 사용후 핵연료의 전해 환원공정에 관한 연구 .....392  
 정상문 · 오승철 · 홍순석 · 서중석 · 정기정 · 박성원 [한국원자력연구소]

P03A08 LiCl-Li<sub>2</sub>O 용융염계에서 우라늄산화물의 전해환원에 관련된 산화전극의 전기화학적 연구 .....394  
 박성빈 · 박병홍 · 서중석 · 강대승 · 권선길 · 정기정 [한국원자력연구소]

P03A09 금속전환 공정물질 Ingot 제조 및 특성 분석 .....396  
 주준식 · 유길성 · 조일제 · 국동학 · 이은표 · 김호동 · 정기정 [한국원자력연구소]

P03A10 리튬용융염계 산화성분위기에서 Haynes 및 Inconel 합금의 고온부식거동 .....398  
 조수형 · 임중호 · 박성빈 · 서중석 · 정기정 · 박성원 [한국원자력연구소]

P03A11	LiCl-Li <sub>2</sub> O 용융염계에서 전해환원 반응에 의한 탄탈륨 금속의 제조	400
	정상문 · 정진영 · 서중석 · 정기정 · 박성원 [한국원자력연구소]	
P03A12	우리능 산화물의 전해환원으로 제조된 미세 우리능 분말의 용융	402
	허진목 · 조수행 · 임종호 · 서중석 · 정기정 · 박성원 [한국원자력연구소]	
P03A13	사용후핵연료 탈피복에 관한 연구	404
	정재후 · 김영환 · 진재현 · 홍동희 · 윤지섭 [한국원자력연구소]	
P03A14	소형 산화 장치를 이용한 공급 유량별 UO <sub>2</sub> Pellet 산화 연구	406
	엄재범 · 김영환 · 윤지섭 [한국원자력연구소] 정운관 [조선대학교]	
P03A15	20kgHM/batch용 분말화 장치 설계를 위한 UO <sub>2</sub> Pellet의 산화반응 연구	408
	김영환 · 윤지섭 · 정재후 · 홍동희 · 엄재범 [한국원자력연구소]	
P03A16	플라즈마에 의한 핵연료 분말 산화	410
	정인하 · 류호진 · 김종호 · 조광훈 · 송기찬 · 박장진 [한국원자력연구소]	
P03A17	핫셀에서 절단 사용후핵연료봉 이송 및 장전 방안에 관한 연구	412
	홍동희 · 진재현 · 정재후 · 김영환 · 윤지섭 · 정기정 [한국원자력연구소]	
P03A18	사용후핵연료 차세대관리공정 유지보수용 서보조작기 제작 : BTSM-2	414
	박병석 · 진재현 · 이종광 · 고병승 · 윤지섭 [한국원자력연구소]	
P03A19	차세대관리 종합공정 실증시험을 위한 핫셀 시설	416
	정원명 · 유길성 · 구정희 · 조일제 · 국동학 · 권기찬 이원경 · 이은표 · 정기정 [한국원자력연구소]	
P03A20	차세대관리 종합공정 실증시설 핫셀의 Intercell Crane Door 설계	418
	이은표 · 유길성 · 정원명 · 구정희 · 조일제 · 국동학 · 권기찬 · 이원경 주준식 · 정기정 [한국원자력연구소]	
P03A21	ACP 실증시설 개폐형 워킹테이블의 안전성 평가	419
	권기찬 · 구정희 · 이은표 · 정원명 · 유길성 · 정기정 [한국원자력연구소]	
P03A22	ACP 실증시설 핫셀 리어도어의 구조건전성 평가	421
	구정희 · 권기찬 · 이은표 · 정원명 · 유길성 · 정기정 [한국원자력연구소]	
P03A23	AACP 핫셀의 안전을 위한 RMS 구성	423
	국동학 · 정원명 · 구정희 · 조일제 · 이은표 · 이원경 · 권기찬 · 유길성 정기정 [한국원자력연구소]	
P03A24	A Preliminary Study on the Simulation of a Spent Oxide Fuel Metalization Process	424
	Yun-Hee Lee, Hee-Sung Shin, Ji-Woon Jang, Ho-Dong Kim and Ki-Jung Jung [KAERI]	

P03A25	Development of Safeguards System for Advanced Spent Fuel Conditioning Process .....	426
	Tae-Hoon Lee, Dae-Yong Song, Won-il Ko, Ho-Dong Kim, Ki-Jung Jung and Seong-Won Park [KAERI]	
P03A26	감마스캐너 장치의 스펙트럼 측정 분석용 프로그램 개발 .....	428
	장지운 · 신희성 · 이윤희 · 김호동 [한국원자력연구소]	
P03A27	핵물질 계량 관리를 위한 레이저 분광 원소 분석 장치 특성연구 .....	430
	조윤호 · 하장호 · 이상윤 · 이태훈 · 고원일 · 송대용 김호동 · 정정환 [한국원자력연구소]	
P03A28	중성지방산화분석을 이용한 사용후핵연료 중 유도드 정량 .....	432
	김정석 · 박순달 · 이창현 · 문종화 · 정용삼 · 김종구 [한국원자력연구소]	
P03A29	고연소도 사용후핵연료의 가열산화와 고온가열을 통한 미세조직 변화 고찰 .....	433
	김대호 · 방계진 · 양용식 · 송근우 · 이형권 · 권형문 [한국원자력연구소]	
P03A30	Kinetic Study of the Reduction of Np(VI) by Acetohydroxamic Acid in the Aqueous Solution .....	435
	Dong-Yong Chung and Eil-Hee Lee [KAERI]	
P03A31	ACF를 이용한 Pd 흡착분리 특성 .....	436
	문제권 · 한윤주 · 이일희 · 양한범 · 임재관 · 정종현 [한국원자력연구소]	
P03A32	다성분계 모의폐액에서 DMBTDMMA에 의한 $Ans^{(4-3)}/Lns^{(6-3)}$ 의 공추출 및 역추출 거동 .....	438
	양한범 · 임재관 · 문제권 · 이일희 [한국원자력연구소]	
P03A33	고산도 취급 CMPO-TBP/NDD-착물 계에서 Am/RE 추출 특성 .....	440
	이일희 · 김광욱 · 정동용 · 문제권 · 임재관 · 양한범 [한국원자력연구소]	
P03A34	Chemical Behavior of Europium Oxides in LiCl-KCl Eutectic Melt .....	442
	Tack-Jin Kim, Young-Hwan Cho, In-Kyu Choi and Kwang-Yong Jee [KAERI]	
P03A35	전해정련공정을 이용한 세륨/우라늄 분리 .....	443
	권상운 · 이종현 · 강영호 · 안병길 · 심준보 · 우문식 · 김응호 [한국원자력연구소]	
P03A36	$LiF-BeF_2-ZrF_4$ 용융염계에서 열가수분해에 의한 $ZrO_2$ 제조 특성 .....	444
	우문식 · 권상운 · 김응호 [한국원자력연구소]	
P03A37	V-pleats형 filter의 여재설계 및 효율특성 .....	445
	황용화 · 이형권 · 전용범 · 엄성호 [한국원자력연구소]	

P03A38	방사성부식생성물에 의한 저장플 재질의 부식 평가 .....	446
	손영준 · 양송열 · 전용범 [한국원자력연구소]	
P03A39	경수로 원자로에서 발견된 금속파편(Debris)분석 .....	448
	정양홍 · 유병욱 · 이흥기 · 김희문 · 주용선 [한국원자력연구소]	
P03A40	조사핵연료에 대한 연료봉감마스캐닝 기술 .....	450
	엄성호 · 손영준 · 서항석 · 양송열 · 이형권 · 김길수 · 김재용 [한국원자력연구소]	
P03A41	사용후 핵연료봉의 외전류시험 평가 .....	452
	양송열 · 손영준 · 전용범 [한국원자력연구소]	

**제4분과 : 방사선 안전 및 환경**

**좌장 : 이한수 · 이갑복**

09:00	HIC 전용 운반용기 개념설계를 위한 방사선 차폐해석.....	457
	조천형 · 이강욱 · 이연도 · 최병일 · 이홍영 [한국수력원자력(주)]	
09:20	삼중수소의 환경방출에 따른 주민선량 규제모델의 비교.....	464
	황원태 · 김은한 · 한문희 · 최용호 · 이한수 · 이창우 [한국원자력연구소]	
09:40	월성원전 방사선비상계획구역에 대한 주민소개시간 산정 예비결과 .....	474
	정양근 · 이갑복 · 김성민 · 방선영 [한전 전력연구원]	
10:00	PWR 발전소에서 C <sup>14</sup> 섭취선량 평가를 위한 전이계수 연구 .....	476
	김승평 · 한영옥 [조선대학교]	
	박경록 [한국수력원자력(주)]	
10:50	자연토양에서의 방사성 핵종(Co,Sr)의 흡/탈착 거동 특성평가 .....	485
	천경호 · 신원식 · 최상준 [경북대학교]	
	최정학 [포항산업과학연구원]	
11:10	원자력 비상시 주민 보호조치 결정 지원을 위한 환경감시 .....	496
	최용호 · 강희석 · 전 인 · 황원태 · 금동권 · 한문희 · 최근식 · 이한수	
	이창우 [한국원자력연구소]	
11:30	Development of Dark-striped Field Mice, Apodemus Agrarius, as a Biological Dosimeter in a Radio-ecological Monitoring System 3. Radio- sensitivity between A. Agrarius and ICR Mice .....	513
	Hee-Sun Kim, Young-Woo Jin and Chong-Soon Kim [KHNP]	
	Y.Nishimura [NIRS]	

## 제4분과 : 방사선 안전 및 환경(Poster)

P04A01	Ir-192 Bulk 및 밀봉선원 운반용기 차폐 평가 .....	521
	조일제 · 방경식 · 이주찬 · 서기석 [한국원자력연구소]	
P04A02	IP형 운반용기 차폐해석-잡고체폐기물을 중심으로 .....	523
	이강욱 · 조천형 · 장현기 · 최병일 · 이홍영 [한국수력원자력(주)]	
P04A03	방사성물질 드럼 적재를 위한 IP형 운반용기의 예비구조평가 .....	531
	서기석 · 김동학 · 정기정 [한국원자력연구소]	
	이경호 · 윤정현 · 정성환 · 김성환 [한국수력원자력(주)]	
P04A04	상온반도체를 이용한 민감 핵물질 알파선 측정 장치 연구 .....	533
	강상목 · 하장호 · 김용균 · 박세환 · 김한수 · 정종은 · 김정복 [한국원자력연구소]	
P04A05	플라스틱 섬광체와 무기 섬광체를 이용한 Phoswich 검출기의 설계와 제작 .....	535
	이우교 · 김용균 · 김정복 · 정종은 · 하장호 · 박세환 · 홍석봉 [한국원자력연구소]	
	김중경 [한양대학교]	
P04A06	중성자 피폭 방향에 따른 인체 뼈 조직의 Ca 방사화를 평가 .....	537
	김정인 · 이병일 · 임영기 · 김종순 [한국수력원자력(주)]	
P04A07	사용후 핵연료의 민감 핵물질 공간 분포 측정을 위한 중성자 스캐너 원리 실증 연구 .....	539
	하장호 · 조윤희 · 이태훈 · 고원일 · 정정환 · 송대용	
	김호동 · 양명승 [한국원자력연구소]	
P04A08	동위원소 희석질량분석법에 의한 플루토늄 정량에서 시료와 스프이크 혼합비에 따른 선형성 및 측정한계 검토 .....	541
	전영신 · 조기수 · 한선호 · 지광용 · 박용준 [한국원자력연구소]	
	김태현 [(주)ACT]	
P04A09	중수로원전 기체방사성유출물 DRL 설정 .....	543
	박규준 · 김희근 · 강덕원 [한전 전력연구원]	
P04A10	고피폭 방사선작업 식별을 위한 DB 프로그램 개발 및 검증 .....	545
	손중권 · 강기두 · 김학수 · 박경록 · 김경덕 [한국수력원자력(주)]	
	김용민 · 강창순 [서울대학교]	
	조영호 [포스데이터(주)]	

P04A11	환경영향평가코드 인자값 설정 방안 연구 .....	547
	이수홍 · 김위수 [일진방사선엔지니어링(주)]	
	황주호 [경희대학교]	
P04A12	국내 PWR 원전의 <sup>14</sup> C 방출 화학형에 따른 선량평가 방안 검토.....	549
	박경록 · 강기두 · 김학수 · 손중권 · 김정덕 · 하종현 [한국수력원자력(주)]	
P04A13	입지상 기체유출물 환경배출 방식별 평가결과에 대한 불확도 해석 .....	551
	정재학 [한국원자력안전기술원]	
P04A14	부지환경종합관리시스템의 지리정보시스템 적용 .....	553
	김대중 · 윤봉요 · 박세문 · 김창락 [한국수력원자력(주)]	
P04A15	Development of Metal Catalyst Impregnation Technology for Membrane- based Oxygen Removal System .....	555
	Mun-Soo Kim, Doo-Ho Lee and Duk-Won Kang [KEPRI]	
P04A16	방사성폐기물 등의 방사능 측정시 불확도인자 적용방법에 따른 합성불확도 평가 .....	557
	김태욱 · 김경덕 · 윤철환 · 이병두 [한국수력원자력(주)]	

제1분과  
방사성폐기물 정책 및 제염해체

# 빈 면

## Arc Furnace에서 알루미늄 폐기물의 용융 특성

최왕규, 송평섭, 민병연, 정종현, 오원진

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

노후화된 원자력 연구시설 및 발전시설들의 제염 및 해체는 원자력의 역사가 오래된 미국이나 유럽뿐만 아니라 국내에서도 해결해야할 절실한 과제로 부각되고 있다. 특히, 국내의 경우 최초의 원자로인 TRIGA 연구로 및 우라늄 변환시설에 대한 제염해체사업이 진행 중에 있으며, 이러한 원자력 연구시설의 해체 시 수백 톤 이상의 다양한 방사성 금속폐기물이 발생될 것으로 예상하고 있다. 따라서 본 연구에서는 금속용융 기술을 이용하여 원자력 연구시설의 해체 시 발생하는 여러 가지 금속성 폐기물 중에서 알루미늄에 대한 용융기술의 기초를 수립하고자 하였다. 이를 위해 아크로에서 방사성 핵종으로 오염시킨 알루미늄 폐기물을 대상으로 용융 특성 및 용융 시 방사성 핵종의 분배 특성에 대해 조사하였다. 알루미늄의 용융은 용융 시 첨가하는 플럭스의 종류 및 조성 그리고 첨가량에 따라 매우 다른 특성을 나타내기 때문에 플럭스의 종류와 조성 그리고 첨가량에 따른 용융 특성 및 방사성 핵종의 분배 특성을 파악하고자 한다.

Fig. 1은 본 연구에서 사용된 Graphite Arc Furnace로서 상부의 흑연(graphite) 전극봉과 하부의 구리 도가니(copper crucible)에 전원을 공급하는 전원공급시스템, 용융 시 고온의 열에 의한 열 충격을 방지하기 위해 Chamber와 전극(electrode) 주위에 냉각수를 공급하여 시스템의 안정을 유지시키는 냉각시스템 그리고 배기가스가 필터뱅크(HEPA, Char-coal, HEPA filter)를 거쳐 최종적으로 RMS(Radiation monitoring system)을 통해 안전하게 대기 중으로 배출되는 배기가스 시스템으로 구성되어 있다. 실험에 사용된 알루미늄 시편은 우라늄 변환시설의 제염/해체 시 발생하는 알루미늄과 같은 조성을 갖는 것을 택하였다. 알루미늄 시편은 습분 및 폭발을 일으킬 수 있는 유해물질과 유기용제 및 오일과 같은 환원물질을 제거하기 위해 전처리를 거쳐 완전 건조한 후 사용하였으며, 10mm×10mm의 크기로 절단하여 300 g의 알루미늄을 용융하였다.

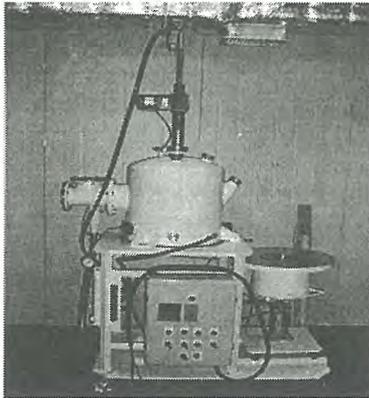


Fig. 1. Experimental apparatus(Graphite Arc Furnace).

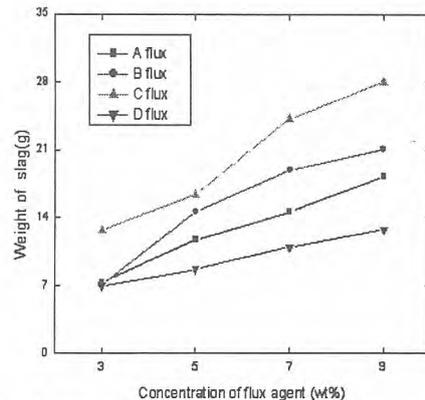


Fig. 2. Effect of the concentration of flux on the slag formation.

첨가된 플럭스의 증가에 따른 슬래그의 발생량 변화를 Fig. 2에 나타내었다. 첨가된 플럭스의 양이 증가할수록 슬래그는 증가하는 경향을 나타냈으며 플럭스 C( $\text{CaF}_2$ )가 가장 많은 양의 슬래그를 발생시켰다. 이에 반해 플럭스 D( $\text{LiF}$ ,  $\text{KCl}$ ,  $\text{BaCl}_2$ )에 의해 발생된 슬래그는 가장 적은 양의 슬래그가 발생되었다. 그러나 슬래그의 증가 경향은 플럭스의 종류에 따라 다른 형태로 나타나고 있다. 유동성이 좋은 플럭스 A( $\text{NaCl}$ ,  $\text{KCl}$ ,  $\text{Na}_3\text{AlF}_6$ )와 D는 상대적으로 유동성이 적은 플럭스 B( $\text{NaCl}$ ,  $\text{NaF}$ ,  $\text{KF}$ )와 C에 비해 슬래그 발생량이 최대 50% 정도 적게 발생하였다.

첨가된 플럭스의 양이 증가함에 따른 Co의 분배특성을 Fig. 3에 나타내었다. 주괴와 슬래그에서 Co는 플럭스를 주입하지 않았을 때 보다 플럭스를 주입한 경우에 최대 40% 이상의 방사성 오염물질이 오염된 금속 폐기물에서 슬래그 상으로 분배됨을 확인할 수 있었다. 발생하는 슬래그의 양과 Co의 분배특성을 고찰한 결과 슬래그의 발생량이 상대적으로 많았던 플럭스 B와 C의 실험에서 높은 방사성 핵종의 포집 효율을 나타내었다. 전반적으로 주괴에 포집되는 Co의 농도는 25~30% 정도로 나타났으며, 슬래그에서는 좀 더 많은 40~50% 정도의 포집 효율을 나타내었다.

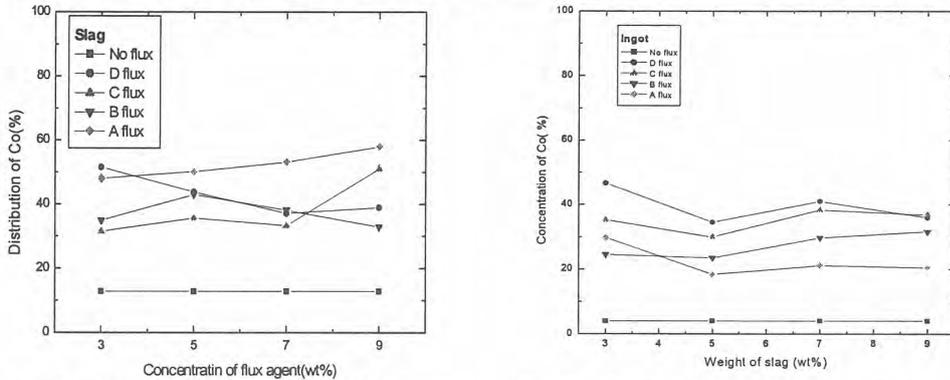


Fig. 3. Effect of concentration of flux agent on the distribution of Co in ingot and slag phase.

Fig. 4는 주괴와 슬래그에서 플럭스 첨가량의 증가에 따른 Cs의 분배 특성을 나타낸 그림이다. 그림에서 볼 수 있듯이 주괴에서 Cs는 플럭스의 종류에 관계없이 아주 소량만이 분포됨을 알 수 있다. 이는 많은 연구에 의해 밝혀진 바와 같이 용융 시 높은 온도에 의해 Cs이 휘발되었기 때문이다. 그러나 슬래그에서는 플럭스의 종류에 따라 최대 40%까지 잔류함을 확인할 수 있다. 특히, 플럭스 A, B, C의 실험에서는 더욱 높은 Cs의 포집효율을 보이는데 이는 Cs 화합물의 증기압 차이와 가스상 성분의 평형조성 그리고 증기상 세습의 응축기구의 차이에 기인한다. 주괴와 슬래그 상에 존재하는 Sr의 분배 특성을 Fig. 5에 나타내었다. 그림에서 알 수 있듯이 플럭스의 첨가량이 증가함에 따라 Sr은 Cs의 결과와 동일한 결과를 나타내고 있음을 알 수 있으나 차이점은 반휘발성인 스트론튬의 경우에는 Cs보다 슬래그에서 다소 높은 포집률을 보여주고 있다. 그러나 주괴에서는 Cs과 마찬가지로 거의 휘발되어 1%이하로 존재함을 확인할 수 있었다.

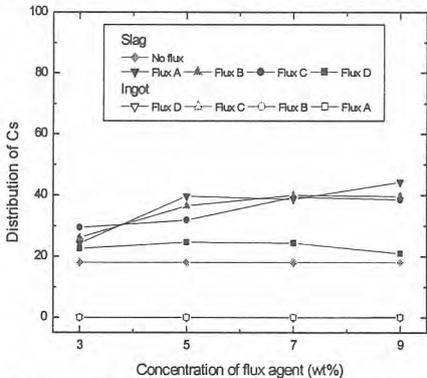


Fig. 4. Effect of the flux composition on the distribution of Cs.

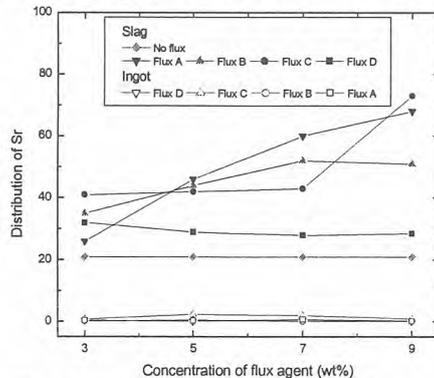


Fig. 5. Effect of the flux composition on the distribution of Sr.

아크로에서 알루미늄 폐기물의 용융 시 사용된 플럭스의 종류에 따라 유동특성과 슬래그의 발생량이 다양하게 나타남을 확인할 수 있었다. 비휘발성 핵종인 Co는 플럭스 첨가에 의해 최대 60%까지 슬래그 상으로 이동시켜 제염할 수 있음을 확인할 수 있었고, Cs과 Sr도 각각 50%와 79%까지 슬래그 내의 잔류시킬 수 있음을 확인할 수 있었다.

## Study on the Decontamination of Primary Cooling Pump in HANARO

### 하나로 1차 냉각펌프 제염에 대한 고찰

Jung-Sug An, Kyung-HO Lee, Kwang-Dug Kim, and Young-Chul Park\*

Decon Engineering Co., Ltd., Venture Center 213, Ajou Univ., Woncheon-Dong, Yeongtong-Gu,  
Suwon-Si, Gyeonggi-Do, Korea

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

안정석, 이경호, 김광득, 박용철\*

(주)데콘엔지니어링, 경기도 수원시 영통구 원천동 산 5번지 아주대학교 산학협력원 213호  
한국원자력연구소\*, 대전시 유성구 덕진동 150번지

[nirvanabuda77@hotmail.com](mailto:nirvanabuda77@hotmail.com)

#### Abstract

The HANARO, a multi-purpose research reactor of 30 MWth open-tank-in-pool type, has been under normal operation since its initial criticality in February, 1995. Recently, ten years after the initial operation of the HANARO, one of the two primary cooling pumps was decontaminated for overhaul maintenance in 2004. Before decontamination exposure dose rate and surface contamination level of primary cooling pump measured at 4 points. After final decontamination exposure dose rate and surface contamination level of primary cooling pump remeasured by same method done before. It is easy to decontaminate the out side exposed surfaces of the pump, but it is difficult to approach the inside surface due to double volute installed in the casing. Therefore, a new decontamination facility has been developed to solve this problem. A concentrated de-contaminant (DX-300) is rotated in the closed pump casing by the impeller actuated by a temporary motor. Nuclide particles are removed by the emulsification effect of the de-contaminant and the surface contaminants are chemically removed from the pump by the corrosion and dissolution effect. The inside surfaces of the primary cooling pump have been decontaminated by using the facility. As results, the contamination level of the inside surfaces was maintained below the surface contamination limit.

**Key word:** Chemical Decontamination, Primary Cooling Pump, DX-300, Sodium hydroxide, Sodium Gluconate

#### 요 약

30 MW의 연구용 원자로인 하나로는 1995년 2월 초임계에 도달한 이후, 정상적으로 가동하고 있다. 가동 후 약 10년이 경과하여 1차 냉각펌프를 분해 점검하기 위해 펌프에 대한 화학제염이 2004년에 수행되었다. 제염을 수행하기 이전에 4개의 point를 설정하여 방사선량 및 표면오염도를 측정하였고, 최종제염이 수행된 이후 같은 point에 대하여 방사선량 및 표면오염도를 재측정하였다. 펌프 외부는 노출되어 있어 쉽게 제염할 수 있으나 케이싱 내부에는 2중 볼류트가 있어 접근이 용이하지 않았다. 이를 제염하기 위하여 제염장치를 개발하였다. 이 장치는 일정 농도의

제염계 (DX-300)를 케이싱 내부에 담아 밀폐시킨 후 펌프의 임펠러를 저속으로 회전함으로써 제염제가 순환된다. 제염제의 유화작용에 의해 표면의 입자성 방사성 물질이 이완되고, 화학 작용에 의해 부식력과 용해성으로 표면 오염이 제거된다. 이 장치를 이용하여 하나로 1차 냉각펌프의 케이싱 내부를 제염하였다. 그 결과 1차 냉각펌프의 케이싱 내부는 반출허용표면오염도 이하로 낮출 수 있어 성공적으로 제염할 수 있었다.

중심단어: 화학제염, 1차 냉각펌프, DX-300, 수산화나트륨, 글루콘산 나트륨

## 1. 서 론

대부분의 금속폐기물은 원자력시설 해체시 발생되며, 금속폐기물 재활용을 위한 화학제염기술은 크게 해체전 계통제염기술 및 해체 후 제염 기술로 나눌 수 있다. 사용되는 화학제로는 강산, 염, 착화제 및 유기용매에 이르기 까지 매우 다양하다[1]. 원자력시설의 제염은 작업자의 피폭량이 높은 BWR 형 원전에서 시작되었으며 BWR원전의 수화학조건에서 형성된 크러드의 조성은 철산화물이 주성분으로서 이를 용해하기 위한 유기산 제염법(CAN-DECON, CORD, CITROX 및 LOMI)을 발전시켰다. 그러나 이들 제염방법에 의해서는 수소가압 환원분위기의 PWR원전 수화학조건하에서 형성된 크러드층은 다량의 크롬이 함유되어 있어 제거가 용이하지 않을 뿐 아니라 높은 제염효과를 기대하기도 어려운데 이는 크롬산화물인 불용성  $Cr_2O_3$ 는 강한 산화제( $KMnO_4$ ,  $K_2Cr_2O_7$ )에 의해서만 용해성인 Chrom IV로 변하며, 철산화물은 유기산에 의한 착화합물 생성으로 보다 용이하게 제거되기 때문이다.

또한 강산화제와 유기산은 서로 양립할 수 없기 때문에 불행히도 PWR의 제염공정에서는 별개의 공정으로 처리되어야 한다. 대표적인 화학제염법인 CAN-DECON, CAN-DEREM, OZAX-A, CITROX, LOMI 등의 공정은 철과 니켈을 주로 함유한 산화침전물의 경우에 효율적으로 작용하지만 제염대상 기기의 오염층 산화물이 Chromium Oxide( $Cr_2O_3$ )나 Iron Chromite( $FeCr_2O_4$ )와 같은 혼합된 Spinel의 형태로 많은 량의 크롬을 함유하고 있다면 이 산화물들을 잘 용해시키지 못한다. Chromium(III) Oxide는 유기산을 사용하는 CAN-DEREM과 CITROX 공정에 사용되는 약한 유기산에서 간단한 산분해에 의해서는 용해되지 않으며 LOMI 공정의 환원분위기에서도 잘 용해되지 않는다. 크롬의 비가 10%이상이면 산화막이 안정되어 이 공정들에 의해서 용해되지 않는다[2].

그러나 Chromium(III) Oxide는 강한 산화제에 의해 쉽게 산화되어 용해도가 높은 이온성  $CrO_4^{2-}$  또는  $HCrO_4^-$ 가 된다. PWR에서 볼 수 있는 산화막은 주로 크롬의 함량이 높은 침전물이고 특히 몇주기동안 수소분위기에서 운전되기 때문에 화학적으로 산화공정이 필요하다. 일반적으로 사용되는 화학제염법은  $MnO_4^-$ 를 이용하는 것으로 첨가된 수산화나트륨, 질산 등의 pH 조절제 첨가에 따라서 Alkaline Permanganate(AP), Nitric Permanganate(NP), Permanganic Acid의 세가지로 구분된다.

전세계에는 많은 원자료가 있으며, 그 사용목적은 에너지 이용, 중성자 이용, 플루토늄 생산으로 크게 나눌 수 있다. 연구용 원자로는 원자로에서 발생하는 중성자를 이용하여 여러 가지 연구를 수행하는 원자로이며, 이러한 원자로를 개발하는 단계에서 시험적으로 짓는 원자로도 연구용원자로라고 하는 경우가 있으나, 일반적 연구용 원자로와는 완전히 다른 것이다. 동력용 원자로는 높은 에너지효율로 인해 전세계적으로 발전시설로서 사용되고 있으며 동력로에 비해 소형이지만 다방면에 걸친 원자력 이용의 기초가 된다. 30 MW의 연구용 원자로인 하나로는 상향 강제 순환식으로 경수와 중수를 사용하는 원자로이며, 중성자를 이용한 연구를 수행할 수 있도록 설계되고 건설된 다목적 연구용 원자로이다. 또한 1995년 2월에 최초 핵연료를 장전하여, 첫 임계에 도달하였고, 1996년 1월부터 출력운전에 들어가 현재까지 운전 중에 있다.

가동 후 약 10년이 경과하여 1차 냉각펌프를 분해 점검하기 위해 펌프를 제염하였다. 펌프 외부는 노출되어 있어 쉽게 제염할 수 있으나 케이싱 내부에는 2중 볼류트가 있어 접근이 용이하지 않았다. 이를 제염하기 위해서 제염장치를 개발하였다.

이 장치는 일정 농도의 제염제 (DX-300)를 케이싱 내부에 담아 밀폐시킨 후 펌프의 임펠러를 저속으로 회전시킴으로써 제염제가 순환된다. 제염제의 유화작용에 의해 표면의 입자성 방사선 물질이 이완되고, 부식력과 용해성에 의해 화학적으로 반응하여 표면오염이 제거된다.

이 장치를 이용하여 하나로 1차 냉각펌프의 케이싱 내부를 제염하였으며, 제염 전과 후에 대해 스메어 방식으로 표면 오염상태를 수거하여 핵종분석을 하여 제염상태를 점검하였다.

본 문에서는 하나로 1차 냉각펌프의 표면오염상태, 제염제, 제염장치, 제염 결과 및 분석 그리고 결론 순서로 실제 제염과정에 대해 기술하였다.

## 2. 본 론

### 가. 하나로 1차 냉각펌프의 표면오염상태

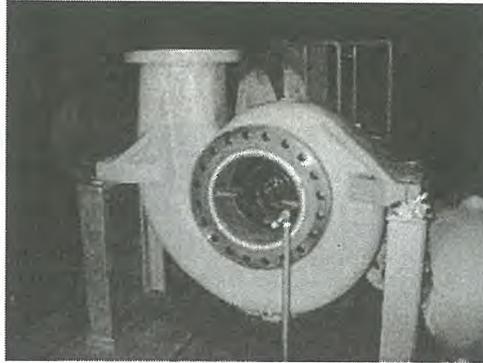


그림 1. 하나로 1차 냉각펌프

하나로의 1차 냉각펌프는 건조상태에서 총무게 1134 kg으로 하나로 Pool 내의 고순도 1차 냉각수(Primary Coolant)를 2차 냉각수(Secondary Coolant)와의 열교환을 위해 1차열교환기(Primary Cooling Heat Exchanger)로 이송하는 역할을 하며, 400 HP, 1,170 RPM의 회전수를 갖는다. 펌프의 내부는 Stainless Steel로 구성되어 있으며, 내부표면은 부식 및 방식에 내식성을 갖는 산화막(Oxide Layer)층이 형성되어 있다.

제염대상인 1차 냉각펌프는 하나로 운전 중, 1차 냉각수를 1차 열교환기로 이송한다. 이 과정에서 하나로의 운전 중, 또는 핵연료 교체 시, 발생되는 오염물질이 고속으로 회전하는 펌프의 내부 케이싱 및 Impeller에 물리적으로 흡착된다. 수년간의 가동으로 인해 오염물질은 일정두께의 층(Layer)를 형성하고 있으며, 이렇게 물리적으로 흡착된 오염물질을 제거하는 것을 본 제염작업의 주목표로 설정하였다.

제염의 여부는 Smear Test의 결과를 기준으로 결정하였으며, 계측기로는  $\alpha$ ,  $\beta$  Counter(S5XLB)를 사용하였고, 계측기의 Count Time은 1분이었다. 사용된 계측기의 Analysis Parameter는 표 1과 같다. 제염작업과 관련된 방사선량에 대한 기준은 방사선방호등에 관한기준(안전관리 절차서 RSC-03-03의 7.1.2의 2), 제4조(선량한도의 적용) 2호로 적용하였으며, 표면오염도의 경우 방안규칙 제3조(방사선관리구역) 2호로 적용하였다. 또한, 최대표면허용농도는  $\alpha$ : 4 kBq/m<sup>2</sup>,  $\beta$ : 40 kBq/m<sup>2</sup>, 반출표면허용농도는  $\alpha$ : 0.4 kBq/m<sup>2</sup>,  $\beta$ : 4 kBq/m<sup>2</sup>으로 제염작업의 완료기준으로 선정하였다. 효과적으로 표면오염도를 측정하기 위하여 그림 2, 3과 같이 Point를 구획하였다.

표 1 Analysis Parameters

	Background (cpm)	Efficiency (%)	Source	Removal	최소검출농도 (MDA)
Alpha	0.24	61.69	0.25	0.50	0.0966
Beta	5.66	69.40	0.5	0.50	0.108

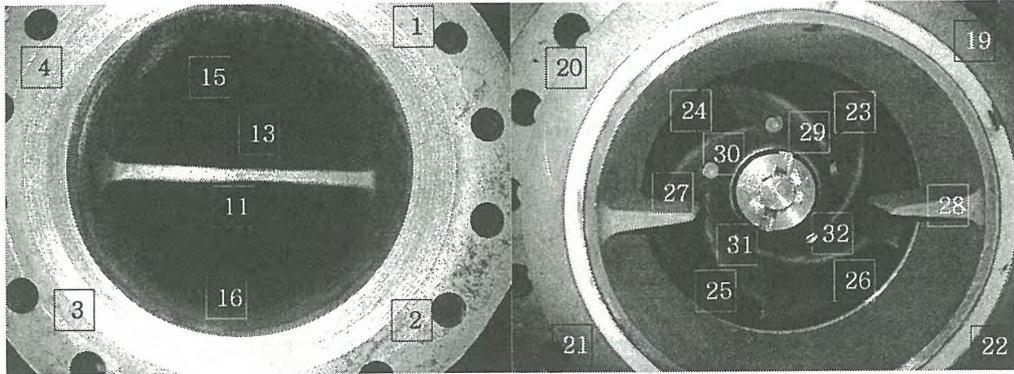


그림 2. 1차 냉각펌프 표면오염도 검사를 위한 Mapping Point(임펠러 분리 전)

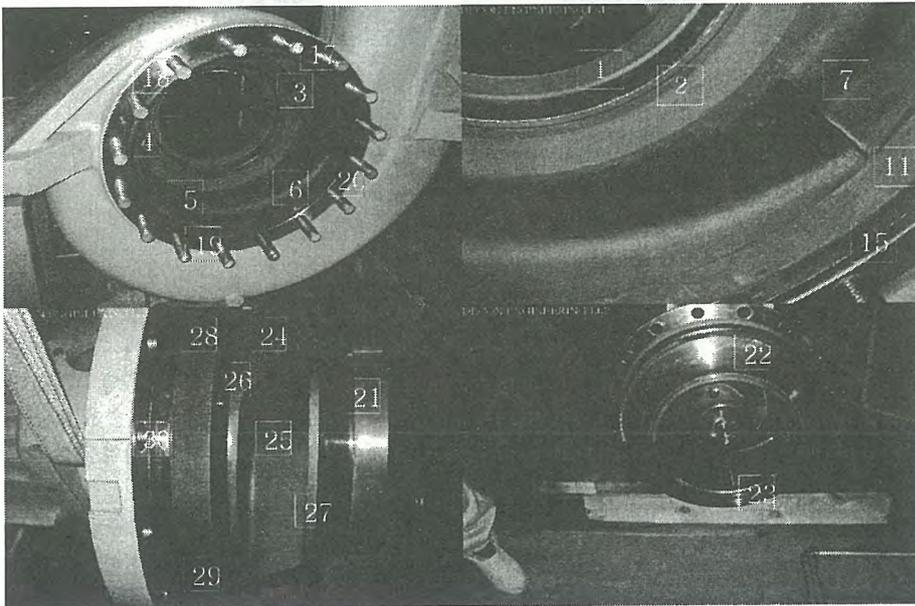


그림 3. 1차 냉각펌프 표면오염도 검사를 위한 Mapping Point(임펠러 분리 후)

제염작업에 앞서, 제염대상 펌프의 토출관 1 Point에 대해 Smear Test를 실시하였으며, 이 측정 시료를 통해 펌프에 존재하는 오염물질의 핵종을 분석하고, 표면오염도를 측정하였다. 그 결과 표면오염도는 2,790 kBq/m<sup>2</sup>를 나타내었으며, 측정시료를 통해 분석한 검출핵종의 결과는 표 2에 수록하였다.

또한 1차 냉각펌프를 제염하기에 앞서 펌프가 설치되어 있는 작업장의 방사선량률을 측정한 결과 10 ~ 100  $\mu$ SV/h 값을 얻을 수 있었다.

표 2. 1차 냉각펌프 표면오염  
도 측정시료 핵종분석

번호	주요검출핵종
1	Co-60
2	Zn-65
3	Nb-95
4	Zr-95
5	Ru-106
6	I-132
7	Ce-141
8	Ce-144

#### 나. 제염제

1차 냉각펌프의 내부는 Stainless Steel로 구성되어 있으며, 내부표면은 부식 및 방식에 내식성을 갖는 산화막(Oxide Layer)층이 형성되어 있다. 제염작업은 하나로 풀(Pool) 상부에서 진행되었으며, 제염대상펌프의 특성상 오염물질이 비산될 수 있는 브라스팅(Blasting)기술은 배제되었으며, 제염대상펌프에 손상을 줄 수 있는 제염방법 또한 배제되었다. 물론 제염계수가 크고, 제염시간 또한 빠른 제염방법을 적용 가능 하였지만, 2차로 발생하는 액체폐기물의 처리를 위해 폐액의 pH가 중요한 제염인자로 작용하였기 때문에 pH가 중성인 DX-300을 사용한 습식화학제염방법이 적용되었다. 또한  $KMnO_4$ ,  $K_2Cr_2O_7$  등의 산화제를 사용한 전처리 역시 폐기물처리가 곤란한 이유로 사용이 제한 및 배제되었다. 제염제로 사용된 DX-300의 성분은 표 3에 요약하여 수록하였다.

표 3. DX-300의 구성성분 및 함유량

Contents	CAS Number	함유량
Sodium Hydroxide	1310-73-2	5 ~ 10 %
Sodium Gluconate	527-07-1	3 ~ 5 %
Build		3 ~ 6 %
Surfactant		5 ~ 12 %
향료		
water		Balance

DX-300의 주요 구성성분은 Sodium Hydroxide와 Sodium Gluconate이며, Sodium Hydroxide는 강한 부식력 및 용해성을 가지며, 특히 금속표면의 가공, 세척 등에 사용된다. Sodium Gluconate는 알칼리성에서 뛰어난 Chelating Power를 갖는 Chelating Agent로써 EDTA, NTA보다 Ca, Fe, Cu, Al 및 다른 중금속과 안전한 킬레이트 화합물을 형성하는 것으로 알려져 있다.

다음의 그림 4와 그림 5는 Sodium Hydroxide의 온도와 농도에 기준으로 하여 Sodium Hydrate 수용액 속에서의 Carbon Steel, Nickel 합금에 대한 부식한계를 나타낸다. 다음의 그림에서도 알 수 있듯이 적용되는 화학제염에 대하여, Stainless Steel로 구성된 1차 냉각펌프의 표면에 부식은 없는 것으로 판단하고 제염작업을 수행하였다.

#### 다. 제염장치

1차 냉각펌프에 존재하는 오염물질은 대부분이 케이싱내의 2중 볼류트에 존재하고 있어 접근이 수월하지 않으며, 구조상 침수상태에서 제염 수행이 불가능하다. 이런 문제점을 해결하기 위해 흡

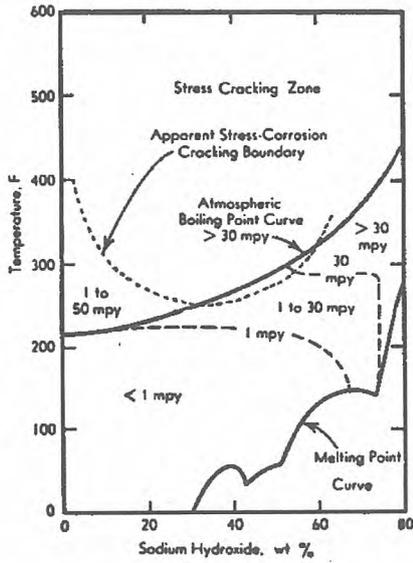


그림 4. Stainless Steel의 부식한계 입부(Suction Chamber)와 토출부(Discharge Chamber)를 밀봉한 상태에서 제염액을 순환시켜 제염할 수 있는 제염장치를 개발하였다.

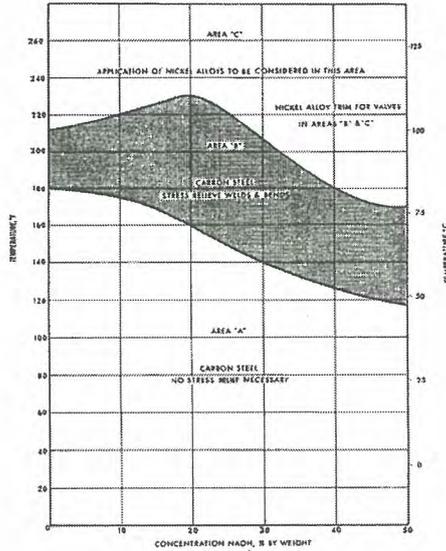


그림 5. Caustic Soda Service Graph

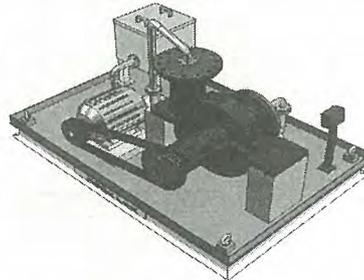
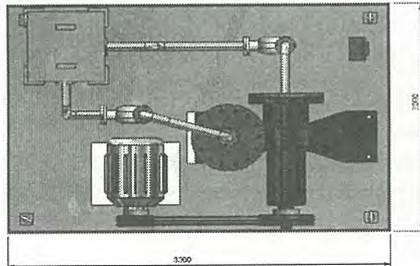


그림 6. 1차 냉각펌프 제염장치 System

표 4. 제염장치의 구성

구 성	성 능	규 격
Motor	제염대상 Pump의 임펠러의 회전	7.5 HP, 6극
제염액순환펌프	제염대상 Pump내의 제염액의 순환	1 HP, 135 ℓ/min
Flange	흡입부, 토출부의 밀봉	12" CLASS 300 ANSI RF (토출부) 14" CLASS 300 ANSI RF (흡입부)
Control Panel	Inverter, Motor, Pump의 제어	-
Inverter	Motor의 회전수 제어	-
제염액보관용기	제염액의 보관/회수	-

본 제염장치는 제염대상펌프의 구동축에 Belt를 연결하여 제염대상펌프의 임펠러를 회전시켜 Pump 내에서의 제염액의 화학반응도를 높여, 유화작용에 의해 표면의 입자성 방사성 물질이 이완 되고, 화학 작용에 의해 부식력과 용해성으로 표면 오염을 제거 할 수 있도록 설계, 제작되었다. 또한 작업자의 피폭을 최소화 할 수 있다는 장점을 갖고 있다.

라. 제염결과 및 분석

(1) 펌프내부

제염작업을 수행하기 위하여, 제염장치를 하나로 홀(Hall) 상부 새핵연료(Fresh Fuel) 저장조 앞에 설치하고, 1차 냉각펌프의 Drain을 개방하여 내부에 잔존하는 냉각수를 모두 제거한 뒤, 토출배관에 Blind Flange를 제거하고, 토출배관을 통해 DX-300 144 ℓ를 제염대상 펌프에 채운 뒤, 토출관에도 Blind Flange를 체결하였다. 또한 펌프내에서 DX-300의 화학반응도를 높이기 위하여, 2개의 원심식펌프를 연결하여, 제염액을 순환시켰다.

1차제염 후, 그림 2에서 선정해 놓은 Point에 대하여 표면오염도를 측정하였다. 그 결과 토출부에 위치하는 Point 6과 15, 17, 18, 19에서 반출표면허용농도( $\beta < 4 \text{ kBq/m}^2$ )의 5~10배를 넘는 오염도를 나타내었다. 이는 펌프의 케이싱이 2중 볼류트로 되어있어 제염액이 토출부의 상부까지 완전하게 채워지지 않았기 때문이었다.

제염액을 전량 회수한 뒤, 제염액의 방사선량을 측정한 결과, 116  $\mu\text{Sv/h}$ 을 나타내었으며, 세척수를 사용하여 펌프의 내부를 세척하고, 새로운 제염액을 채운 뒤, 2차제염을 수행하였다. 2차제염시에는 1차제염에서 발생한 문제점을 해결하기 위하여, Vent Cock를 개방한 상태에서 Impeller를 천천히 회전시키며, 제염액을 채워 넣었다. 제염액을 채운 뒤, 임펠러를 회전시키며, 제염액을 순환시키며, 2차제염을 수행하였다. 2차제염 후, 내부를 세척하고 표면오염도 측정하였다. 표면오염도 측정결과 7개의 Point만이 반출표면허용농도 이상의 값을 나타내었으며, 1차제염시 높은 오염도를 나타내었던 5개의 Point 모두 반출표면허용농도 이하의 값으로 제염되었다. 3차제염 역시, 2차제염과 같은 방법으로 수행되었으며, 제염 후, 모든 Point에 대하여 반출표면허용농도 이하로 제염되었음을 확인하였다.

하지만, 2중 볼류트내에 고선량의 이물질이 있음을 방사선량률 측정을 통해 확인하였고, 이물질을 제거하기 위해, Impeller Assembly를 분리하였다. Impeller Assembly를 분리하기 이전에 접근이 불가능 하였던 케이싱내부가 접근 가능하였지만, 2중 볼류트내는 역시 접근이 용이하지 못하였다. 2중 볼류트내에 존재하는 고선량의 이물질은 접촉식 Tape를 사용하여 제거하였으며, 이물질의 방사선량률을 측정한 결과, 900  $\mu\text{Sv/h}$ 을 나타내었다.

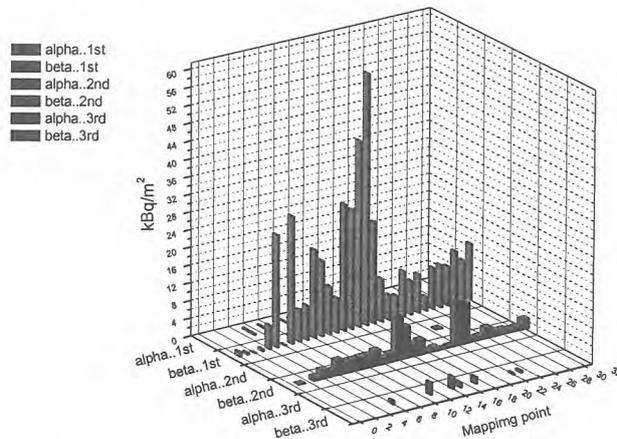


그림 7. 1차 냉각펌프의 내부표면에 대한 제염경향

제염작업 결과 제염제의 유화작용에 의한 입자성 방사선 물질이 이완되어 오염물질이 제거됨을 확인할 수 있었다. 3차 제염이후, 총 350 ℓ의 액체폐기물이 발생하였으며, 약 18시간의 제염작업을 통해 제염 전, 최대 2,790 kBq/m<sup>2</sup>의 오염도가 제염 후, 4 kBq/m<sup>2</sup>이하로 성공적으로 제염되었다.

(2) 펌프외부

외부제염은 내부제염 수행 후, 수행되었으며 Blushing을 통해 표면에 존재하는 오염물질을 이완시키고, 제염액과 제염용지를 사용하여 오염물질을 제거하는 방법으로 수행하였다. 총 24개의 Point에 대하여 표면오염도를 측정하였으며, 5차에 걸쳐 수행되었다. 펌프외부제염의 결과를 살펴보면 그림 8과 같다.

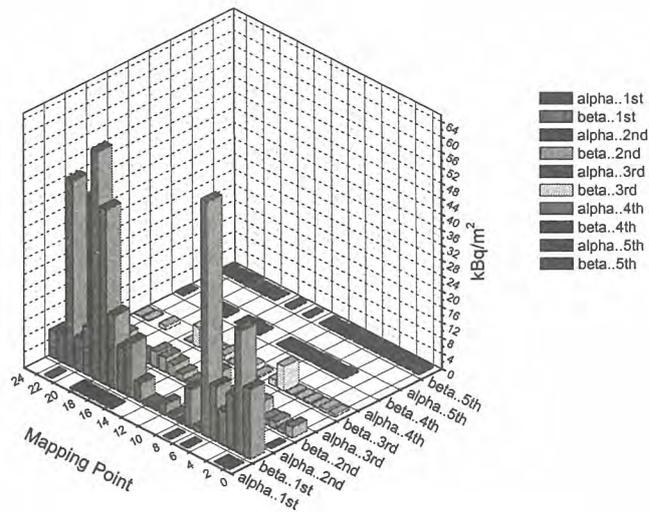


그림 8. 1차 냉각펌프의 외부표면에 대한 제염경향

외부제염의 경우, Impeller와 Nut, Bolt에 Grease가 도포되어 있어 제염작업에 어려움이 있었지만, Nut와 Bolt의 경우는 완전해체하여, 제염액에 침수시켜, Grease를 제거하였다. 외부제염결과 제염용지와 제염액을 사용하여, 24개의 Point에 대하여 반출표면허용농도 이하로 제염이 가능하였다.

또한 펌프내부와 외부의 제염을 마친 결과, 7명의 작업자에 대한 피폭량은 평균 7.88 mR 이하로 나타났다.

3. 결론

하나로 1차 냉각펌프를 제염한 결과 제염제(CX-300)의 유화작용에 의한 입자성 방사선 물질이 이완되는 것을 확인할 수 있었으며, 화학작용에 의해 부식력과 용해성으로 표면오염을 제거 할 수 있었다.

또한 제염장치를 사용함으로써 제염시간을 단축 할 수 있었으며, 작업자의 피폭량 또한 최소화 할 수 있었다. 발생된 액체폐기물 역시 최소화하여 전량 처리 가능 하였으며, 결과적으로 금번 제염을

통해 하나로 1차 냉각펌프는 반출허용기준치 이하로 제염됨으로서 분해수리를 위해 반출이 가능하였다.

펌프내부의 경우, 제염전 2,790 kBq/m<sup>2</sup>의 오염도가 반출표면허용농도인 4 kBq/m<sup>2</sup>이하로 제염되었으며, DF값 또한 약 500을 나타내었다. 펌프외부의 경우 역시, 반출표면허용농도 이하로 제염이 가능하였다. 금번의 제염작업을 통하여 연구용 원자로의 1차 냉각펌프를 제염하기 위한 제염장비와 제염액 및 제염작업 계획의 선정이 타당함을 입증할 수 있었다.

하지만, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>와 같은 산화제를 사용하여 전처리를 수행한 뒤, 화학제염을 시행할 경우, 제염시간을 단축시킬 수 있을 것으로 판단되며, 하나로 출입절차에 따른 제염계획 또한 철저히 준비되어야 할 것이다. 이에 대한 추가의 노력도 진행되어야 할 것이라 판단된다.

#### 4. 감사의 글

본 연구는 하나로 계통관리실의 사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

#### 5. 참고문헌

1. D. R. Diercks, "Chemical Decontamination and Chemical Cleaning of LWR Components and Possible Interactions with Metallurgical Aging Effect" NUREG/CR-5180 (1988).
2. W. Z Oh, et al. "The State of Art on the Radioactive Metal Waste Recycling Technologies" KAERI/AR-474/97.

## 연구로 해체시 발생되는 중성자 조사 흑연폐기물 처리방안 설정을 위한 특성평가

이동규, 정경환, 오원진, 박진호, 이근우

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

연구로 1, 2호기 해체시 많은 양의 중성자 조사된 흑연폐기물이 발생된다. 흑연은 연구로 1호기의 경우 반사체로 2호기의 경우 감속재로 사용되었다. 흑연폐기물은 물리적, 화학적 특성 뿐만 아니라 방사성기체(H-3, C-14 등)의 존재로 인해 다른 해체폐기물과 상이한 특성을 가지고 있기 때문에 별도의 처리방안 필요하다. 중성자 조사된 흑연폐기물의 처리방안으로 저장관리와 감용처리 방법이 고려되고 있다. 중성자 조사에 의해 흑연 내부에는 Wigner 에너지로 불리는 에너지가 축적되어 있어 저장관리시 안전성을 확보하기 위해서는 이의 적절한 처리가 필수적이다. 부피를 획기적으로 감소시킬 수 있는 흑연처리 기술로서 소각이나 열분해와 같은 고온 열처리방법들이 고려되고 있다. 본 연구에서는 연구로 1, 2호기 해체시 발생되는 중성자 조사 흑연폐기물의 적절한 처리방안을 설정하기 위하여 연구로 2호기 흑연의 특성을 평가하였다.

연구로 2호기에서 발생된 중성자 조사 흑연의 방사선학적 특성을 평가한 결과 감마선 방출핵종으로는 Co-60, Ba-133, Cs-134, Eu-152, Eu-154 등이 검출되었으며, 베타선 방출핵종으로는 H-3, C-14, Cl-36 등이 검출되었다.

연구로 2호기 흑연시료의 열용량과 Wigner 에너지 총량을 측정하기 위해 노심과 떨어진 거리(위치)에 따라 중성자의 조사량에 차이가 나는 흑연 시료를 취하였고, 이 각각의 블록(block) 형태 흑연시료를 분말로 만들어 건조기에서 하루 이상을 건조시켜 사용하였다. 중성자가 조사된 흑연의 열용량 변화를 DSC (DSC Q10, TA Instruments)로 측정하였으며 DSC 운전애 선형 온도상승 방법을 적용하여 25°C/min, 10°C/min 속도 하에 일정한 무게의 시료에서 배출되는 열량변화를 측정하였다. Fig. 1에 나타난 바와 같이 Wigner 에너지 저장량은 중성자 조사정도(Thermal Column 내 위치)에 따라 10 ~ 260 J/g이며, 저장에너지는 가열온도 120 °C에서 방출이 개시되어 200 ~ 250 °C 구간에서 최대로 방출된다. 흑연 시료를 온도에 따라 Wigner 에너지가 배출되는 배출 총량을 추정한 결과 343.2°C까지 약 80%의 Wigner 에너지 배출이 이루어지고 400.6°C까지 약 90%의 Wigner 에너지가 배출되는 것으로 나타났다. 또한 저장관리시 가상 화재사고시 주변 온도의 상승으로 인한 Wigner 에너지 영향을 평가한 결과 Wigner 에너지의 방출에 의해 흑연의 과도한 온도 상승에 의한 열적 산화로 화재의 가능성이 있다. 그러므로 중성자 조사된 흑연폐기물의 안전한 관리를 위해서는 400 °C 이상의 가열냉각 공정을 통해 Wigner 에너지를 제거하여야 한다.

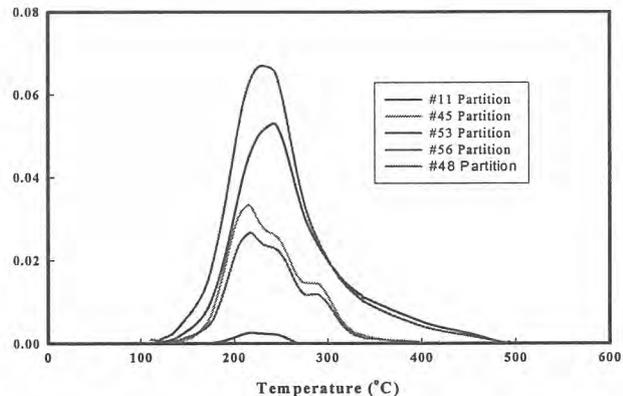


Fig. 1 연구로 2호기 흑연의 Wigner 에너지 방출률

중성자 조사 흑연폐기물의 감용처리 공정 개발을 위하여 연구로 2호기에서 발생된 방사화 흑연의 고온 열분해 특성을 분석하였다. 본 연구의 목적은 소각로나 열분해로와 같은 열처리용 노를 설계하는데 필요한 kinetic 자료를 생성하는 것이다. 또한 노의 온도, 승온속도, 기체조건 등과 같은 기본적인 설계 및 운전 변수들은 GC-MS (gas chromatography-mass spectrometer)

system이 장착된 thermo-gravimetric furnace에서 조사되었다. 실험장치는 gas conditioning system, thermo-gravimetric furnace system (SDT-6120, TA instruments) 그리고 gas chromatography (HP-5890II) - mass spectrometer system (HP-5972)으로 구성되어 있다. 106  $\mu\text{m}$  이하로 분말화된 흑연 시료를 thermo-balancer에 장착시킨 후 conditioning gas를 주입하여 반응로를 1000°C로 가열하였다. 분위기 조성을 위해 주입되는 가스 내 산소 비율을 측정하였고, 분위기 조성 가스 내 산소의 비율이 4%, 12%, 21%, 100% 그리고 0.001% 이하가 되도록 설정하여 5가지의 운전분위기를 조성하였다. 각각의 분위기에 대하여 흑연 시료를 1000°C까지 가열하였으며, 3°C/min, 20°C/min 그리고 100°C/min 등과 같이 승온속도를 달리하여 실험을 실시하였다. 반응로의 배기체 조성은 GC-MS System을 이용하여 분석하였다. Fig. 2는 각각의 승온속도에서 주입되는

분위기 조성 가스 내 산소비율에 따른 흑연시료의 열분해 특성을 나타낸 것이다. 분해반응은 승온속도가 3°C/min일 때는 450°C에서, 20°C/min 일 때는 500°C에서, 그리고 100°C/min 일 때는 600°C에서 시작되었다. 흑연시료의 분해율에 대하여 승온속도는 거의 영향을 미치지 않는 반면 산소 농도는 많은 영향을 받는다.

연구로 2호기에서 발생된 흑연폐기물은 산소가 희박할 경우 분해가 거의 이루어지지 않는다. 그러나 산소가 존재하면 산화반응이 매우 효과적으로 일어남을 확인하였다. 산소 농도가 4% 정도의 적은 비율에서도 불완전 연소 생성물이 거의 생성되지 않았다. 그러므로 소각을 이용하여 흑연폐기물의 부피를 효과적으로 감소시킬 수 있다.

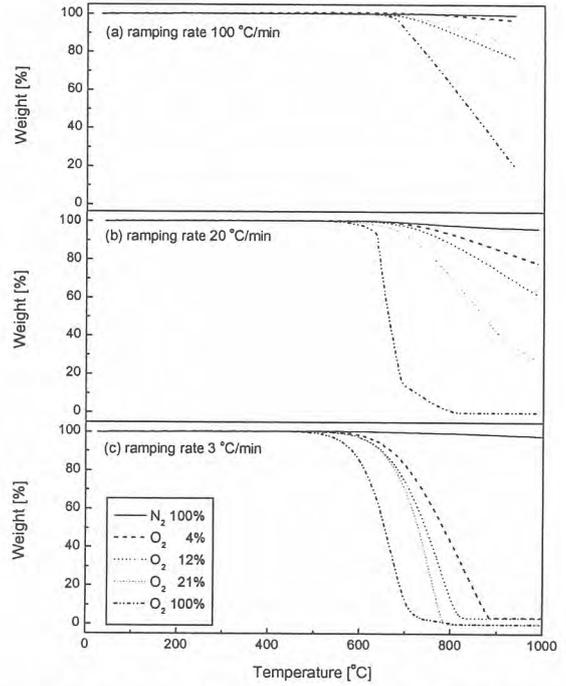


Fig. 2 연구로 2호기 흑연의 가열조건에 따른 부피 감량

## The Separation of Particulate within PFC Decontamination Wastewater Generated by PFC Decontamination

### PFC 제염 후 발생된 제염폐액 내 오염입자의 제거

Gye-Nam Kim , Sung-Yeol Lee, Hui-Jun Won , Chong-Hun Jung, Won-Zin Oh,  
Jin-Ho Park and M. narayan

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

김계남, 이성열, 원휘준, 정종현, 오원진, 박진호, M. narayan  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

#### Abstract

When PFC(Perfluorocarbonate) decontamination technology is applied to removal of radioactive contaminated particulate adhered at surface during the operation of nuclear research facilities, it is necessary to develop a filtration equipment to reuse of PFC solution due to high price, also to minimize the volume of second wastewater. Contaminated characteristics of hot particulate was investigated and a filtration process was presented to remove suspended radioactive particulate from PFC decontamination wastewater generated on PFC decontamination. The range of size of hot particulate adhered at the surface of research facilities measured by SEM was 0.1~10 $\mu$ m. Hot particulate of more than 2 $\mu$ m in PFC contamination wastewater was removed by first filter and then hot particulate of more than 0.2 $\mu$ m was removed by second filter. Results of filter experiments showed that filtration efficiency of PVDF(Poly vinylidene fluoride), PP(Polypropylene), Ceramic filter was 95~97%. A ceramic filter showed a higher filtration efficiency with a little low permeate volume. Also, a ceramic of inorganic compound could be broken easily on experiment and has a high price but was highly stable at radioactivity in comparison of PVDF and PP of a macromolecule which generate H<sub>2</sub> gas in alpha radioactivity environment.

**Key Words** : removal efficiency, permeate volume, ceramic filter, perfluorocarbon, stirred cell

#### 요 약

원자력연구시설의 핫셀 내 바닥이나 장치표면에 부착된 방사성 오염입자의 제거를 위해서 PFC 제염기술을 적용한다. 고가인 PFC 제염용액의 재사용을 위해서는 여과장치의 개발이 필요하고 제염종료 후 이차폐기물의 양을 최소화할 필요가 있다. 여과막을 이용한 입자의 제거효율 측면에서 보면 Ceramic, PVDF, PP 막 모두가 95% 이상의 높은 여과 성능을 보였다. 기공 크기가 같은 동일 여과막에서는 입자가 크거나 공급되는 압력이 높을수록 좀더 성공적인 입자의 제거효율을 나타내었다. 투과 성능은 PVDF 막이 가장 높은 수준을 나타내었고 Ceramic과 PP 막에서는 다소 낮은 성능을 보였다. PVDF 막은 낮은 압력과 짧은 여과시간으로 최대(한계) 투과량에 도달함을 확인하였다. Ceramic 막은 모의입자의 제거효율은 높지만 다소 낮은 투과 성능을 나타냈다. 또한, 막 자체의 비싼 가격과 쉽게 부서지는 성질의 단점을 지니고 있지만 무기화합물의 재질로 되어있기 때문에 알파방사

능 환경에서  $H_2$  가스를 발생하는 고분자 막인 PVDF, PP 막과 비교하여 훨씬 안정적이므로 실제 핫셀에 적용 가능성을 알 수 있었다.

**중심 단어** : 제거효율, 투과량, 세라믹 필터, PFC 용액, 여과장치

## I. 서 론

원자력시설 핫셀(Hot Cell)에서는 사용후 핵연료의 산화환원 및 분쇄공정, 사용후 핵연료의 절단 및 분말화 공정, 사용후 핵연료 금속전환 공정 등을 수행하고 있으므로 핫셀 바닥면과 벽면 그리고 핫셀 내부에 있는 여러 장치표면들이 연구실험 과정에서 발생한 고방사능 분진(Hot Particulate)과 고방사능 핵연료의 조사 등에 의해 오염되어 핫셀 내의 방사능 준위가 높아지고 있다. 그러므로 핫셀 내에서의 핵중실험을 원활히 수행하기 위해서는 주기적으로 핫셀 내부 표면과 장치표면에 오염된 Hot Particulate를 제거하여 핫셀 내의 방사능 준위를 낮추어야 한다. 한편, 표면에 단단히 고착된 Hot Particulate는  $CO_2$  Blasting, 초음파 PFC 제염, 플라즈마 제염 등과 같은 건식제염기술을 사용하여 제거효율을 높일 수 있다<sup>1)</sup>. 특히, PFC(PerFluoroCarbon) 제염기술은 기존의 프레온제염과 유사한 방법으로 고체표면에서 작은 입자를 더욱 효과적으로 제거할 수 있는 건식제염공정의 하나이다. PFC 제염공정은 DuPont 이나 3M사에서 개발한 PFC계 세정제(Vertel 2454, PF-5070)를 주된 세척제로 사용하고 여기에 PFC계 계면활성제를 소량 첨가하여 공정의 제염성능을 증진시킨다<sup>2)</sup>. 또한 금속표면의 고착성 오염물을 처리하기 위하여 PFC 공정과 초음파를 복합한 공정개발이 진행되고 있다. PFC 공정은 미국의 ESI(Entropic System, Inc.)에서 주도적으로 개발되고 있으며, 미국 DOE Savannah River Site에서 보관 중인 Pu-238로 오염된 TRU Waste를 제염하기위한 Sonatol 공정에 적용되었다<sup>3)</sup>.

원자력연구시설의 핫셀 내의 방사성 오염 입자의 제염을 위하여 PFC 제염기술 적용할 때, 제염 종료 후 이차폐기물의 발생을 최소화시키며, 고가인 PFC용액 자체를 회수하여 재사용할 목적으로 PFC 여과장치를 개발할 필요가 있다. 폐쇄공정으로 운영되는 PFC 제염공정은 PFC 용액을 연속 순환하여 사용하게 되며, 제염과정에서 제거된 오염입자가 PFC 용액 내에 존재하여 재오염의 원인이 된다. 그러므로 적합한 여과 막을 사용하여 PFC 용액내의 오염입자를 제거해야 한다. 여과 막에는 여러 종류가 있으며, 여과 막의 오염을 방지하며, 여과 막의 효율을 증가시키기 위하여 최근 새로운 막의 재질<sup>4,5)</sup>과 모듈의 디자인 개발<sup>6)</sup> 그리고 Flow Pattern의 변화<sup>7)</sup> 등의 많은 연구가 진행 중에 있다.

본 연구에서는 PFC 매질 내 현탁성 방사성입자를 제거하기 위해 Hot Particulate 오염특성을 조사한 후 오염특성에 적합한 실험실규모 여과장치를 이용하여 여러 소수성 여과막에 대한 입자 분리특성 및 여과막을 통과한 투과량을 실험하여 실제 적용 가능 타당성을 조사하고자 하였다.

## II. 실험 방법

### 1. Hot Cell 오염 특성조사 및 모의 입자 선정

기초 여과실험 수행에 이용할 모의 입자들의 크기 선정을 위해서 핫셀 내의 오염 입자들을 채취하여 그 크기 분석하였다. 한국원자력연구소 연구시설에 보관된 사용 후 핵연료 소결립의 크기를 광학현미경(OM)으로 측정하였고, DUPIC 산화환원공정과 사용 후 핵연료 절단 및 파괴 공정 후의 Hot Particulate의 크기를 SEM을 이용하여 분석하였다. 또한, 사용 후 핵연료 피복관 주변 CRUD Particulate의 크기를 SEM으로 측정한 결과 Fig. 1과 같이 핫셀 내부의 오염입자들의 크기 분포는  $0.1 \sim 10 \mu m$ 임을 알 수 있었다. 한편, 각 연구시설 Hot Cell에서 발생하는 Hot Particulate 성분을 EDS로 분석결과  $UO_2$ ,  $U_3O_8$ , Cs-137, Cs-134, Ru-106, Ce-144, Eu-154의 방사성 핵종으로

구성되어 있었다.

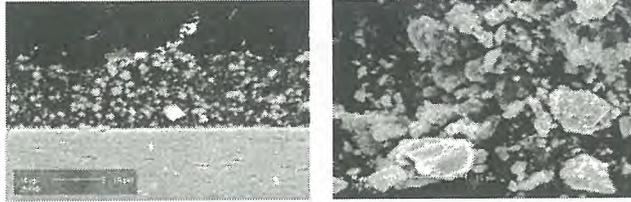


Fig. 1. SEM images of particulate

또한, PFC 제염폐액에 대한 여과공정은  $2\mu\text{m}$  이상의 입자들은 Pre-filter를 거쳐서 큰 사이즈 Hot Particulate를 먼저 제거한 후 다음 final filter에서  $0.2\mu\text{m}$  이상의 작은 미세한 입자들을 제거하는 공정으로 필터 모양은 실린더 형이고 가압을 위해 펌프를 후미에 부착시킨다. 여과실험에 사용할 모의입자는 조사된 Hot Particulate 크기에 근거하여  $0.3, 1, 2\sim 3\mu\text{m}$  크기의  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 와  $5\mu\text{m}$ 의  $\text{TiO}_2$  입자로 선정하여 여과실험을 수행하였다.

## 2. 여과막 특성 실험

PFC 매체가 소수성이므로 본 여과실험에 사용할 막으로 소수성 막을 선택하였고 미국 Sonatol 공정에서 사용한 세라믹 막 외에도 PTFE, PP, PVDF를 선택하여 각각의 막에 대해 입자의 제거 효율과 투과량에 대한 영향을 파악하였다. 여기서 투과량은 각각의 여과시간에 sampling하여 그 누적량을 기준으로 하였다. 기초 여과실험을 위한 여과장치를 Stirred Cell Model 8050로 선정하였고 여과 실험장치의 공정도를 작성하였다(Fig. 2). Stirred Cell 안에 장착하는 막의 직경은  $44.5\text{mm}$ 이고 Stirred Cell이 견딜 수 있는 최대 압력은  $75\text{psi}$  이고 최대용량은  $50\text{mL}$ 이다. 유사 PFC 제염폐액은 모의입자  $3\text{g}$ 을 PFC 용액에 혼합하여 만들었다. PFC 혼합용액의 pH는 4이고 온도는 상온(약  $20^\circ\text{C}$ )에서 수행하였다. PFC 혼합용액 내의 모의입자 질량과 여과 막을 통과한 PFC 혼합용액 내의 모의입자질량을 비교하여 제거효율을 산정하였고, 여과 막에 잔류한 모의입자 질량을 측정하여 제거효율을 검증하였다. 이때 여과 막 표면 및 여과 막을 통과한 PFC 혼합용액 내의 모의입자 무게는 여과실험 후 건조기에서  $60^\circ\text{C}$ 의 온도로 10시간 이상 건조 후 측정하였다. 여과 실험 시 Stirring 함으로써 PFC 매질 내 현탁성 입자들의 분포를 골고루 하여 여과 수행할 수 있었다. 효과적인 여과를 위하여  $\text{N}_2$  가스로 가압을 하였고 가압하는 경우 Stirred Cell의 흔들림을 방지하기 위하여 Retaining Stand Assembly를 부착할 수 있다. PFC 여과 실험 공정도는 PFC와 PFC 계면활성제 그리고 오염입자가 포함된 혼합 탱크로부터 여과막이 장착이 된 Stirred Cell 안으로 PFC 제염 폐액이 투입이 된다.

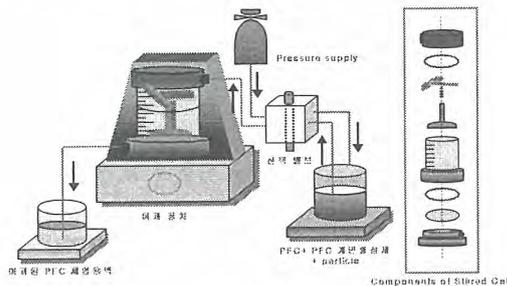


Fig. 2. Process diagram of PFC filtration equipment

### III. 실험결과 및 고찰

#### 1. Removal Efficiency

본 여과실험에서 입자의 제거효율은 비어있는 Stirred Cell의 무게와 투입한 모의 입자의 정확한 양을 계산하여 여과실험 후 건조기에서 60℃의 온도로 10시간 이상 건조 후의 Stirred Cell의 무게를 측정하여 산정하였다. 막의 기공크기가 0.2 $\mu\text{m}$ 인 PTFE, PP, PVDF, Ceramic( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) 막을 이용하여 7 psi로 투과속도를 고정시키고 5분 동안의 여과 실험 후 각각의 막에 대한 입자의 제거효율을 Fig. 3에 나타내었다. Fig. 3에서 알 수 있듯이 PTFE, PP, PVDF 막에서의 제거효율은 실험 오차 수준에서의 차이가 있을 뿐 97%이상의 높은 제거효율을 보였다. Ceramic( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) 막은 다른 막들과 비교해서 다소 낮은 95% 이상의 제거효율을 보였지만 선정된 모든 막은 오염입자를 제거하는 성능에서는 문제가 없는 것으로 나타났다.

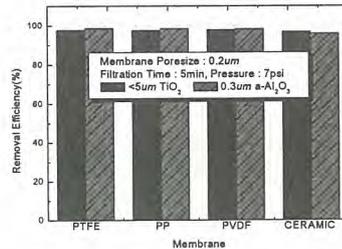


Fig. 3. Removal efficiency of simulation particulate on selected filter

#### 2. Permeate Volume

오염 입자의 여과를 위한 여과 막의 선정을 위해서 각각의 막에 대한 제거효율 외에도 각각의 막에 대하여 투과한 양을 측정하여 제거효율과 견주어 고려함으로써 적절한 여과 막을 선정하고자 했다.

##### ① Ceramic( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) 막

미국 DOE Savannah River Site에서 보관 중인 Pu-238로 오염된 TRU Waste를 제염하기 위한 Sonatol 공정에서는 PFC 오염폐액으로부터 Pu-238 입자의 분리 제거하기 위해 세라믹 여과 막을 사용했다. 무기물로 된 세라믹 막은 일반적으로 사용되고 있는 유기화합물로 된 고분자 막보다 알파방사능 환경에서 안정함을 보이기 때문이다. 따라서 본 여과실험은 세라믹 막을 이용하여 투과량과 입자 크기와의 관계를 파악하여 여과실험의 최적 조건을 찾고자 하였다. Fig. 4(a)는 모의입자의 크기에 따라서 0.2  $\mu\text{m}$ 의 세라믹 막에 대해 투과량의 영향을 알아보기 위해 5psi로 일정한 압력을 주어 실험한 결과를 보여준다. 제염용액 내 입자의 크기가 작을 경우 입자가 큰 경우에 비해 투과량은 적게 나타났으며 실험 대상 입자의 크기 차이가 투과량에 영향을 미친다는 것을 보여주고 있다. 즉, 2~3 $\mu\text{m}$ 와 5 $\mu\text{m}$  입자에 대한 여과실험 결과 보다 낮은 압력에서도 보다 많은 투과량을 보였다. 이것은 미세한 입자들이 막의 표면에 Cake를 형성하여 Filtration Resistance를 증가시키기 때문으로 판단된다<sup>8)</sup>. 세라믹 막을 사용하였을 경우 제거효율은 전반적으로 타 여과 막과 비슷한 성능을 보였지만 투과량은 다소 적은 경향을 나타내었다.

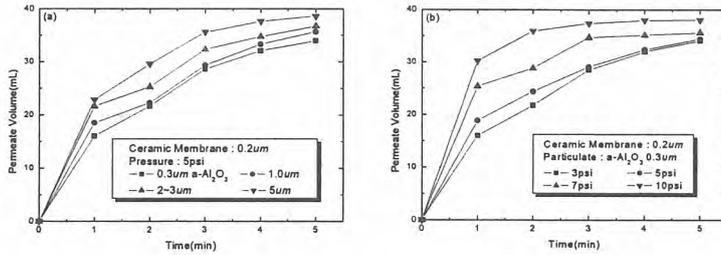


Fig. 4. Permeate volume of simulation particulate by ceramic filter

여기서 최초로 투입한 PFC 오염폐액이 모두 빠져 나오지 못한 이유는 Stirred Cell 안에 남아 있는 입자들 표면에 오염폐액이 묻어 있는 경우와 아주 미세한 입자들이 막의 기공 표면에 부착되어 Membrane Blockage 가 형성되는 것으로 생각되고 이러한 현상은 또한 입자의 여과 시 제염용액의 여과 성능을 떨어뜨리는 것으로 판단된다. Final Filtration을 위해 0.2 μm 세라믹 막을 사용하였을 경우 0.3 μm의 모의입자의 여과를 위해 10psi 이상으로 가압을 해야 90% 이상의 투과량을 얻을 수 있었다(Fig. 4(b)).

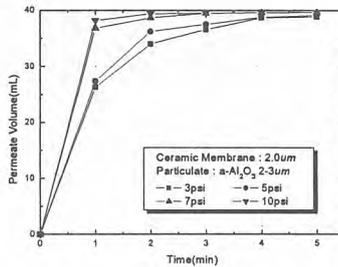


Fig. 5. Permeate volume of simulation particulate by ceramic pre-filter

Pre-filtration을 위해 Fig. 5는 Fig. 4과 비교하여 막의 기공 크기가 2.0 μm이고 여과실험에 이용한 모의 입자 α-Al₂O₃의 크기 또한 2~3 μm로 좀 더 굵은 입자 경우 투과량의 영향을 알아보고자 했다. 0.2 μm 세라믹 막을 사용했을 경우보다 투과량은 전체적으로 높았고 모의입자의 여과를 위해 5 psi 이상으로 가압을 하면 90% 이상의 투과량 성능을 얻을 수 있었다.

② PP(Polypropylene) 막

Fig. 6(a)는 PFC 제염용액 내에 모의 입자로 α-Al₂O₃의 존재 시 PP 막을 이용하여 여과시간의 경과에 따른 입자크기별 투과량을 측정된 결과이다. 좀 더 큰 입자의 여과 시 비교적 작은 입자의 여과실험과 비교해서 다소 빠른 시간에 최대(한계) 투과량을 얻을 수 있었다. PP 막을 사용하였을 경우 제거효율은 PVDF 막과 비슷한 성능을 보였지만 투과량은 PVDF 막 보다 적었다. 0.3 μm의 모의입자의 여과를 위해 0.2 μm 세라믹 막을 사용하였을 경우 7psi 이상으로 가압을 해야 90% 이상의 투과량을 얻을 수 있었다(Fig. 6(b)). Pre-filtration을 위해 기공 크기가 2.0 μm인 여과막을 사용하여 2~3 μm 모의입자에 대한 투과량 성능을 측정된 결과 0.2 μm PP 막 보다 투과량은 전체적으로 높았고 세라믹 막의 경우처럼 모의입자를 위해 5 psi 이상으로 가압을 하면 90% 이상의 투과량을 얻을 수 있었다(Fig. 7).

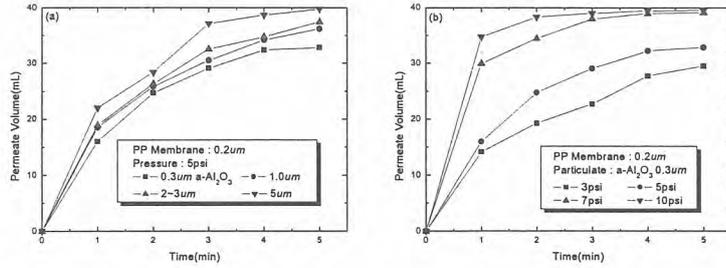


Fig. 6. Permeate volume of simulation particulate by PP filter

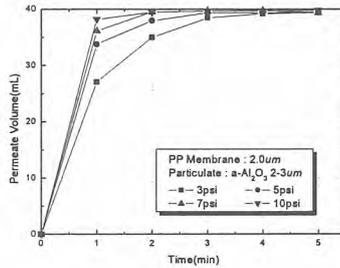


Fig. 7. Permeate volume of simulation particulate by PP pre-filter

③ PVDF(Poly vinylidene fluoride) 막

PVDF 막에서 5psi의 일정한 압력 하에 모의입자의 크기를 변화시켜가며 시간에 따른 투과량의 변화를 확인하였다. Fig. 8(a)에서 보는 바와 같이 시간이 증가함에 따라 전반적으로 투과량도 함께 증가하고 있으며 PFC 오염폐액 내에 모의입자가 클수록 투과량 성능은 높았다. 한편 앞에서 실험한 세라믹 막이나 PP막 보다 동일 실험조건에서 투과량이 높았다. PVDF(0.2 $\mu$ m) 막에서 여과 시간의 경과에 따라 공급 압력별 PFC 제염용액에 대한 투과량을 측정할 결과 PFC 제염용액 내에  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 입자(0.3  $\mu$ m)의 존재 시 여과 시간이 증가함에 따라 투과량이 증가하였고 비교적 낮은 3psi로 압력을 가하였을 경우 최대(한계) 투과량에 도달하는 시간이 5분 정도 걸렸으며 5 psi 이상으로 압력을 가했을 경우에는 3분 정도 지나면서 최대(한계) 투과량에 도달함을 확인하였다 (Fig. 8(b)). 입자의 여과실험 수행에 있어서 100%의 투과성능에 도달하지 못한 것은 막의 기공 표면에 미립자가 흡착이 되어 입자의 여과를 방해한 것으로 판단된다.

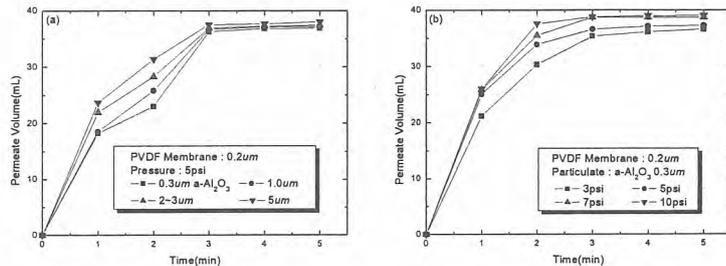


Fig. 8. Permeate volume of simulation particulate by PVDF filter

Pre-filtration을 위해 기공 크기가  $2.0\mu\text{m}$ 인 여과막을 사용하여  $2\sim 3\mu\text{m}$  모의입자에 대한 투과량 성능을 측정한 결과  $0.2\mu\text{m}$  PVDF 막 보다 투과량은 약간 많았고 모의입자를 위해 3 psi 이상으로 만 3분 이상 가압하여도 90% 이상의 투과량 성능을 얻을 수 있었다(Fig. 9).

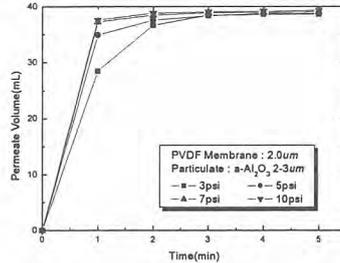


Fig. 9. Permeate volume of simulation particulate by PVDF pre-filter

#### IV. 결 론

PFC 제염 시 발생하는 현탁성 방사성입자 PFC 용액으로부터 제거하기 위해 먼저 Hot Particulate 오염특성을 조사하고 입자크기와 압력변화에 따른 여과성능을 살펴보았다. SEM에 의하여 핫셀 내 Hot Particulate의 크기 분포는  $0.1\sim 10\mu\text{m}$ 임을 알 수 있었다. PFC 오염 용액은 Pre-filtration에서  $2\mu\text{m}$  이상의 큰 Hot Particulate 입자들을 먼저 제거한 후 Final Filtration에서  $0.2\mu\text{m}$  이상의 작은 미세한 입자들을 제거하며, 필터 모양은 실린더 형을 사용한다. 여과실험 결과 모의 입자의 제거효율 측면에서 보면 PVDF, PP, Ceramic 막 모두가 전반적으로 95~97%의 여과 성능을 보였다. 서로 같은 막의 기공 크기에서 모의 입자의 크기가 작은 것 보다 클수록 가하는 압력이 높을수록 좀더 효과적인 제거효율을 나타내었다. 이는 모의입자의 크기가 더욱 미세하고 낮은 압력으로 여과를 수행할 때 Membrane Blockage 가 형성되기 때문이며, 실험 압력조건보다 약간 더 높은 압력에 의한 여과 실험의 수행이 요구된다. 또한, PVDF 막은 세라믹 막이나 PP막 보다 동일 실험조건에서 투과량이 약간 더 높았다. 이와 같이 세라믹 막은 모의입자의 제거효율과 투과량은 높고, 실험 시 부셔지지 않게 주의해야하며, 구매가격은 높은 편이다. 그러나 무기화합물인 세라믹 막은 알파방사능 환경에서 불안정한 폴리머계의 PVDF, PP 막과 비교하여 훨씬 더 안정하다. 최적 여과 막 결정시 Hot Particulate에 의한 알파방사능 환경에서 여과 막의 안정성은 중요한 요소 중의 하나이다.

#### 참고 문헌

1. Archibald, K.E. : CO<sub>2</sub> Pellet Blasting Literature Search and Decontamination Scoping Tests Report, WINCO-1180 (1993)
2. Kaiser, R. and Benson, C. E. : Decontamination by Cleaning with by Fluorocarbon Surfactant Solutions, ORNL/TM-12444 (1994)
3. Desrosiers, A. E. and Kaiser, R. : Separation and Extraction of Plutonium in Mixed Waste, Bartlett Services, Inc., Plymouth, MA, USA, DE-AC26- 01NT41308 (2002)
4. Wang, P., Tan, K.L., Kang, E.T., and Neoh, K. G. : Plasma-induced Immobilization of Poly(ethylene glycol) onto Poly(vinylidene fluoride) Microporous Membrane, J. Membr. Sci.

- Vol. 195, pp. 103-114 (2002)
5. Brink, L.E.S., Elbers, S.J.G., Robbertsen, T., and Both, P. : The Anti-fouling Action of Polymers Preadsorbed on Ultrafiltration and Microfiltration Membranes, J. Membr. Sci. Vol. 76, pp.281-291 (1993)
  6. Bai, R.B. and Leow, H.L. : Modeling and Experimental Study of Microfiltration Using a Composite Module, J. Membr. Sci. Vol. 204, pp.359-377 (2002)
  7. Yamamoto, K., Hiasa, M., Mahmood, T., and Matsuo, T. : Direct Solid-liquid Separation Using Hollow Fiber Membrane in an Activated Sludge Aeration Tank, Water Sci. Technol. Vol. 21, pp. 43-54 (1989)
  8. Chang, I.S., Clech, P.L., Jefferson, B., and Judd, S. : Membrane Fouling in Membrane Bioreactors for Wastewater Treatment, J. Environ. Eng. Vol. 128, pp. 1018-1029 (2002)

## Review for Items of Decommissioning Plan and Standard Review Plan

### 해체계획서 및 심사지침서 항목에 관한 고찰

H.S.Kim, J.K.Son, K.R.Park, K.D.Kang, K.D.Kim, J.H.Ha and C.W.Jeong\*  
Nuclear Environmental Technology Institute, P.O.Box 149, Yuseong, Daejeon  
\*Korea Institute of Nuclear Safety, P.O.Box 114, Yuseon, Daejeon

김학수, 손중권, 박경록, 강기두, 김경덕, 하종현, 정찬우\*  
원자력환경기술원, 대전광역시 유성우체국 사서함 149  
\*한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성우체국 사서함 114

[hskim007@khnp.co.kr](mailto:hskim007@khnp.co.kr)

#### Abstract

The licensees are to submit the decommissioning plan to regulatory body to decommission nuclear facilities. The standard review plan(SRP) of decommissioning is used to confirm and evaluate the decommissioning plan by the related regulations and standards. The licensees who want to decommission the nuclear facilities are required to submit the decommissioning plan according to Acts 31 of Atomic Energy Law. In this study, the items of reports and documents submitting to regulatory body were reviewed deliberately, and finally the major sub-items of decommissioning plan were established.

**Key word** : Decommissioning Plan, Decommissioning Standard Review Plan

#### 요약

원자력발전소 운영자는 원자력시설을 해체하고자 할 때 규제기관에 해체계획서를 제출하게 된다. 해체심사지침서는 제출된 해체계획서가 관련 규정 및 기준에 적합하게 작성되어 있는지를 확인하고 평가하기 위하여 사용된다. 국내 원자력법 제31조에는 원자로운영자가 원자력 시설을 해체하고자 할 때에 해체계획서를 제출하도록 요구하고 있다. 본 연구에서는 해체계획서 작성항목별 상세 항목을 도출하기 위해 국외에서 원자력시설을 해체할 경우에 인허가 기관에 제출하는 보고서의 작성항목들을 검토하여 각 항목별 주요 기술사항을 도출하였으며, 또한 해체계획서의 작성 내용들이 관련 규정이나 기준에 적합하게 작성되었는지를 확인하기 위한 해체심사지침서(안)을 도출하였다.

**중심어** : 해체계획서, 해체심사지침서

#### 1. 서론

원자력분야에서 “해체(Decommissioning)”는 원자로 및 원자력 관련시설의 운영 정지 후 방사선 및 비방사선의 영향으로부터 작업자와 일반대중의 보건 및 안전의 확보와 주변 환경의 보호를 위하여 취해지는 모든 기술적, 관리적 행위 일체를 의미한다. 전 세계적으로 신규원전 건설의 침체

와 기존 원전의 운전정지 시점이 도래함에 따라 원자력 시설의 제염/해체, 방사성물질 및 부지 재활용에 대한 관심이 집중되고 있으며, 상당한 수의 원자로들이 이미 해체되었거나 해체를 진행중에 있다. 원자력시설의 해체는 원자력 관련시설을 보유하고 운영하고 있는 국가로서 필연적으로 해결해야 하는 당면 과제이므로 이를 수행함에 있어서 정부의 정책방향, 안전규제제도, 안전성 확보방안, 기술능력 및 경제적 사항들이 고려되어야 하며, 이를 효과적으로 수행하기 위해서는 필요정책 및 전략 수립, 법령정비, 지침 및 기술기준 개발 그리고 여론 수렴 등이 적절하게 이루어져야 한다. 국내의 경우 향후 다가올 원자력시설의 해체를 효율적으로 준비하기 위해서는 필요한 정책 수립, 규제제도, 관련 기술기준개발 등에 관한 연구가 필요한 시점이다. 따라서 원자력발전소를 운영하는 사업자 측면에서 원자력법 제31조에서 요구하는 해체계획서 작성 내용을 검토할 필요가 있으며, 더불어 이를 확인하고 평가할 수 있는 해체심사지침서의 주요 심사항목 및 심사내용을 제시하였다.

## 2. 해체계획서 작성 항목

### 가. 원자력법 제31조 해체계획서

국내 원자력법 제31조(발전용 원자로 및 관계시설의 해체)에는 발전용 원자로운영자가 발전용 원자로 및 관계시설을 해체하고자 할 때에는 발전용 원자로 및 관계시설의 해체계획서(이하 "해체계획서"라 한다)를 작성하여 미리 과학기술부장관의 승인을 얻어야 하며, 이를 변경하고자 할 때에도 또한 과학기술부장관의 승인을 얻어야 한다고 언급하고 있다. 다만, 과학기술부령이 정하는 경미한 사항을 변경하고자 하는 때에는 이를 과학기술부장관에게 신고하여야 한다고 기술되어 있다. 따라서 발전용 원자로운영자가 발전용원자로 및 관계시설을 해체하고자 할 때에는 상기 규정에 의해 해체계획서를 작성하여야 하며 이에 대한 주요 기술 내용은 동법에 다음과 같이 기술되어 있다.

- 발전용 원자로 및 관계시설의 해체방법 및 공사일정
- 방사성물질 및 그에 의한 오염의 제거방법
- 방사성폐기물의 처리·처분방법
- 방사선으로부터의 재해를 방지하는데 필요한 조치
- 방사성물질 등이 환경에 미치는 영향의 평가 및 그 대책
- 발전용 원자로 및 관계시설의 해체에 관한 품질보증계획
- 기타 과학기술부장관이 정하는 사항

### 나. 해외 사례

#### ○ 미국

원자력관련 시설을 해체하고자 하는 사업자는 미국연방법 10CFR50.82(a)(4)(i)에 따라 "정지후 해체활동보고서(PSDAR : Post-Shutdown Decommissioning Activity Report)"와 "운영허가종료계획서(LTP : Licensing Termination Plan)"을 규제기관인 원자력 위원회(NRC)에 제출하도록 규정하고 있다. PSDAR 작성 항목으로는 1)운영허가자가 계획한 해체 활동 개요, 2) 계획된 해체 작업 일정, 3)운영허가자가 계획한 해체활동에 대한 비용 및 기금의 보증 그리고 4)기존의 환경영향보고서와 비교하여 계획한 해체 활동에 따른 환경영향 평가 등이 있다. 운영허가자가 계획한 해체활동 개요 작성 목적은 NRC와 일반대중에게 운영허가자가 계획한 해체 활동에 대한 전반적인 정보를 제공하며, 실시되었거나 혹은 수행할 특정 공정에 대한 내용을 제공하고, SAFSTOR이나 DECON과 같은 해체 방법 및 해체 과정에서 수행할 주요 활동내용을 기술하며, 해체 과정에서 수반되는 제염기술과 그에 따른 공정 및 장치활용 내용을 제공한다. 계획된 해체 작업 일정에는 NRC와 일반 대중에게 해체 활동에 관한 예상되는 시간계획에 대한 정보를 제공하며, NRC가 적절한 감독활동을 수행하는데 필요한 정보를 제공한다. 일정표나 도표를 통해 작업자, 공중 및 환

경 혹은 어떤 장치에서 고려되어야 할 잠재적인 위험요소들을 포함하여 주요 해체 활동에 대해 예상되는 작업일정계획을 나타내야 하며, 또한 핵연료 인출 내역서의 제출, ISFSI의 승인 및 허가, 주요 구성물의 수송에 관련된 허가활동 또는 허가종료계획의 승인 등에 관한 작업일정계획과 같이 NRC의 인허가에 영향을 줄 수 있는 주요활동 등이 기술된다. 또한 예상해체 비용 평가에서는 계획된 해체 활동을 근거로 예상 해체비용 평가내용을 기술한다. 마지막으로 환경영향에는 구체적인 해체활동 등을 포함하여 부지 특성 해체 활동에 따라 잠재적으로 발생 가능한 환경에 대한 영향을 평가한다. 잠재적인 영향에는 방사성 및 비방사성 물질에 대한 영향을 모두 포함해야 한다. 아래 표 1에는 Haddam Neck 발전소와 Millstone 1 발전소의 PSDAR 내용을 보여주고 있다.

표 1 PSDAR 작성 항목

Haddam Neck 발전소	Millstone 1 발전소
1. Introduction	1. Introduction
2. Description of Planned Decommissioning Activities • Decommissioning Activities and Planning • Planning Activities(Prior to Submittal of the PSDAR) • Plant Dismantlement	2. Overview of PSDAR 3. Description of Planned Decommissioning Activities • Planning • Site Characterization • Decontamination • Waste Management
3. Major Decommissioning Activities • Reactor Vessel and Internals • Steam Generators, Pressurizer • Reactor Coolant System and Other Large Bore Piping • Containment and Spent Fuel Pool	• Major Decommissioning Activities • Other Decommissioning Activities • Storage of Spent Fuel • Final Site Survey and Termination of License • Site Restoration
4. Other Decommissioning Considerations • Chemical Decontamination of Primary Coolant Systems • General Decommissioning Activities : Removal of Radiological Components & Structures • Decontamination/Dismantlement Methods • Special or Unusual Programs • Removal of LLW and Compaction or Incineration • Soil Remediation • Processing and Disposal Site Locations • Removal of Mixed Wastes • Storage/Removal of Spent Fuel and GTCC Waste	4. Schedule for Decommissioning Activities • Planning and Preparation Period • Decommissioning Operations and License Termination Period • SAFSTOR Period • Site Restoration Period
5. Site Restoration	
6. Schedule for Decommissioning Activities	
7. Estimate of Expected Decommissioning Costs	5. Decommissioning Cost Estimate
8. Environmental Impacts	6. Environmental Impacts • Radiation Dose to the Public • Occupational Radiation Exposure • Low-Level Radioactive Waste Burial Volume • Non-Radiological Environmental Impacts • Additional Considerations
9. References	7. References

NRC는 해체와 관련된 각종 활동에 대한 방법과 절차를 기술한 Draft Regulatory Guide DG-1067 "Decommissioning of Nuclear Power Reactors"에서 발전용 원자로의 해체를 크게 초기 활동, 주요 해체 및 저장 활동, 허가종료 활동의 세 단계로 나누고 있다. 이중 세 번째 단계인 허가종료 활동에 대해 10CFR50.82(a)(9)에 의하면 LTP를 작성하여 NRC에 제출하여 검토 및 승인을 받도록 규정하고 있다. 표 2에는 LTP 작성 항목과 기술 내용을 보여주고 있다.

표 2 LTP 작성항목 및 기술 내용

항 목	기 술 내 용
1. 개요 (일반적인 정보)	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 제한 또는 비제한 부지개방을 위한 방사선 기준</li> <li>○ 방사선 기준에 대한 정보 기술                             <ul style="list-style-type: none"> <li>• 부지특성</li> <li>• 잔여부지해체 작업명시</li> </ul> </li> <li>• 개방을 위한 최종방사선 조사세부 계획</li> <li>• 부지 복구계획</li> <li>• 운영허가 종료를 위한 방사선 기준 확인 방법</li> <li>• 환경영향 평가</li> </ul>
2. 부지특성	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 구조물, 계통, 기기, 잔재, 토양, 표층 및 지하수를 포함하는 부지 방사성 오염 범위와 분포를 결정하기 위한 내용</li> </ul>
3. 부지 잔여 해체 활동 확인	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 제염 및 해체와 관련된 작업, 처분이나 처리를 위해 운반될 방사성 물질의 양 평가</li> <li>○ 재오염 방지를 위한 관리계획</li> <li>○ 작업자 피폭 평가와 방사성폐기물의 특성</li> <li>○ 추후 복구가 필요한 구역과 기기에 대한 상세설명</li> <li>○ 검토되지 않은 안전성 문제나 설비 기술규격의 변경내용</li> </ul>
4. 부지 복구계획	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 설비 및 부지를 어떻게 복구할 것인가에 관한 내용                             <ul style="list-style-type: none"> <li>• 구조물, 계통 및 표토/토양하부 그리고 지표수 및 지하수의 복구 방법</li> <li>• 특히, 제한적 개방의 경우에는 적용되는 선량모델링 계획 및 제도적 관리 내용 기술</li> </ul> </li> </ul>
5. 최종 방사선 조사 계획	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 제한/비제한 개방시 방사선 기준 만족여부 확인을 위한 최종 방사선 조사 계획</li> <li>○ Derived Concentration Guidelines(DCGLs), 주요 오염, 계측이 어려운 핵종을 조사하기 위한 방법 등</li> </ul>
6. 허가종료를 위한 방사선기준 충족	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 부지활용(제한, 비제한 및 제3의 기준에 의한 개방)에 따른 방사선 기준 준수 방법 제시                             <ul style="list-style-type: none"> <li>• 방사선원향 결정</li> <li>• 피폭경로확인 및 개념적 모델</li> <li>• 부지사용계획 기술</li> <li>• 선량계산(1000년간 0.25 mSv 이하)</li> <li>• 불확실도 및 민감도 계산</li> </ul> </li> </ul>
7. 부지특성 Decommissioning 비용 갱신	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 잔여 Decommissioning 비용에 대한 산정 및 지출비용</li> <li>○ Decommissioning 비용 평가시 고려사항                             <ul style="list-style-type: none"> <li>• 우연적인 요소를 포함한 비용 예상</li> <li>• 주요 Decommissioning 활동 및 작업</li> <li>• 단위작업당 비용 요소(Unit cost factors)</li> <li>• 기기 및 구조물의 제염 및 제거시의 비용 산정</li> <li>• 처분 부지로의 적재를 포함한 폐기물 처분비용 산정</li> <li>• 최종 추정비용 산정</li> <li>• 총비용산정</li> </ul> </li> </ul>
8. 환경보고서의 첨부 사항	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 부지특성에 따른 종료활동에 관련한 주요 환경변화 기술                             <ul style="list-style-type: none"> <li>• 부지특성에 따른 종료활동에 의한 영향의 상세한 설명</li> <li>• 기준에 분석된 종료활동의 영향과의 비교</li> <li>• 부지특성 활동에 따른 환경영향의 분석</li> </ul> </li> </ul>

○ 일본

원자로 시설 해체 조치에 관한 기본 방침은 1981년 6월에 원자력위원회가 책정한 “원자력의 연구, 개발 및 이용에 관한 장기계획”에 그 기본 방침을 처음으로 나타내었다. 해체와 관련된 법규에 따라 원자로를 해체하고자 하는 신청자는 성명 및 주소, 법인은 대표자 성명, 해체에 관련된 시설 및 사업소의 명칭/소재지, 해체 방법 및 공사공정표 그리고 핵연료 물질 및 핵연료 물질로 오염된 물질의 처분방법 등을 포함하여 아래 표 3에 항목을 포함하는 내용을 작성하도록 하고 있다.

표 3 원자로 시설 해체를 위한 기본 작성 항목(일본)

항목	내용
1. 원자로 기능 정지 조치	가. 원자로에서의 핵연료 등의 제거 나. 핵연료 등의 조치
2. 해체중인 원자로 시설의 유지관리	가. 보안을 위한 필요 조치 (1) 불법 접근 등의 방지조치 (2) 해체중인 원자로 시설의 유지 조치 (3) 방사선 모니터링 나. 건물, 구조물 등의 유지관리 다. 핵연료의 취급 및 저장에 대한 시설 유지관리 라. 방사성폐기물의 폐기에 대한 시설 유지관리 마. 방사선 관리에 대한 시설 유지관리 바. 해체중에 필요한 그 밖의 시설에 대한 유지관리 (1) 환기시설 (2) 전원시설 (3) 그 밖에 시설 사. 화재방지 아. 시험 점검
3. 해체 철거 작업에서의 안전 확보	가. 방사성물질 평가 (1) 방사성물질 평가 (2) 방사성폐기물 발생량 평가 나. 해체철거의 순서 및 공법 선정시 유의사항 (1) 해체철거 작업전의 제염 (2) 방사성기구, 구조물의 해체철거 (3) 차폐체 등의 확보 (4) 방사성폐기물의 발생량 저감 (5) 자연 현상 및 인위적 현상에 대한 유의사항 (6) 원격조작 다. 공중에 대한 안전확보 라. 작업인원등의 방사선 피폭 저감화 대책 (1) 계통, 기구 제염 및 오염 확산 방지 (2) 방사성 부품 등의 발생 방지 및 방어기구 사용 (3) 차폐체 또는 원격조작장치 활용 (4) 작업 목표선량 설정 (5) 방사선 모니터링 (6) 교육 및 훈련 마. 관리구역 설정 및 해체기준 (1) 관리구역 구분 (2) 관리구역 설정 및 해체 기준
4. 방사성폐기물의 취급	가. 방사성폐기물의 구분과 조치 (1) 고체 방사성폐기물 구분/조치 (2) 기체 및 액체 방사성폐기물 구분/조치 나. 방사성폐기물중의 방사성물질 양과 농도의 평가 (1) 고체 방사성폐기물의 평가단위와 시간 (2) 고체 방사성폐기물의 평가방법 (3) 기체 및 방사성폐기물의 평가방법 다. 해체중에 발생하는 방사성폐기물의 처리 등 라. 방사성폐기물의 감용 (1) 안정화 및 감용 (2) 혼입방지 (3) 보관 공간 등의 확보 마. 방사성폐기물의 운송
5. 해체완료 확인	가. 확인사항 (1) 핵연료물질 완전인출 (2) 방사성폐기물의 안전폐기
6. 해체에 따른 안전성 평가	가. 일반인 피폭선량 평가 : 정상 및 사고시 피폭선량 평가 나. 작업자 피폭선량 평가

다. 해체계획서 상세 항목 도출

원자력법 제31조(발전용 원자로 및 관계시설의 해체)에서 요구하는 해체계획서 작성 항목을 도출하기 위하여 국의 해체원전에서 제출한 보고서 및 관련 규정에서 요구하는 항목들을 검토하였다. 본 검토 결과를 토대로 아래 표 4와 같이 법에서 요구하는 해체계획서 작성항목별 주요 기술 내용을 도출하였다.

표 4 해체계획서 작성항목별 주요 내용

해체계획서 작성 항목	항목별 주요 기술 내용
발전용 원자로 및 관계시설의 해체방법 및 공사일정	사업개요, 부지 및 시설개요, 해체방법, 공사일정 및 제도적 사항에 대한 정보
방사성물질 및 그에 의한 오염의 제거방법	시설의 현행 인허가 내용, 허가 이력, 해체 이력, 방사능 누출 이력, 부지환경상태, 시설의 방사선 특성, 오염된 부지/시설에 대한 해체계획 등
방사성폐기물의 처리·처분 방법	고체/액체/혼합폐기물의 처리·처분
방사선으로부터의 재해를 방지하는데 필요한 조치	무제한/제한 및 대체기준, 작업자 안전관리, 보건물리, 물리적 방호, 화재, 비상계획 등
방사성물질 등이 환경에 미치는 영향의 평가 및 그 대책	해체전 환경조사, 환경영향평가, 유출물 감시 및 관리 등
발전용 원자로 및 관계시설의 해체에 관한 품질보증계획	해체 수행 조직, QA 프로그램, 문서관리, 측정/시험장비의 관리, 시정조치, 감사 및 감독 등
기타 과학기술부장관이 정하는 사항	부지 개방기준(무제한, 제한 및 대체기준), 재정 보증, 부지 복원계획 및 재활용

### 3. 해체심사지침서(안)

해체심사지침서는 원자력 안전성을 확보하기 위한 규제기관의 심사지침서의 중요한 한 부분으로서 원자력 관련시설의 해체관리는 사전계획수립, 예비조치, 기술기준 및 절차, 기술적 평가, 대량의 방사성폐기물 취급기술, 비용분석 및 복잡한 결정과정 등을 포함하고 있다. 원자력관련시설의 해체결정은 허용 가능한 수준의 안전성 유지에 소요되는 비용에 따라서 큰 영향을 받으며, 이것은 다시 현재의 안전기술지침을 반영하는 해체계획서에 의존하게 된다. 해체심사지침서는 원자력관련시설의 해체에 대한 적절한 참고지침을 제공함으로써 원자력안전에 대한 최적의 접근방법을 지원하는 것으로서 국내에는 아직도 체계화된 해체심사지침서가 개발되어 있지 않는 실정이다. 본 연구에서는 향후 국내에서 예상되는 원자력시설의 해체를 대비하고 사업자가 제출하는 해체계획서 작성 항목의 심사 지침을 만들기 위해 해외에서 사용되고 있는 자료들을 근간으로 해체심사지침서(안)를 작성하였으며 각 항목별 주요 기술 사항 및 심사 내용 등에 대하여 아래 표 5에 간략히 기술하였으며 국내에 원자력관련시설 해체와 관련된 법체계 및 기술기준 등이 준비되어 있지 않은 관계로 관련 법규나 기술기준에 대한 내용은 다루지 않았다.

표 5 해체 심사지침서(안) 개요

항목	기술사항	심사사항
1. 일반개요	1) 사업개요 2) 부지 및 시설 개요 3) 해체방법 4) 일정 계획 및 제도적 사항	▶ 해체 목적과 전반적인 계획이 관련요건에 부합하는지를 확인 ① 당해 사업의 배경과 추진방향을 확인 ② 해체 시점과 제염 관점에서 관련시설의 해체방법을 확인 - 가동정지 후 즉시 제염/해체 - 가동 정지 및 장비보관 후 제염/해체 - 부분 제염/해체 및 장비보관 후 최종 제염/해체 ③ 상기 해체방법에 따른 주요 공정별 일정을 확인하고, 그 이행에 필요한 허가변경 및 기타 요구사항들을 검토
2. 시설운영이력	1) 현행 허가 사항 2) 허가 이력 3) 해체 이력 4) 방사능 누출 이력 5) 부지내 매립 이력	▶ 해당부지에서 사용된 방사성물질의 종류, 방사성물질의 사용 허가 내용, 현재 방사성물질의 부지내 잔류에 대한 정보 등이 적절하게 제시되었는지를 확인
3. 부지 환경 현황	1) 부지 위치 및 형상 2) 인구분포 3) 토지 이용 4) 기상 및 지질 5) 지표수 및 지하수 6) 천연자원 7) 생태계	▶ 제시된 부지 및 환경정보들이 해체 작업 중 및 해체 종료 후에 부지내 및 부지주변에 대한 선량을 평가하는데 적합하여야 하며, 제안된 해체 방안이 부지와 주변지역에 미치는 영향을 평가하는데 적절한지를 확인
4. 시설의 방사선학적 현황	1) 오염된 구조물 2) 오염된 계통 및 장비 3) 지표면 토양 오염 4) 지표밀 토양 오염 5) 지표수 6) 지하수	▶ 부지내에서 방사성물질에 의한 오염 형태, 준위 및 범위를 파악하는데 충분한 정보를 제공하여야 하며, 해체비용을 추정하고 해체와 관련한 보건 및 안전 계획의 타당성을 평가하는 부분에 적용 가능한지를 확인
5. 선량 모델링 평가	1) 무제한 부지개방 (Unrestricted Release) 2) 제한적 부지개방 (Restricted Release) 3) 대체 기준에 의한 개방	▶ 해체종료 후 부지내 잔류방사능에 의해 야기될 수 있는 잠재적인 선량을 사업자가 제안하는 부지 개방 방법에 따라 아래 항목에 맞추어 적절하게 평가하였음을 확인 - 선원항 가정 - 부지환경을 고려한 피폭 시나리오 - 사용된 수학적 모델과 계산 방법들 - 변수 값들과 그 불확실성의 평가
6. 해체방안 및 근거	1) 고려된 대안들 2) 선정된 대안에 대한 근거	▶ 해체 계획에 제시된 해체 목적을 달성할 수 있는 모든 합리적인 대안들이 분별되고 적절히 평가되었는지를 확인
7. ALARA 분석	1) 비용-이득 분석 등 정량적 분석 2) 선정된 해체방법의 ALARA 부합성	▶ 결정 집단 평균 구성원에 대한 선량이 ALARA 원칙에 부합하도록 해체계획이 수립되었는지를 확인
8. 해체 활동 계획	1) 오염된 구조물 2) 오염된 계통 및 장비 3) 토양 4) 지표수 및 지하수 5) 작업 일정	▶ 해체 부지내 잔류하는 방사성물질들을 부지 개방기준 준위 까지 제거하기 위해 적용하고자 하는 해체 공정들이 적절히 설명되어 있는지를 확인
9. 방사선 안전 및 보건	1) 작업자 방사선안전관리 2) 책임제 안전성 3) 보건물리 감사, 검사 및 기록 유지 4) 물리적 방호 5) 비상계획	▶ 해체 작업자에 대한 전리방사선의 영향을 최소화하고 감시하기 위해 사용될 보건 및 안전 수단들이 관련 요건에 따라 적절하게 제시되었는지를 확인

항목	기술사항	심사사항
10. 관리 및 조직	1) 해체 관리 조직 2) 해체 작업 관리 3) 해체 관리 직위 및 자격 4) 훈련 5) 계약자 지원	▶ 해체를 신청한 사업자의 해체 사업 조직 및 관리 구조가 상기 8항에서 기술된 전체 해체 사업을 완수하기에 적절한지를 확인
11. 환경 감시 및 관리	1) 해체 전 환경조사 2) 환경영향 평가 3) 유출물 감시 4) 유출물 관리	▶ 해체에 따른 방사선환경영향을 사실적으로 평가하였는지를 확인 ▶ 해체와 관련된 환경감시 프로그램이 관련규정에 부합되며, 해체기간 동안 전리방사선으로부터 작업자, 공중 및 환경을 보호하는데 적절한지를 확인
12. 방사성폐기물 관리	1) 고체 방사성폐기물 2) 액체 방사성폐기물 3) 혼합 폐기물	▶ 해체과정에서 발생하는 방사성폐기물에 대한 정보(폐기물 종류, 형태, 수량 및 농도 등)와 폐기물을 관리하기 위한 방법을 포함하여 해당 폐기물관리프로그램이 적절히 제시되었는지를 확인. 본 정보는 4항과 더불어 해체비용평가, 보건 및 안전계획 평가 혹은 잠재적인 사고의 평가에 활용
13. 품질 보증	1) 조직 2) QA 프로그램 3) 문서관리 4) 측정/시험 장비 관리 5) 시정조치 6) QA 기록 7) 감사 및 감독	▶ 해체를 지원하기 위한 관리조직 및 기타 지원사항들이 적소에 적절히 지원되도록 QA 프로그램이 수립되어 있는지를 확인 ▶ QA 프로그램을 효과적으로 이행할 경우, 수집된 자료들이 이와 관련된 결론들을 정당화하기에 충분한 품질을 가지고 있음을 확인
14. 부지 방사선 조사	1) 개방기준 2) 부지 특성화 조사 3) 복구활동 지원조사 4) 최종부지조사	▶ 해체로 영향을 받는 모든 매체에 대한 부지개방 유도농도기준을 제시하였는지를 확인 ▶ 부지특성화조사가 아래 정보를 충분히 제공하는지를 검토 - 효과적이고 복구 작업자 방호측면에서 안전한 부지복원 계획의 수립에 활용 - 상당량의 미확인 잔류방사능의 탐지 가능성 여부 - 최종부지조사 계획을 수립하는데 활용 ▶ 최종부지조사 계획이 허가종료를 위한 방사선기준에 부합됨을 입증하기에 적합한지를 확인 ▶ 최종부지조사 결과를 검토하여 부지, 구역 및 건물이 허가종료를 위한 방사선기준에 만족함을 입증하는지를 확인
15. 재정 보증	1) 비용평가 2) 재정보증	▶ 해체에 대한 비용 추정치가 적절한 문서 및 가정에 근거하는지, 사업자가 해체를 완수할 수 없는 상황에서 제3자가 제시된 해체계획을 이행하는 데도 그 추정비용이 충분한지, 제한적 부지 개방시 제3자가 사후 부지를 관리하는 경우에도 그 추정비용이 충분한지를 확인 ▶ 이러한 예산이 해체 및 허가종료에 앞서 충분히 확보될 수 있는지를 확인
16. 제한 사용/대체 기준	1) 제한 사용 2) 대체 기준	▶ 사업자가 제한적 이용에 관한 기준 또는 제안하는 대체 기준의 측면에서 운영허가의 종료를 요청하는 경우, 사업자가 취한 조치들이 관련 요건에 부합되는지를 확인

#### 4. 결론

원자력시설의 해체는 원자력관련시설을 보유하고 운영하고 있는 국가로서 필연적으로 해결해야 하는 당면 과제이며 이를 수행함에 있어서 정부의 정책방향, 안전규제제도, 안전성 확보방안, 기술 능력 및 경제적 사항들이 고려되어야 하며, 이를 효과적으로 수행하기 위해서는 필요 정책 및 전략 수립, 법령정비, 지침 및 기술기준 개발 그리고 여론 수렴 등이 적절하게 이루어져야 한다. 국내의 경우 향후 다가올 원자력시설의 해체를 효율적으로 준비하기 위해서는 필요한 정책 수립, 규제제도 개선, 법령 준비, 관련 기술기준개발 등에 관한 연구가 필요한 시점이다. 또한 국내 원자력 시설의 해체와 관련된 법적 체계가 미비한 실정이며 아울러 해체를 하고자 하는 사업자가 제출하는 해체계획서 작성 지침에 대한 상세 기술 기준 및 이를 확인하고 평가할 수 있는 해체 심사지침서(안)가 준비되어 있어야 한다. 본 연구에서는 해체를 진행중이거나 경험한 국가들의 관련 기술기준 및 보고서 등을 검토 분석하여 국내 원자력법 제31조에서 요구하는 해체계획서 작성 항목별 주요 기술 내용을 도출하였으며 이를 평가하고 확인하는데 이용되는 해체 심사지침서(안)을 해외의 여러 자료들을 근간으로 작성하여 제시하였다. 국내 원자력산업에 있어서 2008년도에 설계 수명이 종료되는 고리 1호기가 국내에서 최초로 실시되는 해체 원전이 될 것이나 현재 논의되고 있는 계속운전을 고려할 경우 고리 1호기의 해체는 약 10년 후인 2018년도로 예상할 수 있다. 그러나 해체를 경험하고 또한 실시하고 있는 국가들은 약 10년 전부터 해체를 위한 기술개발과 함께 관련 기술기준 등이 수립되어 있음을 확인할 수 있었으며, 국내에서도 이러한 상황을 인식하여 향후 예상되는 원자력시설의 해체를 대비한 해체관련 기술들의 개발과 함께 해체를 준비하는데 적용되는 모든 기술기준에 대한 개발이 하루속히 이루어져야 할 것이다.

#### 참고문헌

- [1] Connecticut Yankee Atomic Power Company, "Haddam Neck Plant Post Shutdown Decommissioning Activities Report(PSDAR)", CY-97-075, Aug. 1997
- [2] Millstone Nuclear Power Station, "Millstone 1 Post Shutdown Decommissioning Activities Report(PSDAR)", June 1999
- [3] U.S.NRC, Regulatory Guide 1.179, "Standard Format and Content of License Termination Plans for Nuclear Power Reactors", Jan. 1999
- [4] 일본 원자력안전위원회, "원자로시설의 해체에 관한 안전확보의 기본적 사고방식", 일본, 1999
- [5] U.S.NRC, NUREG-1727, "NMSS Decommissioning Standard Review Plan", Sept. 2000.
- [6] 김학수, 김경덕 외, "원자력발전소 제염·해체 안전성 평가 방법 개발(5차년도)", 원자력환경기술원, TR.00NC02.C2005.03, 2005

# Unconditional Clearance Levels for Releasing Radioactive Materials Contaminated with Major Radionuclides from Regulatory Control

Jae Hak Cheong, Chan Woo Jeong, and Won Jae Park

Korea Institute of Nuclear Safety, 19 Kusong-dong, Yusong-gu, Daejeon

[radwaste@kins.re.kr](mailto:radwaste@kins.re.kr)

## Abstract

Unconditional clearance levels were derived for fifteen short-lived radionuclides. Due to the uncertainty of long-term radiological impact analysis, alpha emitting nuclides and nuclides with half-lives longer than 30 years (except for C-14) were excluded from the scope of this study. The candidate waste streams are solid wastes and waste oil generated from nuclear power reactors. The clearance levels were derived by generic assessment for enveloping scenarios, along with specific assessment for each detailed scenario such as landfill, incineration and recycling. The derived values lie in the range from 0.01 to 100 Bq/g.

**Key words** : Unconditional Clearance, Short-Lived Radionuclides, Regulatory Control

## 1. Introduction

Clearance is a process to remove radioactive materials within authorized regulatory control from further regulatory control. The concept of clearance has been partly implemented in Korean Atomic Energy Act and relevant regulations in terms of "Self-Disposition" along with the dose criteria of 0.01 mSv/y and 1 person·Sv/y. Although Notice No. 2001-30 of the Minister of Science and Technology provides a single clearance level for thirty short-lived beta/gamma emitting nuclides as 100 Bq/g, clearance levels for other major nuclides (e.g. Cs-137, Co-60, etc.) have not been determined yet. Accordingly, a case-by-case safety review has been done for each application of clearance of waste containing nuclides not listed explicitly in the Notice. This approach requires large amount of regulatory resources and applicants' works, therefore the need of deriving unconditional clearance levels for major radionuclides generated from large-scale nuclear installations has been raised by industries. The ultimate objective of this study is to develop unconditional clearance levels for the waste contaminated with radionuclides which have not been covered by present domestic regulations.

## 2. Assumptions and Methodology

### 2.1 Basic Assumptions

According to the Notice No. 2001-30, the maximum radiation dose posed by the cleared materials to any individuals shall not exceed 0.01 mSv/y. In order to derive clearance levels based on the above dose criterion, a series of scenario-specific assessment should be

performed. Otherwise, more generic approach, in which a set of comprehensive simple scenarios enveloping detailed ones are modeled, can be taken into consideration. In this study, both methodologies of "Specific Assessment" and "Generic Assessment" were adopted. As for the specific scenarios, landfill, incineration and recycling options were considered.

The total amount of waste cleared per year was determined to be 1,000 ton. The waste streams to be cleared were limited to solid waste and waste oil, and the target nuclides were selected as follows: H-3, C-14, Mn-54, Fe-55, Co-58, Fe-59, Co-60, Ni-63, Zn-65, Sr-89, Sr-90, Sb-125, Cs-134, Cs-137, and Ce-144. Above conditions envelop most of domestic regulatory experiences on clearance for the last 10 years. In addition, it was also conservatively assumed that the waste would not be further diluted with clean materials after clearance.

## 2.2 Generic Assessment

In the generic assessment, a series of representative scenarios enveloping a variety of detailed ones was conservatively assumed. As a result, inhalation, ingestion, and direct exposure pathways were chosen. The inhalation scenario simulates the situation in which workers inhale contaminated dust originated from cleared waste both in workplace and environment. In the ingestion scenario, it was assumed that workers might inadvertently swallow radioactive materials by hand-to-mouth pathway in dusty workplace (secondary ingestion) and pica children might ingest soil-like materials cleared from regulatory control. In addition, direct exposure to truck drivers and landfill workers handling cleared materials were taken into consideration. The generic assessment was performed by spread sheet embodied macros of numerical models similar to the European Commission models [1].

In the generic assessment, the maximum individual worker dose was calculated as follows:

$$ED_W = D_{INH-W} + D_{ING-W} + \max(D_{EXT-1W}, D_{EXT-2W}, D_{EXT-3W}), \quad (1)$$

where,  $ED_W$  = worker's total annual exposure,  $D_s$  = worker's annual dose from a single scenario. On the other hand, the maximum dose to the individual member of the public was calculated according to the following equation:

$$ED_P = D_{INH-P} + D_{ING-P} + \max(D_{EXT-1P}, D_{EXT-2P}, D_{EXT-3P}), \quad (2)$$

where,  $ED_P$  = total annual exposure to a member of general public,  $D_s$  = the general public's annual dose from a single scenario. More detailed assumptions and parameters for each scenario were explained in Ref. [4].

## 2.3 Landfill Scenario Assessment

Landfill is one of the most widely used options to release materials from regulatory control. The following pathways were chosen: (1) direct exposure from buried materials, (2) inhalation of resuspended airborne dust, and (3) ingestion of contaminated water and foods.

The critical groups are (1) workers at landfill, and (2) on-site residents after closure of the burial site. Numerical calculations were performed by RESRAD [2]. In order to calculate

effective dose, however, dose conversion factors (DCFs) for intake (ingestion and inhalation) were adjusted to reflect IAEA Safety Series No. 115. Taking into account of potential radiological impacts to all age groups, the standard DCFs for intake were set to the DCF values for adult multiplied by a factor of "2".

The workers working at the landfill during its operational period handle with "fresh" waste, and are to be exposed by three major pathways such as direct external exposure and internal exposures from inhalation of dust and secondary ingestion. After the landfill capacity is exhausted, the site should be closed. The closed site is expected to be under the institutional control for a few years, and released to the public thereafter. Members of the public may inhabit on the closed landfill after institutional control period is over. The onsite inhabitants can be exposed to the cleared waste by direct external radiation and by ingestion of contaminated agricultural or livestock products and ground and/or surface water.

Fig. 1 shows the geometrical assumptions on the landfill in which candidate waste is buried. In order to model the geometry of the landfill site, the total mass of buried waste ( $M$ ) and average height ( $h$ ), and one of the following parameters of the buried layer such as  $\rho$  (density of the waste),  $r$  and  $D$  (radius and diameter, respectively), and  $A$  (area) should be known. The characteristic parameters can be obtained by the following equations:

$$R = \sqrt{\frac{M}{\pi \cdot \rho \cdot h}}, \quad D = 2 \cdot \sqrt{\frac{M}{\pi \cdot \rho \cdot h}}, \quad V = \frac{M}{\rho} \quad \text{and} \quad A = \pi \cdot R^2 = \frac{M}{\rho \cdot h}. \quad (3)$$

Other specific parameters for landfill scenario assessment are listed in Ref. [4].

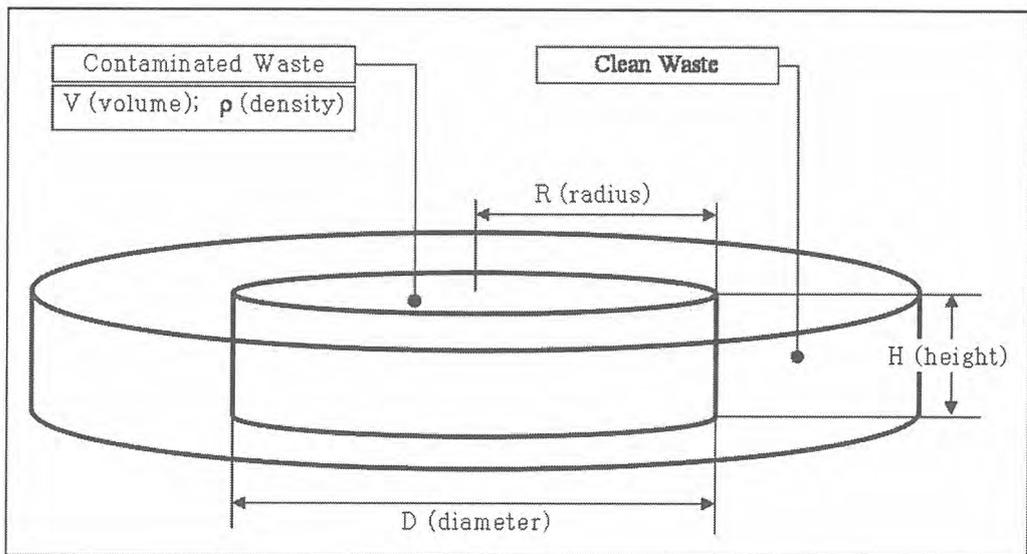


Fig. 1. Geometry of hypothetical industrial waste landfill at which cleared materials are to be buried

#### 2.4 Incineration Scenario Assessment

Incineration of combustible solid waste and waste oil has been partly done as an option for

clearance in Korea. But some issues on re-concentration of radioactivity in the by-product (e.g. ash) have been brought up in the process of regulatory assessment. In this regard, a series of constraints were established prior to the assessment of the incineration scenario as follows: (1) Off-site incineration is allowed for waste oil contaminated only with H-3 and/or C-14; and (2) On-site incineration can be used for all waste streams, provided the area is specified as "controlled area" and ash is controlled.

It is assumed that all radionuclides existing in particulate form are still remained in the ash, but only 10% of initial radioactivity of H-3 and C-14 is remained in the ash after incineration. On the other hand, the fractions of radioactivity released to the atmosphere for H-3, C-14, and other particulate nuclides were conservatively set to 100%, 95%, and 10%, respectively. The radiological impacts due to the atmospheric dispersion of radioactive plume from the incinerator stack were calculated by INDAC within the area of radius 10 km [4].

## 2.5 Recycling Scenario Assessment

In this recycling scenario, it is assumed that the steel scrap can be directly reused or melted in industrial smelter or refiner and then fabricated into consumer/public products. The radionuclides in the steel scrap may redistribute into metal product, slag, and dust filter. Accordingly, the phenomena of mass partitioning and elemental partitioning in the melting process were mathematically modeled.

In general, the radiological characteristics of the steel scraps are not changed before they are put into the smelter. It is also expected that the steel scraps are mixed with ordinary (i.e. non-radioactive) metal scraps in the yard of smelting plants and their radioactivity concentration is to be decreased. For ensuring conservatism, however, it was assumed that all cleared steel scraps generated in a year to be melted in a single smelter without mixing with other clean metals. In the melting process, the radioactivity and mass present in the cleared steel scraps are to be redistributed into three immediate products such as ingot, slag, and dust. In addition, a part of dusts leaves the off-gas treatment system and then releases to the atmosphere. A few investigators have simulated the redistribution phenomena in the melting process by introducing mass partitioning factor (MPF) and elemental partitioning factor (EPF). In this study, higher portioning factors obtained from literature survey were chosen. The mass of each product  $i$  generated from melting process can be simply estimated from the initial mass of steel scraps and mass partitioning factors as:

$$M_i = M_0 \cdot MPF_i, \quad (4)$$

where,  $i$  = product identification number (1 = ingot, 2 = dust in bag house filter, 3 = slag),  $M_i$  = mass of product  $i$ ,  $M_0$  = initial mass of steel scraps, and  $MPF_i$  = mass partitioning factor for product  $i$ .

On the other hand, the radioactivity concentration of each product can be calculated from elemental partitioning factors and initial activity concentration of steel scraps as follows:

$$C_i = \frac{C_0 \cdot RPF_i \cdot M_0}{M_0 \cdot MPF_i} = \frac{C_0 \cdot RPF_i}{MPF_i}, \quad (5)$$

where,  $C_i$  = radioactivity concentration of product  $i$ ,  $M_0$  = initial radioactivity concentration of steel scrap, and  $EPF_i$  = elemental partitioning factor for product  $i$ .

Critical groups in the whole recycling scenario are (1) workers for collecting and transporting scraps, (2) workers at melting and fabrication plants, (3) workers for handling and transporting products, and (4) consumers using recycled products. The above scenario was numerically calculated by RESRAD-RECYCLE [5]. However, relevant DCFs for intake were also adjusted according to the same approach as the landfill scenario assessment.

### 3. Calculation Results and Derivation of Clearance Levels

#### 3.1 Clearance Levels for Each Scenario

Expected dose per unit radioactivity concentration of each radionuclide (i.e., mSv/y perBq/g) was calculated for each scenario as discussed in Section 2. The above values were divided by 0.01mSv/y of dose criterion and then the clearance levels for each scenario were obtained as listed in Table 1. The clearance levels in Table 1 have been derived from the un-rounded values by assigning the nearest power of 10, according to the European Commission's approach [1].

It turns out that the recycling scenario is critical to H-3 and Fe-55, and the incineration scenario is dominant for C-14, Ni-63, Sr-89 and Ce-144. In addition, the clearance levels for Co-58, Sr-90 and Cs-137 were determined by landfill scenario and those for Mn-54, Fe-59, Co-60, Zn-65, Sb-125 and Cs-134 by generic assessment.

**Table 1. Radioactivity concentration equivalent to 0.01mSv/y for each scenario and clearance level**

Nuclide	Generic	Landfill	Incineration	Recycling	Minimum	Critical	Clearance
	Assessment	Scenario	Scenario	Scenario	Value	Scenario	
	[Bq/g]	[Bq/g]	[Bq/g]	[Bq/g]	[Bq/g]	-	[Bq/g]
H-3	7.06E+02	1.32E+02	6.76E+01	6.02E+01	6.02E+01	Recycling	1E+2
C-14	3.32E+01	3.10E+00	2.72E-01	4.24E+00	2.72E-01	Incineration	1E-1
Mn-54	1.90E-01	4.13E-01	2.23E+00	3.31E-01	1.90E-01	Generic	1E-1
Fe-55	1.58E+02	6.67E+02	1.60E+01	8.55E+00	8.55E+00	Recycling	1E+1
Co-58	2.48E-01	1.59E-01	4.20E+00	1.51E+00	1.59E-01	Landfill	1E-1
Fe-59	1.92E-01	9.43E-01	2.81E+00	1.01E+00	1.92E-01	Generic	1E-1
Co-60	3.64E-02	7.60E-02	1.33E-01	1.76E-01	3.64E-02	Generic	1E-1
Ni-63	1.46E+02	7.19E+00	3.76E+00	1.66E+01	3.76E+00	Incineration	1E+1
Zn-65	2.45E-01	8.78E-01	1.03E+00	6.76E-01	2.45E-01	Generic	1E-1
Sr-89	2.05E+01	2.03E+03	3.12E+00	4.81E+00	3.12E+00	Incineration	1E+1
Sr-90	1.14E+00	1.16E-02	5.18E-02	8.93E-02	1.16E-02	Landfill	1E-2
Sb-125	2.96E-01	1.43E+00	1.03E+00	1.05E+00	2.96E-01	Generic	1E-1
Cs-134	7.97E-02	2.00E-01	1.85E-01	1.19E-01	7.97E-02	Generic	1E-1
Cs-137	1.89E-01	1.06E-01	3.19E-01	1.68E-01	1.06E-01	Landfill	1E-1
Ce-144	2.14E+00	7.91E+00	5.88E-01	6.85E-01	5.88E-01	Incineration	1E+0

#### 3.2 Comparison with Reference Values

Fig. 2 shows the clearance levels derived in this study, and clearance levels and exemptions

levels listed in three different documents published by the IAEA [6-8]. The clearance levels proposed in this study are quite comparable to the values listed in the IAEA Safety Guide and generally lower than other reference values. The relative conservatism of the final results of this study can be mainly attributed to the additional consideration of incineration scenario and other conservative basic assumptions such as excluding dilution effect.

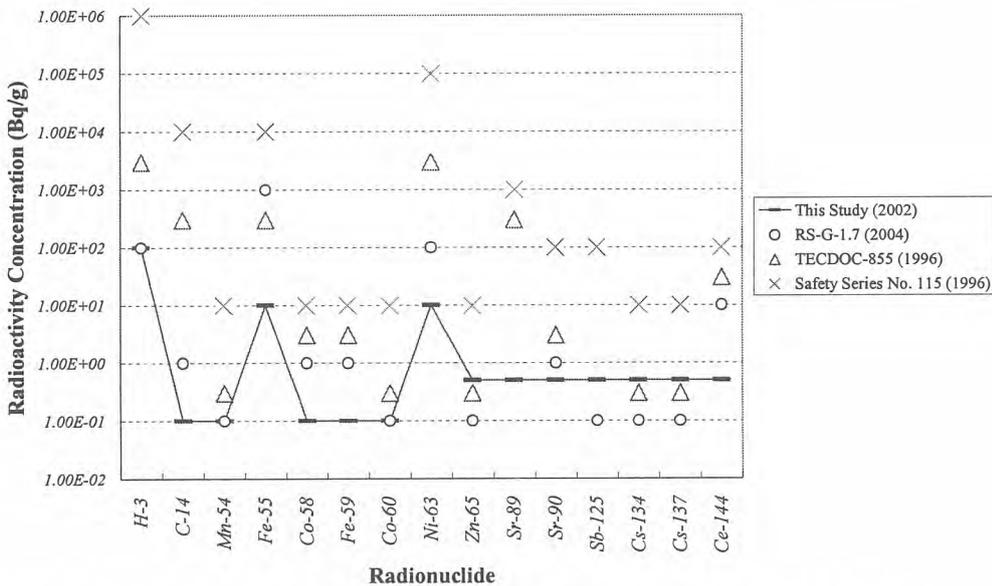


Fig. 2. Comparison of derived clearance levels with other reference values

#### 4. Concluding Remarks

Clearance concentration criteria were derived for selected fifteen major radionuclides by use of generic assessment methodology and specific assessment methodology for three scenarios (i.e., landfill, incineration, and recycling of steel scraps). In general, the results of this study are more conservative than those proposed by some foreign investigators or comparable to them. It turned out that the conservatism resulted from a series of assumptions adopted in this study such as additional consideration of incineration as a scenario and excluding the possibility of dilution with clean wastes after clearance.

Korea is now planning to revise its clearance-related regulations, and therefore recently initiated a feasibility study for adopting basic principles along with values of activity concentration in the IAEA Safety Guide. In the rule-making process, the assumptions, scenarios, methodologies and results of this study may provide a clue to improve regulatory effectiveness on unconditional clearance.

#### Acknowledgements

This study was financially supported by the Ministry of Science and Technology under the Mid-and Long-Term Nuclear Research and Development Program.

## References

1. European Commission, Practical Use of the Concepts of Clearance and Exemption Part I, Guidance on General Clearance Levels for Practices, Radiation Protection No. 122, EC, Luxembourg (2000).
2. Argonne National Laboratory, User's Manual for RESRAD Version 6, ANL/EAD-4 (2001).
3. Korea Institute of Nuclear Safety, ODCM Guideline and INDAC User's Manual, KINS/GR-199, Supplement 1, Daejeon (1999).
4. Korea Institute of Nuclear Safety, Development of Regulatory Requirements for Clearance of Radioactive Waste, KINS/RR-144, Daejeon (2002).
5. Argonne National Laboratory, RESRAD-RECYCLE Computer Model, ANL/EAD-3 (2000).
6. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Application of the Concepts of Exclusion, Exemption and Clearance, Safety Standards Series No. RS-G-1.7, IAEA, Vienna (2004).
7. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Clearance Levels for Radionuclides in Solid Materials: Application of Exemption Principles, IAEA-TECDOC-855, Vienna (1996).
8. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, International Basic Safety Standards for Protection Against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiation Sources, Safety Series No. 115, IAEA, Vienna (1996).

## Multilateral Nuclear Approaches (MNAs), Factors and Issues Lessons from IAEA Study to Regional Cooperation

다자간 원자력 협력: 요소와 현안

Yong-Soo Hwang

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duckjin-Dong, Yuseong\_Gu, Daejeon

[yshwang@kaeri.re.kr](mailto:yshwang@kaeri.re.kr)

### Abstract

In response to the increasing emphasis being placed on the importance of international cooperation as part of global efforts to cope with *growing non proliferation, and security* concerns in the nuclear field, the Director General of the International Atomic Energy Agency (IAEA), Mohamed ElBaradei, appointed an international group of experts to consider possible multilateral approaches to the nuclear fuel cycle.

The mandate of the Expert Group was three fold:

- To identify and provide an analysis of issues and options relevant to multilateral approaches to the front and back ends of the nuclear fuel cycle;
- To provide an overview of the policy, legal, security, economic, institutional and technological incentives and disincentives for cooperation in multilateral arrangements for the front and back ends of the nuclear fuel cycle; and
- To provide a brief review of the historical and current experiences and analyses relating to multilateral fuel cycle arrangements relevant to the work of the Expert Group.

The overall purpose was to assess MNAs in the framework of a double objective: *strengthening the international nuclear non proliferation regime and making the peaceful uses of nuclear energy more economical and attractive*. The Group identifies options for MNAs - options in terms of policy, institutional and legal factors - for those parts of the nuclear fuel cycle of greatest sensitivity from the point of view of proliferation risk. It also reflects the Groups deliberations on the corresponding benefits and disadvantages (pros and cons) of the various options and approaches.

Although the Expert Group was able to agree to forward the resulting report to the Director General, it is important to note that the report does not reflect agreement by all of the experts on any of the options, nor a consensus assessment of their respective value. It is intended only to present options for MNAs, and to reflect on the range of considerations which could impact on the desirability and feasibility of those options.

## 1 Foreword

### *Mandate*

In his statement to the IAEA General Conference in September 2003, the Director General observed that international cooperation in the context of the design and operation of the nuclear fuel cycle was an important issue that had been discussed over the years, but which, in his view, now merited serious consideration as part of the global effort to cope with increasing non proliferation and security challenges. He stated that such consideration should include an evaluation of the merits of limiting the use of weapons usable material (plutonium and highly enriched uranium) in civilian nuclear programmes, by permitting it only under multilateral control, and that any exploration of this kind had to be accompanied by appropriate rules of transparency, control and, above all, assurance of supply. He emphasized that strengthened control of weapons usable material was key to efforts to strengthen non proliferation and to enhance security. These proposals were refined and reiterated in his October 2003 article published in *The Economist*. The Director General also referred to the need to consider as well the merits of multinational approaches to the management and

disposal of spent fuel and radioactive waste. As he pointed out, not all countries have the appropriate conditions for geologic disposal and, for many countries with small nuclear programmes for electricity generation or for research, the financial and human resource investments required for research, construction and operation of a geologic disposal facility were daunting. Considerable economic, safety, security and non proliferation advantages may therefore accrue from international cooperation on the construction and operation of international waste repositories. In this statement, the Director General indicated that the merits and feasibility of these and other approaches to the design and management of the nuclear fuel cycle should be given in depth consideration, and referred to the convening of an Agency group of experts as a useful first step in this regard. In March 2004, in his statement to the Board of Governors, the Director General referred to the wide dissemination of the most proliferation sensitive parts of the nuclear fuel cycle - the production of new fuel, the processing of weapon usable material and the disposal of spent fuel and radioactive waste - as the possible "Achilles' heel" of the nuclear non proliferation regime", and to the importance of tightening control over such operations. He indicated that this could be done by bringing them under some form of multilateral control, with appropriate checks and balances to preserve commercial competitiveness, to control the proliferation of sensitive information and to ensure the supply of fuel cycle services. To that end, the Director General announced his intention to appoint a group of experts to examine the feasibility of moving forward with such measures. In June 2004, the Director General informed the Board of Governors that he had appointed an international expert group, to be chaired by Mr. Bruno Pellaud, former Deputy Director General for Safeguards, to consider possible multilateral approaches to the front and back ends of the nuclear fuel cycle.

The mandate of the Expert Group as originally articulated was three fold:

- ① To identify and provide an analysis of issues and options relevant to multilateral approaches to the front and back ends of the nuclear fuel cycle;
- ② To provide an overview of the policy, legal, security, economic, institutional and technological incentives and disincentives for cooperation in multilateral arrangements for the front and back ends of the nuclear fuel cycle; and
- ③ To provide a brief review of the historical and current experiences and analyses relating to multilateral fuel cycle arrangements relevant to the work of the Expert Group.

Speaking on the occasion of the first meeting of the Expert Group, the Director General asked the Group to address the issue in all of its various facets, and in particular to assess the potential for a positive impact on international security. He directed the group to take into account the perceptions and expectations of all interested stakeholders and stressed that, to be successful, new approaches must go beyond the outright denial of technology. The Director General noted the importance of examining multilateral options with respect to both the front end and the back end of the fuel cycle, noting that any solution must be inclusive and without reference to the status of particular countries. He asked the group to not confine itself to finding "one size fits all approaches": what works in one region may not be the most ideal approach in another. He also agreed that the concept of multilateral nuclear approaches (MNAs) could be placed in the broader context of the non proliferation regime as a whole, including the Treaty on the Non Proliferation of Nuclear Weapons (NPT) and other relevant agreements.

The Expert Group, which was convened in August 2004, and held a series of 4 one week meetings over the period August 2004 to February 2005, consisted of individuals selected by the Director General to represent a broad spectrum of experience and nationalities, all of whom had been associated with the nuclear field in one capacity or another for many years. The Expert Group was assisted in its efforts by Messrs. Lawrence Scheinman and Wilhelm Gmelin as resource persons, as well as a number of current and former staff members of the IAEA and external experts.

Although the Expert Group was able to agree to forward the resulting report to the Director General, it is important to note that the report does not reflect agreement by all of the experts on any of the options, nor a consensus assessment of their respective value. It is intended only to present options for MNAs, and to reflect on the range of factors which could influence the consideration of those options.

### *Preliminary Considerations*

At the outset of its deliberations, the members of the Expert Group expressed the collective expectation that nuclear energy will play a significant role in supplying the world with energy, and that, given the dual nature of nuclear energy, reliable and effective arrangements are necessary to prevent the further proliferation of nuclear weapons. The Group felt that that,

as a consequence, its purpose was to assess MNAs in the framework of a two pronged objective: strengthening the international nuclear non proliferation regime and making the peaceful uses of nuclear energy more economical and attractive. Recently, the nuclear non proliferation debate has been driven by new challenges to the non proliferation regime: the discovery of undeclared nuclear material and activities; the existence of clandestine markets for the acquisition of nuclear technology; the threat of "break out" by States within the regime. Two proposals, in particular, have been put forward - neither for the first time - with a view to ensuring that the nuclear non proliferation regime maintains its authority and credibility in the face of these very real challenges. One of these proposals calls for the denial of technology to non nuclear weapon States (NNWS) and reinterpretation of the provisions of the NPT concerning States' rights to develop the research, production and use of nuclear energy. The increasing unwillingness of many NNWS to accept additional restrictions on the development of peaceful nuclear technology suggests that the viability of this proposal is questionable. The other proposal is for multilateral approaches to the operation of those parts of the nuclear fuel cycle considered to be of the greatest sensitivity from the point of view of proliferation risk. It is the latter proposal that the Expert Group was asked to consider. First, a word about terminology. In the view of the Expert Group, a distinction should be made between the words "multilateral" (the broadest and most flexible term, referring simply to the participation of more than two actors), "multinational" (implying several actors from different States), "regional" (several actors from neighbouring States) and "international" (actors from different States and/or international organisations, such as the IAEA). The Group has been asked to address the broadest possible options, and has thus explored all multilateral options, whether multinational, regional or international. In addition, it was necessary to define what the Expert Group considered to be those parts of the nuclear fuel cycle of the greatest sensitivity from the point of view of proliferation risk. As can be seen from the structure of the report, the Group decided to address *enrichment, reprocessing and spent fuel disposal and storage*. In fulfilment of its mandate, the Expert Group addressed three elements:

- a. **Current and historical experiences with MNAs:** *In other words: what has already been tried in this regard? How successfully?* It provides background on the mandate of the Expert Group and on the political and historical contexts of the issue of MNAs. In this context, the Group was able to benefit from accumulated experience with existing successful multilateral solutions, particularly in Europe. The Group was also able to take advantage of work carried out under the auspices of the IAEA, and in other fora, in the somewhat less successful investigations into MNAs previously carried out. In addition, there is a wealth of practical experience with multilateral approaches not only in the nuclear field, but in other fields of technology, such as aviation and space, to name only two.
- b. **Factors, options, and incentives and disincentives:** It addresses, collectively and individually, policy, legal, security, economic and technological factors relevant to MNAs in connection with the four sectors of the nuclear fuel cycle identified above. It also discusses cross cutting factors and reflects the Experts Group's analysis of the factors specific to, and possible options associated with, each of those sectors and identifies the corresponding benefits and disadvantages (pros and cons) of the various options.
- c. **Over arching considerations and recommendations:** It addresses overarching issues, primarily of a broad political nature, that may affect perceptions as to the feasibility and desirability of MNAs and reflects on the conclusions of the Expert Group and offers recommendations on possible ways forward with MNAs.

Drawing on historical experience with efforts to establish MNAs, and borrowing materials and concepts from the practical examples, the challenge of the Group was to reassess the issues and options in the context of the present.

## 2 Current Political Context

The global nuclear non proliferation regime has been successful in limiting, albeit not preventing, the spread of nuclear weapons. The vast majority of States have pledged to forego the manufacture and acquisition of nuclear weapons and have abided by that commitment. Nevertheless, the past few years have been a tumultuous and difficult period, during which new challenges to the international non proliferation system have surfaced.

The decades long nuclear non proliferation effort is under threat: from regional arms races; from treaty benders and breakers; from the manner in which export controls have been applied; from a burgeoning and alarmingly well organised illicit black market in nuclear trade; and the increasing risk of illicit acquisition by terrorist and other non State entities. In the meantime, the universality of the non proliferation regime continues to be challenged by three States that have stayed outside the treaty. And finally, there is the extraordinary situation of the Democratic People's Republic of Korea (DPRK), the first country to have, de facto or de jure, withdrawn from the NPT.

Further concerns include whether the NPT nuclear weapon States (NWS) are making

sufficient progress in fulfilling their nuclear disarmament commitments under the NPT. While some progress has been made, shortfalls remain and continue to evoke sharp criticism from many NNWS, and are cited as a major disincentive for some States to support further non proliferation initiatives. The same applies to the continuing delay in the initiation of negotiations of a verifiable Fissile Material (Cut off) Treaty (FM(C)T), and in entry into force of the Comprehensive Nuclear Test Ban Treaty (CTBT). Further nuclear disarmament, and legally binding agreements banning the production of nuclear material for weapons purposes and the testing of nuclear explosive devices, would improve world security now, making it measurably more difficult for any new aspirants to nuclear weapons status to get started in the first place.

Yet there have been positive developments. Membership in the NPT now stands at 189 countries (including the DPRK). Supplier countries also now exercise greater vigilance in their export controls. Meanwhile, in response to the IAEA's uncovering of the Iraqi undeclared weapons programme in the early 1990's, the international community moved decisively to strengthen the IAEA's safeguards system, and adopt the Model Additional Protocol (INFCIRC/540 (Corr.)) as a standard feature of the IAEA safeguards system. These new arrangements are already having an impact in boosting the confidence level in the IAEA safeguards, and have led to proposals to make adherence to the Additional Protocol a condition for compliance with the requirement of NNWS party to the NPT to conclude safeguards agreements "in accordance with the safeguards system of the IAEA". International cooperation in peaceful nuclear energy has thus far been predicated on political commitments to use transferred nuclear material, equipment, facilities and technology exclusively for peaceful purposes, combined with an acceptance of international safeguards to verify compliance with such commitments. Efforts to create further nuclear weapon free zones are another positive signal.

Security Council Resolution 1540 (2004) has tackled trafficking by non State actors in weapons of mass destruction, including nuclear weapons, obliging all governments to adopt appropriate control systems to prevent such trafficking. International collaboration in the "Megatons to Megawatts" programme has seen large quantities of highly enriched uranium (HEU) released from dismantled Russian warheads downblended into low enriched uranium (LEU) for civilian use. In addition, a significant portion of the US supplied HEU research reactor fuel has now been recovered under US take back programmes. Similar actions are now also being taken with respect to Russian supplied HEU fuel as well.

More worrisome is the case of "breakout": a State party to the NPT invoking its right to master the nuclear fuel cycle, being able to do so unfettered, and then giving three months' notice to withdraw from the NPT and developing nuclear weapons capabilities, as the DPRK is reportedly doing. Such a scenario is without doubt unacceptable to the world community.

The foregoing positive and negative developments shape current assessments of the proliferation threat. A further significant factor is that the civilian nuclear industry appears to be poised for worldwide expansion. Rapidly growing global demand for electricity, the uncertainty of supply and price of natural gas, soaring prices for oil, concerns about air pollution, and the immense challenge of lowering greenhouse gas emissions, are all driving a fresh look at nuclear power. As the technical and organisational foundations of nuclear safety improve, there is increasing confidence in the safety of nuclear power plants. In light of existing, new and reawakened interest in many regions of the world, the prospect of new nuclear power stations on a large scale is real. As a consequence, the future will likely result in a greater number of States interested in developing nuclear know how; seeking assurances of supply in materials, services and technologies; and contemplating development of their own fuel cycle capabilities.

Notwithstanding, countries have sought such capabilities, and for a variety of reasons: to carry out entirely legitimate, peaceful programmes; to remove doubts about the reliability of fuel supply from foreign sources; to conserve nuclear fuel resources through reprocessing; to achieve the prestige of possessing advanced, sophisticated fuel cycle facilities; to sell enrichment or reprocessing services on the international market; and because the State considered it to be economically justifiable. A few States have also sought such technologies for the purpose of developing nuclear weapons or securing the option to do so.

The civilian nuclear fuel cycle has not been a significant proliferation factor. Those States that wanted nuclear weapons have gone straight for them, creating parallel weapons programmes. Clearly, however, it is not desirable that every State with nuclear research and/or nuclear energy programmes should establish its own enrichment and reprocessing facilities (even if such activities would be within the boundaries of Article IV of the NPT). In particular, in regions of high tension or conflict, such activities - even when pursued in good faith - could add to regional instability.

In the 1970s, the search for alternative approaches to complete national fuel cycles, fuelled by growing concerns regarding prospective "plutonium economies" and the 1974 explosion by India, led in turn to a number of international initiatives, which are the central elements of the historical perspective provided in the following chapter.

### 3. Cross-cutting factors

Consideration of multilateral approaches to the nuclear fuel cycle tends to involve the same few factors, whether one is dealing with enrichment, reprocessing or disposal. As foreseen in the Director General's mandate to the Expert Group, reach across the spectrum of technology, economics, assurances of supply, legal and institutional arrangements, and non-proliferation and security issues. These cross-cutting factors are discussed in this chapter.

#### *Advances in nuclear technologies*

This deals with a major proliferation factor and its impact on safeguards and verification: the degree to which new technologies and other scientific developments interact with each other to lower the threshold of accessibility for sensitive nuclear technologies while nonetheless permitting more effective and efficient verification.

Since the time of INFCE, nuclear technology has undergone significant developments, on the one hand in the production of direct use nuclear materials and related sensitive components, and on the other for the tools now available to the IAEA for verifying nuclear material and its use.

These developments include:

**Information technology (IT).** IT has changed dramatically since the 1970s, due to the introduction of faster, smaller, more versatile, low cost and more reliable computers and operating systems. For example, complex multi-group codes and hydrodynamic calculations that once took hours on the then largest computers (Cray-1) may now be performed on a €2000 personal computer in the same time or faster, especially when connected with other personal computers in a network.

However, the most significant IT development has been the appearance, spread and the usage of the internet, where, apart from making information widely available and thereby fostering knowledge, a wealth of sensitive nuclear data designs, methods and techniques can be retrieved worldwide with little difficulty (for example, detailed designs of nuclear weapons, early generations of production centrifuges, reprocessing flow sheets, including detailed descriptions of the radiochemistry involved).

**Sensor technology, process engineering and miniaturisation.** All kinds of sensors for physical parameters - such as optical (satellites), radiation, pressure and motion sensors - are now available at low cost. These processes have been both optimised and miniaturised and are now radiation-resistant and economical.

**Material technology.** Examples are the use of non-metallic components in enrichment and reprocessing processes. Dual-use materials have become ubiquitous.

**Chemistry.** Basic research has resulted in the development of new techniques for reprocessing, for example with pyrochemical processes with which large separation factors can be routinely achieved in small geometries. Analytical methods were further developed so that concentrations of smaller than  $10E-12\%$  (or  $0.000000000001$ ) Chemists claim that such low concentrations are equivalent to the concentration of a lump of sugar dissolved in a volume of water as large as the Baltic Sea. are routinely determined, developments particularly important for Agency verification.

**Finally,** the combination of all of these developments, has led to powerful synergies. These synergies resulted for example in the development and implementation of advanced automatic measurement stations for IAEA safeguards verifications, where motion sensors trigger non-destructive measurements and video films of objects moved through the space of interest and the automatic and encrypted transmission of these data to IAEA HQ, via the internet. For nuclear facilities, the spin-offs of these technical advances are that nuclear safety has been further enhanced, processes can be streamlined and the economics have improved. Due to these advances, however, concealment of non-peaceful uses at complex facilities that are part of the nuclear fuel cycle has become technically less difficult. On the other hand, these advances have also contributed to the development of innovative nuclear systems, deemed proliferation-resistant, safe and economical. Related work performed in the framework of the IAEA INPRO project and the multinational Generation IV projects thus have implications and likely implications for non-proliferation, safety and economics of nuclear energy as a whole.

Agency safeguards verification and other verification systems have benefited from most of these developments, in particular, in connection with material accountancy evaluation through information technology (IT), particle analysis, destructive and non-destructive measurements (chemistry) and surveillance (sensor technology and IT), to the point that real-time verification of most peaceful nuclear processes has now become a technical possibility and, indeed, a reality where governments have cooperated in their implementation.

An evaluation of the impact of these advances on a variety of aspects of the peaceful uses of nuclear energy, such as proliferation risks, safeguards, assurance of supply, energy planning security and economics, shows that:

- a. Proliferation risks have increased markedly in recent decades with the easier accessibility of sensitive technologies peddled on the world market by irresponsible parties, and with the dissemination of weapons design information.
- b. Safeguards: technological advances have had a strong and positive influence, leading to increased safeguards effectiveness and efficiency. There is disagreement, however, as to whether this positive factor compensates fully the higher proliferation risks brought about by modern technology.
- c. Assurance of supply and energy planning security: advanced technologies, with their promises of small-scale facilities and lower costs, encourage the pursuit of national facilities or regional MNAs by making them more attractive for achieving domestic or regional self-sufficiency in the fuel cycle. For smaller countries, such facilities make the possibility of national independence at a reasonable cost a more likely achievable goal.
- d. In terms of economics, technology has made it possible to build smaller facilities. That is, for a given throughput, a given size, the costs have decreased. Of course, economies of scale continue to apply; a multinational partnership at a higher throughput would provide even better economics.

On the production side, enrichment to weapon-grade uranium using early generations of ultra-centrifuges has become less difficult, since documents on design, materials and process control of these early machines are more readily available. The level of difficulty seems now to be comparable to that of constructing a medium-performance car engine. However, advanced designs to achieve a steady output at reasonable cost are still not available. Furthermore, the know-how and experience gained from some 20 years of development cannot be re-engineered in only a few years. As far as uranium conversion, to or from  $UO_2$  to  $UF_6$  is concerned, the know-how has become readily available; this process presents no greater difficulties than would, say, the production of hydrogen or ammonia.

Safeguards verification of the peaceful use of enrichment plants and associated conversion processes has become very effective as a consequence of the advances in chemistry and sensor technology referred to above. Real time verification of an enrichment facility can be achieved at a pro rata cost lower than one thousandth of the cost of producing one "separative work unit".

Large-scale reprocessing installations using wet chemistry are now coming under IAEA inspection. The IAEA has defined the verification approaches and criteria to be applied. Verification of modern reprocessing facilities with complex chemical processes requires a very complex network of advanced sensors. Such verification is therefore costly, with an impact on IAEA's financial and human resources. The safeguarding of advanced reprocessing techniques, such as those based on pyrochemical processes, will be a challenge. Simpler and cheaper verification might be achieved when such new plants are constructed with no separation of U, Pu and minor actinides, and possibly with no extraction of fission products

With respect to fuel cycle facilities at the back end of the fuel cycle (spent fuel and related facilities), there are no major proliferation concerns, since technological advances allow for efficient IAEA safeguards using real time verification for MOX fuel fabrication, spent fuel storage and even disposal repositories. The widespread implementation of the Additional Protocol will further accelerate this development. Technological advances would benefit these activities by simplifying their verification.

Recent discoveries of undeclared nuclear activities have demonstrated that the proliferation of sensitive technologies is difficult to inhibit given the broad dissemination of knowledge. The improvement, standardization, and strict application of export controls, as well as the strict application of international safeguards will help prevent clandestine activities. The advanced technologies used in modern safeguards will contribute greatly towards that goal. In addition, fostering multinational cooperation will facilitate a worldwide reduction of commercial nuclear facilities in the sectors of uranium enrichment and spent fuel reprocessing. This, in turn, will help to reduce technology transfers that might be used for weapons programs.

### *Economics*

This summarizes generic economic considerations relevant for all multinational nuclear fuel cycle facilities. Additional economic considerations specific to different technologies (enrichment, reprocessing, storage and disposal) are addressed.

History and logic suggest that the more profitable a proposal, the easier will it be to recruit partners and implement the proposal. Economies of scale exist for most facilities in the nuclear fuel cycle, and the expectation that multinational facilities will likely be larger than national facilities raises the possibility that economies of scale will generate simultaneous

non-proliferation and economic benefits. The double incentive should make it easier to establish a multinational facility.

But economic benefits need not be a necessary condition. Countries spend substantial sums to improve national security and should be willing to spend on multinational facilities that cost-effectively improve their security by strengthening the non-proliferation regime.

Nor are economies of scale and economic benefits sufficient conditions for a multinational facility. Even where they exist, it can be very difficult, for the reasons below, to structure incentives to be attractive to all necessary partners. And a country bent on proliferation will not necessarily be dissuaded even by a very lucrative MNA alternative.

The economic attractiveness of an MNA may be vulnerable to economic upsets or major shifts, whether due to markets, politics, accidents, or natural disasters. If so, hedges and insurance arrangements may be needed to make its economic appeal more resilient.

An MNA's attractiveness must not be too dependent on the future development of nuclear power following a particular expansion (or contraction) path, globally or regionally.

Different parties sometimes have different motivations and different expectations of the future. A successful MNA must dovetail these differences in ways that attract the participants necessary to deliver the desired economic and non-proliferation benefits. The costs of start-up, operations, liabilities and needed accumulating funds (e.g. for eventual decommissioning) must be allocated efficiently and equitably in the eyes of the participants. Acceptable dispute resolution provisions must be included, and if universal, or very broad, participation is needed, compensation arrangements may be needed to assure that every party judges itself a net winner.

### ***Assurances of supply***

Currently, the commercial market satisfies the demand for fuel services. There is a diversity of commercial enrichment companies; enrichment capacity exceeds demand; and, based on current expansion plans, capacity is likely to comfortably keep abreast of projected increases in demand. There is no specific call by consumers for additional arrangements to assure supply. For other front end processes (concentration and purification of uranium, conversion and fabrication) the situation is similar. This equilibrium in the uranium market is likely to change only if the demand for nuclear power increases significantly.

However, some States with enriched uranium resources may freely cut off supplies to other States to gain leverage for reasons that have nothing to do with non-proliferation. Against that possibility, a country needing enriched uranium for nuclear power plants may have an interest in alternative extra-market measures being in place to provide assurances of supply. Other than for the production of weapon nuclear materials, possible motivations for building a domestic enrichment capability are:

- a. Reducing external dependence on foreign suppliers and achieving greater economic independence, e.g. when faced with a shortage of foreign currency or energy supplies,
- b. Unfavourable experiences in the past and low confidence in existing suppliers,
- c. National prestige and expected spin-offs for industrial and technological development.

For any given country, none, some or all of these may be relevant. Establishing a multinational arrangement that provides a fully credible international external assurance of supply is no guarantee that a State will not wish to pursue a domestic capability. Nevertheless, an international external assurance of supply would address the first two motivations in this list. Whatever the situation, a State that pursues a domestic capability may not necessarily be doing so to create the option of acquiring nuclear weapons.

Concerns about assurances of supply have existed since the 1960s, and is still a primary concern in 2005, a central element of national nuclear policies. The secure availability of nuclear energy rests on assurances of supply of nuclear material, equipment and services for those having nuclear plants. Domestic solutions, which are the privilege of a few States, are not available to others. And in an age of growing interdependence and globalisation, the drive for self-sufficiency is diminishing as a guide to national economic policies. In this perspective, MNAs may represent an effective alternative to national solutions, depending upon conditions of the assurances of supply of fuel and/or services that are credible and viewed by the potential clients as dependable, reliable and economical.

The fundamental conditions that potential MNA partners may demand are worthwhile restating:

- a. Diversity of suppliers participating in the MNA;
- b. The willingness of a sufficient numbers of suppliers to grant to the MNA generic consent for the transfer of the respective goods and services assuming of course that basic premises with be fulfilled (non-proliferation credentials, physical security, export controls and safety);
- c. The availability from such suppliers of significant amounts of fissile material free of "flags" and free of prior consent rights from other parties;
- d. Sufficient reserve capacity of the respective fuel and services to cover supply emergencies, in a setup equivalent to the mandatory national oil reserves held by OECD members under the auspices of the International Energy Program of the International Energy Agency;
- e. A credible, timely and reliable decision-making mechanism for the release of replacement supply;
- f. A pricing mechanism for the provision of substitute fuel and services in case of emergency that is deemed fair and that leads to prices not significantly higher than those set by the original supplier;
- g. A neutral and fair process for determining whether a recipient that has lost its original supplier is in good standing with its non-proliferation commitments.

### ***Legal and Institutional***

The establishment and operation of an MNA needs to be founded on an appropriate legal base. Such a facility could have as its legal basis:

- a. an international agreement alone (as exemplified by Eurochemic);
- b. national legislation (as exemplified by EURODIF);
- c. a combination of a and b (as exemplified by URENCO).

In practical terms, there is little difference between a legal basis consisting of an international agreement alone and one consisting of an international agreement and national legislation (although the difference between the two will vary depending on the extent to which the requirements of the agreement are expressed in general or specific terms: the more general the terms of the agreement, the greater the difference). This is so because, normally, national legislation is needed to implement the terms of an international agreement. Two exceptions to this general rule are: for a State in which existing legislation is sufficient to enable the implementation of the treaty; for a State in which an international agreement automatically becomes part of national law upon its entry into force for that State. However, even in these two cases, regulations (which are a form of legislation) may be needed for full and effective implementation.

With respect to the second possible legal basis, that is, national legislation alone, a State could, of course, enact legislation for the establishment and operation of an MNA. However, while a State has jurisdiction to require that the legislation be observed by any person or entity making use of the services provided by the facility, that State has no jurisdiction to enforce the observance of such requirements outside its territory (without the consent of the State in whose territory the person or entity is located, or unless the person or entity has assets against which legal action can be taken in the territory of the legislating State). Further, in the absence of a binding international agreement, a State would be free to repeal or change such legislation.

If an international agreement were to form the, or part of the, legal basis, for an MNA, the following issues related to form and procedure would need to be addressed:

- a. whether all States would be entitled to become parties to the agreement (i.e. a universal agreement) or only those States in a given region (or, for that matter, whether it could be bilateral); and in that context, whether regional agreements could be concluded and brought into force more quickly than a universal agreement;
- b. how the agreement would enter into force: if the agreement were to be multilateral, whether it should enter into force upon adherence to it by the host State and one or more other State(s);

- c. whether the agreement should refer only to existing facilities (e.g. all existing enrichment facilities in the States party to the MNA) or cover all existing and future facilities;
- d. whether it would be feasible to have an approach based on an agreement between the States in which the relevant facilities are located, together with separate agreements between that group of States and each State in which persons or entities within the latter's territory are to receive the services of the facility or facilities.

The agreement(s) or national legislation would also have to address, among others, the following substantive issues:

- a. what entities may participate in or benefit from the MNA (e.g. governments; governmental entities; private entities);
- b. the conditions for participation in the MNA, including:
  - i) the application of appropriate IAEA safeguards pursuant to an INFtype agreement or an INFCIRC/153-type agreement, and an additional protocol based on INFCIRC/540 (Corr.), in the territory of all recipients of the output (e.g. services, material) of the facility;
  - ii) the application of appropriate safety and physical protection measures in the territory of all recipients of the output of the facility;
  - iii) an undertaking by each State to prohibit within its territory any activity parallel to that of the facility (e.g. any other enrichment activities); and, if agreed by a State or group of States, restricting research and development on such technology to the MNA entity;
- c. the prohibition of withdrawal from the arrangement;
- d. the sanctions to be applied with respect to any breach of sub(b) and (c) above;
- e. how joint decisions are to be taken with respect to the supply of material or services, and agreed circumstances justifying a denial of supply (e.g. for reasons unrelated to non-proliferation, such as failure to fulfil commercial conditions);
- f. how disputes (commercial or otherwise) are to be settled, including issues of forum and jurisdiction);
- g. whether the MNA should be treated as an independent international legal entity, and, if so, the nature and extent of any privileges and immunities that are to be accorded to it in the host State and in other participating States;
- h. how and by whom decisions relating to the operation of the MNA are to be taken;
- i. how and by whom the activities of the MNA are to be financed;
- j. what provisions should be made in case of insolvency of the MNA.

While many, if not most, of the above substantive issues would also have to be addressed in commercial contracts, such contracts (which would be governed by national law) would be binding only on the parties thereto, and the parties would not normally include Governments.

With the above in mind, and based on the premise that, to be attractive for further consideration, an MNA should be designed to lessen nonproliferation, security and safety concerns while providing assurances of supply of nuclear fuel and sustaining technologies in return for restraints in the use of sensitive technology, the following three categories of options for multilateral approaches are considered and assessed:

*(a) Options involving assurances of services not involving ownership of facilities*

- i: Additional assurances of supply by suppliers: These assurances could take different forms, such as longer-term contracts or contracts with more favourable incentives. This might require all supplier-States agreeing to amend any national legislation which impose prior consent conditions

- ii: International consortium of governments: This could take the form of a fuel bank to which governments would physically contribute material. Alternatively, supplier governments could physically hold the material, subject to an agreement on how it is to be distributed.
- iii: IAEA-related arrangements: The IAEA could physically hold and distribute the material. Alternatively, the IAEA could simply direct the distribution of the material. The IAEA could either hold title to the material, or conclude an agreement with a State or States to provide the material or services at the direction of the IAEA. Countries most concerned with assurances of supply would likely prefer a role by the IAEA. However, it is not clear whether countries would wish to relinquish all prior consent rights to material provided to or by the Agency. In addition, the IAEA might decline to provide material in certain circumstances (such as non-compliance in safeguards, poor nuclear safety records, or insolvency).

*(b) Options involving the conversion of national facilities to multinational facilities*

This would entail the conversion of an existing national facility to one subject to international ownership and management. It could be based on an arrangement in which all partners share the technology or one in which access to the technology is limited to the technology holders.

*(c) Options involving the construction of new facilities*

- i: The URENCO model: This could involve the sharing of technology with all partners involved in the construction of a new facility, or the construction of a facility in a non-technology holding State without providing that State with access to the technology.
- ii: The EURODIF model: Although the partner(s) would all have a share in the ownership of the facility, the technology holder(s) would not give the non-technology holding partner(s) access to the technology nor permit them to participate in the operation of the facility.

***Non-proliferation and security factors***

Since non-proliferation concerns are the driving force behind the present interest in devising multilateral approaches, it is necessary to ensure that any models for such approaches strengthen, not weaken, the non-proliferation regime. The outright transfer of sensitive technologies should be ruled out or, at a minimum, extreme caution/restraint should be exercised in its transfer. Related issues to be resolved from a non-proliferation and security perspective might include: siting of the multilateral facilities or operations; security of materials, facilities and transport; handling and storage of wastes; take-back of spent nuclear fuel; timely supply of fresh fuel and timely removal of spent fuel; and common legally binding non-proliferation undertakings.

As an alternative to multilateral approaches to prohibit additional States from developing enrichment and/or reprocessing capabilities, some have called for strengthening the non-proliferation regime by altering the NPT itself, whether de facto or de jure. In particular, it has been suggested to reinterpret existing NPT language, which recognises and guarantees non-nuclear-weapon States the right to pursue nuclear technology exclusively for peaceful purposes if they forego nuclear weapons (Article II) and submit to IAEA safeguards (Article III). However, such an approach is probably unrealistic.

**Safeguards implementation**

The concerns evoked by clandestine supply networks, the availability of and increasing access to nuclear technology, and the possibility that some countries may be tempted to use such technology for non-peaceful purposes cannot be ignored, particularly given past evidence of that some countries have not fully complied with their safeguards obligations. Hence, the importance of the strengthened safeguards system, and of the intrusive Additional Protocol. There are fundamentally two risks: diversion of fissionable materials from declared facilities and construction of undeclared fuel cycle facilities built with technology transferred from the declared program. Diversion risks can be countered quite effectively when the additional protocol is in place.

Yet, with respect to MNAs, a question should be asked: Would safeguards implementation by the IAEA take into account the special positive nature of a multinational nuclear facility? The answer is yes. Participants whether private or governmental would be committed to

transparency and openness through the continuous presence of a multinational staff. Flows of materials would be mostly between partners to the MNA. The MNA agreement could even be stronger in this respect. This additional layer of international oversight would be recognised by the IAEA, allowing thereby a reduction of the safeguards verification scope.

This situation was anticipated by the authors of the Model Safeguards Agreement agreed by the Board of Governors in 1971, a model that has been adopted for almost all safeguards agreements concluded since then. Paragraph 81 of the model safeguards agreement (INFCIRC/153) lists criteria to be used by the IAEA for determining the actual number, intensity, duration, timing and mode of routine inspections of any facility. Its paragraph (d) covers the following criterion: *"International interdependence, in particular, the extent to which nuclear material is received from or sent to other States for use or processing; any verification activity by the Agency in connection therewith; and the extent to which a State's nuclear activities are interrelated with those of other States..."*.

In its report to the Director General in May 2004, the Standing Advisory Group on Safeguards Implementation (SAGSI) referred to Para. 81 and noted that a large number of facilities receive nuclear materials from, and send nuclear materials to, other States, and also that many facilities employ multinational staff whose activities are interrelated with those of other States. SAGSI confirmed that the IAEA should give appropriate recognition to international interdependence under the so-called "State level approach", an approach that would include consideration of State-specific factors such as the level of cooperation with the IAEA on safeguards implementation in the State, including consideration of openness and transparency; and the presence of a supportive and effective State System for Accounting and Control (SSAC). These comments are quite relevant for MNA joint facilities.

### Security and physical protection

Besides non-proliferation and safeguards factors per se, the physical protection of nuclear materials and related facilities has always been a matter of great importance, and would continue to be so under an MNA. Nevertheless, no international treaty mandates States possessing nuclear material to enforce physical protection and security measures. The NPT requires safeguards on nuclear material in NNWS Parties and that necessitates the establishment of a SSAC, but physical protection is not an attendant requirement. In practice, SSAC's controls, Agency inspections and the Agency's review of national accounting help to some extent to provide physical security of the nuclear material under safeguards. However, Agency inspectors are not required explicitly to verify physical protection. When the IAEA system of safeguards for NNWS was established in 1971-1972, physical protection standards were only "recommended", and no agreement was possible among the States to make these standards mandatory.

The agreed and recommended standards were published in 1975 as INFCIRC/225, and have been since then regularly upgraded under IAEA auspices. The latest INFCIRC/225 document recommends that each State establish and periodically re-evaluate "design basis threats" for its facilities, as well as conduct exercises to test whether guards, sensors and other protection measures are adequate. The document includes detailed provisions on protecting from sabotage nuclear power reactors as well as stored nuclear materials.

The 1980 Convention on the Physical Protection of Nuclear Material (CPPNM) required physical protection standards but these apply only to nuclear materials for peaceful purposes that are in international transit or in temporary storage as part of international transport. Thus, the CPPNM applies only to civilian nuclear material and contains no verification provisions. The result is that there is a wide variation in physical protection standards from State to State. The mechanism of "peer reviews" is used to assess the implementation of the CPPNM standards. An attempt is underway to strengthen the CPPNM, but the proposed amendments do not cover nuclear material in military use or related military facilities.

The protection of weapon-usable plutonium and HEU against theft and sabotage will not be effective against diversions and thefts, unless adequate standards are applied to all sources of such materials globally and are made mandatory. A revision of the CPPNM could improve the situation. Short of such a revision, a way should be found to make INFCIRC/225 mandatory; adherence to and implementation of such guidelines and recommendations also needs to be improved.

Thus, from the security perspective, all multilateral nuclear fuel cycle approaches will face the requirement of being integrated within the existing international nuclear non-proliferation and security arrangements in order to elicit the confidence of participating and other States. The challenge will be to ensure that a multilateral nuclear arrangement can be established with high standards of physical security and of MPC&A (material protection, control and accounting).

제1분과  
방사성폐기물 정책 및 제염해체  
(Poster)

# 빈 면

## PFC Ultrasonic Decontamination Performance on the Various Types of Metal Specimen

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

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

A study on the decontamination of various types of SUS-304 specimens was carried out in PFC(Perfluorocarbon,  $C_7F_{16}$ ) solution containing 0.1 vol% anionic surfactant at room temperature under atmospheric pressure. To make a loose contamination, metal surface was contacted with the ethyl alcohol solution which contains  $Eu_2O_3$  powder and fluorescent material by using a syringe. Decontamination behavior of PFC ultrasonic method on the loosely contaminated metal specimens such as rectangular type, tube type, welding specimen and crevice type was investigated. After the specimen was put into the specimen chamber, the reactor was filled with PFC solution. Then the specimen was decontaminated by ultrasonic method for 5 minutes. Before and after the test, the weight of specimen was measured. The outer surface of specimen was also photographed. From the results, the weight of the total contaminants and the weight of removed contaminants were calculated. For all the rectangular type metal specimens( no scratch, linear scratch and check scratch ), all of the contaminants were removed within 5 minutes. For all the specimens, more than 80 % of contaminants were removed within 1 minute after ultrasonic application. For the tube type specimens( diameter was 2cm, tube length was 1, 2, 4 and 6 cm, respectively ), only the specimens with a length of 1 and 2 cm were fully decontaminated. For the length of 6 cm specimen, 98.5 % of the contaminants were removed. After the multiple applications, distillation test on the spent PFC solution was performed. More than the 95 % of the PFC solution could be recycled without the loss of decontamination efficiency.

## Separation and Extraction of Hot Particulate from contaminated Perfluorocarbon solution

Gye-Nam Kim, Mathuresh Narayan, Hui-Jun Won, Chong-Hun Jung, Won-Zin Oh  
 Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duckjin-dong, Yuseong-gu, Daejeon, Korea

### Abstract

It was an idea to develop a system to remove the contaminated hot particulate to make clean nuclear research facilities to the clear visibility for researcher. In order to clean micron and sub micron size particulates from used PFC solution as a decontamination tool. Since PFC solution is very expensive so it was a high recommendation to develop the some filtration equipment to purify PFC for next decontamination process, in additionally, reduce the secondary waste. However, we developed an easy and economic filter system to purify the PFC solution. The major advantage of the process operates in closed loop under near ambient conditions, thus minimizing the potential for fugitive TRU emissions and reduces the secondary waste. This has very significant safety and cost impacts. Here we proposed the two types PFC filter systems.

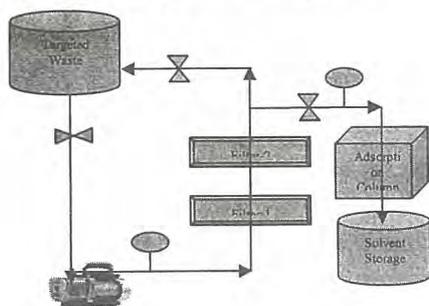


Fig. 1: Schematic Diagram for Hot Particulate Treatment

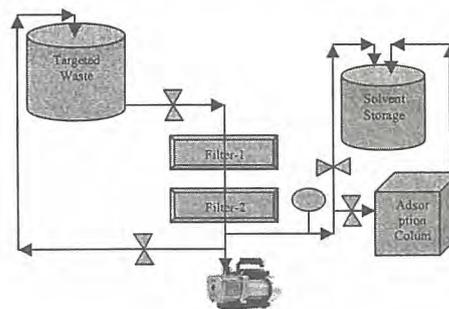


Fig. 2: Schematic Diagram for Hot Particulate Treatment

### Introduction

To remove the radioactivity on a metal surface, chemical cleaning reagents have been widely applied. As we know that the cyclones are one of the most common inertial devices and used for a variety of applications. Cyclones, however, have low collection efficiency for small particles due to their reliance on inertial forces to separate particles from gas streams. Particles that are micron size or smaller generally adhere tenaciously due to secondary valence forces with other solid surfaces, and cannot be removed by simple mechanical means. However, contacting particle-contaminated surfaces with a dilute solution of fluorinated surfactant of high molecular weight in an inert perfluorocarbon (PFC) liquid with spraying shear conditions resulted in effective removal of micron or sub-micron sized particles from solid surfaces.

Accordingly, in the present study the particle size distributions and concentrations were mainly uranium, cesium, plutonium etc., which produce hydrogen gas under the alpha radiations in presence of organic constituent.

This work is related to PFC (perfluorocarbon) solution filtration system, which can be easily handled and moved from one place to another and positioned in areas that are cramped for surface. Though there are many filtration systems available to remove hot particulate, but there is no any system available which can be confined areas to purify the PFC solution. Such system that is available requires substantial modification there to by way of long and complicated. In general, the present available system is not good enough to get highly pure PFC after filtration.

### Description of the Proposed System

Figure 1 and figure 2 are the process flow diagram or perspective view of our proposed system. Following is a description of the fluid flow through the experimental setup.

**Figure 1:** Fluid, drawn from the tank (Targeted Waste) by the pump, through a throttling valve, used to control the flow rate of the fluid for the filter, through PG-1, is first pumped through a filter-1, and filter-2, from here, the fluid flows passed another pressure gauge, PG-2, to Adsorption column, through a throttling valve and finally collected in solvent storage.

**Figure 2:** Fluid, drawn from the tank (Targeted Waste) to filter-1 and filter-2, through a throttling valve. From here this fluid may retentate to again target waste tank or supply to adsorption chamber or directly solvent storage tank by the pump. PG used to control the flow rate of the fluid for the mainly adsorption column.

In case of second proposed system the fluid could be collected without passing through the adsorption column. To use of adsorption column here is an option according to need of pure PFC.

#### Filters

Filter-1 known as primary ceramic filter consist of  $2.0\ \mu\text{m}$  pore size of  $\text{Al}_2\text{O}_3$  over  $\text{SiC}$  module, while Filter-2 known as secondary ceramic filter consist  $0.2\ \mu\text{m}$  pore size. The purpose of these filters is to remove sub-micron particles suspended in the solution that leaves the cleaning chamber before this solution is returned to storage. Two filters were placed in parallel to reduce the pressure drop to a level that matched the output pressure of the circulation pump.

#### Why Proposed to Ceramic filters

Ceramic filters are stable in a radiological environment. They do not contain hydrogen in their structure, and thus cannot generate hydrogen gas in the presence of uranium, cesium and plutonium etc. particles. This is in contrast to standard filters made of polymeric materials that will generate gaseous hydrogen when subjected to alpha radiation. Therefore, we have chosen ceramic filter because ceramic filters offer high temperature stability, strength, and compactness. They are available in the form of cylinders or large diameter honeycomb monoliths that contain a large number of 2 mm square parallel passageways extending from one face to the other. Note that in dead-end recirculating filtration, which is used here, there is no retentate flow. We expect that most of the hot particulates will be collected on the ceramic filters. These filters will be dry when they are removed from the process, and will be treated as TRU solid waste. In additionally, ceramic filters have a high soil loading capacity in a dead-end mode, and can be back flushed, if desired.

#### Activated Carbon Filter Adsorption Column

The first component of the ACF adsorption column is the ACF cloth wrapped mandrel. The mandrel is composed of a porous metal pipe welded to two sections of pipe on either end. With one end plugged as seen in Figure 3, and the other end welded to the. Which penetrates the column cover, pipe the mandrel is complete.

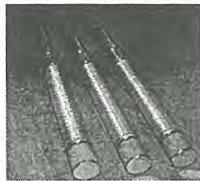


Figure-3

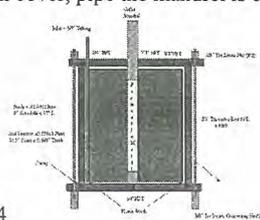


Figure-4

Found in Figure 4 is the variation on this adsorption column setup. The difference between these two setups is that in the second there is an impermeable polyethylene sheet covering both ends. This guards against any of the fluid bypassing the ACF cloth. Without this plastic the fluid could flow through the ends of the carbon and pass through only a small portion of the carbon, exhausting the removal capacity of that small portion quickly.

#### Conclusion

A Filtration system for the removal of hazardous and radiological particles from a fluorinated solvent has been proposed here which permits the reuse of Perfluorocarbon as a decontamination tools and reduced the secondary wastewater.

#### Benefits

Cleaning contaminated equipment from the hot cells would drastically reduce the volume of TRU waste that would require characterization, packaging, shipping, and processing. It would also significantly reduce the risk of exposure to people and the environment to TRU waste particles. Depending on the nature of the contamination, more than 97 percent of the radioactivity can be removed using this system, and find the pure PFC for next decontamination. It is simple, safe, highly automated decontamination process and no toxic or oxidizing chemicals are used; no high pressure or temperature needed for processing. Lowered risk for impact to the environment: no gaseous effluent containing TRU particles.

## CO<sub>2</sub> pellet 건식분사 제염공정에 관한 연구

정종현, 이중명, 오원진, 황성태, 박진호  
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

방사성 물질을 취급하는 핵연료주기시설의 수명기간동안 다양한 유지보수 작업이 필요하며, 이 유지보수 작업 중 작업자의 피폭저감과 시설의 안전관리를 위해 제염은 필수적이다. 이러한 제염의 필요성은 시설의 수명이 증가할수록 점차 증대된다. 핵주기 시설을 대상으로 기존에 입증되어 사용 중인 제염 공정으로는 크게 습식제염공정과 건식제염공정기술을 들 수 있다. 습식제염공정은 사용되는 분사체의 종류에 따라 고압의 물이나 액체를 사용한 고압액체분사 제염공정으로서 제염 후 발생하는 액상이나 고압의 부생성물을 생성하여 2차 폐기물을 발생시킨다. 최근에 주목을 받고 있는 건식제염기술 중의 하나인 CO<sub>2</sub> 분사제염법은 장비 파손이나 장비 분해없이 현장에서 적용할 수 있고 기존의 유해화학물질, 고압수 분사와 연마성 모래분사와는 달리 2차 폐기물 처리·처분의 추가적인 비용이 들지 않는 장점을 가지고 있다. 이러한 기술적 특성을 갖고 있는 CO<sub>2</sub> pellet 건식분사 제염기술을 개발하기 위해 새로운 기능을 갖는 CO<sub>2</sub> 분사제염장치의 설계·제작과 CO<sub>2</sub> 분사제염 공정변수를 파악하여 최적의 제염조건을 확립하기 위한 연구를 수행하였다.

방사성 오염시편을 사용한 hot test 수행 전에, 비방사성 실험을 위해 hot cells내 오염을 모사할 수 있는 화합물형 오염, 분진형 오염 및 oil형 오염시편을 제조하였다. 화합물 오염시편으로는 CsNO<sub>3</sub> 용액을 48hr 동안 50℃의 oven에서 단순 건조시킨 비고착성 오염시편과 400℃의 고온에서 24hr 동안 산화시킨 고착성 오염시편을 제조하였고, 분진형 오염시편은 SUS 304 모재에 1μm, 5-10μm 크기의 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 입자를 alcohol에 용해한 후 도포하여 제조하였으며, oil오염 시편은 구리스 오일(Dow Corning corp.)을 SUS304 모재에 일정 두께로 도포하여 제조하였다. 제염효과는 XPS 및 제염 전·후 정밀 무게측정에 의해 산정하였다.

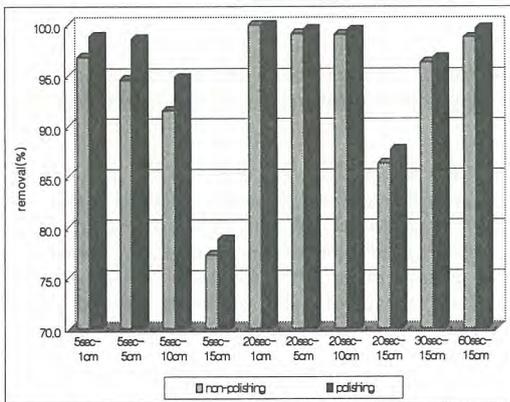


Fig. 1. CO<sub>2</sub> pellet decontamination results for CsNO<sub>3</sub> loose contamination(7mm-7Kgf/cm<sup>2</sup>).

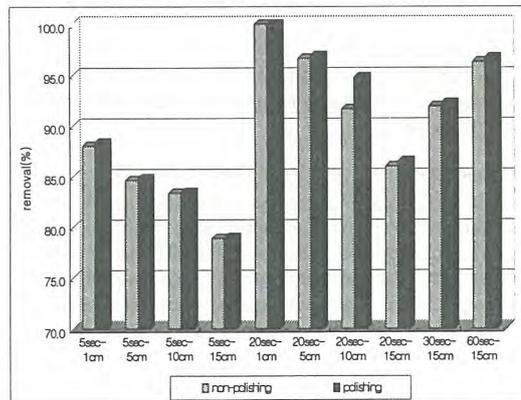


Fig. 2. CO<sub>2</sub> pellet decontamination results for CsNO<sub>3</sub> fixed contamination(7mm-7Kgf/cm<sup>2</sup>).

CsNO<sub>3</sub> 화합물 오염에 의한 제염 실험결과를 고착성오염과 비고착성 오염으로 구분하여 각각 Fig.1 과 Fig. 2에 나타내었다. 비고착성 오염의 경우, 분사거리 15cm를 제외하고, 분사시간 20sec에서 95% 이상(DF>20)의 제거율을 나타내었다. 30sec의 접촉시간에서는 15cm의 분사거리에서도 95% 이상의 제

거울을 나타내었다. 고착성 오염의 경우 분사거리와 접촉시간이 증가함에 따라 제거율이 증가하였는데, 분사거리보다는 접촉시간의 영향이 더 큰 것으로 나타났다. 분사거리 1cm, 5cm에서 20sec간 접촉시켰을 때, 96% 정도의 제거율을 나타내었다. 또한 5Kg/cm<sup>2</sup>의 분사압력조건에서도 7Kg/cm<sup>2</sup>의 압력조건에서의 조작변수 변화에 따른 제거거동과 유사하였으나 5% 정도 낮은 제염효과를 나타내었다. 비고착성 오염에 비해 고착성 오염의 제거효율이 보다 낮았으며, 특히 5sec의 접촉시간에서는 약 10% 이상 낮았다. 이는 오염물질이 화학적으로 결합된 고착성 오염 형태에 기인한 것으로 판단된다.

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 분진형 오염을 사용하여 분사거리와 분사압력 및 분사시간, 그리고 분진형 오염입자 크기를 변화시켜 실험한 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 제염결과는 화합물형 오염과 마찬가지로 분사거리, 분사압력, 분사시간이 증가함에 따라 제염효율이 높음을 알 수 있었다. 입자크기별로는 5-10 $\mu$ m 오염입자의 제염효율이 1 $\mu$ m에 비해 제염효율이 2~3% 정도 높았다. 이는 오염입자의 표면 결합력이 오염입자의 크기에 반비례하기 때문으로 사료된다. 5-10 $\mu$ m 오염입자의 경우 99.5%(DF>200)의 제거율을 나타내었다.

Fig. 4에 나타낸 바와 같이 점도가 높은 오일 오염에 대해 80% 이상의 제거효율을 얻기 위해서는 90sec의 분사시간이 필요하며, 95%의 제거율을 얻기 위해서는 최소 120sec 정도의 분사시간이 필요하였다. 분진 및 화합물 오염과 마찬가지로 분사시간 및 분사압력의 증가에 따라 제염효율이 증가함을 알 수 있었다. pellet의 크기가 증가함에 따라 제염효과가 약간 증가하였는데, 이는 pellet 크기의 증가에 따라 kinetic 에너지가 증가한 때문으로 사료된다.

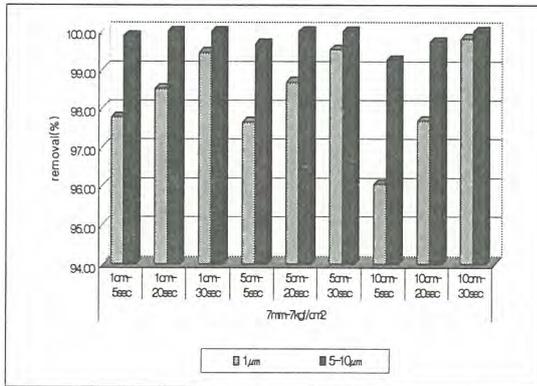


Fig. 3. CO<sub>2</sub> pellet decontamination results for Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> contamination (polishing).

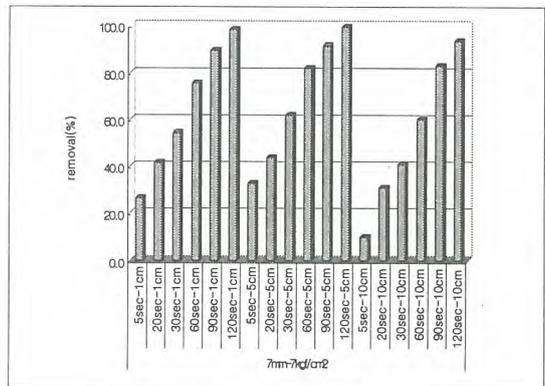


Fig. 4. CO<sub>2</sub> pellet decontamination results for oil contamination.

## Hot Cell 내부에 분포한 Hot Particulate 제거를 위한 사이클론 필터 시스템 개발

김계남, 이성열, 원휘준, 정종현, 오원진, 박진호  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150 번지,

[kimsum@kaeri.re.kr](mailto:kimsum@kaeri.re.kr)

국내 원자력시설 가동 중 원자력 시설 및 관련 장치들이 방사능으로 오염될 수 있으므로 주기적으로 오염된 부분을 제염할 필요가 있다. 특히 원자력시설 핫셀(Hot Cell)에서는 사용후 핵연료의 산화환원 및 분쇄공정, 사용후 핵연료의 절단 및 분말화 공정, 균분리 공정, 사용후 핵연료 금속전환 공정 등을 수행하고 있으므로 핫셀 바닥면과 벽면 그리고 핫셀 내부에 있는 여러 장치표면들이 연구실험 과정에서 발생한 고방사능 분진과 고방사능 핵연료의 조사 등에 의해 오염되어 핫셀내의 방사능 준위가 높아지고 있다. 그러므로 핫셀내에서의 핵종실험을 원활히 수행하기 위해서는 주기적으로 핫셀 내부 표면과 장치표면에 오염된 고방사능 분진을 제거하여 핫셀 내의 방사능 준위를 낮추어야 한다. 핫셀 내에 발생한 고방사능 분진들을 제거하기 위해 사이클론, Bag Filter, 그리고 HEPA Filter 로 구성된 새로운 고방사능 분진 처리장치의 개발이 필요하다. 이 장치 중 사이클론으로는 주로 직경 약 1  $\mu\text{m}$  이상의 고방사능 분진들을 제거하고 BAG/HEPA Filter 로는 1  $\mu\text{m}$  이하의 입자들을 제거하고자 한다.

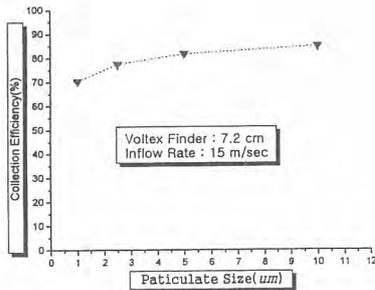


Fig.1. Collection efficiency of cyclone versus particulate size

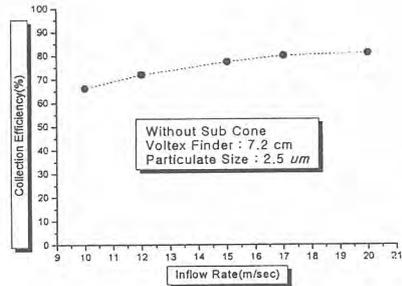


Fig. 2. Collection efficiency of cyclone versus inflow rate of particulate

1  $\mu\text{m}$ 로부터 10  $\mu\text{m}$ 까지의 크기가 다른 미립자를 사이클론에 유입시켰을 때, 사이클론 포집기에서의 포집효율은 Fig. 1 과 같았다. 이때, Vortex Finder 길이는 7.2cm 이고, 미립자의 유입속도는 15 m/sec 로 일정하게 했다. 실험결과 Kim 등(2001)에 의한 실험 결과와 마찬가지로 미립자의 크기가 클수록 포집효율은 증가했다. 즉, 모의입자 크기가 1  $\mu\text{m}$ 이상일 때 포집효율은 70 % 이상으로 나타났고, 5  $\mu\text{m}$ 이상일 때 포집효율은 80 % 이상으로 나타났다. 또한, 모의입자의 크기가 2.5  $\mu\text{m}$ 보다 작아질 때 포집효율은 좀더 큰 비율로 감소하는 것으로 나타났다. 2.5  $\mu\text{m}$  의 모의입자를 사용했을 때, 포집효율은 77.5 %로 나타났다. 아래의 실험에서는매개변수에 대한 포집효율의 영향을 크게 하기 위해 2.5  $\mu\text{m}$  모의입자를 사용했다

앞의 실험에서 선정된 2.5  $\mu\text{m}$  크기의 모의입자를 사용하여 Vortex Finder 길이가 7.2 cm 일 때, 모의 입자 유입속도를 10, 12, 15, 17, 20 m/sec 로 변화시켰을 때, 모의 입자 포집효율을 측정했고, 포집효율은 Fig. 2 와 같았다. Kessler 과 Leith(1991), Zhu 와 Lee(1999), Kim 과 Lee(1990) 등이 제시한 것처럼 미립자의 유입속도는 포집효율에 상당한 영향을 미쳤다. 즉, 모의입자의 유입속도가 빨라질수록 포집효율은 증가했다. 모의입자유입속도가 12 m/sec 이상일 때, 포집효율은 70 %이상이 되었다. 그러나 유입속도가 17 m/sec 이상일 때, 포집효율의 증가가 둔화되는 것으로 나타났다. 그러므로 본 연구의 실험에서는 유입속도가 너무 빠르지 않고 포집효율도 적당한 15 m/sec 를 사용했다.

모의입자의 크기가 2.5  $\mu\text{m}$  이며 유입속도가 15 m/sec 일 때, 최적의 Vortex Finder 의 길이를 선정하는 실험을 수행했다. Lim 등(2004)에 의하면 Vortex Finder 의 모양과 직경에 따라 포집효율이 다르다. 즉 직경이 작을 때 그리고 실린더 보다 큰 모양일 때 효율이 약간 증가했다. 본 논문에서는 Vortex Finder 의 길이를 4, 6, 7.2, 10, 13 cm 로 변화시키며 포집효율을 측정하였다. 측정결과 포집효율은 Fig. 3 과 같이 Vortex Finder 의 길이를 사이클론 내부로 4, 6, 7.2 cm 로 증가시키며 따라 포집효율도 증가했다. 그러나 7.2 cm 를 넘어 10, 13 cm 로 Vortex Finder 길이를 증가시켰을 때, 포집효율은 점차 감소하는 것으로 나타났다. 그러므로 Vortex Finder 길이가 7.2 cm 일 때 최대의 포집효율을 나타냈다.

사이클론 과 미립자 수집기 사이에 보조콘을 설치했을 때, 보조콘에 의한 포집효율의 증가율을 측정했다. Fig. 4 와 같이 2.5  $\mu\text{m}$  크기의 모의입자를 사용하여 Vortex Finder 길이가 7.2 cm 일 때, 모의입자 유입속도를 5, 7, 10, 13, 15 m/sec 로 변화시켰을 때, 보조콘 부착 시 모든 속도 범위에서 약 평균 2% 정도 포집효율이 증가하는 것으로 나타났다. 즉, 보조콘 부착 효과는 그리 크지 않은 것으로 나타났다.

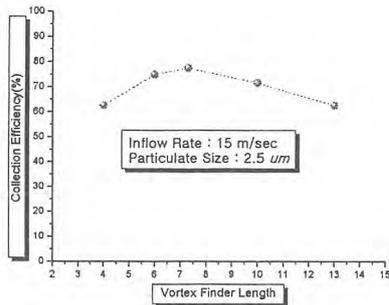


Fig. 3. Collection efficiency of cyclone versus vortex finder length

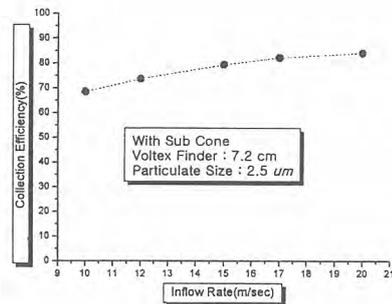


Fig. 4. Collection efficiency of cyclone with sub-cone versus particulate

## 방사성금속폐기물의 전해제염에 대한 연구

김광득, 안정석, 이경호, 김영주

(주)데콘엔지니어링, 경기도 수원시 영통구 원천동 산 5번지 아주대학교 산학협력원 213호

[nirvanabuda77@hotmail.com](mailto:nirvanabuda77@hotmail.com)

국내의 원자력관련시설에서 계통 pipe 또는 장비, 장치는 대부분 부식저항성을 갖는 stainless steel로 구성되어 있고, 수  $\mu\text{m}$ 를 제거하기 위해서는 강력한 제염공정이 요구되며, carbon steel의 경우, porous 하고 stainless steel에 비해 낮은 부식저항성을 갖고 있지만 대부분의 경우, 제염을 위해 수천  $\mu\text{m}$ 를 제거하여야 한다. 원자력발전소에서 발생하는 방사성금속폐기물은 냉각수내의 방사성부식물질의 표면증착(deposition)에 의해 오염되며, 대부분의 방사성물질은 약  $10\mu\text{m}$  두께의 오염층으로 구성되어 있을 것으로 판단되고 있다. 이러한 실정에 비추어볼 때, 가장 높은 corrosion rate, volume reduction factor를 가지며, 가장 빠른시간 내에 제염이 가능하면서도 2차폐기물의 양이 가장 적게 생산되는 전해제염이야말로 가장 강력한 제염 방법이라 할 수 있겠다. 전해제염은 다른 공정에 비해 경제적으로도 저비용으로 공정을 수행할 수 있으며, steam generator의 water box, tank등과 같은 대규모의 panel의 처리에 용이하고, 최대한의 재사용효과를 갖는다는 점의 장점이 있다. 그러나 제염공정 전에 제염대상물의 표면의 비전도성물질에 대한 제거문제와 복잡한 구조를 갖는 대상물에 대한 제염의 어려움이 단점으로 지적되고 있다. 이러한 기술적 특징을 가지고 있는 전해제염공정의 개발을 위해 sodium nitrate 수용액을 전해액으로 사용하는 전해제염공정을 설계 제작하고, 최적의 제염조건을 확립하기 위한 연구를 수행하였다.

여러 종류의 전해액 중, 당사에서는 2차 폐기물을 최소화 할 수 있으며, 발생하는 2차 폐기물을 metal hydroxide로 침전시켜 제거가 용이한 sodium nitrate를 전해액으로 선정하였으며, 선정된 전해액을 기준으로 하여, 전해제염을 통한 제염의 여부를 판단하는 연구를 진행하였다.

개발 제작한 pipe용 전해제염장치는 현재 한국원자력연구소 변환시설에 설치준비 중에 있으며, 변환시설 해체 후 발생하는 stainless steel pipe를 제염할 예정에 있다.

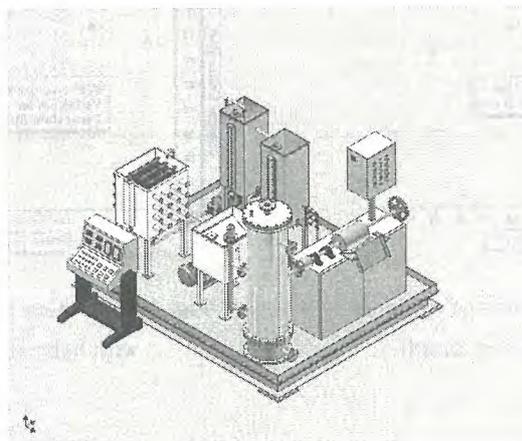


그림 1. Pipe 전해제염 시스템

한국원자력연구소의 변환시설과 한전원자력연료(주)의 방사성금속폐기물을 대상으로 실험용 모의시편을 제작하여 전해제염을 실시하였다. 변환시설의 시편의 경우 stainless steel 304의 재질의 3/4" pipe를 대상으로 하였으며, 초기 오염율이  $4.96 \text{ Bq/cm}^2$ 의 제염대상물이  $500 \text{ mA/cm}^2$ 의 전류밀

도를 사용하여, 10분 동안 전해제염한 결과,  $0.045 \text{ Bq/cm}^2$ ( $\alpha$ 의 경우) 이하로 제염되는 결과를 나타내었다.

또한 발생하는 2차폐기물 역시 전량 슬러지로 침전되어, 오염물질이 제염대상물로부터 완전 용출되어, 전해액상에서 이온으로 존재하지 않고, 금속수화물 형태로 침전됨을 확인할 수 있었다.

표 1. 전해제염 후 전해액내에 존재하는  
우라늄이온의 양; ICP-MS

sample name	content of U
over flow	0.8
sludge	746.1

다만 전해제염과정 중, +6가의 형태로 용출되는 Cr의 경우(stainless steel의 주성분), +6가, +3가의 형태로 용출되며, 이중 +6가형태로 용출되는 Cr은 전해액상에 이온상태로 다수 존재함을 확인할 수 있었다.  $\text{Cr}^{+6}$ 이 전해액에 지속적으로 축적될 경우, 전기도 저하 및 용출성의 감소 등 전해제염을 수행하기 위한 악조건으로 작용하며, 현재,  $\text{Cr}^{+6}$ 을  $\text{Cr}^{+3}$ 으로 환원시키기 위한 연구가 진행 중에 있다.

표 2 전해제염 후 전해액내에 존재하는 금속이온의  
양; IC

element	ver flow(ppm)	sludge(ppm)
Si	$8.03 \times 10^{-3}$	$1.5 \times 10^{-2}$
Cr	4.5	1.7
Mn	$1.6 \times 10^{-4}$	0.97
Fe	0.14	17
Ni	$1.4 \times 10^{-3}$	6.1
Mo	$3.6 \times 10^{-2}$	$7.3 \times 10^{-2}$

한전원자력연료(주)의 모의시편은, HEPA필터의 케이싱으로 사용되는 갈바나이즈 스틸이었으며,  $300 \text{ mA/cm}^2$ 의 전류밀도로 5분간 전해제염을 수행한 결과 방사능량이 초기 2 ~ 3 CPM의 시편이 전해제염 후, 0.5 CMP이하로 제염됨을 확인할 수 있었고, 전해제염 후,  $\alpha$ ,  $\beta$  counter를 사용하여 측정한 결과,  $0.004 \text{ Bq/cm}^2$ ( $\alpha$ 의 경우) 이하로 제염됨을 확인하였다.

한국원자력연구소의 변환시설과 한전원자력연료(주)의 모의시편을 대상으로 각각  $300 \sim 500 \text{ mA/cm}^2$ 의 전류밀도로 5 ~ 10분간 전해제염을 수행한 결과 모두 자체처분이 가능한 준위 이하로 제염이 가능하였으며, stainless steel이 제염대상물인 경우,  $\text{Cr}^{+6}$ 을  $\text{Cr}^{+3}$ 으로 환원시킬 수 있는 환원법의 개발이 요구되며, 전해제염 후, 발생하는 2차 폐기물을 처리 할 수 있는 처리장치의 개발이 시급할 것이라고 판단된다.

## 반응성 플라즈마를 이용한 금속 코발트 제염과 바이어스전압의 영향 연구

전상환, 이승훈, 고성남, 차대현

중앙집사주식회사, 서울시 강남구 신사동 654-15

### 1. 서론

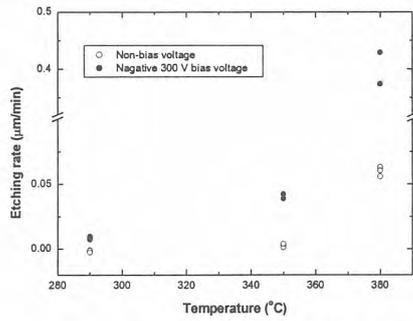
원자력발전소의 1차 계통은 초우라늄원소와 핵분열생성물, 부식생성물 등의 흡수 및 흡착으로 오염된다. 종래의 제염 방식은 주로 강한 산을 이용한 습식 처리법으로 공정이 복잡하고 2차폐기물 발생 등의 단점을 지니고 있다. 플라즈마 제염 기술은 표면 오염 핵종과 반응하여 휘발성 화합물을 생성시킬 수 있는 반응성이 높은 플라즈마를 발생시켜 방사성 오염 핵종을 선택적으로 기화시켜 제거하는 건식 공정으로 습식에 비해 2차 폐기물 양이 적고 공정을 단순화시킬 수 있는 장점을 지니고 있다. 이 연구에서는  $CF_4/O_2$ 와  $SF_6/O_2$  기체 플라즈마를 이용하여 대표적인 부식생성물인 Co에 대하여 식각 실험을 수행하였고 바이어스 전압을 인가하여 이온보조식각반응을 통하여 식각율의 향상을 도모하였다.

### 2. 실험

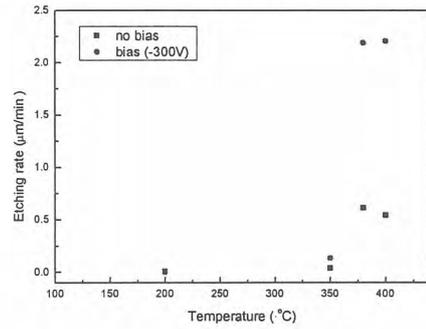
혼합기체 플라즈마를 발생시켜 순도 99.8%의 금속 Co의 디스크 형태 시편으로 식각 반응을 수행하였다.  $CF_4/O_2$ 와  $SF_6/O_2$ 의 플라즈마 기체에 대하여 최적의 혼합비를 찾아내고 온도에 따른 식각율을 도출하였다. 식각율은  $10^{-5}g$  까지 측정 가능한 micro-balance로 반응 전후의 질량감소를 측정하여  $\mu m/min$ 으로 환산하였다. 반응 시편은 SEM(Scanning Electron Microscopy)으로 표면 미세구조 분석을 하였으며 AES(Auger Electron Spectroscopy)로 반응 후 표면 잔류 원소를 분석하였다.

### 3. 결과

20%  $O_2$ 로 최적화된 혼합기체 플라즈마에서  $CF_4/O_2$ 기체에 비해서  $SF_6/O_2$  기체가 약 2.5배 정도 식각율이 높게 나타났고  $CF_4/O_2$  플라즈마에서 코발트는  $350^\circ C$ 이하에서는 식각반응이 일어나지 않았으나  $290^\circ C$ 에서 최대  $0.01 \mu m/min$ 의 식각율을 보였으며  $350^\circ C$ 에선 바이어스 전압을 인가하지 않은 경우 보다 약 20배 가량 높은 식각 반응이 일어났다.  $SF_6/O_2$  플라즈마에서는  $350^\circ C$ 에서부터 식각반응이 일어나기 시작하였고  $400^\circ C$ 에서 바이어스 전압을 인가하지 않은 경우  $0.54 \mu m/min$ 의 식각율을 나타내었고 바이어스 전압을 인가한 경우  $2.2 \mu m/min$ 의 식각율을 나타내었다. 실험 결과 바이어스 전압을 시편에 인가할 경우  $CF_4$ ,  $SF_6$  두 기체 플라즈마에서 코발트의 식각율이 비약적으로 증가하는 것을 확인할 수 있었다. 이 연구 결과를 토대로 금속 제염물에 대한 실제의 응용에 있어 DC 바이어스 전압을 인가함으로써 반응율의 증가를 유도할 수 있으며 경제적으로 적절한 반응 온도와 플라즈마 출력을 찾는다면 보다 효율적으로 제염 대상 물질을 제거할 수 있을 것으로 기대된다.



(a) CF<sub>4</sub> / O<sub>2</sub> 플라즈마 기체



(b) SF<sub>6</sub> / O<sub>2</sub> 플라즈마 기체

그림 1. 시편 온도 변화에 따른 코발트 식각율  
(flow rate: 50 sccm, bias voltage: 300 V,  
rf plasma power: 220 W, reaction time: 10 min)

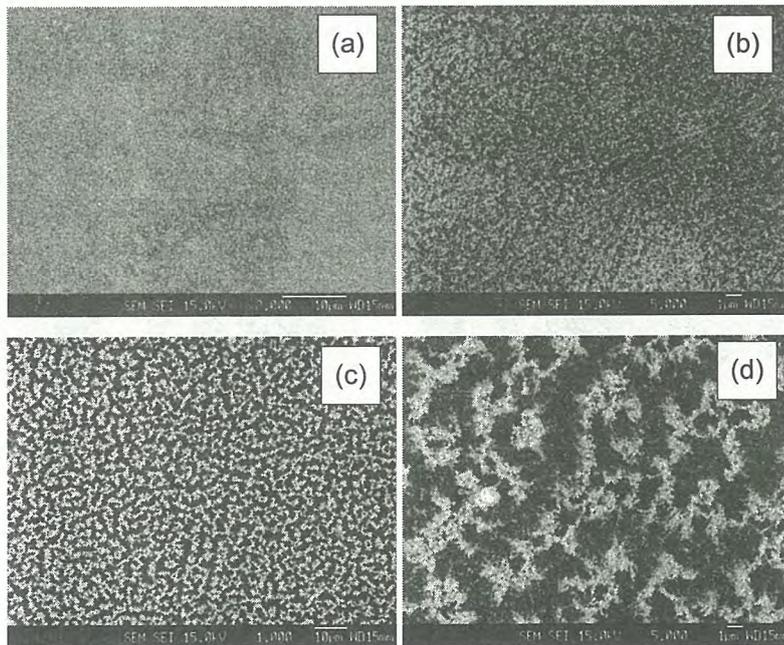


그림 2. 코발트의 morphology (350°C 식각 반응)

- (a) Intact
- (b) No bias voltage
- (c) DC bias voltage(×1000)
- (d) DC bias voltage(×5000)

## 스팀젯을 이용한 해체 폐기물의 제염연구

윤청현, 이근우, 이동규, 정경환, 박진호

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

ych0101@empal.com

원자력시설의 해체시에는 고체 및 액체 상태로 다량의 방사성 폐기물이 제염이나 해체 과정에서 발생된다. 이러한 해체 폐기물의 관리는 제염 및 처리하여 가능한 한 재순환 및 재활용 할 수 있도록 하고, 자체처분 제한치 이하로 처리하여 규제해제 폐기물화 함으로써 폐기물의 발생량을 최소화 하는 것이 중요하다.

본 연구에서는 스팀젯을 이용하여 방사성 오염물질의 제염 연구를 수행하였다. 스팀젯 제염은 고온, 고압의 스팀을 방사성 오염물체에 분사시켜 오염물을 제거하는 방법으로, 이때의 고온스팀은 오염물체와의 접촉으로 응축되어 오염물을 용해시키고, 용해반응은 고온에 의해 가속된다. 그리고 용해된 오염물은 곧바로 응축된 물입자의 증발력과 스팀 분사력에 의해 오염물체로부터 제거된다. 스팀젯 제염기술은 기존의 고압수 및 연마성 모래 분사에 비하여 2차 폐기물 양을 획기적으로 저감할 수 있으며, 제염시간 단축, 제염효율의 향상, 미세(지름  $5\mu\text{m}$  이하)입자의 제거, 물 사용량의 감소 등의 효과가 예상된다.

실험에 사용한 스팀젯 제염장치는 스팀의 온도  $160^{\circ}\text{C}$ , 분사압력이 최고 8기압으로 제작하였다. 그리고 장치의 구성은 스팀발생장치, 실제 스팀분사 노즐을 이용한 제염 공간인 밀폐형 스팀 제염실, 스팀과 제염 중에 발생하는 비산(飛散) 오염물을 흡입하기 위한 흡입장치로 이루어져 있다.

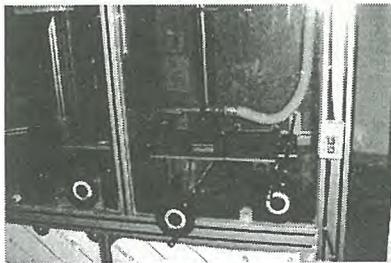


Fig. 1 Case for steam jet decontamination



Fig. 2 Vacuuming system



Fig.3 Steam generator

실험을 위한 시편은 입자성 방사성 오염물과 실제 방사성 오염물로 구분하여 준비하였다. 입자성 오염물 시편은 재질이 서로 다른 세 가지 물질(Carbon steel, Aluminium, P.V.C.)을 지름 3cm, 두께 2mm의 원형으로 제작하여, 이 위에 방사성 코발트 선원 용액과  $1\mu\text{m}$   $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $2\sim 3\mu\text{m}$   $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $5\mu\text{m}$   $\text{TiO}_2$ 를 각각 섞은 용액을 도포한 후 공기 중에서 24시간 이상 건조하여 준비하였다. 그리고 실제 오염물 시편은 TRIGA MARK II 해체 중에 발생한 알루미늄 폐기물을 이용하였다.

실험은  $160^{\circ}\text{C}$ , 5기압의 고온, 고압 스팀을 분사 거리 5cm로 고정하고, 분사 시간을 달리하여 제염 실험을 수행하였다.

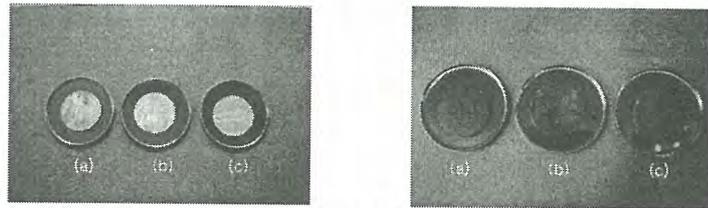


Fig. 4 Specimens before and after the steam jet decontamination  
(a) Carbon steel, (b) Aluminium, (c) P.V.C.

Table 1 은 Carbon steel에 대한 스팀젯 제염 결과를 나타낸 것이다. 스팀의 분사 시간과 무관하게 거의 비슷한 제염 결과를 보였다. 특히 5초 이내에 제염 한계치에 도달하는 것으로 나타났다. 반면 오염물의 입자 크기가 증가함에 따라 제염율도 높아지는 것으로 나타났다. 이것은 입자의 크기가 감소함에 따라 입자와 재질과의 결합력(주로 반 데르 발스, 수소결합, 정전기력 등)이 서서히 감소하는 반면, 이 결합력을 제거하기 위한 힘(주로 Hydrodynamic force)은 급격하게 감소하기 때문이다. Table 2는 스팀 분사 시간을 5초로 고정하고, 세 가지 재질의 시편에 대하여 제염 실험을 수행한 결과이다. Aluminium과 P.V.C.는 비교적 높은 제염율(약 90%이상)을 보인 반면, Carbon steel은 최고 76%의 낮은 제염율을 보였다. 이것은 재질의 표면 거칠기에 따른 입자와 재질의 결합력 차이에서 기인한 것으로 판단된다.

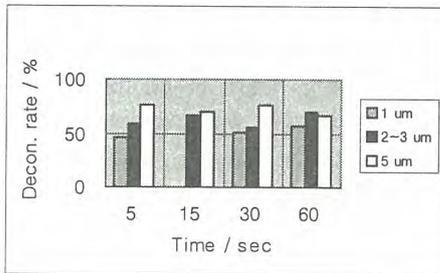


Fig. 5 Decontamination results for carbon steel

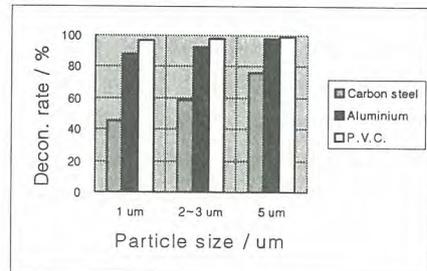


Fig. 6 Decontamination results for different kinds of substrates

해체 폐기물에 대한 스팀젯 제염의 실증 실험 결과를 Fig. 7에 나타내었다. 실험 결과 대부분의 시편이 약 50% 이하의 낮은 제염율을 보였다. 이것은 사용한 시편의 대부분이 규제 해제 폐기물 수준의 낮은 오염도를 갖기 때문이다. 그러나 낮은 제염율에도 불구하고 모든 시편은 규제 해제 폐기물 기준 이하로 제염되었다. 향후 제염효과를 증대시키기 위하여 유무기 제염제를 스팀과 함께 분사시키는 제염법을 연구할 계획이다.

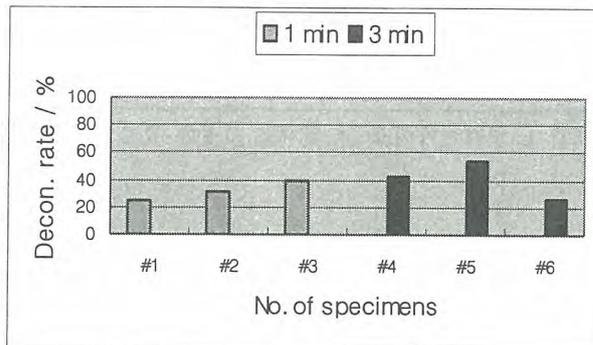


Fig. 7 Decontamination results for real specimens

## 드라이아이스 눈 입자를 이용한 표면오염 세척

주민수, 고문성, 유재룡, 양성우, 박광현

경희대학교 원자력공학과, 경기도 용인시 기흥읍 서천리1번지

방사능 제염(Decontamination)은 원자력 분야에서 중요한 현안이며, 표면이 방사능에 오염된 부품 및 장비의 정비와 처분을 위해 제염은 반드시 필요하다. 미국, 일본등과 같은 원자력 선진국에서는 제염대상 시설의 특성에 맞는 기술적 성능, 원격 적용성, 환경과 인체에 대한 안정성 연구, 폐기물 발생량을 감소시키기 위한 제염연구가 활발하게 추진되고 있다. 특히, 2차 폐기물 발생량 저감과 제염 비용이 절감 될 수 있는 건식 제염기술들이 개발되어 적용되고 있을 뿐 아니라 꾸준한 연구가 진행되고 있다. 최근 건식 제염기술의 하나인 드라이아이스 분사 제염법은 기존의 유해 화학물질, 고압수 분사와 연마성 모래분사와는 달리 2차 폐기물 처리의 추가적인 비용이 들지 않으며, 장비의 파손 및 분해를 필요로 하지 않아 주목받고 있는 제염기술인 드라이아이스 눈 입자 세척법(Dry-ice snow cleaning)을 연구 및 개발하여 표면 방사능 오염 물질 제거에 적용하기 위하여 본 연구가 수행되었다.

드라이아이스 눈 입자를 사용하여 표면 위에 존재하는 오염물질을 제거하는 세척원리는 항력(Aerodynamic drag force), 운동량 전달(Momentum Transfer) 그리고 액체 이산화탄소의 용해성(Solubility of Liquid Carbon Dioxide) 등의 3가지로 설명할 수 있으며, 드라이아이스 입자 분사는 입자가 세정 및 세척 대상의 표면에 충격을 가하는 Sand blasting, Plastic bead blasting, Soda blasting 등과 유사하다. 드라이아이스 입자를 사용할 때의 독특한 특징의 하나는 표면에 충돌하자마자 드라이아이스 입자가 승화한다는 점이다. 입자와 표면간의 결합 충격에너지 분산 및 극도로 빠른 열전달로 인해 고체 CO<sub>2</sub>는 가스상으로 즉시 승화하며, CO<sub>2</sub>가 증발되어 버리기 때문에 드라이아이스 분사 공정은 오염물질만을 제거하고 다른 2차 폐기물을 생성하지 않게 된다.

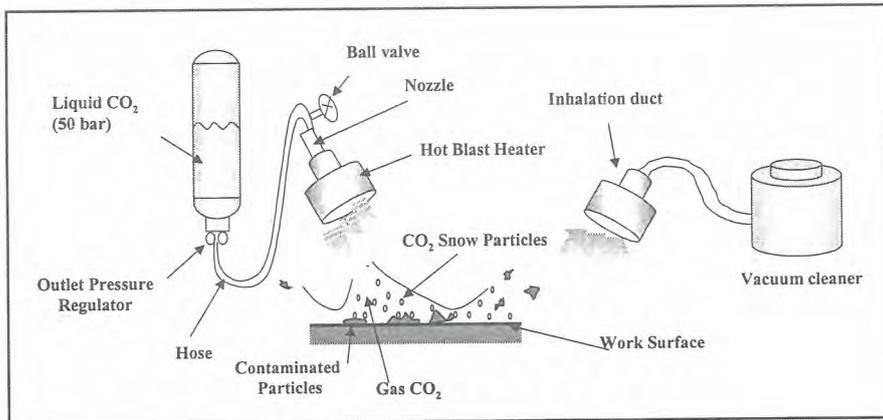


그림 1. 드라이아이스 눈 입자를 이용한 표면오염 세척공정

표면 오염물의 세척을 위하여 모사한 시편의 종류로는, 일반 산업계에 존재하는 표면 오염물인 사람의 지문과 공업용 오염기름을 선정하여 실험을 수행하였다. 먼저 매끈하고 깨끗한 유리판을 준비하고 유리 표면에 일정한 힘으로 사람의 지문을 남겼다. 이렇게 모사한 유기성 오염 지문 시편 위에 드라이아이스 눈 입자를 분사시켜 시편의 표면을 세척하였다. 그 결과 그림 1. 에서 보는 바와 같이 드라이아이스 눈 입자 세척법의 이산화탄소 용해성으로 유기성 지문이 완벽하게 제

거되었음을 확인할 수 있다. 또한 Si-wafer 표면위에 미리 제작한 먼지와 기름류의 혼합 오염물을 흡착시킨 후 드라이아이스 눈 입자 세척법으로 세척을 실행하고, Si-wafer표면에서 오염기름의 세척정도를 알아보기 위하여 FT/IR을 이용하여 분석 하였다. 그림 2. 에서 보는 바와 같이 세척 후의 표면의 오염물이 깨끗하게 제거되었음을 알 수 있다.

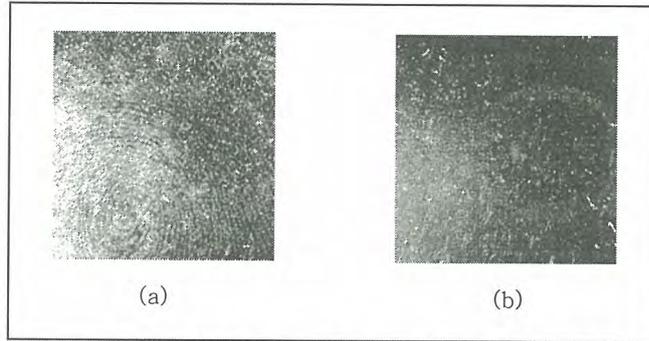


그림 2. (a)세척전 유리판의 지문, (b) 드라이아이스 눈 입자 세척후의 시편

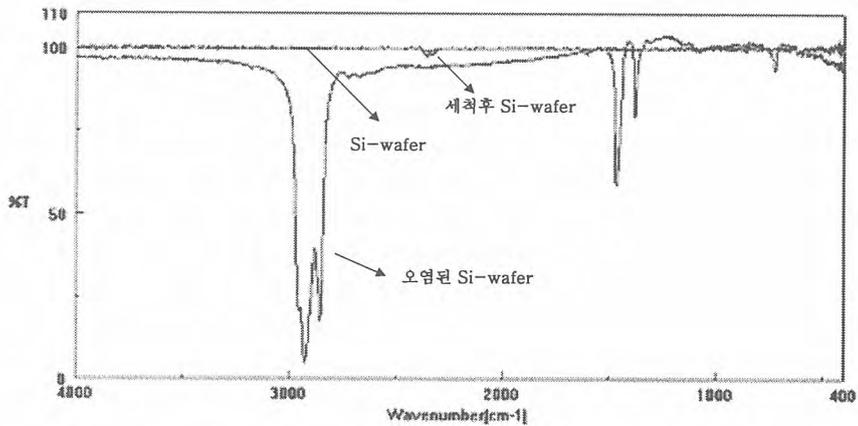


그림 3. FT/IR을 이용한 Si-wafer 상의 오염기름 세척을 분석

### 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 국가지정연구실사업(NRL) 및 산업자원부에서 시행한 전력산업 인프라구축지원 사업으로 수행된 논문입니다.

## TBOD(tetrabutyl-3-oxapentanediamide)를 이용한 초임계 이산화탄소 내 우라늄 이온 추출

고문성, 유제룡, 박광현, 김홍두, 김학원  
경희대학교, 청정제염연구실, 경기도 용인시 기흥읍 서천 1

우라늄의 추출, 정제, 제염, 재처리 등의 처리 과정은 원자력산업에서 매우 중요한 분야이다. 1940년대 시작된 우라늄 용매추출공정은 미국, 캐나다, 영국 등에서 선구적으로 연구가 진행되어 Redox 공정(USA), Trigly 공정(Canada), Butex 공정(UK) 등이 개발되었다. 그러나 공정상에 있어 다량의 용매사용, 다량의 추출제 사용, 경제성 및 안전성 등의 문제가 대두되었다. 이러한 문제를 해결 할 수 있는 대체 공정인 Purex 공정이 1940년 말 미국에서 개발되었다. Purex 공정은 하이드로카본 계열의 용매와 TBP(tributylphosphate)를 혼합하여 사용하는 공정으로 우라늄과 플루토늄을 추출하는데 탁월한 성능을 갖고 있다.

그러나, Purex 공정에서도 여러 가지 해결해야할 문제점이 나타났다. 추출제로 사용되는 TBP는 방사화 및 수소화로 인해 H<sub>2</sub>MBP(monobutylphosphate)와 HDBP(dibutylphosphate)형태로 부산물이 존재하게 되어 금속과의 착물형성시 재추출이 있어 어려운 문제점이 있다. 또한 사용후 용매 처리에 있어 P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 또는 H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> 등의 다량의 2차 폐기물이 발생하는 문제점 있다. 용매로 사용되는 dodecane은 공정상에서 수소화 및 방사화로 인해 퇴화되어 다량의 2차 폐기물이 발생하는 문제점이 있다.

본 연구에서는 TBP의 문제점을 해결하기 위해 diamide 계열의 화합물을 적용하였다. diamide 계열의 추출제는 강한 방사능 환경에서도 안정성을 나타내며, 강한 산성용액에서도 금속과의 친화성이 매우 높은 장점을 갖고 있다. 또한, 순수 유기물로만 이루어져 있어 사용후 처리에 있어서도 다른 유해한 부산물이 발생하지 않아 처리공정이 용이하고 간단하다. 희석제를 대체하기 위해 청정용매인 이산화탄소를 적용하였다. 초임계 이산화탄소는 다른 용매에 비해 임계 조건이 낮고 안전하여 적용이 쉽고, 높은 확산성과 낮은 점도로 빠른 반응성을 나타내며, 추출후 분리에 있어서도 간단한 압력 조절로 추출물과의 분리 및 이산화탄소의 재사용이 가능한 장점이 있다. 또한, 이산화탄소의 재사용으로 인해 2차 폐기물이 거의 발생하지 않는다. 이러한 장점을 갖고 있는 초임계 이산화탄소와 diamide 계열의 화합물을 이용해서 우라늄 이온을 추출하는 연구를 수행하였다.

적합한 추출제를 선정하기 위해 diamide 계열의 유도체들을 합성하였다. 합성물은 pentanediamide의 기본 구조에 중간에 탄소대신 산소로 치환하고 질소기에 알킬기의 수를 다르게 하여 유도체를 합성하였다. 합성된 유도체들은 TEOD(Tetraethyl-3-oxapentanediamide), TBOD(Tetrabutyl-3-oxapentanediamide), THOD(Tetrahexyl-3-oxapentanediamide), TOOD(Tetraoctyl-3-oxapentanediamide), TBD(Tetrabutylpentanediamide) 등 이다. 초임계 이산화탄소내 합성된 유도체들의 용해도를 측정하여 그림-1에 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 거의 모든 화합물이 이산화탄소내에서 용해도 값(몰농도:  $1 \times 10^{-2} \sim 1.7 \times 10^{-1}$  M)을 갖는 것으로 나타났다. 용해도 특성을 살펴보면, 질소기에 결합된 알킬기의 길이가 길어짐에 따라 이산화탄소와의 공유결합력 감소로 인해, 초임계 이산화탄소내 용해도가 감소하게 된다. 따라서, 초임계 이산화탄소내 용해도는 TEOD 화합물이 가장 높게 나타났다. 질산 용액내 우라늄의 추출 연구에 있어 추출제의 물에 대한 용해도가 중요하다. 화합물의 물에 대한 용해도를 살펴본 결과, TEOD의 경우 60mM 이상으로 매우 높고, TBOD는 2.3mM로 상대적으로 낮게 나타났다. 초임계 이산화탄소내 용해도 값이 근소하게 차이므로, 이 결과로 TBOD가 수용액내 추출제로는 가장 적합한 것으로 판단되었다.

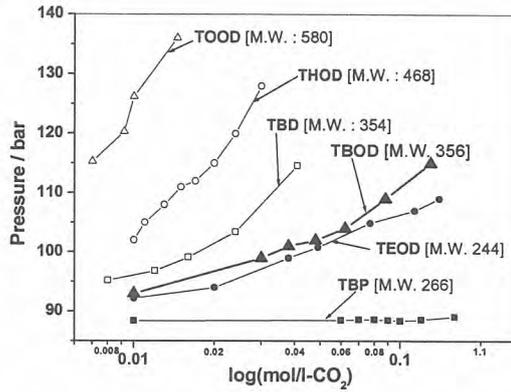
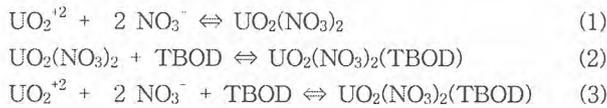


그림 1 초임계 이산화탄소내 diamide 유도체의 용해도

선정된 TBOD 추출제를 이용해서 이산화탄소내 우라늄과의 분배계수를 측정하여 수용액내 우라늄 추출의 동적평형 반응식을 도출하였다. 먼저, 질산의 농도에 따른 분배계수를 측정해 본 결과, 우라늄 분배계수는 질산의 농도가 증가함에 따라 증가하고, 질산의 농도에 대한 우라늄 분배계수의 비율이 dodecane과 초임계 이산화탄소에서 각각 1.7, 1.8의 값을 통해 약 2.0의 결과를 얻었다. TBOD의 농도에 따른 우라늄 분배계수값은 dodecane과 초임계 이산화탄소에서 TBOD의 농도에 대한 분배계수의 비율이 각각 1.3, 0.9로 약 1.0의 값을 나타내었다. 따라서, 질산과 TBOD의 농도에 대한 분배계수의 비율 결과를 바탕으로  $UO_2(NO_3)_2(TBOD)$ 로 나타낼 수 있으며, 동적평형 반응식을 다음과 같이 나타내었다.



앞서 결과를 바탕으로 초임계 이산화탄소내 질산 수용액내 우라늄 이온 추출실험을 수행하였다. 질산의 농도에 따른 추출율을 표-1에 나타내었다. 1시간 동안 동적추출방법으로 수행하였으며, 표에서 보는 바와 같이 질산 농도 4.5M 이상에서 급격히 추출율이 상승하여 약 85%의 추출율을 보였다. 향후 다양한 추출실험을 통해 최적화된 조건을 개발할 것이다.

질산몰수	TBOD 양	추출효율
3M	0.1ml	22±2%
4.5M	0.1ml	84±5%
6M	0.1ml	83±5%
9M	0.1ml	83±2%

표 1. 초임계 이산화탄소내 질산농도에 따른 우라늄 이온의 추출율

## A Study on Wigner Energy Release Spectrum of Irradiated Graphite

Gyeong-Hwan Jeong, Sei-Hun Yun, Dong-Gyu Lee, Won-Zin Oh and Kune-Woo Lee  
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

Stored Wigner energy spectrum of the thermal column graphite from Korean research reactor 2 (KRR-2) has been measured using the linear-rise method measurement. The kinetics of Wigner energy release have been shown to be very complicated forms so that the overall reaction rates were considered as first-order rate equations with variable activation energy contents like the following general equation.

$$\frac{dG(E, t)}{dt} = -\nu G(E, t) \exp^{-\frac{E}{kT}}$$

where  $G(E, t)$  is the release Wigner energy at time  $t$ ,  $E$  the variable activation energy,  $k$  Boltzmann constant,  $\nu$  the frequency factor, and  $T$  the temperature at time  $t$ . This means that the activation energy for Wigner energy release rate equation is not an constant value, but the variable of the temperature function. Therefore, the Wigner energy release behavior in the graphite matrix rearrangement during annealing might be considered as an consecutive irreversible reaction. A typical values of the variants in Wigner energy release equation of the irradiated graphite from KRR-2 have been shown the following results:  
 $E = (33.7 - 1.83 \log a)T \times 10^{-4} - 0.037$ ,  $\nu = 4.66 \times 10^{14}$ ,  $a = 10$  °C/min (ramp rate).

Some graphites in different locations in KRR-2 reactor core have been shown in different ways of energy release curves. The apparent decomposition of Wigner energy release spectra to three peaks or more peaks and/or great amount of tailing may be caused by annealing of interstitials and vacancies in the distorted graphite structure. In Iwata scheme the energy release curve of three peaks was supposed by successive reaction model having three activation energies. In annealing test of the irradiated graphite samples from KRR-2 the similar results could be measured. This energy release reaction mechanism in annealing process proposed in Iwata scheme might be considered a successive irreversible reactions of three stages.

As a result, various types of Wigner energy release curves were measured in the irradiated graphites of KRR-2 and the applicable activation energy models were supposed to be the function of distance from the reactor core.

## 연구로 1호기 해체를 위한 시설 현황 및 방사선량 측정

홍상범, 박승국, 정운수, 박진호  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

연구로 1호기(TRIGA Mark-II)는 1962년 국내에서는 최초로 원자로가 첫 임계에 도달하였다. 연구로는 당초 100 kW로 설계되었으나 원자력 기반기술 향상을 위하여 1969년 250 kW로 출력을 증강시켜 중성자 빔을 이용한 각종 물성 연구뿐만 아니라 동위원소 생산, 방사화분석, 원자로 특성연구 및 원자력 공학도의 교육훈련 등 다양한 분야에 이용되어 왔다. 1972년에 연구로 2호기가 추가 준공되어 첫 임계에 도달하였다. 연구로 1, 2호기의 노후화뿐만 아니라 이용개발의 확대 및 고중성자 출력 요구에 따라 신형연구로의 필요성의 대두되었다. 이에 따라 1985년도에 30 MW급의 다목적연구로인 하나로의 설계가 착수되어 1995년 2월에 초기임계를 달성하였고 현재 운전 중에 있으며, 연구로 1, 2호기의 역할을 대신하고 있다. 연구로 1호기와 2호기는 1995년 1월과 12월에 가동을 정지하였고, 1995년 12월 30일부로 휴지 신고하였으며, 1998년 연구로 폐로사업 인허가 신청 후 약 2년 후인 2000년 11월에 연구로 1, 2호기 해체계획이 최종 승인 되었다. 현재 2호기 차폐 콘크리트 및 1호기 부속시설의 해체작업을 수행 중에 있다. 본 논문에서는 연구로 1호기 해체에 앞서 시설 현황 및 방사선량이 가장 높을 것으로 예상되는 원자로 수조수 내부 장치의 방사선량을 측정하였다.

연구로 1호기는 1962년에 가동되어 약 30년간 모두 35,000여 시간을 운전하였으며, 열출력 발생량은 약 3,700 MWh에 이른다. 연구로 2호기는 24년 동안 약 55,000여 시간을 운전하여 약 69,000 MWh의 열출력을 생성하였으며, 그림 1에서 보는 바와 같이 원자로실, 핫셀, 연구실과 실험실 및 기타 부대시설로 구성되어 있다. 원자로실 내에는 사용후핵연료 저장조, 빔튜브 차폐 플러그 저장랙과 원자로 수조수 냉각 및 정화장치가 설치되어 있다.

연구로 1호기 원자로 수조내의 주요 구성을 살펴보면 그림 2와 같이 원자로심 및 반사체, 시료 조사를 위한 RSR (Rotary Specimen Rack), 4개의 Beam Tube, Thermal Column, Thermalizing Column 및 Bulk Shielding Experimental Tank 등으로 구성되어있고, 현재 1호기 원자로 내부의 조사배관 및 RSR은 원자로심 및 반사체에서 제거되어 수조내에 저장되어 있는 상태이다.

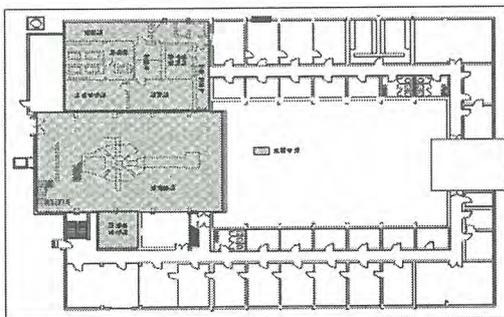


Fig. 1. The polt plan of KRR-1.

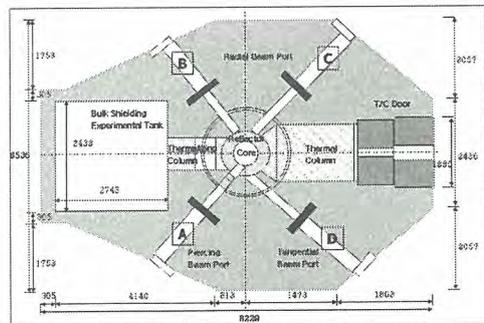


Fig. 2. The ground plan of KRR-1.

연구로 1호기의 해체공사기간동안 작업자 및 일반인의 피폭선량 및 사고의 위험성, 해체작업 절차 및 사업일정을 예측하기 위한 기초 자료로 활용하기 위하여 원자로 수조수 내부 장치의 방사선량을 측정하였다. 수조내의 구조물 표면방사선량을 측정은 수중선량측정기 Under Water Probe(PR-7, Dositec)을 이용하여 27개 지점에 대하여 측정하였고, 수조내 각종 배관은 공기중에

서 Survey Meter(AD1/Ad-t, Automess)를 이용하여 측정하여 측정하였다.

측정결과 반사체에 RSR 설치를 위한 홈에서 5 ~ 7 mSv/h로 가장 높게 측정되었으며, 원자로심 중심에서 1.5 mSv/h, 원자로심과 반사체 연결부위에서 2.75 ~ 3.75 mSv/h, 반사체의 안쪽면까지 연결되어 있는 Beam Port인 Radial Piercing Beam Tube의 연결부위에서 2.75 ~ 4.5 mSv/h, 원자로 수조라이너 및 수조 바닥면에서는 0.1 mSv/h로 측정되었다. 구체적인 측정결과는 그림 3에 제시하였다.

원자로 1호기 주조내 배관은 총 14개가 있으며, 현재 방사선량이 Background 수준인 3개의 배관을 제외하고 11개가 수조내에 보관되어 있으며, 최대 방사선량은 시료조사를 위한 RSR에 연결되어있던 배관에서 10 mSv/h로 측정되었다.

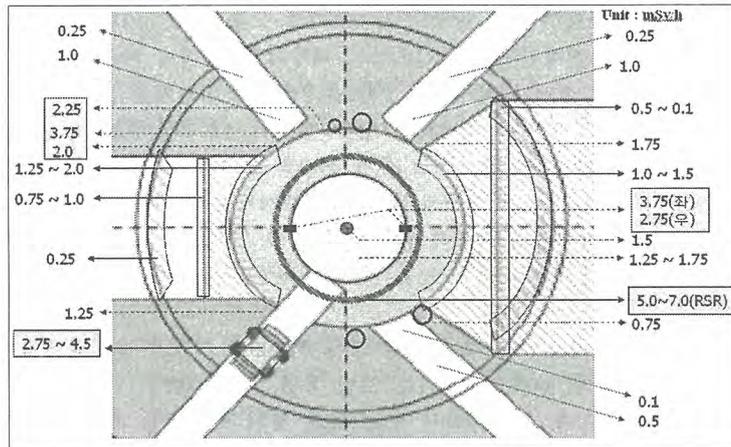


Fig. 3 The measured radiation dose of KRR-1 pool.

연구로 1호기 해체를 준비하는 단계에서 1호기 수조 내부 장치의 방사선량률을 측정하여 해체 계획에 필요한 기초자료를 조사하였다. 위의 측정 자료는 향후 연구로 1호기 해체과정에서 불가피하게 발생하는 방사성물질로부터 해체작업종사자 및 시설주변의 환경방사선 안전성을 확보하고, 해체계획 및 절차 수립을 위한 기초자료로 활용될 수 있을 것이다.

## Korea Research Reactor-2 Decommissioning Activities

Seung-kook Park, Sang-bum Hong, Un-soo Chung, Jin-ho Park  
KAERI, Duckjin-Dong 150, Yuseong-Gu, Daejeon

[skpark2@kaeri.re.kr](mailto:skpark2@kaeri.re.kr)

### 1. Introduction

According to the Korea Research Reactor (KRR)-1 & 2 Decommissioning project, till 2003, all components in the reactor pool of the KRR-2 was decommissioned. The decommissioning objects are the reactor core, rotary specimen rack (RSR), fuel racks, and pipes for the experiment and for irradiation of the specimens. In 2004, after pool water be drained, the goal is decommission the some part in the reactor pool which is connected the reactor biological shielding concrete structure such as thermal column and eight beam ports nose part cutting, removal the irradiated graphite bricks in the horizontal thermal column liner and dismantling two heavy thermal column door and one exposure room door. And removal the residual, except the nose parts, embedded ten beam ports in the biological shielding concrete structure are same target. Total 23,828 man-hours were consumed in 2004. During the decommissioning activities, total 80 tons of dismantled waste was raised.

### 2. Radiation Characterization

In the planning phase, the decommissioning objects were estimated as low irradiation, because of most were made by aluminum material. But it is carried out that the real data through surveying and analysis is very high-irradiation value. The plan should be changed from hands-on activity to remote controlled activity for the safe exposure for the workers. The maximum radiation dose near the thermal column and eight beam ports nose part is surveyed as 100 mSv/h than monthly average one in the reactor hall as 0.62 ~ 13.83  $\mu$ Sv/h. This is the main reason for the workers who cannot access the decommissioning objects for the hands-on activity.

### 3. Decommissioning Activities

In 2004, the decommissioning activities are the thermal column and eight beam ports nose part cutting, removal of the irradiated graphite bricks in the horizontal thermal column liner, remove the ten embedded beam ports in the biological shielding concrete structure and dismantle the two thermal column doors and one exposure door those are partly activated. All activities were preceded by the Work Plan Procedure (WPP), which was established by decommissioning specialist, KOPEC. The radiation workers, health physics, QC and specialists organize the working group in the site. Each radiation decommissioning work should be submitted to the health physics for approval and be estimated and be evaluated the exposure dose for the workers after work be done.

#### 3.1 Horizontal thermal column and eight beam ports nose part cutting

The thermal column and eight beam ports nose part was installed up to into the southern part of the reactor pool inside. These parts are made by aluminum material. The thermal column is divided by horizontal and vertical part. The nose part of the horizontal thermal column is highly irradiated. The eight beam ports nose part is too. These parts were planed to cut by diamond wire saw, which was remote controlled from the top of the reactor pool with the wire length, 30m. During performance, the unexpected jamming is occurred from the beam port nose part because of the aluminum material properties that is mildness. Then this method should be changed instead of wire sawing to plasma arc torch cutting. The plasma arc torch is installed at the end part of the long reach tool that could be approached to the object, which is penetrated the shielding lead plate. The horizontal thermal column nose part is also be cut by this method. All segments from these parts were separated from the origin body to into the reactor pool inside where the pool water was remained with height 50cm level for collecting and storage into the shielding container.

#### 3.2 Graphite bricks removal

The total 212 pieces of graphite bricks was installed behind of 10 cm thickness lead bricks in the horizontal thermal column liner. These graphite bricks were all irradiated as 90 mSv/h radiation dose. For this removal activity, the remote controlled equipment should be required. The equipment was developed and manufactured. This equipment is installed out side of entrance of the horizontal thermal column. This equipment is used the remote controlled movement for up

and down and forward and back. And using the vacuum pad system, the graphite bricks were removed by piece by piece from the top layer to the bottom layer. All removed graphite bricks were packed and storage into the three 4m<sup>3</sup> containers.

### 3.3 Removal the embedded ten beam ports in the biological shielding concrete

After cut the nose part of the eight beam ports, residual part, which is embedded in the biological shielding concrete with maximum size, 200 mm diameter, should be removed. This was all made by stainless steel so which was very highly irradiated as radiation dose, 56 mSv/h near the beam port. It is impossible to access through the inside route of the pool for the workers. The core boring method from the out side is selected for removal of these. This technology is the same case of the removal the beam port in Virginia University Reactor Decommissioning project in U.S. The hydraulic core boring machine, Hilti DD-LP32 and DD 750 and 400 mm of diameter diamond core bit was used. The segment of core bit is composed the diamond particles and bonding metal. Through the experimental test, the dry methodology which is used the compressor air for cooling the core bit is failed because that the air pressure for the vacuum for the removal the sludge is up, then the core bit could not go forward more. Another cooling system using the water is selected. To be finished the core boring, the cut ten beam ports were pulled out from the concrete body. The pulled out beam port liners were remote controlled separated from the coated concrete and cut by small pieces for storage into the shielding container. Total 29.86 m of length core boring was cut in 30 days and 587 man-hours were consumed.

### 3.4 Evaluation the decommissioning activities and data

The result of the decommissioning activities and raised data in 2004 was evaluated used the Decommissioning Project Management System. The system is developed for the in-input system first and now developing for the next phase, out-output system and proto typing. Using this system, the manpower consumption that is according to the time schedule, Work Breakdown System (WBS) and working code was evaluated. The decommissioning waste treatment and cost estimation were also evaluated. Total 23,828 man-hours were consumed in 2004. Among, the main worker parts are 34 % of radiation workers and 26 % of waste treatment and 21 % of health physics as the next. The manpower consumption of waste treatment activities, such as secondary decontamination, volume reduction is will be covered the cost of waste disposal. In 2005, the decommissioning project management system will be established.

## 4. Conclusion

In 2004, the decommissioning activity on the KRR-2 reactor is successful completed. The collective dose for the workers was evaluated as 11.06 man-mSv. This result is less than 24 % of estimation value 44.31 man-mSv.

The 80 tons of decommissioned waste was raised. Among, only 5 tons of waste is classified by radioactive waste. Through the natural evaporation system, 65.2 m<sup>3</sup> of liquid radwaste was disposed. The KRR-2 decommissioning activities will be completed the end of this year, 2005.

## REFERENCES

- [1] 박승국 외, TRIGA 연구로 폐로를 위한 시설현황 및 방사선/능 조사보고서, KAERI/TR-1153/98, 한국원자력연구소, 1998
- [2] 정기정 외, "연구로 1호기 및 2호기 폐로사업 해체계획서", KAERI/TR-1654, 2000.
- [3] J.Lyons, K.Lowther, K.Riding, Reference Method Statements KRR-1/KRR-2, TRD-220-B-001 BNFL, 1998.
- [4] 이봉재 외, "TRIGA Mark-II, III 연구로시설의 폐로를 위한 시설내 잔류 방사선/능 평가", 제24권 제2호, 대한방사선학회지, 1999
- [5] UNIVERSITY OF CALIFORNIA AT BERKELEY RESEARCH REACTOR DECOMMISSIONING PROJECT, IAEA, Biscrafi Northeast, Inc. (1990)
- [6] 박진호 외, 원자력시설 제염해체사업, KAERI/RR-2519/2004, 한국원자력연구소, 2005

## 우라늄 변환시설 해체활동

황두성, 오중혁, 이규일, 최윤동, 황성태, 박진호

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

우라늄 변환시설은 증수로용  $UO_2$  분말 제조 시설로서 2001년도부터 제염해체를 통한 변환시설 환경복원사업을 시작하였다. 본격적인 해체공사에 앞서 다음과 같은 필요 설비를 설치하였다. 시설의 환기설비와 제염장비를 위한 임시환기설비를 새로 설치하였고 임시조명, 해체장비와 제염장치를 위한 전기 공급시스템과 화재경보 및 화재방호설비를 비롯한 소화설비를 설치하였다. 또한 시설 내부의 방사선학적 상태를 분석하기 위하여 공기오염도와 설비 및 콘크리트의 표면오염도를 측정하였고 시설 운영 중 발생한 폐액 저장시설인 라군에 대해서도 방사선학적 상태를 조사하였다. 해체 준비공사로서 방사선구역 출입시스템 구축, 방사선 방호 및 관리를 위한 계측 장비, 개인 피폭선량 감시와 방사선 방출 감시 장치를 설치하였다. 또한 해체공사에 필요한 시설 내 크레인의 점검과 하중시험을 실시하여 안전성을 확인하였고 라군 주변에 울타리를 설치하였다. 실제 해체공사 시 작업공간 확보와 작업자의 피폭 방지를 위하여 시설 내부정리 및 기존 폐기물 분류 포장과 설비 표면 및 내부 콘크리트의 예비제염을 실시하였다. 해체공사는 생성되는 방사성폐기물 드럼의 임시저장을 위하여 ADU 시설 1층 내의 kiln실부터 시작하였다. Kiln 실에는 주요 장비로서  $UF_4$  생산을 위한 rotary kiln이 설치되었던 곳이며, kiln은 직경 약 0.8m 길이 5.5m 이다. 해체 후 해체폐기물은 약 6,690 kg이 발생하였으며, 이 중 금속이 약 73%이었고 케이블, 석면 등의 절연체, 콘크리트와 2차폐기물 등이 약 27%를 차지하였다. 제염장치와 라군슬러지 처리장치를 설치하기 위하여 AUC 시설의 우라늄 회수실과 여과실을 해체하였으며, 이곳에는 고중량의 사각혼합기와 탱크류 등이 설치되어 있었다. 해체폐기물은 17,250kg이 발생하였으며, 이 중 67%가 금속이고 나머지는 기타 해체물로 구성되어 있다. 이들 중 금속 등 제염 가능한 해체물은 스팀, 화학, 전해제염 등의 방법으로 제염 작업을 수행할 예정이다. 세 격실의 해체를 위한 인력은 647 man-day이 있으며, 이 중 19%는 준비 작업, 실제 해체공정에는 56%, 그리고 25%는 방사선관리에 투입되었다. 변환 공정 운전 중 발생하여 라군에 저장되어 있는 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 화합물로 구성되어 있다. 라군 슬러지의 특성을 고려하여 슬러지 처리공정을 개발하였다. 슬러지는 열분해 방법으로 처리되며 두 단계로 이루어져 있다. 첫 단계는 약 300℃의 저온에서, 두 번째는 900℃의 고온에서 처리된다. 저온 단계는 슬러지 내 함유물 중  $NH_4NO_3$ 를 열분해하고, 고온에서는  $NaNO_3$ ,  $Ca(NO_3)_3$ ,  $CaCO_3$ 를 열분해하고 우라늄을 함유한 고체폐기물을 안정화하는 단계이다. 이 같은 처리공정을 거쳐 슬러지 폐기물을 약 75% 감용할 수 있을 것으로 예상된다.

## 해체 폐기물의 알파/베타선 오염도 동시 측정을 위한 검출기 특성 평가

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

원자력 시설의 해체 시 발생하는 폐기물을 재활용하거나 처분하기 위해서는 정확한 방사선학적 인 오염 특성의 평가가 선행되어야 한다. 그러나 기존의 측정법인 survey-meter를 이용한 오염도의 직접 측정법은 국소지역의 알파/베타 오염 특성을 정확하게 평가할 수 없으며, 간접법을 이용한 표면오염도 측정의 경우도 시료채취의 어려움뿐만 아니라 시료채취 시 작업자의 오염 가능성이 있기 때문에 적용성에 많은 문제점이 있다. 본 연구에서는 알파/베타선에 의한 오염도를 동시에 측정할 수 있는 검출기를 개발하기 위하여 베타선 측정용 플라스틱 섬광체와 알파선 측정용 ZnS(Ag) 무기섬광체를 이용하여 검출 시스템을 구성하여 검출 특성을 평가하였다.

베타선 측정용 플라스틱 검출기는 Bicron 사의 플라스틱 섬광체(BC-408)로서 섬광체의 주성분은 polyvinyltoluene이고, 밀도는  $1.302 \text{ g/cm}^3$ 이고 굴절률은 1.58이다. 알파선 측정용 섬광체는 polyester 플라스틱 필름 위에 ZnS(Ag) 무기섬광체를 얇게 코팅한 Eljen 사의 EJ-440을 사용하였다. 플라스틱 섬광체는 HAMAMATSU 사의 Head-on type인 R1924A 모델인 PMT와 같은 직경 26 mm, 두께 5.2 mm인 디스크 형태로 제작한 후에 polishing하여 PMT와 연결하였다.

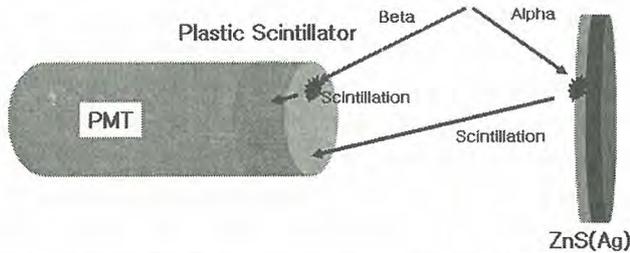


Fig. 1. Monitoring system for detecting alpha/beta-ray

알파 및 베타선의 동시 측정 가능성을 평가하기 위하여 방사선원을 도포한 무기섬광체를 플라스틱 검출기 입사창과 거리가 13 mm인 곳에 배치하였다. 방사선원은 무기섬광체 표면에 Am-241과 Sr/Y-90을 도포하고 1000초 동안 파고스펙트럼을 측정하였고, 그 결과는 Fig. 2에 나타났다. Am-241에서 방출되는 알파선에 의한 신호에서는 알파선 에너지를 반영하는 피크를 채널의 후반부에서 확인할 수 있으며 Sr/Y-90에 의한 신호는 채널의 전반부에 반영됨을 볼 수 있는데, 이 검출 시스템에서 파고스펙트럼 분별법을 이용해 알파와 베타에 의한 신호를 분별할 수 있음을 확인할 수 있다.

측정 시 무기섬광체와 플라스틱섬광체의 거리는 검출 시스템 크기의 제한, 무기섬광체에서 발생해 플라스틱섬광체로 입사되는 섬광의 입사각에 따른 검출 효율, 공기 중에서 거리에 따른 섬광의 손실을 고려해야만 한다. 그래서 무기섬광체와 플라스틱섬광체의 거리에 따른 알파선에 의한 파고스펙트럼을 측정하여 Fig. 3에 나타났다. 검출기 동축을 중심으로 무기섬광체가 플라스틱 섬광체 입사면과 2cm일 때 계수된 최대 채널수가 가장 높음을 볼 수 있는데, 이것은 이 위치에서 무기섬광체에서 발생된 섬광이 플라스틱 섬광체로 전달되는 과정에서 생길 수 있는 손실이 가장 적음을 나타낸다. 그러나, 이 결과에서는 Fig. 2에서와는 달리 알파선 에너지를 반영하는 피크를 확인할 수 없음을 물론 계수된 최대 채널수도 상당히 감소함을 볼 수 있다. 이것은 Fig. 2의 경우 polyester 플라스틱 필름에 코팅된 ZnS(Ag) 층이 플라스틱 섬광체의 입사창과 마주보고 있기 때

문에 polyester 필름을 통과하면서 발생하는 손실이 없는 반면 Fig. 3은 polyester 필름이 검출기 입사창을 바라보고 있어 이 고분자 필름에 의한 손실이 발생하기 때문이다. 또 플라스틱 섬광체 입사면에서 입사각의 차이에 의해 플라스틱 섬광체로 전달되는 효율에도 차이가 있기 때문이다. 그러나 이러한 손실이 발생하더라도 베타선 신호를 반영하는 최대 채널이 알파선에 의한 것보다 상당히 작기 때문에 파고스펙트럼 상에서 분리가 가능할 것으로 판단된다.

또한, 배관 내부와 같은 국소 지역의 오염도를 측정하기 위하여 배관 내부에 검출 시스템을 장착하여 알파/베타선에 의한 검출 특성을 평가하였다. 이 과정에서 기존의 검출기로는 접근이 곤란한 배관 내부표면의  $\alpha/\beta$  입자를 검출하기 위해 직경 26 mm의 소형의 플라스틱 섬광체를 광전자 증배관에 적용해 배관 내부의 오염도 측정에 적합한 검출기 성능을 확인하였고, 파이프 내부처럼 국소 지역의 방사선학적 오염 특성 평가를 위한 검출기 개발 가능성을 확인하였다. 또 이 시스템을 자동 이송장비와 결합할 경우 작업자의 안전성 확보 및 작업 시간을 단축할 수 있는 원격장치 개발이 가능할 것으로 판단된다.

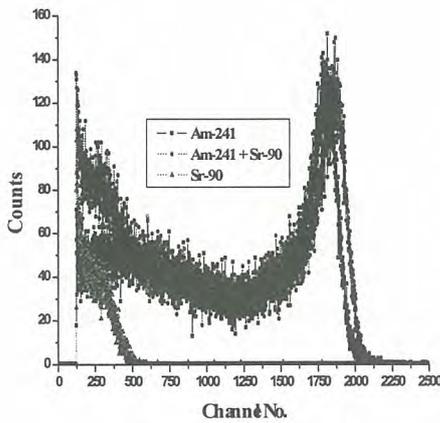


Fig. 2. Pulse height spectrum for Am-241 and Sr/Y-90.

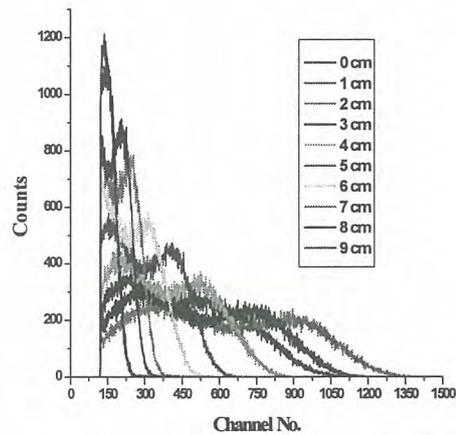


Fig. 3. Pulse height spectrum of Am-241 according to distance.

## 중성자조사 흑연폐기물 고온분해 처리시 방사성 핵종들의 거동에 대한 열역학적 모델분석

양희철<sup>1</sup> · 이동규<sup>1</sup> · 은희철<sup>2</sup>, 오원진<sup>1</sup>, 이근우<sup>1</sup>

<sup>1</sup>한국원자력연구소 핵연료주기기술개발단, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

<sup>2</sup>과학기술연합대학원대학교 양자에너지화학공학 대전광역시 유성구 어은동 52번지

### 1. 서 론

흑연은 원자로에서 중성자의 감속재(moderator)와 반사체(reflector)로 많이 사용되고 있다. 흑연을 감속재로 사용한 일부 원자로들은 노후화되어 가동이 종료된 상황이며, 이들의 해체과정에서 많은 양의 방사성 흑연폐기물이 발생되고 있다. 중성자조사 흑연폐기물은 다른 방사성 폐기물과 물리적·화학적으로 다른 특성들을 가지고 있을 뿐만 아니라 부식/방사화 생성물, 핵분열 생성물들은 물론 삼중수소와 <sup>14</sup>C 및 <sup>36</sup>Cl과 같은 다양한 방사성 핵종들을 함유하고 있다. 최근에 처분단가를 고려하여 감용 효과가 큰 소각 등의 방법으로 의한 고온 분해 처리가 중성자 조사 흑연폐기물을 효과적으로 처리할 수 있는 방법으로 주목받고 있다. 그러나 고온 분해 처리과정에서 흑연폐기물에 포함된 방사성 핵종들은 휘발되어 배기가스와 함께 대기로 배출될 수 있다. 따라서 이러한 방사성 흑연폐기물의 부피를 크게 감소시키면서도 흑연폐기물 내에 함유되어 있는 방사성 원소들을 환경으로 배출시키지 않는 적절한 처리기술개발이 필요하며, 이를 위해서는 고온 분해처리 조건에 따른 핵종의 거동특성에 고찰이 선행되어야 한다. 본 연구에서는 열역학적 평형모델을 이용하여 방사성 흑연폐기물 열처리시 운전조건에 따른 방사성 금속들의 휘발특성 및 응축특성에 대하여 살펴보았다. 이를 위해 운전온도와 가스상 성분들의 조성 등과 같은 운전변수들의 변화에 따른 방사성 흑연폐기물내 방사성 금속들의 열적거동을 조사하였으며, 이러한 결과들을 바탕으로 방사성 금속들의 배출을 최소화할 수 있는 최적의 운전 및 설계조건을 도출하고자 하였다.

### 2. 방 법

열역학적 평형모델 계산은 2단계로 수행하였다. 먼저 흑연 고온분해로의 분위기 가스의 조성고찰을 위한 모델계산과 결정된 분위기가스의 조성에 따른 미량원소인 핵종의 평형조성을 계산하는 방법으로 수행하였다. 계산에 고려된 대상핵종은 연구용원자로 해체폐기물에 포함된 주요핵종을 대상으로 수행하였으며 분위기가스조성의 계산은 combustion chemistry 계산용 program 인 Chemkin Collection R 3.1을 이용하고 핵종의 조성은 HSC-Chemistry 5.1 프로그램을 이용하여 실시하였으며, 다음과 같은 두 가지의 가정에 근거를 두고 수행하였다.

1) 열처리 반응기에서 열역학적 평형은 유지된다.

2) 방사성 흑연폐기물내 존재하는 모든 방사성 화학종들 또는 열처리 반응기내 존재하는 모든 증기상 금속들은 충분히 혼합된다.

방사성 흑연폐기물은 99.9% 이상의 탄소를 함유하고 있으며, 일반적으로 10-20%의 공극율을 가지고 있다. 이러한 방사성 흑연폐기물의 과잉공기 연소와 수열산화(hydrothermal oxidation)에 관련된 실험적 연구결과를 참고하여 1,000℃의 온도에서 방사성 흑연폐기물 산화시 과잉공기산화 분해 두가지 경우(소각 및 용융염산화) 및 수증기산화분해(수열산화)의 3경우에 다른 가스상 성분들의 평형조성에 대해 계산하였다. 또 어떤 흑연시료가 염소(Cl-36)를 포함하고 있고 그렇지 않은 경우도 있으므로 염소의 존재유무를 또 하나의 조건변화로 고려하여 총 6경우의 흑연폐기물 고온열분해 조건에서 핵종의 거동에 대해 고찰하였다.

### 3. 결 과

소각의 경우, 과잉공기 연소분위기에서는 800℃ 이하의 온도에서 HCl(g)의 존재하지 않을 때

Ba은 비휘발성 (non-volatility)의  $\text{BaCO}_3$ 의 형태로 존재하며,  $\text{HCl(g)}$ 의 존재하에서는 바륨염화물로 휘발되어 배가스가 냉각될 때  $550^\circ\text{C}$  이하의 온도에서 Ba은 제어가 어려운 미세한 입자를 형성하게 될 것이다. Cs은  $1,000^\circ\text{C}$  이상의 고온에서는  $\text{CaOH(g)}$  형태로  $500^\circ\text{C}$  이하의 온도에서는  $\text{CsNO}_3(\text{g})$  형태로 존재하고 중간 온도에서는 두 가지의 형태가 공존하는 것으로 나타나며,  $\text{HCl(g)}$ 이 존재할 때  $600^\circ\text{C}$  이상의 온도에서  $\text{CsCl(g)}$  형태로 존재하고 온도가 감소함에 따라 미세한  $\text{CsCl}$  에어로졸을 형성한다. Eu은  $\text{HCl(g)}$ 의 존재여부와 관계없이 가스상의 화학종들을 형성하지 않는 것으로 나타난다. U는  $800^\circ\text{C}$  이상의 온도에서  $\text{UO}_3(\text{g})$ 를 형성하며,  $1,200^\circ\text{C}$ 의 고온에서는  $\text{UO}_3(\text{g})$ 가 U 화학종들의 95% 이상을 차지하는 것으로 나타난다.

용융염산화(molten salt oxidation)의 경우, 과잉공기 연소분위기의 소각과 다른 가스상의 조성은 같으나 염소성분이 용융염과 반응하여  $\text{NaCl}$ 의 형태로 포집되고 열역학적으로 가장 안정한 물질이 되므로 반응기내에  $\text{HCl}$ 이나  $\text{Cl}_2$ 가 반응물로 존재하지 않으므로 이들이 휘발에 영향을 미치는 Ba의 경우에는 휘발하지 않고  $\text{BaCO}_3$ 의 형태로 반응기내 잔류하게 된다. Cs의 경우에도 용융염산화반응기내에서  $\text{CsCO}_3$ 의 형태로 반응기내에 잔류하게 되어 Cl의 존재에 따른 핵종의 휘발거동은 고찰되지 않았다.

수열산화분위기 (hydrothermal oxidation atmosphere)에서 각각의 방사성 핵종들의 거동은 다음과 같다.  $800^\circ\text{C}$  이상의 온도에서 Ba은 대부분  $\text{Ba(OH)}_2(\text{g})$ 의 형태로 존재하며,  $\text{HCl(g)}$ 이 존재할 때 Ba은  $\text{BaCl(g)}$  형태로 존재는 것으로 나타났다. Cs은  $600^\circ\text{C}$  이상의 온도에서 주로  $\text{CsOH(g)}$ 와  $\text{Cs(g)}$ 의 형태로 존재한다.  $\text{HCl(g)}$ 이 존재할 때 Cs은  $500^\circ\text{C}$  이상의 온도에서 대부분  $\text{CsCl(g)}$  형태로 존재한다. Co의 거동은 수열산화분위기에서도  $\text{HCl(g)}$ 에 영향을 받지 않으며,  $1200^\circ\text{C}$ - $200^\circ\text{C}$ 의 온도범위에서 각각 응축상의 Co 형태로 존재한다. Eu은 대부분 응축상의 산화물 또는 수산화물 형태로 존재하여 수열산화분위기에서도 바닥재와 함께 배출될 것으로 예상된다.

## 방사성 탄소 흡수처리 성능 향상을 위한 2-amino-2-methyl-1-propanol과 Piperazine 혼합 조건 선정

강영애, 이동규, 양희철, 오원진, 이근우  
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

중성자 조사된 흑연의 위그너 에너지 제거를 위한 열 처리과정시에는  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  등의 동반기체가 발생하고, 그 중에서 방사성 탄소는 공기중에  $^{14}\text{CO}_2$ 로 가장 많이 존재하는 것으로 보고되고 있다. 본 연구는 이 기체의 흡수처리 방안을 제시하고자, 비 방사성  $\text{CO}_2$ 를 이용하여 흡수제, 흡수장치, 흡수조건 등을 선정하고, 실제  $^{14}\text{CO}_2$  흡수처리를 위한 공정에 적용하기 위한 조건을 선정하는 것이 목적이다.

따라서 현재까지 보고 된 흡수제로 우수하게 알려져 있는 2-amino-2-methyl-1-propanol (AMP)과 Piperazine(PZ), 이 두 흡수제를 사용하여  $\text{CO}_2$  기체의 흡수처리 성능 향상을 위한 흡수조건을 선정하기 위한 실험을 진행하였다. 본 실험에서 water bath에 흡수액 200ml를 넣은 흡수병을 설치하고 10%와 2000ppm의 정량화 된  $\text{CO}_2$  기체를 0.5 l/min 유속으로 흡수액에 흘려보냈다.  $\text{CO}_2$  농도는 TSI사의 Model 8730 Q-CHECK™  $\text{CO}_2$  Meter(최대 6000ppm  $\text{CO}_2$  측정, 10% 시료 사용시 94%까지 표기됨)로 흡수액 병의 유출구에 연결하여 측정하였다. 이 때 흡수장치의 온도는 25℃로 유지하였다.

실험은 우선 0.5, 1.0, 1.5, 2.0 M의 AMP와 PZ 흡수제에 각각 10%와 2000ppm의  $\text{CO}_2$  기체를 통과시켜 검출기로 출구의 농도를 측정하였고, 다음은 일정한 PZ와 AMP를 혼합하여 그 효율을 비교하였다. 단일 흡수제로써 AMP와 Piperazine에서의 10%  $\text{CO}_2$  흡수효율은 그림 1과 2에서 보여준다. AMP를 흡수제로 사용했을 때 고효율로 흡수되는 범위는 매우 짧지만 흡수효율은 천천히 떨어졌다. 그러나 반대로 Piperazine은 그림에서 보는 바와 같이 100%의 흡수효율을 보여주다가 급격히 흡수효율이 떨어지며, 100%의 흡수효율을 유지하는 시간은 1.45~1.55배씩 증가하는 것으로 나타났다. 시간에 대한 효율차이는 PZ가 우수하다고 할 수 있다 그러나 AMP는 시간에 대해 효율이 완만하게 떨어지면서 전체 흡수능이 좋다. 2000ppm  $\text{CO}_2$ 에 대해 동일 조건으로 흡수제에 통과

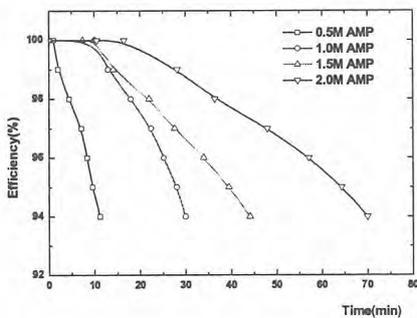


Fig.1. Absorption efficiency in various AMP Conc. (inlet  $\text{CO}_2$  conc. 10%, gas flowrate 0.5l/min)

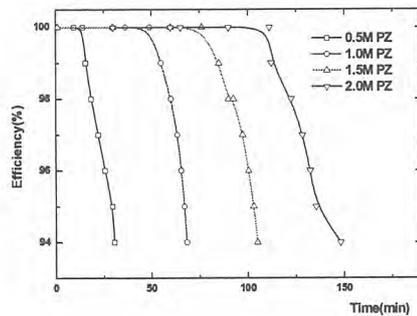


Fig.2. Absorption efficiency in various PZ Conc. (inlet  $\text{CO}_2$  conc. 10%, gas flowrate 0.5l/min)

시켰을 때에는 270분 동안 평균 흡수효율은 97%, ±3%내 오차범위를 보였다. 오차는 실험환경과 장치의 영향으로 판단된다.

다음으로 혼합흡수제에 대한 실험은 25℃조건에서 AMP와 Piperazine 수용액에 대한 10%  $\text{CO}_2$  기

체로 흡수실험을 진행하였다. 흡수제로는 0.5, 1.0, 1.5M의 AMP와 Piperazine을 1대 1로 혼합하였다. 그 결과는 그림 3에 나타내었다. 흡수제의 혼합으로 AMP의 높은 효율부분에서 완만한 감소가 예상였다. 그러나 월등히 효과적이지는 않았지만 가능성은 있다. 추가적으로, 실험 시 25°C의 온도조건에서 2.0M Piperazine의 재결정이 관찰되었다. 그에 따라 흡수제의 농도를 그 이하로 제한하여 진행하였다.

앞으로의 실험은 본 실험을 바탕으로 다양한 온도범위에서 Piperazine와 AMP의 흡수제 혼합비 조건에서 CO<sub>2</sub> 기체의 흡수처리 조건을 조사할 것이다. 그리하여 CO<sub>2</sub> 기체 흡수처리에 대한 선정된 흡수제의 혼합비율과, 온도 등 실험 조건은 조사된 흑연에서 발생하는 <sup>14</sup>CO<sub>2</sub>의 흡수처리장치에 적용 시 조건선정을 위한 자료로 활용될 것이다.

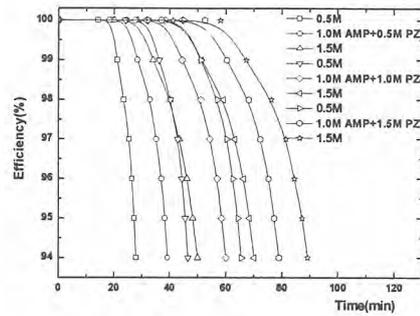


Fig. 3. Absorption efficiency in AMP+PZ+H<sub>2</sub>O (inlet CO<sub>2</sub> conc. 10%, gas flowrate 0.5l/min)

# 빈 면

제2-1분과  
방사성폐기물 처리

# 빈 면

## Development of a Continuous Electrolytic System for pH-control with Only One Discharge of Electrolytic Solution by Using Non-equilibrium Steady State Transfer of Ions across Ion Exchange Membranes

이온 교환막에서 이온의 비 평형 정상상태 이동을 이용한 단일 전해액의 배출만을 가지는 pH 조절용 연속식 전해 반응기 개발

Kwang-Wook Kim, Je-Wook Lyu, In-Tae Kim, Geun-Il Park and Eil-Hee Lee  
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

[nkwkim@kaeri.re.kr](mailto:nkwkim@kaeri.re.kr)

김광욱, 유제욱, 김인태, 박근일, 이일희  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

### Abstract

In order to produce only a pH-controlled solution without discharging any unused solution, this work has developed a continuous electrolytic system with a pH-adjustment reservoir being placed before an ion exchange membrane-equipped electrolyzer, where as a target solution was fed into the pH-adjustment reservoir, some portion of the solution in the pH-adjustment reservoir was circulated through the cathodic or anodic chamber of the electrolyzer depending on the type of the ion exchange membrane used, and some other portion of the solution in the pH-adjustment reservoir was discharged from the electrolytic system through other counter chamber with its pH being controlled as acid or base. The phenomena of the pH being controlled in the system could be explained by the electro-migration of the ion species in the solution through the ion exchange membrane under a cell potential difference between anode and cathode and its consequently-occurring non-charge equilibriums and electrolytic water-split reactions in the anodic and cathodic chambers.

**Key word** : pH-control electrolyzer, ion exchange membrane, electro-migration, electrolytic water-split reaction.

### 요 약

본 논문에서는 불필요한 용액의 발생이 없이 전해 반응계로 주입되는 용액을 오직 pH 만을 조절 시켜 배출시키기 위한 연속식 이온 교환막 전해 시스템을 개발하였다. 여기서는 전해 반응기 앞에 한 pH-조정조를 두고 대상 용액을 pH-조정조로 주입하면서 pH-조정조의 용액의 일부를 이온 교환막에 따라 음극방 또는 양극방으로 거쳐 다시 pH-조정조로 순환하게 하고, 또한 pH-조정조의 용액의 일부는 상대극방을 통과시킴으로써 pH가 산성 또는 알카리로 조절되어 배출되게 하였다. 이러한 전해반응기에서 pH 조절 과정은 음극과 양극 사이에 전압 차가 형성될 시, 이온 교환막을 통한 용액에 존재하는 이온의 전기이동 현상에 의해 유발되는 음극방과 양극방에서 용액의 전하 비 평형 현상과 이에 따른 물의 전해 분해 과정에 의해 설명되었다.

중심 단어 : pH 조절 전해반응기, 이온 교환막, 전해이동, 전해 물 분해 반응

## 1. 서 론

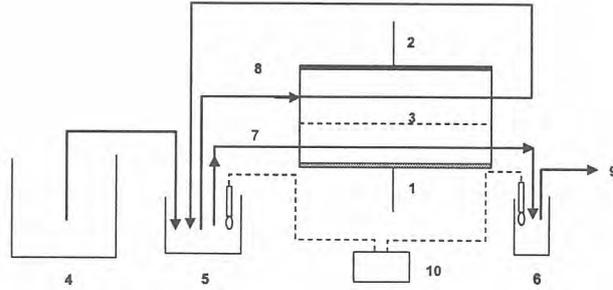
원자력 분야의 액체를 다루는 공정에서는 때때로 용액의 pH 조절이 요구되는데, 이런 경우 약품을 첨가하지 않고 pH를 조절하며, pH를 조절하는 과정에서 불필요한 폐액이 발생되지 않는다면 대상 계의 물질 수지 변화의 최소화, 운전비 절감 및 폐기물 발생의 최소화를 기할 수 있다. 약품의 첨가 없이 용액의 pH를 조절할 수 있는 한 방법으로 전해적 방법이 사용될 수 있다. 일반적으로 전해 반응기에서 물의 분해가 일어나는 경우, 양극에서는 수소 이온이 음극에서는 수산화 이온이 생성되므로, 일정한 전기전도성을 가지는 용액의 pH를 조절하기 위해서 분리막을 가지는 전해 반응기의 양극방과 음극방에 양극 용액과 음극 용액을 독립적으로 주입을 하여 배출되는 용액 pH를 각각 변화시키거나, 동일한 용액을 양극방과 음극방에 분할하여 주입하여 양극방과 음극방으로부터 pH가 다른 용액을 생성시키고 이들 용액을 섞어 원하는 용액의 pH를 조절한 후 남은 용액은 배출하기도 한다.[1-3] 전해 반응기의 음극방과 양극방에서 배출되는 두 용액 중 한 용액만 사용된다면, 사용되지 않는 전해 용액은 환경 오염원으로 남게 될 수 있다. 사용되지 않고 배출되는 용액의 처리는 전해 운전비용의 상승을 야기시킬 뿐만 아니라, 또 다른 이차 폐기물 발생을 야기시킬 수 있다. 따라서 화학약품의 첨가 없이 용액의 pH 조절이 가능한 전해적 방법을 사용하되 미 사용될 전해액이 발생되지 않게 하는 전해 방법이 필요하지만 지금까지 이에 관한 연구는 없는 상태이다.

본 연구에서는 이온교환막을 가지는 전해 반응기의 전극간 전압 차에 의해 발생하는 막을 통한 이온의 전기이동과 이에 따른 용액의 전하 비 평형 상태를 회복하기 위해 발생하는 전해 반응 특성을 이용하여 대상 용액을 불필요한 전해 용액의 생성이 없이 산성 또는 알칼리 pH를 갖도록 할 수 있는 전해 시스템의 개발과 이의 특성에 관한 연구가 수행되었다.

## 2. 실험

전해반응 시 물의 분해에 의한 용액의 pH 변화를 관찰하기 위하여 분리막과 W 2 cm x H 4cm x T 0.2cm의 크기를 갖는 IrO<sub>2</sub> 양극과 Ti 음극으로 구성된 전해 반응기를 사용하였다. 이때 각 음극방과 양극방의 부피는 16.5ml 이었다. IrO<sub>2</sub> 전극으로 본 연구팀의 이전 논문에서[8-10] 사용되었던 촉매성 산화물 전극체 제조 방법과 동일한 방법으로 제작하였으며, 분리막으로는 음이온 교환막 (AEM : Electrolytica, Inc. A-7001) 또는 양이온 교환막 (CEM : Nafion 424)을 사용하였다. 물의 전해 분해에 의한 용액의 pH를 변화를 관찰하기 위하여 음극방과 양극방 각각에 초기 pH가 조정된 0.1 M Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 용액 75ml를 독립적으로 순환시키며 음극방 및 양극방 용액의 pH를 각각 관찰하였으며 이때 반응기에 공급되는 전류는 80mA/cm<sup>2</sup>이었다.

Fig.1에는 본 연구에서 사용된 연속식 pH 조정 장치의 개념도가 나타나 있다. 분리막 전해 반응기 앞에 pH-조정조를 두고 이 pH-조정조에 초기 pH가 약 7인 0.1 M Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>인 대상 용액을 주입하면서, 동시에 pH-조정조 용액의 일부를 전해조의 음극방과 양극방으로 각각 주입한 후 양이온 교환막이 사용되는 경우 음극방으로 주입된 용액을 [음이온 교환막이 사용되는 경우 양극방으로 주입된 용액] pH-조정조로 다시 순환하게 하면서, 양극방으로 주입된 용액은 [음이온 교환막을 사용하는 경우 음극방으로 주입된 용액] pH가 조절되면서 배출되게 하였다. pH-조정조에 주입되는 대상 용액의 유속과 pH-조정조로부터 음극방 또는 양극방에 주입되어 pH가 조절되면서 배출되는 용액의 유속을 갖게 하여 pH-조정조의 내의 전해액 부피를 30ml로 일정하게 하였다. 중간 저장조의 용액과 배출되는 용액의 pH가 pH-meter와 data logger에 의해 실시간으로 측정되었다.



1. Anode 2. Cathode 3. Ion exchange membrane 4. Feeding tank 5. pH-adjustment reservoir  
6. Output pH measurement reservoir 7. Once-through flow 8. Internal circulation flow  
9. pH-controlled outlet flow 10. pH data logger

Fig.1. A schematic diagram of an electrolytic system equipped with an ion exchange membrane with one pH-controlled output

### 3. 결과 및 고찰

전해반응 시 pH는 음극과 양극에서 일어나는 물의 분해 반응에 의해 변화되므로 이에 대한 이해가 먼저 필요하다. 산성 분위기에서 양극과 음극에서의 전해 반응은 식(1)과 식(2)로, 알카리 분위기에서 양극과 음극에서의 전해 반응은 식(3)과 식(4)로 표현된다.

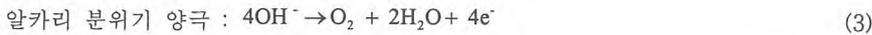
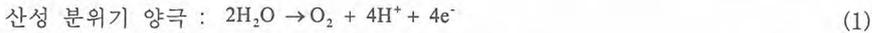


Fig.2에는 양이온 교환막 또는 음이온 교환막을 가지는 반응기에 여러 초기 pH를 가지는 0.1 M Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 용액이 양극방과 음극방을 독립적으로 순환할 때 시간에 따른 각 전해 방에서의 pH 변화가 나타나 있다. 양극방의 pH 변화를 보이는 Fig.2 (A)에서는 초기 pH에 따라 어느 일정한 시간까지는 pH가 큰 변화가 없이 서서히 감소하다가 pH가 12 정도에 도달하면 초기 pH에 관계없이 pH가 3 이하로 급격히 감소하고 그 이후 pH 2 이하로 서서히 낮아지는 것을 볼 수 있다. 양극방에서 pH 변화는 다음과 같이 설명될 수 있다. pH 12 이상의 알카리 분위기에서는 식 (3)에 의한 산소 발생이 증가되면서 용액 중 OH<sup>-</sup>의 소모 속도가 점차 증가된다. 용액 중의 OH<sup>-</sup> 소모가 일어나면 전해 용액은 물의 자체 이온화 반응(Self-ionization reaction of water)에 의한 이온 적 ([H<sup>+</sup>][OH<sup>-</sup>]=10<sup>-14</sup>)을 만족시키기 위해 물의 해리가 일어나고 이에 따라 H<sup>+</sup> 농도는 증가하게 되어 pH는 서서히 감소하게 된다 pH가 12에 도달하면 양극에서의 반응이 식(3)에서 식(1)로 바뀌면서 양극으로부터 수소 이온이 직접 생성되면서 pH는 급격히 감소하게 된다, pH 3 이하에서는 pH가 낮아지기 위하여 용액 중에 보다 많은 H<sup>+</sup>이 필요하게 되므로 pH는 반응 시간에 따라 다시 서서히 감소하게 된다. 이때 양이온 교환막을 사용할 때보다 음이온 교환막을 사용할 때 음극방에서 생성되는 OH<sup>-</sup>가 막을 통한 전기이동(Electric-migration)이 더 많이 되어 양극방에서 알카리도가 보다 오래 유지됨을 볼 수 있다. 한편 음극방에서는 Fig.2 (B)에서 보듯이 양극방에서의 현상과 유사하게 어느 일정한 시간까지는 pH의 큰 변화 없이 서서히 증가하다가 pH가 약 3 정도에 도달하면 pH가 12까지 급격히 증가한 후 서서히 13으로 접근하는 것을 볼 수 있다. pH 3 이전까지

pH의 완만한 상승은 음극방에서 식(2)와 같이 용액 중의 H<sup>+</sup>를 소모시키며 수소 발생이 진행됨에 따라 전해 용액은 물의 자체 이온화 반응에 의한 이온 적을 만족시키기 위해 물의 해리가 일어나고 이에 따라 OH<sup>-</sup>농도는 증가하게 되어 pH는 서서히 증가하게 된다. pH가 3에 도달하면 음극에서의 반응이 식(2)에서 식(4)로 전환되어 OH<sup>-</sup>가 다량으로 발생하여 pH가 급격히 상승하는 것으로 생각되고, 이후 pH 12에서는 pH가 상승하기 위하여 용액중의 OH<sup>-</sup>가 많이 필요하게 되므로 pH는 반응 시간에 따라 다시 서서히 증가하게 된다. 이때 양이온 교환막을 사용하는 것이 음이온 교환막을 사용하는 것보다 양극에서 생성된 H<sup>+</sup>이 더 많이 전기이동 되어 음극방에서 용액이 알카리로 변환되는 시간이 더 길어짐을 볼 수 있다. 이러한 전극에서의 물의 분해 과정을 통한 양극방과 음극방을 나오는 용액의 pH의 변화는 각 용액이 전해 방에 체류하는 동안 전극을 통해 용액에 공급되는 전기량에 비례하게 된다.

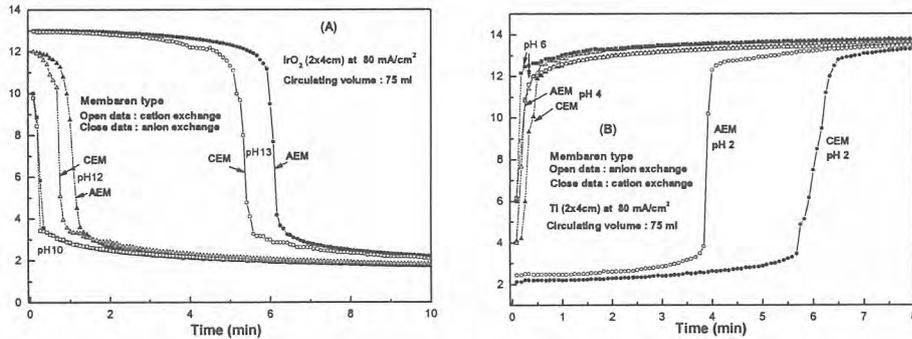


Fig.2 pH changes in anodic and cathodic chambers of a divided cell with an anion exchange membrane or a cation exchange membrane with electrolytic time at different initial pH of 0.1 M Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> solutions.

지금까지 알려진 전해적인 방법에 의한 pH 조절 반응기에서는 위와 같은 음극과 양극에서의 전극 반응을 이용하여 음극방에서는 알카리성 용액을 양극방에서는 산성 용액을 동시에 생성시켜 이들을 각각 사용하거나, 이렇게 만들어진 용액을 섞어서 원하는 pH로 조정하여 사용한다. 이때 사용되지 않는 용액은 폐수로서 버려지게 되는데, pH가 변화되어 버려지는 용액은 자연 평형 상태 관점에서는 처리를 요하는 폐수가 된다. 또한 버려지는 폐수에 pH가 조정되는 과정에서 환경에 유해한 물질에 의해 오염되는 경우는 방류 이전에 이를 처리하기 위한 과정이 더욱 필요하게 된다.

본 연구에서는 전해 계로 주입되는 용액을 미 사용되는 용액의 방출이 없이 오직 원하는 pH로 조정된 용액만으로 생성시키기 위하여 Fig.1과 같이 구성된 전해 시스템을 고안하였다. 여기서는 이온 교환막을 가지는 전해 반응기 앞에 한 pH-조정조를 두고 이 pH-조정조에 대상 용액을 주입 하면서, 동시에 pH-조정조 용액의 일부를 전해조의 음극방과 양극방으로 각각 주입한 후, 이온 교환막에 따라 음극방 또는 양극방으로 주입된 용액은 다시 pH-조정조로 순환하게 하고, 상대 전극 방으로 주입된 용액은 pH가 조절되면서 전해 반응기를 떠나게 하는 방법으로 오직 pH가 조절된 용액만을 생성시킬 수 있었다. Fig.3 (A)에는 양이온 교환막을 장착한 전해 반응기를 사용하고 pH-조정조로부터 음극방으로 주입되는 용액을 pH-조정조로 재순환시키면서, pH-조정조로부터 양극방으로 주입되는 용액이 pH가 조절되어 배출되게 할 때, 시간에 따른 pH-조정조의 용액과 배출되는 용액의 pH 변화가 나타나 있으며, 동시에 pH-조정조를 사용하지 않고 대상 용액이 음극방과 양극방으로 직접 통과하여 배출되는 용액의 pH 변화가 함께 비교되어 나타나 있다. 이때 전해 반응기에 공급되는 셀 전압은 6 V 이었으며 전해 반응계로 공급되는 대상 용액의 유속은 2.3 ml/min이었다. pH-조정조를 사용하지 않는 경우, 음극방과 양극방을 직접 통과하는 용액의

pH는 정상상태에서 각각 12.6와 1.3 이었다. pH-조정조를 사용하고 양극방을 통과해 전해 계로부터 배출되는 용액의 pH는 약 1.8 이었으며, 이때 pH-조정조 용액의 일부가 음극방을 통해 순환하게 되므로 pH-조정조 용액의 pH가 시간에 따라 점차 증가하여 정상상태에서는 pH가 약 12.8에 도달함을 볼 수 있다. Fig.3 (B)에는 음이온 교환막을 장착한 전해 전해 반응을 사용하고 양극방으로 주입되는 용액을 pH-조정조로 재순환시키면서, pH-조정조로부터 음극방으로 주입되는 용액의 pH가 조절되어 배출되게 할 때, 시간에 따른 pH-조정조의 용액과 배출되는 용액의 pH

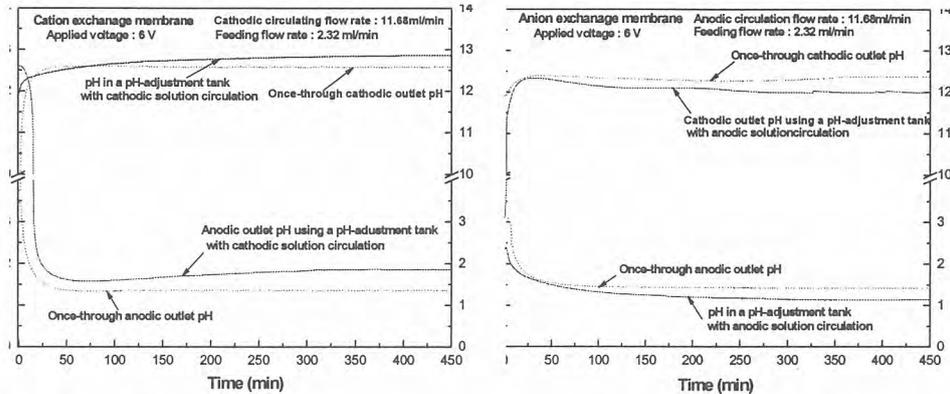


Fig.3 Changes of the pHs at anodic(A) or cathodic (B) of an electrolytic system with an internal cathodic (A) or anodic (B) solution circulation and an electrolytic system with anodic and cathodic discharge solutions with time in the case of using a cation (A) or anion (B) exchange membrane.

변화가 나타나 있으며, 동시에 pH-조정조를 사용하지 않고 대상 용액을 음극방과 양극방으로 직접 통과하여 배출되는 용액의 pH 변화가 함께 비교되어 나타나 있다. 정상상태에서 음극방과 pH-조정조로 순환되는 용액의 pH는 1.1에 도달하고 음극방을 통해 전해 계로부터 배출되는 단일 용액의 pH는 12이었다.

Fig.3의 결과로부터 Fig.1과 같이 구성된 이온 분리막 전해조를 사용하는 경우에는 pH-조정조를 사용하지 않는 경우의 음극방과 양극방을 통해 독립적으로 배출되는 용액보다 산성도와 알칼리도는 다소 낮지만 전해 시스템으로부터 충분히 산성 또는 알칼리로 조절된 단일 용액만을 배출시키는 것이 가능함을 볼 수 있다. 음극과 양극에 공급되는 전기량은 동일하므로 전기량 관점에서 보면 Fig.1과 같이 대상용액이 pH-조정조, 음극방, 양극방을 거쳐 배출되는 경우 전해 계로 주입되는 용액의 pH는 거의 변화되지 않고 전해 계를 빠져 나올 것으로 생각할 수 있다. 즉, 대상용액이 음극방과 양극방을 모두 거치게 되면, 분리막이 없는 전해조의 경우와 같이 음극과 양극에 동일하게 공급되는 전량에 의해 음극에 의한 용액의 pH 변화가 양극에 의한 용액의 pH 변화에 의해 상쇄되어 전체적인 용액의 pH는 변화되지 않을 것으로 생각된다. 따라서 Fig.1과 같이 구성된 전해 계로 주입되는 용액에 대하여 pH가 조절된 단일 전해액만 배출할 수 있는 원리는 단순히 각 전극 방에 공급되는 전기량에 따른 전극에서의 물의 전해 반응의 결과만으로는 설명될 수 없다.

이온교환막을 가지는 전해조에서 음극과 양극에 전기가 흐를 때 두 전극 사이에 형성되는 전압에 의해 전해액의 이온이 막을 통해 이동하는 전기이동(Electro-migration) 현상이 일어나게 된다. 막을 통한 이온의 이동은 양극방과 음극방에서 용액의 전하 비 평형 상태를 유발시키고, 이는 용액이 전기적 중성도를 유지할 수 없게 만들므로, 양극방과 음극방에서는 이를 보상하기 위한 물의 전해 분해 반응이 일어나게 된다. 막을 통한 이온의 전기이동과 이에 따른 전극 반응 과정을 통

해서 Fig.1의 전해 계에서 배출되는 용액의 pH 변화 과정을 설명할 수 있다. Fig.4에는 양이온 교환막을 사용하는 Fig.1의 전해 계에 Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>의 용액이 주입될 때 산성화된 단일 전해액 만이 배출되는 Fig.3 (A)의 결과를 설명할 수 있는 이온의 막 이동 과정과 이에 따른 전극 반응 과정이 도식적으로 나타나 있다. 분리막 전해 셀의 막을 통한 이온 i의 이동 속도 J<sub>i</sub>는 전해액 내에 대류 현상이 없다면 식 (5)와 같이 이온의 확산과 전극 간에 형성된 전압에 의한 전기이동 항으로 표현될 수 있다.

$$J_i = -D_i \frac{dc_i}{dx} - \frac{n_i F}{RT} D_i C_i \frac{d\phi}{dx} \quad (5)$$

여기서 D<sub>i</sub>는 확산계수, n<sub>i</sub>는 이온가 수, C<sub>i</sub>는 이온의 농도, F는 패라데이 상수, dφ/dx는 두 전극 간에 형성된 전압 기울기를 의미한다. 먼저 Fig.4 (A)에는 음극방 용액이 pH-조정조의 순환이 없이 pH-조정조의 용액이 음극방과 양극방으로 주입되어 전해 계를 빠져 나오는 경우, 이온의 막을 통한 이동 과정과 이에 따른 전해반응 과정이 나타나 있다. 양극방을 통과하는 용액 중의 Na<sup>+</sup> 이온은 음극과 양극에 형성된 전위차에 의해 전기이동이 일어나 음극방으로 이동하게 된다. 막을 통한 Na<sup>+</sup> 이온이 이동됨에 따라 음극방과 양극방의 각 용액은 전하 비 평형 상태가 되므로 전기적 중성을 유지하기 위하여 각 전해 방에서는 물의 전해 분해가 일어나게 된다. 따라서 음극방에서는 물의 분해에 의한 수소 발생과 더불어 OH<sup>-</sup> 이온의 발생에 의해 음극방의 용액은 알칼리화되어 전해 계를 나오게 되고, 양극방에서는 물의 분해에 의한 산소 발생과 H<sup>+</sup> 이온의 발생에 의해 용액은 산성화되어 전해 계를 빠져 나오게 된다. 이때 전해액의 체류시간이 길어지면 막을 통한 이온의 이동이 증가되어 각 전극 방을 나오는 용액은 더욱 높은 산성과 알칼리화 된다. 한편 막을 통해 양극방으로부터 Na<sup>+</sup> 이온이 이동됨으로써 보다 높은 농도의 Na<sup>+</sup> 이온을 포함하게 된 음극방 용액이 pH-조정조로 순환되어 주입되는 대상 용액과 섞여 다시 음극방과 양극방으로 주입되는 Fig.4 (B)의 경우, 양극방과 음극방에서의 Na<sup>+</sup> 이온 농도는 Fig.4 (A)의 경우보다 높아지게 된다. 따라서 식 (5)에서 보듯이 Na<sup>+</sup> 이온 농도가 높아지는 경우 Na<sup>+</sup> 이온의 전기이동이 더욱 늘어나 Fig.4 (A)의 경우 보다 각 전해 방에서의 전하 비 평형 상태가 더욱 커지므로 전기적 중성을 유지하기 위하여 각 전해 방에서는 물의 전해 분해가 증가되어 음극방과 양극방을 나오는 용액은 더욱 알칼리화와 산성화된다. 이때 양극방에는 알칼리화된 pH-조정조의 용액이 주입되므로 물의 전해 반응으로부터 생성되는 H<sup>+</sup> 이온이 용액중의 OH<sup>-</sup>를 중화시키는데 사용되어 Fig.2.에서 보듯이 Fig.4 (A)의 경우보다는 낮은 산도를 가지게 된다. Fig.4 (A)와 같은 과정이 반복 진행되면서 전해 시스템은 정상상태에 도달하게 되다. 이때 pH-조정조에서는 높은 알칼리 상태에 도달하고 양극방으로부터 배출되는 용액은 일정한 산성 pH를 갖는 상태에 도달된다. 이러한 pH 변화 과정은 이온 교환막을 통한 이온들의 비 평형 정상상태 이동 (Non-equilibrium steady state transfer) 과정으로 생각할 수 있다.

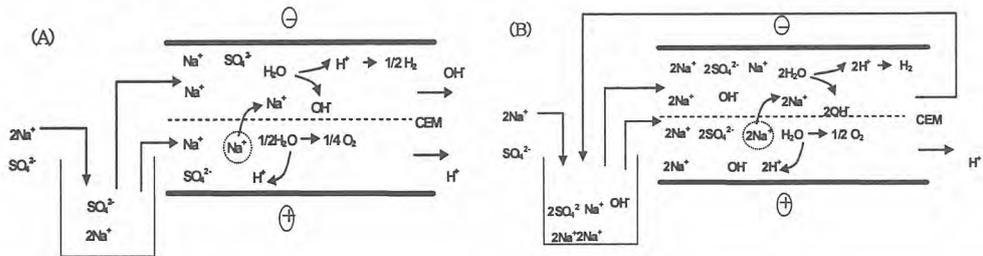


Fig.4. A schematic diagram to show the electro-migration of cation and its subsequent water split reactions at the anode and cathode in a cation exchange membrane electrolytic system with an internal anodic solution circulation and only one acidic-controlled solution discharge.

한편 Fig.5에는 pH조절 대상용액으로 Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>의 전해액을 사용하고 음이온 교환막을 사용하며 양극방 용액이 pH-조정조로 재순환되는 음극방으로부터 알칼리화된 단일 전해액만을 배출하는 Fig.3의 결과를 설명하는 이온의 막 이동과정과 이에 따른 전극 반응 과정이 도식적으로 나타나 있다. Fig.5에서 이온의 이동 과정과 배출되는 용액의 pH 변화과정은 Fig.4와 유사하게 설명될 수 있다. Fig.5에서 막을 통해 이동되는 물질은 음이온 교환막을 사용하기 때문에 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 이온이 전기이동에 의해 음극방에서 양극방으로 이동하고 이에 따라 각 전해 방에서는 전기적 중성도를 유지하기 위하여 물이 분해됨으로써 음극방에서 배출되는 용액은 알칼리화가 되고 양극방에서 배출되는 용액은 산성화된다. 음극방과 양극방에서 나오는 용액의 순환이 없이 직접 배출되는 Fig.5 (A)의 경우 보다 양극방을 나오는 용액이 pH-조정조로 재순환되는 Fig.5 (B)의 경우, 각 방에서의 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 이온 농도가 높아지게 되어 막을 통한 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 이온 전기이동이 증가된다. 이에 따라 음극과 양극에서의 물 분해가 증폭되어 양극방을 나오는 용액은 더욱 알칼리화되어 pH-조정조로 순환되고 양극방의 용액은 더욱 산성화되어 전해 계를 빠져 나오게 된다. 이때 보다 산성화된 pH-조정조의 용액이 주입되므로 음극방에서는 생성되는 OH<sup>-</sup> 이온이 용액중의 H<sup>+</sup>를 중화시키는데 사용되어 Fig.5 (A)의 경우보다는 낮은 알칼리도를 가지게 된다.

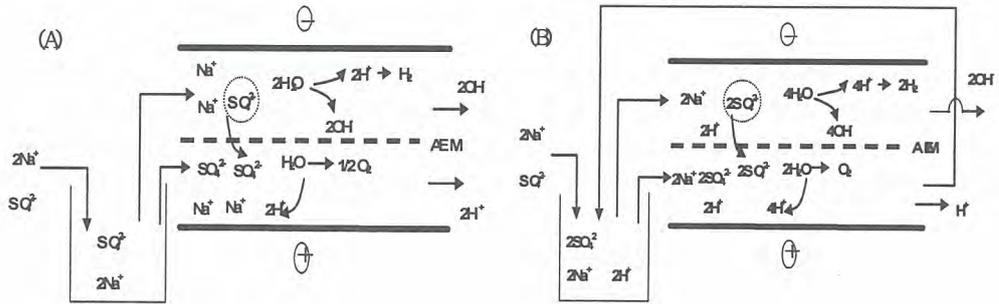


Fig.5. A schematic diagram to show the electro-migration of anion and its subsequent water split reactions at the anode and cathode in an anion ion exchange membrane electrolytic system with an internal cathodic solution circulation and only one basic-controlled solution discharge.

Fig.6에는 Fig.3에서 pH가 조절된 배출용액의 생성에 대한 셀 전압의 영향을 보기 위하여 pH-조정조에서 전해조로 주입되는 용액의 유속을 4.05 ml/min로 일정하게 하였을 때 셀 전압에 따른 정상상태에서 배출되는 용액의 pH 변화가 나타나 있다. 셀 전압이 증가할수록 배출되는 알칼리 용액의 pH는 증가되고 산성 용액의 pH는 감소함을 볼 수 있다. 이것은 셀 전압이 증가할수록 일정한 시간 동안에 막을 통한 양이온 또는 음이온의 전기이동이 증가하고 이에 따라 각 전해 용액의 전하 비 평형이 커지므로, 물의 분해 반응에 의해 배출되는 용액의 OH<sup>-</sup>와 H<sup>+</sup> 이온이 증가하기 때문으로 생각된다. 또한 일정한 셀 전압에서 용액의 이온이 이온 교환막을 통한 전기이동이 일어나는 시간 즉, 주입 용액의 반응기 내 체류 시간이 증가하여도 용액 이온의 막을 통한 이동이 증가되어 생성되는 용액의 pH가 변화된다.

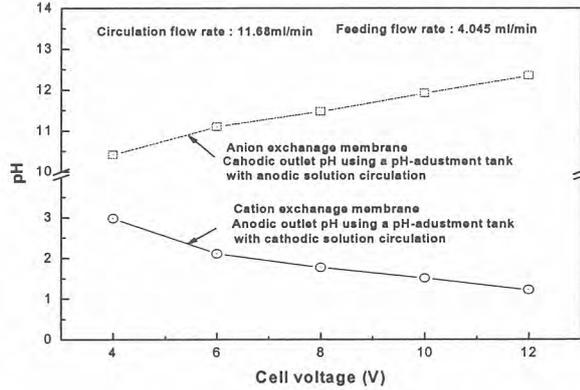


Fig.6 Changes of the pH at the cathodic or anodic outlet of an electrolytic system equipped with a anion or cation exchange membrane with an internal anodic or cathodic solution circulation in a steady state with a change of applied cell voltage.

Fig.6에는 화학약품을 사용하지 않으며 전해 반응에 의한 폐액의 발생이 없이 용액의 pH를 조절하여 물질 분리를 필요로 하는 경우, 본 연구에 의해 개발된 전해 반응기의 적용 예가 나타나 있다. 양이온 교환막을 사용하며 셀 전압을 10 V로 하는 Fig.1의 전해 계에 초기 pH가 약 8인 0.1 M Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>에 0.1 M NaHCO<sub>3</sub>이 용해된 용액을 4.05 ml/min 유속으로 주입될 때 시간에 따른 배출 용액에서의 탄산염 이온 (CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>)의 제거율과 pH 변화가 나타나 있다. 용액 중의 CO<sub>3</sub><sup>2-</sup> 이온은 pH가 7 - 10에서 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>로 변화되며 pH 4 이하에서 H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>를 거쳐 CO<sub>2</sub>로 변환되어 대기로 날아가는 것으로 알려져 있다. 정상상태에서 배출 용액의 pH는 1.25 정도로 낮아지게 되므로 용액 중의 탄산염 이온은 이산화탄소로 변환되어 용액으로 거의 98% 이상을 제거할 수 있음을 볼 수 있다.

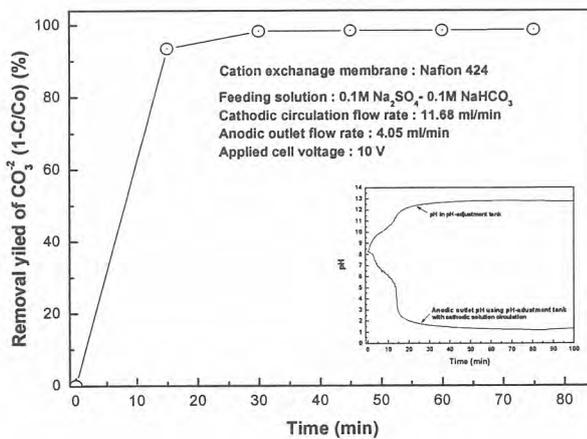


Fig.6 Change of the removal yield of carbonate ion in a solution by using an electrolytic system equipped with a cation exchange membrane with an internal cathodic solution circulation and its pH change of the anodic outlet solution from the system with time.

#### 4. 결 론

이온교환막을 가지는 전해 반응기 앞에 위치한 pH-조정조에 대상 용액을 주입하고, pH-조정조의 용액 일부를 이온 교환막에 따라 음극방 또는 양극방으로 거쳐 다시 pH-조정조로 순환과정을 갖게 하면서 또 다른 pH-조정조의 용액을 상대 극 방을 거쳐 배출케 함으로서 전해 반응계로 주입되는 용액을 불필요한 용액의 생성이 없이 원하는 pH를 가진 용액으로 조절시킬 수 있었다. 양이온 교환막을 사용하는 경우 음극방을 거치는 용액을 pH-조정조로 순환하게 함으로서 산성용액을 생성시킬 수 있었으며, 음이온 교환막을 사용하는 경우 양극방을 거치는 용액을 pH-조정조로 순환하게 함으로서 알카리 용액을 생성시킬 수 있었다. 셀 전압을 증가할수록 그 생성되는 산성용액의 pH는 낮아지고 알카리 용액의 pH는 증가하였다. 본 연구에서 개발된 pH 조절용 전해 반응기는 약품을 첨가하지 않으며, 또한 폐액의 발생이 없이 pH 조절에 의해 물질 분리에 효과적으로 사용될 수 있음을 보여 주었다.

#### 참 고 문 헌

1. Zito, R., "Electrochemical approaches to water processing", Technology research laboratories, Inc.-Publication, (1998).
2. Aoki, H., Yamanaka, K., Imaoka, T., Futtsuki, T., Yamashita, Y., "Electrolytic ionized water producing apparatus", U.S. Patent 5,616,221 (1997)
3. Yamaguti, S., Ukon, M., Misawa, S., Arisaka, M., "Method and device for producing electrolytic water", U.S. Patent 5,445,722 (1995)
4. Kim, K.W., Lee, E.H., Kim, J. S., Shin, K.H. and Kim, K.H., "Study on the electroactivity and non-stoichiometry of a Ru-based mixed oxide electrode", *Electrochimica Acta.*, 46, 915-921 (2001).
5. Kim, K.W., Lee, E.H., Kim, J.S., Shin, K.H. and Chung, B.I., "A study on performance improvement of Ir oxide-coated titanium electrode for organic destruction", *Electrochimica Acta.*, 47, 2525-2531 (2002).

## Development of Dust Recycling System and Dust Cleaner in Pipe during Vitrification of Simulated Non-Radioactive Waste

모의 비방사성 폐기물의 유리화시 발생 분진의 재순환처리장치 및 배관 내 침적분진에 의한 막힘 방지용 체진장치의 개발

Jong-Seo Choi, Young-Hwan You, Seung-Chul Park\*, Seok-Mo Choi\*,  
Tae-Won Hwang\* and Sang-Woon Shin\*

Hyundai MOBIS, 140-2, Gye-dong, Jongro-gu, Seoul, Korea

\*Nuclear Environment Technology Institute, P.O.Box 149, Yusung, Daejeon, Korea

최종서, 유영환, 박승철\*, 최석모\*, 황태원\*, 신상운\*

현대모비스주식회사, 서울시 종로구 계동 140-2

\*원자력환경기술원, 대전시 유성구 사서함 149호

[pung123@mobis.co.kr](mailto:pung123@mobis.co.kr)

### Abstract

For utilizing vitrification to treat low and intermediate level waste, industrial pilot plant was designed and constructed in October 1999 at Daejeon, Korea through the joint research program among NETEC, MOBIS and SGN. More than 70 tests were performed on simulated IER, DAW etc. including key nuclide surrogate(Cs, Co); this plant has been shown to vitrify the target waste effectively and safely, however, some dust are generated from the HTF(High Temperature Filter) as a secondary waste. In case of long term operation, it is also concerned that pipe plugging can be occurred due to deposited dust in cooling pipe namely, connecting pipe between CCM(Cold Crucible Melter) and HTF. In this regard, we have developed the special complementary system of the off-gas treatment system to recycle the dust from HTF to CCM and to remove the interior dust of cooling pipe. Main concept of the dust recycling is to feed the dust to the CCM as a slurry state; this system is regarded as of an important position in the viewpoint of volume reduction, waste disposal cost and glass melt control in CCM. The role of DRS(Dust Recycling System) is to recycle the major glass components and key nuclides; this system is served to lower glass viscosity and increase waste solubility by recycling B, Na, Li components into glass melt and also to re-entrain and incorporate into glass melt like Cs, Co. Therefore dust recycling is helpful to control the molten glass; it is unnecessary to consider a separate dust treatment system like a cementation equipment. The effects of Dust Cleaner are to prevent the pipe plugging due to dust and to treat the deposited dust by raking the dust into CCM. During the pilot vitrification test, overall performance assessment was successfully performed; DRS and Dust Cleaner are found to be useful and effective for recycling the dust from HTF and also removing the dust in cooling pipe. The obtained operational data and operational experiences will be used as a basis of the commercial facility.

**Key word** : Dust Recycling System(DRS), Dust Cleaner, Vitrification, Dust, Slurry, High Temperature Ceramic Filter, Cooling Pipe

## 요 약

중·저준위 고체폐기물의 유리고화처리 적용연구를 위하여, 현대모비스는 원자력환경기술원 및 프랑스 SGN사와 공동으로 99년 10월에 유리화 실증설비를 건설한 바 있다. 실증설비를 활용하여 모의핵종(Co, Cs)을 포함한 비방사성 이온교환수지, 잡고체 등에 대한 70여 회 이상의 실증시험 수행을 통하여, 대상폐기물을 안전하고 효과적으로 처리할 수 있음을 확인하였다. 그러나 처리과정 중 고온세라믹필터계통(High Temperature Filter : HTF)에서 발생하는 분진의 처리가 문제점으로 도출되었다. 또한 저온용융로(Cold Crucible Melter : CCM)와 HTF를 연결하는 냉각파이프는 장기간 운전시 CCM으로부터 발생한 분진이 침적되어 배관막힘의 우려가 있다. 이와 관련, 개발한 유리화공정에 추가하여 HTF에서 발생한 분진을 재순환하는 장치와 냉각파이프 내 침적분진을 제거하는 장치를 개발하였다. 유리화공정 중 HTF에서 발생하는 분진의 처리는 유리화설비의 감용비, 처분비용 및 유리용탕의 조절 측면에서 특히 중요하다. 분진재순환장치(Dust Recycling System : DRS)의 개념은, HTF 하단부에서 발생분진을 수거, 물과 섞어 슬러리 형태로 제조, 이송하여 CCM 내로 다시 투입함으로써 분진을 처리할 수 있도록 하였다. DRS의 주 기능은 분진 내의 모의핵종 및 주요 유리성분을 다시 CCM으로 재순환 처리하는 것이며, 이에 따라 유리용탕의 성분을 일정하게 유지하고 또한 유리배출을 용이하게 하는 데 기여한다. 또한 시멘트 고화설비 등과 같은 별도의 분진처리설비를 고려할 필요가 없다. 제진장치는 주기적으로 운전 중 가동할 경우, 냉각파이프 내의 분진침적에 의한 막힘 방지와 함께 배관 내 침적된 분진을 CCM 내로 다시 처리하는 효과를 기대할 수 있다. 유리화실증시험을 통하여 DRS와 제진장치에 대한 전체적인 성능평가를 성공적으로 수행하였으며, 운전결과 및 경험은 향후 상용설비를 위한 기본자료로 활용할 것이다.

**중심단어** : 분진재순환장치, 제진장치, 유리화처리, 분진, 슬러리, 고온세라믹필터, 냉각파이프

## 1. 서론

중·저준위 가연성 고체폐기물의 유리고화처리 적용연구를 위하여 현대모비스는 원자력환경기술원 및 프랑스 SGN사와 공동으로 99년 10월에 유리화 실증설비를 건설한 바 있다. 유리화공정의 실증 및 운전자료 도출을 목적으로 건설된 실증설비를 활용하여 70여 회 이상의 실증시험이 수행되었으며[1,2,3], 이를 바탕으로 현재 울진 원자력발전소 내 유리화설비의 건설 사업이 진행 중에 있다.

유리화실증시험을 통하여 대상폐기물을 안전하고 효과적으로 처리할 수 있음을 확인하였으나, 처리과정 중 고온세라믹필터계통(High Temperature Filter : HTF)에서 발생하는 분진의 취급 및 처리가 문제점으로 도출되었다. HTF에 장착된 세라믹필터는 압축공기 분사에 의한 탈진장치에 의하여 필터표면에 부착된 분진을 제거하며, 분진은 HTF의 하부에 수집되어 로타리밸브를 통하여 배출된다. 발생분진을 별도의 고화처리 할 경우 유리화설비의 전체적인 감용성에 영향을 줄 수 있으며, 경제성 측면, 설비운전 측면, 공간활용 측면 등에서 불리할 것으로 사료된다. 또한 저온용융로(Cold Crucible Melter : CCM)와 HTF를 연결하는 냉각파이프(Cooling Pipe), 특히 전단부는 장기간 운전시 CCM으로부터 발생한 분진이 침적되어 배관막힘의 우려가 있다. 이 경우 차압증가, 계통 내 부압유지 곤란 등의 문제점을 야기 할 수 있다.

본 연구에서는 상기의 문제점을 해결하기 위하여 개발한 분진재순환장치(Dust Recycling System : DRS) 및 제진장치(Dust Cleaner)를 유리화실증설비에 설치하고, 실증시험시 이들의 성능을 평가하였다. 분진재순환장치의 경우 성능평가 내용은 아래와 같다.

- 장치 운전 및 건전성
- 분진발생량 및 슬러리 처리농도

- 슬러리 투입에 따른 기 관련 설비 영향 및 운전모드
  - 시료(유리, 분진)분석결과에 따른 분진재순환설비의 효과
- 제진장치의 경우는 아래와 같다.
- 배관 내 분진제거 성능 및 운전시 부압영향

## 2. 분진재순환 및 제진장치의 개요

### 2.1 분진재순환장치

유리화공정 중 HTF에서 발생하는 분진의 처리는 유리화설비의 감용비, 처분비용 및 유리용탕의 조절 측면에서 특히 중요하다. 분진을 효과적으로 처리하기 위하여 개발한 분진재순환설비의 개념은, HTF 하단부에서 발생분진을 수거, 물과 섞어 슬러리 형태로 제조, 이송하여 CCM 내로 다시 투입함으로써 분진을 처리할 수 있도록 하였다. Lab. test와 Cold test(비 용융조건)를 통하여, 발생분진의 특성상 이송가능한 슬러리농도는 물의 함유농도가 70wt% 이상이면 문제없음을 확인하였다. DRS의 설계 및 운전개념을 요약하면 아래와 같다.

- 슬러리양은 20리터를 기준으로 일정하게 유지
  - 처리가능 슬러리농도 범위 : 70wt% 이상
  - 처리가능 분진량 범위 : 6kg 이상(적정처리량 : 0.1-3kg/batch)
  - 슬러리 제조, 이송 및 투입 : 제조 및 이송은 배치운전, 대상폐기물과 함께 연속투입 운전
- DRS의 개요도는 아래 Fig.1과 같다.

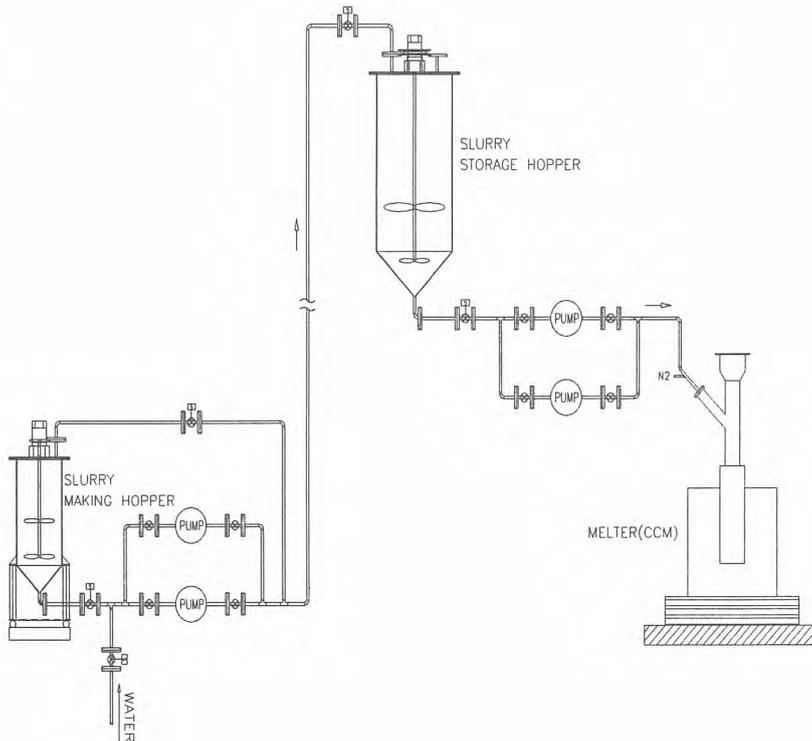


Fig.1. Schematic Diagram of DRS

실증설비에 설치한 DRS는 크게 슬러리 제조 및 이송부와 슬러리 저장 및 투입부로 구성된다. 슬러리 제조 및 이송부는 분진과 용수를 혼합, 교반하여 슬러리를 만들고, 슬러리 전용펌프를 이용하여 슬러리 저장 및 투입부로 이송하는 기능을 갖는다. 슬러리 저장 및 투입부는 슬러리를 보관하였다가, 운전조건에 따라 적정량을 조절, 용융로에 투입하는 기능을 갖는다. 분진의 수집, 이송 및 계량부와 예비저장기능 등 안전계통은 기 검증되었거나 별도의 검증이 필요 없으므로 고려하지 않았다. 따라서 분진의 슬러리제조호퍼로의 투입은 수동으로 수행하였다.

유리화설비의 운전과 관련, DRS의 중요한 기능은 주요한 유리성분 및 방사성핵종을 다시 CCM으로 재투입하는 것이다. 아래 표 1에는 W1 폐기물(이온교환수지와 잠고체의 혼합폐기물)의 유리화 실증시험시 발생한 분진의 평균 조성을 나타내었다.

Table 1. Average Dust Compositions of Dust in case of W1 waste

Element	Al	B	Fe	Li	Na	Si	Cl	S	O
Wt%	0.8	2.08	0.51	0.31	19.23	3.81	1.90	1.14	70.22

상기 표에서 Na, B, Li 등 유리의 주요 구성성분이 분진 내에 함유되어 있음을 알 수 있다. 이는 고온 유리화처리에 의한 유리성분의 휘발에 기인한 것인데, 이들이 계속 휘발되어 유리용탕으로부터 이탈할 경우 유리점도가 점차 증가하고 용해도가 감소하여 안정적인 운전에 영향을 줄 수 있다. 또한 실제 방사성폐기물을 처리할 경우, 분진 내에 함유될 수 있는 Cs, Co 등 방사성핵종도 재순환처리 하게 된다. 이와 같이 DRS는 분진을 용융로 내로 재순환시켜 다시 유리고화 될 수 있도록 함으로써, 용융유리 내 성분을 일정하게 유지할 수 있도록 기능한다. 유리용탕 성분이 유지되면서 운전하게 되면 전체적으로 운전상황을 예측가능하고, 유리배출도 용이하다. 또한 별도의 처리장치 없이 자체 용융로를 통하여 방사성핵종이 포함된 분진을 재순환, 처리함으로써 경제성과 편의성을 얻을 수 있다.

## 2.2 제진장치

CCM 내부에서 폐기물의 연소에 의해 생성된 고온의 배기체는 분진을 다량 함유하고 있으며, 냉각파이프를 통과하는 동안 배기체 내의 큰 입자는 중력에 의해 냉각파이프 하부 표면에 침적된다. 이러한 분진침적은 장기간 운전시 배관 내경을 좁게하거나 심할 경우 막음으로써 배기체의 역류 또는 용융로 내부 부압유지에 큰 영향을 미칠 수 있다. 따라서 냉각파이프에 침적되는 분진층을 운전 중에 제거할 수 있는 제진설비를 고안하였다.

유리화공정에 적용한 냉각파이프는 수평형이므로, 이를 고려하여 일반 보일러 등의 세관용으로 사용하는 방법을 응용하였다. 즉, 냉각파이프 내부에 전동식 브러시를 삽입, 전, 후진 동작을 하며 내부 분진을 제거하는 방식이다. 이에 대한 개요도 및 제진과정을 아래 Fig.2 및 3에 나타내었다.

제진장치를 적정한 주기로 운전 중 가동할 경우, 냉각파이프 내의 분진침적에 의한 막힘 방지와 함께 배관 내 침적된 분진을 CCM 내로 다시 밀어 넣어 처리하는 효과를 기대할 수 있다. 그러나 본 유리화공정은 배기팬 전단까지의 모든 공정이 부압으로 유지되므로, 냉각파이프 내부에 브러시를 삽입, 배기체 흐름과 역순으로 전진하게 될 경우 부압유지에 영향을 줄 수 있다.

상기에 기술한 분진재순환 및 제진장치의 성능에 대한 검증 및 평가를 위하여, 모의 비방사성폐기물을 이용한 유리화실증시험을 수행하였으며, 이에 대한 세부 준비 및 계획은 아래와 같다.

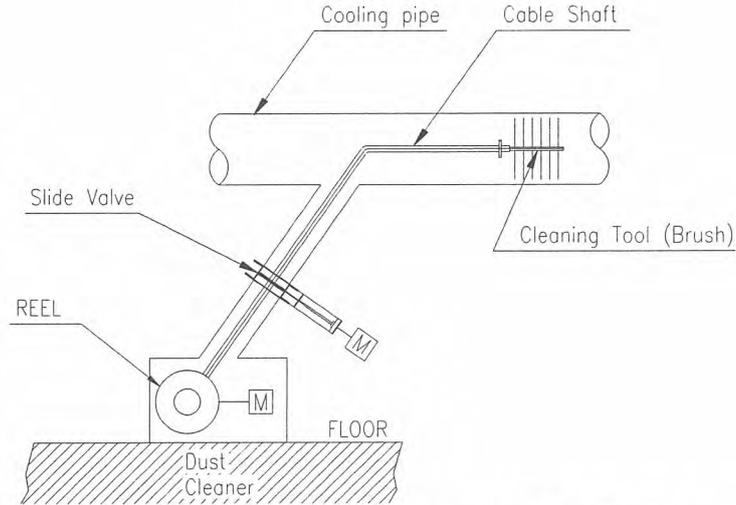


Fig.2. Schematic Diagram of Dust Cleaner and Cooling Pipe

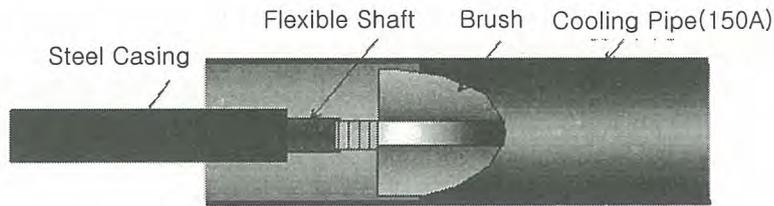


Fig.3. Schematic Representation of Dust Cleaning Process in Pipe

### 3. 시험방법

#### 3.1 폐기물의 준비 및 사용유리의 특성

모의 비방사성폐기물은 W1으로 명명한 폐기물의 조성에 따라 준비하였다. W1은 우리나라 원자력발전소에서 발생하는 저준위 가연성 고체폐기물 중 가장 많은 양을 차지하는 잡고체와 이온교환수지의 혼합폐기물이다. 실제 발생량을 고려, 잡고체와 이온교환수지는 84:16의 비율로 혼합처리되는데, 이들 폐기물은 미리 섞이어 투입되는 것이 아니고 각각의 폐기물저장호퍼로 인입 후 CCM으로 동시 투입된다.

방사성핵종의 거동을 평가하기 위하여 모의 Co 및 Cs를 각각 이온교환수지양의 0.28, 1.27%를 흡착, 투입하였다. 이온교환수지 내 습분함량은 약 55wt%이다. 잡고체는 발전소에서 발생하는 가연성 잡고체 즉, 작업복, 작업화, 양말, 제염지, 비닐시트 등을 평균 5×5mm, 최대 10mm 이하의 크기로 파쇄하여 투입이 용이하도록 전처리한다.

본 시험에 사용한 유리는 붕규산유리(Borosilicate glass)이며, W1 폐기물 내 무기물 조성을 고려하여 개발되었다. 용탕유리의 조절을 위하여 중간에 공급하는 유리조성체(glass frit)도 같은 유리를 사용하였다. 이 유리는 진한 코발트색이고, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Na<sub>2</sub>O 및 SiO<sub>2</sub>를 주성분으로 한다.

#### 3.2 시험조건

본 시험에 대한 주요 운전변수, 조건 및 싸이클 별 계획을 Table 2, 3에 나타내었다.

Table 2. Operating Parameters and Condition

투입율	이온교환수지	3.25kg/hr
	잡고체	16.75kg/hr
	분진 슬러리	6L/hr, 9L/hr(폐기물과 함께 투입)
	유리조성체	1.68kg/hr(폐기물과 함께 투입)
과잉산소율	60%	
용탕온도	1,150±30℃(용탕의 중간 높이)	
시료채취	잔여물 연소단계(End Of Combustion : EOC) 중 용융유리 시료	
	분진시료	

Table 3. Test Plan by Cycle

사이클	소요시간	내용 요약	시료채취
용탕형성	1hour	초기 장전유리의 용융을 위한 Ti링 점화 및 용탕형성	-
1	3.5hours	3시간 폐기물 투입, 이후 30분간 대기(폐기물 투입 중지, 분진슬러리 제조 및 이송)	-HTF 분진채취
2	4 hours	3시간 폐기물 투입, 이후 1시간 EOC(폐기물 및 슬러리 투입 중지, 분진슬러리 제조 및 이송, 용탕 균질화 혼합 및 용융유리 배출)	-HTF 분진채취 -CCM 용융유리 채취
3	3.5 hours	3시간 폐기물 투입, 이후 30분간 대기(폐기물 투입 중지, 분진슬러리 제조 및 이송)	-HTF 분진채취
4	4 hours	3시간 폐기물 투입, 이후 1시간 EOC(폐기물 및 슬러리 투입 중지, 분진슬러리 제조 및 이송, 용탕 균질화 혼합 및 용융유리 배출)	-HTF 분진채취 -CCM 용융유리 채취
5	3.5 hours	3시간 폐기물 투입, 이후 30분간 대기(폐기물 투입 중지, 분진슬러리 제조 및 이송)	-HTF 분진채취
6	4 hours	3시간 폐기물 투입, 이후 1시간 EOC(폐기물 및 슬러리 투입 중지, 분진슬러리 제조 및 이송, 용탕 균질화 혼합 및 용융유리 배출)	-HTF 분진채취 -CCM 용융유리 채취
7	3.5 hours	3시간 폐기물 투입, 이후 30분간 대기(폐기물 투입 중지, 분진슬러리 제조 및 이송)	-HTF 분진채취
8	4 hours	3시간 폐기물 투입, 이후 1시간 EOC(폐기물 및 슬러리 투입 중지, 분진슬러리 제조 및 이송, 용탕 균질화 혼합 및 용융유리 배출)/ 시험종료 전 제진장치 가동	-HTF 분진채취 -CCM 용융유리 채취

전체적으로 유리화처리 과정은 총 8개의 사이클로 이루어지는데, 이중 1,3,5,7사이클은 각각 3.5시간으로 이는 3시간 폐기물 투입 및 처리, 0.5시간 분진슬러리 제조 및 분진시료 채취로 구성된다. 짝수 번째 사이클인 2,4,6,8사이클은 각각 4시간으로 이는 3시간 폐기물 투입 및 처리, 1시간 EOC로 구성된다. EOC(End Of Combustion) 즉, 잔여물연소단계는 폐기물 투입 및 처리를 일시적으로 중단한 후, 잔여 폐기물을 완전히 연소 및 용융시키며 공기에 의한 버블링(bubbling)에 의하여 용탕 내 유리를 균질하게 한 뒤, 용융유리 일부를 배출함으로써 용탕의 높이를 조절하는 기간이다. 제진장치에 대해서는 8사이클까지 종료한 후, 가동하여 냉각파이프 제진에 대한 성능을 점검하였다.

#### 4. 결과 및 고찰

##### 4.1 분진재순환장치

가. 설비운전 및 건전성과 분진발생량 및 슬러리 처리농도

시험계획에 따라 총 78kg의 이온교환수지와 402kg의 잡고체가 144litter의 분진슬러리와 함께 CCM으로 투입, 처리되었다. 슬러리의 제조, 이송 및 투입성능 측면에서 운전상의 문제점 즉, 슬러리 제조 곤란 또는 배관막힘 등은 없었다. 분진을 균질한 슬러리로 제조 및 저장호퍼로의 이송에 소요된 시간은 약 20분이었다. 슬러리는 설정한 투입율에 따라 일정하게 투입되었으며, 운전시간 및 순서에 따라 쉽게 자동운전이 가능함을 확인할 수 있었다.

운전기간 동안 HTF 하단에서의 분진발생량은 총 7.766kg이었으며 발생비율(폐기물 투입량 대비)은 사이클 별로 0.79-2.27wt%의 범위를 나타내었고, 평균 사이클 별 발생비율은 1.62wt% (0.97kg에 해당)였다[4]. 전체적으로 분진발생량은 사이클이 거듭되면서 점차 증가하는 경향을 보였다. 이는 폐기물 투입율 및 연소조건, HTF 탈진 조건의 상이, 분진 수거시 조건 등에 따라 분진수거량이 변동될 수 있었으나, 기본적으로 DRS의 가동이 HTF 하단부에서의 분진발생량 증가에 영향을 주는 것으로 판단되었다. DRS 가동에 따른 분진발생량의 증가정도와 포화되는 시간을 평가하기 위해서는 보다 장기간의 실증시험이 필요할 것으로 사료된다.

설계개념상 DRS는 상기와 같이 분진의 발생량에 관계없이 70wt%이상의 슬러리를 제조할 수 있으며, 금번 시험에서 제조 및 투입한 슬러리의 농도는 93-97wt% 범위를 나타내었다. 슬러리의 평균 농도는 94.7wt%로 취급되었으며, 이 정도의 농도에서는 배관 내 슬러지의 침적이 없이 깨끗한 상태로 운전이 수행되었다.

나. 슬러리투입에 따른 기 관련 설비 영향 및 운전모드

DRS의 기본 운전모드는 폐기물과 슬러리를 투입시간 동안 연속으로 함께 투입하는 것이다. 운전모드의 적절성을 파악하기 위하여, 다른 사이클과 달리 3사이클에서는 1시간 동안 폐기물만 투입한 후 약 2시간 동안 폐기물과 함께 9L/hr의 슬러리를 투입, 운전하였다. 아래 Fig.4에는 3사이클에서 슬러리 투입시와 미투입시의 CCM 주요 운전변수의 변동을 나타내었다.

유리용탕을 적절하게 제어하기 위한 CCM의 주요 운전변수는 출력(Power:kW), 전압(Voltage:V), 전류(Current:A), 주파수(Frequency:kHz)이다. 상기의 결과를 보면, 9L/hr로 슬러리 투입을 추가 할 경우 출력은 145kW에서 150-160kW로 증가하였으며, 155kW 부근에서 안정화되었다. 전압은 315V에서 320V로, 전류는 565A에서 595-600A로 각각 증가하였다. 주파수의 경우에는 258-272kHz의 범위에서 일정하게 유지함을 볼 수 있었다.

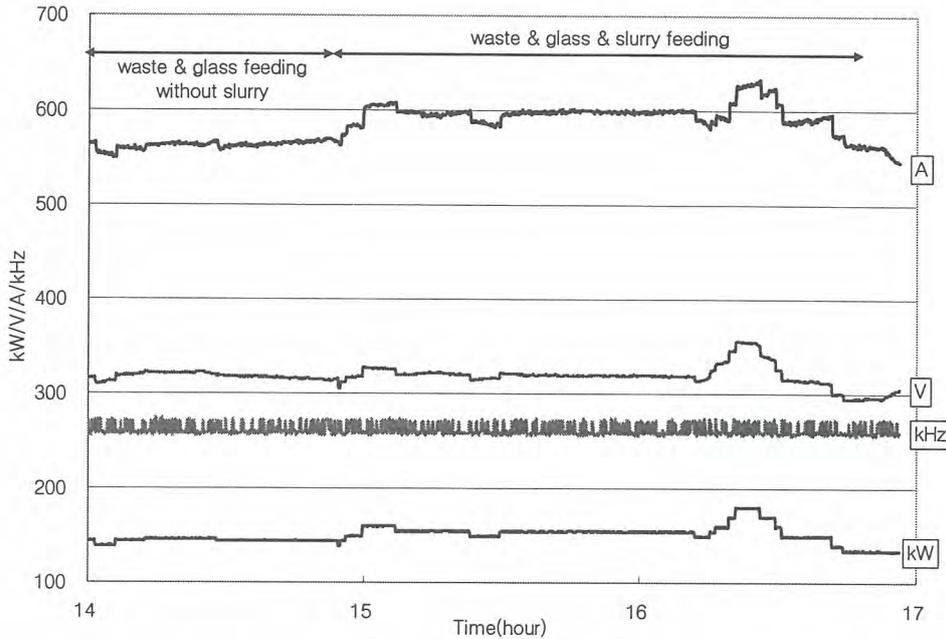


Fig.4. Change of CCM Operating Variables according to Slurry Feeding for 3cycle

시험 전 예비계산에서 슬러리 10L/hr 투입시 CCM의 출력증가량은 9.99kW로 예상되었는데, 비슷한 범위 내에서 증가하였다. 그래프에서 16-17시 사이에서 출력, 전압 등의 수치가 증가하였다가 감소하는데, 이는 불규칙한 폐기물 투입 등으로 인한 것으로 슬러리 투입율과는 관계가 없다. 또한 이 기간동안 배기체 내의 수분량을 측정하였는데, 약 26-27.5%의 범위에서 측정되었으며 슬러리의 투입에 거의 영향을 받지 않음을 알 수 있었다.

상기의 결과를 통하여 W1폐기물 20kg/hr과 슬러리 9L/hr를 함께 투입하여도, 기존 용융로의 성능에 거의 영향을 주지 않으면서 유리화 처리가 가능함을 확인하였다.

이와 함께 유리화설비의 overhaul 등을 대비하여 슬러리 단독으로 처리하여야 할 경우를 고려하기 위하여, 8싸이클 종료 후 EOC 기간에 폐기물없이 슬러리만 투입, 처리하였다. 이 결과, 슬러리 투입율을 15L/hr에서 20L/hr로 증가시키면 따라 출력을 190에서 200kW로 상승조정하였으며, 다시 15L/hr로 감소하자 점차 로내 상태가 안정되면서 195kW로 조정하였다. 출력의 조정에 따라 전류와 전압이 함께 상승하였으며, 주파수는 257-273kHz의 범위 내에서 일정하게 유지되었다. 전체적인 상황을 통하여, 슬러리 단독투입모드에서는 15L/hr 이하로 투입시 안정되게 운전할 수 있음을 확인하였다.

다. 시료분석결과에 따른 분진재순환장치의 효과

금번 시험 중 총 5회의 유리시료가 채취되었으며, 이 중 4, 6, 8싸이클 후 채취한 유리시료에 대하여 모의핵종(Co, Cs) 및 주요 유리구성성분(B, Li, Na, Si)에 대하여 분석하였다. Co, Cs은 ICP-MS로, 나머지 성분은 ICP-AES로 분석하였다. Table 4에는 이들 모의핵종과 주요 유리구성성분의 함에 대한 각 성분의 분율을 나타내었다.

Table 4. The Analysis Results on the Glass Samples of Even Cycles(4, 6, 8Cycle)

성분	GLA-04(ppm)	분율(%)	GLA-06(ppm)	분율(%)	GLA-08(ppm)	분율(%)
Co	3,442.9	1.00	3,615.2	1.11	3,708.7	1.14
B	27,622.7	7.99	25,047.1	7.72	23,039.2	7.07
Li	4,766.7	1.38	4,144.9	1.28	2,876.9	0.88
Na	152,817.6	44.22	137,348.0	42.31	137,729.1	42.27
Si	156,195.6	45.20	153,780.0	47.38	157,401.3	48.31
Cs	731.4	0.21	664.7	0.20	1,060.2	0.33
계	345,576.9	100.00	324,599.9	100.00	325,815.4	100.00

전체적으로 각 채취시료의 구성성분이 일정하게 유지됨을 알 수 있었다. Co, Cs은 각각 1-1.14%, 0.2-0.33%의 분율로 일정하게 유지되었다. Si의 경우에는 45.2-48.31%, Na는 42.27-44.22%, B는 7.07-7.99%, Li는 0.88-1.38%의 구성성분비를 나타내었다. 이렇게 일정하게 유리용탕 성분을 유지 하면서 운전하게 되면, 전체적으로 운전상황을 예측가능하고 또한 유리배출도 용이하다. 일정한 성분비율로 매 싸이클을 운전해 나갈 수 있는 데에는 DRS의 영향이 큰 것으로 사료되며, 실제로 기 시험에 비하여 별도의 첨가제 없이도 유리배출이 매우 용이하게 진행되었다. 상기의 결과로부터 분진 내의 모의핵종 및 주요 유리성분을 다시 CCM으로 재순환 처리하는 DRS가 유리용탕의 성분을 일정하게 유지하고 또한 유리배출을 용이하게 하는 데 기여함을 확인하였다.

분진의 경우 총 8회의 시료가 채취되었으며, 시료 내의 성분 중 Co, Cs 성분의 거동에 초점을 맞추어 결과를 분석하였다. Cs의 분진 내 농도는 전체적으로 점차 증가하는 경향을 보였다. 이는 Cs의 경우 반휘발성(Semi-volatile)핵종으로써 DRS에 의하여 CCM으로의 Cs 투입량이 증가했기 때문에, 휘발되는 양도 증가하는 것으로 사료되었다. DRS에 의한 분진 내 Cs량이 포화되는 양을 확인하기 위해서는 보다 장기간의 시험수행이 필요할 것으로 판단된다.

반면 Co의 경우는 일정한 경향을 보이지 않았으며, 싸이클 별로 농도값이 증감을 반복하였다. 이는 비휘발성(Non-volatile)인 Co의 경우도 DRS에 의하여 Co 투입량이 늘어났지만, 분진 내 Co 잔량은 용융로 내 연소조건이나 버블러 효과 등에 의하여 주로 영향을 받는 것으로 사료되었다.

상기의 결과를 통하여 Cs의 경우, DRS의 가동에 따라 확연히 분진 내 함량이 증가한 것을 확인하였으며, Cs 함량의 포화주기 확인은 보다 장기간의 시험이 필요한 것을 알 수 있었다.

#### 4.2 제진장치

본 시험의 싸이클 운전이 종료된 직후, 냉각파이프 내의 침적분진을 효과적으로 제거하기 위한 제진장치의 검증시험을 수행하였다. 제진거리는 사전에 CCM 전단(3,750mm)까지 조정하였다. 본 시험에서 사용한 제진용 브러쉬의 사양 및 재질은 아래와 같다.

- 지름 152mm, 길이 130mm, 원통형
- 재질 SUS304, 가는모

제진장치는 EOC 기간에 작동하며, 이때의 CCM 출구 배기체 온도는 약 280℃ 전후였다. 제진장치를 가동하였을 때의 부압상태를 아래 Fig.5에 나타내었다.

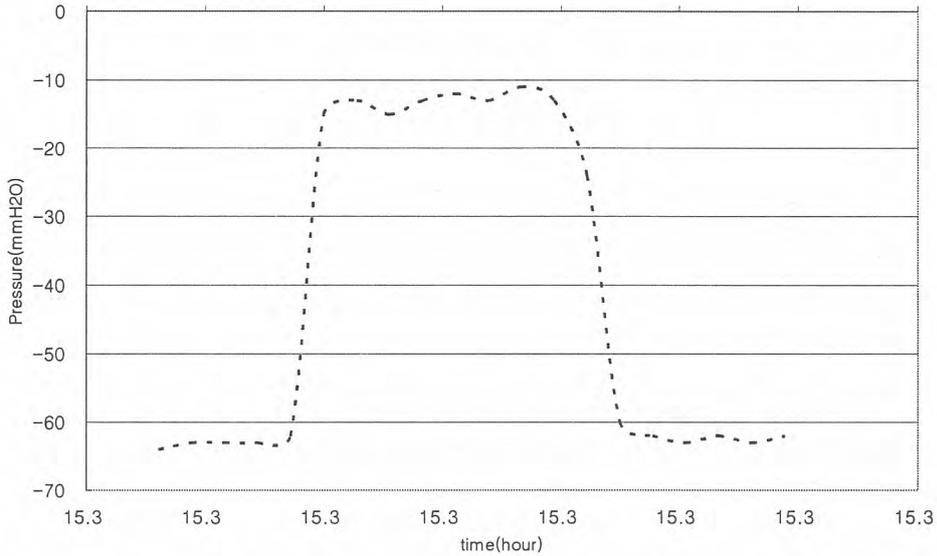


Fig.5. Change of Negative Pressure due to Dust Cleaning in Pipe

상기의 그래프에서 제진장치의 작동시간 동안 즉, 90여 초 정도간 냉각파이프 내의 부압에 영향이 있었다. 이 시간 동안 부압은 -62mmH<sub>2</sub>O에서 -11mmH<sub>2</sub>O까지 상승함을 알 수 있었다. ΔP는 약 50mmH<sub>2</sub>O이었으며 제진장치가 폐기물 투입이 없는 EOC 기간에 작동됨을 고려할 때, 배기팬의 흡인량을 조절함으로써 부압상태를 유지할 수 있을 것으로 판단되었다.

시험종료 후 CCM 쪽에서 관찰한 냉각파이프 내 제진상태를 아래 Fig.6에 나타내었다.

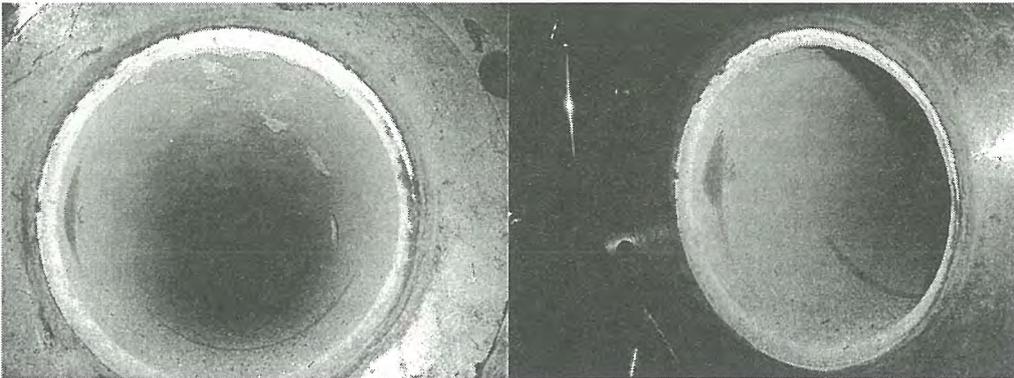


Fig.6. Interior Status of Cooling Pipe after Dust Cleaning

상기의 그림을 통하여 제진장치에 의하여 냉각파이프 내부의 분진층이 매우 깨끗하게 제거된 것을 확인할 수 있었다. 그러나 본 제진장치를 적용할 경우, 냉각파이프 상에 샘플링포트나 써모커플 등의 분기라인은 설치하지 않도록 고려할 필요가 있다.

## 5. 결론

- 유리화 공정 중 HTF에서 발생하는 분진의 처리는 유리화설비의 감용비와 분진의 안전한 취급 측면에서 중요하다. 분진을 효과적으로 처리하기 위하여 개발한 DRS의 개념은 발생

분진을 수거, 물과 섞어 슬러리형태로 제조, 이송한 후 CCM 내로 다시 투입, 처리하는 것으로써, 이에 대한 실증장치를 설치한 후 성능을 평가하였다.

- 발생분진에 대하여 총 8회의 슬러리 제조, 이송 및 투입을 수행하는 동안 슬러리 제조, 이송 및 투입성능 측면에서 운전상의 문제점이 없었으며, 제조 및 이송에 소요된 시간은 약 20분이었다.
- 슬러리의 평균농도는 94.7wt%로 취급되었으며, 이 정도의 농도에서는 배관 내 슬러지의 침적이 없이 깨끗한 상태로 운전이 수행되었다.
- W1 폐기물 20kg/hr과 슬러리 9L/hr를 함께 투입하여도, 기존 용융로의 성능에 거의 영향을 주지 않으면서 유리화 처리가 가능함을 확인하였다. 또한 슬러리 단독투입조건에서는 15L/hr 이하로 투입시 안정되게 운전할 수 있음을 확인하였다.
- 분진 내의 모의핵종 및 주요 유리성분을 다시 CCM으로 재순환처리하는 DRS가 유리용탕의 성분을 일정하게 유지하고, 또한 유리배출을 용이하게 하는데 기여함을 확인하였다. 또한 반휘발성 핵종인 Cs의 경우, DRS의 가동에 따라 분진 내 함량이 싸이클 진행에 따라 증가함을 확인하였다.
- 제진장치의 작동시간 동안 즉, 90여 초 정도간 냉각파이프 내의 부압에 영향이 있었다. 이 시간 동안 부압은 -62mmH<sub>2</sub>O에서 -11mmH<sub>2</sub>O까지 상승함을 알 수 있었다. ΔP는 약 50mmH<sub>2</sub>O이었으며 제진장치가 폐기물 투입이 없는 EOC 기간에 작동됨을 고려할 때, 배기팬의 흡인량을 조절함으로써 부압상태를 유지할 수 있을 것으로 판단되었다.
- 제진시험을 통하여 제진장치에 의하여 냉각파이프 내부의 분진층이 매우 깨끗하게 제거된 것을 확인할 수 있었다. 그러나 본 제진장치를 적용할 경우, 냉각파이프 상에 샘플링포트나 써모커플 등의 분기라인은 설치하지 않도록 고려할 필요가 있다.

#### 감사의 글

본 연구는 산업자원부에서 지원하는 전력산업연구개발사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

#### 참고문헌

1. S.W.Shin, Y.H.You, P.Brunelot, T.Flament, A.Prodhomme, P.Brun, "The Cold Crucible Vitrification Pilot Plant:A Key Facility for the Incineration/Vitrification of Waste Produced in the Korean Nuclear Power Plants", Proceedings of the 2002 International Conference on Incineration and Thermal Treatment Technologies, New Orleans, Louisiana, 2002
2. 최중서, 지민기, 임형남, 유영환, 최관식, 김천우, 이경호, 박병철, 황태원, "모의 봉산폐액 건조물의 유리화시 온도 및 유량 변화에 따른 Cs 휘발도 비교", 한국원자력학회 춘계학술발표회 논문집, 2001
3. Cheon-Woo Kim, Sung-Jun Maeng, Jong-Kil Park, Sang-Woon Shin, Myung-Jae Song, P.Brunelot, T.Flament, JongSeo Choi, Young Hwan You, "Vitrification of LILW Using a Cold Crucible Melter", Korean Nuclear Industry Annual Forum, Seoul, 2002
4. JongSeo Choi, Young Hwan You, Seung Chul Park, Byoung Chul Park, Tae Won Hwang, Sang Woon Shin, "Performance Assessment for the Dust Recycling System during Vitrification of Simulated non-Radioactive Waste", Proceedings of the 2005 International Conference on Incineration and Thermal Treatment Technologies, Texas, 2005

## Selective Separation of $^{59/63}\text{Ni}$ from Radioactive Wastes 방사성 폐기물 내 $^{59/63}\text{Ni}$ 의 선택적 분리

Chang-Heon Lee, Kie-Chul Jung\*, Kwang-Soon Choi,  
Kwang-Yong Jee and Won-Ho Kim

[nchleel@kaeri.re.kr](mailto:nchleel@kaeri.re.kr)

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin dong, Yusung-ku, Daejeon

\*Atomic Creative Technology Co., Ltd, 1688-5 Sinil dong, Daedeok-gu, Daejeon

이창현, 정기철\*, 최광순, 지광용, 김원호

한국원자력연구소, 대전광역시, 유성구 덕진동 150 번지

\*(주) ACT, 대전광역시, 대덕구 신일동 1688-5 번지

### 요 약

방사성 폐기물의 핵종 재고량 평가에 필요한 정량분석을 위하여 다양한 매질의 방사성 폐기물 시료로부터  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{94}\text{Nb}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  및  $^{59}\text{Ni}$ ( $^{63}\text{Ni}$ )의 선택적 분리에 관한 연구가 수행되고 있다. 방사성 폐기물 용해용액의 화학조성을 모사하여 만든 모의 방사성 폐기물 용해용액을 사용하여 음이온교환수지법과 Sr-Spec 추출 크로마토그래피로 Re ( $^{99}\text{Tc}$  대용원소), Nb, Fe 및 Sr을 분리해 낸 후 Ni과 함께 회수되는 Ce, Ca, Mg, Al, Cr, Ti, Mn 및 Cu와 Ni의 분리 거동을 Ni-Spec 추출크로마토그래피와 양이온교환수지법으로 조사하였다. 공존원소들로부터 Ni의 선택적 분리와 기체비례계수법에 의한 방사능 측정에 적합한 radionuclide source를 만들기 위하여 공존원소들에 대한 가리움제로 ammonium citrate 및 tartaric acid를 사용하는 dimethylglyoxime 침전법의 적용에 관하여 기술하였다.

### Abstract

A study on the selective separation of  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{94}\text{Nb}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{59}\text{Ni}$ ( $^{63}\text{Ni}$ ) from various radioactive wastes discharged from the nuclear power plants in Korea is being performed for use in their quantifications which are indispensable for the evaluation of the radionuclide inventory. Separation behaviour of Ce, Ca, Mg, Al, Cr, Ti, Mn and Cu recovered along with Ni during the separation of Re (as a surrogate of  $^{99}\text{Tc}$ ), Nb, Fe and Sr by anion exchange and Sr-Spec extraction chromatography was investigated by cation exchange and Ni-Spec extraction chromatography using synthetic radioactive waste dissolved solutions containing matrix elements such as Re, Nb, Fe, Sr, Ni, B, Na, K, Ce, Co, Ca, Mg, Al, Zn, Cr, Pb, Cd, Mo, Mn, Cu, Zr, Ti and U. To purify the Ni fraction recovered and prepare a radionuclide source available for gas proportional counting, an application of the Ni precipitation procedure with dimethylglyoxime in the medium of ammonium citrate and tartaric acid solutions as a masking agent for co-existing metal ions was described in detail.

## 1. 서론

국내의 원자력발전소에서 발생하는 중·저준위 방사성 폐기물을 효율적으로 관리하기 위하여 방사성 폐기물의 핵종 재고량을 정확하게 평가할 필요가 있다. 이를 위하여  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{59}\text{Ni}$  ( $^{63}\text{Ni}$ ),  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{94}\text{Nb}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  ( $^{137}\text{Cs}$ ),  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  ( $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ),  $^{241}\text{Am}$  및  $^{244}\text{Cm}$  ( $^{242}\text{Cm}$ )을 규제핵종으로 정하고 방사성 폐기물의 핵종 분석용 척도인자와 주기적 검증기술 개발에 관한 연구가 한국원자력연구소에서 수행되고 있다.

척도인자는 비파괴 분석이 불가능한 알파선과 베타선 방출 핵종으로 구성되어 있으며  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{59}\text{Ni}$  ( $^{63}\text{Ni}$ ),  $^{90}\text{Sr}$  및  $^{94}\text{Nb}$ 은 핵연료 조사과정에서 생성되는 핵분열생성물과 재료물질로부터 생성되는 방사화 물질로서 낮은 에너지의 X-선과 베타선을 방출하므로 정량분석을 위해서는 공존하는 핵종들뿐만 아니라 방사성 폐기물의 매질원소로 예상되는 Na, K, Li, Cs, Ca, Mg, Al, Zn, Cr, Pb, Co, Cd, Mo, Mn, Cu, Ti, Zr 및 U으로부터의 개별분리와 정제가 요구된다.

핵연료주기연구 분야에서 금속이온의 화학적 분리에 폭 넓게 적용되는 방법은 이온교환수지법<sup>1-2</sup> 및 유기용매추출법<sup>3-5</sup> 등이며, 유기용매추출법의 선택적 분리특성과 이온 크로마토그래피의 다단계 분리특성을 보여주는 추출 크로마토그래피가 방사성 폐액의 발생량이 작고 분리과정이 단순한 특징을 갖고 있기 때문에 핵종의 선택적 분리에 폭 넓게 적용되고 있다<sup>6</sup>. 또한 분리과정이 번거롭고 방사성 폐액의 배출량이 비교적 많은 침전법은 핵종의 분리, 정제뿐만 아니라 기체비례계수법으로 방사능을 측정하기 위해 필요한 radionuclide source를 만들기 위하여 이온 또는 추출 크로마토그래피와 함께 폭 넓게 적용되고 있다.

본 연구에서는 분리 대상의 금속이온 중 비교적 분리 선택성이 작은 Ni을 Re Nb, Fe 및 Sr으로부터 분리한 후 Ni과 함께 분리되는 Na, K, Mn, Ca, Mg, Ti, Al, Cr 및 Ce으로부터 Ni을 선택적으로 분리, 회수하기 위하여 양이온교환수지법<sup>7</sup>과 dimethylglyoxime을 다공성수지에 침윤시킨 Ni-Spec 추출 크로마토그래피<sup>8</sup>에 의한 분리거동을 비교하였다. 최종적으로 ammonium citrate/H<sub>2</sub>O 및 tartaric acid/acetone 매질에서 dimethylglyoxime에 의한 Ni 침전 거동을 비교하였으며 최적화된 분리조건에서 회수율을 측정하고 신뢰도를 평가하였다.

## 2. 실험

### 2.1. 기기 및 장치

분리관을 통과하기 전후 금속이온의 농도를 측정하기 위하여 여러 원소들을 동시에 분석할 수 있는 Jobin Yvon사 (JY 50P, France)의 유도 결합 플라즈마 원자방출분광기를 사용하였다.

### 2.2. 시약 및 용액

실험에 사용된 모든 시약은 분석 시약급으로서 정제하지 않았으며, 이차 증류수는 탈염수를 Milli-Q plus Ultra Pure Water System (Millipore)에 통과시킨 것을 사용하였다. 방사성 폐기물 용해용액과 화학조성이 유사한 비방사성 모의 금속이온 용액을 제조하기 위하여 Spex사의 유도 결합 플라즈마 원자방출분광분석용 표준용액을 사용하였다.

### 2.3. 분리관 준비

실험에 사용된 분리관은 폴리프로필렌 재질의 일회용 주사기 (1 mL, NSC사, Germany)로서 폴리에틸렌 재질의 필터 (Alltech, U.S.A.)를 끼워 제작하였다. 양이온교환수지는 Bio Rad사의 AG 50WX8 (100~200 mesh)을 사용하였으며 분리시간을 단축시키고 방사성 폐액의 발생을 줄이기 위하여 분리관의 수지 충전부피를 1 mL로 조절하였다. 추출 크로마토그래피

용 수지는 Eichrom사의 Ni Spec.을 사용하였으며 100~150  $\mu\text{m}$ 의 것을 350 mg 취하여 분리관을 준비하였다.

#### 2.4. Ni-Spec 추출 크로마토그래피에 의한 Ni의 분리거동

Ni 100  $\mu\text{g}$  그리고 Ca, Mg, Al, Cr, Mn, Cu 및 Ti이 각각 10  $\mu\text{g}$ 씩 함유되어 있는 ammonium citrate 매질의 모의 금속이온용액 7.5 mL (pH 9)를 Ni-Spec 분리관에 넣고 Ni의 분리에 적합한 용리액을 통과시키면서 2 mL씩 분액분취한 다음 유도 결합 플라즈마 원자방출분광기로 분석하여 용출된 금속이온의 양을 결정하였다.

#### 2.5. 양이온교환수지법에 의한 Ni의 분리거동

Ni 100  $\mu\text{g}$  그리고 Ca, Mg, Al, Cr, Mn, Cu 및 Ti이 각각 10  $\mu\text{g}$ 씩 함유되어 있는 80% acetone/0.6 M HCl 또는 60% acetic acid/0.6 M HCl 매질의 모의 금속이온용액 10 mL를 양이온교환수지 분리관에 넣고 시료용액과 매질이 같은 용리액을 통과시키면서 2 mL씩 분액분취한 다음 유도 결합 플라즈마 원자방출분광기로 분석하여 용출된 금속이온의 양을 결정하였다.

#### 2.6. Dimethylglyoxime에 의한 Ni의 침전

##### 2.6.1. Ammonium citrate/H<sub>2</sub>O 매질에서의 침전<sup>9</sup>

양이온교환수지 분리관을 통과한 Ni 회수용액 (10 M HCl 10 mL)을 증발건조한 후 1 M HCl 2 mL로 용해시키고 50 mL 용량의 원심분리관으로 옮긴 다음 증류수 3 mL로 씻어 넣는다. Ni 운반자 용액 (1,000  $\mu\text{g}/\text{mL}$ ) 2 mL 그리고 Fe 운반자 용액 (1,000  $\mu\text{g}/\text{mL}$ ) 5 방울을 넣은 다음 물증탕에서 5 분 가열한 후 0.5 mL의 진한 암모니아수를 서서히 넣어 Fe과 공존원소들을 공전시킨다. 원심분리하고 상등액을 다른 50 mL 용량의 원심분리관으로 옮긴 다음 3 mL의 0.5 M ammonium citrate를 가한 후 70~80 °C의 물증탕에 넣는다. 5 mL의 0.125 M dimethylglyoxime/ethanol을 서서히 넣고 침전물이 생성될 때까지 흔들어진 다음 물증탕에서 20 분간 가열시켜 Ni(DMG)<sub>2</sub>의 붉은색 침전물이 생성되도록 한다. 실온까지 약 1 시간 방치한 후 원심분리하여 상등액은 버리고 침전물을 10 mL의 세척용액(3 mL 0.5 M ammonium citrate + 5 mL 증류수 + 2 mL 에탄올)으로 씻은 다음 원심분리한다. 침전물을 20 mL의 차가운 증류수로 중성이 될 때까지 씻은 후 다시 원심분리한다. 소량의 에탄올을 사용하여 침전물을 무게를 알고 있는 계측용 stainless steel planchet으로 옮긴 다음 110 °C에서 45~50 분간 건조시킨 후 무게를 측정한다.

##### 2.6.2. Tartaric acid/acetone 매질에서의 침전<sup>10</sup>

양이온교환수지 분리관을 통과한 Ni 회수용액 (10 M HCl 10 mL)을 증발건조한 후 1 M HCl 2 mL로 용해시키고 50 mL 용량의 원심분리관으로 옮긴 다음 증류수 3 mL로 씻어 넣는다. Ni 운반자 용액을 0.2 mL (2 mg)와 acetone 13 mL, tartaric acid 용액(250 mg/mL) 3 mL를 넣고 필요에 따라 증류수를 1~3 mL정도 추가한다. 용액의 색이 옅은 청색으로 변하고 약간의 암모니아 냄새가 날 때까지 (pH 9) 진한 암모니아수를 넣는다. 이어서 65 °C에서 약 2 분간 증탕하고 1% dimethylglyoxime/95% ethanol을 저어주면서 5 mL를 서서히 넣는다. 65 °C에서 2 시간 증탕하고 냉각시킨 다음 원심분리한다 (여액의 pH는 8.1~8.4 부근을 유지). 20 mL의 세척액 (52% acetone)으로 3번 씻어준 다음 150 °C에서 1 시간 건조시키고 무게를 측정한다.

### 3. 결과 및 토의

#### 3.1. Ni-Spec 추출 크로마토그래피에 의한 Ni의 분리

Fig. 1에 나타낸 분리절차에 따라 Re, Nb, Fe 및 Sr을 분리한 후 남아있는 용액에는 Ni 뿐만 아니라 Na, K, Cs, Li, Ce, Mn, Ca, Mg, Al, Ti, Cu 및 Cr이 함유되어 있다. 따라서 pH 8~9 범위에서 Ni과 매우 안정한 킬레이트를 형성하는 dimethylglyoxime을 다공성수지에 침윤시킨 Ni-Spec 추출 크로마토그래피 분리관에서 Ni을 분리거동을 조사하였다. Fig. 2에 나타낸바와 같이 ammonium citrate 매질에서 (pH 9) Ce, Mn, Ca, Mg, Al, Cr 및 Ti을 제거한 후 3 M HNO<sub>3</sub>으로 Ni을 분리, 회수 할 수 있었으나 Cu가 Ni과 같은 분리거동을 보이고 있어서 Ni의 선택적 분리가 불가능하였다. 따라서 시료 내 Cu의 함량이 분리관의 흡착용량 (약 400~450 µg/350 mg Ni-Spec resin)보다 클 경우에는 Ni의 분리에는 적용하기 어려웠다.

#### 3.2. 양이온교환수지법에 의한 Ni의 분리

Ni은 HCl 매질에서 Ni<sup>2+</sup> 또는 NiCl<sup>+</sup> 착이온을 형성하여 음이온교환수지에 흡착되지 않으므로 음의 염화 착이온을 형성하지 않는 공존원소들과의 분리가 불가능하다. 또한 HCl의 농도가 증가할 수록 양이온교환수지에 대한 Ni의 흡착계수가 작아지며 Co와 Cu 등과 같은 2가 양이온들과의 흡착거동이 같아서 Ni의 선택적인 분리, 회수가 어렵다. 그러나 acetone과 HCl 또는 acetic acid와 HCl과 같은 매질에서 Ni은 Ni<sup>2+</sup> 또는 NiCl<sup>+</sup>과 같은 양의 착이온을 형성하여 양이온교환수지에 세계 흡착되기 때문에 음의 착이온을 형성하는 Cu, Co, Fe(III), U, Mo, Mn, Cd, Hg 및 Pb 등으로부터의 분리가 가능하다<sup>7</sup>.

음이온교환수지와 Sr-spec 추출 크로마토그래피 분리관에서 Re, Nb, Fe 및 Sr을 순차적으로 분리한 후 Ni과 함께 분리, 회수되는 Cu, Ca, Mg, Al, Mn, Cr Ce 및 Ti의 분리거동을 양이온교환수지 분리관에서 80% acetone/0.6 M HCl 용리액을 사용하여 조사한 결과를 살펴보면 Fig. 3에 나타낸바와 같이 Cu와 Cr은 80% acetone/0.6 M HCl 매질의 시료용액 10 mL와 80% acetone/0.6 M HCl 용리액 30 mL를 통과시키는 동안 충분히 제거되었으며 Ni은 Ca, Mg, Al, Mn, Ce 및 Ti과 함께 10 M HCl 10 mL로 분리, 회수되었다.

한편, Ni 분리과정의 전단계인 Sr 분리과정에서 회수한 용리용액에는 폐기물 유형에 따라 Cu, Ca, Mg, Al, Mn, Cr, Ce 및 Ti 외에도 Na과 K이 과량 함유되어 있는 경우가 있다. 또한 80% acetone/0.6 M HCl 매질에서 Na과 K도 양이온교환수지의 대한 분배계수가 크므로 Ni의 분리에 미치는 영향을 조사한 결과 Na과 K이 과량 함유되어 있는 방사성 폐기물 시료의 경우 Ni의 분리, 회수율이 감소함을 확인하였다. 따라서 Na, K, Ca 및 Mg이 과량 함유되어 있는 시료의 경우에는 Ca과 Mg을 불산으로 침전시켜 제거한 후 Fig. 4에서와 같이 60% acetic acid/0.6 M HCl 매질의 시료용액 10 mL와 60% acetic acid/0.6 M HCl 용리액 10 mL를 통과시켜 Na과 K를 제거한 다음 80% acetone/0.6 M HCl 20 mL로 Cu와 Cr를 제거하였다. Ni은 Al, Mn, Cr, Ce 및 잔류 Ca, Mg과 함께 10 M HCl 10 mL로 분리, 회수하였다. 따라서 Cu로부터의 Ni 분리는 가능하지만 대부분의 공존원소로부터의 선택적 분리는 불가능하였다.

#### 3.3. Ni 침전법 비교

양이온교환수지 분리관으로부터 회수한 Al, Mn, Cr, Ce, Ti 및 잔류 Ca, Mg으로부터 Ni을 선택적으로 분리하고 또한 방사능 측정에 적합한 radionuclide source를 만들기 위하여 dimethylglyoxime에 의한 Ni 침전법을 선택하였다. 침전과정에서 공존원소들에 대한 가리움제로 ammonium citrate 및 tartaric acid를 사용하여 Ni의 선택적 침전거동을 비교하였다.

Ammonium citrate와 ethanol/H<sub>2</sub>O 매질에서 Ni의 평균 회수율은 79.6% 이었으며 상대표준편차는 2.2% (n=3)로서 비교적 회수 재현성이 작았다. 이것은 Ni(DMG)<sub>2</sub> 침전물의 크기가 너무 작고 원심분리관 기벽에 잘 달라붙어서 방사능 계측용 planchet에 정량적으로 옮기기 어려웠기 때문이다.

Tartaric acid와 acetone/H<sub>2</sub>O 매질에서 Ni(DMG)<sub>2</sub> 침전물의 크기를 증가시킨 J. L. Jones 등<sup>10</sup>의 방법을 사용하여 Ni과 공존원소들의 침전거동을 조사하였다. J. L. Jones 등은 Ni 침전에 미치는 Co, Cu 및 Fe의 영향만 조사하였으므로 본 연구에서는 Al, Mn, Cr, Ce, Ti, Ca 및 Mg의 공침여부도 함께 조사하였다. 이를 위하여 Ni과 공존원소들의 양을 각각 2 mg씩 넣고 생성된 침전물을 질산으로 용해시킨 후 유도 결합 플라즈마 원자방출분광기로 침전물의 성분을 정량한 결과 공존성분들은 Ni과 함께 공침되지 않음을 확인하였다. 또한 Ni(DMG)<sub>2</sub> 침전물의 크기도 육안으로 구별할 수 있을 만큼 커졌다. Ni의 평균 회수율은 Table 1에서와 같이 85.6%이었으며 상대표준편차는 1.4%)로서 비교적 재현성 있는 결과를 얻을 수 있었다.

#### 4. 결론

음이온교환 및 Sr-Spec 추출 크로마토그래피로 Re, Nb, Fe 및 Sr을 순차적으로 분리한 후 회수된 Ni, Ca, Mg, Al, Ti, Cu, Na, K Cr Mn 및 Ce으로부터 Ni을 양이온 크로마토그래피와 tartaric acid/acetone 매질에서 dimethylglyoxime을 사용하는 침전법으로 선택적으로 분리, 회수할 수 있어서 실제 방사성 폐기물 용해용액으로부터 <sup>59</sup>Ni(<sup>63</sup>Ni)의 분리 및 회수에 적용할 수 있었다.

#### 참고문헌

1. E. A. Huff, D. L. Bowers, Appl. Spectrosc. 43, 223 (1989).
2. H. F. Walton, R. D. Rocklin, Ion Exchange in Analytical Chemistry; CRC Press; Boca Raton, FL, (1990).
3. M. A. Floyd, R. W. Morrow, Spectrochim. Acta 38B, 303 (1983).
4. T. J. Sehagiri, Y. Babu, Talanta 31, 773 (1984)
5. R. Ko, Appl. Spectrosc. 38, 909 (1984).
6. T. Braunt, G. Ghersini, Eds.; Extraction chromatography; Elsevier: Amsterdam (1975).
7. J. Korkisch and S. S. Ahluwalia, Talanta, 14, 155 (1967).
8. Nickel 63/58 in water, Eichrom Technologies, Inc. NIW01, Rev. 1.2 (2003).
9. Vogel's text book of quantitative chemical analysis, 5th ED., pp 462-467, Longman Scientific & Technical, New York (1989).
10. J. L. Jones and L. C. Howick, Talanta, 11, 757 (1964).

Table 1. Recovery yield of Ni(DMG)<sub>2</sub> precipitate

Added Ni, mg	Found Ni, mg	Recovery, %	A.V., %	RSD, %
2	1.73	86.4	85.6	1.4
2	1.67	83.3		
2	1.71	85.3		
2	1.71	85.3		
2	1.71	85.3		
2	1.73	86.4		
2	1.69	84.3		
2	1.73	86.4		
2	1.75	87.4		

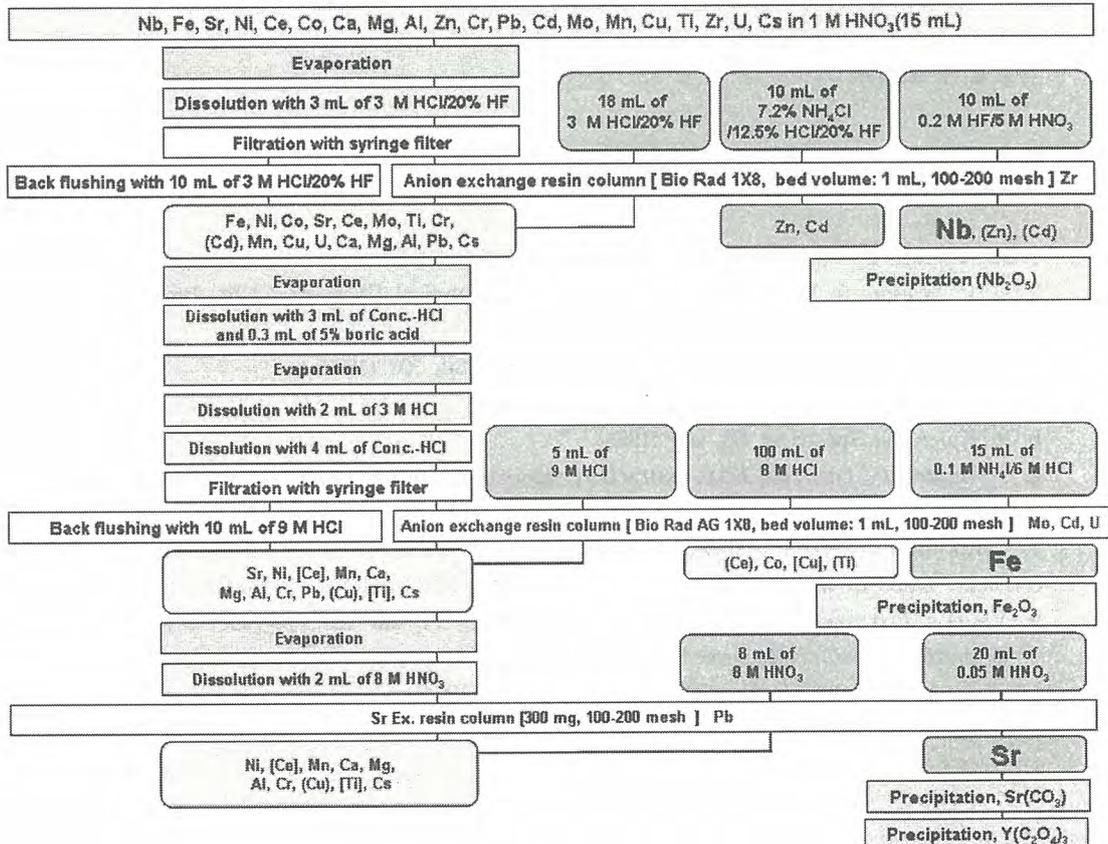


Fig. 1. Separation procedure of Nb, Fe and Sr from radioactive wastes.

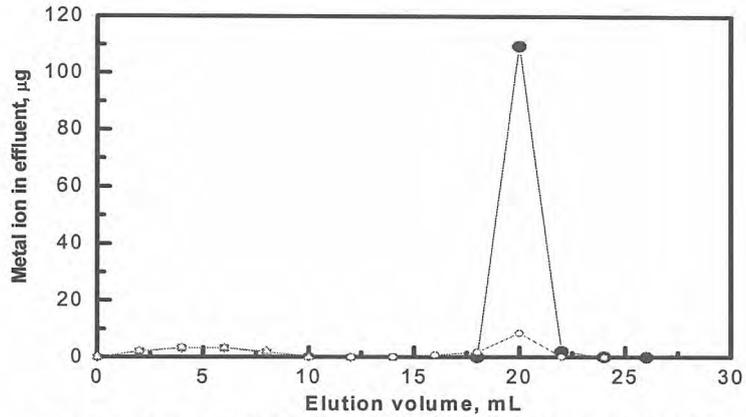


Fig. 2. Sorption behaviour of Ni extraction chromatographic exchanger for Ni and co-existing metal ions. Sample solution; 1 M HCl (2.5 mL), 1 M  $\text{NH}_4$ citrate (1 mL) and 1 M  $\text{NH}_4\text{OH}$  (3.9 mL) : pH 9. Eluent; 0.2 M  $\text{NH}_4$ citrate (10 mL) and 3 M  $\text{HNO}_3$ (10 mL). Column; Weight : 300 mg, I.D.: 5 mm, Bed volume: 0.9 mL, Bed height: 50 mm. —■— Cr, —●— Ni, —▲— Mn, —▼— Mg, —◆— Al, —□— Ca, —○— Cu, —△— Ce.

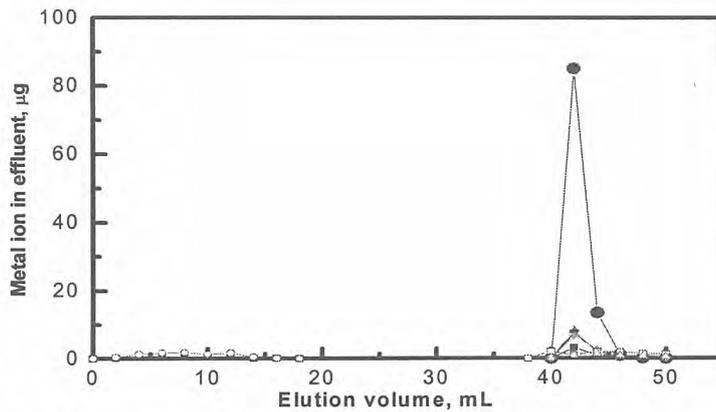
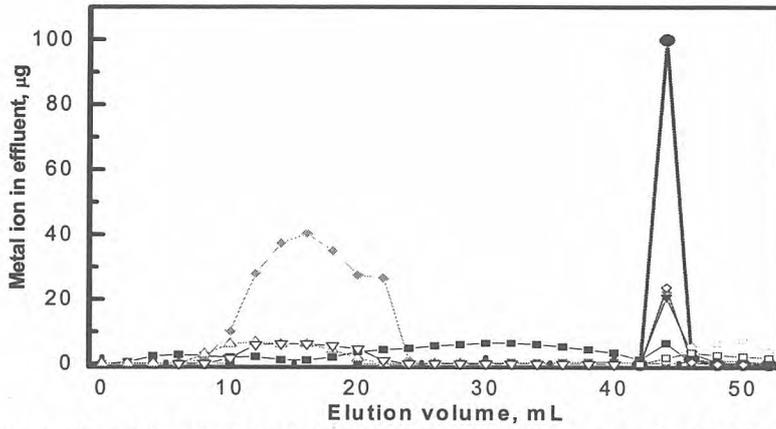


Fig. 3. Sorption behaviour of cation exchange resin for Ni and co-existing metal ions. Sample solution; 80% acetone/20% 3 M HCl and 10 mL. Eluent; 80% acetone/20% 3 M HCl(30 mL), 10 M HCl(10 mL). Cation exchange; Bio Rad AG50WX8, 100-200 mesh. Column; I.D.: 5 mm, Bed volume: 1 mL, Bed height: 55 mm. —■— Cr, —●— Ni, —▲— Mn, —▼— Mg, —◆— Al, —□— Ca, —○— Cu, —△— Ce.



**Fig. 4. Sorption behaviour of cation exchange resin for Ni and co-existing metal ions. Sample solution; 60% acetic acid/0.6 M HCl and 10 mL. Eluent; 60% acetic acid/0.6 M HCl(10 mL), 80% acetone/0.6 M HCl(20 mL), 10 M HCl(10 mL). Cation exchange; Bio Rad AG 50WX8, 100-200 mesh. Column; I.D.: 5 mm, Bed volume: 1 mL, Bed height: 55 mm. —■— Cr, —●— Ni, —▲— Mg, —▼— Al, —●— Cu, —■— Ti, —○— Ca, —△— Na, —▽— K, —◇— Mn, —□— Ce.**

## The Characterization of Spherical Particles in S/G Sludge

### S/G 슬러지 중 구형입자의 특성측정

Hyung-Yeal Pyo, Yang-Soon Park, Sun-Dal Park, Yong-Joon Park and Kyoung-Kyun Park  
Korea Atomic Energy Research Institute, DuckJin-dong 150, Yusung-gu, Daejeon

표형열, 박양순, 박순달, 박용준, 박경균  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

[nhypyo@kaeri.re.kr](mailto:nhypyo@kaeri.re.kr)

#### Abstract

There should not be ion exchange resin particles in S/G sludge. The suspicious spherical resin particles observed in S/G sludge sample were characterized for particle size distribution under optical microscope using the micro-technique, for element analysis by the electron probe micro analysis (EPMA), and for molecular identification by the IR spectroscopy. The particle sizes are distributed from 1 to 200  $\mu\text{m}$  for the sludge, while 40 to 500  $\mu\text{m}$  for the spherical resin particles. The results of the elemental analysis showed different major impurities: Si, Al, Mn, Cr, Ni, Zn and Ti for the sludge particles, while Si, Cu, Zn for the spherical resin particles. However, both particles contain Fe as a matrix of hematite ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ). IR spectrum of the spherical particles was quite different from that of ion exchange resins used in S/G system. These results indicate that the spherical particles are not related to ion exchange resin particles and formed by the process of the sludge formation.

**Key words** : Spherical particles, S/G sludge, characterization, micro-technique

#### 요 약

원자력 발전소의 증기발생기 슬러지 중에서는 이온교환수지가 발견되어서는 안 된다. 증기발생기 슬러지 시료 중에서 발견되어 이온교환수지 입자로 의심되는 구형 입자들의 특성을 측정하였다. 미세조작기술을 이용하여 광학현미경으로 입자 크기 분포를, EPMA로 구형입자의 성분율, 그리고 IR 분광 스펙트럼 비교에 의하여 이온교환수지 여부를 조사하였다. 슬러지의 입자 크기는 1 내지 200  $\mu\text{m}$ 이었으나 구형입자는 40-500  $\mu\text{m}$ 이었으며, 슬러지의 주요 불순원소가 Si, Al, Mn, Cr, Ni, Zn, 그리고 Ti이었으나 구형입자는 Si, Cu, Zn 이었다. 주성분은 두 경우 모두 철이었으며, IR 분광스펙트럼을 S/G 시스템에서 사용하는 이온교환수지의 경우와 비교했을 때 서로 다른 결과를 보였다. 이 결과들은 것은 증기발생기 슬러지 시료 중에서 발견된 구형 입자가 이온교환수지는 아니며 일반적인 슬러지가 생성되는 과정에서 작은 슬러지 입자들이 크게 뭉쳐서 생성된 것임을 나타내고 있다.

**중심 단어** : 발전소 crude 중 구형입자, 특성조사, 미세조작기술

## 서론

원자력 발전소의 증기발생기 시스템에서는 이온교환수지를 사용하여 물을 정화함으로써 시스템에 영향을 미칠 수 있는 부식 등을 억제하고 있다. 그러나 재질 부식 등을 완전히 방지할 수는 없으므로 슬러지가 생성된다. 슬러지의 조성은 증기발생기 시스템 내에서의 화학부식과 같은 화학 반응 이력을 추정할 수 있는 정보를 제공한다. 더욱이 이온교환수지 입자가 슬러지 중에 존재하지 않는 것을 확인해야 한다. 우리 실험실에서는 원자력 발전소에서 의뢰하는 슬러지의 화학적 조성이나 입자 크기와 물리화학적 특성을 측정하고 있다. 구형 입자가 발견되면 이온교환수지가 증기발생기 내로 유입되었는지 여부를 확인하기 위하여 입자의 조성과 특성을 측정하고 있다. 슬러지 중에 아주 적은 양으로 존재하는 미세한 입자를 물리적으로 분류하여 특성을 측정하기 위해서는 경험을 바탕으로 한 미세조작 기술이 필요하다. 과학의 발전은 적은 양의 시료 중에 극미량으로 존재하는 물질을 정성 및 정량하거나 또는 불 균질 시료의 극소부위에 존재하는 흔적 량까지 분석하기를 요구하고 있다. 미세 입자를 다루기 위해서는 미세도구[1]가 필요하며, 이들을 능숙하게 다룰 수 있는 미세조작기술이 필요하다. 다양한 미세도구들을 이용하면 입체현미경 하에서 1-1000  $\mu\text{m}$  크기의 슬러지 입자들 중에서 구형입자들만을 채취, 분리 및 용해하고 ICP-AES 또는 ICP-MS 등을 이용하여 이들의 성분 및 함량을 분석 할 수 있다[2, 3].

본 보고서에서는 입체현미경하에서 다양한 미세도구들을 이용하여 슬러지 중의 미세 구형입자를 분리하고, 개별 입자의 화학반응을 육안관찰하고, 절단하여 내부 구조를 관찰하고, EPMA를 이용하여 입자별 원소조성을 측정하고, IR 분광스펙트럼을 측정하여 이온교환수지 여부를 확인한 경험을 기록하였다.

## 실험

### 1. 기기

슬러지 시료의 육안관찰과 크기분포 측정 그리고 입자의 선별분리는 입체현미경(LEICA, MZ6)과 광학현미경(LEICA, DMLP)을 사용하였다. 슬러지 입자 및 구형입자의 입자별 비파괴 조성 분석은 EPMA(JEOL)를 사용하였다. 원소 조성은 슬러지를 microwave acid digestion system (Milestone Model Ethos Plus)과 혼산을 사용하여 용해하고 ICP-AES(JOBIN YVON Model JY 50 P, France)를 사용하여 분석하였다. 이온교환수지 여부를 확인하기 위하여 FT-IR (.SENS IR Technologies, Model Travel IR)을 사용하여 IR 스펙트럼을 측정하였다.

### 2. 시약

시료를 용해할 때  $\text{HNO}_3$ (Fisher, Trace Metal Grade, 70 %),  $\text{HCl}$ (Merck, GR, 32 %), 및  $\text{HF}$ (Merck, Pro analysis, 48 %)를 정제하지 않고 사용하였다. 성분분석을 위한 표준물질은 ICP-AES용 표준용액(Spex plasma standard, 1000  $\mu\text{g}/\text{mL}$ , 2 % nitric acid solution)을 사용하였다.

### 3. 과정

#### 3.1. 시료 전처리

슬러지 시료를 120 $^{\circ}\text{C}$ 에서 4시간 건조하여 무게 변화로부터 수분함량을 구하였다. 데시케이터에서 식힌 건조한 시료에 혼합산을 가하고 microwave acid digestion system에서 용액화 하였다. 동일한 과정으로 준비한 바탕용액과 함께 ICP-AES로 성분을 분석 하였다.

#### 3.2. 슬러지 입자 크기 분포 측정

건조한 슬러지 분말 소량을 분산용액(flexible collodion-butyl acetate, 1:2)에 넣고 흔들어서 분산시켰다. 증류수에 소량의 분산 액을 점적하고 교반하여 희석된 분산 액을 준비하였다. 희석된 분

산 액을 microscope slide에 점적하고 건조시킨 다음 광학현미경과 digital image analyzer를 이용하여 슬러지 입자의 모양을 관찰하고 입자 크기 분포를 측정하였다.

#### 4. 슬러지 내 구형입자 관찰

##### 4.1. 슬러지 내 구형입자 채취 및 절단

눈금이 그려진 배양접시(Fig.1 참조)에 슬러지 입자를 분산시킨 다음, 미세탐침을 이용하여 슬러지 속에 존재하는 구형입자들을 선별하여 채취하였다. 선별한 구형입자의 모양을 Fig.1에 함께 나타내었다. 선별한 구형입자를 미세 칼로 절단하여 광학현미경으로 내부를 육안관찰 하였다.

##### 4.2. 구형입자 비중 및 산과의 반응

선별한 구형입자를 증류수,  $CCl_4$  등과 같이 밀도가 서로 다른 용액에 넣고 침강 여부를 관찰하여 비중을 측정하였다. 또한 입체현미경 하에서 입자들을 플라스틱 슬라이드 위에 놓고 여러 종류의 산을 가하면서 반응여부를 관찰하였다.

##### 4.3. 구형입자 성분 분석

선별한 구형입자를 EPMA용 stab에 부착하고 EPMA를 이용 성분을 분석 하였다.

##### 4.4. FT-IR 측정

슬러지 분말, 슬러지에서 채취한 구형입자, PE-filter로부터 채취한 구형입자, S/G 시스템에서 사용되는 이온교환수지와 PE-filer들을 별도의 조작 없이 FT-IR 스펙트럼을 측정하였다.

### 결과 및 고찰

#### 1. 슬러지 입도분포

광학현미경으로 관찰 했을 때 대부분의 입자는 무정형이며 검은색을 띠고 있었다. Digital image analyzer를 이용하여 측정한 슬러지 입자의 크기 분포를 Fig. 2.에 나타내었다. 크기가  $12 \mu m$  이하인 입자가 대부분을 차지하고 있다. Table 1의 결과로부터 입자 크기에 따른 입자수, 그리고 누적된 입자수의 분율과 상대적 무게분율( $=C_i \times d_i^3 / \sum(C_i \times d_i^3)$ )을 구하여 그림 \*\*\*에 나타내었다. 여기서  $C_i$ 는 크기가  $d_i$ 인 입자수이다. 비록 입자수의 95% 정도가  $12 \mu m$  이하의 크기를 가지지만 무게 분율은 큰 입자의 비중이 높은 것을 보여주고 있다. 이것은 입자들이 재결정이나 응집 등에 의해 점점 큰 입자로 변해가는 과정임을 의미한다.

#### 2. 슬러지 성분

슬러지를 용해하여 ICP-AES로 분석한 결과를 Table 2에 나타내었다. 무정형 및 구형 입자들의 혼합된 분석결과이다. Fe이 70% 정도 존재하는 주성분이며 Ni, Mn, Cr, Si, Zn, Ti, S 등이 함께 존재하였다. Ni 및 Cr은 스테레스강으로 부터, Mn은 철 중의 불순물로서, 그리고 Ti는 열교환기 재질에 의한 것으로 보인다. Si, Zn 및 S가 존재하는 원인에 대해서는 추가적인 검토가 필요하다. 철은 S/G 시스템이 환원분위기를 유지하며 시료가 검은색을 띠는 것으로 보아 hematite의  $Fe_3O_4$  성분으로 추정되었으며 XRD 측정으로 확인할 수 있었다.

#### 3. 슬러지 내 구형입자

##### 3.1. 슬러지 내 구형입자의 모양

슬러지로부터 선별한 구형입자들의 모양을 Fig. 3에 나타내었다. 구형입자들의 크기분포는 40 내지  $500 \mu m$ 이었다. 구형입자들을 절단했을 때의 절단면 모양을 Fig. 3에 나타내었다. 입자 중에는 속이 비어있는 것과 비어 있지 않은 것이 함께 관찰되었다. 속이 비어 있는 것은 기체 방울이 입자들을 응집하는 seed 역할을 한 것으로 추정되며, 비어 있지 않은 것은 입자들의 응집에 의해 생성된 것으로 추정되지만 자세한 원인은 추가적인 검토가 필요하다.

### 3.2. 구형입자 비중 및 산과의 반응

구형입자를 밀도가 다른 여러 종류의 용액에 가하고 침강 여부를 관찰했을 때, 비중이 1.594 g/cm<sup>3</sup>인 CCl<sub>4</sub>용액에서도 침강하였다. S/G 시스템에서 사용하고 있는 IRN 77(양이온교환수지)과 IRN 78(음이온교환수지)의 비중이 각각 1.28 및 1.08 g/cm<sup>3</sup>인 것과 비교하면 슬러지 속에서 선별한 구형입자가 이온교환수지보다 비중이 높은 것을 알 수 있었다. 그리고 상온에서 구형 입자에 질산, 염산, 황산 또는 불산을 가했을 때 질산, 염산, 또는 황산은 반응을 하지 않았으나 불산은 입자를 용해시키는 현상을 보였다. 이 결과는 hematite의 용해거동과 유사하며 불산에 의한 용해는 구형입자에 함유된 Si 성분에 의한 것으로 판단된다. 또한 이온교환수지는 강산 용액에서 흡착한 이온의 치환에 의해 swelling 정도의 변화 등에 의해 크기가 변할 수 있으나 이런 결과를 추정할 수 있는 현상을 발견할 수 없었다.

### 3.3. 구형입자 성분

EPMA를 이용하여 슬러지로부터 선별한 구형입자 각각의 성분을 분석한 결과 중 대표적인 경우를 Fig.4 에 나타내었다. 검출된 원소들에 대하여 무게 백분율로 나타내었을 때, Fe가 65 내지 95%로서 주성분이며 Si가 많게는 20% 가까이 까지 존재하였다. 이 값은 슬러지 중에 0.2 % 정도 존재하는 것과 비교하면 매우 큰 값이며, 구형입자가 불산에 의해 용해되는 원인임을 시사한다. 일반 슬러지에 비하여 구형입자 중에 Si가 많이 존재하는 것은 구형 입자의 생성이 일반 슬러지의 생성과 다른 원인에 의한 것일 수 있음도 시사한다. 구형입자를 불꽃에 접촉시켜도 연소 등과 같은 변화를 보이지 않음으로써 이온교환수지와 같은 유기물도 아니며 활성탄과 같은 가연성 탄소도 존재하지 않는 것을 나타내었다. 따라서 산과의 낮은 반응성과 검은색으로부터 구형입자의 철 성분은 Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>의 hematite 형태인 것으로 판단된다.

### 3.4. FT-IR 측정

슬러지로부터 선별한 구형입자를 분쇄하여 얻은 분말, 분쇄하지 않은 구형입자, 일반 슬러지, 혼합 이온교환수지, 양이온교환수지 그리고 PE-filter에서 채취한 입자 (Fig. 5)의 FT-IR 스펙트럼을 측정된 결과를 Fig. 6에 나타내었다. 혼합이온교환수지, 양이온교환수지 그리고 PE-filter에서 채취한 구형입자들은 699, 742, 1052, 1245, 1600, 1725 cm<sup>-1</sup>에서 흡수 피크를 보이며 이들은 각각 유기 탄화수소 화합물의 C-C, =C-H, C-H, C=C, C=O 결합[4]에 기인하는 것을 보이고 있다. 그러나 구형입자(분말 및 입자)와 슬러지는 위와 같은 유기 탄화수소 화합물에 해당하는 적외선 흡수 피크를 보여주지 않았다. 이것은 슬러지 중에 존재하는 구형입자는 이온교환수지와는 다른 입자이며 이온교환수지 성분도 함유하고 있지 않음을 나타낸다.

## 결 론

S/G 슬러지에서 발견된 구형입자가 이온교환수지 입자로 의심되었으나 비중, 산과의 반응, 성분 분석, FT-IR 스펙트럼 측정 등의 결과는 비정형의 일반 슬러지와 크게 다르지 않은 hematite 성분의 입자임을 보였다. 일반 슬러지 입자가 주로 1 내지 200 μm 크기를 보이는 것에 비하여 구형 입자들은 40 내지 500 μm로서 상대적으로 큰 크기를 보였다. 일반 슬러지보다 실리콘 함량이 높았으며 입자에 따라서는 내부가 빈공의 형태를 이루고 있었다. 이들이 구형을 띤 원인으로서는, 속이 비어 있는 것은 기체 방울이 입자들을 응집하는 seed 역할을 한 것으로, 그리고 비어 있지 않은 것은 입자들의 응집에 의해 생성된 것으로 추정되지만 자세한 원인은 추가적인 검토가 필요하다.

## 참고 문헌

1. A.S. Teetsov, "Preparation and use of needles and micropipets for handling very small particles", *Microscope*, 47, 63-70 (1999).
2. Dickey D. Huntamer, " Identification of Cleveland mine tailings in Hunters creek drainage,

- Stevens County, Washington", *Microscope*, Vol. 48, 93-105 (2000).
3. Sophie Sobaska, et al., "Microchemical Investigations of dust emitted by a lead smelter" *Environ. Sci. Technol.* (1999) 33, 1334-1339.
  4. Robert M. Silverstein, G. Clayton Bassler, Terence C. Morrill, "Spectrometric identification of organic compounds" John Willeys & Sons, 4th ed., 95-177 (1981)

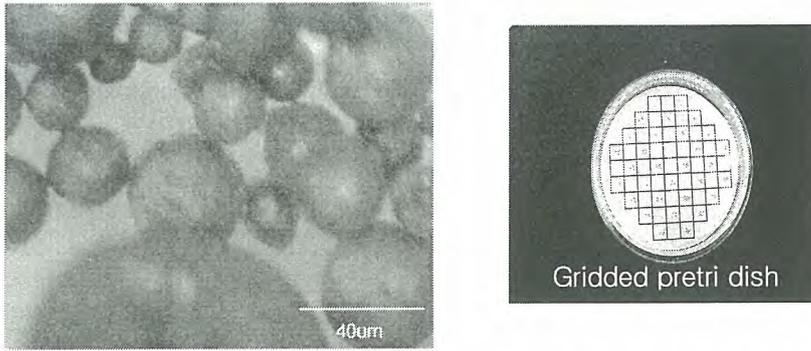


Fig. 1. 슬러지 중 구형입자들과 구형입자선택시 사용한 눈금접시

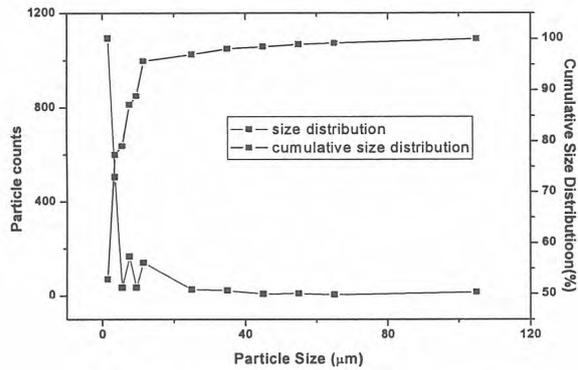


Fig. 2. 슬러지 입자 분포

Table 1. 슬러지 입자 측정 결과

size(um)	입자수	입자수 분율	누적 입자수	누적 입자수 분율	무계분율
1.5	1094	0.52901	1094	0.52901	0.00015
3.5	505	0.24420	1599	0.77321	0.00086
5.5	35	0.01692	1634	0.79014	0.00023
7.5	168	0.08124	1802	0.87137	0.00281
9.5	35	0.01692	1837	0.8883	0.00119
11.5	141	0.06818	1978	0.95648	0.00851
25	27	0.01306	2005	0.96954	0.01674
35	23	0.01112	2028	0.98066	0.03913
45	8	0.00387	2036	0.98453	0.02893
55	10	0.00484	2046	0.98936	0.06602
65	5	0.00242	2051	0.99178	0.05449
105	17	0.00822	2068	1	0.78094

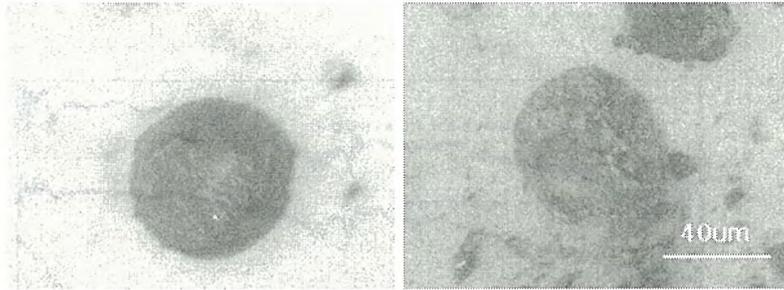


Fig. 3. 구형 입자 절단 모양

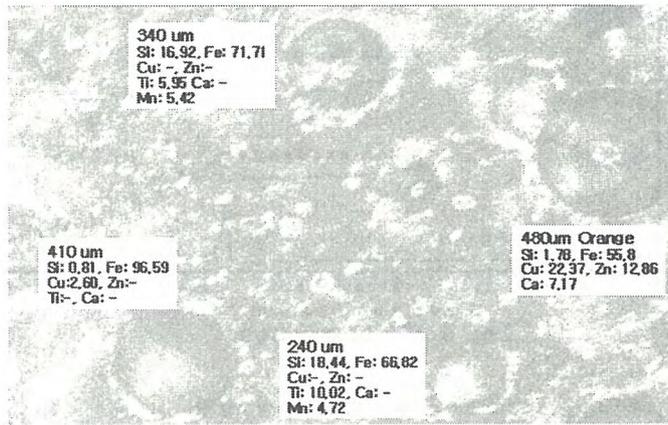


Fig. 4 구형입자들의 EPMA 성분분석 결과

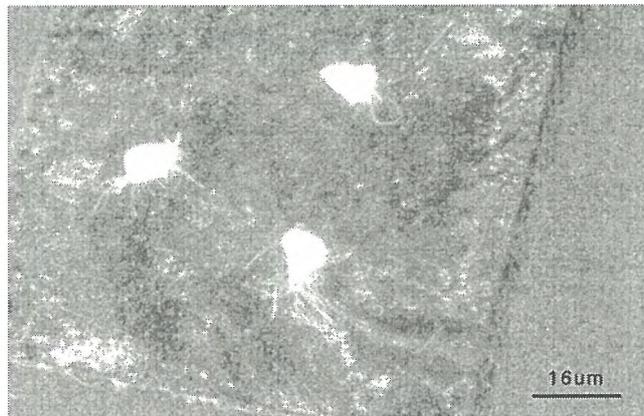


Fig. 5. 원전 사용 여과포 중의 뭉친 부분을 뜯어낸 모양

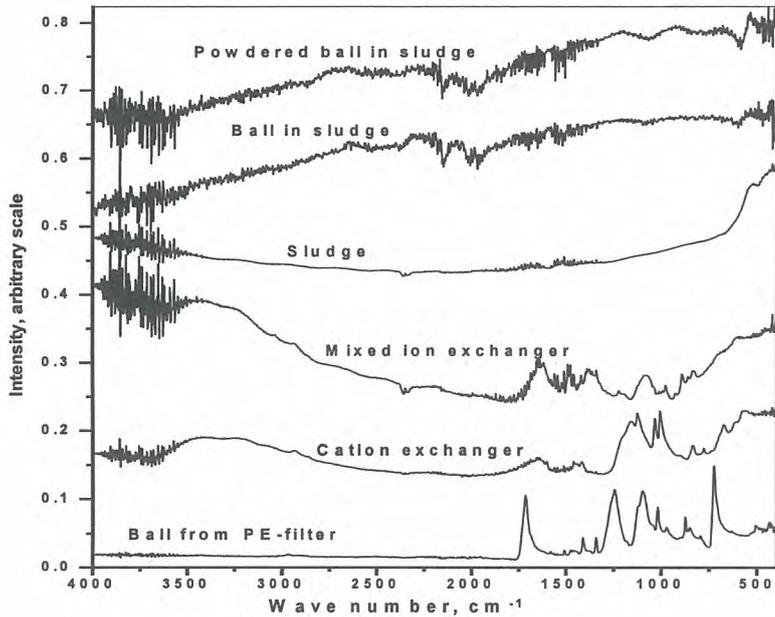


Fig. 6. FT-IR spectrum

Table 2. 슬러지 습식 분석 결과

	Fe	Ni	Mn	Cr	Si	Zn	Ti	S
wt %	70.5	0.84	0.59	0.30	0.20	0.16	0.14	1.67
	±0.5	±0.02	±0.03	±0.04	±0.02	±0.05	±0.02	±0.05

## A Study on the Silica Removal in Primary System using the Membrane Process

막 분리 공정을 이용한 1차 계통 실리카 제거에 관한 연구

Bong-Jin Kim, Sang-Jin Lee, Ho-Yeon Yang, Kyung-Duk Kim, Hee-Chul Jung\*  
and Hang-Rae Jo\*

Korea Hydro & Nuclear Power Co., LTD. NETEC 149 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

\*Korea Hydro & Nuclear Power Co., LTD. Uljin NPP Unit 1, 84-4 Buk-myeon, Uljin-gun,  
Gyeongsangbuk-do

김봉진, 이상진, 양호연, 김경덕, 정희철\*, 조항래\*

한국수력원자력(주), 원자력환경기술원 대전광역시 유성구 덕진동 149번지

\*한국수력원자력(주), 울진 원자력본부 제 1발전소, 경상북도 울진군 북면

### Abstract

Silica in primary system combines with an alkali grammatical particle metal and forms the zeolite layer which is hindering the heat transfer on the surface of the cladding. Zeolite layer becomes the cause of the damage in this way. The problems of the NPP's primary system have been issued steadily by EPRI. Through a series of experiments of the laboratory scale, we confirmed the applicability of NF membrane for silica removal, as silica rejection rate of NF membrane is about 60 ~ 70% and boron rejection rate is about 10 ~ 20%. We accomplished a site experiment about four NF membranes manufactured by FilmTec and Osmonics Inc. In experiment using 400L of SFP water, when operation pressure is 10kgf/cm<sup>2</sup>, we confirmed that the silica rejection rate of NF90-2540 manufactured by FilmTec Inc. is about 98%, boron rejection rate is about 43%. The silica rejection rate of NF270-2540 is about 38%, boron rejection rate is about 3.5%. Afterward, through additional experiments, such as long term characteristic experiments, we are going to design a optimum NF membrane system for silica removal.

Key word : Silica, NanoFiltration, Membrane separation, SFP

### 요약

원전 1차 계통내에 실리카는 알칼리 토금속(Ca, Mg, Al 등)과 결합하여 원전 연료 피복재에 열 전달을 방해하는 규석층(Zeolite)을 형성한다. 이렇게 형성된 규석층은 원전 피복재 손상의 원인이 된다. 이러한 원전 1차 계통내 실리카의 문제점들은 EPRI 보고서 등에 그 문제점이 꾸준히 제기 되어 왔으며 이러한 문제점들을 해결하기 위하여 막분리 공정을 이용하고자 하였다. 먼저 실험실 규모의 실험을 통해 NF막의 실리카 제거율이 약 60 ~ 70%, Boron 제거율이 약 10 ~ 20%로 그 적용 가능성을 확인하였으며, FilmTec과 Osmonics 사 NF막 제품 4종에 대하여 현장 실험을 수행하였다. 현장 사용후연료 저장 봉산수 400L를 시료로 한 실험에서 운전압력 10kgf/cm<sup>2</sup>에서 FilmTec 사의 NF90-2540이 실리카 제거율이 약 98%, Boron 제거율이 약 43%로 확인되었으며 또한NF270-2540이 실리카 제거율이 약 38%, Boron 제거율이 약 3.5%로 확인되었다. 이를 바탕으로

로 장기운전 특성 실험 등의 추가적인 연구를 통해 최적의 실리카 제거를 위한 막 분리공정을 설계할 예정이다.

중심단어 : 실리카, 나노여과, 막 분리, SFP

## 1. 서론

사용후연료 저장랙은 소내 저장능력 확장을 위해 보라플렉스(Boraflex) 재질의 조밀 저장랙을 일부 원자력 발전소에서 사용 중에 있다. 그러나 1987년 EPRI는 “사용후연료 저장 랙에서의 보레이트 물질 성능 평가(An Assessment of Borated Material Performance in Spent Fuel Storage Racks)”를 통해 여러 원전의 Boraflex 저장랙에서 예기치 못한 성능저하와 Boraflex panel에 Tears와 Gap이 발생하고 있음을 확인하였다. 또한 EPRI 보고서 NP-6159 “사용후핵연료 저장 랙 내 Boraflex 성능 평가(An Assessment of Boraflex Performance in Spent-Nuclear-Fuel Storage Racks)”에서 1차계통내에 실리카는 고온 고압의 운전조건에서 알카리 토금속(Ca, Mg, Al 등)과 결합하여 원전연료피복재에 열전달을 방해하는 규석층(Zeolite)을 형성하여, 국부 과열(Hot spot)에 의한 원전연료 피복재 손상의 원인이 됨을 규명하였다. 이에 따라 여러 원전에서 1차 계통내 실리카를 제거하기 위해 RO막 분리 장치 등을 이용하여 왔다. 그러나 EPRI 보고서 TR-103300 “Guidelines for Boraflex Use in Spent-Fuel Storage Racks”은 Boraflex를 사용하는 여러 원전에서 Boraflex 사용 중에, 증가된 실리카 농도를 감소시키기 위해 역삼투 설비 등을 이용하는 것은 실리카 용출이 가속화되어 핵 미임계 안전성 저하를 초래할 수 있음을 규명하였다<sup>1)</sup>. 따라서 Boraflex 재질의 조밀 저장랙을 사용하는 원전에서는 Boraflex 재질의 조밀 저장랙을 실리카가 용출되지 않는 Boral 재질 등의 조밀 저장랙으로 교체한 후 실리카 제거 설비를 가동해야할 필요성과, 운전비용이 과다하게 들고, 고체 방사성 폐기물의 발생량이 많은 RO막 공정의 단점을 보완해야할 필요성이 대두되었다. Boraflex로부터 용출된 실리카는 SFP(Spent Fuel Pool)에서 neutron flux를 조절하기 위해 사용되는 Boric acid( $\geq 2,300\text{ppm}$ )가 함유된 물과 혼합되어진다. 따라서 SFP에서 실리카를 제거하는 공정은 Boric acid에서 실리카를 분리하는 공정이라 할 수 있으며, 현재 Boric acid로부터 실리카를 분리하는 공정은 물리 화학적 공정을 포함하여 여러 가지 공정이 있을 수 있다. 그러나 화학적 공정의 경우 pH에 따라 Boron과 Si의 화학적 형태가 변하거나 용해도의 차이로 인해 분리하기가 쉽지 않다. 또한 이온 교환 수지에 의한 방법은 SFP의 pH 조건( $\text{pH} < 5$ )에서 실리카에 대한 이온선택도가 낮아 그 분리가 쉽지 않다.

물리학적 분리 공정인 막분리 공정의 경우 반도체 제조공정의 공정폐수로 발생하는 Si 함유 폐수 처리 분야에 많이 이용되고 있으며, UF(Ultra Filtration, 한외여과)막 공정을 이용한 실리카 제거 공정의 경우 95%이상의  $\text{SiO}_2$  제거 효율을 나타내는 것으로 알려져 있다. 또한 Cellulose acetate hollow fiber RO(Reverse Osmosis, 역삼투)막 공정의 경우 약 95%이상의 실리카 제거율과 약 30%의 Boron 제거율을 나타내며, Polyamide RO membrane의 경우에는 약 97% 이상의 실리카 제거율과 약 60% Boron 제거율을 나타내는 것으로 알려져 있다<sup>2,3)</sup>. 따라서 본 연구에서는 기존 RO공정의 단점인 과다한 운전비용과 다량의 농축폐액발생 등의 문제점을 해결할 수 있는 막 분리 공정을 선정하여 SFP내의  $\text{SiO}_2$ 를 제거하고자 하였다.

## 2. 실험장치 및 방법

본 연구에 사용된 실험실 규모의 막 실험 장치는 Spectrum laboratories Inc.에서 제조된 UF막과 FilmTec. 및 Osmotik Inc.에서 제조된 NF막을 사용하였으며, 펌프, 압력계, 유량계 등으로 구성되어 있다. Table 1은 실험실 규모의 실험에 사용된 막 사양 및 실험조건을 나타내고 있다.

UF막 실험에 사용된 실리카 함유 용액 시료는 Sodium metasilicate(특급시약)으로 약 2L를 제조

하였으며, NF막 실험의 경우는 H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>(특급시약)과 Sodium metasilicat를 이용하여 SiO<sub>2</sub> 10ppm 및 Boron 2,000ppm인 용액을 제조하여 시료로 사용하였다. 분석에 사용될 sample의 채취는 운전 시작 후 각 압력조건에서 막 장치가 안정화된 후 30분에 시료를 채취하였으며, SiO<sub>2</sub> 분석은 ASTM D859에 따라 UV-Spectrophotometer(HEWLETT PACKARD 8453)를 이용하여 분석하였다. Boron의 분석은 ICP-AES(LEEMAN Lab., Inc, LEEMAN PS 1000)를 이용하였다.

Table 1. UF막 및 NF막의 특성 및 운전조건

UF막		NF막	
항 목	특성 및 운전조건	항목	특성 및 운전조건
Manufacturer	Spectrum Lab.	Maker	FilmTec 및 Osmotik
MWCO	10KD	Surface Area	0.5m <sup>2</sup>
Module Type	Hollow fiber	Module Type	Spiral Wound
Surface Area	245cm <sup>2</sup>	운전압력	약 2 ~ 5 kg/cm <sup>2</sup>
운전압력	1kgf/cm <sup>2</sup>	운전유량	650cc/min(FilmTec), 750cc/min(Osmotik)
SiO <sub>2</sub> 초기농도	10ppm	SiO <sub>2</sub> 초기농도	10ppm
		Boron 초기농도	2,000ppm

실험실 규모의 실험결과를 바탕으로 이루어진 현장 실험에 사용된 NF막 사양은 표 2와 같다.

Table 2. 현장 실험용 NF막 사양

항목	막			
	NF-2540	NF90-2540	NF270-2540	HL-2540TF
Manufacturer	FilmTec Inc.	FilmTec Inc.	FilmTec Inc.	Osmonics
Surface Area (m <sup>2</sup> )	2.6	2.6	2.6	2.6
Recovery(%)	15	15	15	15
Product water(gpd) <sup>1)</sup>	-	600	850	860
Flow Rate(L/hr) <sup>1)</sup>	-	94.6	134	-
Solute passage(%)	-	5~15 <sup>2)</sup>	40~60 <sup>3)</sup>	-
Membrane Type	Polyamide Thin-Film Composite			
Max. Operating Pressure (psi)	600	600	600	600
pH Range	2~11	2~11	2~11	1 ~ 10
Max. Feed Flow (m <sup>3</sup> /hr)	1.4	1.4	1.4	-

주) Permeate flow and salt rejection based on the following test conditions :

- 1) 2,000ppm MgSO<sub>4</sub>, 70psi(0.5MPa), 25°C, and recovery as indicated below.
- 2) 2,000ppm NaCl, 70psi(0.5MPa), 25°C, and recovery as indicated below.
- 3) 500ppm CaCl<sub>2</sub> 70psi(0.5MPa), 25°C, and 15% recovery.

현장 실험에 사용된 시료는 SFP water 약 400L를 PE Tank에 채취하여 가압펌프를 이용하여 막으로 주입하였으며, Table 3은 채취된 SFP water의 수질현황을 나타내고 있다.

Table 3. 채취된 SFP water의 수질현황

항 목	단 위	기 준 치	분 석 치	항 목	단 위	기 준 치	분 석 치
pH	-		4.7	Ca	ppb	≤ 100	5
Boron	ppm	≥ 2,300	2,391	Al	ppb	≤ 100	4
Cl	ppb	≤ 150	9	Mg	ppb	≤ 100	4
F	ppb	≤ 150	8	Total Activity	μCi/cc		3.36×10 <sup>-4</sup>
실리카	ppm	-	13.65				

현장 실험용 NF막 장치에는 NF막 Frame과 SKID를 포함하여 유량계 및 압력계 등을 장착하였다. Fig. 1은 현장 실험용 NF 막장치의 P&ID를 나타내고 있으며, Table 4는 현장 실험용 NF막 장치의 운전조건을 나타내고 있다.

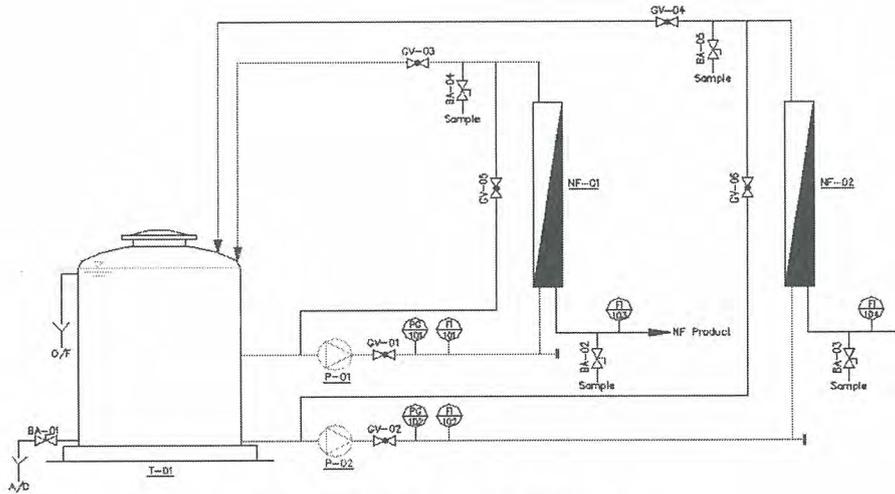


Fig 1. 현장 실험용 NF 막장치의 P&ID

Table 4. 현장 실험용 NF막 장치의 운전조건

항 목	운전조건	비 고
사용 막	NF막 4종	Table 2
운전압력(kgf/cm <sup>2</sup> )	4, 6, 8, 10	각 NF막에 적용
주입유량(L/hr)	650	
운전시간(min)	30min/각 압력조건	

현장 실험에서 시료는 각 운전압력 조건에서 30분의 운전시간이 경과 후에 채취되었으며, 실리카와 Boron의 분석은 실험실 규모의 실험과 동일한 방법에 의해 이루어졌다.

### 3. 실험결과 및 고찰

SFP내 실리카 제거를 위한 최적의 막 분리 공정을 선정하기 위해 UF막과 NF막을 이용하여 실험실 규모의 실험을 수행하였다. Fig 2는 UF막의 실리카 제거 특성을 나타내고 있다.

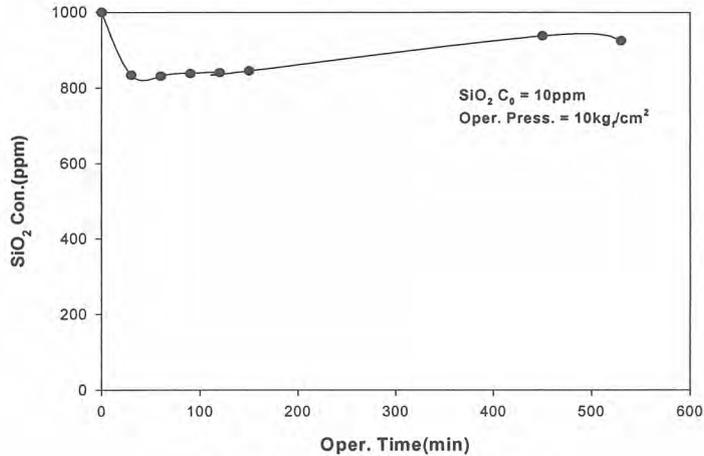


Fig 2. UF막의 실리카 제거 특성

UF막을 이용한 실리카 제거 실험결과 UF막 장치는 운전초기에 약 17%의 실리카 제거율을 보였으며 운전시간이 증가함에 따라 약 10%내외로 서서히 제거율이 감소하는 경향을 나타내었다. 이러한 결과는 UF막을 이용하여 반도체 공정 폐수의 Si 미립자를 약 95% 이상 제거한 문헌조사 결과와는 매우 다르다. 그 이유는 반도체 공정 폐수는 대부분 세정폐수로 다량의 불소를 함유하고 있어 pH가 낮으며, Si 농도가 높아 Colloidal 실리카의 함량이 매우 높기 때문인 것으로 판단된다. 즉, 본 실험에서 모사한 SFP내의 실리카는 반도체 공정 폐수중의 Si 미립자가 아니라 Silicic acid(H<sub>4</sub>SiO<sub>2</sub>)형태이기 때문인 것으로 해석 될 수 있다.

NF막을 이용한 실리카 제거의 타당성을 조사하기 위해 Osmotik 및 Filmtec사에서 제조한 NF막 제품을 이용하여 실리카 제거 실험을 수행하여 그 결과를 Fig 3, 4에 나타내었다.

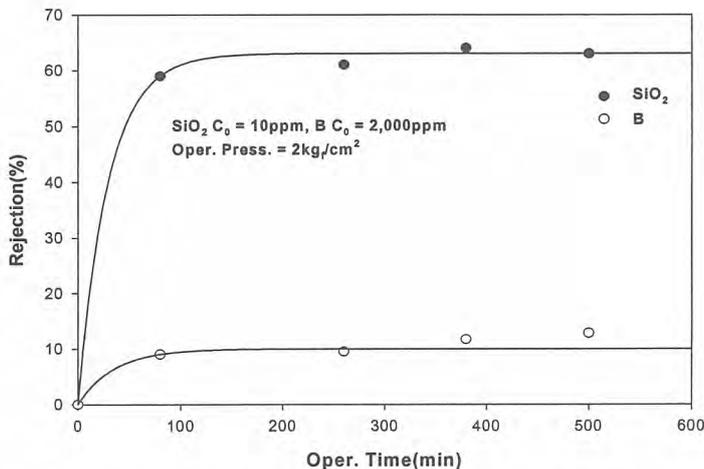


Fig 3. Filmtec사 NF막의 실리카 및 Boron 제거 특성

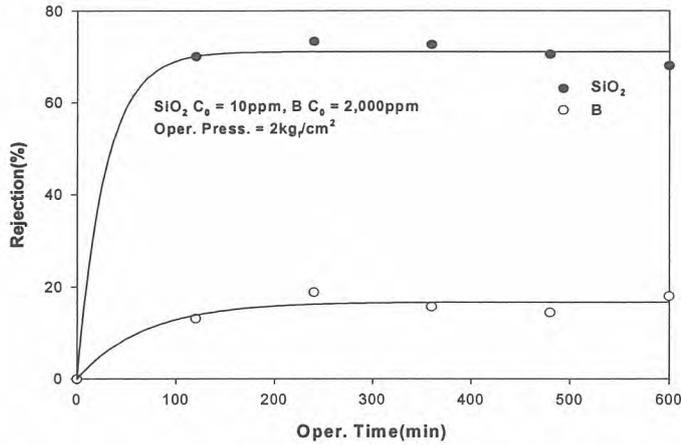


Fig 4. Osmotik 사 NF제품의 실리카 및 Boron 제거 특성

Fig 3에서 Filmtec 사의 NF 막 제품은 2kg/cm<sup>2</sup>의 운전압력에서 500분까지의 운전시간 동안 약 60% 내외의 실리카 제거율을 나타내었으며, Boron은 약 10%의 제거율을 나타내었다.

한편 Osmotik 사의 NF막 제품은 동일한 조건에서 약 70% 내외의 실리카 제거율과 약 15%의 Boron 제거율을 나타내었다. 위의 실험결과를 살펴보면 기존의 RO막 공정에 비해 실리카 제거율은 약 20 ~ 30% 정도 낮지만 Boron 제거율 역시 20 ~ 40% 정도 낮으므로 Boron의 농도를 2,300ppm정도로 항상 일정하게 유지해야 하는 SFP의 수질특성상 RO막 공정에 비해 Boron 농축 폐액 발생량이 적을 것으로 예상되어 SFP내의 실리카 제거를 위한 NF막을 이용한 현장 실험에 착수하였다.

현장 실험은 SFP에서 채취한 400L의 시료를 대상으로 Filmtec사의 NF막 제품 3종과 Osmonics 사의 막 제품 1종으로 이루어졌다. Fig 5, 6은 그 결과를 나타내고 있다. Fig 5에서 나타난 것처럼 실험에 사용된 NF막의 실리카 제거율은 운전압력이 4kg/cm<sup>2</sup>에서 10kg/cm<sup>2</sup>으로 상승함에 따라 점차적으로 상승하는 경향을 나타내고 있다.

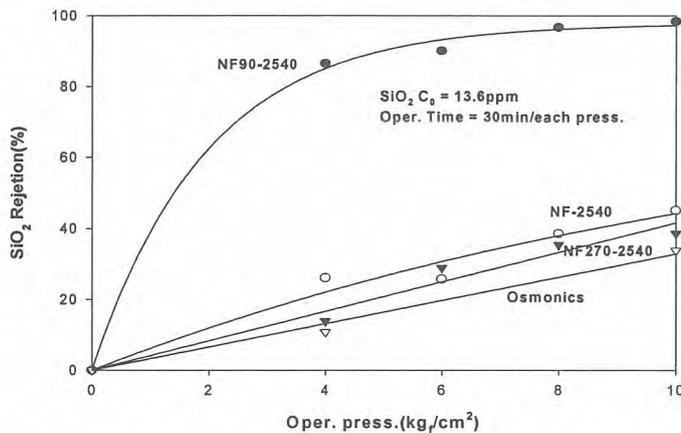


Fig 5. 현장 실험용 NF막의 실리카 제거율

또한 개별막의 실리카 제거율은 Filmtec사의 NF90-2540이 4kg/cm<sup>2</sup>의 비교적 낮은 압력에서도 약

80% 이상의 높은 실리카 제거율을 나타내고 있다. Fig 6은 실험에 사용된 NF막 제품들의 Boron 제거율을 나타내고 있다.

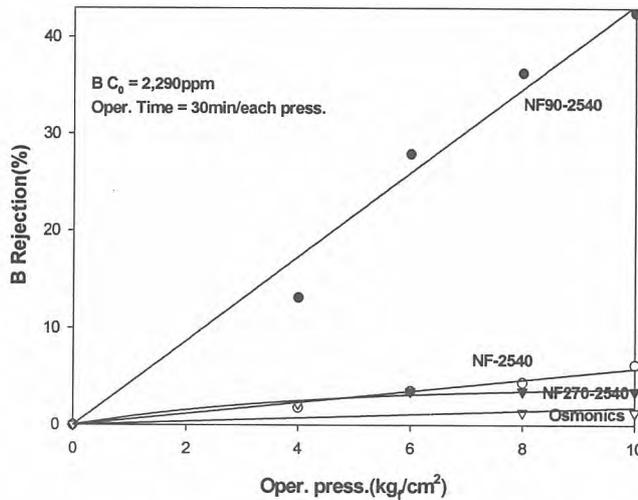


Fig 6. 현장 실험용 NF막의 Boron 제거특성

NF막 제품들의 Boron 제거율은 실리카 제거율과 마찬가지로 운전압력이 상승함에 따라 점차적으로 상승하는 경향을 나타내었으며, 운전압력이 10kg/cm²에서 약 98%의 실리카 제거율을 나타낸 NF90-2540은 동일한 조건에서 약 43%의 Boron 제거율을 나타내고 있다. 그러나 NF90-2540을 제외한 나머지 3종의 NF막들은 운전압력이 10kg/cm²로 상승해도 약 10% 이하의 Boron 제거율을 나타내고 있다. 막 면적이 동일한 FilmTec사의 NF막 제품들의 실리카와 Boron에 대한 이러한 이온배제율의 차이는 Solute passage 등의 막의 고유한 특성에 기인한 것으로 판단되며, 위의 실험결과를 Table 5에 정리하였다.

Table 5. NF막을 이용한 현장 실험 결과

NF 막	운전압력 (kg/cm²)	SiO₂ 제거율 (%)	Boron 제거율 (%)	회수율 (%)	LMH (L/m²/hr)
NF-2540	4	26.2	1.8	1.4	4.6
	6	25.8	3.5	4.9	16.2
	8	38.7	4.4	7.8	25.4
	10	45.2	6.2	16.6	41.5
NF90-2540	4	86.5	13.1	1.5	4.6
	6	90.7	27.9	5.3	16.2
	8	96.8	36.3	8.3	25.4
	10	98.4	42.5	14.2	39.2
NF270-2540	4	13.9	2.2	4.4	13.8
	6	29.1	3.5	11.3	34.6
	8	35.5	3.5	16.5	50.1
	10	38.7	3.5	24.9	66.9
Osmonics	4	10.8	2.2	1.1	3.5
	6	-	-	2.1	6.9
	8	-	1.3	3.8	11.5
	10	33.9	1.3	6.5	16.2

NF막을 이용한 현장 실험결과 NF막의 운전은 실험에 사용된 모든 NF막 제품에서 비교적 안정적인 투과수량과 높은 이온배제율을 보인  $10\text{kg}_2/\text{cm}^2$ 로 운전하는 것이 적합해 보인다. 또한 NF90-2540은 약 98%의 높은 실리카 제거율을 나타내고 있지만 Boron 제거율 역시 42.5%로 매우 높다. 따라서 NF90-2540을 SFP내 실리카를 제거하기 위해 사용한다면 다른 NF막에 비해 SFP의 실리카 농도를 보다 빠른 시간 안에 낮출 수 있을 것으로 판단되지만 그와 함께 Boron을 함유한 농축폐액의 발생량이 많아질 것으로 예상된다. 그러나 NF270-2540을 사용할 경우 약 38%의 상대적으로 낮은 실리카 제거율로 인해 운전시간은 좀 더 긴 시간이 필요할 것으로 판단되나 Boron의 제거율이 3.5%로 매우 낮고, 회수율이 약 25%로 높아 NF90-2540에 비해 장시간의 운전시간이 소요될 것으로 예상되며, 농축폐액의 발생량은 상대적으로 적을 것으로 예상된다. 그러나 보다 구체적인 농축폐액의 발생량과 소요되는 운전시간의 비교를 위해서는 기본적인 막의 배열 설계가 도출되어야 가능할 것으로 생각되며, 또한 FilmTec 사 NF막 제품의 기본 회수율이 15%임을 감안하면 NF270-2540의 회수율 약 25%에 오차가 있을 수 있을 것으로 보여 진다. 따라서 SFP내의 실리카 제거를 위한 막 분리 공정의 사용 막으로 NF90-2540과 NF270-2540을 후보 막으로 선정 한 후 장기운전특성 실험 등의 추가적인 연구가 수행되어야 하며, 또한 장기 운전 특성 실험을 바탕으로 막 배열 설계를 통한 농축폐액의 발생량과 총 운전시간을 비교하여 최적의 막을 선정하는 것이 바람직할 것으로 판단된다.

#### 4. 결론

실험과 연구결과를 토대로 SFP내 실리카를 제거하기에 가장 타당한 막 분리 공정으로는 NF막을 이용한 막 분리 공정이 가장 타당할 것으로 판단되며, 본 연구에 사용된 NF막 제품 중에서는 FilmTec사의 NF90-2540과 NF270-2540이 가장 적합하다. 그러나 이에 대한 장기운전특성 실험 등의 추가적인 연구가 필요할 것으로 판단된다.

#### 5. 참고문헌

- 1) EPRI TR-103300, "Guidelines for Boraflex Use in Spent-Fuel Storage Racks", 1993
- 2) C.H. Liang, "Separation Properties of High Temperature Reverse Osmosis Membranes for Silica Removal and Boric Acid Recovery", pp 127-135, Journal of Membrane Science 246, 2005
- 3) 전제홍, 함용규, 이석기, 남석태, 최호상, "한외여과에 의한 Si 미립자 함유폐수 재이용 공정개발" pp87-89, 한국막학회 98년도 춘계 학술발표대회, 1998

## Study on the Method of Estimating the Accumulation of Co-60 in Consideration of the Operating History of a NPP

원전 운전환경을 고려한 방사성폐기물 내 Co-60 재고량 평가 방안 연구

Tae-man Kim and Joo-ho Whang

Dep. of Nuclear Eng. College of Advanced Technology, KyungHee Univ., Kiheung, Yongin, Kyunggi-Do.

김태만, 황주호

경희대학교 원자력공학과, 경기도 용인기 기흥읍 서천리 경희대학교 수원캠퍼스

### Abstract

To dispose of radwaste in a repository, the safety of disposal must be ensured. This study developed a program for estimating radionuclide accumulation of radwaste, based on the material balance method, one of the indirect methods, and performed application evaluation during the 9th preventive maintenance period of Gori Plant 4, one of the commercial power plants in Korea. First of all, to ensure the technique developed in this study is assessed accurately, this study utilized the data regarding the radionuclide removal in the purification system during the shutdown water chemistry control, and a related estimation technique called SCALP. The target nuclide was Co-60, and it turned out that the relative error was less than 1%. The estimation result was compared with the result of direct measurement of the radwaste during the corresponding period as presented by commercial power plants. The result showed that the quantity of Co-60 measured by the direct method was about 50% less than that calculated by the technique developed in this study.

**Key Word** : Accumulation of radwaste, DF, SF, Operation History, Conditions of Water-chemical

### 요 약 문

방사성 폐기물을 처분장에 처분하기 위해서는 처분 안전성을 확보하여야 한다. 본 연구는 간접 측정 방법 중 하나인 물질수지 기법을 이용하여 방사성폐기물의 핵종재고량 평가 프로그램을 개발하였다. 개발 기법의 현장 적용평가를 위하여 고리4호기(9차계획예방정비)를 대상으로 선정하였다. 개발한 평가방법의 검증에 위해 정지수화학처리시 정화계통 내 핵종 제거량 평가자료를 바탕으로 비교평가를 수행하였다. 평가대상 핵종은 Co-60이며, 평가결과 상대오차 1%미만으로 나타났다. 이와 같은 평가결과를 바탕으로 상용원전에서 제시하고 있는 해당기간 발생된 폐기물의 직접 측정 결과와 비교하였고, 그 결과 직접측정 방법에 의한 Co-60의 함유량은 본 연구의 개발기법에 서 산출한 값보다 약 50% 작은 것으로 평가 하였다.

**중심단어** : 폐기물 핵종재고량, 순간제염계수, 척도인자, 운전이력, 수화확환경

### 1. 서론

방사성 폐기물을 처분하기 위해서는 처분 안전성을 확보하여야 한다, 이를 위해 방사성폐기물내의 선원항 및 재고량을 평가해야 하며, 이에 우리나라는 관련 법, 법령 및 고시등을 제시 및 재/개정을 통하여 규제하고 있다. 특히 개정중인 과기부 고시 제 01-32호 “중·저준위 방사성폐기물 인도규정”에서 핵종재고량 평가방법으로 그 타당성이 검증된 직/간접적 평가방법을 제시하고 있다. 현재 국내 원전의 경우 2004년부터 직접측정방법으로 감마핵종 분석장치(HPGe)를 도입하여 주요 핵종량을 평가하고, 간접측정방법인 척도인자(Scaling Factor, SF)를 활용하여 그 외 핵종을 평가하고 있다. 그러나 이 핵종 분석장치는 200ℓ 드럼 이외에 기발생된 다양한 형태의 드럼에 적용은 불가능하다.[1,2,3] 이에 본 연구는 먼저 일차냉각계통의 방사성 물질의 거동에 대하여 이론적 배경을 확립하고, 계통 내에서 방사성 물질의 이동 경로에 따른 정화/제염 데이터와 이력을 분석하였다. 그리고 방사성 핵종별로 그 농도의 변화를 이용하여, 계통내 정화장치에 누적된 방사능 재고량과 발생량을 평가하였다. 이와 같은 평가 결과에 대한 검증을 위하여 유사 기존 기법과의 비교평가를 통한 검증을 수행하고, 원전의 기존 자료를 근거로 폐기물재고량을 산출하고 ‘계측값’ 산출하여 비교평가를 수행한다. 최종적으로 현재 발생된 방사성폐기물 재고량 평가 위한 적용 방안을 제시하고, 향후 발생될 방사성폐기물 발생량 예측 방안을 모색한다.

### 2. 물질수지 기법을 이용한 프로그램의 개발

원자로에서 생성된 방사성 물질들은 원자로냉각재와 함께 각 계통을 순환하고 정화계통 및 각 방사성폐기물 처리계통 내에서 제염 등의 처리과정을 거친 후 수집된다. 이를 바탕으로 핵종 I의 입/출력농도와 그 비율인 제염인자(DF<sub>t</sub>)를 알고 있다면 식 (1)과 같이 표현되며,

$$A_i(t) = \frac{C_i}{\lambda_i} \times \left(1 - \frac{1}{DF_{t_i}}\right) \times FI \times (1 - e^{-\lambda_i t}) \tag{1}$$

여기서, A<sub>i</sub>(t) : 단위시간당 누적된 방사능핵종i의 농도 (Ci)

C<sub>i</sub> : 계통내 유입되는 핵종농도 (Ci/ℓ)

λ<sub>i</sub> : 핵종 I의 반감기(s<sup>-1</sup>)

DF<sub>t</sub> : 해당 정화장치의 제염계수

FI : 해당 계통의 유입유량 (ℓ/s)

방사능 누적량 계산 방법인 식(1)은 평균제염계수(DF<sub>t</sub>) 기법을 이용한 것으로 정화장치별로 제염계수가 시간에 따라 지속적으로 변화하는 실제 발전소에 적용하기에는 오차가 크다. 그러므로 단기간동안의 정화장치별, 핵종누적량 별로 그 누적량을 계산하는 순간제염계수를 이용한 기존 개발기법을 개선하여 방사성핵종 누적량 평가프로그램을 개발하였다.[4,5,6]

### 3. 유사기법을 활용한 적용평가

개발 프로그램의 평가결과에 대한 검증을 위하여 국내 고리4호기의 정지수화학적처리 기간의 데이터를 바탕으로 입력데이터를 구성하고 핵종제거량 평가기법과의 비교분석을 수행하였다. 대상원전의 자료와 평가는 기존 연구에서 수행된 정지수화학적처리시 정화계통내 핵종제거량 평가자료와

평가기법(SCALP)을 활용하였다.[7] 핵종제거량 평가기법을 기준으로 한 상대평가 결과는 그림 1에서 나타내는 바와 같이 핵종제거량 평가기법의 결과와 본 개발기법의 평가결과는 각각 45.9Ci와 45.5Ci이며, 상대오차 1%미만으로 나타났다.

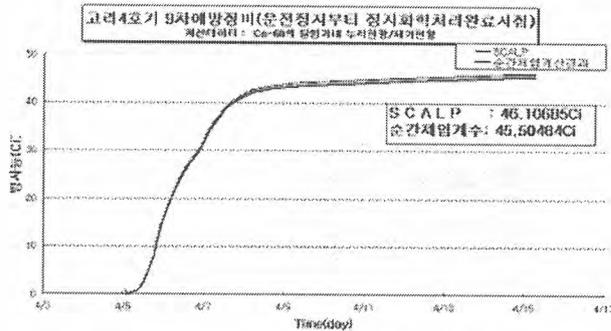


그림 1. 고리4호기 폐수지내 핵종제거량 및 누적량

#### 4. 상용원전의 실측값을 활용한 평가

##### 상용원전의 폐기물 핵종제거량 산출

상용 원전에서 발생하는 연간 방사성폐기물의 발생량을 Cline의 가정을 통하여 도출한 기존 연구의 산출값을 바탕으로 고리 2발의 폐기물 Stream 별 점유율을 산출하였다.[8] 그 결과 표 1에서 보는 바와 같이 폐수지 Steam중 일차계통에서 발생한 폐수지의 점유율은 약 80%가 된다.

표 1. 방사성폐기물 드럼의 연간 발생 방사능량 및 계통별 점유율 (고리2발) ※ KAERI-NEMAC/RR-116/94

	발생계통	함유량 (mCi/드럼)	폐수지내 점유율 (%)
폐수지	primary	1641.832	79.65%
	secondary	12.511	0.61%
	RWTS	269.97	13.1%
	Spend Feul	137	6.65%
	total	2061.31	100%

고리4호기의 평가기간(96.4.5 ~ 4.17)인 '96년의 폐수지의 발생량은 65드럼(190.158Ci)이다. 그러나 고리 4호기의 계획예방정비기간은 4월~6월중에 수행되었으며, 이에 4월 이후의 폐수지 발생량을 대상으로 하였다. 그 결과 평가대상 폐수지 발생량은 24드럼(83.976Ci)이 산출된다.[9] 고리 4호기의 계획예방 정비이후 발생된 폐수지의 총량 24드럼(84.057Ci)중 약 80%를 일차계통에서 발생된 폐수지 Stream으로 설정할 수 있다. 그 결과 해당 원전의 평가기간 동안 일차계통에서 발생된 폐수지의 방사성핵종 총 누적량은 67.24Ci가 된다.

국내 상용원전에서는 한 주기(약 1년)동안 사용한 일차계통 정화장치(이온교환수지)를 교체 후, 발생된 폐수지는 저장탱크로 이송되어 저장된다. 이후 폐수지 건조설비(SRDS)에서 건조 후, 고화

공정을 거쳐 드럼포장물화 된다.[10,11,12] 이 공정과정 중 폐수지는 각 드럼 내 분포비 또한 균일하다면 그림 2와 같이 핵종별 함유율을 산정할 수 있다. 이에 상용원전 일차계통에서 발생된 폐수지내 Co-60핵종의 폐기물 드럼 또는 일차계통 폐수지내 함유율은 34.27%로 산출된다.[8]

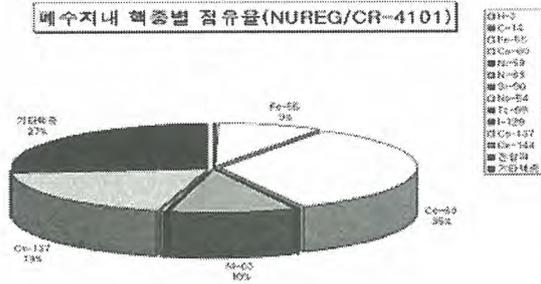


그림 2. 폐수지 드럼내 핵종별 점유율

- ※ NUREG/CR-4101에 의해 측정된 폐수지의 핵종별 방사능농도와 이에 근거한 드럼내의 핵종별 함유량
- 대상 : 일차계통 폐수지(Primary Coolant System), 연간 발생량기준
- 선정핵종 : 폐기물인도규정(개정안)에서 제시된 핵종(13종+전알파)

이와 같은 폐기물 Stream내 핵종 함유율 값을 적용하여, 그림 3와 같이 계측값을 근거로 한 폐수지내 각 핵종별 함유량을 산출하였다.

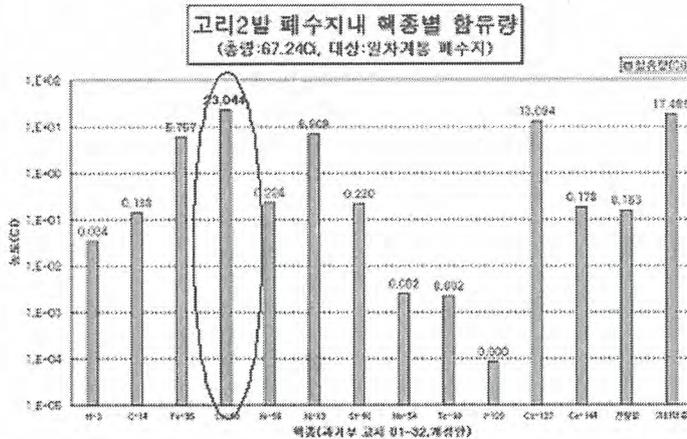


그림 3 고리2발 폐수지Stream내 핵종별 함유량

평가결과 그림 3에서 Co-60의 함유량은 23.04Ci이며, 이를 상용원전에서 활용하는 선량-농도 환산계산법에 근거한 '계측값'으로 설정한다.

계측값을 활용한 평가 결과

본 연구에서 개발한 프로그램의 고리4호기 계획예방 정비기간중 수화학 처리기간에 대한 평가

결과 Co-60의 누적량은 45.5Ci이다. 이에 대한 검증을 위하여 해당 원전의 '계측값'과의 비교평가를 수행하였다. 연구의 개발기법에서 산출한 값은 45.5Ci 이며, 이를 '계산값'으로 설정할 경우 각 값은 약 49%의 차이가 발생하였다.(표 2).

표 2. 고리2발에서 발생한 폐수지내 Co-60의 계산값과 계측값  
대상 : 1996년 발생 일차계통 폐수지

핵종	계측값(Ci)	계산값(Ci)	상대오차(%)
Co-60	23.04393	45.5	49.3

이와 같이 산출한 결과값을 '중·저준위 방사성폐기물 인도규정(개정안)'에서 제안하고 있는 천층처분 농도제한치와 비교하였으며, 유의미한 결과값을 갖는다.(표3)

표 3. 원전 일차계통 발생 폐수지내 핵종 함유량 및 농도 제한치 비교  
단위 :  $\mu\text{Ci}/\text{cc}$ \*

핵종	계측값	계산값	중/저준위폐기물인도규정 (개정안) 제한농도**
Co-60	18.5221	36.5717	1036

※ : 단위 함유량( $\mu\text{Ci}/\text{cc}$ )의 산출근거는 200L드럼을 기준으로 폐수지 고화 공정비(폐수지/물 /시멘트/첨가제 = 71  $\ell$  /71  $\ell$  /140kg/14kg)를 적용하였다.[8,10] 1개 드럼내 71  $\ell$ 의 폐수지가 함유되고, 총 폐수지의 함유량은 1,562  $\ell$ 를 산출하였다. 그 중 일차계통 발생 폐수지의 양은 79.65%이므로 총 1,244.133  $\ell$ 가 된다.

※※ : 개정안 제시단위인(Bq/g)에 폐수지밀도(1.0524g/cc)를 적용하여 산출값

## 5. 결론

본 연구는, '중·저준위 방사성폐기물 인도규정(개정안)'에서 제시하고 있는 직접측정 방법과 간접측정 방법을 활용하여 방사성폐기물의 핵종재고량 평가방안을 확립하였다. 본 연구 결론은 첫째, 간접측정 방법중 '물질수지법'을 활용하여 특정기간동안 발생한 폐기물의 핵종재고량을 평가하였다. 본 평가의 검증을 위하여 기존 개발된 유사기법과의 비교를 수행하였으며, 그 결과 상대오차 1%미만으로 적용 가능함을 확인하였다. 둘째, 상용원전에서 제시하고 있는 특정기간 발생한 폐기물의 직접측정 결과('계측값')와 비교하였고, 평가결과 직접측정 방법에 의한 Co-60의 함유량은 본 연구의 개발기법에서 산출한 값보다 약 50% 작은 것으로 확인하였다. 이에 본 연구의 '계산값'이 '중·저준위 방사성폐기물 인도규정'의 제시안을 만족함을 알 수 있으며, 직/간접측정을 활용한 방사성폐기물 핵종재고량 평가 방안을 제할 수 있음을 확인하였다. 그러나, 본 연구에서 활용한 '계측값/실측농도'의 근거 자료가 과거 선량-농도 환산 방법에 의해 산출된 값을 고려하여야 한다. 또한 아직 국내 척도인자(SF)에 대한 연구가 진행중인 단계이므로 향후 국내 상용원전별

고유의 SF의 설정과 적용방안이 확정된다면, 이를 바탕으로 주요 DTM핵종에 대한 평가의 수행이 가능할 것이다.

### 감사의 글

이 논문은 산업자원부에서 시행한 전력산업 인프라구축지원 사업으로 수행된 논문입니다

### 참고문헌

1. 이병일, ERP를 이용한 원전 방사성폐기물 관리 최적 모델링 연구, 한양대학교 석사학위논문, 2004
2. 이강무 외, 방사성폐기물 핵종분석 기술 및 장치 - 소내 방사성폐기물 핵종분석방안, 한국원자력연구소, KAERI/TR-2879, 2004
3. 방사성폐기물 처분을 위한 핵종 재고량 평가방법에 관한 연구, 한국원자력안전기술원, 2004
4. 이재민, 원자력발전소 냉각수 정화장치의 방사능량 예측기법, 경희대학교 석사학위논문, 1997
5. 윤선홍, 폐수지, 폐필터에서의 방사능량 예측 기법, 경희대학교, 석사학위논문, 1995
6. 권준현, 액체폐기물 처리계통에서 발생하는 중저준위 방사성폐기물의 방사능량 예측, 서울대학교 석사학위논문, 1991
7. 성기방 외, 원자로 정지시 일차측 화학처리 공정개발, 전력연구원, 1997
8. 한필수 외, 처분안전성연구, 제3권 선원항 평가 및 검증, 과학기술부, 1994
9. 원자력발전소 방사선관리 연보, 한국전력공사, 1996
10. 방사선기술부 절차서 - 영광, 고리, 울진, 한국수력원자력(주)
11. 화학기술부 절차서-영광, 고리, 울진, 한국수력원자력(주)
12. 영광 1&2호기, 영광 3&4호기, 영광5&6호기 최종안전성 분석보고서
13. U. S. NRC, "Licensing Requirement for Land Disposal of Radioactive Waste", 10.CFR.61.
14. Alain Lemmens, Radwaste cheacterization, Belgatom, Belgium, 2000
15. 차세대 원자로 기술계발(II), 폐기물 처리건물 최적화 및 동선분석(Vol.11), 과학기술부, 1998

## A Study on the Statistical Representativeness of Samples taken from Radioactive Soil

### 방사성 토양폐기물 시료의 통계적 대표성에 관한 연구

Han-Seok Cho, T.K. Kim, K.M. Lee, S.J. Ahn, J.S. Shon

Korea Atomic Energy Research Institute, P.O.Box 105, Yuseong, Daejeon, Korea

조한석, 김태국, 이강무, 안섭진, 손종식  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

#### Abstract

For the treatment of regulatory clearance of the soils, a procedure for the radionuclides and radioactivity concentration analysis is under development. A strategy for soil sampling including random sampling after homogenization and standardization was set up. Statistical representativeness is considered for not only sampling strategy but also sample size. In this study, designed sample size was designed with confidence interval and error bound of soil using the pilot samples which were taken following the sampling strategy.

**Key Word** : Sampling of Soil, Sample Size, Regulatory Clearance, Analysis of Radioactivity, Radioactive Waste, Waste Treatment

#### 요 약

한국원자력연구소에서는 토양폐기물의 규제해제를 통한 처리를 위하여 토양의 핵종 및 방사능 분석에 대한 절차를 개발하고 있다. 토양의 규제해제를 위한 기반작업으로 대표성 있는 시료를 추출하기 위하여 균질화, 평균화를 거쳐 임의추출(random sample)하는 시료추출의 방법론을 결정하였다. 통계학적인 관점에서의 대표성은 시료추출의 방법론 뿐 만 아니라 시료의 크기를 얼마로 할 것인가에 대한 설계가 선행 되어야 한다. 본 연구에서는 토양폐기물에서 시료를 채취하는 절차에 따라 예비시료를 추출한 후 핵종 및 방사능평가 작업을 수행한 결과를 사용하여 신뢰구간과 오차 한계에 따른 시료의 개수를 산정하였다.

**중심단어** : 토양 시료, 시료의 크기, 토양, 규제해제, 방사능분석, 방사성폐기물, 폐기물처리

#### 1. 서 론

한국원자력연구소에 현재 임시저장하고 있는 방사성폐기물 중 1988년 서울사무소의 폐쇄 과정에서 발생한 토양 및 콘크리트 드럼이 4,500드럼 정도가 보관되어 있다. 이 중 3,150여 드럼의 토양폐기물은 발생 당시부터 방사능 준위가 높지 않았으며, 토양내 존재하고 있는 주요 방사성 핵종이 Co-60과 Cs-137로 각 핵종의 반감기를 고려하였을 때 16년의 저장기간 동안 방사능 농도가 많이 낮아졌을 것으로 판단할 수 있다. 따라서 토양에 대한 방사능 분석을 수행하여 규제해제 대상으로 분류하는 방안을 고려하고 있다.

규제해제 대상폐기물에 함유된 방사능을 가장 정확하게 평가하는 방법은 폐기물 전체에 대한 방사능분석을 수행하는 것이다. 그러나 폐기물전체에 대한 방사능 분석은 현실적으로 불가능하며 비용과 효율의 측면에서도 바람직하지 않다. 따라서 전체 폐기물 중 일부에 대한 방사능 분석결과를 이용하여 전체 폐기물의 방사능 농도를 추정하는 방안이 고려되어야 한다. 일반적으로 토양폐기물에 대한 시료의 대표성은 균질화, 평균화를 거쳐 임의추출(random sample)된 시료를 분석하여 확보 할 수 있다는 시료추출의 방법론이 알려져 있다.<sup>1)</sup>

통계학적인 관점에서의 대표성은 시료추출의 방법론 뿐 만 아니라 시료의 크기를 얼마로 할 것인가에 대한 설계가 선행 되어야 한다. 시료의 크기(sample size)는 데이터의 변동(data variation)을 조절하기 위하여 통계적 추정량의 신뢰구간(confidence interval)과 오차한계(error bound)를 설정해야 한다. 본 연구에서는 균질화, 평균화를 거쳐 추출된 토양폐기물 예비시료(pilot sample)의 방사능 결과값을 이용하여 신뢰구간과 오차한계에 따른 시료의 크기를 제시한다.

본 논문에서 제시되는 오염토양의 시료추출방법과 시료의 크기에 대한 결과는 향후 원자력시설의 폐쇄 작업에서 대량으로 발생하는 토양 폐기물의 처리과정에서 활용될 수 있을 것이다.

## 2. 시료의 대표성 확보에 대한 국내의 사례

한국원자력안전기술원의 규제해제 시 시료 및 측정결과의 대표성 확보방안은 크게 두 가지이다. 첫째, 균질화 방안으로 동일한 종류의 폐기물 전체를 균일하게 혼합하여 채취한 시료에 대한 방사능 분석결과 이용하는 방법과 둘째, 평균화 방안으로 동일한 종류의 폐기물 중 무작위로 다수의 시료를 채취하여 분석된 방사능 농도의 평균치를 적용하는 방법이다. 대부분의 경우 균질화와 평균화를 함께 고려하여 적용하여야 함을 권고하고 있다.<sup>1)</sup> 또한 자체처분에 있어서 단위 폐기물 수량에 대한 방사능 측정 시 평균화를 인정할 수 있는 최대 폐기물의 양은 200kg 또는 200리터이며 채취된 시료의 양은 당해 시료가 대표하는 폐기물의 1/200 이상이어야 한다고 제시하면서 동시에 신청자는 채취된 시료가 대상 폐기물 단위 수량의 대표성을 확보하고 있음을 입증하여야 한다고 권고하고 있다.<sup>2)</sup>

IAEA-TECDOC-855에 제시된 권고안은 규제해제 적용의 타당성을 검증하기 위한 시료채취 및 측정방법에 대한 것으로, 대상 폐기물을 그 종류 및 발생원에 따라 가능한 균일하게 분류하고 해당물질에 적합하게 평균화가 허용되는 최대 면적 또는 질량 단위를 결정하여야 한다고 제시되어 있다. IAEA-TECDOC-1000에는 단일 포장물의 폐기물을 최소한 10개 이상으로 분할하고 각 분할체의 방사능을 측정하여야 한다고 제시되어 있다. IAEA Technical Report 383에는 좀 더 구체적인 시료채취 기준이 나와 있는데, 용기 내 폐기물의 방사능에 대한 정규분포(Normal Distribution)를 가정할 수 없는 경우, 포장물 내의 폐기물을 종류별로 분리하여 각각의 시료를 채취하도록 권고하고 있다.

미국의 EPA/600/4-90/013에서는 정규분포 또는 정규분포로 변환할 수 있는 경우, 특정 신뢰도를 확보하기 위하여 요구되는 시료의 개수를 Table 형태로 제시하고 있다. 또한 모집단의 실제 분산(variance)에 대한 추정의 정밀도는 추정의 자유도(degree of freedom)에 따라 달라지며, 추정의 자유도는 시료의 개수와 직접적인 관련이 있다고 제시되어 있다.

대부분의 국가에서 제시된 권고안은 주로 넓은 대지의 토양이 오염된 경우에 대한 방사능 평가 방법에 대한 것이다.

## 3. 저장 중인 토양폐기물의 특성

현재 연구소에 임시저장하고 있는 토양폐기물은 1988년 서울사무소의 폐쇄 시 표면선량이 기준치 이상으로 측정된 지역의 토양을 지적하면서 굴삭기를 이용하여 200리터 포장용기에 포장하였다. 따라서 단위 폐기물의 방사능농도는 각각의 단위포장물(드럼) 내 편차가 작고, 드럼 간의 편차

는 어느 정도 있을 것으로 추정할 수 있다. 즉, 당시 토양폐기물의 포장 작업 과정에서의 방사능 농도는 드럼 내 편차 보다는 드럼 간의 편차가 더 크게 진행 되었다고 볼 수 있다.

발생당시의 핵종분석 결과도  $\gamma$ -선 방출핵종은 Co-60과 Cs-137만이 검출되었고, 방사능농도 값도 그리 높지 않음을 나타내고 있다.

전체적인 토양폐기물의 방사능농도 값은 0에 가까운 값으로 추정할 수 있다. 따라서 0에 가깝지만 음수로 나타나지 않는 방사능농도 값을 고려 할 때, 오염토양의 방사능농도 값은 좌우대칭인 정규분포를 따른다고 가정하기는 어렵다고 볼 수 있다.

#### 4. 토양폐기물의 시료추출 방법

시료를 추출할 때 가능한 한 모집단을 잘 반영할 수 있는 표본을 선택해야 한다. 대표성이 있는 표본이라면 모집단의 모든 특성을 그대로 반영하는 축소판 이어야 하지만, 물론 그러한 완벽한 표본은 존재할 수 없다. 왜냐하면 모집단에 대해 전혀 알지 못하는 상태에서 현재 추출된 표본이 완벽한 표본인지 아닌지 누구도 장담할 수 없기 때문이다. 통계학에서는 어떻게 표본을 선택해야 모집단을 대표하는가에 대한 방법론으로 임의표본(random sample)을 제시하고 있다.

규제기관 및 각국의 토양시료 추출 방법에 따른 권고안을 기준으로 균질화 및 평균화 방법에 타당하도록 시료추출 방법을 설정하였다. 시료 추출과정은 임의의 토양폐기물 드럼을 선정하여 표면선량률을 측정 후 Tray에 내용물을 쏟아 부어 골고루 펼친다. 이 단계에서 토양 이외의 이물질은 별도로 수집하고 전체적으로 균질하게 혼합하면서 표면선량률을 측정한다. 표면선량률이 높게 나오는 부분도 별도로 분류한다. 이러한 과정이 끝난 토양의 tray에 미리 만들어 놓은 10×10 grid를 얹어 토양을 전체적으로 100개의 구역으로 나눈다. 나누어진 각 구역에 일련번호를 1부터 100까지 부여한 후 최종 단계에서 균등분포(Uniform Distribution)을 이용하여 30개 정도의 난수(random number)를 생성한다. 임의로 정한 30개의 구역에서 시료를 채취하며, 통계적인 시료추출 방법론은 단순임의추출(SRS; Simple Random Sampling)을 사용하게 된다.

이때 얼마의 양을 시료로 추출하여야 단위 폐기물에 대한 대표성을 입증할 수 있는가에 대한 문제가 제기되고, 이에 대한 표본추출 시 대표성의 통계학적인 설명이 필요하다.

통계학적인 관점에서의 대표성은 시료추출의 방법론 뿐 만 아니라 시료의 크기를 얼마로 할 것인가에 대한 설계가 선행 되어야 한다. 시료의 크기(sample size)는 데이터의 변동(data variation)을 조절하기 위하여 통계적 추정량의 신뢰구간(confidence interval)과 오차한계(error bound)를 설정해야 한다. 일반적으로 알려진 모집단의 평균에 대한 추정 시 시료의 크기를 구하는 공식은 다음과 같다.

$$n = \left( \frac{ts}{e} \right)^2$$

여기에서,  $t$  : 신뢰도와 자유도에 따른  $t$ 분포 값,

$s$  : 예비시료의 표준편차,

$e$  : 최대 추정오차

위 식에서 시료의 크기는 예비시료의 표준편차가 크거나, 높은 신뢰도, 즉 유의수준( $\alpha$ )을 작게 하여  $t$ 값이 크거나, 정확도를 높혀  $e$  를 작게 할 때  $n$ 이 커지므로 시료의 크기를 정할 때는 이를 고려하여야 한다. 따라서 예비시료에서의 편차가 가능한 한 크게 하도록 하는 것이 시료의 크기를 크게 할 수 있으며, 보수성도 확보할 수 있다. 토양폐기물 발생 당시 서울사무소 지역의 토양에 대하여 포장 작업 과정에서의 방사능농도는 드럼 내 편차 보다는 드럼 간의 편차가 더 크게 진행

되었다고 볼 수 있으므로, 예비시료를 복수개의 단위폐기물(드럼)별로 추출하여 시료의 크기를 계산하는 식에 적용하는 것이 보수성을 확보할 수 있는 방안으로 판단된다. 앞서 제시한 시료추출 방법에 근거하여 12개 단위폐기물(드럼)별로 예비시료를 추출한 후 원자력환경연구부(KORAS 인증기관)에 의뢰하여 방사능농도를 분석한 결과는 표.1과 같다.

표 1. 토양폐기물 예비시료의 핵종 및 방사능농도 측정결과

시료번호	시료부피 (cc)	핵종별 방사능농도(Bq/g)	
		Cs-137	Co-60
1	150	7.5E-3 ± 5.0E-4	2.4E-2 ± 1.2E-3
2	150	3.7E-3 ± 4.0E-4	1.0E-2 ± 8.0E-4
3	150	4.1E-3 ± 3.0E-4	1.0E-2 ± 7.0E-4
4	150	1.2E-2 ± 6.0E-4	2.8E-2 ± 1.3E-3
5	150	7.1E-2 ± 3.0E-3	1.1E-2 ± 6.0E-4
6	150	1.5E-2 ± 8.0E-4	4.3E-2 ± 2.0E-3
7	150	1.1E-2 ± 6.0E-4	4.0E-2 ± 1.7E-3
8	150	1.3E-2 ± 7.0E-4	3.5E-2 ± 1.6E-3
9	150	2.2E-2 ± 1.0E-3	4.3E-2 ± 1.9E-3
10	150	1.4E-2 ± 7.0E-4	2.3E-2 ± 1.0E-3
11	150	2.5E-2 ± 1.1E-3	7.0E-2 ± 2.8E-3
12	150	2.8E-2 ± 1.2E-3	9.3E-2 ± 3.8E-3

표 1.에 나타나 있는 방사능농도 값은 불확실성정도를 알고 있는 측정값으로 평균과 최대값(평균+불확도)을 산정 할 수 있다. 또한 방사능농도 값은 0에 가깝지만 정규분포를 가정할 수 없다. 이러한 특성의 값을 로그변환하면 정규분포에 근사됨을 알 수 있다. 즉, 방사능농도의 분포는 로그 정규분포(Lognormal Distribution)에 근사 된다. 방사능농도 값의 분포와 이를 로그 변환한 값의 분포를 알아보기 위하여 그림 1에 히스토그램과 정규곡선을 표현하였다.

시료의 크기를 산정하기 위하여 예비시료의 방사능농도 값에 로그를 취한 방사능농도의 통계량을 표 2에 제시하였다. 관심이 있는 모수(parameter)는 두 가지로, Co-60과 Cs-137의 방사능농도 값이다. 두 가지 모수를 알기 위하여 예비시료의 통계량을 산출하였고, 변동계수(CV; Coefficient of Variance)를 사용하여 Co-60과 Cs-137 중 어느 것이 평균에 비하여 편차가 크게 나타나는지 알 수 있다. Co-60의 변동계수가 크므로 시료의 수를 산정할 때 편차가 더 큰 모수인 Co-60을 추정하는 것이 보수성을 확보할 수 있기 때문이다.

표 2. 토양폐기물 예비시료의 핵종 및 방사능농도 통계량 및 로그변환 값

구분		측정값				로그변환값(ln측정값)			
		방사능농도		방사능농도+불확도		방사능농도		방사능농도+불확도	
		Cs-137	Co-60	Cs-137	Co-60	Cs-137	Co-60	Cs-137	Co-60
시 료 번 호	1	0.0075	0.0240	0.0080	0.0252	-4.893	-3.730	-4.828	-3.681
	2	0.0037	0.0100	0.0041	0.0108	-5.599	-4.605	-5.497	-4.528
	3	0.0041	0.0104	0.0044	0.0111	-5.497	-4.566	-5.426	-4.501
	4	0.0118	0.0282	0.0124	0.0295	-4.440	-3.568	-4.390	-3.523
	5	0.0707	0.0105	0.0737	0.0111	-2.649	-4.556	-2.608	-4.501
	6	0.0151	0.0426	0.0159	0.0446	-4.193	-3.156	-4.141	-3.110
	7	0.0113	0.0401	0.0119	0.0418	-4.483	-3.216	-4.431	-3.175
	8	0.0131	0.0350	0.0138	0.0366	-4.335	-3.352	-4.283	-3.308
	9	0.0222	0.0432	0.0232	0.0451	-3.808	-3.142	-3.764	-3.099
	10	0.0144	0.0228	0.0151	0.0238	-4.241	-3.781	-4.193	-3.738
	11	0.0253	0.0702	0.0264	0.0730	-3.677	-2.656	-3.634	-2.617
	12	0.0279	0.0932	0.0291	0.0970	-3.579	-2.373	-3.537	-2.333
평균		0.0189	0.0359	0.0198	0.0375	-4.283	-3.559	-4.228	-3.509
표준편차		0.0180	0.0251	0.0187	0.0260	0.821	0.732	0.807	0.723
변동계수		0.9523	0.6994	0.9445	0.6940	0.192	0.206	0.191	0.206

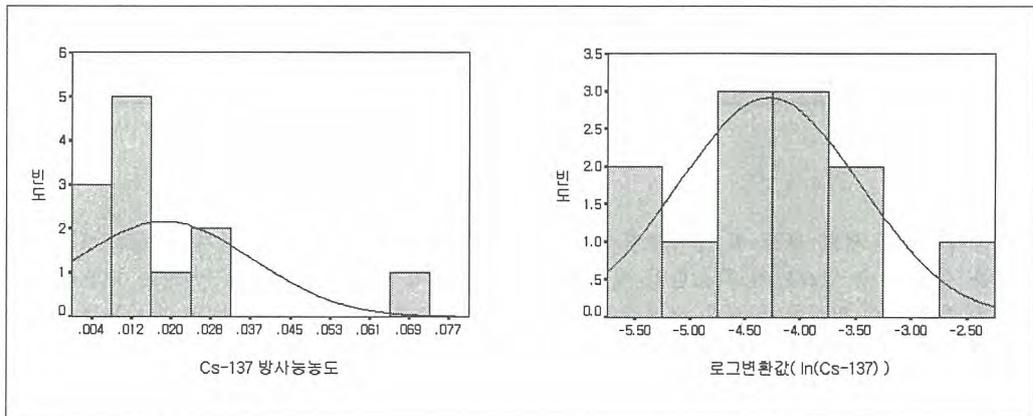


그림 1. 방사능농도값의 로그변환

### 5. 통계적인 시료의 크기 산정

12개 예비시료를 1회 방사능농도 측정 시 그 부피는 150cc이다. 따라서 시료단위(sample unit)를 150cc로 정하고, 편차를 크게 하여 보수성을 확보하기 위해 12개 예비시료를 단위폐기물(200리터 드럼)에서 추출된 것이라고 할때, 모집단 즉, 단위폐기물은 1,333개의 시료가 된다. 신뢰구간을 95%, 98%, 99%로 변화시키면서 예비표본의 표준편차를 1배, 2배, 3배로 최대허용오차를 변화시키면서 시료의 개수를 산정하였으며, 표 3은 이러한 결과를 요약한 표이다.

신뢰구간	t (자유도=11)	핵종	최대허용오차 (e)	시료의 개수 (150cc 기준)
95%	2.201	Co-60의 방사능농도	0.732 (s)	4.85
			1.464 (2s)	1.21
			2.196 (3s)	0.54
		Co-60의 방사능농도+불확도	0.723 (s)	4.84
			1.446 (2s)	1.21
			2.169 (3s)	0.54
98%	2.718	Co-60의 방사능농도	0.732 (s)	7.39
			1.464 (2s)	1.85
			2.196 (3s)	0.82
		Co-60의 방사능농도+불확도	0.723 (s)	7.38
			1.446 (2s)	1.85
			2.169 (3s)	0.82
99%	3.106	Co-60의 방사능농도	0.732 (s)	9.66
			1.464 (2s)	2.41
			2.196 (3s)	1.07
		Co-60의 방사능농도+불확도	0.723 (s)	9.64
			1.446 (2s)	2.41
			2.169 (3s)	1.07

### 6. 결론

토양폐기물의 시료 추출 및 방사능평가에 있어서 시간과 비용의 문제가 제기 되므로 시료의 대표성을 설명할 수 있으면서 최소한의 시료를 추출하는 것이 필요하다. 본 연구에서는 대표성 있는 시료를 추출하기 위하여 작성된 작업절차에 따라 예비시료를 추출한 후 핵종 및 방사능농도의 측정값을 활용하여 통계적으로 보수적인 시료의 수를 산정하였다. 95%신뢰구간에서는 약 5개, 98%신뢰구간에서는 약 8개, 99% 신뢰구간에서는 약 10개 정도의 150cc의 시료가 필요하다.

향후 다양한 원자력시설의 폐쇄 과정에서 방사성 오염도양의 발생은 필연적이므로 본 연구에서 고려한 시료의 수에 대한 산정 방법은 타 연구에서 충분히 활용될 수 있을 것으로 판단된다.

참 고 문 헌

1. 방사성폐기물 규제기술개발 - 방사성폐기물 규제해제 요건 개발, 한국원자력안전기술원, KINS/RR-144 (2002).
2. 극저준위 폐기물 자체처분에 관한 규제입장(안), 한국원자력안전기술원, 제6회 원자력안전기술 정보회의 (2000)
3. 표본조사방법론, 성내경, 자유아카데미 (2005)
4. 분석화학에서 이용하는 통계적 방법, 한국원자력연구소, KAERI/TR-843/97 (1997)
5. Preparation of Soil sampling Protocols, EPA/600/R-92/128 (1992)
6. Soil Sampling for Environmental Contaminants, IAEA, TECDOC-1415 (2004)

# 빈 면

제2-1분과  
방사성폐기물 처리  
(Poster)

# 빈 면

## Radioactivity Analysis of Soils Stored in KAERI for Regulatory Clearance

연구소 내 저장 중인 토양의 규제해제를 위한 방사능 분석

D.S. Hong, T.K. Kim, I.S. Kang, H.S. Cho and J.S. Shon

Korea Atomic Energy Research Institute, P.O.Box 105, Yuseong, Daejeon, Korea

홍대석, 김태국, 강일식, 조한석, 손종식  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

### Abstract

In KAERI, about 3,100 drums containing soil have been stored. The soils were generated from the decommissioning process of Seoul office in 1988. Those soils occupy about 27% of the capacity of the radioactive waste storage facility and make it difficult to maintain the storage facility. The major radioactive nuclides contained in the soils were expected to be Co-60 and Cs-137. As 16 years have passed, the radioactivity of those nuclides have decayed a lot. In this study, as a basis of regulatory clearance, radionuclides and radioactivity concentration of soils were analyzed. As a result, there are only Co-60 and Cs-137 in soils as  $\gamma$ -emitters. The total concentration of  $\gamma$ -emitters in soil is analyzed as about 0.01 ~ 0.12 Bq/g. As the soils are expected to be regulatory cleared in 2009, those concentrations will decay to be less than 0.1 Bq/g. This concentration can be meet the regulatory criteria suggested by IAEA. The regulatory clearance will be proceeded based on not only the assessment results of environmental influence but also related regulations.

**Key Word** : Soil, Regulatory Clearance, Analysis of Radioactivity, Radioactive Waste, Waste Treatment

### 요 약

현재 원자력연구소의 방사성폐기물 저장시설에는 1988년 서울사무소의 폐쇄 과정에서 발생한 토양 약 3,100여 드럼이 저장되고 있다. 이 토양은 시설 저장용량의 약 27%를 차지하고 있어 포화용량에 도달하고 있는 저장시설의 운영 및 관리를 어렵게 하는 요인이 되고 있다. 그러나 토양 내에 함유되어 있는 주요 핵종이 Co-60과 Cs-137이며 저장한 기간이 16년가량 경과하였으므로 발생초기보다 방사능 농도가 많이 낮추어졌을 것으로 평가되고 있다. 본 연구에서는 토양의 규제 해제를 위한 기반작업으로 토양의 핵종 및 방사능평가 작업을 수행하였다. 작업을 위하여 작업절차서의 개발, 밀폐형 작업실의 제작 등이 이루어졌으며, 시료의 채취를 통한 방사선학적 특성 분석이 수행되었다. 분석 결과 토양에 함유된  $\gamma$ -선 방출핵종은 Co-60과 Cs-137만이 존재하는 것으로 나타났으며, 전체  $\gamma$ -선 방출핵종의 농도는 약 0.01 ~ 0.12 Bq/g 인 것으로 평가되었다. 현재 토양의 규제해제를 예상하고 있는 시점인 2009년이 되면 이러한 농도는 더욱 낮아져 0.1 Bq/g 미만이 되며, 이러한 농도는 현재 IAEA에서 제시하고 있는 규제해제 농도를 만족시키는 수준이 될 것이다. 또한, 토양의 규제해제는 이러한 농도 기준 외에도 환경영향평가를 통하여 국내의 원자력법에 적법하도록 처리될 것이다.

중심단어 : 토양, 규제해제, 방사능분석, 방사성폐기물, 폐기물처리

## 1. 서 론

원자력연구소의 제1 방사성폐기물 저장시설은 연간 320드럼 정도의 방사성폐기물이 지속적으로 발생될 경우 2006년도에는 용량의 포화에 도달하게 된다. 현재 보관하고 있는 방사성폐기물 중에는 1988년 발생한 토양이 시설 저장용량의 약 27%를 차지하고 있어 이의 처리를 통한 저장 공간의 확보가 시급한 실정이다.

그러나 토양 폐기물은 발생 당시부터 방사능 준위가 높지 않았으며, 토양 내 존재하고 있는 주요 방사성 핵종이 Co-60과 Cs-137로 각 핵종의 반감기를 고려하였을 때 16년간의 저장기간 동안 방사능 농도가 많이 낮아졌을 것으로 판단할 수 있다. 따라서 원자력연구소에서는 이러한 토양의 규제해제를 통한 처리를 위하여 토양의 핵종 및 방사능 재평가 작업을 수행하고 있다. 본 논문에서는 이러한 작업을 위하여 개발된 작업절차 및 수행된 방사능농도 분석결과 규제해제 방안 등을 소개하였다.

본 논문에서 제시되는 작업절차 등은 현재 토양폐기물과 혼재되어 있는 콘크리트 파쇄 폐기물의 처리와 향후 원자력시설의 폐쇄 작업에서 발생하는 토양 및 콘크리트의 처리 과정에서 활용될 수 있을 것으로 판단된다.

## 2. 현황 및 추진일정

원자력연구소의 제1 방사성폐기물 저장시설은 11,500드럼의 용량을 가지고 있으며 연간 320드럼 정도의 방사성폐기물이 지속적으로 발생될 경우 2006년도에는 용량의 포화에 도달하게 된다. 현재 보관하고 있는 방사성폐기물 중에는 1988년 서울사무소의 폐쇄 과정에서 발생한 토양 및 콘크리트 드럼이 4,500드럼 정도가 보관되어 있다. 4,500드럼은 그림 1과 같이 구성되어 있으며 3,150여 드럼의 토양과 1,290여 드럼의 콘크리트로 전체 저장용량의 약 39%를 차지하고 있어 포화용량에 도달하고 있는 저장시설의 운영 및 관리를 어렵게 하는 요인이 되고 있다. 그 중에서도 토양은 시설 저장용량의 약 27%에 해당하고 있으므로 이의 처리를 통한 저장 공간의 확보가 시급한 실정이다.

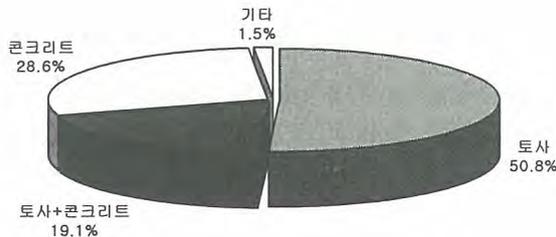


그림 1. 1988년 발생한 토양 및 콘크리트 폐기물의 구성비

원자력연구소에서 고려하고 있는 토양 및 콘크리트의 규제해제 일정은 그림 2와 같이 2004년도 부터 내·외부에서 저장용량 포화에 대한 지적이 있었으며, 2006년도에는 저장용량의 포화에 도달하게 된다.

처리 대상으로 고려하고 있는 토양 폐기물은 발생 당시부터 방사능 준위가 높지 않았으며, 토양 내 존재하고 있는 주요 방사성 핵종이 Co-60과 Cs-137로 각 핵종의 반감기를 고려하였을 때 16 년가량의 저장기간 동안 방사능 농도가 많이 낮아졌을 것으로 판단할 수 있다. 그러므로 토양을 일차적인 처리 대상으로 고려하고 있으며, 작업이 좀 더 까다로울 것으로 판단되는 콘크리트를 그 이후에 처리하여 규제해제 대상과 방사성폐기물로 분류한 뒤 2009년도 후반에 연구소 내의 부지에 자체처분하는 방안을 고려하고 있다.

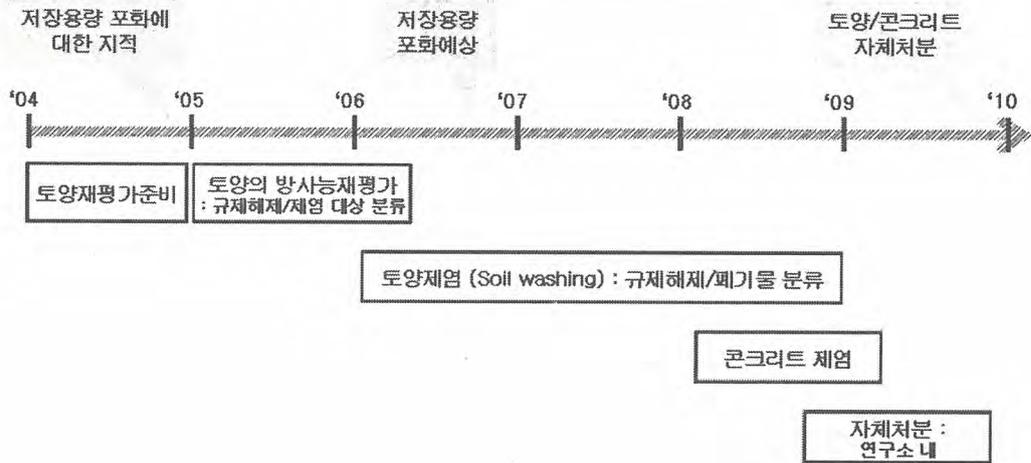


그림 2. 연도에 따른 자체처분 추진방안

### 3. 토양의 핵종 및 방사능 농도 측정을 위한 작업절차

토양의 핵종 및 방사능 농도 측정을 위하여 개발한 작업절차를 그림 3에 간단히 나타내었다. 본 작업의 대상은 1988년도 포장당시 측정된 표면선량률이 0.3  $\mu\text{Sv/hr}$ 인 드럼 중 내용물이 토양으로 표기된 것들로 제한된다. 이러한 것들은 전체적으로 약 1,500드럼이 된다. 선정된 드럼은 크레인으로 이송되어 밀폐형 작업실에서 개봉을 하게 되고 내용물 확인을 수행하게 된다. 표기된 것과 드럼의 실제 내용물은 다를 경우가 있는데 이를 크게 콘크리트, 토양, 기타로 구분하여 별도로 수집한다. 내용물 확인이 끝난 드럼은 드럼의 전, 후, 좌, 우, 상, 하의 6곳에서 표면선량률을 측정하게 되며 최대값을 기록하게 된다. 표면선량률 측정이 끝난 드럼은 Tray에 내용물을 쏟아 부어 펼치게 된다. 이 단계에서도 토양 이외의 이물질은 별도로 수집하게 되며 드럼의 부식이 확인되어 재사용이 어려울 경우 드럼을 교체한다. Tray에 펼쳐 이물질의 분리가 끝난 토양은 전체적으로 균질하게 섞은 뒤 표면선량률 측정을 하게 되고 선량률이 높게 나오는 부분은 별도로 떼내서 분류한다.

이러한 과정이 끝난 토양의 tray에 미리 만들어 놓은 10×10 grid를 얹어 토양을 전체적으로 100 개의 구역으로 나눈다. 그 뒤 임의로 정한 30개의 구역에서 토양을 조금씩 채취하여 2ℓ용량의 시료채취용 용기에 담고 tray의 나머지 토양은 원래의 드럼 또는 교체된 드럼에 담는다. 채취한 시료 중 일부는 방사능 측정을 위해 사용되고 나머지는 측정 결과의 검증 등을 위해 장기간 보관하게 된다. 방사능 측정결과가 나오면 그 결과에 따라서 전체  $\gamma$ 선의 농도가 0.4 Bq/g 미만일 경우는 규제해제 대상으로 분류하며 그렇지 않을 경우는 방사성폐기물로 분류하여 지정된 장소에 각각 적절하게 된다. 각 단계 중 몇 가지를 그림 4에 사진으로 나타내었다.

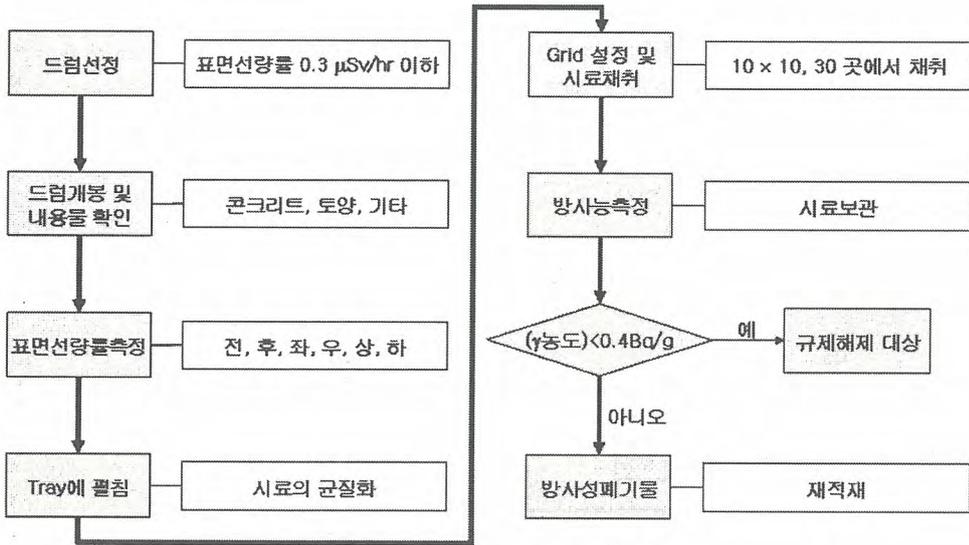


그림 3. 토양의 핵종 및 방사능 농도 평가를 위한 작업절차



그림 4. 토양시료 채취를 위한 작업절차

#### 4. 핵종 및 방사능 농도 평가결과

현재까지 작업한 토양 중 일부분에 대한 핵종 및 방사능 농도분석 결과는 표 1과 같다. 표에서 제시한 결과는 토양만을 약 150 cc 정도 채취하여 분석한 것이며 시료의 무게가 편차를 나타내는 것은 수분함유량 및 입자 크기의 분포가 다르기 때문에 발생하는 것이라 판단된다. 핵종 분석 결과 토양 내에 함유된  $\gamma$ 선 방출핵종은 Co-60과 Cs-137만 존재하는 것으로 분석되었다.

각 핵종의 농도 분포를 살펴보면 표 2에 나와 있는 것처럼 Co-60은 최대 0.093 Bq/g, 평균적으로 0.055 Bq/g의 방사능 농도를 나타내며 Cs-137은 최대 0.070 Bq/g, 평균적으로 0.019 Bq/g의 방사능 농도를 나타내어 Co-60의 방사능 농도가 Cs-137의 방사능 농도보다 비교적 높은 것을 알 수 있다. 자체처분을 고려하고 있는 2009년도를 기준으로 하여 Co-60 ( $T_{1/2} = 5.3$ 년)과 Cs-137 ( $T_{1/2} = 30.2$ 년)의 방사능을 평가해보면, 현재의 방사능 농도와 비교할 때 Co-60의 경우는 약 58%만이, Cs-137의 경우는 약 81%만이 남게 된다. 이 경우 토양이 가지고 있는 전체  $\gamma$ 방출 방사성 핵종에 대한 농도는 표 1에 나타나 있는 바와 같이 0.01 ~ 0.08 Bq/g이 된다.

표 1. 토양 시료의 핵종 및 방사능농도 측정결과

시료번호	무게 (g)	핵종	방사능농도 (Bq/kg)	총방사능 농도(Bq/g)	2009년도 예상농도(Bq/g)
1	196.3	Cs-137	7.5±0.5	0.03	0.02
		Co-60	24.0±1.2		
2	222.2	Cs-137	3.7±0.4	0.01	0.01
		Co-60	10.0±0.8		
3	233.7	Cs-137	4.1±0.3	0.01	0.01
		Co-60	10.4±0.7		
4	210.0	Cs-137	11.8±0.6	0.04	0.03
		Co-60	28.2±1.3		
5	242.0	Cs-137	70.7±3.0	0.08	0.06
		Co-60	10.5±0.6		
6	213.8	Cs-137	15.1±0.8	0.06	0.04
		Co-60	42.6±2.0		
7	211.5	Cs-137	11.3±0.6	0.05	0.03
		Co-60	40.1±1.7		
8	210.5	Cs-137	13.1±0.7	0.05	0.03
		Co-60	35.0±1.6		
9	205.6	Cs-137	22.2±1.0	0.07	0.04
		Co-60	43.2±1.9		
10	203.0	Cs-137	14.4±0.7	0.04	0.02
		Co-60	22.8±1.0		
11	230.3	Cs-137	25.3±1.1	0.10	0.06
		Co-60	70.2±2.8		
12	247.5	Cs-137	27.9±1.2	0.12	0.08
		Co-60	93.2±3.8		

표 2. 토양시료 내 방사성 핵종의 평균농도

(단위 : Bq/g)

핵종	최소	최대	평균
Cs-137	0.004	0.070	0.019
Co-60	0.010	0.093	0.036
전체 $\gamma$ 방출 핵종	0.014	0.121	0.055

## 5. 규제해제 방안

규제해제는 신규 선원 및 행위를 처음부터 규제 대상에서 제외하는 규제배제와는 달리 기존에 규제대상이던 선원 및 행위를 규제 대상에서 제외하는 것 (Regulatory control is removed)으로 정의될 수 있다[1]. 이러한 규제해제는 방사성폐기물의 경우 시간이 경과함에 따라 방사능이 일정한 비율로 감소되며, 매립·소각·재활용 등의 과정에서 일반폐기물과 혼합됨에 따라 방사능의 농도가 감소될 것으로 예상되므로 타당성이 뒷받침된다.

국내의 규제해제는 선량기준으로 '개인에 대한 연간 피폭방사선량이 10  $\mu$ Sv 미만, 집단에 대한 연간 총 피폭방사선량이 1 man·Sv 미만'[2]으로 제시되어 있으며 일부 핵종에서는 농도 기준으로 제시되고 있으나 본 연구에서 대상으로 하고 있는 토양 내 주요 방사성 핵종인 Co-60과 Cs-137에 대해서는 핵종농도 기준이 제시되지 않고 있다.

Co-60과 Cs-137의 규제해제를 위한 IAEA의 잠정적인 기준으로는 각각 0.1 Bq/g이 제시되고 있으며 두 핵종의 농도 합도 0.1 Bq/g을 넘지 않도록 제시되고 있다[3]. 이를 기준으로 표1의 방사능농도 분석결과를 보면 현재로서는 기준치를 넘어서지만, 규제해제를 고려하고 있는 2009년에는 모두 기준치를 만족시키는 것으로 판단된다. 그러므로 고려하고 있는 1988년 발생 토양은 분류작업과 방사능 재평가를 통해 2009년도에는 자체처분이 가능할 것으로 예상된다.

원자력연구소에서는 2009년도에 연구소 내 자체처분을 위한 부지를 설정하고 환경영향평가를 통한 자체처분을 고려하고 있으므로 현재의 법체계 및 향후 예상되는 국제적인 기준을 충분히 만족시킬 수 있을 것으로 판단된다. 또한 별도의 처리 없이도 자체처분이 가능한 토양이므로 안전하게 자체처분 및 관리할 수 있을 것으로 판단된다.

## 6. 결론

원자력연구소의 제1 방사성폐기물 저장시설은 11,500드럼의 용량을 가지고 있으며 2006년도에는 용량의 포화에 도달하게 된다. 현재 보관하고 있는 방사성폐기물 중에는 1988년 발생한 토양이 시설 저장용량의 약 27%에 해당하고 있으므로 이의 처리가 시급한 실정이다.

본 연구에서는 발생당시부터 방사능준위가 낮았으며 저장기간 동안에도 방사성 붕괴를 통하여 준위가 상당히 낮아졌을 토양의 처리를 위하여 작업절차 및 방사능농도 평가를 수행하였다.

작업절차는 크게 드럼선정, 드럼개봉 및 내용물 확인, 표면선량률측정, Tray에 펼침, Grid 설정 및 시료채취, 방사능측정 등으로 구분되어 있으며 총 8방출 핵종의 농도를 기준으로 0.4 Bq/g미만인 토양을 규제해제 대상으로 분류하고 있다.

이러한 절차를 따라 작업한 토양의 방사능농도 분석 결과를 보면 0.014 ~ 0.121 Bq/g의 농도를 나타내고 있다. 그러나 핵종별 반감기를 고려할 경우, 규제해제를 예상하는 시점인 2009년도에는 모두 0.1 Bq/g 미만으로 낮아질 것이므로 현재 IAEA에서 제시하고 있는 규제해제를 위한 핵종농도 기준을 만족시킬 것으로 판단되며, 연구소 내 자체처분을 고려하고 있으므로 국내 원자력법의 기준도 충분히 만족시킬 수 있을 것으로 판단된다.

향후 다양한 원자력시설의 폐쇄 과정에서 방사성 오염토양 및 콘크리트의 발생은 필연적이므로 본 연구에서 고려한 작업절차 등의 경험과 자료는 타 연구에서 충분히 활용될 수 있을 것으로 판단된다.

## 참 고 문 헌

1. 방사성폐기물 규제기술개발 - 방사성폐기물 규제해제 요건 개발, 한국원자력안전기술원, KINS/RR-144 (2002).
2. <http://www.most.go.kr>, '방사성폐기물의 자체처분에 관한 규정 (고시 2001-30)'
3. Derivation of Activity Concentration Values for Exclusion, Exemption and Clearance, IAEA, Draft Safety Report (2004).

## 방사성 폐기물 유리고화체의 화학적 특성

김지연, 김천우, 최종락, 문영표, 지평국, 박종길, 신상운

한국수력원자력(주) 원자력환경기술원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

유리화(vitrification)란 유해성물질들을 화학적으로 견고성이 뛰어난 유리구조안에 결합시키고 이 유해성물질들을 환경과 인간에게 영향이 없도록 영구적으로 가두는 환경친화적 처리기술이다. 방사성폐기물 유리화의 결과로 발생한 유리고화체는 처분환경에서 방사성물질들을 환경에 누출시키지 않고 장기간 보존하는 화학적 견고성이 다른 재료들 보다 뛰어난 장점을 가진다. 때문에 유리는 현존하는 재료 중 방사성폐기물 처리 매질로 가장 각광을 받고 있다. 원자력환경기술원은 그동안 개발한 유리조성들을 국제적으로 인증된 침출시험법들을 이용하여 침출시험들을 수행하고 분석하여 유리고화체들의 화학적 안정성을 비교 평가하고자 하였다. 원전에서 연간 발생하는 저방사성폐수지, 무기이온교환체(zeolite), 가연성잡고체(DAW)를 단독 또는 혼합하여 유리화 하기위해 두 가지 후보유리를 개발하였다. AG8W1은 저방사성폐수지와 zeolite, DAW가 일정하게 혼합된 폐기물 처리용 유리이며 DG-2 유리는 원전 가연성잡고체 중 PVC 함유 재료를 제외한 나머지를 혼합하여 유리화하기 위해 개발한 유리이다. 두 후보유리에 대한 개략적인 특성들을 표 1에 요약하였다.

표 1. 후보유리의 조성 및 계산된 물성 († : 1,150℃에서의 값임)

	후보유리	
	DG-2	AG8W1
SiO <sub>2</sub>	41.25	43.14
알카리 금속	20.65	20.44
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	11.29	9.97
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7.07	12.3
알카리 토금속	14.4	6.94
전이금속	0.37	5.57
기타	4.97	1.64
밀도 (g/cm <sup>3</sup> )	2.65	2.67
점도 (poise)†	10	67
전기 전도도 (S/cm)†	0.46	0.31
액상온도(℃)	745	758
미네랄 loading (wt%)	25	40
감용비	175	84

본 연구에서는 두 후보유리에 대한 화학적 견고성을 평가하기 위한 방법으로 두 가지 침출시험법을 사용하였다. 침출시험법은 크게 사용목적, 침출수 교체 등에 따라 분류할 수 있는데 그 중 첫 번째 침출시험법으로는 7일에서 120일 동안 두 후보 유리고화체의 주요 구성성분인 Na, B, Li, Si의 침출거동을 미국 고준위 유리화의 기준유리(SRL-EA)의 침출거동과 비교하기 위하여 US DOE PCT(Product Consistency Test)를 수행하였다. 100~200mesh(149~74 $\mu$ m) 크기의 유리시료 5g 정도를 취한 다음 용기(Stainless Steel Vessel 304L)에 넣고 유리의 표면적과 탈염수의 체적비(SA/V)가 2000m<sup>-1</sup> 이 되도록 하여 90℃ 온도에서 시험하였다. 침출시험법에서 후보 유리고화체로부터 침출된 원소들의 농도는 ICP-AES/MS를 사용하여 분석하였으며 침출액의 pH 거동 평가를 위하여 침출액은 실온까지 냉각 후 측정하였다. 유리고화체로부터 침출되어 나온 네 원소들의 농도를 분석하여 침출률을 평가한 결과 두 후보유리의 네가지 원소들에 대한 침출률은 기준유리 원소들의 침출률에 비해 낮음을 알 수 있었다. 대표적으로 7일 PCT 침출률에 대하여 두 후보유리와

기준유리의 결과를 그림 1에 나타내었다.

두 번째 침출시험법으로는 화학적 견고성을 위한 것으로 VHT(Vapor Hydration Test)을 수행하였다. 시편은 10×10×1.5mm<sup>3</sup> 으로 모든 면을 600grit의 SiC paper로 연마하였다. 탈염수와 아세트산으로 충분히 세척한 후 Parr 22ml T304 stainless steel vessel에 시편을 탈염수 0.25ml와 함께 취한 다음 200℃± 2℃에서 7일 동안 시험하였다. 시험을 마친 시편은 각 부분의 면을 측정하여 부식률(corrosion rate)을 구하였다. 미국 Hanford 저방사성폐기물(Low Activity Waste) 유리화에 대한 DOE 의 VHT의 기준은 50g/m<sup>2</sup>/day 이하로 규정되어 있는데, 원자력환경기술원에서 개발한 AG8W1, DG-2 후보유리는 훨씬 밀도는 결과가 나왔다. 본 VHT 시험은 Univ. of Missouri-Rolla의 Graduate Center for Materials Research에서 수행하였다.

결론적으로 향후 올진 유리화 시설의 상용운전을 위해 개발한 후보유리들의 화학적 견고성은 국제적으로 규제하고 있는 기준치들 보다 훨씬 낮은 상태로 안정화 되어 있어서 화학적 견고성이 매우 우수함을 입증하였다.

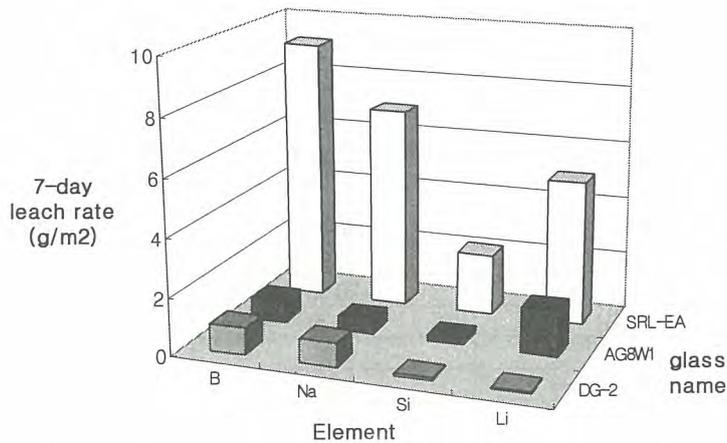


그림 1. 7-day leach rate of Candidate glasses and SRL-EA glass

## 방사성폐기물 유리화 공정 고온영역에서 배기체 유동해석

박승철, 김병렬, 박병철, 황태원, 신상운, 이진욱\*, 강원구\*  
 한국수력원자력(주) 원자력환경기술원, \*ATES(주)기업부설연구소

중·저준위 방사성폐기물의 유리화 실증시험을 위해 저온용융로, 배관냉각기, 고온집진기 등으로 구성된 실증설비에서의 실험을 통해 향후 상용설비의 설계에 필요한 많은 핵심적인 설계 개념을 확보하게 되었다. 그러나 유리화설비 내부에서 일어나는 유동현상을 실증시험만으로 정확하게 이해하는데 한계가 있으므로 원형설비에서의 방사성 입자거동을 이해하고, 상용설비의 시운전시 시행착오를 최소화할 필요가 있다. 아울러 운영과정에서 예상되는 설비개선에 효율적으로 대처하기 위해서는 특히 고온영역에서의 다양한 형상 또는 운전조건에서의 수치해석을 이용한 배기체 유동해석이 요구되고 있다.

이에 본 연구에서는 유리화설비 중에서도 비교적 고온영역에 속하는 저온용융로, 배관냉각기, 고온집진기에 대한 수치해석을 수행하였다.(Fig.1 참조) 그 결과, 저온용융로 내부의 연소반응 특성과 재순환영역 존재를 확인하였고, 저온용융로의 좌측 상단에 Dead Zone이 존재함을 알 수 있었으나 성능에 직접적인 영향을 미칠 정도로 부정적이지는 않다고 판단된다.(Fig.2 참조) 배관냉각기 내부의 유동특성을 관찰할 수 있었으며, 배관냉각기의 관두께와 냉각수 유량 변화가 냉각 성능에 미치는 영향 또한 그리 크지 않음을 알 수 있었다. 또한 고온집진기 내부의 속도분포 특성과 집진효율에 영향을 끼치는 재순환영역의 존재를 확인하였다.(Fig.3 참조) 고온집진기 수치해석을 통하여 집진기 내부 차압이 수백Pa 이상인 경우에는 유동 특성이 거의 유사함을 알 수 있었으며, 내부에 대단히 큰 와류가 형성됨을 알 수 있었는데 이 와류는 입자가 특정 부위의 필터에 집중되는 영향을 미칠 것으로 판단된다.

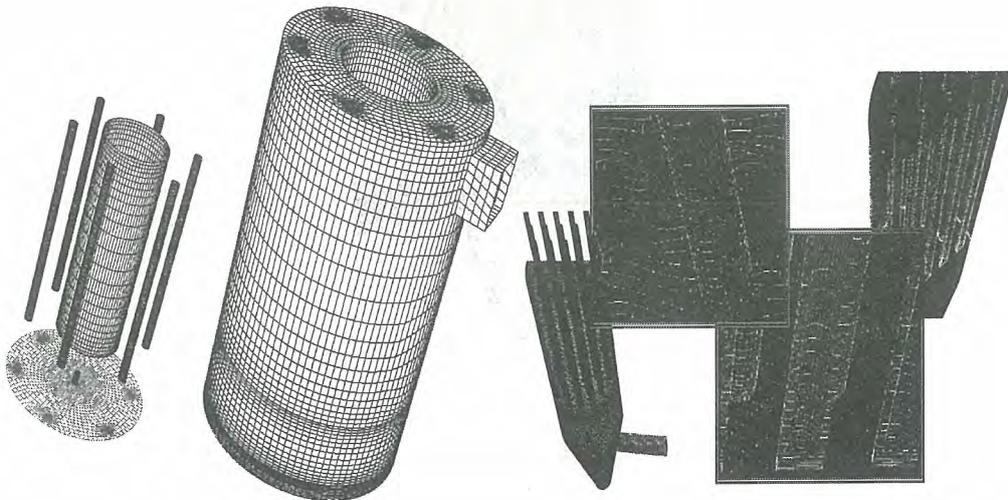


Fig. 1 Grid generation of CCM & Hex-Cooper mesh

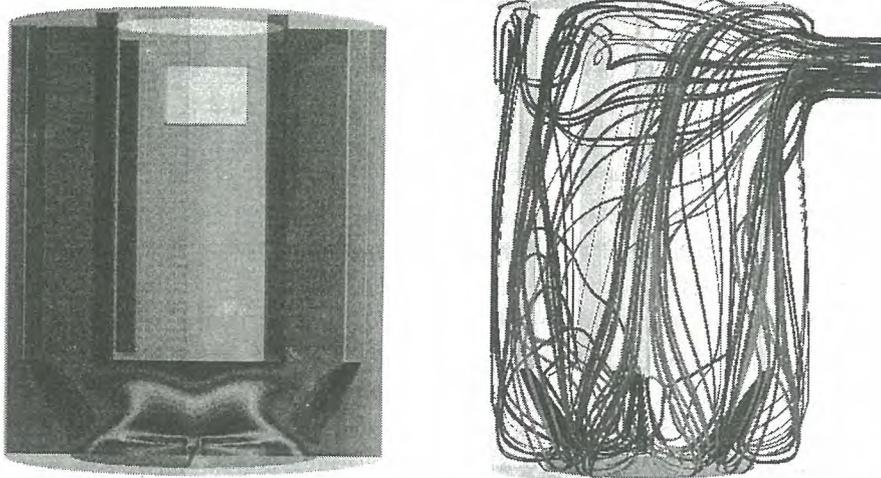


Fig. 2 CO<sub>2</sub> distribution & Path line of the inner parts of CCM

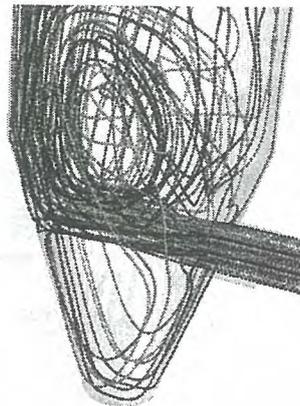


Fig. 3 Path line of recirculation zone of HTF

## 염폐기물 고정화처리 생성물의 핵종 및 침출 거동 특성

김정국, 이재희, 김준형

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

산화물 핵연료를 전해환원시켜 금속으로 전환하는 건식처리공정에서 발생하는 폐LiCl 용융염은 Cs, Sr과 같은 고방열성 핵분열 생성물을 다량 함유하고 있는데, 이들을 포함하는 폐용융염은 물에 잘 녹을 뿐만 아니라 방사선에 쉽게 분해되므로 처분장 수용기준에 알맞게 안정화시켜야 한다. 현재 한국원자력연구소에서는 폐용융염을 용융온도인 650°C에서도 Cs, Sr 등의 이온교환 및 흡착이 가능한 제올라이트 4A를 이용하여 고정화시키고 이를 최종 고화체로 만드는 연구가 진행되고 있다. 폐용융염과 제올라이트의 혼합비,  $r(\text{=LiCl/Zelite})$ 의 변화시키면서 Cs, Sr을 제거 및 고정화 특성 연구를 통해  $r=0.4, 0.25$  및  $0.1$ 의 혼합조건에 대해 650°C에서 블렌딩 혼합방식으로 염내포 제올라이트(Salt-Loaded Zeolite; SLZ)를 제조하고 이를 900°C에서 열처리하여 고정화생성물(Immobilized product)을 제조하는 일련의 과정을 도출한 바 있다. 본 연구에서는 이렇게 제조된 염내포 제올라이트와 고정화 생성물에 있어 고방열성 핵종의 분배특성과 PCT-7(Product Consistency Test-7day)을 이용한 단기 침출 특성을 고찰하고자 하였다. 염내포 제올라이트의 경우  $r$ 이 감소함에 따라 폐용융염에서 Li, Sr의 제거율이 증가하여  $r=0.1$ 에서 각각 85%와 94%의 제거효율을 보였으나, Cs은 최대 52% 정도만 제거되었다. 고정화 생성물의 경우 SLZ에 비해 비슷하거나 그 이상의 제거효율을 보였으나, Cs 제거율은 상대적으로 크게 감소하였는데 이는 열처리 온도가 900°C이므로 반휘발성인 Cs의 일부가 휘발된 것으로 판단된다. PCT-7에 의한 단기침출 실험의 결과  $r$ 이 0.4에서 0.25로 감소함에 따라 Sr의 침출률만 크게 감소하였으나,  $r=0.1$ 에서는 Li, Sr 뿐만 아니라 Cs의 침출률까지 매우 낮게 나타났다. 따라서 제올라이트 4A를 이용하여 Cs, Sr이 함유된 폐LiCl 용융염을 고정화 처리할 경우  $r=0.1$  조건이 높은 핵종 제거효율 및 우수한 내침출성을 가진 고정화 생성물을 얻는 조건이지만, 고온 열처리 단계에서 Cs이 일부 휘발되는 점을 감안한 보완이 필요할 것으로 보인다.

## A Study on the Collection Efficiency of A Tritium Bubbler

### 삼중수소 버블러의 포집효율에 대한 고찰

Jae-sin Shin, Seung-Ho Lee and Kwang-Ryeol Park\*

Korea Hydro & Nuclear Power Co. Wolsong Plant II Naa 260, Yangnam, Gyeongju, Gyeongbuk

\* Korea Nuclear Engineering Co. Yangnam 260, Gyeongju, Gyeongbuk

신제신, 이승호, 박광렬\*

한국수력원자력(주) 월성 제2발전소 경북 경주시 양남면 나아리 260

\* 한국원자력 엔지니어링(주) 경북 경주시 양남면 나아리 260

#### Abstract

Collection Efficiency of a tritium bubbler being used at domestic nuclear power plants was studied. Equilibrium is attained while tritium vapour in air passes through the bubbler. When a lot of gas sample passes through the bubbler, the tritium concentration of water is raised and volume of water is decreased or increased. These phenomena give effect to the collection efficiency. Estimation of the tritium concentration of the water agreed with our experiments. If relative humidity is higher than 0.5, the efficiency becomes lower than 1 and if relative humidity is lower than 0.5, the efficiency becomes higher than 1, provided collected tritium is evaluated with original volume of the water. Though the relative humidity is not 0.5, the efficiency can be maintained near 1 by making

$$\frac{\text{saturated water vapour (cm}^3\text{/cm}^3\text{)} \times \text{volume of gas sample (cm}^3\text{)}}{\text{volume of water (cm}^3\text{)}} \text{ small.}$$

**Key word** : collection Efficiency, tritium concentration, tritium bubbler

#### 요약

국내 원전에서 공기 중 삼중수소 농도를 평가하기 위해 사용하는 삼중수소 버블러의 포집효율에 대하여 고찰하였다. 수증기 형태인 공기 중 삼중수소는 기포가 물을 통과하는 동안 평형농도에 도달하게 된다. 많은 양의 기체시료를 통과시킬 경우 포집수의 삼중수소 농도가 높아지고 포집수가 감소하거나 증가하는 현상이 발생하여 포집효율에 영향을 미치게 된다. 이러한 영향을 고려한 포집수의 예측농도는 실측값과 잘 맞았다. 통상적인 방식과 같이 초기 포집수량을 이용하여 삼중수소 포집량을 평가할 경우 기체시료의 상대습도가 0.5보다 높으면 포집효율은 1보다 낮아지고 상대습도가 0.5보다 낮으면 포집효율은 1보다 높아진다. 상대습도가 0.5가 아니더라도  $\frac{\text{포화수증기량} \times \text{기체통과량}}{\text{포집수량}}$  을 작게 하면 포집효율을 1에 가깝게 유지할 수 있다.

**중심단어** : 포집효율, 삼중수소 농도, 삼중수소 버블러

## 서론

국내 원전에서는 공기 중 삼중수소 농도를 평가하기 위해 물을 포집용액으로 하는 버블러(또는 Gas Washing Bottle)를 이용하고 있다. 수증기 형태인 삼중수소는 기포가 버블러를 통과하는 동안 물에 포집되고 삼중수소가 포집된 물은 액체섬광계수기(LSC)를 이용하여 분석된다.

버블러의 삼중수소 포집효율은 효율보정이 필요 없을 정도로 충분히 높다는 것이 경험적으로 알려져 있었다. 그러나 버블러의 포집효율은 기체 시료의 유량에 영향을 받는 듯 했으며 포집수가 증발하는 효과가 포집효율에 미치는 영향도 불분명하였다.

이 연구에서는 버블러의 삼중수소 포집효율을 실험을 통해 확인하였고 포집효율에 영향을 미치는 인자들을 이론적으로 고찰하였다.

### 기포 경계면의 농도 평형과 포집용액 농도

버블러의 기체 포집효율은 기체물질의 확산 속도와 관련이 있다. 기포가 용액을 통과하는 시간에 비해서 기체 물질의 확산 속도가 충분히 빠라 대부분 경계면에 도달할 수 있으며 경계면에 닿는 즉시 용액에 포집된다면 포집효율은 높을 것이다.

확산을 통해 단위 시간에 단위 면적을 통과하는 물질의 양은 Fick의 법칙으로 표현할 수 있다.

$$N = -D \frac{\partial C}{\partial x} \left( \frac{\text{mole}}{\text{cm}^2 \cdot \text{s}} \right) \quad (1)$$

$$N = \text{분자 flux } (\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1})$$

$$C = \text{물질 농도 } (\text{mol}/\text{cm}^3)$$

$$D = \text{확산계수 } (\text{cm}^2/\text{s})$$

$$= \frac{1}{3} \ell v$$

$$\ell = \text{기체 분자의 평균 자유 행정 } (\text{cm})$$

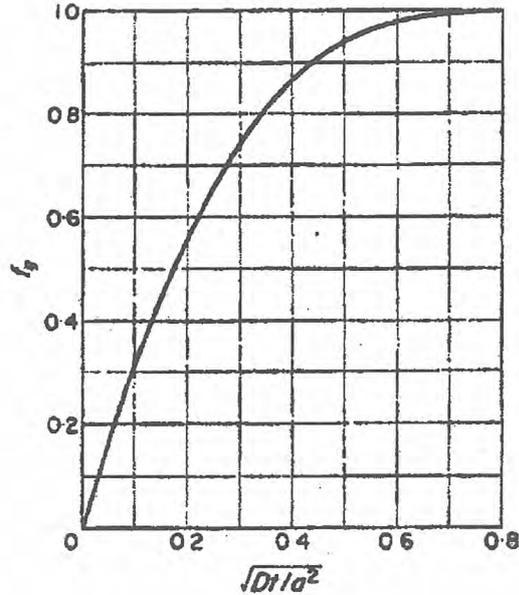
$$v = \text{기체 분자의 평균 운동 속도 } (\text{cm}/\text{s})$$

N과 C의 단위에서 mol은 물질의 양을 나타내는 다른 단위로 바꾸어도 무방하다. 구형의 기포에서 확산되어 용액에 포집되는 기체 물질의 농도는 다음의 편미분 방정식과 적절한 경계조건을 만족하는 해를 구하여 계산할 수 있다.

$$\frac{\partial C(r,t)}{\partial t} - D \nabla^2 C(r,t) = 0 \quad (2)$$

포집하려는 물질이 액체에 매우 잘 녹는 물질일 경우 포집율은 기체 영역에서의 확산에 의해 결정되므로 Seymour Calvert와 Walter Workman의 gas phase controlling case 계산 방법을 따를 수 있다.

<그림 1>은 gas phase controlling case일 때 gas phase 농도와 liquid phase 농도가 평형에 도달하게 되는 정도를 나타낸 그래프이다.  $D(\text{cm}^2/\text{s})$ 는 확산계수,  $t(\text{s})$ 는 기포의 통과시간,  $a(\text{cm})$ 는 기포의 반지름이다. 이 그래프는 초기의 gas phase 농도가 균일하고 liquid phase 농도가 상수인 구형 경계면에서의 확산에 관한 미분방정식의 해를 표현한 것이다.



<그림 1>

기체시료가 버블러를 통과하는 동안에 농도 평형에 도달하는 정도가 결정되면 기체 물질의 포집효율은 다음과 같이 정해진다.

$$F = f_g \left( \frac{p_1 - HC}{p_1} \right) \quad (3)$$

$F$  = 포집효율

$f_g$  = 평형 도달율

$$= \frac{p_1 - p_2}{p_1 - HC}$$

$p_1$  = 버블러 통과 전 기체물질의 분압 (atm)

$p_2$  = 버블러 통과 후 기체물질의 분압 (atm)

$H$  = 헨리상수 ( $\frac{\text{atm}}{\text{mol/cm}^3}$ )

$C$  = liquid phase 농도 ( $\text{mol/cm}^3$ )

HC는 평형에 도달했을 때 gas phase의 분압이다. 포집할 물질을 포함하고 있지 않은 순수한 용액이 사용될 경우 초기에는 C는 0이므로 포집효율(F)은 평형 도달율( $f_g$ )과 같다. 이 때  $f_g$ 가 1이라면 포집효율은 100%가 된다. 그러나 시료의 포집기간이 길어지고 용액에 포집된 기체물질이 계속 축적되어 농도(C)가 높아지게 되면 포집효율은 포집 용액의 농도(C)에 따라 달라지게 된다.

평형 도달율이 1인 버블러의 liquid phase 농도는 버블러에 유입되는 기체시료 중 포집될 물질의 분압이 일정하다고 가정할 때 다음과 같이 구해진다.

$$dn = -\frac{Hn}{RTV_l} dx + \frac{p_1}{RT} dx \quad (4)$$

$$n = \left(n_o - \frac{p_1 V_l}{H}\right) e^{-\frac{H}{RTV_l}x} + \frac{p_1 V_l}{H} \quad (5)$$

$$C = \left(C_o - \frac{p_1}{H}\right) e^{-\frac{H}{RTV_l}x} + \frac{p_1}{H} \quad (6)$$

- $n$  = 포집량 (mol)
- $R$  = 기체 상수 ( $\frac{atm \cdot cm^3}{mol \cdot K}$ )
- $T$  = 기체 온도 (K)
- $V_l$  = 용액 체적 ( $cm^3$ )
- $x$  = 기체 시료 체적 ( $cm^3$ )
- $n_o$  = 초기 포집량 (mol)
- $C_o$  = 초기 농도 ( $mol/cm^3$ )

용액의 농도 C는 포화농도를 향해 가는 전형적인 지수함수를 그리게 된다. 시료 포집을 계속해서 용액의 농도가 기체시료의 분압  $p_1$ 과 평형을 이루는  $\frac{p_1}{H}$ 에 도달하게 되면 포집효율은 0이 된다.

용액이 증발하거나 조금씩 보충되어서  $V_l$ 이 상수가 아닐 경우에는 문제가 좀 더 복잡해진다. 기체가 버블러를 통과하는 동안 수증기 형태의 삼중수소가 평형 농도에 도달하게 된다면 그것은 포집용액이 물일 경우 버블러를 통과하는 동안 기포 속의 수증기량이 포화수증기량에 도달하게 됨을 뜻하기도 하다. 버블러를 통과하기 전에 기체의 수증기량이 포화수증기량이 아니었다면 물은 일정한 속도로 증발하면서 감소하게 될 것이다. 용액의 온도가 유입되는 기체시료의 온도보다 낮게 유지되고 있을 경우에는 버블러를 통과한 기체시료의 포화수증기량이 버블러를 통과하기 전의 수증기량보다 오히려 적을 수도 있다. 이런 경우에는 일정한 속도로 물이 증가될 것이다. 어느 경우든 물의 양은 (7)식과 같이 통과하는 기체의 체적에 따라 선형적으로 감소하거나 증가한다.

$$V_l = \frac{M}{\rho_l RT} (p_{h1} - p_{h2})x + V_{l0} \quad (7)$$

- $M$  = 분자량 (g/mol)
- $\rho_l$  = 액체 밀도 ( $g/cm^3$ )
- $p_{h1}$  = 버블러 통과 전 수증기 분압 (atm)
- $p_{h2}$  = 버블러 통과 후 수증기 분압 (atm)

이 경우 (4)식은 (8)식과 같이 변경되어야 한다.

$$dn = -\frac{Hn}{RT\left\{\frac{M}{\rho_l RT}(p_{h1} - p_{h2})x + V_{l0}\right\}} dx + \frac{p_1}{RT} dx \quad (8)$$

$$n = \frac{\frac{p_1 M}{RT \rho_l} (p_{h1} - p_{h2})x + p_1 V_{l0}}{H + \frac{M}{\rho_l} (p_{h1} - p_{h2})}$$

$$+ \left( n_o - \frac{p_1 V_{lo}}{H + \frac{M}{\rho_l} (p_{h1} - p_{h2})} \right) \left( \frac{RTV_{lo}}{\frac{M}{\rho_l} (p_{h1} - p_{h2})x + RTV_{lo}} \right)^{\frac{H}{\frac{M}{\rho_l} (p_{h1} - p_{h2})}} \quad (9)$$

$$C = \frac{p_1}{H + \frac{M}{\rho_l} (p_{h1} - p_{h2})} + \left( C_o - \frac{p_1}{H + \frac{M}{\rho_l} (p_{h1} - p_{h2})} \right) \left( \frac{V_{lo}}{\frac{M}{RT\rho_l} (p_{h1} - p_{h2})x + V_{lo}} \right)^{\frac{H}{\frac{M}{\rho_l} (p_{h1} - p_{h2})} + 1}$$

$$= \frac{p_1}{\frac{Mp_{h1}}{\rho_l}} + \left( C_o - \frac{p_1}{\frac{Mp_{h1}}{\rho_l}} \right) \left( \frac{V_{lo}}{\frac{M}{RT\rho_l} (p_{h1} - p_{h2})x + V_{lo}} \right)^{\frac{p_{h1}}{p_{h1} - p_{h2}}} \quad (10)$$

$\frac{p_h}{RT}$  는 공기 중 삼중수소 농도(mol/cm<sup>3</sup>)이며  $\frac{Mp_h}{RT\rho_l}$  는 공기 중 수증기량(cm<sup>3</sup><sub>w</sub>/cm<sup>3</sup><sub>g</sub>)이므로 위 식의 양변에 삼중수소의 비방사능(Bq/mol)을 곱하면 다음과 같이 정리될 수 있다.

$$C' = \frac{C_{g1}}{h_{rel}h_{abs}} + \left( C'_o - \frac{C_{g1}}{h_{rel}h_{abs}} \right) \left( \frac{V_{lo}}{(h_{rel} - 1)h_{abs}x + V_{lo}} \right)^{\frac{h_{rel}}{h_{rel} - 1}} \quad (11)$$

$C'$  = 포집수 중 삼중수소 농도 (Bq/cm<sup>3</sup>)

$C_{g1}$  = 기체 중 삼중수소 농도 (Bq/cm<sup>3</sup>)

$h_{rel}$  = 상대 습도

$h_{abs}$  = 포화 수증기량 (cm<sup>3</sup><sub>w</sub>/cm<sup>3</sup><sub>g</sub>)

이 식은 포집 용액으로 물을 사용하며 평형 도달율이 1인 삼중수소 버블러의 포집수 중 삼중수소 농도를 나타낸다.

### 버블러 포집효율 측정

버블러를 통과하는 기포의 직경은 넓은 범위의 기체유량 조건에서 0.35~0.45cm 이며 직경이 0.2cm 이상인 한 개의 기포가 물속에서 상승하는 속도는 24cm/s로 거의 일정하다고 한다. 월성 제2발전소 기체유출물감시기에 설치된 버블러를 예로 들면 물을 200mL 채웠을 때 평균 기포 발생 수심은 10.7cm 정도가 되므로 기포가 물을 통과하는 데 걸리는 시간은 0.45sec일 것으로 계산된다.

그러나 동시에 많은 기포가 통과할 경우 기포를 따라 상승하는 물의 흐름에 의해 기포의 상승 속도가 좀 더 빨라질 수도 있으며 다른 요인에 의한 영향도 있을 수 있으므로 기포의 물 통과시간을 실측해 볼 필요가 있다.

기포가 물을 통과하는 시간은 버블링이 되는 동안 수위가 상승하는 정도, 즉 물 속에 체류 중인 공기의 부피를 측정하면 쉽게 계산할 수 있다.

$$A \times \Delta y = f \times t \tag{12}$$

$$t = \frac{A \times \Delta y}{f} \tag{13}$$

$A$  = 버블러 단면적

$\Delta y$  = 기포에 의한 수위변화

$f$  = 기체 유량

$t$  = 기포의 통과시간

<표 1>에 나타낸 것과 같이 월성 제2발전소에서 사용 중인 버블러의 경우 기포가 물을 통과하는데 걸리는 시간(t)은 대략 0.4sec이다.

<표 1> 월성 제2발전소 버블러의 통과시간

버블러 단면적 (cm <sup>2</sup> )	기체 유량 (cm <sup>3</sup> /s)	수위 변화량 (cm)	통과시간 (s)
16.7	11.1	0.3	0.45
	27.0	0.6	0.37
	37.0	0.85	0.38

수증기 분자의 직경을 공기 분자의 평균 직경과 같은 3.7Å이라고 가정하면 25℃ 1기압일 때 공기 중 삼중수소 수증기 분자의 평균 자유 행정은 0.067μm이고 평균 운동 속도는 454m/s이므로 확산계수(D)는 0.1cm<sup>2</sup>/s이다. 기포 직경(2a)을 0.4cm라고 하면  $\sqrt{Dt/a^2}$ 는 1이 된다. <그림 1>의 그래프를 통해 알 수 있듯이  $\sqrt{Dt/a^2}$ 이 0.7 이상이면 거의 완전한 평형에 도달하게 된다. 이렇게 기포가 물을 통과하는 동안에 기체시료 중의 삼중수소 농도가 완전한 평형농도에 도달하는 버블러는 (11)식을 이용하여 포집수의 삼중수소 농도를 예측할 수 있다.

<표 2>는 월성 제2발전소에서 사용 중인 것과 같은 버블러를 3단으로 직렬 연결하여 삼중수소를 포집한 후 측정된 포집수의 삼중수소 농도이다. 각 버블러의 포집용액은 순수 200cm<sup>3</sup>이었으며 포집기간 동안 기체 시료의 온도는 25℃ 내외였다.

후단으로 갈수록 버블러에 포집된 삼중수소 농도가 급격히 낮아져서 세 번째 버블러에서는 첫 번째 버블러 삼중수소 농도의 1%에도 미치지 못하는 수준이 되므로 직렬로 연결된 세 개의 버블러에 포집되지 않고 통과되는 삼중수소의 양은 무시할 수 있을 정도로 적을 것이다. 그러므로 기체시료에 포함되어 있었던 삼중수소의 양은 세 버블러에 포집된 삼중수소의 합과 같다. 세 버블러에 포집된 삼중수소의 양을 기체 시료량으로 나누면 기체 시료 중의 삼중수소 농도를 얻을 수 있

다.

(11)식을 이용하여 계산한 삼중수소 농도 예측값은 측정값과 잘 일치하였다. 포화수증기량( $h_{abs}$ )은 25℃일 때의 포화수증기량인  $2.3E-05$  ( $cm^3_w/cm^3_g$ )을 적용하였고 포집수 변화량으로 추정된 기체시료의 상대습도( $h_{rel}$ )는 28~43%이었다.

첫 번째 버블러에 포집된 삼중수소량을 전체 삼중수소량으로 나누어 계산한 포집효율은 89~96%이다. 그러나 월성 제2발전소에서 삼중수소 배출량을 평가할 때처럼 버블러에 포집된 삼중수소의 양을 계산할 때는 통상적으로 줄어듦 전의 포집수량을 적용하므로 운영상의 포집효율은 다른 방법으로 계산하여야 한다. 첫 번째 버블러의 삼중수소 농도에 초기 포집수량( $200cm^3$ )을 곱하고 전체 삼중수소 포집량으로 나눈 운영상의 포집효율은 103~104%이다.

기체 시료에 포함된 모든 삼중수소가 첫 번째 버블러에 전부 포집되지 못함에도 불구하고 운영상 포집효율이 오히려 1보다 클 수 있는 것은 용액이 줄어들므로 인해 용액의 삼중수소 농도가 빠르게 상승하기 때문이다. 포집수가 증발되는 현상은 포집효율을 떨어뜨리는 요인이지만 초기 포집수량을 적용하는 운영상의 포집효율은 포집수가 많이 증발할수록 오히려 높아진다.

<표 2> 월성 제2발전소 버블러 포집효율

시료 유량 (LPM)	시료 통과량 (L)	버블러 구분	포집수량 (mL)	삼중수소 농도 (Bq/mL)	삼중수소 예측농도 (Bq/mL)	포집 효율	운영상 포집효율
0.48	729	1단	188	150.0	148.8	0.96	1.03
		2단	208	4.7	-		
		3단	197	0.2	-		
0.90	1,257	1단	183	270.7	267.2	0.94	1.03
		2단	196	15.7	-		
		3단	198	0.7	-		
1.72	2,234	1단	171	359.4	351.8	0.89	1.04
		2단	191	37.4	-		
		3단	193	2.8	-		

포집 효율을 결정하는 인자

포집용액의 체적이 일정하고 용액의 농도 상승에 의한 포집효율의 감소가 없는 버블러를 이상적인 버블러라고 할 수 있다. (11)식의 삼중수소 농도와 이상적인 버블러의 삼중수소 농도를 비교해 보면 운영상 포집효율이 1보다 클 것인지 작을 것인지를 알 수 있다. 이상적인 버블러의 포집수 삼중수소 농도는  $C_o + C_{g1}x/V_{lo}$ 이므로 용액의 초기 삼중수소 농도  $C_o$ 를 0이라고 하면 실제 버블러의 삼중수소 농도와 이상적인 버블러의 삼중수소 농도 차이는 (18)식과 같다.

$$C_{real} - C_{ideal} = \frac{C_{g1}}{h_{rel}h_{abs}} \left( 1 - \left( \frac{V_{lo}}{(h_{rel} - 1)h_{abs}x + V_{lo}} \right)^{\frac{h_{rel}}{h_{rel} - 1}} \right) - \frac{C_{g1}}{V_{lo}}x \quad (14)$$

$$\frac{d}{dx}(C_{real} - C_{ideal}) = \frac{C_{g1}}{V_{lo}} \left[ \left( \frac{V_{lo}}{(h_{rel} - 1)h_{abs}x + V_{lo}} \right)^{\frac{1-2h_{rel}}{1-h_{rel}}} - 1 \right] \quad (15)$$

상대습도  $h_{rel}$ 가 0.5보다 작으면  $0 < x < \frac{-V_{lo}}{(h_{rel} - 1)h_{abs}}$  인 구간에서 (14)식의 도함수인 (15)식은 항상 양수이므로 (14)식은 증가함수이다. 기체 통과량(x)이 적을 때는 버블러의 삼중수소 농도가 이상적인 버블러의 삼중수소 농도와 거의 같지만 기체 통과량이 많을수록 이상적인 버블러의 삼중수소 농도보다 높아지게 된다. 즉 포집효율이 1보다 커지게 된다. 반대로  $h_{rel}$ 가 0.5보다 크면 포집효율은 1보다 작아지며  $h_{rel}$ 가 0.5이면 포집효율은 이상적인 버블러와 같이 항상 1이 된다.

포집효율(F)은 (16)식과 같이 상대습도( $h_{rel}$ )와  $\frac{\text{포화수증기량}(h_{abs}) \times \text{기체통과량}(x)}{\text{포집수량}(V_{lo})}$ 의 함수로도 표현될 수 있다.

$$F = \frac{1}{h_{rel}X} [1 - \{1 + (h_{rel} - 1)X\}^{\frac{h_{rel}}{1-h_{rel}}}] \quad (16)$$

$$X = \frac{h_{abs}x}{V_{lo}}$$

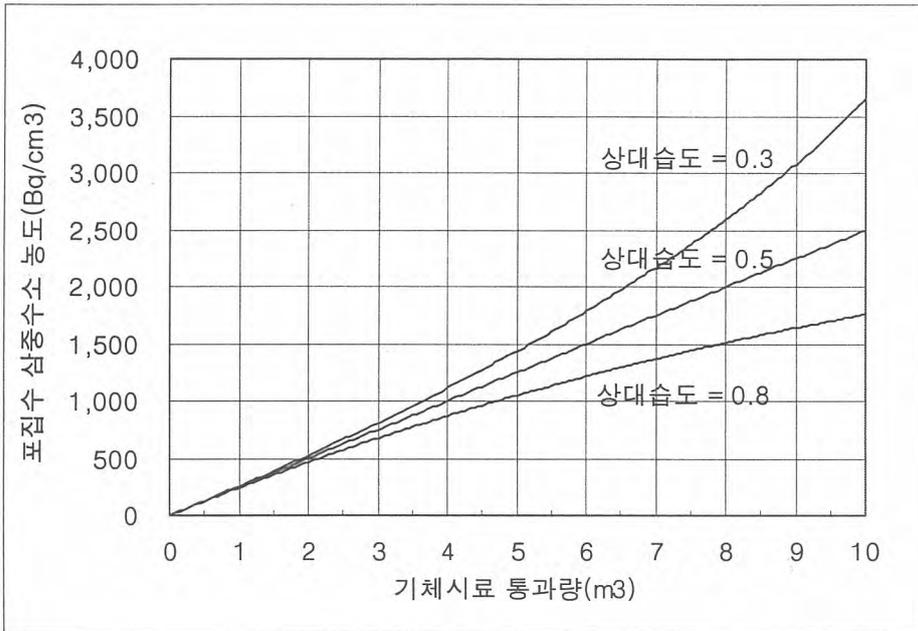
상대습도가 0.5와 차이가 날수록, 또는  $\frac{h_{abs}x}{V_{lo}}$ 이 클수록 포집효율은 1에서 멀어진다. 기체시료 중의 삼중수소 농도( $C_{g1}$ )는 (16)식에 들어가 있지 않으므로 포집효율과는 관련이 없음을 알 수 있다. 포집효율이 1보다 크다는 것은 곧 공기 중 삼중수소 농도가 보수적으로 평가됨을 의미한다. 공기 중 삼중수소 농도가 보수적으로 평가될 것인지 그 반대가 될 것인지는 기체 시료의 상대습도에 의해 결정된다고 할 수 있다.

여기에서 상대습도는 통상적인 의미의 상대습도와 약간 다른 의미를 가진다. 이것은 버블러 전·후단의 수증기량의 비 즉, 버블러를 통과하기 전 기체시료의 수증기량을 버블러를 통과한 후의 포화수증기량으로 나눈 값을 의미한다.

포화수증기량은 온도에 의해 결정되는 값이고 압력과는 관련이 없지만 버블러의 내부 압력이 떨어지면 같은 양의 기체시료가 통과하더라도 기포의 체적이 늘어나 수증기량이 높아지는 효과가 발생하므로 여기에서 포화수증기량은 온도와 압력에 관계되는 값이다. 그러므로 버블러 전·후단에서 온도와 압력이 같지 않으면 버블러 전·후단의 수증기량 비는 상대습도와는 다른 값이 된다.

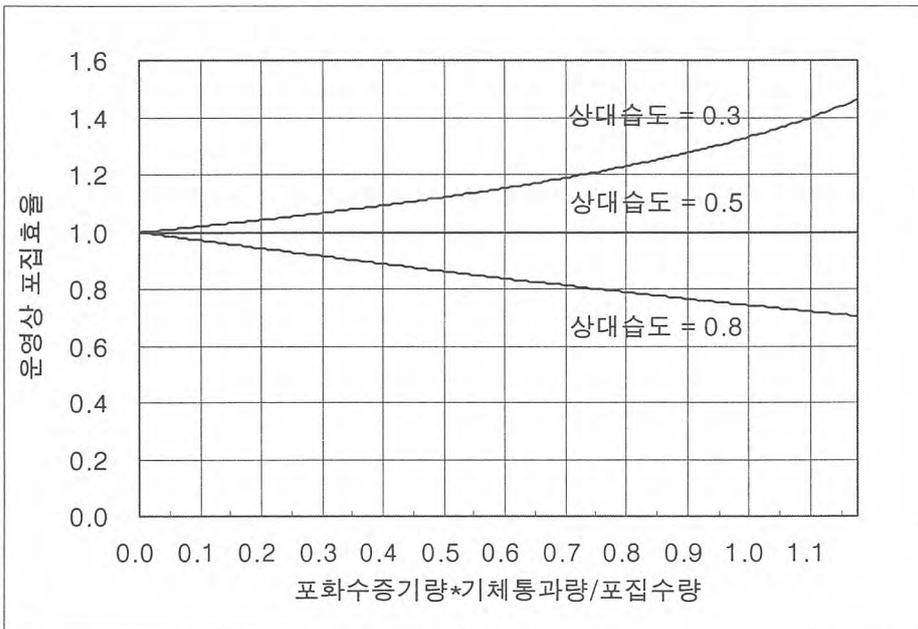
<그림 2>는 (11)식으로 계산한 버블러 포집수의 삼중수소 농도이다. 포집수량은  $200\text{cm}^3$ , 포화수증기량은  $2.3\text{E}-05 \text{ cm}^3_{\text{w}}/\text{cm}^3_{\text{g}}$ , 기체시료 삼중수소 농도는  $0.05\text{Bq}/\text{cm}^3$ 을 적용하였다.

상대습도가 0.5 미만일 때 삼중수소 농도는 이상적인 버블러의 삼중수소 농도(상대습도 = 0.5)보다 높고 기체시료 통과량이 증가함에 따라 점점 가파르게 상승함을 확인할 수 있다. 상대습도가 0.5보다 높을 경우에는 삼중수소 농도가 이상적인 버블러의 삼중수소 농도보다 낮으며 기체시료 통과량이 증가함에 따라 상승 속도가 점점 완만해 진다.



<그림 2>

<그림 3>은 <그림 2>의 삼중수소 농도일 때의 운영상 포집효율을 구하여 나타낸 그래프이다. 상대습도가 0.5가 아닐 경우  $\frac{\text{포화수증기량} \times \text{기체통과량}}{\text{포집수량}}$  이 증가할수록 포집효율이 1에서 멀어지는 것을 잘 알 수 있다.



<그림 3>

## 결론

버블러의 삼중수소 포집효율이 충분히 높기 위해서는 기포가 물을 통과하는 동안에 삼중수소 농도가 평형에 도달하여야 한다. <그림 1>의 그래프에 의하면 기포가 물을 통과하는 시간이 월성 제2발전소 버블러의 절반인 0.2s 밖에 되지 않더라도 삼중수소 농도가 평형에 도달하게 됨을 알 수 있다. 그러므로 대부분의 다른 버블러에서도 삼중수소 포집효율은 충분히 높을 것으로 예상된다.

포집효율에 영향을 미치는 인자에 대한 고찰의 결론은 삼중수소 포집효율은 버블러의 성능이 아니라 포집수량, 온도, 압력, 상대습도 그리고 기체 통과량에 의해 결정된다는 것이다. 상대습도가 0.5일 경우 포집효율은 1이 된다. 상대습도가 0.5 이상이면 포집효율이 1보다 낮아지고 상대습도가 0.5 이하이면 포집효율이 1보다 높아진다.

상대습도가 0.5가 아닐 경우에도  $\frac{\text{포화수증기량} \times \text{기체통과량}}{\text{포집수량}}$  를 작게 하면 공기중 삼중수소 농도 평가의 오차를 줄일 수 있다.  $\frac{\text{포화수증기량} \times \text{기체통과량}}{\text{포집수량}}$  을 작게 하려면 되도록 포집수량을 많게 하고 기체 통과량을 적게 하여야 하지만 삼중수소 분석의 통계오차와 기체유량 측정의 오차를 고려하여야 한다.

## 참고문헌

1. D. Campling, P. Machet, B. Patel, P. Schofield. Tritium-in-Air "Bubbler" Samplers and Internal Radiation Doses at JET. Fusion Science Technology Vol 41. May 2002.
2. A. M. Valentine. An Investigation of a Bubbler Tritium Sampler. LA-3916. US Atomic Energy Commission. Jul 1968.
3. 박준범, 진광수, 박효열, 김혜경, 유병길: 3차원 구면 대칭계에 대한 기체/유체의 확산 연구. 응용물리 Vol 9, No 3. 1996년 5월.
4. S. Calvert, W. Workman. Estimation of Efficiency for Bubbler-type Gas Absorbers. Talanta Vol 4, No 2. 1996.

## 충전 촉매탑의 수소동위원소 교환반응 특성

백승우, 최희주, 안도희, 김광락, 이민수, 임성팔, 정홍석

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

소수성 촉매가 충전된 CECE (Combined Electrolysis Catalytic Exchange) 공정은 그 분리계수가 크고 운전이 용이하여 액상의 물중에서 삼중수소를 제거하기에 적절한 공정이다. 캐나다와 일본 미국 등에서 각각의 촉매 및 운전조건에 따라 독자적으로 개발되어져 왔다. CECE 공정의 핵심은 전기분해조와 액상촉매교환 컬럼으로 구성되어 있다. 이 액상 촉매교환 컬럼에서는 기상의 중수소가 액상의 중수로 이동하는 반응의 경우 다음과 같이 수소와 물 사이의 수소동위원소 교환반응이 일어난다.



이 반응은 다음과 같이 두 단계를 거쳐서 일어나는 것으로 알려져 있다.



첫 번째 단계는 수소-수증기사이의 중수소 교환반응으로, 촉매에서 일어나며, 두 번째 단계는 물-수증기 사이의 반응으로 기-액 계면에서 일어난다. 친수성 촉매를 사용하는 경우 촉매가 물에 젖으면 활성이 급격히 저하되므로 액상을 과열 수증기상으로 가열해야 하는데, 이러한 공정을 기상 촉매교환공정이라고 한다. 이러한 단점을 개선하기 위하여 위의 두 단계를 거치지 않고 한 단계 반응으로 조합할 수 있는 새로운 공정이 제시되었으며 공정 내에서 물과 수소가 직접 접촉하므로 이 공정을 액상촉매교환공정이라 한다. 이 공정은 액상 또는 포화수증기상의 물과 직접 접촉하여도 활성이 저하되지 않는 소수성촉매가 이용된다. 액상촉매교환공정에 있어서 액상촉매 교환탑은 여러 가지 형태로 개발되어져 왔으며 분리층(separated bed)형태와 trickle bed 형태가 잘 알려져 있다. 분리층 형태는 촉매활성 저하를 최대한 억제할 수 있으나 컬럼 높이가 높아지는 단점이 있다. trickle bed 는 물이 소수성촉매와 친수성 충전물의 혼합층 상부로부터 흘러내리고 수증기에 포화된 수소가 혼합층 상부로 올라가는 향류 흐름형이다. 이러한 trickle bed는 촉매에 물이 직접 접촉하므로 촉매의 활성저하가 감소할 가능성이 있는 반면에 컬럼의 구조가 간단하므로 컬럼 높이를 낮출 수 있다. 따라서 소용량의 수소동위원소교환반응 공정의 촉매탑으로는 trickle bed 형태를 이용하는 것이 장치 제작 및 운전에 있어서 유리하다.

본 연구에서는 개발된 소수성 촉매를 CECE 공정의 액상촉매 교환탑에 적용하기 위하여 trickle bed 형 촉매탑을 제작하여 물-수소 간의 중수소 교환반응에 대한 촉매활성측정 실험을 수행하였다. trickle bed에서의 촉매활성은 측정하기 위한 실험장치의 개략도를 Fig.1에 나타내었다. 촉매탑, 포화기, 중수소가스 공급장치, 기체순환펌프 및 온도조절장치들로 구성되어 있다. 내경 40mm, 높이 350mm의 촉매탑에는 소수성 촉매와 친수성 충전물의 혼합체가 채워져 있으며, 중수소가스의 농도 분석은 GC를 이용하였다.

친수성 충전물과 소수성 촉매를 혼합한 촉매 컬럼은 여러 가지 방법으로 구성될 수 있으나, 소수성 촉매에서의 수소-수증기 반응성뿐만 아니라 소수성 촉매와 가까운 영역에서 물-수증기 반응이 일어날 수 있도록 구성되어야 한다. Trickle-bed 형 촉매탑의 수소동위원소 교환반응성을 향상시키기 위하여 자체 개발된 소수성 백금촉매(Pt/SDBC)와 친수성 충전물(Dixon gauze ring)로 촉매집합체를 구성하였다. Fig.2 에 Trickle-bed 실험에 사용될 소수성-친수성 촉매집합체의 구성을 나타내었다. 소수성 촉매 부근에서 물-수증기 교환반응이 일어나도록 친수성 충전물로 소수성 백금촉매를 둘러싼 형태를 취하였다.

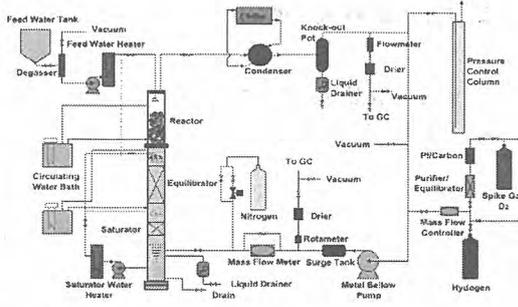


Fig.1 Experimental apparatus.

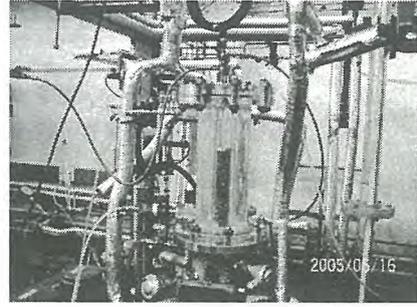


Fig. 2. Catalytic mixed bed.

물과 수소가 촉매층을 향류로 흐를 때 수소 흐름중의 중수소는 물로 이동한다. 이 때 같은 물수의 수소는 물로부터 수소로 이동하여 물질수지가 유지된다. 촉매탑 상하부의 수소흐름중의 중수소 농도를 측정하면 단위가  $m^3(STP)/s/m^3(bed)$  인 총괄물질전달계수  $K_ya$ 를 다음과 같이 구할 수 있다. 이 값으로 촉매탑의 활성을 나타낸다.

$$K_y a = \frac{V}{SZ} NTU$$

여기서  $V$ 는 수소유량( $m^3(STP)/s$ ),  $S$ 는 촉매탑 단면적( $m^2$ ),  $Z$ 는 촉매탑 높이( $m$ ) 이며,  $NTU$  (Number of Transfer Unit)는 이동단의 수이다.  $NTU$ 는 탑 전체에 대한 적분에 의해 구해지며, 중수소 농도가 낮을 때 평형선과 조작선이 선형이 되어 다음과 같이 구해진다.

$$NTU = \int_t^b \frac{dy}{y-y^*} = \frac{y_b - y_t}{\Delta y_L}, \quad \Delta y_L = \frac{(y-y^*)_b - (y-y^*)_t}{\ln \frac{(y-y^*)_b}{(y-y^*)_t}}$$

소수성촉매와 친수성 충전물 혼합체(6mm)를 충전하여 Table 1과 같은 조건에서 중수소 교환반응 실험을 수행하였다. 실험결과 측정된  $K_ya$  값은 0.8이었다. 향후 운전변수 변화에 따른 실험과 촉매탑내의 기-액 접촉성능 향상을 위한 구조개선을 수행 할 예정이다.

Table 1. Operating conditions for the trickle-bed.

실험변수	설정값
실험온도	60 °C
수소유량	60 L/min
촉매탑 입구 중수소농도	9600 ppm
촉매탑 출구 중수소농도	7800 ppm
물유량	90 ml/min
$K_ya$	0.8 $m^3(STP)/s/m^3(bed)$

감사의 글: 본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

## 수소동위원소 분리용 GC 충전제 제조

이민수, 정홍석, 김광락, 백승우, 임성팔, 안도희

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

본 연구는 수소동위원소 분리용 Gas Chromatography 충전제의 제조에 관한 것으로서, 구체적으로는 트리튬이 포함된 수소동위원소( $T_2$ , DT, HT) 혼합 기체에서 트리튬을 분리해 낼 수 있는 Gas Chromatography 충전제를 개발하는 것이다. 트리튬 배기체나 폐기물을 제거하기 위한 대표적인 공정으로서 CECE(combined electrolysis catalytic exchange)가 있다. CECE 공정은 촉매를 이용하여 수소동위원소 산화물을 농축하고, 다시 농축된 산화물을 전기분해하여 수소기체화 하는 공정이다. 얻어진 수소기체 중의 트리튬을 다시 농축하기 위한 방법으로는 초저온 증류공정이 있으나, 이 방법은 대용량의 상용 설비에 가장 적합한 것으로서 설비가 많이 든다는 단점이 있다. 하지만 Gas Chromatography를 이용한 수소동위원소 기체 분리방법은 구조가 단순하고 분리효율이 높은 장점이 있다.

수소동위원소를 분리하는 가장 용이한 충전제로는 수소를 흡수하는 금속이나 합금을 이용하는 것이다. 대표적인 금속으로는 Pd가 있다[1]. Pd 금속 입자를 GC 충전제로 사용할 경우, 상온 상압에서 Displacement gas chromatography 방법으로 용이하게 수소동위원소를 분리할 수 있으므로 수소동위원소 분리에 각광받고 있다. 효율적으로 Pd를 사용하기 위해서는 미세 입자화하는 방법, 혹은 넓은 표면적을 갖는 미세입자에 표면 코팅하는 것이 유리하다. 적합한 입자 매체로서는  $\alpha$ -알루미나와 kieselguhr(molecular sieve)가 있다. 이들 두가지 매체에 대해 Pd를 처리한 경우에 있어서는 단위 부피당 Pd 함량이 높게 나타나는  $\alpha$ -알루미나가 kieselguhr에 비해 더 효율적인 매체로 보고되어 있다[2]. 알루미나의 입자 크기는 100-200 mesh 정도가 수소동위원소 분리용으로 주로 사용된다. 이밖에도 Pd는 부가적인 이점을 갖고 있는데, 이는 기존의 GC는  $H_2$ , HD,  $D_2$ , HT, DT,  $T_2$  등으로 6개의 혼합물로 나누어지는데 비하여,  $T_2$ ,  $D_2$ ,  $H_2$ 로 혼합물이 분리되고 동위원소 혼합기체는 소량 나온다는 점이다. 이밖에도 Pd-Pt 알로이는 최근에 개발된 GC 충전제로서 체류 시간이 짧기 때문에 수소동위원소의 분석에 응용되고 있다. Pd-Pt alloy에서 Pt는 수소원자의 흡수율을 감소시켜주는 역할을 한다[3].

현재 시판되고 있는 Pd가 도포된 알루미나는 약 4종(0.5wt%, 1.0wt%, 5wt%, 10wt% Palladium on Alumina)이 있으며, 최대 Pd 함량은 10wt% 정도이다. 본 연구에서는 상용 Pd가 도포된 알루미나의 결정구조를 알아보기 위해 XRD 분석을 하였으며(Fig. 1), 매질의 표면적, 화학적 흡착량 등 기초적인 물성을 분석하였다. 그 결과 상용 제품은 수소동위원소 분리에 필요한 fcc 구조의 결정이 발달되어 있지 않음을 확인하였다. 이에 본 연구에서는 알루미나에서 함침법을 통해 알루미나 매질에서 Pd 함량을 20%까지 높여 fcc 결정구조를 얻는 실험을 진행하고 있다.

감사의 글: 본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

### 참고 문헌

1. S. Fukada, H. Fujiwara, J. Chromatography, A 898 (2000) 125.
2. F. Strzelczyk et al., J. Chromatography A 822 (1998) 326-331.
3. T. Yasumatsu, J. L. Wan, M. Matsuyama, K. Watanabe, J. Alloys Comp., 293-295 (1999) 900.

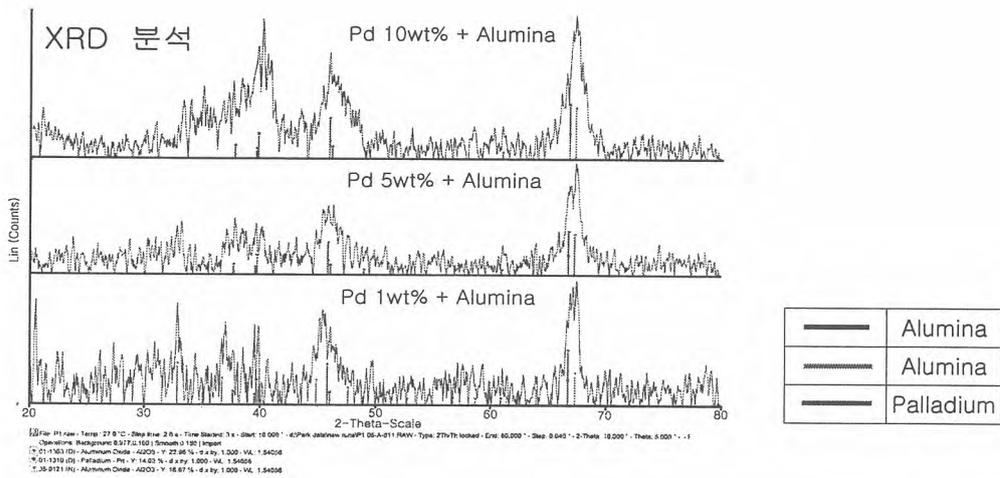


그림 1. 상용 Pd/Alumina XRD 결정분석

## 합성제올라이트의 모의 트리튬 산화물 흡착특성

김광락, 이민수, 백승우, 안도희, 임성팔, 정홍석, 심명화\*

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

\*과학기술연합대학원대학교, 대전광역시 유성구 어은동 52번지

삼중수소로 치환된 수소 동위원소 산화물의 흡착 제염에서 광범위하게 사용되는 합성 제올라이트는 높은 함수율을 나타내고, 열적 안정성이 우수하여 고온에서 물리 흡착된 모든 수분을 탈착시킬 수 있으므로 재생 사용이 가능하다. 제올라이트 구조 산화물의 수분 흡착은 높은 온도와 낮은 습도 분위기에서 우수한 흡착용량을 보여주고, 온도와 수증기압에 대한 의존성이 비교적 적기 때문에 안정적인 흡착 제염제로 알려져 있다. 수분 흡착 효율은 흡착제의 잔류 함수량에 의하여 결정되며 합성 제올라이트는 다른 흡착제보다 잔류 함수량이 큼에도 불구하고 수분의 흡착 용량은 낮은 수증기압에서도 우수함을 나타내며, 재생은 흡착제의 온도가 임계점에 도달하게 되면 갑자기 탈착하는 특성이 있어 트리튬 함유 수분의 회수가 용이하다. 그러나 장기간 사용으로 가열 재생시 트리튬으로 치환된 결합수의 탈착이 용이하지 않아 흡착제의 트리튬 메모리 용량으로 잔류되므로 후속 흡착주기에서 제염효율이 떨어지거나 감용을 위한 비방사성화 처리공정에 영향을 미칠 수 있음이 알려졌다.

합성 제올라이트는 알칼리 및 알칼리토금속의 규산알루미늄 수화물인 나트륨염으로 화학식은 일반적으로  $Na_m(AlO_2)_m(SiO_2)_n \cdot xH_2O$  ( $m \leq n$ )로 표시된다.  $SiO_4$ 사면체와  $AlO_4$ 사면체가 3차원적인 그물구조를 형성하는 결정체이며, 이 그물눈이 공동을 형성하고, 그 속에 나트륨 이온이 존재한다. 공동은 균일한 지름을 가지며, 가느다란 구멍이 가로 세로로 연결되어 있고, 구멍의 지름(A) 크기에 따라 4A, 5A, 13X 등으로 분류되는데, 이 중에서 5A는 나트륨의 일부가 칼슘으로 치환된 것이다. 제올라이트는 형태별로 구별하면 A형 이외에 beta, mordenite, Y형 등이 있다.

본 연구에서는 흡착제별 트리튬 산화물의 선택성, 용량, 흡착 및 안정성을 비교 분석하여 제올라이트 구조 산화물 흡착제가 우수함을 선택하고, 이들의 기본 흡착 및 탈착 성능을 알기 위해 관류형 파과특성을 시험할 수 있는 시험 장치를 구축하였다. 이 장치에서 흡착제의 주기적 흡탈착 성능 비교시험을 수행함으로써 트리튬 함유 수분의 제염 효율을 평가하였다.

모의 트리튬 산화물의 흡착시험 장치는 캐리어 기체 공급과 기체 및 액체 질량유량조절기(MFC, Bronkhorst사)로 조합된(Table 1) 항습장치, 흡착컬럼, 그리고 노점 측정모듈로 구성되었다. 그리고 수소 동위원소( $H_2$ , HD) 및 산화물( $H_2O$ , HDO) 농도는 사중극자 질량분석기(Quadrupole Mass Spectrometer, Hidden Analytical사)로 측정하였다. 캐리어 기체는 수분의 순도가 1ppm이하인 크로마토그래피 등급의 고순도 공기( $N_2$ : 79%,  $O_2$ : 21%)를 사용하였다. Molecular sieve 13X, 4A 및 mordenite 흡착제를 내경 11mm에 10cm 높이로 채워진 컬럼을 사용하여 25°C에서 상대습도와 유량별 파과거동 패턴을 확인할 수 있었다. 재생을 위한 가열 탈착은 출구 노점 변화가 없을 때까지 진행하였으며 0.2 l/min의 건조공기 유량으로 약 6시간 정도 소요되었다(Fig.1).

온도에 따른 항습 캐리어 공급시스템을 이용하여 수소동위원소 산화물 증기의 4A, 13X 및 mordenite 형의 합성 제올라이트의 충전 컬럼에서 기본 흡착 거동을 시험하여 동적 파과 용량의 함수율이 20% 정도 전후의 일정한 파과 패턴을 확인하였다(Fig.2, 3). 파과용량은  $13X > 4A > mordenite$  형태 순으로 높게 나타났다. 경수( $H_2O$ ) 및 중수(HDO)의 흡착거동은 거의 동일하였으나 중수 성분이 약간 늦게 탈착하는 경향이 확인되었다(Fig.1). 2 vol.%의 수소( $H_2$ )가 함유된 헬륨 캐리어를 사용한 가열 재생시험에서는 흡착제의 중수소(HD) 탈착에 미치는 영향은 거의 확인할 수 없었다. 따라서 가열 재생시 수소에 의한 중수소 탈착의 동위원소 교환효과(isotopic swamping) 효과는 이 실험 조건에서는 확인되지 않았다.

Table 1. Humidity conditions by using the liquid delivery system with vapor control

Water flow (g/hr)	Dry air flow (L/min)	Absolute humidity (gH <sub>2</sub> O)/g dry air	Relative humidity (%)			Dew point (°C)
			15°C	25°C	35°C	
0.1	1.0	0.0015	13.01	7.25	4.22	-11.02
0.2	1.0	0.0029	25.97	14.46	8.41	-3.06
0.3	1.0	0.0044	38.87	21.64	12.59	2.05
0.4	1.0	0.0058	51.72	28.79	16.75	6.11
0.5	1.0	0.0073	64.51	35.91	20.89	9.35
0.6	1.0	0.0088	77.24	42.99	25.01	12.05
0.7	1.0	0.0102	89.92	50.04	29.11	14.38
0.8	1.0	0.0117	-	57.06	33.19	16.42
0.9	1.0	0.0131	-	64.05	37.26	18.25
1.0	1.0	0.0146	-	71.01	41.3	19.9

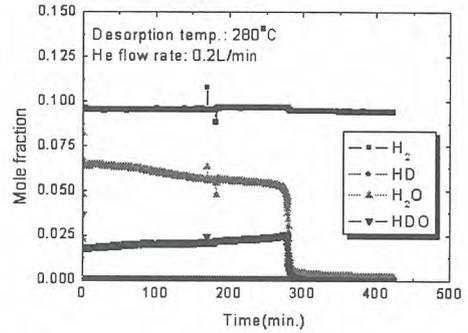


Fig. 1. Desorption curves for hydrogen isotopic water vapor from molecular sieve 4A bed.

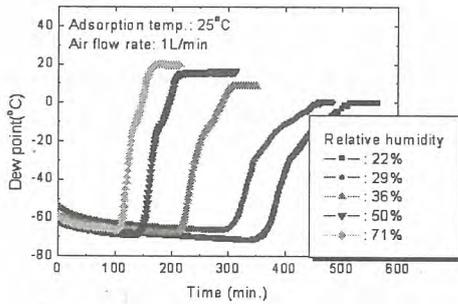


Fig.2. Breakthrough curves for water vapor adsorption on molecular sieve 13X bed at different humidity.

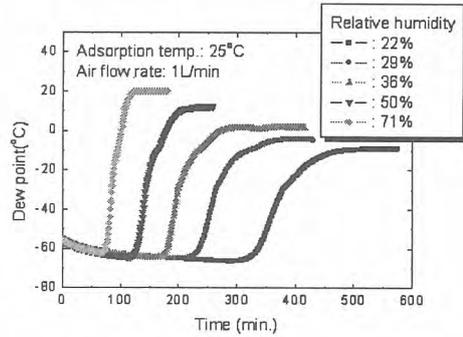


Fig. 3. Breakthrough curves for water vapor adsorption on molecular sieve 4A bed at different humidity.

감사의 글: 본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

## Pd합금 투과막 운전특성 연구

정홍석, 김광락, 백승우, 이민수, 심명화\*, 임성팔, 안도희

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

\*과학기술연합대학원대학교, 대전광역시 유성구 어은동 52번지

방사성 동위원소인 트리튬 오염물질은 핵확산저항성 핵연료주기공정, 중수형 원자로와 트리튬을 활용하는 첨단시설 등의 국내 원자력 산업에서 기체, 수용액 및 유기상의 다양한 화합물 형태로 발생되며, 원자력의 국민 수용성 확보를 위해서 ALARA 개념으로 안전하게 처리되어야 한다. 특히 삼중수소수 등의 오염물질을 재활용하거나 환경으로 방출을 억제시키기 위한 트리튬의 제거 및 분리 기술의 확보는 국민 보건 향상과 트리튬 응용제품을 수출산업으로 육성할 수 있는 기반 기술 조성에 필수적이다. 트리튬관련 산업의 배수 중 트리튬 배출관리 기준은 선진국은 물론 국내에서도 국민 보건 향상 측면에서 계속 엄격해질 것으로 전망되므로 원자력 산업의 지속적인 발전을 위해서는 트리튬 오염물질의 처리기술 확보가 요구된다. 트리튬 처리기술의 개발은 원자력에 대한 수용도 제고와 국민이해 기반조성에 긍정적인 역할을 하게 될 것이다. 특히, 트리튬 응용에 대한 연계 협력업무도 활성화할 수 있을 뿐만 아니라, 관련된 환경산업은 지속적이고 꾸준한 기술 발전 및 일반사회의 관심으로 국민 이해기반이 조성될 것으로 기대된다.

이러한 삼중수소수를 처리하기 위한 CECE (Combined Electrolysis and Catalytic Exchange, 전기분해 촉매교환결합) 공정은 삼중수소수(HTO)로부터 트리튬을 HT형태로 제거하는 경제적인 공정이다. CECE 공정은 수소동위원소 교환탑, 전기분해조와 투과막으로 구성되어 있다(Fig. 1). 교환탑에서 농축된 삼중수소수는 전기분해되어 삼중수소화 된다. 이 삼중수소에는 수분과 산소 등 불순물이 있다. 투과막은 수소만 선택적으로 분리 통과시킨다. 이와 같이 불순물이 제거된 삼중수소(HT)는 Ti 스펀지에 안전하여 저장된다. 본 논문에서는 삼중수소 정제를 위한 Pd합금 투과막 운전특성을 분석하여 향후 본격적인 삼중수소수 처리공정 개발에 대비하고자 한다.(Fig. 2)

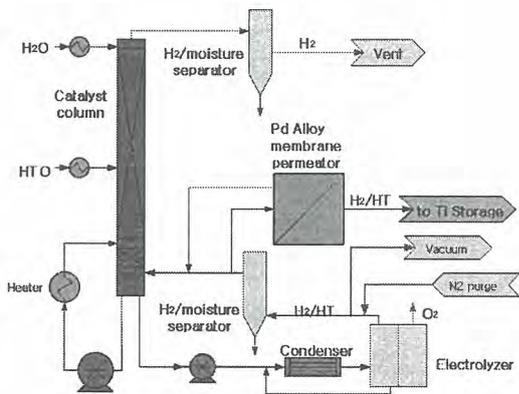


Fig. 1. Pd alloy membrane permeator system.

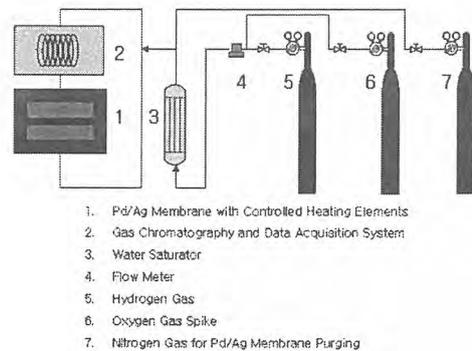


Fig. 2. Membrane design data acquisition.

팔라듐 합금은 수소 투과 분리에 쓰인다. 참고로 은막은 산소 분리에 쓰인다. 순수한 팔라듐은 300°C 이하, 20기압 이하에서 수소 함량이 높아질수록 α상에서 β상으로 변하기 때문에, 수소 분리에 적합하지 않다. 상변화는 막을 팽창 및 수축으로 파손되게 한다. 따라서 합금은 은을 23-25%

함유한다. 막은 다공성 담체 위에 1-10 $\mu$ m의 아주 얇은 두께로 만든다. 다공성 담체 재질은 유리, 알루미늄 및 지르코니아 등이다. Pd 합금 막의 분리계수는 무한대(순수 수소 중 불순물 1ppb 이하)이다.

본 연구에 사용되는 투과막은 할로젠, 할로젠 화합물, 황 화합물 및 금속 화합물 또는 증기 같은 부식성 물질 분위기에서 사용하면 안 된다. 질소, 일산화탄소, 이산화탄소, 수증기, 암모니아 및 메탄은 투과막에 해를 주지 않으나, 해당 분압만큼 수소 투과량을 감소시킨다. 특히 기름, 유기화합물, 솔벤트, 그리스, 파이핑 화합물 및 피팅 윤활제(납 성분 함유 시는 더욱 나쁨)는 투과막의 성능을 떨어뜨린다. 수은, 납, 아연 및 철의 염도 투과막에 좋지 않다. 산소는 1,000ppm 이상이 수소에 혼합되어 공급되면 안 된다. 산소는 부식성은 없지만, 수소와 팔라듐 촉매 상에서 반응하여 막의 온도를 올려 막손상을 초래하게 된다. 예로 1,000ppm의 산소는 막의 온도를 30 $^{\circ}$ C 상승시킨다. 최적 운전압력은 13.6atg이며, 최대 압력인 17.0atg를 넘으면 안 된다. 투과막은 온도가 최대 450 $^{\circ}$ C를 넘으면 안 되고, 수소분위기에서 300 $^{\circ}$ C 미만으로 냉각 되도 안 된다. 따라서 투과막 수명을 최대화하기 위해, 투과막 냉각 전에 수소를 반드시 퍼지 시켜야 한다. 가동 중, 정전이 10초 이상 지속되면, 질소로 라인을 45분 이상 퍼지하여 막을 보호한다. 수소 주입 전에도 feed 라인은 진공 처리하는 것이 필요하다. 가동 전, 산소 제거를 위해 막의 양측을 진공화 한다. 진공화가 퍼징보다 유효하다. 수소 주입은 막의 온도가 400 $\pm$ 25 $^{\circ}$ C일 때 시행한다. 히터 가열 전이나, 가동 후 수소가 투과막에 남아 있으면 막이 손상된다. 히터 가열 시, 막의 열용량 최소화를 위해, 400 $^{\circ}$ C 승온 시간은 45분 이상으로 한다. 막의 온도가 400 $^{\circ}$ C가 되면 비로소 feed 가스를 서서히 주입한다. 투과막의 성능은 400 $^{\circ}$ C에서나 425 $^{\circ}$ C에서나 거의 같으므로 400 $^{\circ}$ C보다 높은 온도에서 운전할 이유가 없다. 그러므로 투과막 운전온도는 400 $^{\circ}$ C로 설정하고, 실제 운전은 유량에 따라 375-425 $^{\circ}$ C 범위에서 수행한다. Bleed 양은 산업수소의 경우 1%이며, 전해수소의 경우, 1%보다 적어도 무방하다. 운전 중 가장 중요한 사항은 수소 안전이다. 수소는 공기 중, 4-75% 농도일 때 연소된다. 수소는 공기 중, 18-59% 농도일 때 폭발한다. 공기 중 자동 점화 온도는 500 $^{\circ}$ C이다. 200mA@24VDC의 매우 약한 전기 방전에 점화되므로 수소의 유출에 각별히 주의한다. 투과막 안전운전 절차는 Table 1과 같다.

운전 시간	운전 절차
가동 전	투과막 양측 라인을 진공화 함
히터 가동	투과막을 45분 이상에 걸쳐 서서히 400 $^{\circ}$ C로 승온
feed 주입	feed 가스를 서서히 주입하여 13.6atg 되게 함
bleeding 시작	bleed 가스 밸브를 열
순수 수소동위원소 생산	생산된 순수 수소동위원소를 Ti 스펀지에 흡장시킴
가동 중지 절차	순수 수소 밸브를 잠금, feed 밸브를 잠금, bleed 밸브를 잠금
진공화	투과막 양측 라인을 진공화 함
아이들링	48 시간 이내의 아이들링 시는 진공 또는 질소 상태에서 히터 켜
가동 중지	히터 전원 차단

Table 1. Operation procedure for the safe membrane handling

감사의 글: 본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

## 원전 계획예방정비시 방사성폐기물 감용처리 표준화 공정 개발

고영우 · 김영식 · 김효철 \*

한국수력원자력주식회사, 부산시 기장군 장안읍 고리 216 고리원자력제1발전소

\* 하나검사기술(주), 서울특별시 송파구 오금동 33-3번지 성산빌딩 4층

[kys@khnp.co.kr](mailto:kys@khnp.co.kr)

### 요약

원자력발전소 계획예방정비시 발생하는 방사성폐기물 작업공정 및 특성상 단기간에 방사성폐기물이 집중적으로 발생한다. 계획예방정비 기간중 발생하는 방사성폐기물의 종류 및 내용물은 약 0~80% 이상이 철재류, 비닐류, 먼류, 종이류가 차지하고 있다.

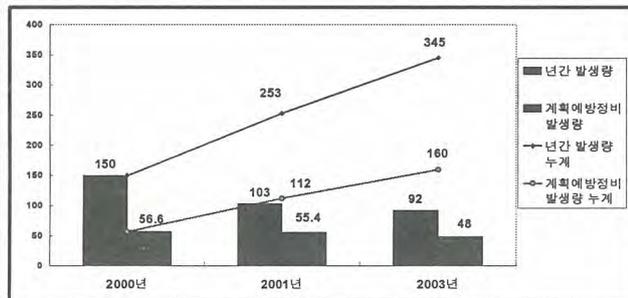
기존 방사성폐기물에 대한 감용 및 재활용등 처리방법을 개선하고 일련의 작업공정을 표준화할 필요성이 있었다. 이에 따라 계획예방정비시 발생하는 방사성폐기물의 종류 및 특성을 고려하여 작업절차를 개선하고 표준화 공정을 적용한 사례 및 실적을 소개하고자 한다.

#### 1. 방사성폐기물 발생 현황

○ 고리 1발전소 잡고체 방사성폐기물 발생 추이

(단위: m<sup>3</sup>)

비고	년도	2000	2001	2003
년간 잡고체 생성량		150	103	92
계획예방정비 잡고체 생성량		56.6	55.4	48

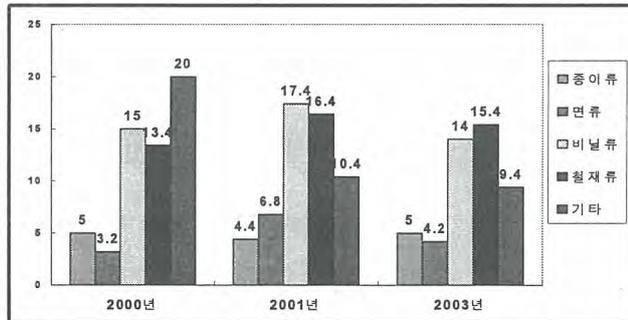


※ 계획예방정비시 잡고체 폐기물은 전체 잡고체 폐기물의 약 40~50%을 차지함.

○ 계획예방정비시 잡고체 종류별 발생 추이

(단위: m<sup>3</sup>)

종류	년도	2000	2001	2003
종이류		5.0	4.4	5.0
먼류		3.2	6.8	4.2
비닐류		15.0	17.4	14.0
철재류		13.4	16.4	15.4
기타		20.0	10.4	9.4



※ 계획예방정비시 잡고체 폐기물중 철재류, 비닐류, 먼류, 종이류가 약 65~80%을 차지함.

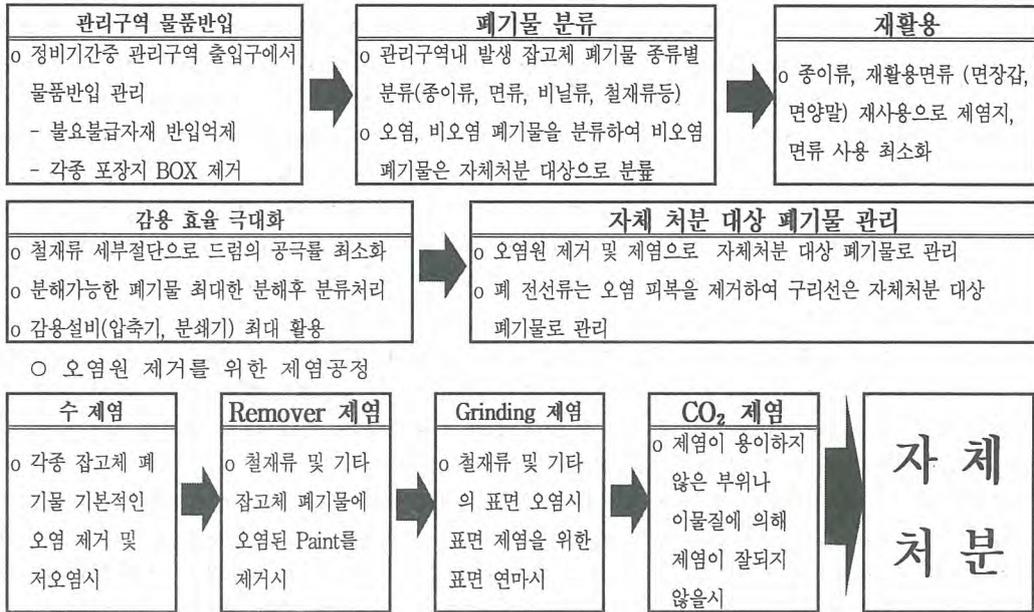
#### 2. 방사성폐기물 처리개선 및 표준화 공정

○ 기존 방사성폐기물 처리방법

방사성폐기물 수거시 일괄적으로 수거한 후 폐기 작업실에서 폐기물을 종류별로 분류한 다음 압축 가능한 폐기물은 드럼처리 후 압축기로 압축하고 분쇄가 가능한 폐기물은 분쇄후 압축처리하며, 철재류는 드럼장입 가능한 크기로 절단하여 드럼처리 한다.

○ 처리 방법 개선 및 표준화 공정

방사성폐기물은 반입물품을 관리구역 출입구에서 제한해야 될 뿐 아니라 관리구역 내에서 발생하는 방사성폐기물은 자체처분 규제 핵종별 기준 농도가 강화되고 있는 실정이어서 향후 방사성폐기물의 처리 방법은 기존 방사성폐기물 처리방법에서 자체처분 규제 요건이 강화되어 기준치 이하로 관리하는 제염방법이 요구되어 작업절차를 개선하고, 감용 처리에 대한 표준화 공정이 필요로 하여 처리방법을 개선하였다.

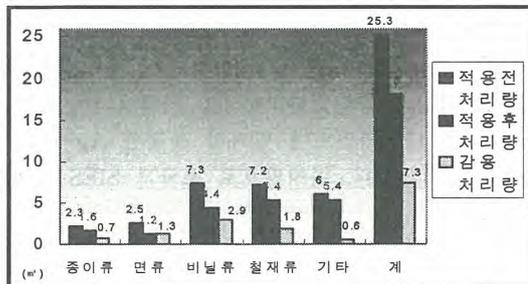


3. 결 론

고리원자력 제 1발전소 2호기 제 19차 계획예방정비시 폐기물 감용 처리 작업 절차를 개선하고, 표준화 공정을 적용하여 고체 방사성폐기물의 감용효과를 극대화 하였으며, 자체처분 대상 물량을 확대하여 방사성폐기물 관리에 최선의 노력을 다하고 있다.

(단위: m<sup>3</sup>)

구 분	종이류	면류	비닐류	철재류	기타	계
적용전 평균처리량	2.3	2.5	7.3	7.2	6.0	25.3
적용 발생량	3	2.4	4.9	9.4	6.9	26.6
적용 후 처리량	1.6	1.2	4.4	5.4	5.4	18
감용량	0.7	1.3	2.9	1.8	0.6	7.3



향후 작업절차 개선 및 방사성폐기물 처리 공정의 표준화를 위한 지속적인 노력과 신기술 개발로 원자력 발전소 안전 운영에 기여하고자 한다.

참 고 문 헌

1. 방사성폐기물의 자체처분에 관한 규정(과학기술부고시 제2001-30호)
2. Development of Regulatory Requirements for Clearance of Radioactive Waste (방사성폐기물 규제해제 요건 개발, 주제별 보고서, KINS/RR-144, 한국원자력안전기술원)
3. 원자력 발전소 방사선 관리 연보(2000 ~ 2004년도, 한국수력원자력주식회사)

## SIES 성능 개선을 위한 전처리 방안 연구

김상수 · 이상진 · 심성보 · 양호연 · 김경덕 · 조항래\* · 정희철\*

원자력환경기술원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

\*울진1발 화학기술부, 경북 울진군 북면 부구리 84-4

울진 1발전소 폐액증발기의 처리용량 감소 및 제염계수 저하 등 증발기 성능이 저하되어 폐액증발기 여유설비로서 SIES(Selective Ion Exchange System, 선택성이온교환시스템) 설비가 설치되었으나 방사성 폐액에 함유된 부유물질과 기름성분들에 의해 선택성 이온교환설비의 활성탄과 이온교환수지가 쉽게 오염이 되는 등 전처리 설비의 미설치로 인한 설비운영상 여러 문제점이 발견되어 SIES의 정상운전이 불가능 하였다. 따라서 본 연구에서는 선택성 이온교환설비로 유입되는 방사성 폐액의 수질을 개선함으로써 본 설비의 방사성 핵종에 대한 제거 성능을 향상시키고자 선택성 이온교환설비의 보완 공정으로 막분리 공정을 적용하기 위한 연구를 수행하게 되었다.

발전소에서 발생하는 실제 폐액 적용을 통한 각 막의 처리 성능을 확인하기 위하여 실험실 규모의 전·후처리 장치와 소규모 SIES 실험장치를 제작하였으며 그림 1에 나타내었다. 실험에 사용된 정밀여과분리막(Microfiltration)은 (주)이엔이의 SuperMAK(여과면적 5m<sup>2</sup>)이고, 나노분리막(Nanofiltration)은 Film Tec.사의 NF2540(여과면적 2.6m<sup>2</sup>)이며, 소규모 SIES 장치의 활성탄 및 수지들은 현재 울진 1발 SIES 설비에 사용하는 모델을 이용하였다. 처리 대상 방사성 폐액은 울진 1발 공정배수와 바닥배수이며 폐액 특성은 표 1에 나타내었다.

방사성 폐액 중의 부유성 물질을 제거하기 위한 정밀여과분리막은 방사성 폐액이 연속적으로 유입되는 200liter 탱크안에 침지 되어 있으며 흡입 8분, 역세정 5초의 조건으로 운전하였으며 역세정은 정밀여과분리막 투과수를 사용하였다. 운전중의 흡입 압력 및 처리유량은 압력계와 유량계를 통하여 확인하였다. 나노분리막 장치는 정밀여과분리막 투과수를 640 l/hr의 유량과 8kg/cm<sup>2</sup>의 압력으로 공급하였으며 펌프 과부하를 방지하기 위하여 Bypass를 하였다. 소규모 SIES 장치는 활성탄, Cs 제거용, 양이온, 음이온 및 혼상의 이온교환수지를 각각 충전한(6kg/10 l) 장치이며, 나노분리막 투과수를 원수로 하여 정량펌프를 이용하여 54 l/hr(0.9 l/min)의 유량으로 실험을 하였다. 각 공정의 효율을 판단하기 위하여 pH, 탁도, SS(Suspended Solid), 전기전도도 및 총방사능 분석을 하였다.

공정배수와 바닥배수 폐액을 정밀여과분리막-나노분리막-SIES 공정으로 처리한 결과를 표 2에 나타내었다. 현탁고형물은 초기 83ppm정도에서 정밀여과막과 나노분리막을 거치면서 98%이상 제거되었다. 탁도는 정밀여과분리막에서 99%의 제거율을 나타내어 나노분리막 유입 수질 조건인 1NTU이하를 만족하였다. 방사능 변화에서는 초기 10<sup>-3</sup>μCi/cc에서 막 장치를 통과할 때마다 뚜렷한 감소를 나타내었으며 입자성 물질인 Ag-110m은 정밀여과분리막과 나노분리막을 통과하면서 대부분 제거되었다. 마지막으로 소규모 SIES 장치를 통과한 폐액에서는 방사성 핵종이 검출되지 않았다.

표 1 울진 1발 방사성 폐액 수질

구분	pH	탁도(NTU)	SS(ppm)	전기전도도(μS/cm)	총방사능(μCi/cc)
공정배수	7.10	72.0	83(최대)	60.0	2.48*10 <sup>-3</sup>
바닥배수	7.03	27.6		69.4	1.83*10 <sup>-3</sup>

표 2 정밀여과분리막 - 나노분리막 - 소규모SIES 공정 투과수 특성

구분	공정배수(바닥배수)	MF 투과수	NF 투과수	SIES 투과수
pH	7.10(7.03)	7.15(7.13)	7.23(7.25)	5.70(5.87)
탁도(NTU)	72.0(27.6)	0.59(0.26)	0.09(0.06)	ND
SS(ppm)	83	2 이하	1 이하	ND
전기전도도( $\mu\text{S}/\text{cm}$ )	60.0(69.4)	57.4(78.0)	22.0(29.0)	0.8(0.7)
총방사능( $\mu\text{Ci}/\text{cc}$ )	$2.48(1.83) \times 10^{-3}$	$2.00(2.76) \times 10^{-4}$	$3.05(3.48) \times 10^{-5}$	ND

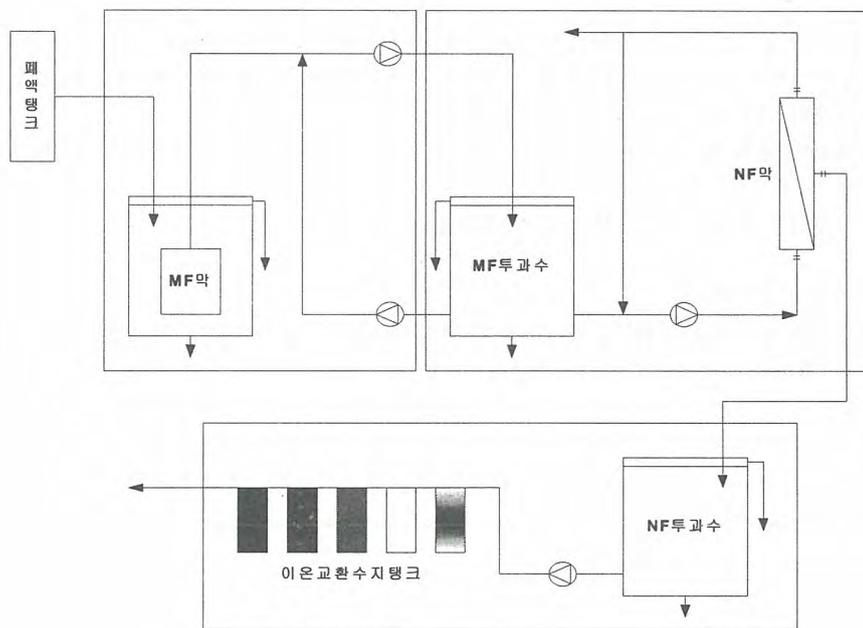


그림 1. 실험실 규모 전·후처리 장치 및 소규모 SIES 장치 공정도

## 공기정화필터 프레임 재사용과 그에 따른 효과 고찰

윤철중, 송대원, 장동철

한일원자력(주), 경기도 안양시 만안구 안양7동 동영벤처스텔 3층

### 요 약

방사선관리구역 내에서 발생하는 많은 양(발전소별 연간 약100~700개 정도)의 사용 후 공기정화 필터는 고체 폐기물 드럼의 단면적 보다 넓어 별도로 필터를 압축하거나 분해 작업 없이는 폐기물로 직접 처리가 곤란하다. 처리 시 많은 양의 분진이 발생하여 작업자의 내부피폭 가능성 및 많은 양의 고체 폐기물이 발생할 수 있는 잠재성이 있어 시료분석 결과 오염된 필터 내지는 바로 드럼 처리하여 내부 피폭 가능성을 미연에 방지하고 필터 프레임은 재사용을 유도하여 폐기물 저감화, 작업환경 개선 및 경제적인 이익을 창출할 수 있다. 영광 3발전소와 울진 3발전소의 경우 타 발전소에 비해 방사선관리구역 내 공기정화 처리기의 설치수량이 많아(약 700개/년) 공기정화필터가 매년 다수 발생되고 있으며, 이를 전량 드럼 처리 시 고체폐기물 드럼이 더 발생하게 되어 영구처분비용의 증가를 초래하게 된다. 발전소 전체적으로는 약 3,500개/년의 폐필터가 발생되고 있다.

이렇게 발생하는 공기정화필터의 프레임을 재사용함으로써 그 효과는

- 1) 알루미늄을 포함한 유리섬유를 드럼처리 시 고체방사성 폐기물드럼 생성량 감소
- 2) 프레임 재사용으로 인한 예산절감 효과
- 3) 폐필터 분해작업 시 분진에 의한 작업자 체내·외 피폭방지와 작업장 오염 확산 방지 및 환경개선
- 4) 작업시간 단축 및 소요인력 감소 효과를 볼 수 있다.

### ◆ 공기정화필터 발생현황

영광 0발전소 방사선관리구역 내 공기 정화 처리기의 설치수량이 타 발전소의 1.5배 (울진 0발)~10배 (월성0발) 많아 공기정화 필터가 매년 많이 발생되고 있으며, 이를 전량 드럼처리 시 연간 약 40~50 드럼의 고체폐기물 드럼이 발생된다. 또한 신규 발전소인 영광 0발전소와 울진 0발전소의 경우 연간 약 700여개의 필터가 발생하므로 이로 인해 폐기물 발생의 우려가 높으며, 발전소 전체적으로 약 3,500개/년의 폐필터가 발생이 되고 있다. 각 발전소별 필터 발생 및 처리 방법은 위 【표 1】와 같다

발전소	분해방법	처 리 방 법		연간 발생량(개)	비 고
		필터매질	Frame		
영광1	압축기사용 수작업분해	필터내지는 드럼처리 (Al+유리섬유)	자체처분처리	약 250	- 철재류, 필터내지를 구분하여 시료채취 후 오염된 것은 드럼처리 비오염은 자체처분
영광2	수작업	필터내지는 드럼처리 (Al+유리섬유)	자체처분처리	약 400	
영광3	수작업	필터내지는 드럼처리 (Al+유리섬유)	자체처분처리	약 700	
고리1	반자동 (수작업)	드럼처리 (Al+유리섬유)	자체처분처리	약 250	
고리2	수작업	드럼처리 (Al+유리섬유)	자체처분처리	약 250	

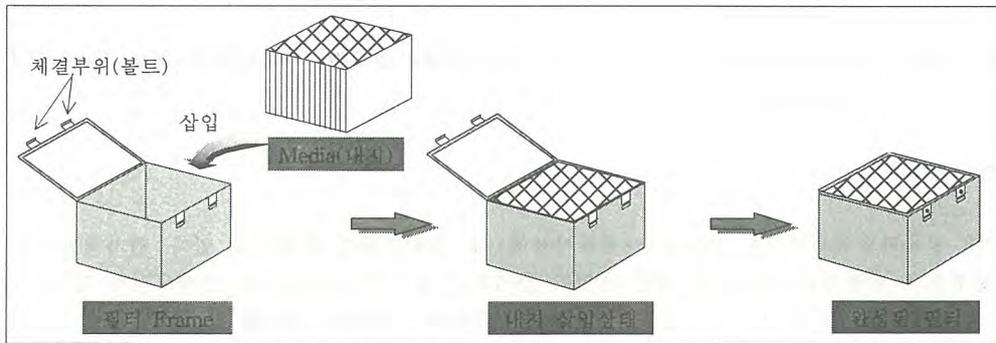
발전소	분해방법	처리 방법		연간 발생량(개)	비 고
		필터매질	Frame		
울진1	수작업	유리섬유만 드럼처리	자체처분처리	약 350	(자체 제작한 필터 처리기로 처리) *발생량은 오차가 있을 수 있음
울진2	수작업	드럼처리 (Al+유리섬유)	자체처분처리	약 350	
울진3	수작업	드럼처리 (Al+유리섬유)	자체처분처리	약 700	
월성1	수작업	드럼처리 (Al+유리섬유)	자체처분처리	약 100	
월성2	수작업	드럼처리 (Al+유리섬유)	자체처분처리	약 100	

【표 1】 발전소별 필터 발생 및 처리 방법

◆ 공기정화필터 프레임 재사용

필터의 일반적인 성능 요구 사항은 수증기와 접촉할 수 있는 필터 표면 재질은 스테인레스강이나 그와 같은 등급의 재질이어야 하고, 프레임은 쉽게 보수 또는 교체할 수 있어야 한다.

필터의 품질등급은 “Q”등급 설비이므로 한국수력원자력(주)의 “Q”등급에 대한 품질보증 프로그램에 따라 제작되어야 한다. 또한, 필터 프레임은 쉽게 제염이 가능해야 하고, 핵종분석결과 N/D의 Data가 입증 되어야 한다.



【사진 1】 프레임 재사용(체결형)

▶ 특수제작된 필터 내지를 규격화된 프레임에 넣고 체결링과 볼트를 조여 쉽게 조립할 수 있다.

◆ 프레임 재사용으로 인한 기대효과

폐필터 프레임을 포함한 유리섬유와 알루미늄, 내지를 전량 드럼 처리 시에 비해 약 20~30 드럼/년의 생성량을 감소할 수 있다. 프레임 재사용으로 인한 예산절감 효과 및 폐필터 분해 작업 시 분진에 의한 작업자 체내·외 피폭방지 및 작업장 오염 확산 방지에 기여한다. 적기에 공기정화 필터를 해체하여 처분함으로써 별도의 필터 보관 장소가 불필요 하게 되고 작업 시간 단축 및 소요인력 감소 효과를 가져 올 수 있다. 작업 시간 단축으로 집단 피폭선량의 감소도 기대 된다. 폐필터의 부피가 줄어들어 드럼 영구 처리비용을 절감할 수 있다.

◆ 타 원전 적용 가능성

현재 전 발전소에서 폐기처리 되는 폐필터 발생량이 100~700개 이상인 점을 감안할 때 전체 3,000~3,500개/년 이상 발생되고 있다. 발전소별 필터의 사양에 따라서 약간의 차이는 있을 수 있으나 적용 후 작업환경 개선으로 인한 작업자의 신체보호, 투입인력의 절감, 영구처분비의 절감으로 인한 경제적 이익 대체 효과는 클 것으로 기대된다.

## 울진 5,6호기 액체방사성폐기물 처리설비 원심분리기 성능 고찰

강현태, 황수동,\*이화석

한국수력원자력(주) 울진본부 경북 울진군 북면 부구리 80-1, \*거제대학 전기과

[nalburushim@khnp.co.kr](mailto:nalburushim@khnp.co.kr)

### 요약

The centrifuge system in liquid radwaste system(LRS) is composed of several skids including Decanter and Separator. The decanter separates the sludge over 5mm in size within liquid radwaste by centrifuge force and drops it into 55gallon drum. The separator separates the sludge over 0.1um in size within the liquid radwaste processed by Decanter by centrifuge force. The process of separating the sludge from the LRS keeps the resin in Ion Exchanger from being damaged and improves the performance of Ion Exchanger, and satisfies the decontamination factor suggested in Uljin 5,6 FSAR to safety discharge into the outer environment.

**Key word** : Liquid radwaste system(LRS), Centrifuge system, Decontamination Factor(DF), Suspended Solid(TSS)

### 1. 서 론

국내 원자력발전소에서는 다양한 액체방사성폐기물 처리기술이 적용되고 있다. 원자력발전소에 서 환경으로 배출되는 방사능에 대한 관심이 증가하고 있으며 관련 법 및 규제요건에 방사능 배 출 기준이 반영되고 있다. 또한 경제성 및 효율성측면에서 폐액의 재순환 방안이 검토되고 있다. 현재 우리나라 원자력발전소에서 운영중인 원전의 액체방사성폐기물 처리설비는 설계특성에 따라 단일증발기, 이중증발기, 원심분리기, 및 향후 건설예정인 역삼투압설비로 분류된다.

단일증발기는 국내 원자력발전소 초기에 도입된 설비로 단순배출로 운전 중 액체방사성폐기물 발생량을 기준으로 용량이 산정되며 다중성 설계되어 있지 않다. 이중증발기는 단일증발기에 비go 처리용량이 증가되었고 다중성 설계되었으며 운전과도상태를 예상 수용 가능한 용량으로 설계되 었으나 여과기 교체주기의 빈번, 유입 폐액에 부유물로 인한 후단 이온교환기 및 증발기의 성능에 문제를 일으킨다. 따라서 본 논문에서는 기존 설비의 단점을 극복한 울진 5,6호기 액체방사성폐기 물 처리설비인 원심분리기의 설계특성에 대해서 기술하고 성능시험을 수행하여 그 성능을 평가하 였다.

### 2. 액체방사성폐기물계통 처리기술

단일증발기는 세탁 및 핫 샤워탱크에 수집된 폐액이 단순 여과 처리되며 바다배수폐액이 여과 및 탈염 처리된다. 방사성폐액수집탱크에 수집된 액체방사성폐기물은 증발기에 의해 처리되며, 증 발기에서 처리된 증류수가 탈염 처리된다. 처리된 액체방사성폐기물은 방출전 감시탱크에 수집된 다.

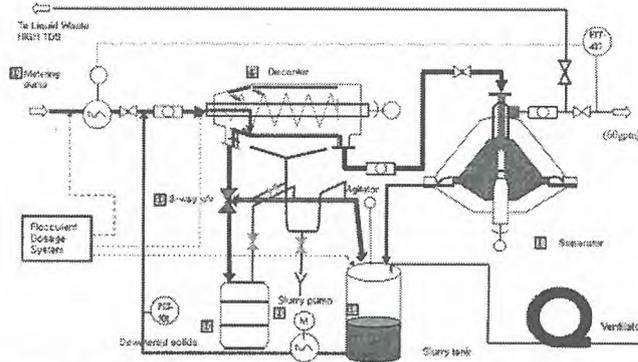
이중증발기는 고용존고형물폐액, 저용존고형물폐액, 및 화학폐액에 수집된 폐액을 처리한다. 제 염폐액은 화학폐액 처리계열로 이송 및 여과 처리되고, 저용존고형물폐액은 여과 및 탈염 처리되

며, 고용존고형물폐액은 30gpm의 용량을 가진 증발기에서 처리되고 처리된 증류수는 탈염 처리된다. 처리된 폐액은 감시탱크에 수집된 후 환경으로 배출된다. 액체방사성폐기물 처리 설비 분류별 적용 발전소를 <표 1>에 나타내었다.

<표 1> 액체방사성폐기물 처리 설비 적용 발전소

설비 분류	적용 발전소
단일증발기	고리 1,2, 울진 1,2
이중증발기	고리 3,4, 영광 1,2, 울진 3,4
원심분리기 및 이온교환기	영광 5,6, 울진 5,6

울진 5,6호기에 적용된 액체방사성폐기물 폐액처리 설비인 원심분리기의 개요도를 <그림 1>에 나타내었다.



<Fig. 1> Process Flow Diagram in Uljin 5,6 Nuclear Power Plant  
<그림 1> 울진 5,6호기 액체방사성폐기물 처리설비 원심분리기 개요도

원심분리기 및 선택성 이온교환기설비는 기존의 여과 방식 및 증발기 대신 원심분리기 및 이온교환기를 적용하여 폐액을 처리한다. 전량 배출로 설계되어 방사성물질의 소의 배출량이 이중증발 처리설비보다 증가하는 단점이 있으나 원심분리 슬러지 발생량은 증발기에 비해 적다. 따라서 고체방사성폐기물 발생량을 최소화시켜 향후 유리화 설비를 위한 전처리 설비로 타당하다. 또한 기존 설비에 대해 보수원의 방사선 피폭 저감효과가 있다.

### 3. 원심분리기의 성능 평가

울진 5,6호기의 상업운전 중에 발생한 방사성 폐액을 이용하여 액체폐기물계통의 방사성 물질 제염계수(Decontamination Factor : DF) 및 현탁 고형물(Suspended Solid : SS) 제거율을 통한 성능을 검정하였다. 원심분리기는 방사성폐액 내에 포함된 입자 방사성 및 부유고형물이 디캔터 및 세퍼레이터의 원심력에 의해 각각 5mm, 0.1um까지의 분리 성능을 가지고 있어 이온교환기의 수지 보호 및 성능을 향상시킨다. 따라서 계통에서 발생한 입자성 방사성폐액을 효율적으로 제거하는 측도인 DF를 측정하고, SS 제거율을 측정함으로써 원심분리기의 성능을 입증하였다.

#### 3.1 DF 및 SS 제거율에 대한 성능

제염계수 측정방법은 기기로 유입되는 액체폐기물계통 수집탱크인 고/저용존폐액저장(H/LTDS) 탱크의 폐액 방사성 농도에 대한 원심분리기를 통과한 후인 기기에서 유출수의 수집 탱크인 공급

(FEED) 탱크의 폐액의 방사성 농도의 비로써 식 (1)과 같이 나타낼 수 있다. 올진 5,6호기 최종안전성분석보고서에 제시된 원심분리기 제염계수는 <표 1>과 같다.

$$DF = \frac{\text{기기로유입되는방사능농도}}{\text{기기에서유출되는방사능농도}} \quad (1)$$

<표 1> 올진 5,6호기 최종안전성분석보고서의 원심분리기 제염계수

설비	액체방사성폐기물계통 핵종별 제염계수			
	불활성기체 및 삼중수소	할로겐핵종	Cs, Rb	기타
원심분리기	1	1	1	5

<표 2> 올진 5,6호기 액체방사성폐기물 처리설비 원심분리기의 제염계수

	검출 핵종	방사능(Bq/m <sup>3</sup> )		DF
		HTDS3	FEED8	
		Performance Test 1	Mn-54	
Co-58	4.073E+05		4.316E+04	9.44
Fe-59	2.285E+04		*4.820E+03	4.74
Co-60	1.382E+04		*2.520E+03	5.48
Nb-95	8.691E+03		*1.820E+03	47.8
Sb-124	3.693E+04		8.398E+03	4.40
Total DF		5.198E+05	6.501E+04	7.99

	검출 핵종	방사능(Bq/m <sup>3</sup> )		DF
		HTDS3	FEED8	
		Performance Test 2	Mn-54	
Co-58	1.338E+05		8.948E+03	14.95
Co-60	7.862E+03		*2.260E+03	3.48
Nb-95	9.434E+03		4.145E+03	2.28
Sb-124	1.707E+05		*2.340E+03	72.95
Total DF			1.707E+05	1.956E+04

주) \* : MDA값을 의미함

<표 3> 올진 5,6호기 액체방사성폐기물 처리설비 원심분리기의 SS 제거율

	현탁 고형물(ppm)		SS 제거율(%)
	HTDS3	FEED8	
1차	5	0.5	90
2차	1	0.1	90

본 논문에서 실험한 액체폐기물 처리경로는 고용존폐액저장탱크(HTDS3) 및 원심분리기 운전 후 수집된 공급탱크(FEED8)의 폐액에 대해서 <표 2>, 및 <표 3>에 제염계수 및 TSS 제거율을 각각 나타내었다.

#### 4. 결론

액체방사성폐기물 처리설비인 원심분리기는 방사성폐액 내에 포함된 입자 방사성 및 부유고형

물이 원심분리기를 구성하고 있는 디캐터의 원심력 의해 5mm이상의 슬러지를 1차적으로 분리시키고, 세퍼레이터의 원심력에 의해 0.1 $\mu$ m까지의 슬러지를 2차적으로 분리시키는 성능을 가지고 있어 이온교환기의 수지보호 및 성능을 향상시켰다. 본 논문에서는 울진 5,6호기의 계통에서 발생된 입자성 방사성폐액 및 부유고형물의 제염계수가 울진 5,6호기 최종안전성분석 보고서에서 제시된 값보다 높은 값을 나타냄으로써 그 제염성능이 입증되었다.

## 5. 참고 문헌

- [1] 이병식, 김길정, 국내원전 액체방사성폐기물계통 설계경험, Proceeding of the Korean Radioactive Waste Society Vol. 1, No. 2, November, 2003
- [2] 울진원자력발전소 5,6호기 최종안전성분석보고서 12권 pp 11.2-33

## 다양한 지르코늄 열전달 표면에서의 니켈 부착

정용주, 연제원, 최광순, 최계천, 김원호  
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

[sonamu@kaeri.re.kr](mailto:sonamu@kaeri.re.kr)

장주기 및 고효율 방식으로 전환된 PWR 운전 프로그램으로 인해 fuel CRUD의 양이 증가되는 현상이 일부 reactor에서 관찰됨에 따라 fuel CRUD에 대한 관심이 높아지고 있다. 계통의 부식으로 인해 발생된 부식생성물의 부착으로 생성된 fuel CRUD는 방사화된 후 fuel cladding 표면에서 일부는 유출되어 노심 외부로 이동하여 계통 구조물 표면에 재부착하는 것으로 알려져 있다. 결국 fuel CRUD의 증가는 계통 내 방사선 준위를 상승시키고 방사성폐기물 발생을 증가시키기 때문에 바람직한 원자로운전을 위해서는 반드시 해결해야 될 과제 중 하나로 여겨지고 있다. 이를 해결하기 위해 최근 EPRI에서 개발한 초음파 세척시스템의 경우, 현재 상당한 효과를 거두고 있는 것으로 알려지고 있다. 하지만 이러한 방법은 fuel CRUD가 이미 생성된 후에 대처한다는 점에서 한계를 가지고 있다. 보다 효율적인 방법은 금속이온 및 금속산화물 입자 등으로 알려진 부식생성물의 핵연료 피복재에 대한 부착을 사전에 최소화시킬 수 있는 방안을 도출하는 것으로 인식되고 있다. 이런 맥락에서 fuel CRUD의 생성 경로에 대한 연구가 최근 활발하게 진행되고 있다. 특히 fuel CRUD의 주성분으로 알려지고 있는 nickel ferrite의 생성에 대한 연구는 많은 연구자들의 주목을 받고 있다. 하지만 아직까지 nickel ferrite의 생성경로 규명에는 미진한 측면이 남아 있어 보다 체계적이고 과학적인 접근 방법이 요구되고 있다. 본 연구에서는 PWR과 유사한 온도 및 압력 조건에서 니켈의 부착특성을 조사하고 이를 토대로 nickel ferrite 생성경로에 대한 모델을 제안한다. 냉각재 모델 부식 생성물(model corrosion products)로는 니켈이온, 철 이온(ferrous ion) 및 철 산화물( $Fe_2O_3$ )이 사용되었다. 피복재 재질로는 실제 fuel cladding 재질과 거의 동일한 지르코늄(Zr 704)이 사용되었고, 부착실험은 200 ~ 280°C 온도범위에서 진행되었다. 특히, PWR에서는 fuel CRUD 형성속도가 매우 느린 것으로 알려져 있어서 일반실험실에서의 연구수행에 있어서 시간적인 문제가 가장 큰 걸림돌로 등장하기 때문에 이를 해결하고자 유속을 PWR 조건보다는 크게 낮추고, 부식생성물 농도는 크게 높여서 가속 부착실험을 수행하였다. 부착연구에 사용된 고온 고압 시스템의 개략도는 그림 1과 같다.

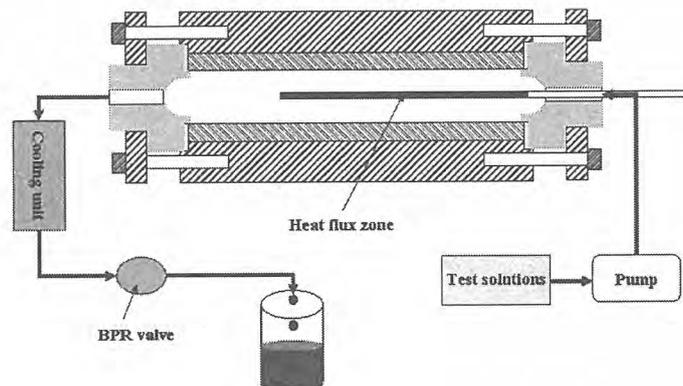


Fig. 1. Schematic of a once-through loop system for deposition tests.

부착이 일어나는 reactor의 용기 내부 재질은 지르코늄을 사용하여 보편적으로 사용하는 스테인레스 용기의 부식으로 인한 다양한 간섭효과를 차단하였다. 시스템의 압력은 BPR(back-pressure regulator) 밸브에 의해서 조절된다. 니켈의 부착특성은 다양한 지르코늄 열전달 표면에서 조사되었다. 산화막 형성속도, 산화온도, primer layer 형성 등을 포함한 다양한 물리화학적 방법에 의해서 지르코늄 히터 표면특성은 개질되었다. 주목할 만한 사실은 니켈의 부착은 지르코늄 표면 성질에 크게 영향을 받는다는 것이다. 특히, primer layer로 철 산화물 층이 형성되어 있는 지르코늄 표면에서는 니켈의 부착량이 크게 향상되었다.

# 빈 면

제2-2분과  
방사성폐기물 처분

# 빈 면

## Plan to Develop the Radioactive Waste Certification Program

### 방사성 폐기물 인증 프로그램 개발 방안

Hee-Jun Chung, Jae-Min Lee, Joo-Ho Whang, Heon Kim\* and Yi-Yeong Jeong\*

KyungHee University, 1 Sochen-ri Giheung-eup Yongin-si Gyeonggi-do

\*Korea Hydro & Nuclear Power Co., Ltd. 139-9 Gajeong-dong, Yuseong-gu, Daejeon, 305-350

정희준, 이재민, 황주호, 김현\*, 정의영\*

경희대학교, 경기도 용인시 기흥읍 서천리 1번지

\*한국수력원자력(주), 대전 유성구 가정동 139-9

#### Abstract

The proposed regulation for low and intermediate level radioactive waste disposal facility, scheduled to be revised, recommends that the waste generator should verify the radioactive waste conforms to the disposal requirements before disposing of it. According to the regulation, the radionuclide concentration of the radioactive waste, and its physical and chemical characteristics and safety must be confirmed prior to the disposal of low and intermediate level radioactive wastes, and the waste generator is required to deliver this information to the disposal facility operator. In addition, the disposal facility operator must assess the safety of the disposal site to establish the SWAC (Site Specific Waste Acceptance Criteria) in consideration of the characteristics of the site, whereas the waste generator must comply with the criteria in managing, disposing of and delivering low and intermediate level radioactive wastes.

To abide by the afore-mentioned regulation and criteria, the waste generator must verify that the radioactive wastes to be disposed of are suitable for disposal before they are transported to the disposal facility, and to this end a radioactive waste certification program must be developed.

This study conducted an in-depth analysis of the radioactive waste certification programs enforced in countries advanced in atomic energy to develop a draft of a certification program applicable to local power plants, and the program is currently applied as pilot to Uljin Power Plants No. 1 & 2 to prove its applicability. This study is going to analyze the results of the pilot application with a view to developing a radioactive waste certification program suitable to local conditions.

**Key word** : Site Specific Waste Acceptance Criteria(SWAC), Wastes Certification Program(WCP)

#### 요 약

개정예정인 중·저준위 방사성폐기물 처분시설 인도규정에서는 방사성폐기물 처분을 위해 폐기물 발생자가 방사성폐기물의 처분요건 적합성을 입증하도록 권고하고 있다. 이에 따르면 중·저준

위 방사성폐기물의 처분을 위해서는 폐기물의 핵종농도, 물리화학적 특성 및 그 건전성 등이 확보 되어야하며 폐기물 발생자는 이러한 정보를 처분사업자에게 전달하도록 규정되어 있다. 또한 처분 사업자는 처분시설의 안전성 평가를 통해 부지특성을 고려한 방사성폐기물 인수기준(Site Specific Waste Acceptance Criteria, SWAC)을 규정하며, 발생자는 이 기준에 따라 중·저준위 방사성폐기물을 관리, 처리, 인도하도록 규정되어 있다.

상기 규정과 기준을 준수하기 위해 폐기물 발생자는 처분대상이 되는 폐기물을 처분시설로 운반하기 이전에 처분적합성을 사전에 입증하여야 하며 이를 위하여 관련 제도 및 절차인 방사성폐기물인증프로그램을 개발하여야 한다.

본 연구에서는 원자력 선진국들에서 시행하고 있는 방사성폐기물인증프로그램에 대한 심층 분석을 통해 국내 원전에 적용 가능한 인증프로그램 초안을 개발하였고, 그 적용성을 검증하기 위하여 현재 올진 1, 2 발전소에서 시범 적용하고 있다. 앞으로 시범적용 결과분석을 통해 국내 여건에 부합하는 방사성폐기물인증프로그램을 개발하고자 한다.

**중심단어** : 방사성폐기물 인수기준(Site Specific Waste Acceptance Criteria, SWAC), 폐기물 인증 프로그램(Waste Certification Program, WCP)

## 1. 서론

중·저준위 방사성폐기물의 처분을 위하여 국내 관련 규정 및 절차가 완벽히 준비되어야 하며 현재 관련 업무들이 진행 중에 있다. '중·저준위 방사성폐기물 처분시설 인도규정'이 개정 중이며 처분사업자의 '방사성폐기물 인수요건' 시안이 제시되고 있다. 이에따라 폐기물 발생자는 '방사성폐기물 인증체계'를 수립하고 특성평가 및 그 외 항목에 대한 안전성평가를 수행하여 인도규정 및 인수기준의 부합됨을 증명해야 하며 지속적으로 폐기물 처리 절차 및 공정을 유지하여야 한다. 그러나 현 상용원전의 폐기물 관리체계의 경우, 원전의 안정적인 운영과 폐기물 임시저장을 우선적으로 고려한 체계이므로 처분을 위한 체계의 신규 정립 및 폐기물에 대해 생산품으로의 인식전환이 필요하며 체계적인 인증체계를 도입함으로써 폐기물 처분 소요비용 및 시간 절감화, 대외신뢰도를 확보할 수 있을 것으로 예상된다. 따라서 본 연구에서는 해외 문헌 검토 및 상용원전 현장 조건을 고려하여 방사성폐기물 인증체계(案)을 제시하고 상용원전 시범적용 평가를 통한 절차 개정 및 신규수립 방안을 제시하고자 한다.

## 2. 방사성폐기물 처분 규제 사항

현재 중·저준위 방사성폐기물의 처분을 위하여 관련 규정과 절차에 대한 보완 및 개정방안이 제시되고 있다. 개정예정인 과학기술부 고시 '중·저준위 방사성폐기물 처분시설 인도기준'에서는 중·저준위 방사성폐기물의 처분을 폐기시설등 건설·운영자에게 위탁하고자 하는 자가 폐기물을 인도하는데 필요한 인도방법·절차 및 기타 필요한 사항과 처분요건에 따라 폐기물이 갖추어야 하는 특성기준 등을 규정하고 있다.<sup>1)</sup> 또한 제정 예정인 '중·저준위 방사성폐기물 처분시설 운영기준'에서는 처분시설 운영자가 중·저준위 방사성폐기물 인도규정의 폐기물 특성 요건을 적용하되 운영자가 당해 처분시설 고유의 특성을 반영하여 자체 '인수기준'을 수립, 시행할 수 있도록 유연성을 부여하는 것으로 그 개발 방향이 진행되고 있으며 기준 내 조항에 폐기물 인수에 대한 조항을 설치하여 인도기준 및 규정(General Waste Acceptance Criteria, GWAC)에 부합하는 운영자 자체의 인수기준(Site Specific Waste Acceptance Criteria, SWAC)을 구체화하도록 하고 있다.<sup>2)</sup>

운영자 자체 인수기준 설립요건을 준용하여 제시된 '방사성폐기물 인수기준' 시안을 살펴보면 폐기물포장을 최소 안전성 요건, 처리공정 및 고화폐기물에 대한 관련시험 규격 등 세부화된 규제요건이 제시되고 있으며 향후 특성평가 수행 결과 및 처분부지 안전성 평가를 반영하여 확립할

예정이다.<sup>3)</sup>

### 3. 방사성폐기물 인증체계 개발 방향

방사성폐기물 인증체계는 조직, 프로그램, 절차서(검사/시험), 지침, 검증 및 인증장비로 구성되며 각각의 요소는 처분사업자의 폐기물 인수절차에 관한 세부적인 지침에 부합되어야 한다. 본 연구에서는 상용원전 발전사업자인 한수원을 고려하여 다음과 같은 구성(案)을 제시하고자 한다.<sup>4)</sup>

#### 인증조직

인증조직은 독립적인 신규조직으로 구성하며 인증원의 경우 방사성폐기물의 특성 및 공정 전반에 대한 지식을 지니고 있어야 함을 그 원칙으로 한다. 단, 방사성폐기물 처리공정작업의 책임 또는 관련종사자가 아니어야 한다. 상용원전을 대상으로 적용성 여부를 평가한 결과 세부구성(案)은 표 1. 과 같다.

표 1. 인증조직 구성(案)

구분	업무	편제	비고
인증조직 총괄(자)	- 인증조직의 업무 지원 및 대외지원 업무	한수원(주) 본사	
인증조직	인증관	- 인증체계 (현장) 최종승인자	부장급 책임자 1인
	검사역할(원)	- 방사성폐기물 처리 업무 및 실공정 검사 역할	한수원(주) 각 원전본부 6인 이상의 구성
	평가역할(원)	- 각종 서류에 대한 기술적 분석 역할	
	감사역할(원)	- 방사성폐기물 처리공정 및 체계의 감사 역할	

인증조직 총괄(자)은 상용원전에서 발생한 방사성폐기물의 처분시설 인도 최종 책임자로서 각 원전본부 인증조직에 대한 감사, 인사 및 그 외의 업무지원 활동을 수행하며 구성 인원, 권한 및 조직편제는 발전사업자가 자체적으로 결정한다.

인증조직은 각 원전본부 직할 조직으로 구성하며 현장책임자인 인증관과 업무형태에 따라 검사, 평가, 감사역할(원)으로 구성한다. 각 역할별 세부 책임 및 업무는 다음과 같다.

#### 가. 인증관

- 전반적인 인증체계의 관리 및 유지
- 방사성폐기물 최종 인증 권한
- 인증체계 및 사업자 기준 변경사항에 대한 승인 요청
- 인증원의 교육 훈련 계획 수립

#### 나. 검사역할(원)

- 폐기물 처리공정에 대한 필수확인점(H-Point), 입회점(W-Point), 문서보고점(R-Point)를 선정하여 공정에 대한 검사를 수행
- 현장 검사를 통한 드럼 내용물 및 충전률 확인, 표지 부착 여부, 핵종분석 결과, 방사선량 측정, 포장물의 손상 유무를 검사하며 폐기물이 인수요건에 적합하게 포장되었는지를 확인 및 검사

- 방사성폐기물 처리공정의 변화유무 검사
- 현장 검사를 통해 처분 부적합 폐기물에 대한 공정 중지 권한

다. 평가역할(원)

- 문서에 대한 기술적 평가 수행
- 처분시설 인수요건 부합성 평가
- 처분요청서 작성
- 문서(이력)의 관리 및 보관

라. 감사역할(원)

- 인증체계 수행에 대한 정/수시 감사계획 수립
- 문서, 체계, 공정, 포장물, 공정운영자 감사 수행

**인증원 자격요건 및 교육방안**

인증원은 일정 기준 이상의 자격을 지녀야 하며 그 자격의 유지를 위해 매해 인증관의 교육계획에 의거 원자력교육원 또는 동등 기관의 방사선안전, 폐기물 관리, 품질보증, 인증절차 등의 교육을 이수하도록 한다. 인증원의 자격 기준은 다음과 같이 제시하고자 한다.

가. 인증원의 자격

- 이공계 대졸자와 동일한 자격수준으로 폐기물 처리 계통 실무 2년 또는 품질업무 실무 2년 이상인 자로서 인증관련 교육을 이수한 자

나. 인증관의 자격

- 이공계 대졸자와 동일한 자격수준으로 폐기물 관리 업무 5년 이상이며 인증업무 2년 이상인 자

**인증수행 단계**

인증수행 단계는 폐기물 기초 이력의 작성 단계, 인증공정 단계(Check-point) 1·2·3, 부적합 조치 단계, 폐기물 최종 처분요청 단계로 표 2. 와 같이 구분하며 폐기물 기초 이력의 작성단계에서의 검사활동은 원전본부 품질부서가 수행하여 인증조직에게 결과를 통보하는 방법을 고려 중이며 인증공정 단계에서는 인증조직의 검사역할(원)이 필수확인점(H-Point), 입회점(W-Point), 문서 보고점(R-Point)를 선정하여 수행한다. 방사성폐기물의 특성을 확인하기 위한 파괴검사는 초기 인증체계 인가 시 수행하며 인가된 공정의 변화가 없는 경우 인증검사 횟수 및 절차를 간소화 하는 방안을 제시하고자 한다. 단, 규제기관/처분사업자 또는 그에 상응하는 기관의 요청시에는 수행하도록 한다.

표 2. 인증수행 단계

공정 단계	주관 부서	주요 수행업무
인증체계 인가 단계	방사성폐기물 처리 및 지원 조직	- 처분사업자의 세부 인수 기준에 의거 인증 조직이 요청한 자료의 이력생산
기초이력작성 단계	각 원전본부 품질부서	- 공정, 자재, 절차, 기기에 대한 품질검사 - 인증지원 조직에 결과 통보
인증공정 단계	인증조직 검사역할(원)	- 폐기물 드럼화 전 육안검사
		- 임시저장 시 핵종분석
		- 최종 처분 운반 전 비파괴검사 및 처분 문서와 폐기물의 부합성 확인
부적합조치 단계	방사성폐기물 처리 및 지원 조직	- 인증조직의 지시에 따른 절차 수행
폐기물 최종 처분요청 단계	인증조직 평가역할(원)	- 기초 이력 및 인증공정 단계별 생산자료의 문서화 및 처분요청서 작성

#### 4. 방사성폐기물 인증체계 시범적용 결과

3절의 인증체계 개발방향을 기초로 시범조직(Task Force Team), 프로그램, 절차서(검사/시험), 지침, 검증 및 인증장비를 선정하고 폐기물 처리 절차의 개정 및 작업자실명확인 방안을 제시하여 상용원전(울진 1,2 발전소) 잠고체, 농축폐액, 폐필터, 폐수지 총 4개의 스트림 및 유해물질 반·출입, 유해물질 관리, 핵종분석 절차를 신규로 작성하여 적용성을 평가, 수행 중이다. 1, 2차 시범적용을 통해 3차 시범적용 예정인 폐수지 및 핵종분석 절차를 제외하고 인도규정(案) 및 세부인수기준 부합여부를 확인하였으며 그 세부내용은 다음과 같다.

- 포장물 표지(인도규정 제5조) : 현재 시행
- 핵종별 농도제한(인도규정 제6조) : 핵종분석장치 운영계획 수립
- 표면오염(인도규정 제9조) : 현재 시행
- 유리수(인도규정 제14조) : 현재 시행, 검증방안 모색 중
- 드럼내 공간(인수기준 5조. 6) : 인증체계 도입 후 검사역할(원)의 필수입회점 선정
- 분산성 물질(인수기준 3조. 4) : 그라우트 [grout] 방안 모색 중
- 부식성물질(규정 제15조), 폭발성, 인화성(규정 제16조), 유해성물질, 킬레이트(규정 제17조)
  - 반입 및 반출 확인에 따라 물질 추적 : 물품반출입, 유해성물질 관리절차 신규 수립 및 제안
  - 부식성물질, 폭발성, 인화성, 유해성물질 구분 방안 : 유해화학물질관리법 물질표시절차에 의거 구분
  - 부식성물질, 폭발성, 인화성, 유해성물질 및 킬레이트 작업 시 폐기물관리부서통지 : 별도의 수거통 배치, 폐기물 특성별 수거/별도 관리 방안 제시

시범적용 결과 인증체계 도입 및 현 상용원전 절차의 개정, 신규작성 시 특성평가 항목을 제외 한 항목은 인도규정 및 인수기준의 규제조건에 대부분 부합할 것으로 예상된다. 그러나 유리수의 포함여부 검증방안, 분산성 물질의 그라우트 [grout] 방안 및 부식성물질, 폭발성, 인화성, 유해성물질의 규제요건 및 처리방안이 설정되어야 할 것으로 사료된다. 각 공정별 적용결과를 보면, 울진 1발 폐필터 처리공정에서는 공정자동화로 인해 드럼내 공간 확인(인수기준 5조. 6)이 불가능하여 시멘트 주입 시 검사역할(원)의 모니터링(Monitoring) 방법 설정 및 정확한 핵종분석을 위한 폐필터의 이력관리가 필요하다. 울진 2발에 적용한 잠고체 처리공정의 경우, 폐기물의 발생에서부터 오염 및 비오염 분류가 체계화 되어있으나 앞서 제시한 부식성물질, 폭발성, 인화성, 유해성물질, 킬레이트의 혼합여부와 건조여부 확인 절차 및 방법이 설정되어야 할 것이며 농축폐액 처리공정에서는 '농축폐액 시료분석 및 고화 처리량 계산표'에 PH 항목 추가를 권고할 예정이다. 그 외의 미비점 및 미수행 항목에 대해서는 현장절차를 참고하여 지속적으로 개선 또는 신규 수립할 예정이다.

#### 5. 결론 및 토의

중·저준위 방사성폐기물의 처분안전성 확보를 위해서는 방사성폐기물에 대한 인식의 전환이 급선무이다. 지금까지 방사성폐기물은 원자력발전의 부산물로만 취급받아 그 관리체계가 처분에 적합하지 않은 것이 사실이다. 그러나 앞으로 발생하는 폐기물에 대해서는 관련 규정 및 기준의 규제기준에 부합하도록 폐기물 발생부터 운반까지 전 단계에 방사성폐기물인증프로그램을 적용하여야 할 것이다.

국내 상용원전의 경우 발전소 별로 각기 다른 절차를 수립하여 운영하고 있으므로 과제 종료시 개발되는 방사성폐기물인증프로그램 결과에 따라 관련 절차 및 공정이 개정되어야 할 것이며 개

발된 방사성폐기물인증프로그램이 원전 방사성폐기물관리체계에 잘 뿌리 내릴 수 있도록 원전 관련 부서의 적극적인 참여와 규제기관의 관심이 필요하다.

#### 참 고 문 헌

1. 정찬우, 석대원, 박상훈, '천층처분시설 방사성폐기물 수요요건 수립 방안', 제2회 방사선안전평가기술심포지움 논문집, 한국원자력안전기술원, 2003.7
2. 정찬우 외 5, '중·저준위 방사성폐기물 처분시설 운영기준 수립방안', 한국방사성폐기물학회 학술논문집, 한국방사성폐기물 학회, 2004.6
3. 정의영, '처분사업자의 폐기물 수용기준 및 절차 수립방안', 제2회 방사선안전평가기술심포지움 논문집, 한국원자력안전기술원, 2003.7
4. 이재민 외 6, '방사성폐기물 인증 프로그램 개발을 위한 검토', 2004 방사선방어 및 방사성폐기물에 관한 추계 심포지움 논문집, 한국방사성폐기물 학회, 2004.11

## A Study on the Methodology to Ensure Long-Term Durability of Low and Intermediate Level Radwaste Disposal Concrete Structure

### 중·저준위 방사성폐기물 처분 콘크리트 구조물의 장기적 내구성 확보를 위한 방안 검토

Young-Ki Kim, Byung-Sik Lee, Yong-Ho Lee

Korea Power Engineering Company, 360-9 Mabuk Ri, Kusong Eup, Yongin

김영기, 이병식, 이용호

한국전력기술, 용인시 구성읍 마북리 360-9

#### Abstract

The concrete structure is being considered for the main engineered barrier of low and intermediate level radwaste disposal facility. Concrete of low permeability can minimize infiltration of water and effectively prevent release of nuclide to ecosystem. But if concrete degrades, structural stability of disposal structure will decrease while permeability increase, resulting in increased possibility of nuclide release due to water infiltration. Therefore disposal concrete structure degradation shall be minimized to maintain capacity of nuclide isolation. The typical causes of concrete structure degradation are sulfide attack, reinforcement corrosion due to chloride attack, leaching of calcium hydroxide, alkali-aggregate reaction and repeated freezing-thawing. The common cause of these degradation processes is infiltration of water or adverse chemicals into concrete. Based on the study of these degradation characteristics and mechanisms of concrete structure, the methodology of design and service life evaluation of concrete structure as an engineered barrier are reviewed to ensure its long-term durability.

**Key Word** : Radwaste disposal facility, Concrete, Degradation, Permeability, Durability  
Engineered barrier

#### 요 약

중·저준위 방사성폐기물 처분시설의 주 인공방벽으로 콘크리트 구조물이 고려되고 있다. 콘크리트는 투수성이 낮아 물의 침투를 최소화할 수 있으며, 핵종 물질의 누출 차단에도 효과적이기 때문이다. 그러나 콘크리트에 열화가 발생하면 처분구조물의 구조적 안정성이 낮아지며, 투수성이 증가하여 외부로부터 물의 침투로 인한 핵종물질 누출 가능성이 높아진다. 따라서 처분구조물의 오염물질 격리 성능을 증진하기 위해서는 콘크리트의 열화를 최소화하여야 한다. 콘크리트 구조물의 대표적 열화 원인으로 황산염의 침투, 염화물 침투에 의한 철근 부식, 칼슘 수산화물의 침출, 알카리-골재 반응, 그리고 구조물의 반복적인 동결-융해가 있다. 이러한 열화과정의 공통적 원인은 구조물에 물 및 유해한 화학물질이 침투하기 때문이다. 본 논문에서는 이러한 열화원인 및 메커니즘 검토에 기초하여 인공방벽으로서 콘크리트 처분구조물의 장기적 내구성을 확보하기 위한 설계 및

설계수명 평가 방안을 검토하였다.

**중심 단어** : 방사성폐기물 처분시설, 콘크리트, 열화, 투수도, 내구성, 인공방벽

## 1. 서론

중저준위 방사성폐기물 처분시설은 오염물질을 생태계로부터 300년 이상 격리할 수 있어야 하는 시설이다. 폐기물의 격리를 위해서는 폐기물과 물의 접촉을 최소화하기 위한 처분시설 건설이 필수적이다. 따라서 폐기물 처분장은 물과 폐기물의 접촉을 최소화하여 자연방벽 성능이 최대한 활용될 수 있는 부지에 건설되어야 한다. 그러나 현실적으로 우수한 부지를 선정하는 데는 많은 제약이 있으며, 또한 지질 및 지하의 수리/수문 특성을 평가하는 부지특성 조사에도 많은 불확실성이 잠재되어 있다. 이러한 문제점 때문에 최근 해외에서 추진 중인 대부분의 폐기물 처분장은 인공방벽 성능을 대폭 향상하는데 초점을 두고 연구 및 설계가 추진되고 있다.

처분시설에 사용되는 인공방벽의 주 재료로 내구성이 매우 높고, 수밀성이 좋으며, 화학적으로도 비교적 안정적인 재료로 평가되고 있는 콘크리트가 고려되고 있다. 콘크리트는 로마시대의 고대 콘크리트 구조물 중 일부가 여전히 구조적 건전성을 유지하고 있는 사례가 있으며, 포틀랜드 시멘트가 사용된 근대의 콘크리트 구조물도 100년 이상 구조적 건전성을 유지하고 있는 경우가 많아 장기간 격리성능 확보가 요구되는 처분시설의 인공방벽 재료로 적합하다. 그러나 콘크리트 구조물은 설계 및 시공품질 그리고 노출환경에 따라 구조물 내구성능에 많은 편차가 발생할 수 있으며 콘크리트의 다양한 화학적 열화특성 때문에 내구 성능의 정량적 평가에 어려움이 있다. 따라서 처분구조물의 설계는 콘크리트의 열화특성에 대한 충분한 이해를 필요로 하며, 처분구조물의 장기 성능확보가 가능하도록 설계 및 시공공법 선정에 있어서 각종 열화에 대한 대책을 수립하여야 한다.

처분구조물은 일반구조물에 비하여 장기 성능이 확보되어야 하므로 처분구조물은 고도의 내구성이 확보되도록 설계되어야 한다. 그러나 처분 구조물 설계를 위한 기존의 설계기준 및 표준이 충분하지 않으며, 선진 해외국가들은 각 국가의 여건에 따라 각종 연구 및 기술개발 결과에 근거하여 처분시설을 건설하였다. 따라서 본 고에서는 콘크리트의 재료특성 및 열화특성과 각종 열화에 대한 평가 결과를 검토하여 우리나라 처분환경에 적합하고 내구성을 고도로 향상시킬 수 있는 콘크리트 처분구조물의 설계방안을 제시하고자 한다.

## 2. 콘크리트 구조물의 각종 열화 특성

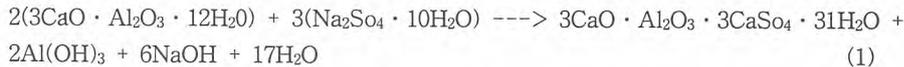
콘크리트의 열화에 영향을 주는 요인은 수없이 많다. 콘크리트 열화에 영향이 있는 화학성분으로는 황산염, 아황산 수소염, 탄산염, 시안화물, 중크롬산염, 플루오르화물, 육각인산염, 질산염, 염화물 이온, 나트륨 인산염, 포타슘 인산염, 나트륨 과붕산염, 티오 황산염, 붕사 등이 있다. 식물성 및 동물성 기름도 콘크리트의 열화에 영향이 있다. 이러한 유해한 화학물질들은 콘크리트에 균열을 일으키고 철근을 부식시킬 수 있으며, 콘크리트의 투수계수를 증가시켜 지하수 침투량을 증가시키게 된다. 또한 동결-융해의 반복적 작용에 의한 물리적 열화도 발생할 수 있다.

이러한 콘크리트의 열화요인 중 콘크리트 처분구조물 설계에 반드시 고려되어야 할 대표적인 열화원인은 황산염의 침투, 염화물의 침투, 칼슘 수산화물의 침출, 알카리-골재반응, 그리고 콘크리트의 반복적인 동결-융해가 있다.

## 2.1 황산염 침투에 의한 콘크리트 구조물의 열화

콘크리트가 황산칼륨, 황산나트륨 및 황산마그네슘이 있는 수분과 접촉하여 반복적인 건조과정을 겪으면서 콘크리트 내에 축적된 황산염은 시멘트의 수화에 의해 발생한 수산화칼슘과 반응하여 팽창하므로 콘크리트에 균열을 발생시킨다.

황산염에 의한 시멘트의 대표적 화학반응은 식 (1)에 나타난 바와 같이 시멘트의 C<sub>3</sub>A와 반응으로 인하여 팽창성 물질(3CaO · Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> · 3CaSO<sub>4</sub> · 31H<sub>2</sub>O)이 생성되며, 이로 인하여 콘크리트에 균열이 발생하게 된다.



열화평가 모델로 시멘트의 C<sub>3</sub>A 함량과 황산염의 농도를 고려하는 Atkinson의 경험적 평가 모델이 있다. 경험적 평가 모델을 활용하여 황산염 농도 및 시멘트의 C<sub>3</sub>A 함량에 따른 콘크리트의 열화를 평가한 결과는 그림 1과 같다. 그림 1은 C<sub>3</sub>A 함량이 5%인 시멘트가 사용된 콘크리트가 황산염 농도가 40 ppm인 환경에 300년간 노출될 경우 콘크리트 표면에서 약 3cm 정도 깊이까지 열화가 발생함을 보여주고 있다.

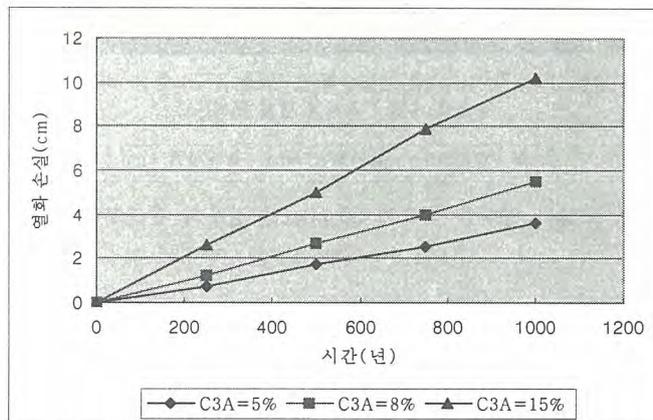


그림 1. 경험모델에 따른 황산염 환경(40 ppm)에서의 황산염 침투에 의한 열화

## 2.2 철근부식

콘크리트 내에 매입된 철의 부식은 본질적으로 전기화학적 반응에 근거한다. 콘크리트 내부에 매입된 철의 부식과정은 양극과 음극, 전기 전도체(철근), 수용성 전해질 형성 등에 있어 축전지의 반응과 유사하다. 식 (2), (3), (4)는 철근의 화학반응에 의한 부식과정으로서 물과 산소가 필수적인 매개체임을 보여주고 있다. 그러나 물과 산소만 있는 경우에는 반응속도가 매우 느려서 일반적인 환경조건에서 양호한 품질의 콘크리트 내의 철근 부식은 매우 서서히 진행된다. 염화물은 철근부식을 가속화할 수 있는데, 이것은 염화물이 철근의 산화피막을 파괴하고 콘크리트의 전기저항을 낮추어 부식전류를 증가시키기 때문이다.



철근 부식의 시작 시점을 평가하기 위하여 물-시멘트비, 염화물 이온 농도, 그리고 철근에 대한 콘크리트 덮개두께를 고려한 Strateful과 Clear의 경험적 부식평가 모델이 있다. 그림 2는 경험적 부식평가 모델에 따라 토양 수분에 있는 염화물 농도에 따른 철근부식시기 평가 사례를 보여주고 있으며, 물-시멘트 비가 0.4 이하이며 덮개가 3 in 이상인 경우 250년이 경과된 시점에서 부식이 시작됨을 보여주고 있다.

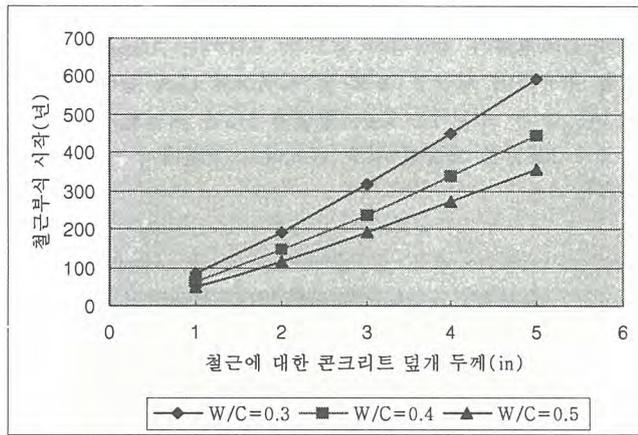


그림 2. 토양의 염화물 농도가 50 ppm인 경우의 철근부식 시점

### 2.3 알카리-골재 반응

알카리-골재 반응은 특정한 규산질 골재 또는 백운암 계열의 석회암 골재와 시멘트 중의 알카리 성분이 접촉할 경우 주로 발생한다. 알카리-골재반응의 일반적인 메커니즘은 다음과 같다. 수산화물 및 결정화된 용해물질에 의하여 규산 네트워크의 규산-산소 결합이 분리된다. 여기에서 규산의 비결정화는 공극 용해수의 pH와 관계가 있으며, pH 12.5에서 칼슘수산화물의 포화 용해수에서 작은 양의 실리카 비결정화가 발생하며, pH 13이상에서는 수천배로 증가되어 발생한다. 이어서 수화성 알카리 규산 젤이 형성되며, 이 젤은 물을 흡수하여 팽창하게 된다. 이 팽창은 골재 강체를 더욱 파괴하여 수산화물 이온이 골재 내부로 더욱 깊게 침입하도록 한다. 반응이 진행됨에 따라 콜로이드성 물질이 형성되고 물의 흡수량이 증가한다. 만약 팽창성 물질이 충분하게 발생하게 되면 콘크리트에 내부압력이 형성되고 콘크리트에 균열이 발생하게 된다. 균열의 발생량은 물의 흡수량에 의하여 결정된다. 알카리-골재 반응은 콘크리트 재료 선정과정에서 반응성 골재가 사용되지 않도록 하고 시멘트의 알카리 성분을 제한하여 제어될 수 있다.

### 2.4 동결-융해에 의한 열화

경화된 콘크리트의 공극 내에 있는 물이 동결되면 내부에 팽창압이 발생하며 콘크리트의 인장강도를 초과하게 되면 균열이 발생하게 된다. 물이 얼음으로 변하면 약 9%의 부피팽창이 발생하여

내부 수리압력이 발생한다. 이러한 팽창으로 인하여 동결 발생지점에서 잉여수는 인접한 공극으로 이동하게 되며, 이 때 수리압력은 동결지점에서 물의 이동이 제한될 때 발생하게 된다. 만약 공극이 동결지점 가까이 있지 않고, 잉여수를 수용할 수 없다면 수리압력은 경화된 콘크리트의 인장강도를 초과하게 된다. 이러한 가설은 발달된 압력의 크기가 동결율, 포화도, 시멘트의 투수도, 그리고 동결지점에서 가장 가까운 공기로 채워져 있는 공극과의 거리에 의하여 좌우됨을 나타낸다.

동결-융해에 의한 열화는 흙에서의 프로스트 히브(Frost-heave) 현상과 같이 삼투압 발생이론으로 설명될 수 있다. 모세 공극에 형성된 얼음 결정체는 얼음과 물간의 자유에너지의 차이로 인하여 젤 공극으로부터 얼지 않은 물이 유인되어 얼음 결정이 성장한다. 얼음 결정은 자유에너지가 같아질 때까지 성장하게 되며, 삼투압이 충분하게 발생할 경우 경화된 콘크리트에 균열을 발생시키게 된다.

동결-융해에 의한 콘크리트의 열화는 공기 연행량, 물-시멘트 비, 그리고 동결-융해 반복 횟수를 고려하여 동탄성계수의 부분적 감소량을 산정하여 평가할 수 있다. 그림 3은 Shuman의 경험적 열화 평가모델에 따른 동결-융해 반복회수에 의한 년도별 열화 깊이를 평가한 사례를 보여주고 있으며, 물-시멘트 비가 커질수록 동결-융해 열화가 급격히 진행됨을 보여주고 있다. 또한 그림 3은 동결-융해 반복횟수가 증가될 경우 열화 깊이가 크게 증가하여 구조물 건전성에 큰 영향이 있음을 보여주고 있다.

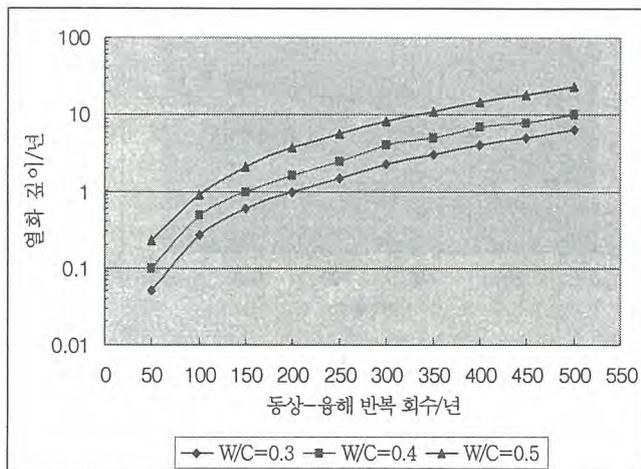


그림 3. 공기 함유량이 7%인 경우 동결-융해 열화 손실

### 2.5 침출에 의한 열화

물에 의한 침출은 물이 콘크리트에 침투하여 수화된 시멘트 내부의 수용성 물질을 용해하여 지하수계로 이동시키는 것이다. 일정한 온도를 가정할 때 용해의 정도는 물의 화학적 특성, 경화된 시멘트의 용해 가능 성분, 그리고 지하수의 유동성에 의하여 좌우된다. 만약 물의 저수량이 작고 정체되어 있다면 용해된 물질의 농도가 콘크리트와 평형상태를 이루어 용해과정이 제한된다. 그러나 만약 지하수가 유동하는 경우에는 용해 평형은 발생하지 않으며 침출이 지속적으로 발생하게 된다.

식 (5)는 중탄산염이 칼슘수산화물과 반응하여 칼슘 탄산염을 발생시켜 침출되는 과정이며, 식 (6)은 식 (5)에서 발생한 탄산염이 없는 물이 다시 칼슘 수산화물과 반응하여 중탄산염을 생성되는 과정이다. 이러한 반복적인 과정으로 인하여 중탄산염 이온은 칼슘 규산염 수산화물의 칼슘과 반응하게 된다. 물에 이산화탄소가 20 ppm 이상으로 용해되어 있으면 수화된 시멘트가 열화될 수 있다.



순환수(Vadose) 지역에 위치한 처분고의 칼슘 수산화물의 침출을 평가하기 위하여 콘크리트 내부에서 확산에 의한 이동모델에 따른 Atkinson의 수축 코어 평가모델(Shrinking Core Model)이 있다. 그림 3은 수축 코어 평가모델에 따라 지하수의 칼슘 농도에 따른 콘크리트의 침출에 의한 열화 깊이 평가결과를 보여주고 있다. 평가에 적용된 콘크리트의 물-시멘트 비는 0.5이며, 콘크리트가  $\text{Ca}^{2+}$ 의 농도는 0.02 mol/cc, 콘크리트 공극수의  $\text{Ca}^{2+}$  농도는  $2.7\text{E}-6$  mol/cc이다. 침출 현상이 가장 빠른 경우는 지하수의 칼슘 농도가 낮은 곳이며, 폐기물 처분 예상지역에서 침출에 의한 콘크리트 열화에 수천년이 소요됨을 보여주어 처분구조물 설계에 큰 영향이 없음을 보여주고 있다.

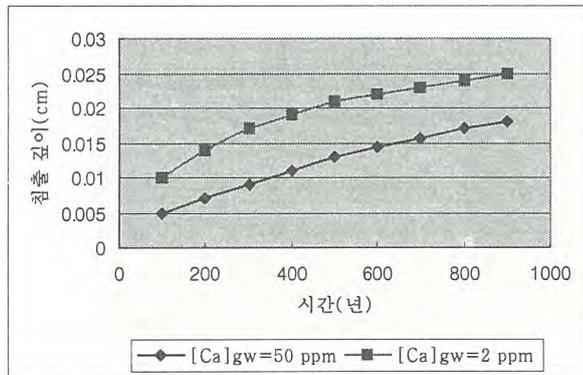


그림 4. 콘크리트 칼슘 수산화물의 침출

### 3. 콘크리트 처분구조물 장기 내구성 확보 방안 검토

콘크리트의 열화특성에 대한 기술검토는 콘크리트 처분구조물의 내구성을 확보하기 위한 방안으로 콘크리트 열화 요인을 최소화할 수 있는 양호한 처분부지 조성, 투수성이 낮고 화학적으로 안정적인 콘크리트 재료의 선정, 그리고 적절한 구조설계가 필요함을 보여주고 있다.

본 문에서는 콘크리트의 열화특성, 처분구조물 내구성에 대한 평가결과, 그리고 내구성능 입증에 있어 불확실성 등을 고려하여 장기간 폐기물 격리가 가능한 콘크리트 처분구조물의 설계방안을 검토하였다. 또한 폐기물 처분구조물의 장기적인 내구성을 입증하기 위한 방법을 검토하였다.

#### 3.1 처분구조물 부지 조성 방안

황산염, 염화물 침투 등에 의한 화학적 열화과정과 동결-융해에 의한 물리적 열화과정은 일반적인

로 콘크리트가 물과 접촉하여야 발생한다. 그리고 열화의 진행속도는 황산염 또는 염화물과 같은 내구성에 유해한 화학성분의 농도가 높을 경우 빠르게 진행된다. 따라서 콘크리트 처분구조물의 열화 속도를 늦추기 위해서는 우선적으로 열화의 촉진 요인인 콘크리트와 물과의 접촉을 최소화하여야 하며, 화학적 반응을 일으키는 황산염, 염화물 등 유해한 화학물질이 콘크리트와 접촉하지 않도록 하여야 한다. 또한 우리나라의 경우 사계절이 뚜렷하여 콘크리트의 동결-융해에 의한 열화 개연성이 높으므로 동절기에 처분구조물의 동결-융해 반복횟수가 최소화되도록 하여야 한다. 처분구조물의 장기내구성 확보를 위한 적절한 처분부지 조성 방안은 아래와 같다.

처분구조물 부지로는 황산염 농도 및 염화물 농도가 낮은 지역이 처분고 장기 내구성 확보에 유리한다. 일반적으로 해안에 인접한 지역은 해수의 영향에 따라 황산염과 염화물 농도가 높으므로 처분고 위치 선정시 가능하면 내륙쪽에 배치하여 해수의 영향을 최소화하여야 한다. 황산염과 염화물의 농도가 높을 경우에는 처분고 기초 하부의 지반과 구조물의 배면 지반을 세척한 모래나 쇄석으로 치환하거나 성토작업을 하여 양호한 조건으로 개선하여야 한다.

처분고가 지하수면 하부에 위치할 경우 지하수압이 작용하고, 미세 균열을 통하여 물의 침투가 쉽게 발생할 수 있다. 따라서 처분고는 지하수 상부에 위치하여 지하수와 직접 접촉하지 않도록 하여야 한다. 또한 지하수위의 변동 가능성과 모세관 현상에 의한 지하수와 구조물의 접촉가능성을 고려하여 처분고 기초하부가 지하수위 상부에 위치하도록 하는 것이 바람직하다. 그리고 강우에 의하여 처분고 상부로 물이 침투할 가능성을 차단하기 위하여 토사 덮개에 불투수층(점토 또는 벤토나이트 층)을 설치하여 유입되는 물의 흐름을 차단하고 우회 배수되도록 하여야 한다. 구조물 기초 하부에는 배수층을 두어 강우 침투수가 신속히 배수되도록 하여야 한다. 덮개를 시공하여 처분고를 폐쇄한 후에도 일부 강수가 덮개의 불투수층을 통과하여 콘크리트 구조물과 접촉할 수 있으므로, 처분고 측벽 뒷채움재는 자유배수 재료로 시공되어야 한다. 처분고가 불포화대에 위치하여도 습윤상태인 주변의 토사에 의하여 물과 유해한 화학성분이 침투할 수 있다. 콘크리트 표면에 부착되는 방수막과 도막재료는 물과 화학물질이 콘크리트와 직접 접촉하는 것을 원천적으로 장기 간 차단하도록 설계 및 시공되어야 한다.

우리나라의 경우 사계절이 뚜렷하므로 처분시설 운영 중 처분구조물이 직접 외기에 노출될 경우에는 동결-융해가 발생할 수 있다. 처분시설 폐쇄를 위하여 덮개가 건설된 후에는 처분고가 동결심도 이하에 위치하므로 동결-융해 피해가 발생하지 않는다. 따라서 동결-융해에 의한 콘크리트 열화를 방지하기 위하여 운영 중에는 강설의 유입을 차단하고 급격한 기온 강하를 예방할 수 있도록 보호구조물 내부에 처분고가 있도록 하거나, 처분고에 폐기물을 정지한 후 조기에 토사 덮개를 건설하여 처분고가 동결심도 하부에 위치하도록 하여야 한다.

### 3.2 처분구조물 재료의 선정 방안

처분구조물은 폐쇄 후 덮개가 시공된 후에는 지하에 위치하게 된다. 이 경우 가장 위험한 열화과정은 황산염의 침투에 의한 열화로 예상된다. 따라서 시멘트는 내황산염 성능이 좋은 V종 또는 II종 시멘트를 사용하여야 한다. 혼화재료로는 황산염, 철근부식, 탄산화, 알칼리 골재 반응, 그리고 침출에 대한 내구성 확보에 매우 유리한 재료인 포졸란 재료를 사용할 수 있다. 사용 가능한 포졸란 재료는 화학적으로 안정적인 플라이 애쉬, 실리카 등이 있다.

처분시설을 폐쇄한 후 콘크리트 열화는 유해한 물질이 용해되어 있는 지하수가 콘크리트로 침투하여 발생한다. 따라서 물의 침투를 방지하기 위해서는 콘크리트의 투수도 및 확산도가 낮아야 한다. 낮은 물-시멘트 비는 투수성 및 확산성을 낮추고 콘크리트의 강도를 증가시킨다. 낮은 투수성

을 확보하기 위해서는 콘크리트의 물-시멘트비가 0.4 이하이어야 하며, 감수제 및 고유동화제를 사용하여 낮은 물-시멘트 비에서도 워커빌리티에 문제가 없도록 하여야 한다.

콘크리트는 인장강도가 작으므로 온도구배 및 수축이 발생할 경우 콘크리트 표면의 미세균열을 완전하게 제거하기 어렵다. 균열이 발생하면 콘크리트의 투수계수가 2-3배 증가한다. 따라서 지하에 위치하는 처분구조물은 물의 침투를 방지할 수 있는 방수막이나 도막에 의하여 보호되어야 한다. 방수막 및 도막은 유해한 화학물질이 콘크리트 내부로 침입하는 것을 매우 효과적으로 방지할 수 있다. 방수재료로 고대시대부터 오랫동안 사용되어 내구성이 입증된 아스팔트의 사용이 바람직하다. 그러나 아스팔트는 산에 취약하므로 숯크리트나 벽돌로 아스팔트 외부표면에 열화 방호층을 설치하는 것이 바람직하다.

### 3.3 구조물 설계 방안

폐기물 처분 구조물은 최소 300년 이상 폐기물 오염물질 누출을 방지할 수 있는 격리 성능이 요구되므로 최대 60-100년 정도인 설계수명을 목표로 하여 규정된 일반적 설계기준은 처분구조물 설계에 충분하지 못하다. 따라서 본 문에서는 일반적인 설계기준에 추가하여 구조물의 장기적 오염물질 격리 성능을 최대화하기 위한 구조물 설계 고려사항을 아래와 같이 검토하였다.

장기간 사용되는 처분구조물에는 불가피하게 각종 열화가 발생하게 된다. 따라서 처분구조물 설계는 열화에 의한 유효단면의 감소를 고려하여 충분한 설계안전율을 확보하여야 한다. 철근을 보호하는 콘크리트 덮개두께는 3 in 이상으로 하여 산소, 수분, 염화물 및 기타 유해한 물질의 콘크리트 내부로 침입을 방지하여야 한다. 철근 부식을 방지하기 위한 추가적인 방안으로 에폭시 코팅된 철근을 사용할 수 있다.

처분시설의 장기적 성능확보를 위해서는 다중방벽 설계개념의 적용이 필요하다. 다중 방벽은 콘크리트나 레진으로 고화된 폐기물, 내부가 그라우팅 되는 MDU(Modular Disposal Unit), 자유배수 덧채움재, 처분구조물, 아스팔트 방수막, 숯크리트나 벽돌로 보호된 방수막 또는 도막, 물의 침입을 방지하는 저투수성 토사 덮개로 구성할 수 있다. 여기서 저투수 덮개는 외부 강수의 처분고 침투를 직접 차단하며, 방수막 및 도막은 폐쇄 후 주변 흙 또는 유해한 물질이 용해되어 있을 수 있는 수분의 콘크리트 표면과 직접적인 접촉을 차단한다. 저투수성으로 설계되는 콘크리트 처분고는 물의 처분고 내부 침투를 제어하며 외부 침입자에 대한 방벽 기능을 한다. 처분고 내부 자유배수 채움재는 처분고 내부에 물이 유입될 경우 정체되지 않고 외부로 신속히 배수되도록 하여 물이 폐기물과 접촉하는 것을 방지한다. MDU는 처분시설의 추가적인 방벽기능을 하는 시설로서 물과 외부의 유해한 화학물질과 직접 접촉할 가능성이 작기 때문에 장기간 동안 구조물의 건전성 유지가 가능하다. 이러한 다중 방벽은 물과 유해한 화학물질의 침투속도를 매우 낮게 하여 장기적인 처분시설 성능유지가 가능하도록 하며, 만약 일부 처분시설이 손상되거나 열화되어도 여전히 폐기물의 오염물질이 외부로 누출되는 것을 방지할 수 있다.

### 3.4 처분구조물의 내구성능 입증 방안

설계수명이 300년 이상으로 예상되는 폐기물 처분구조물의 목표 설계수명을 입증하여야 할 필요가 있다. 처분구조물의 내구성능을 입증하기 위한 대표적 방안으로 건설재료에 대한 속성열화시험, 콘크리트 구조물의 열화 메커니즘에 기초한 수치해석, 그리고 처분시설 운영 및 제도적 관리기간 동안 축적된 각종 열화도 조사 결과에 기초하여 평가하는 방안이 있다.

속성열화시험은 시간에 따른 유해물질의 농축을 평가하기 위한 시험이므로 콘크리트 침투율 산정을 위한 자료인 확산과 투수성 변화와 관련한 자료수집에 초점을 두어야 한다. 속성실험은 화학물질 수용액의 침투율을 가속화하기 위해서 온도를 높이고, 사용상태의 농도보다 열악한 조건을 위하여 더욱 높은 농도까지 단계별 유해 화학물질을 적용하며, 수용액에 압력을 가하여 수압이 작용되도록 한다. 또한 건습이 반복되도록 하는 방안이 있다. 처분구조물의 장기 설계수명에 비하여 매우 단기간에 수행되는 속성열화시험의 결과에 기초한 처분구조물의 사용수명 평가는 신뢰성 확보에 문제가 있을 수 있다. 이것은 속성열화시험 결과의 외삽(Extrapolation)에 의한 사용수명 예측이 시험기간과 사용수명기간의 비율이 1:10 이내에서 평가(예를 들어 5년간의 속성열화시험에 의한 50년간의 설계수명 예측)될 경우 신뢰도가 높지만, 외삽에 적용된 기간 비율이 지나치게 클 경우 불확실성이 크게 증가하여 신뢰도 확보가 어렵기 때문이다. 또한 속성열화시험에서는 개별적 열화인자에 대하여 시험이 이루어지며, 복합적 열화작용을 모사하는데 제한적이다.

열화 메커니즘에 따른 수치 해석은 이온에 대한 단일 이동공식(Single Transport Equation)을 적용하여 다중열화 시스템(Multifactorial degradation mechanism)을 평가, 즉 여러 종류의 열화현상 동시 발생에 의한 시너지효과를 고려하여 각종 열화과정의 상호작용을 고려할 수 있다. 또한 휨 균열과 건조수축 균열의 간격 및 깊이, 균열폭을 해석하여 콘크리트 투수계수 및 확산계수의 변화를 평가할 수 있다. 열화과정의 불확실성을 반영하기 위하여 Monte-Carlo 계산에 의하여 사용수명 동안 각종 변수의 불확실성을 고려하며, 콘크리트 구조물 성능에 대한 확률론적 평가의 수행이 가능하다.

속성열화시험 및 수치해석은 콘크리트 구조물의 열화에 대한 유용한 정보를 제공하여 처분구조물의 설계수명 평가에 유용하게 활용될 수 있다. 그리고 처분시설 폐쇄 후 최소 30년 이상 처분구조물의 노출환경 및 열화의 변화에 대한 감시 및 조사를 계속하여 처분구조물 내구성능 평가를 하여 처분구조물의 내구성을 실증할 필요성이 있다. 시간적, 공간적 감시 및 조사 계획은 속성열화시험 및 수치해석 결과를 참조하여 수립될 수 있다. 이러한 사용 중인 처분구조물의 조사 및 평가 결과에 기초하여 속성열화시험과 수치해석을 보완한다면 처분구조물 격리 성능의 신뢰도 확보에 어려움이 없을 것이다.

#### 4. 결론

콘크리트의 열화특성 및 각종 내구성 평가 사례 등을 검토한 결과 방사성폐기물을 환경으로부터 장기간 격리할 수 있는 내구성이 확보된 콘크리트 처분구조물의 건설이 충분히 가능함을 알 수 있었다. 그러나 콘크리트 구조물은 노출 환경 및 콘크리트 구조물의 품질에 따라 내구성능에 많은 편차가 발생할 수 있으므로 설계 및 건설과정에서 고도의 품질확보가 요망된다.

처분구조물의 장기 내구성능 확보를 위해서는 우선 구조물에 유해한 요소를 최소화할 수 있는 부지를 선정하여야 한다. 부지조건이 비교적 열악한 경우에는 지반을 개량하여 열화 요인을 최소화하여야 한다. 그리고 각종 열화의 기본적 매개체인 물과 접촉을 최소화할 수 있도록 처분구조물을 배치하여야 한다. 이것은 구조물 내구성 확보 뿐만 아니라 폐기물 오염물질 격리에 있어서도 필수적인 요소이다.

또한 처분구조물 재료선정 및 설계에 있어서도 부지의 화학적 특성 등 각종 열화 요인을 조사하여 노출환경에 적합한 재료를 선정하여야 한다. 구조물 설계에는 처분구조물에 부분적인 열화가 발생하여도 오염물질 격리성능 유지가 가능하도록 충분한 설계여유도를 확보하여야 한다. 또한 다중방벽 구조물 설계개념의 채택은 구조물의 열화 진행을 극도로 낮출 수 있으며, 처분 구조물에

서 일부 손상이 발생하여도 여전히 오염물질 격리성능을 유지할 수 있다.

처분구조물의 설계수명은 콘크리트 사용에 대한 역사적 경험, 각종 속성열화시험, 그리고 열화 메커니즘에 기초한 수치해석을 통하여 평가가 가능하다. 수명평가에 있어 기술적 어려움은 열화 시나리오의 구축 및 각종 열화과정 간의 상호작용 등에 대한 지속적인 연구 및 처분시설 실증실험을 통한 충분한 열화 데이터 구축을 통하여 보완되어야 한다. 처분구조물의 열화에 대한 지속적인 연구와 함께 처분구조물 운영 및 폐쇄 후 제도적 관리기간 동안 최소 30년 이상 처분장 환경 및 처분구조물의 열화과정에 대한 체계적 조사 및 평가가 보완된다면 300년 이상의 처분구조물 설계수명 확보에 어려움이 없을 것이다.

구조물 설계수명이 50-100년인 경우에는 문제가 되지 않지만 설계수명이 수백년인 경우에 문제가 될 수 있는 대표적 열화 과정으로 미생물에 의한 공격, 염분 결정화, 그리고 방사성폐기물에 의한 공격 등이 있다. 그러나 이러한 열화에 대하여는 기존의 연구 실적이 충분하지 못하며, 향후 지속적으로 관심을 가지고 체계적인 연구가 필요한 것으로 판단된다.

#### 참조문서

1. American Concrete Institute, "Guide to Durable Concrete", ACI 201.2R-77, 1977.
2. American Concrete Institute, "Code Requirement for Nuclear Safety Related Concrete Structures", ACI 349-97, 1997.
3. U.S. Nuclear Regulatory Commission, NUREG 1199, "Standard Format and Content of a License Application for a Low-Level Radioactive Waste Disposal Facility Rev. 2, January 1991.
4. U.S. Nuclear Regulatory Commission, NUREG 1200, "Standard Review Plan for the Review of a License Application for a Low-Level Radioactive Waste Disposal Facility" Rev. 3, April 1994.

삼국시대고분의 봉분특징과천층처분시설처분덮개에 활용:  
고분의 발굴문헌을 중심으로

Characteristics of the Ancient Tombs and  
Application to Cover Design of a Near-surface Disposal Facility: Literature  
Survey

Jin-Beak Park, Ji-Hoon Lee, Joo-Wan Park, Chang-Lak Kim, Si-Eun Yang\*, and Sun-Bok Lee\*

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

\*Seoul National University, 56-1 Shilim-dong, Kwanak-gu, Seoul

[jbpark@khnp.co.kr](mailto:jbpark@khnp.co.kr)

박진백, 이지훈, 박주완, 김창락, 양시은\*, 이선복\*

한국수력원자력(주) 원자력환경기술원, 대전광역시 유성우체국 사서함 149호

\*서울대학교, 서울시 관악구 신림9동 산 56-1번지

Abstract

To support the design concept and performance evaluation of the cover system for low- and intermediate-level radioactive waste (LILW) disposal facility, the pioneering study is conducted with the tomb of historical age. Research status of the art are followed and the characteristics of tomb cover are summarized based on the preservation of historical remains. Visiting the excavation site of historical tomb and communication with Korean archeological society is required for the further understanding and for the extension of radioactive waste disposal research.

**Key Words** : near-surface disposal facility, tomb, unsaturated soil

요약

중저준위 방사성폐기물 천층처분시설의 처분덮개설계 및 성능분석을 위해 국내 역사시대 고분을 이용한 국내 최초의 연구를 수행하였다. 처분덮개 성능과 관련된 국내의 연구현황을 조사하고 삼국시대 고분을 중심으로 고분의 봉분이 존재하며 유물이 발견된 고분과 봉분이 존재하지 않지만 유물의 보존이 양호한 고분으로 구분하고 봉분의 층상특성을 분석하여 정리하였다. 고분에 대한 자연유사 연구에서 발굴문헌 상에 제시된 봉토의 유사판측기법의 적용, 모세관 방벽현상과 배수로를 이용한 봉분 내 습도조절 여부를 천층처분 시설설계에 활용할 수 있을 것으로 판단된다. 향후 국내 고분발굴현장이 있을 때 현장을 방문하여 필요한 자료수집과 더불어 원자력분야의 관심사와 필요사항에 대하여 국내 고고학계와의 정보교환이 이루어져야 할 것으로 판단된다.

**중심단어** : 천층처분시설, 고분, 불포화 토양

## 1. 서론

### 가. 개요

우리나라에서는 2005년 5월 현재 총 20기의 원자로가 가동되고 있으며, 전력수요의 증가와 함께 안정적인 전력공급원으로서 그 이용이 지속적으로 증가하고 있고, 향후에도 원자력 의존도는 계속 증가할 것으로 예상된다.

우리나라를 비롯한 국외 원자력발전소 운영국가들은 중저준위 방사성폐기물을 지중에 처분하고 있거나 고려하고 있으며, 지중 처분방식으로 천층처분과 동굴처분방식을 각각의 여건을 고려하여 적용하고 있다. 현재 국내에서는 중저준위 방사성폐기물 처분시설의 부지확보를 위한 다각적인 노력이 추진 중에 있으며 2008년 처분시설의 건설 및 운영을 계획하고 있다.

천층처분방식은 지하수위 상부에 위치한 불포화 매질 내에 콘크리트 구조물을 설치하고 중저준위 방사성폐기물을 콘크리트 처분고에 적치 후 시멘트로 채우는 방식으로 건설된다. 처분시설의 폐쇄단계에서는 강우침투 및 동식물침입을 방지하기 위해 다중 층상구조의 처분덮개를 설치하고 시설 내 집수 및 배수 관리를 폐쇄 후 제도적 관리기간 동안 실시하게 된다.

지중에 처분되는 중저준위 방사성폐기물은 철제처럼 고경화되며 다층의 공학적 인공방벽을 설치하여 지표수 및 지하수의 침투 및 핵종 누출을 방지하도록 구성된다. 이러한 천층처분 시설에서 지표수 및 지하수의 침투와 핵종누출의 지연을 위한 연구들[1-9]이 원자력환경기술원을 중심으로 진행되어 왔으나, 수 백년 이상의 장기간 동안의 처분덮개 성능실증은 공학적인 방법으로 해결이 불가능한 현실이다.

그러나, 역사시대 고분과 천층처분시설은 방사성폐기물과 유골 및 유품의 장기간 저장과 저장위치의 표시 그리고 궁극적으로 방사성폐기물의 방사성붕괴를 통한 핵종의 감쇄와 유골과 유골에 대한 침투식을 통해 두 시설 모두 시간이 지남에 따라 자연상태로 돌아가도록 설치된 시설이라는 공통점을 가지고 있다고 하겠다. 따라서, 본 논문에서는 자연유사 기법의 일환으로 역사시대 고분을 이용하여 봉분의 층상구조에 대한 연구현황 분석을 통하여 방사성폐기물 천층처분시설의 인공방벽 처분덮개 설계 개선방안을 모색해 보고자 한다.

### 나. 고분을 이용한 국내의 연구현황

역사시대 고분과 관련된 국내외 고고학적 연구들은 고분의 층상제질에 대한 관심보다는 고분 내의 출토 유물 연구나 고분의 구조에 대부분 집중되어 있다. 따라서, 천층처분 인공방벽의 처분덮개 설계나 처분관점에서 참고할 수 있는 국내 고분의 층상구조 분석연구는 전무하며 고분의 발굴조사 보고서에서도 고분의 층상구조와 관련된 자료를 획득하기란 쉽지 않다.

고분의 발굴조사는 봉분에 트렌치를 설치하여 봉분이 어떻게 축조되었는지를 층위라는 개념을 이용하여 살펴보며, 각 층에 대한 기본지질 특성을 기록하지만 이들 층위들은 고분의 축조 단위별로 구분 짓게 되기 때문에 흔히 생각하는 고분의 층상구조와는 다르다. 또한, 삼국시대의 봉분과 같이 그 규모가 상당히 클 경우 봉분을 축조하는 과정이 복잡한 양상을 보이기 때문에 발굴조사 보고서의 검토결과 고분의 축조방식과 층상구조에 대한 상관관계는 나타나지 않았다.

일반적인 고고학적인 접근방법과는 달리 처분관점에서 수행된 와타나베의 연구[10]가 있다. 와타나베[10]는 1,500~1,300년 전 일본에서 축조된 고분내부에 유물들이 남아 있는 것에 착안하여 천층처분 시설과 관련된 자연유사 연구를 실시하였다. 고분들의 토양 구조와 고분 출토유물의 보존 상태를 통계학적인 기법을 사용하여 크게 7분류 (빠, 머리카락과 치아, 작은 금속기, 큰 금속기, 청동, 목기, 직물)로 나누어 그 보존 정도를 5단계로 수치화시켜서 분석하였다. 분석결과에서 토양 구조에 의해 제어되는 고분 내의 지하수의 흐름이 유물 보존에 중요한 요인임을 주장하였고, 특히 고분 내부의 건조한 상태가 유물의 보존 상태에 보다 좋은 영향을 끼치는 것으로 결론지으면서 천층처분 덮개시설을 위한 층상구조를 제시하였다. (See Fig. 1)

그러나 와타나베[10]의 연구를 국내 상황과 직접적으로 연결시키기는 어렵다. 먼저 고분의 내

부를 건조한 상태로 유지하는 것이 유물의 보존에 좋은 영향을 미친다는 주장은 경상남도 창원에서 확인된 철기시대의 분묘유적인 다호리 유적[11-13]과 광주광역시 광산구에서 확인된 철기시대 초기에 해당하는 신창동 유적[14-19] 등의 예를 볼 때 일반화시키기는 쉽지 않아 보인다.

이들 유적들에서는 목기, 철기, 토기 등 다양한 유물들이 매우 양호한 상태로 출토되었으며, 특히 붓이나 칠기류 그리고 나무로 된 악기류, 빗자루나 빗과 같은 생활도구류 뿐만 아니라 여러 곡물들이 출토되었는데, 이들 유기물질들은 보통 우리나라와 같은 산성토양에서는 쉽게 발견되지 않는 것들이어서 주목을 받았다. 이들 유적들은 저습지와 같은 매우 습한 보존 환경을 가지고 있어서, 와타나베[10]가 주장한 것처럼 건조한 상태가 유물의 보존에 좋은 영향을 미치는 것과는 상반된 결과를 보여주고 있다. 물론, 모든 저습지 유적에서 유물의 보존 상태가 매우 좋다는 것은 아니며 건조한 상태의 유적에서도 유물의 보존 상태가 양호한 것들도 많이 확인되고 있는 것은 사실이다. 다만 유물의 보존 상태에 대한 일반화는 현재까지는 무리가 따른다는 것이다. 오히려 일정한 습도를 유지하는 것이 유물의 보존 상태를 결정짓는 중요한 요인일 수도 있는 것이다.

와타나베[10]의 연구 결과를 우리나라에 직접적으로 적용시키기 어려운 또 하나의 이유로는 국내 고분과 일본 고분의 상황이 많이 다르다는 점을 들 수 있다. 국내의 경우 산성토양으로 고분 내의 유기물질들이 쉽게 없어지거나 또는 대형 고분의 경우 대부분이 도굴을 당해 실제 유물의 보존 상태를 확인할 수 있는 것들이 많지 않기 때문에 와타나베[10]가 수행한 유사한 연구를 진행하기에는 어려움이 많다. 이 밖에도 와타나베[10]가 제시한 층상구조 모형 자체도 하나의 가설일 뿐이고, 실제 검증되지 않았다는 점도 고려해야만 할 것이다.

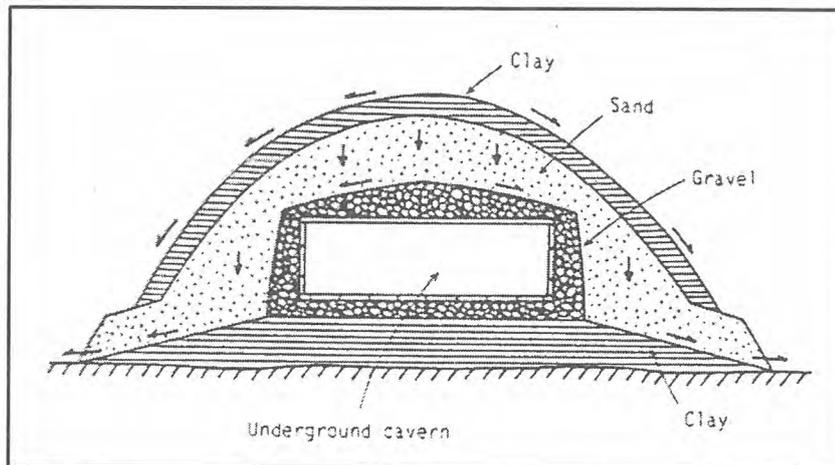


Figure 1. Conceptual diagram suggested by Watanabe's natural analog study [10]

천층처분 덮개의 성능과 관련지을 수 있는 국내 연구로 공주 송산리 고분에 대한 인공함양시험[20]을 참고할 수 있다. 이 연구는 여름철 집중 강우 시에 종종 발생하는 고분군 누수 원인분석을 위해 인공함양시험을 실시하였으며, 함양시험을 모사하는 2차원 불포화 지하수 유동 모델의 개발과 시험 중 측정된 관측정 수위 및 함양량의 변화를 이용하여 모델변수의 보정을 실시하고 보정된 모델변수로 함양시험 모사를 실시하였다. 함양시험 및 수분이동 모사결과 고분군 누수 현상의 주된 원인은 고분군 상부의 석회층으로 설치된 누수방지층에 발생한 균열을 통한 지하수의 직접유입으로 밝혀졌다. 그리고, 장기간 강우가 지속될 경우 고분군 북측의 원지반으로부터 불포화대를 통한 지하수의 유입가능성이 존재하나 고분군 북측 벽체에 10%내외의 유효포화도 증가만을 일으킬 것으로 정류상태 모사를 통해 분석되었다. 이 연구에서는 빗물이 고분의 봉토를 통해 석실 내부로 침투되지 않는 구조를 갖추고 있음을 단편적으로나마 제시해주고 있으며 이러한 봉토의 층상 구조에 대한 직접적인 연구가 이루어져야 보다 확실한 증거를 제시할 수 있겠다.

## 2. 고분의 구조 및 축조방식

### 가. 고분의 구조 [21]

역사시대 고분의 구조는 크게 매장시설(埋葬施設), 봉분(封墳), 묘역시설(墓域施設)로 나눌 수 있다. 선사시대부터 석관(石棺)이나 목관(木棺)만이 사용되어 왔으며, 이후 사회분화가 심화되면서 관(棺)에서 곽(槨)으로의 변화가 생겨나고, 이처럼 규모가 큰 목곽(木槨)이나 석곽(石槨) 내에 다시 관(棺)을 안치하는 구조가 등장하게 된다. 이후 삼국시대가 되면 지역에 따라 다르긴 하지만 대체로 4~5세기가 되면 중국식 묘제의 영향으로 석실(石室)이 등장하게 된다. 석실은 기본적으로 추가장(追加葬)을 전제로 한 매장시설이기 때문에 기존에 땅을 파서(土壙) 관이나 곽을 설치하던 수혈식(竪穴式)이 아니라, 고분 내의 석실로 드나들도록 방의 한쪽 벽을 헐 수 있도록 하고 통로를 낸 횡구식(橫口式)이거나 통로를 복도처럼 축조한 횡혈식(橫穴式)이다.

한편, 석실의 축조재료에 따라 깎돌(割石)이나 다듬은 돌(切石)을 쌓아 만든 석실분(石室墳)이 대부분이나, 무녕왕릉의 경우처럼 벽돌로 쌓은 전축분(塼築墳)도 있다. 고분의 석실은 천층처분시설의 처분고와 같이 시설의 구조적 안전과 수분침투를 방지하는 역할을 한다.

매장시설에서 봉분의 역할은 매장시설을 밀봉함과 동시에 그 위치와 외관을 표시하는 기능을 가진다. 삼국시대에는 당시 지배자의 권력을 과시하듯이 거대한 규모로 축조된 봉분이 나타나게 되는데, 이 시기의 고분을 고塚(高塚)이라 한다. 선사시대의 석관묘나 목관묘의 경우에도 봉분은 원래 존재하였을 것이지만, 시간이 지남에 따라 유실되거나 다져져서 남아 있는 것은 거의 없다. 보통은 토광 단벽의 토층도를 보고 봉분의 존재를 추측할 수 있을 뿐이다. 이들 봉분은 흙으로 쌓는 것이 보통이고, 돌을 이용한 것(積石塚)도 있다. 특히 봉분을 높게 축조하고 자연 유실을 방지하기 위해서는 판축(板築)이라는 흙쌓기 방법을 이용하기도 하고, 계단식으로 돌을 쌓아 올리기도 한다. 국내 고분에서 봉분의 형태는 타원형이나 원형을 일반적인 편이고, 낙랑이나 고구려지역에서는 방대형이나 계단식 방대형의 외형을 가진 것들도 있다. 추가장을 할 수 없는 지하식 매장시설을 가진 경우에 부부합장을 하려면 먼저 축조된 봉분에 또 하나의 봉분을 맞대어 쌍둥이무덤(瓢形墳)을 만든다. 이러한 표주박모양의 봉분은 신라 경주를 중심으로 낙동강 동쪽 영역에서 자주 볼 수 있다. 이 밖에도 특이한 봉분의 형태로서 장고모양(前方後圓墳)이 있는데 주로 전남지방에 분포한다.

한편, 묘역시설이란 것은 하나의 매장시설이나 서로 관련된 둘 이상의 매장시설이 점유한 영역을 표시해 주는 시설로서 봉분 가장자리에 호석(護石)을 둘러거나 주구(周溝)를 파서 묘역을 표시하기도 한다. 또한 도랑 안팎에서 제사를 지낸 유구가 발견되기도 하는데, 이러한 외곽시설물을 통틀어 묘역시설로 볼 수 있다.

### 나. 삼국시대 석실분의 축조방식 [22]

삼국시대 석실분의 축조 방식은 석실벽체의 축조, 천장 축조 그리고 봉토 마무리 등 세 단계로 나눌 수 있다. 첫 단계는 바닥을 정지한 다음 석실 벽체를 만들면서 그 뒷부분을 봉토로 다지는 과정이다. 여기에서는 두 공정으로 나누어 볼 수 있을 것인데, 먼저 석실 벽체를 만들 때 벽석 뿌리나 벽체의 너비를 맞추기 위해 바깥쪽에 잇대어 놓은 벽석 사이를 흙이나 점토로 메움질하면서 그 뒷부분을 우선적으로 다진다. 그 결과 이 부위의 각 층은 다른 부위에 비해 얇고 단단해지게 된다. 토층이 벽체의 뒷부분에서는 외향경사를 이루면서 낮아지다가 봉토의 가장자리에서 다시 높아지게 된다. 이처럼 봉토의 가장자리에서 관련 토층이 다시 높아지는 것은 석실 벽체의 뒷부분을 다지기 위해 가운데 부위에 있는 흙을 사용하였거나 유실이 심한 봉토의 가장자리를 튼튼하게 만드는 효과도 고려한 것으로 추정된다. 석실 벽체가 완성되면 벽체 뒷부분과 봉토 가장자리 사이의 낮은 공간을 바깥쪽으로 약간 경사지게 쌓게 된다. 이러한 봉토 축조방식은 석실 벽체를 먼저 축조하려는 의도가 내포된 것으로, 석실 벽체와 봉토를 수평으로 축조하는 것에 비해 벽체의 축조와

수정이 용이하다는 장점이 있다.

두 번째 단계로는 천장을 만드는 과정이다. 첫 단계에서 상단 벽석 높이와 주변 토층의 높이가 비슷하게 되면 천장을 만든다. 천장의 경우 삼국 고분의 형태가 다르기 때문에 그 축조 방식도 각기 다르다. 신라나 가야 고분의 경우 벽체가 완성이 되면 그 위에 뚜껑돌 즉 개석을 덮고 점토 등으로 밀폐를 하는 과정을 거친다.

세 번째 단계로는, 천장의 개석 위를 덮고 봉토를 마무리하는 단계이다. 봉분이 대형인 경우는 한 번에 봉분을 만들기란 불가능하기 때문에 분할 축조하는 경우가 많으며, 구간별로 점토와 일반 사질토를 이용하여 교대로 다지는 유사판축을 하며 보통 입구 부분에 유사판축의 흔적이 많이 나타난다. 입구가 아닌 뒷부분에 사용되는 흙은 고분 주위에 있는 사질토를 사용하는 경우가 대부분이다. 일부 고분에는 점토나 사질토의 구별이 없이 일반 사질토로 전체 봉분을 조성하는 경우도 있다. 대략적인 석실분의 축조 방식은 위에 언급한 것과 같지만, 전체 석실의 구조 및 축조 방식이 일반화되어 있는 것은 아니다. 고분이 축조되는 지형 및 지질별로 다르고 세부적으로 축조하는 사람에 따라 매우 다양한 양상을 나타내고 있음을 인식해야 한다.

### 3. 고분 발굴문헌의 사례분석

국내에서 수행된 삼국시대 고분들의 발굴문헌을 조사하였다. 발굴문헌의 내용을 천층처분의 처분덮개와 봉분의 상관관계 그리고 고분의 구조와 유물의 존재여부의 관점에서 구분하였다. 발굴결과 목기, 철기 및 인골들의 보존이 양호한 고분 중에서 고분의 봉분이 존재하는 고분과 봉분이 존재하지 않는 고분으로 분류하여 그 특징들을 정리하였으며 요약된 내용을 Table 1에 제시하였다.

#### 가. 봉분이 존재하며 유물이 발견된 고분

고분의 봉분이 존재하며 유물의 보존상황이 양호한 고분은 1992년 발굴조사가 이루어진 창녕 교동 고분군[23]과 1994년~1995년에 걸쳐 발굴된 고령 지산동 30호분[24]이 대표적이었다.

창녕 교동 고분군[23]은 5세기대의 것으로 추정되며 도굴의 흔적이 발견되어 유물의 보존 상태와 봉분의 층상구조를 직접적으로 관련 연결시킬 수는 없지만, 다량의 토기류와 도검, 철모, 철촉, 단갑, 철제관모들과 다수의 철제 마구류 및 농기구류를 포함한 철기류 그리고 인골편이 확인되었다. 창녕 교동 고분군 1호분의 경우 봉토의 평면 지름은 대략 22.5m의 원형으로, 서쪽의 가장 낮은 곳에는 9~10단 가량, 나머지는 4~5단의 호석을 둘러쌓아 봉분이 밀려나가는 것을 방지하였고, 호석과 접한 기둥구멍들이 전면에 배치하고 있다.

석실 주변은 점토로 밀폐하여 빗물이나 다른 흙들이 석실내부로 밀려들어오는 것을 방지하였고, 묘실 입구부에는 점토(흑갈색점토)와 일반 사질토(주변의 산 흙)를 교대로 다진 유사판축기법이 확인되었지만, 입구의 반대쪽 뒷부분은 깨진 돌(할석)과 일반 사질토를 섞어 조잡하게 축조하였다. 봉토 내 수직 점토층의 존재는 봉분을 분할 조성했음을 보여준다. (Fig. 2) 하지만, 이러한 유사판축의 흔적은 봉토 정상부까지는 확인되지 않았으며 다만 서로 다른 점질의 흙으로 블록을 이루면서 쌓았던 것으로 추정된다. (Fig. 3)

고령 지산동 30호분[24]은 1994년~1995년에 걸쳐 발굴된 삼국시대의 고총고분으로 능선 정상부와 경사가 심한 자연지형을 이용하여 축조한 고분이다. 발굴조사 전 상당부분이 훼손된 상태였고, 호석 및 토층 상에서 확인된 봉토의 지름은 약 동서 18m, 남북 15m 가량으로, 타원형의 평면 형태를 보여주고 있었으며, 석실부 개석 상면에서부터 잔존하는 봉토의 높이는 약 1.5m 였다.

지산동 30호분[24]에는 순장곽(30-2호)이 확인되었는데, 다른 석곽들이 대부분 훼손된 반면에 30-2호에서는 3~11세 사이의 소아의 두개골 일부와 함께 금동관이 확인되었다. 그러나 주 석실은 도굴로 인해 조사 전 이미 상당부분 훼손되었지만, 석실 내부에서는 각종 토기류와 등자, 철정 등과 같은 철기류들과 금동제품류가 확인되었다.

고분은 능선 정상부를 묘역으로 만들기 위해 정지작업 후 풍화암반층을 굴착하여 묘광을 파고

암반층을 바닥면으로 하여 석실을 축조하였다. 특이한 점은 석실 내 하부 석곽을 별도로 설치하였다는 점이다. 석실 및 부곽의 개석 설치 후에 그 상단에 양질의 점성이 강한 회흑색 점토를 덮어 밀폐시켰다. 이후 상층에는 명황색 마사토와 명황색 점토층을 교대로 다져 봉분을 쌓았는데, 약 50~70cm 가량의 높이까지 확인되었다. 또한 토층상에서 확인된 봉토의 평면상에서 구획별로 흙의 차이를 보여주고 있고, 단면상에서도 지그재그 토층이 확인되는 것으로 보아 구분축조방식에 의한 봉분의 성토가 이루어졌음을 알 수 있다. 한편 호석으로 봉토의 주위를 둘러 봉분이 무너지는 것을 방지하였고, 이후 봉토의 마무리는 황갈색, 회갈색, 회흑색의 점토를 10cm 두께로 번갈아가며 판축상으로 다져 봉토를 견고히 하였다. (See Fig. 4)

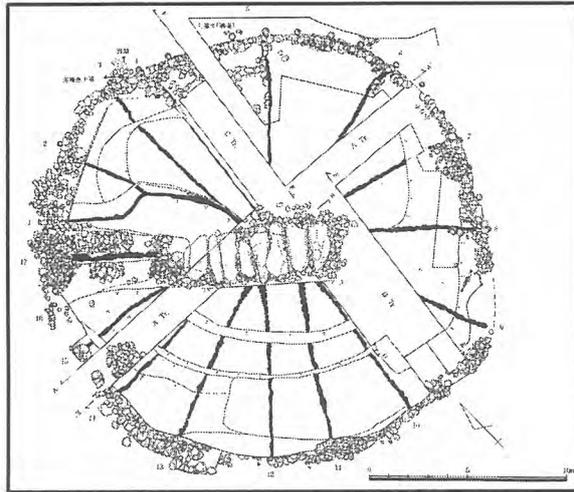


Figure 2 The plane view of ancient tomb [Chang-nyung Kyo-dong #1] [23]

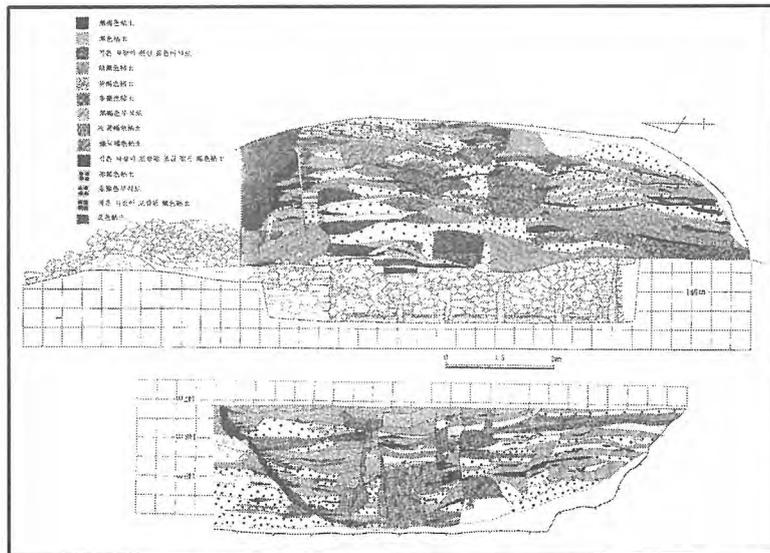


Figure 3 The soil layers of ancient tomb [Chang-nyung Kyo-dong #3] [23]

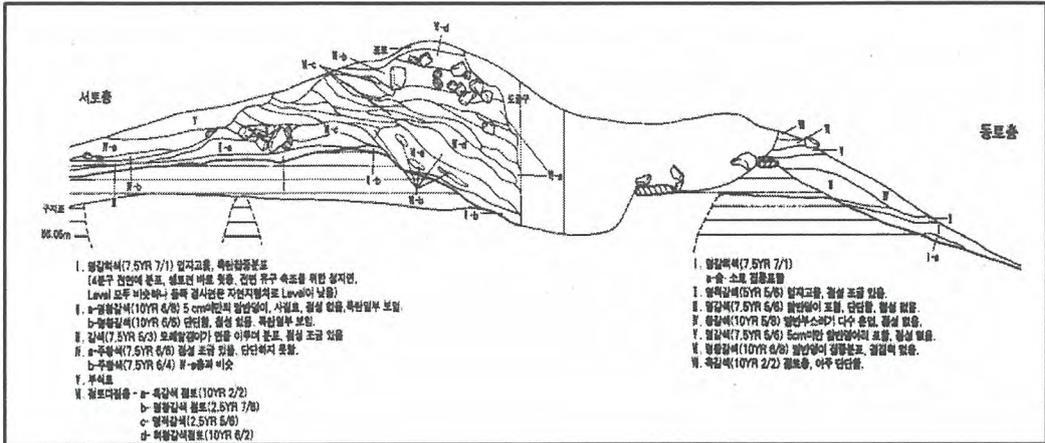


Figure 4 The soil layers of ancient tomb [Koryung Jisan-dong #30] [24]

나. 붕분이 없으며 유물이 발견된 고분

창녕 교동 고분군이나 고령 지산동 30호분의 경우에는 모두 봉토가 존재하는 것들이었지만, 봉토가 존재하지는 않음에도 불구하고 인골을 포함한 유물이 잘 남아있는 고분에는 김해예안리 고분[25-26]과 김해 대성동 고분군[27-29]이 대표적이다.

경남 김해의 예안리 고분군[25-26]은 4~7C에 해당되는 가야 고분군으로 목곽묘, 석곽묘, 석실묘, 옹관묘 등 다양한 묘제가 확인되었다. 이들 고분들은 붕분이 없이 지표 바로 아래에서 고분의 매장주체부 시설들이 확인되었고 앞서 살펴본 가야 시기의 대형고분들과는 달리 그 규모도 작다. 하지만, 토기류 뿐만 아니라, 다양한 철기류와 금제, 금동제, 은제, 동제 등의 각종 장신구류들이 출토되었으며, 각 유구마다 예외 없이 인골이 남아 있었다. (See Fig. 5)



Figure 5 The excavated view of ancient tomb [Kim-Hae Yean-ri] [25-26]

김해 대성동 고분군[27-29]은 목관묘, 목곽묘, 수혈식석실묘 등으로 이루어진 가야시대의 고분군이다. 김해 예안리 고분[25-26]과 마찬가지로 붕분은 남아있지 않지만, 각종 금속기류를 포함한 많은 유기물질들이 잘 보존된 채 출토되었다. 김해 예안리[25-26]의 경우 폐각들이 주변에 널려 있어서 폐각층의 석회질 성분 등으로 인해 인골들과 각종 유물들이 잘 남아있었을 가능성도 있지만, 김해 대성동 고분[27-29]은 구릉에 존재하는 유적으로 주변에 폐각의 흔적 등은 없었다. 그렇지만

일부 고분에서는 목관의 흔적이나 뼈 그리고 각종 금속기들이 매우 양호한 상태로 남아있는 경우도 있어, 역시 봉분의 존재와 상관없이 유물들의 보존 상태가 양호한 경우의 대표적인 사례이다.

김해 예안리와 대성동 고분의 경우를 볼 때 봉분을 이용하여 지표수의 침투를 방어하는 것이 유물과 유골을 장기간 보존할 수 있는 유일한 방법은 아니며, 봉분의 구조와는 별개로 고분의 지형 및 지질적 위치와 고분 내부의 배수시설 등도 함께 고려해야 할 것이다.

Table 1. Characteristics of the ancient tomb

고분의 명칭	고분/봉토의 특징	기타
창녕 교동 고분군	- 고분의 분할조성에 따른 수직점토층 - 묘실입구의 유산관측 - 석실의 점토밀폐 - 봉분유지를 위한 호석이 존재	- 도굴 - 토기, 철기 및 인골확인 - 지름 22.5m의 원형고분
고령 지산동 고분	- 개석상단에 점성이 강한 점토 밀폐 - 봉분상층에 마사토와 점토를 이용한 유사관측(50~70cm) - 고분의 구분축조 - 봉분유지를 위한 호석이 존재	- 지름 15-18m의 타원형고분 - 순장곽과 인골 및 금동확인
김해 예안리 고분	- 봉분없음 - 묘실내 패각층의 석회질 성분	- 가야시대 4~7C 소형 고분 - 봉분이 없이 지표아래 고분매장 주체부 발굴 - 토기, 패각, 철기 및 인골 확인
김해 대성동 고분군	- 봉분없음 - 구릉에 위치	- 가야시대 고분군 - 목관, 금속기 및 인골 양호

#### 4. 결론 및 제언

천층처분 시설에 대한 지표수 침투와 핵종누출 지연을 위한 국내의 연구가 진행되어 왔으나 장기간 수분침투 및 핵종저지능에 대한 문제는 공학적인 방법으로 해결하지 못하고 있다. 따라서 자연유사 기법의 일환으로 역사시대 고분을 이용한 봉분의 층상구조의 성능분석 연구를 국내 최초로 실시하였다.

국내 최초로 실시된 본 연구에는 연구진행에 있어 많은 어려움이 있었다. 첫째 고분발굴문헌이 존재하지 않거나 있더라도 고고학 관점에서 수행된 문헌들로 고분의 봉토와 층상구조에 대한 서술이 없는 것이 대부분이었다. 둘째로 고분에 대한 현장시료채취는 고분의 발굴시점에 맞추어 이루어져야 했으며 고분을 훼손하지 않는 범위에서 시료채취가 허용되었고 발굴기관의 협조를 얻는 데도 어려움이 있었다.

중저준위 방사성폐기물의 처분과 관련된 국내의 연구로서 와타나베의 연구[10]는 국내 고분의 경우와는 달라 적용하기 어려우며, 국내의 인공함양시험[20]에서는 고분의 봉토가 석실내부로 빗물이 침투되지 않도록 효과적인 구조를 갖추고 있다는 단편적인 근거를 제시하고 있다.

국내에서 발간된 삼국시대 고분의 발굴문헌 중에서 고분이 지표수의 침투를 방지하여 유물의 보존이 양호한 고분에 대하여 검토한 결과 봉분의 존재여부에 따라 봉분이 존재하고 유물이 발견된 고분과 봉분이 존재하지 않지만 유물의 보존이 양호한 고분으로 구분 할 수 있었다. 봉분이 유물보존에 기여한 특징으로는 고분의 분할조성에 따른 수직점토층의 존재와 봉분의 유사관측 그리고 점토를 이용한 석실의 밀폐흔적이 발견되었다.

봉분이 존재하지 않은 고분은 고분의 위치가 구릉지에 위치하거나 석회질 성분의 흔적이 발견되었으며, 봉분을 이용하여 지표수의 침투를 방어하는 것이 유물과 유골을 장기간 보존할 수 있는 유일한 방법은 아니며, 봉분의 구조와는 별개로 고분의 지형 및 지질적 위치와 고분 내부의 배수 시설 등도 함께 고려해야 할 것으로 판단된다.

또한, 봉분은 거의 남아 있지 않지만 일부 횡형식 석실구조의 고분에서 점토밀폐 및 밀봉이 이루어졌지만 인골이나 유기물이 남아있지 않은 경우가 있으며, 인골이 간혹 남아 있는 경우도 있는데 상태가 양호하지 못한 경우도 있으므로 추가적인 발굴문헌조사가 필요할 것으로 생각된다. 또한, 고분의 발굴문헌을 통하여 조사된 고분 축조방식은 국내 천층처분시설의 처분덮개 폐쇄기술에도 인용할 수 있겠다.

역사시대 고분을 통하여 발굴문헌상에 제시된 고분의 축조방식, 다중점토 또는 점토와 사질토를 이용한 유사판축기법의 적용, 자갈 등을 이용한 모세관 방벽현상과 고분 내 배수로 설치를 통한 습도조절 여부 등을 천층처분 덮개의 설계에 활용할 수 있을 것으로 판단된다.

향후 고분을 이용한 연구를 위해서는 유적 공개회의 등의 고분의 발굴현장이 있을 때 수시로 방문하여 필요한 시료 및 자료를 수집하는 것이 좋겠으며, 원자력분야의 관심사와 필요사항에 대하여 고고학계와의 정보교환이 이루어져야 할 것으로 판단된다.

#### 감사의 글

본 논문은 과학기술부 2005년도 원자력중장기 연구개발계획사업의 일환으로 수행되었으며 이에 감사의 뜻을 전합니다. 경상남도 생초고분에 대한 시료채취에 협조하여 주신 경상대학교 박물관 여러분께 감사의 뜻을 전합니다.

#### 참고문헌

- [1] Jin Beak Park, Joo Wan Park, Chang Lak Kim, Daisuke Kawasaki and Joonhong Ahn, "Safety Assessment Codes for the Near-Surface Disposal of Low and Intermediate-Level Radioactive Waste with the Compartment Model: SAGE and VR-KHNP," Waste Management '05, Feb. 27-Mar. 3, Tucson, Arizona(2005)
- [2] Jin Beak Park, Se Moon Park and Chang Lak Kim, "Construction and Operational Experiences of Engineered Barrier Test Facility for Near Surface Disposal of LILW," , *J. of Korean Radioactive Waste Society*, 2(1), pp.23-35(2004)
- [3] J. W. Park, C. L. Kim, E. Y. Lee, Y. M. Lee, C. H. Kang, W. Zhou, M. W. Kozak, "Development of a Computer Code for Low-and Intermediate-Level Radioactive Waste Disposal Safety Assessment," *J. of Korean Association of Radiation Protection*, 29(1), pp. 41-48(2004)
- [4] J. W. Park, C. L. Kim, J. B. Park et. al. "Development of a Quality Assurance Safety Assessment Database for Near Surface Radioactive Waste Disposal," *Journal of the Korean Nuclear Society*, 35(6), pp.567-576(2003)
- [5] J. W. Park, K. Chang, and C. L. Kim, "A Case Study on the Safety Assessment for Groundwater pathway in a Near-Surface Radioactive Waste Disposal Facility," *Journal of the Korean Nuclear Society*, 33(1), pp. 62-72(2002)
- [6] 이찬구, 이은용, 박세문, 김창락, 염유선, "중저준위 방사성폐기물 천층처분을 위한 처분덮개의 성능실증 시험시설 개념설계," *대한지질공학회지*, 11(3), pp. 245-254(2001)
- [7] D. W. Lee, C. L. Kim, and J. W. Park, "Development of Reference Scenarios Based on FEPs and Interaction Matrix for the Near-Surface LILW Repository," *Journal of the*

- Korean Nuclear Society*, 33(5), pp. 539-546(2001)
- [8] J. W. Park, K. Chang, and C. L. Kim, "Important Radionuclides and Their Sensitivity for Groundwater Pathway of a Hypothetical Near-Surface Disposal Facility," *Journal of the Korean Nuclear Society*, 33(2), pp. 156-165(2001)
- [9] K. Chang, J. W. Park, J. H. Yoon, H. J. Choi, and C. L. Kim, "Water Balance Evaluation of Final Closure Cover for Near-Surface Radioactive Waste Disposal Facility," *Journal of the Korean Nuclear Society*, 32(3), pp. 274-282(2000)
- [10] K. Watanabe, "Archaeological Evidence Supports A Preferred Soil Cap For LLRW Disposal," Proc. of the 1989 Joint international waste management conference, Vol. 1, pp. 567-571, Oct. 22-29, Kyoto(1984)
- [11] 李健茂 外, 義昌 茶戶里遺蹟 發掘進展報告 I, 考古學誌 第1輯, 韓國考古美術研究所(1989)
- [12] 李健茂 外, 義昌 茶戶里遺蹟 發掘進展報告 II, 考古學誌 第3輯, 韓國考古美術研究所(1991)
- [13] 李健茂 外, 義昌 茶戶里遺蹟 發掘進展報告 III, 考古學誌 第5輯, 韓國考古美術研究所(1993)
- [14] 조현중 外, 光州 新昌洞遺蹟-第1次調査概報, 考古學誌 4, 韓國考古美術研究所(1993)
- [15] 國立光州博物館, 光州 新昌洞 低濕地 遺蹟 I (1997)
- [16] 國立光州博物館, 光州 新昌洞 低濕地 遺蹟 II (2001)
- [17] 國立光州博物館, 光州 新昌洞 低濕地 遺蹟 III(2001)
- [18] 國立光州博物館, 光州 新昌洞 低濕地 遺蹟 IV(2002)
- [19] 國立光州博物館, 光州 新昌洞 低濕地 遺蹟 V(2003)
- [20] 구민호, 서만철, "공주 송산리 고분군 누수현상 원인분석을 위한 인공함양시험 및 수치 모델링", *The Journal of Engineering Geology*, 9(1), pp. 1-15(1999)
- [21] 國立文化財研究所, 韓國考古學事典, pp. 63-65(2001)
- [22] 한국토지공사 토지박물관, 연천신답리고분 발굴조사보고서, 토지박물관 학술 조사총서, 제16집(2003)
- [23] 東亞大學校 博物館, 昌寧校洞古墳群(1992)
- [24] 嶺南埋藏文化財研究院, 高靈池山洞30號墳, 嶺南埋藏文化財研究院, 學術調查報告 第13冊(1998)
- [25] 釜山大學校博物館, 金海禮安里古墳群 I, 釜山大學校博物館遺蹟調查報告 第8輯(1985)
- [26] 釜山大學校博物館, 金海禮安里古墳群 II, 釜山大學校博物館遺蹟調查報告 第15輯(1993)
- [27] 慶星大學校博物館, 金海大成洞古墳群 I, 慶星大學校博物館 研究叢書 第4輯(2000)
- [28] 慶星大學校博物館, 金海大成洞古墳群 II, 慶星大學校博物館 研究叢書 第7輯(2000)
- [29] 慶星大學校博物館, 金海大成洞古墳群 III, 慶星大學校博物館 研究叢書 第10輯(2003)

## A Study on the Groundwater Flow in Fractured-Porous Media by Flow Resistance Theory

단열-다공암반에서 유동저항 이론을 이용한 지하수 유동 평가에 관한 연구

Ji-Woong Han, Yong-Soo Hwang, and Chul-Hyung Kang

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

한지웅, 황용수, 강철형

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

### Abstract

On the basis of flow resistance theory the conceptual model and related mathematical descriptions is proposed for resistance modeling of groundwater flow in CPM(continuum porous medium), DFN(discrete fracture network) and fractured-porous medium. The proposed model is developed on the basis of finite volume method assuming steady-state, constant density groundwater flow. The basic approach of the method is to evaluate inter-block flow resistance values for a staggered grid arrangement, i.e. fluxes are stored at cell walls and scalars at cell centers. The balance of forces, i.e. the Darcy law, is utilized for each control volume centered around the point where the velocity component is stored. The transmissivity (or permeability) at the interface is assumed to be the harmonic average of neighboring blocks. Flow resistance theory was utilized to relate the fluxes between the grid blocks with residual pressures. The flow within porous medium is described by three dimensional equations and that within an individual fracture is described by a two dimensional equivalent of the flow equations for a porous medium. Newly proposed models would contribute to develop flow simulation techniques with various matrix characteristics.

**Key word** : Continuum Porous Medium, Discrete Fracture Network, Combined CPM and DFN Matrix, Flow Resistance, Finite Volume Method

### 요 약

본 연구에서는 유동저항이론을 기초로 하여 연속다공체, 분리단열망 및 연속다공체-분리단열망 공존암반과 같은 3가지 암반을 대상으로 암반 특성에 따른 지하수 유동저항 개념 모델링 및 관계식을 제안하였다. 정상상태조건에서 밀도변동은 고려하지 않았으며 유한 체적법을 이용하였다. 각종 물성치는 블록 중심에서 정의되고, flux는 블록면에서 정의되는 staggered 격자 체계하에서 모든 블록에 대해 Darcy 법칙이 적용되었다. 접촉면에서의 투수계수는 인접면 중심에서 정의된 물성치의 조화평균값을 사용하였다. 유동저항개념을 이용하여 인접한 블록간의 상대압력차와 flux의 관계를 표현하였다. 개개의 단열에서의 유동은 다공암반에서 이용된 방정식과 동일한 형태의 2차원 방정식으로 묘사되었다. 본 논문에서 제안된 모델은 추후 다양한 암반 특성별 유동 묘사 기법을 개발하는데 많은 기여를 할 것으로 기대된다.

**중심단어** : 연속다공체, 분리단열망, 연속다공체-분리단열망 공존암반, 유한체적법, 지하수 유동저항

## 1. 서 론

최근 방사성 폐기물 처분 시설에 대한 안전성 평가 필요성의 증대, 지하매립 폐기물로부터의 침출수 유출에 의한 환경 오염 심화, 무분별한 지하수 개발에 따른 지하 공동 현상 등과 관련하여 지하수 흐름의 정확한 예측 및 모델링에 대한 관심이 증대되고 있다. 이러한 지하수 이동기구에 대한 모델링 방법은 크게 연속 다공체(Continuum Porous Medium) 모델 및 분리 단열망(Discrete Fracture Network) 모델의 2가지로 분류된다[1,2]. 연속 다공체 모델은 단열망이 조밀하고 상호간의 연결이 충분히 많은 경우, 혹은 단열망과 다공암반간의 상호작용이 국부 평형을 수용할 수 있을 정도로 충분한 경우에 적용 가능하다. 이러한 연속 다공체 모델들에 대해 과거에는 지하암반의 수력학적 인자에 대해 다양한 물성치를 대표할 수 있는 균일한 값을 이용하였으나, 최근에는 관련 인자들에 대해 확률론적 개념을 도입한 접근방법이 시도되고 있다. 분리 단열 모델은 개개의 단열들의 특성을 명확하게 고려하는 것으로서, 연속체 모델을 사용할 경우 적절히 모사될 수 없는 개개의 단열을 통한 유동 및 물질 전달 현상을 명확하게 고려할 수 있다[2]. 그로 인하여 분리 단열 모델은 광대역의 유동 및 물질 전달을 해석하는 측면에서 전자계산기의 용량 문제, 혹은 정확한 현장 실사 데이터의 취득의 어려움이 있음에도 불구하고 각종 이론 연구 및 실용 적용에 많이 사용되게 되었다[3,4]. 그러나, 아직까지 기존 연구들의 대부분은 지하 암반을 다공체 혹은 단열망으로 구성되어 있다는 가정하에 모델링하고 있으며, 최근에 와서야 단열암반과 다공암반이 공존하는 단열-다공암반의 특성을 보다 정확히 모사하기 위한 다양한 연구가 시도되고 있는 상황이다[5,6]. 본 논문에서는 유동저항 이론[7]을 기존의 연속다공체, 분리단열망에 적용하여 각각에 맞는 개념 모델 및 관계식을 도출하였다. 또한 기존의 유동저항 이론을 단열-다공암반으로 확대 적용하여 단열-다공암반에 대한 개념 모델 및 관계식을 도출하였으며 관련 이론을 상세하였다.

## 2. 본 론

### 2.1 연속다공체

#### 2.1.1 지배방정식

다공체 내에서의 지하수 유동 지배방정식인 Darcy 방정식은 다음과 같다.

$$\mathbf{q} = -\frac{k}{\mu} \cdot (\nabla P - \rho \mathbf{g}) \quad (1)$$

여기서 방정식 (1)의 압력은 식 (2)와 같은 잔류압력으로 나타낼 수 있다.

$$P^R = P + \rho_0 g (z - z_0) \quad (2)$$

여기서  $z_0$ 는 상대높이를 나타낸다. 만일 지하수 밀도가 일정하다는 가정하에( $\rho = \rho_0$ ), (2)를 (1)에 대입하여 정리하면 식 (1)은 다음과 같이 정리된다.

$$\mathbf{q} = -\frac{k}{\mu} \cdot \nabla P^R \quad (3)$$

한편 다공체 내에서 질량보존의 법칙을 적용하면 다음과 같다.

$$\frac{\partial(\phi\rho)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho\mathbf{q}) = 0 \quad (4)$$

따라서 정상상태, 밀도가 일정한 상태에서의 지하수 유동 지배방정식은 다음과 같이 정리된다.

$$\nabla \cdot \left( \rho_0 \frac{\mathbf{k}}{\mu} \cdot \nabla P^R \right) = 0 \quad (5)$$

2.1.2 유동 저항 개념 모델

연속다공체에서는 각 다공체마다 질량 보존의 법칙이 적용되며, 각 블록에서의 유출입량은 항상 보존된다.

$$Q_{x,i+\frac{1}{2}jk} - Q_{x,i-\frac{1}{2}jk} + Q_{y,ij+\frac{1}{2}k} - Q_{y,ij-\frac{1}{2}k} + Q_{z,ijk+\frac{1}{2}} - Q_{z,ijk-\frac{1}{2}} = 0 \quad (6)$$

이때 각 격자면에서의 유출입량은 다음과 같은 압력차 및 “유동저항” 개념으로 표현될 수 있다.

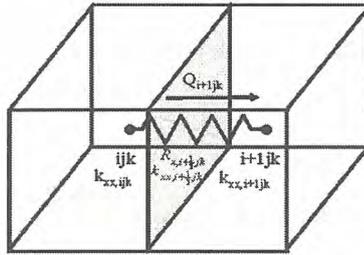


Fig. 1 Flow resistance in CPM

$$Q_{x,i+\frac{1}{2}jk} = - \frac{P_{i+1jk}^R - P_{ijk}^R}{R_{x,i+\frac{1}{2}jk}} \quad (7)$$

다른 수치계산 프로그램과 마찬가지로 본 계산에서도 컴퓨터 메모리 및 계산 시간을 고려하여 투수계수의 주방향은 각각 주축의 방향과 평행하다는 가정하에 투수계수의 주방향 성분만 고려하였다. 이 경우 격자면에서의 투수계수는 각각 격자면에 인접한 두 블록에서의 투수계수의 조화평균으로부터 다음과 같이 계산할 수 있다.

$$k_{xx,i+\frac{1}{2}jk} = \frac{\left( \frac{1}{2} \Delta x_i + \frac{1}{2} \Delta x_{i+1} \right)}{\left( \frac{\frac{1}{2} \Delta x_i}{k_{xx,ijk}} + \frac{\frac{1}{2} \Delta x_{i+1}}{k_{xx,i+1jk}} \right)} \quad (8)$$

이를 이용하여 연속다공체에서의 유동저항을 표현하면 최종적으로 다음과 같다.

$$R_{x,i+\frac{1}{2}jk} = \mu \left( \frac{0.5 \Delta x_i}{k_{xx,ijk} \Delta y_j \Delta z_k} + \frac{0.5 \Delta x_{i+1}}{k_{xx,i+1jk} \Delta y_j \Delta z_k} \right) \quad (9)$$

2.2 분리단열망

2.2.1 지배방정식

단열망 모델에서 개개 단열에서의 유동은 식 (6)과 같이 다공체 내의 유동 지배방정식과 유사한 형태의 2차원 방정식으로 표현될 수 있다.

$$\nabla_2 \cdot \left( \frac{\rho_0 g T}{\mu} \cdot \nabla_2 h \right) = 0 \quad (10)$$

여기서,  $\nabla_2$ 는 단열 좌표계 위에서의 2차원 연산자를 의미하며,  $T$ 는 단열에서의 투수계수를 의미한다. 따라서 단열망에서의 지하수 유동 지배방정식은 다음과 같다.

$$\mathbf{n} \cdot \mathbf{Q} = -\mathbf{n} \cdot \frac{\rho_0 g T}{\mu} \cdot \nabla_2 h \quad (11)$$

$\mathbf{Q}$ 와  $\mathbf{n}$ 은 각각 지하수 유출량과 교차면의 법선을 나타낸다.

### 2.2.2 유동 저항 개념 모델

2차원으로 모사된 단열의 경우 다수개의 직각 격자블록으로 구분되어지며, 일부 격자 블록은 그림

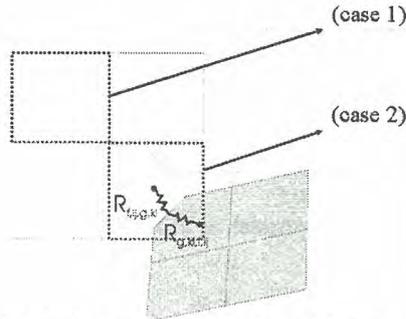


Fig. 2 Non-intersecting block and intersecting block in DFN

과 같이 서로 교차하여 교차선을 포함하기도 한다. 이와 같이 분리 단열망에서는 다른 단열과의 교차 유무에 따라 격자 블록을 두 가지로 구분하여 질량보존법칙을 적용한다.

여기서,  $f, g$ 는 각 단열 이름을 나타내며,  $i, j$ 는 각 격자블록의  $x, y$  색인이다.

#### 2.2.2.1 교차선을 포함하지 않는 격자 블록

교차선이 존재하지 않는 격자 블록에서는 연속 다공체와 마찬가지로 각 격자면을 통한 유출입량의 총합은 보존되며, 격자면을 통과하는 유량에 대해 “유동저항” 개념을 도입하면 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$Q_{x,f,i+\frac{1}{2}j} - Q_{x,f,i-\frac{1}{2}j} + Q_{y,f,ij+\frac{1}{2}} - Q_{y,f,ij-\frac{1}{2}} = 0 \quad (12)$$

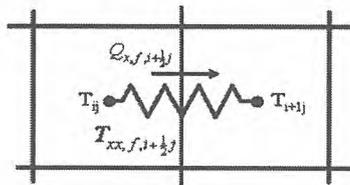


Fig. 3 Flow resistance in non-intersecting block of DFN

$$Q_{x,f,i+\frac{1}{2}j} = -\frac{(P_{f,i+1j}^R - P_{f,ij}^R)}{R_{x,f,i+\frac{1}{2}j}} \quad (13)$$

이때 격자면에서의 투수계수는 각각 격자면에 인접한 두 격자블록의 투수계수들의 조화평균으로부터 계산할 수 있으며, 최종적으로 분리단열망에서 교차선을 포함하지 않는 격자 블록에서의 유동저항은 다음과 같다.

$$T_{xx,f,i+\frac{1}{2}j} = \frac{\left(\frac{1}{2}\Delta x_i + \frac{1}{2}\Delta x_{i+1}\right)}{\left(\frac{\frac{1}{2}\Delta x_i}{T_{xx,f,ij}} + \frac{\frac{1}{2}\Delta x_{i+1}}{T_{xx,f,i+1j}}\right)} \quad (14)$$

$$R_{x,f,i+\frac{1}{2}j} = \mu \left( \frac{0.5\Delta x_i}{T_{xx,f,ij}\Delta y_j} + \frac{0.5\Delta x_{i+1}}{T_{xx,f+1,ij}\Delta y_j} \right) \quad (15)$$

#### 2.2.2.2 교차선을 포함하는 격자 블록

$$Q_{x,f,i+\frac{1}{2}j} - Q_{x,f,i-\frac{1}{2}j} + Q_{y,f,ij+\frac{1}{2}} - Q_{y,f,ij-\frac{1}{2}} + \sum Q_{f,ij,g,kl} = 0 \quad (16)$$

교차선이 존재하는 격자 블록내의 지하수 흐름은 f단열에서 교차선으로 유입되는 동안은 수렴하게 되며, 교차선으로부터 g단열로 유출되는 동안은 발산하게 된다. 만일 교차선의 길이가 격자블록면의 길이에 비해 작은 경우 유동은 교차선 부근에서 방사상의 유동(radial flow)으로 모사될 수 있으며, 동일 위치에서의 압력은 로그형태로 변화한다. 여기서 주목해야 할 사항은 교차선이 격자블록면과 임의각을 이루고 있으며, 이 경우 투수계수는 비등방성이 된다. 따라서 이러한 비등방성 투수계수의 좌표계는 식(1)와 같이 적절한 변환을 통하여 등방성 투수계수를 적용할 수 있는 새로운 좌표계( $x'y'$ )로 변화시켜야 한다.

$$x' = \sqrt{\frac{T'}{T_{xx}}} x, \quad y' = \sqrt{\frac{T'}{T_{yy}}} y, \quad T' = \sqrt{T_{xx}T_{yy}} \quad (17)$$

또한 격자 블록중심으로부터 교차선까지의 거리는 다양하게 분포할 수 있다. 예를 들어 교차선이 격자 블록 중심에 위치하는 경우엔 유동저항은 없을 것이며, 반대로 중심에서 멀리 위치하는 경우엔 유동은 유동저항은 매우 크게 증가할 것이다. 본 계산에서는 이러한 거리에 대해 중심선으로부터 격자 경계에 이르는 거리의 0.5배를 이용하였다.

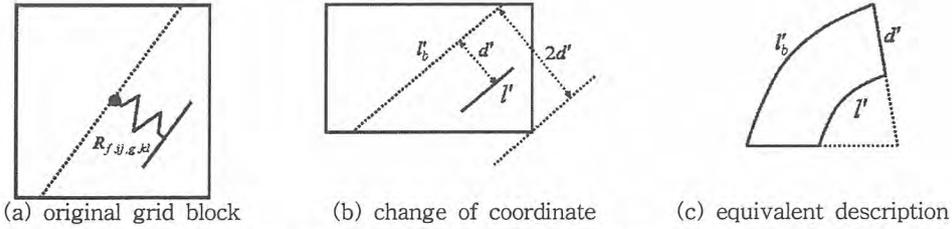


Fig. 4 Steps in the derivation of the flow resistance in non-intersecting block of DFN

전술한 방법으로 g단열에 대해서도 유동저항을 계산할 수 있으며, 교차선에서의 총유동저항은 f단열과 g단열의 유동저항의 합으로 표현되지만, 본 논문에는 지면 관계상 f단면의 유동저항만을 표시하였다.

$$Q_{f,ij,g,kl} = - \frac{(P_{g,ij}^R - P_{f,kl}^R)}{(R_{f,ij,g,kl} + R_{g,kl,f,ij})} \quad (18)$$

$$R_{f,ij,g,kl} = \frac{\mu}{\sqrt{T_{xx,f,ij} T_{yy,f,ij}}} \frac{d'}{(l'_b - l')} \ln \left( \frac{l'_b}{l'} \right) \quad (19)$$

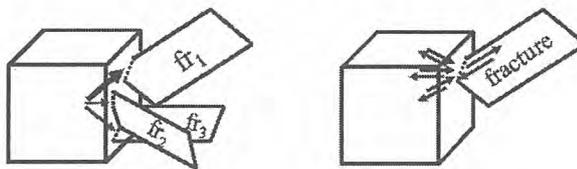
만일 교차선의 길이가 격자블록면의 길이와 거의 대등한 경우는 교차선으로의 유동은 1차원으로 묘사될 수 있으며, 이 경우의 유동저항은 다음과 같이 근사할 수 있다.

$$R_{f,ij,g,kl} = \frac{\mu}{\sqrt{T_{xx,f,ij} T_{yy,f,ij}}} \frac{d'}{l'_b} \quad (20)$$

### 2.3 연속다공체-분리단열망 공존암반

연속다공체와 분리단열망이 연결된 암반에서의 유동저항을 도출하는 방법도 기존의 방법과 크게 다른 점은 없지만, 두 가지 해결되어야 할 문제점이 있다. 우선 복수개의 단열이 하나의 다공체에 연결된 경우 각 단열에 적절하게 유동을 분배하는 방법이 마련되어야 한다. 또한 다공체와 단열 연결부위의 유동 수렴 혹은 발산에 따른 추가적인 “교차면 저항”을 적절히 고려할 수 있는 방법을 고안해야 한다. 이 중 첫 번째 다수개의 단열로 유출되는 유량을 적절하게 분배하기 위해 각 단열로의 유출량에 분율( $f_{f,ij}$ )을 곱해주는 방법을 도입하였다. 이 분율에 균일한 값, 단열의 개수에 반비례한 값, 혹은 투수계수에 비례한 값 등을 대입하여 유출량을 적절히 분배할 수 있다.

$$f_{f,ij} = 1, f_{f,ij} = \frac{1}{N_{frac}}, f_{f,ij} \propto T_{f,ij} \quad (21)$$



(a) effective division of flow (b) incorporation of appropriate resistance

Fig. 5 Potential complications in simulation of combined CPM and DFN

다공체와 단일 연결부위의 교차면 저항을 고려하기 위해서는 우선 교차선을 포함하는 단일망 격자블록에서와 마찬가지로 비등방성 투수계수가 등방성 투수계수로 표현될 수 있도록 좌표변환을 하여야 하며, 이에 관계된 식은 다음과 같다.

$$x' = x \sqrt{\frac{k'}{k_{xx}}}, \quad y' = y \sqrt{\frac{k'}{k_{yy}}}, \quad z' = z \sqrt{\frac{k'}{k_{zz}}} \quad (22)$$

여기서  $k' = \sqrt[3]{k_{xx}k_{yy}k_{zz}}$  이다.

이 경우 변환 전의 좌표축을 기준으로  $l_y$  및  $l_z$  성분을 갖는 교차선은 변화된 좌표계에서 그 길이가 다음과 같이 표현된다.

$$l' = \sqrt{\frac{k'}{k_{yy}}(l_y)^2 + \frac{k'}{k_{zz}}(l_z)^2} \quad (23)$$

초기의 연속다공체-분리단열망 공존블록은 전술한 일련의 좌표변환과정을 통하여 최종적으로 가로, 세로, 높이가 각각  $\frac{1}{2}\Delta x'$ ,  $l'$ ,  $\Delta y^* = \frac{f_{f,ij}\Delta y'\Delta z'}{l'}$  인 블록으로 모사될 수 있다.

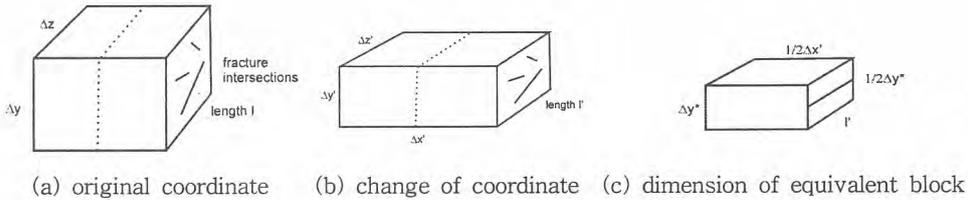


Fig. 6 Steps in the derivation of the interface resistance of combined CPM and DFN

이때 연속다공체-분리단열망 공존블록은  $x'$  방향의 블록크기 및 방사상의 유동 영역간의 상대적인 크기에 따라 Fig. 7과 같은 2가지 유형으로 분류된다. 즉 (a)의 경우 방사상의 유동은  $\frac{1}{2}\xi\Delta y^* \times l' \times \frac{1}{2}\Delta y^*$  영역에서 발생하지만, (b)의 경우엔  $\frac{1}{2}\Delta x' \times l' \times \Delta x'$  영역에 한정되어 발생한다.

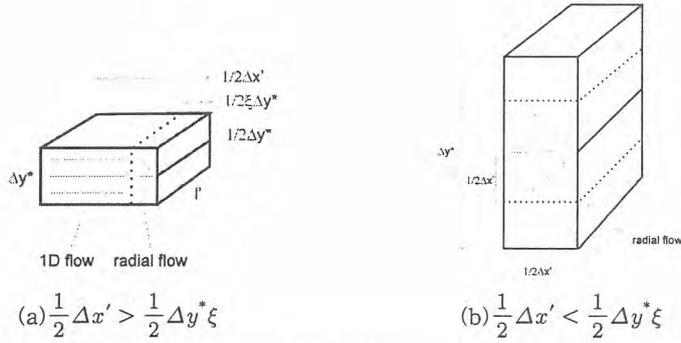


Fig. 7 The geometry of the interface resistance in combined CPM and DFN

따라서 두 경우에 대하여 각각 유동저항을 도출하면 다음과 같다.

$$R = \frac{\mu}{k'} \left\{ \frac{\left( \frac{1}{2} \Delta x - \frac{1}{2} \Delta y^* \right)}{f_{f,ij} \Delta y' \Delta z'} + \frac{1}{\pi l'} \ln \left( \frac{\frac{1}{2} \Delta y^*}{\frac{1}{2} a_{f,ij}} \right) \right\} \quad (24)$$

$$R = \frac{\mu}{k'} \left\{ \frac{2}{\pi l'} \ln \left( \frac{\frac{1}{2} \Delta x'}{a_{f,ij}} \right) - \frac{\frac{1}{2} \Delta x'}{f_{f,ij} \Delta y' \Delta z'} \right\} \quad (25)$$

### 3. 결론

본 논문에서는 연속다공체, 분리단열망 및 연속다공체와 분리단열망이 공존하는 암반을 대상으로 각 암반의 접촉면에서의 지하수 유동 저항을 모사할 수 있는 개념모델을 제안하였다. 또한 각 암반 특성별 유동저항 관계식을 도출하였다. 본 논문에서 제안된 모델은 추후 다양한 암반 특성별 유동 모사 기법을 개발하는데 많은 기여를 할 것으로 기대된다.

### 4. 참고문헌

- (1) Mary P. Anderson and William W. Woessner, Applied groundwater modeling, Simulation of flow and advective transport, Academic Press. Inc., San Diego, p.381,1992.
- (2) Brian Berkowitz, Characterizing flow and transport in fractured geological media : A review, Advances in water resources, Vol. 25, pp.861, 2002.
- (3) Sahimi M., Flow and tranport in porous media and fractured rock ; from classical methods to modern approaches, Weinheim, Germany:VCH, 1995.
- (4) Lee CH and Farmer I, Fluid flow in discontinuous rocks, Chapman & Hall, London, 1993.
- (5) Ji-Woong Han, Yong-Soo Hwang, Chul-Hyung Kang, Algorithm for constructing fracture network using discrete fracture model, Proceedings of Korean Radioactive Waste Society, 2004.
- (6) B. Swift, C. P. Jackson, S. Joyce and D. Holton, The MDPSA Multi-dimensional PSA Code, Serco Report, SA/ENV-0737, 2004.
- (7) Frank P. Incropera and David P. Dewitt, Fundamentals of Heat and Mass Transfer, 5th ed., John Wiley & Sons, New York, 2002.

## An Experimental Study on the Sorption Properties of Uranium(VI) onto Bentonite Colloids

벤토나이트 콜로이드에 대한 우라늄(VI) 수착특성에 대한 실험적 연구

Min-Hoon Baik, Won-Jin Cho and Pil-Soo Hahn

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Deokjin-Dong, Yuseong-Gu, Daejeon 305-353

[mhbaik@kaeri.re.kr](mailto:mhbaik@kaeri.re.kr)

백민훈, 조원진, 한필수

한국원자력연구소, 대전시 유성구 덕진동 150번지

### Abstract

In this study, an experimental study on the sorption properties of uranium(VI) onto bentonite colloids generated from a domestic calcium bentonite (called as Gyeongju bentonite). Gyeongju bentonite has been considered as a potential candidate buffer material in the Korean disposal concept for high-level radioactive wastes. The size and concentration of the bentonite colloids used in the sorption experiment were measured by a filtration method. The result showed that the concentration of the synthesized bentonite colloid suspension was 5100ppm and the size of the most of bentonite colloids(over 98%) was in the range of 200-450nm in diameter. The amount of uranium lost by the sorption onto bottle walls, by precipitation, and by ultrafiltration or colloid formation was analyzed by carrying out some blank tests. The loss of uranium by the ultrafiltration was significant in the lower ionic strength(i.e., in the case of 0.001M NaClO<sub>4</sub>) due to the cationic sorption effect onto the ultrafilter by a surface charge reversion. The distribution coefficient (or pseudo-colloid formation constant) for the sorption of uranium(VI) onto bentonite colloids was  $10^4 \sim 10^6$  mL/g depending upon pH and the distribution coefficient was highest in the neutral pH around 6.5.

**Key words** : Uranium(VI), Sorption, Solubility/Precipitation, Bentonite Colloids, Distribution Coefficient

### 요약

본 연구에서는 현재 국내에서 잠재적인 완충재 물질로 고려되고 있는 경주산 칼슘벤토나이트에서 발생하는 벤토나이트 콜로이드를 대상으로 대표적인 악티나이드 핵종이며 고준위 핵종인 우라늄(VI)에 대한 수착특성에 대한 실험적 연구를 수행하였다. 실험에 사용될 벤토나이트 콜로이드의 농도 및 크기를 여과법을 사용하여 측정된 결과 벤토나이트 콜로이드 원액의 농도는 약 5100ppm 이고 98% 이상의 콜로이드들이 200-450nm 크기 사이에 존재하는 것으로 나타났다. 우라늄 수착 실험에 대한 공시험을 수행하여 수착반응 용기 벽면에 의해, 침전에 의해, 한외여과 또는 콜로이드 형성에 의해 손실된 우라늄 양을 평가하였다. 한외여과에 의한 우라늄 손실의 경우 이온강도가 낮은 경우에(즉, 0.001M NaClO<sub>4</sub>의 경우) 한외여과 필터의 표면전하 역전에 의한 양이온 수착 영향으로 매우 높은 핵종 손실을 유발하였다. 벤토나이트 콜로이드에 대한 우라늄(VI)의 수착 분배

계수(의사콜로이드 형성상수)는 pH에 따라  $10^4 \sim 10^6$  mL/g 정도의 값을 가지는 것으로 관측되었으며 중성 영역인 pH 6.5 근처에서 최대값을 가지는 것으로 나타났다.

**중심단어** : 우라늄(VI), 수착, 용해도/침전, 벤토나이트 콜로이드, 분배계수

## 1. 서론

현재 고준위방사성폐기물의 안전한 처분에 대한 가장 유력한 대안으로는 지하 수 백 미터 이상의 심지층에 폐기물을 처분하는 것이며 대상 매질로는 결정질 암반, 점토질 암반 또는 암염층 등이 고려되고 있다. 국내에서는 결정질 암반에 처분하는 것을 기본 처분 개념으로 설정하고 있다 [1]. 그리고 포장된 폐기물들은 심지층의 굴착된 수평 갱도(drift) 또는 수직 시추공(borehole)에 정착되는데 이때 암반층과 포장물 사이는 완충재나 뒷채움재로 메우고 되는데 이때 사용하는 완충재로 가장 선호되는 것이 압축된 벤토나이트이며, 뒷채움재로는 암석과 점토광물과의 혼합물이다. 이러한 완충재나 뒷채움재는 다중방벽 처분개념에 있어 인공방벽시스템(EBS, Engineered Barrier System)을 구성하는 주요 구성원이 된다[2].

따라서 EBS의 장기 건전성을 확보하기 위해서는 EBS와 모암 사이의 상호작용을 이해하는 것이 필수적이라고 하겠으며 다양한 열적, 수력학적, 기계적(THM, Thermo-Hydraulic-Mechanical) 영향을 고찰하는 것이 필요하다. 실제 처분 조장 조건에서의 EBS의 THM 거동을 이해하고 모암과의 상호작용을 해석하기 위한 연구가 ENRESA(The Spanish Agency for Radioactive Waste Disposal)를 중심으로 스위스 GTS(Gimsel Test Site) 지하시험시설에서 FEBEX(Full-scale Engineered Barriers Experiment) 프로젝트를 수행하였다[3].

점토광물(특히, montmorillonite)의 hydration은 암반 균열로 침투할 수 있는 겔(gel)형의 물질을 형성하고 점토의 높은 팽윤압(swelling pressure)은 이러한 과정을 돕게 된다. 벤토나이트의 암반으로의 침투는 EDZ(excavation disturbed zone)의 물리화학적 특성을 변화시킬 수 있고 이러한 영역에서의 핵종 이동 조건들에 영향을 미칠 수 있다. 더구나 겔 물질들은 암반의 대현균열(macro-fracture) 뿐만 아니라 미세균열(micro-fracture)로 접근하여 암반으로 확산 이동할 수 있는 콜로이드를 발생시킬 수 있다[4]. 벤토나이트가 많은 핵종들에 대해 뛰어난 수착능을 가지고 있음을 고려할 때 점토입자들의 확산은 방사성 핵종의 이동과 관련될 수 있고 핵종의 이동에 영향을 미칠 수 있다. 실제로 이러한 벤토나이트 콜로이드들에 의한 핵종 이동이 가속화됨을 확인하는 실험 결과들이 다수 확인되었다[4,5].

또한 GTS의 5m 규모의 화강암 자연 균열의 지하수에서 FEBEX 벤토나이트를 이용하여 방사성 핵종에 미치는 벤토나이트 콜로이드의 영향 및 이동에 대한 연구를 CRR(Colloid and Radionuclide Retention) 프로젝트로 수행한 바 있다[6]. 이러한 현장 실험의 결과는 벤토나이트 콜로이드가 방사성 핵종의 유출량 및 이동 속도를 증가시킨다는 것이었다. 이러한 결과는 그동안 과소평가되었던 콜로이드의 역할 및 중요성에 대한 인식의 새로운 전기를 마련하는 계기가 되었다. 또한 벤토나이트 콜로이드의 물리화학적 특성 분석을 위한 다양한 연구가 수행되었다[7,8]. 아울러 벤토나이트에 대한 핵종 수착 특성에 대한 연구는 다년간 많은 연구자들에 의해 수행되었다[9~12].

따라서 본 연구에서는 현재 국내에서 잠재적인 완충재 물질로 고려되고 있는 경주산 칼슘벤토나이트에서 발생하는 벤토나이트 콜로이드를 대상으로 대표적인 악티나이드 핵종이며 고준위 핵종인 우라늄(VI)에 대한 수착특성에 대한 실험적 연구를 수행하고자 하였다.

## 2. 실험

### 가. 재료 및 장비

실험에 사용된 벤토나이트는 경상북도 경주에서 생산된 것으로 “경주벤토나이트”로 불린다. 경주벤토나이트는 양이온 교환능이 47.7meq/100g이고  $Ca^{2+}$  이온이 주 이온 교환가능한 양이온으로 일반적으로 Ca-벤토나이트로 불린다. 벤토나이트의 조성은 70%의 몬모릴로나이트, 29% 장석 그리고 약 1%의 석영으로 구성되어 있다[13]. 총탄소 함량은 3160-3600ppm, 유기탄소 함량은 2400-2800ppm 정도이다[14].

벤토나이트 콜로이드 분산액은 약 50g의 경주벤토나이트를 500mL의 MQ 초순수를 담은 1L PE 병에 넣어 잘 혼합한 후에 초음파 발생기에서 약 1시간 동안 벤토나이트 입자들을 분산시킨 뒤에 초순수 500mL를 더 추가하여 희석하였고 이 벤토나이트 혼합액을 6000rpm에서 30분 동안 원심분리기한 후에 상등액을 분리하였다. 이렇게 분리된 상등액을 벤토나이트 콜로이드 원액으로 사용하였다. 분리된 상등액은 실험에 사용되기 전까지 4°C 냉장고에 보관하였다.

본 실험에 사용된 우라늄 핵종은  $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ (MERCK) 형태의 시료로 U(VI)를 사용하였고, 모든 핵종의 농도는 ICP-MS(varian, Ultramass 700)을 이용하여 측정하였다. 우라늄 핵종의 침전을 방지하기 위해 0.01M  $HClO_4$  산용액에 시약을 첨가하여 용해시킨 후에  $10^{-3}M$  농도의 원액을 제조하여 사용하였다. 모든 실험 용액은 18.3M $\Omega$ -cm 의 저항도를 가진 초순수(Milli-Q, Millipore)를 이용하여 제조되었고, AR 등급의 시약들을 사용하였다. 실험 시스템의 이온강도를 적절하게 유지하기 위하여 적당한 농도의  $NaClO_4$  용액을 기본 전해액으로 사용하여 이온강도를 조절하였다.

#### 나. 실험 방법

벤토나이트 콜로이드에 대한 U(VI)의 수착실험은 이온 강도 및 pH 등의 함수로 회분식으로 수행되었다. 모든 수착 실험은 대기 조건에서  $25 \pm 2^\circ C$ 에서 수행되었다. 먼저 일정 농도의  $NaClO_4$  용액 30mL를 담은 50mL PC(poly carbonate) 원심분리기 튜브(Nalgene)에 5100ppm 농도의 벤토나이트 콜로이드 원액을 약 300 $\mu$ L 첨가하였다. 그리고 이 용액의 pH는 1.0M 및 0.1M  $HClO_4$  또는 NaOH를 용액을 이용하여 원하는 pH로 조절하였다. pH가 안정화되었을 때  $10^{-3}M$ 의 핵종 원액을 30 $\mu$ L를 가하여 초기 우라늄의 농도를  $10^{-6}M$ 로 만들었다. 또한 대기중의  $CO_2$ 와 평형을 유지하기 위하여 물로 포화된 공기 방울을 이 용액에 계속하여 제공하였다. 용기 속 용액에 공기를 제공하게 되면 pH가 변하게 되는데 pH 조절액을 이용하여 이를 보정하였다. 공기 제공 및 이로 인한 pH 변화가 어느 정도 안정화되면, 용기를 느슨하게 밀봉하여(실제로는 용기 뚜껑에 직경이 2mm 정도 되는 구멍을 3개 뚫었다) 자동 온도제어 가능한 교반기(shaker)에서  $25^\circ C$ 를 유지하며 100rpm 정도의 속도로 교반시키며 3일 동안 수착 반응시켰다.

수착반응 시킨 3일 후에 용액의 pH를 측정된 후(Ion Analyzer EA-940 및 Ross combination electrode, ORION), 한외여과기(Ultrafiltration Stirred Cell 8000, Millipore)를 이용하여 3nm 기공 크기를 가진 XM50(50,000NMWL, Millipore)로 벤토나이트 콜로이드를 분리하였고, 여과액 중 약 4mL를 채취하였다. 채취된 여과액은 ICP-MS로 핵종 농도를 분석하기 위하여 시료용기에 담아 65% 질산 10 $\mu$ L를 가한 후에 냉장고에 보관하였다.

용기벽에 부착되거나, 침전 또는 흡착되어서 제거되어지는 핵종의 손실과 여과에 의해 제거되어지는(즉, 자체로 참 콜로이드를 형성하는) 핵종의 손실을 규명하기 위한 공시험(blank test)을 pH 및  $NaClO_4$ 를 이용하여 이온강도를 변화시키면서 수행하였다. 이러한 공시험의 결과들을 수착실험 결과의 계산에 반영하였다.

### 3. 결과 및 논의

#### 가. 벤토나이트 콜로이드의 특성

실험에 사용될 벤토나이트 콜로이드의 농도 및 크기를 결정하기 위하여 여과법을 사용하였다. 필터 홀더는 Millipore Swinnex (직경 25mm)를 이용하였고, 주사기는 고압용 20mL Millipore 플라스틱을 이용하였다. 측정 결과 벤토나이트 콜로이드 원액의 농도는 약 5100ppm이고 98% 이상의 콜로이드들이 200-450nm 크기 사이에 존재하는 것으로 나타났다(그림 1 참조). 또 XRD를 이용하여 구성광물을 분석한 결과 벤토나이트 콜로이드를 구성하는 주광물은 몬모릴로나이트이며 다른 부광물은 거의 없는 것으로 나타났다(그림 2 참조). 양이온교환능(CEC, Cation Exchange Capacity)은 암모니아 전극(Thermo Orion)을 이용하여 NH<sub>4</sub>Cl을 벤토나이트의 이온교환양이온과 치환하여 측정하였고 약 93.3 meq./100g인 것으로 측정되었다.

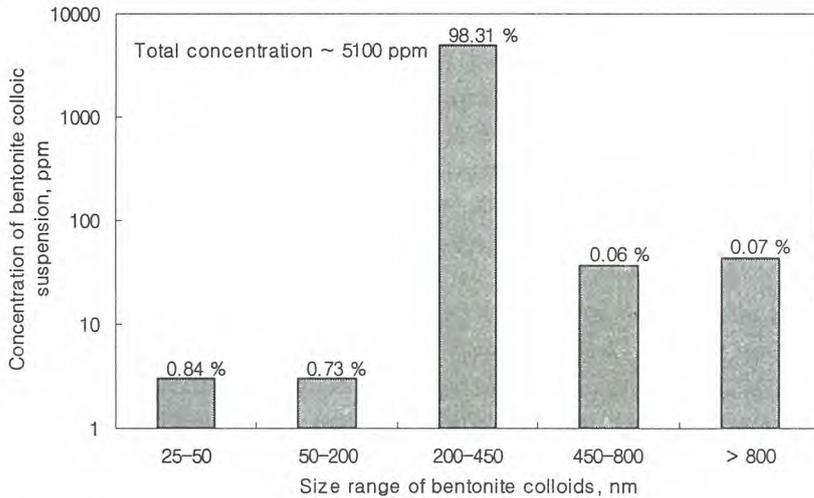


그림 1. 여과법을 이용한 벤토나이트 콜로이드의 크기 및 질량 농도 측정 결과

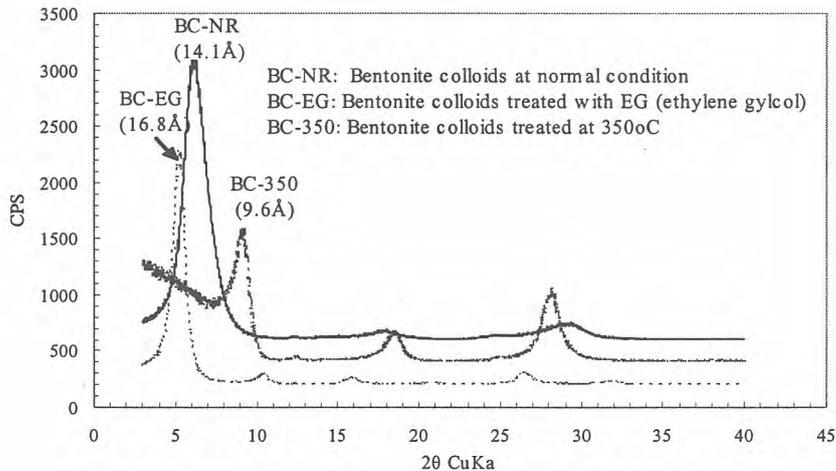


그림 2. 벤토나이트의 XRD 측정결과.

나. 수착 계수

일반적으로 핵종의 콜로이드로의 수착 반응에 대한 수착 분배계수(또는 의사콜로이드 형성상수)  $K_d(\text{mL/g})$ 는 다음과 같이 정의된다[15,16]:

$$K_d \equiv \frac{[S]}{[U]} = \frac{([U_T] - [U])}{[U][C_T]} \cdot M$$

여기서  $[U]$ 는 용액에서의 우라늄의 농도( $\text{mol/mL}$ )이고,  $[S]$ 는 콜로이드에 수착된 우라늄의 농도( $\text{mol/g}$ )이고,  $[C_T]$ 는 용액의 단위부피당 존재하는 콜로이드의 농도( $\text{mg/L}$ )이며  $[U_T]$ 는 우라늄의 초기농도( $\text{mol/L}$ )이고  $M$ 은  $\text{L/mg}$ 의  $\text{mL/g}$ 으로의 단위 환산 인자( $=10^6$ )이다.

#### 다. 우라늄(VI) 손실

수착실험 수행 시 수착 용기 벽면에 우라늄 핵종이 수착 됨으로 해서 또는 우라늄과 벤토나이트를 한외여과 하는 과정에 필터에 흡착되거나 물리적으로 부착 또는 막힘에 의해 우라늄이 핵종의 손실을 가져올 수 있으며 이러한 손실은 결국 수착실험 결과에 오차를 유발하게 되므로 이러한 손실량에 대한 해석이 중요하다. 우선 우라늄-벤토나이트 수착 반응 용기의 벽면에 대한 우라늄 손실량을 분석하기 위한 공시험을 벤토나이트 콜로이드가 존재하지 않는 조건에서 이온강도와 pH를 변화시키며 수행하였다. 그 결과를 그림 3에 나타내었다. 반응용기 벽면에 의한 우라늄 손실량은 이온강도에 상관없이 중성 pH 영역에서 가장 크게 나타났지만 최대 10% 정도로 그 영향이 크지 않은 것으로 나타났다. 그리고 이온강도가 낮을수록 손실량이 크지는 경향을 보이기는 했지만 그 차이 또한 크지 않은 것으로 나타났다. 그리고 pH 변화에 따른 반응용기 벽면에 의한 우라늄 손실 거동은 pH 변화에 의한 일반적인 우라늄 수착거동과 거의 일치하는 경향을 나타내는 것으로 미루어 수착 메커니즘에 의해 우라늄이 반응용기 벽면에 부착되는 것으로 추정된다.

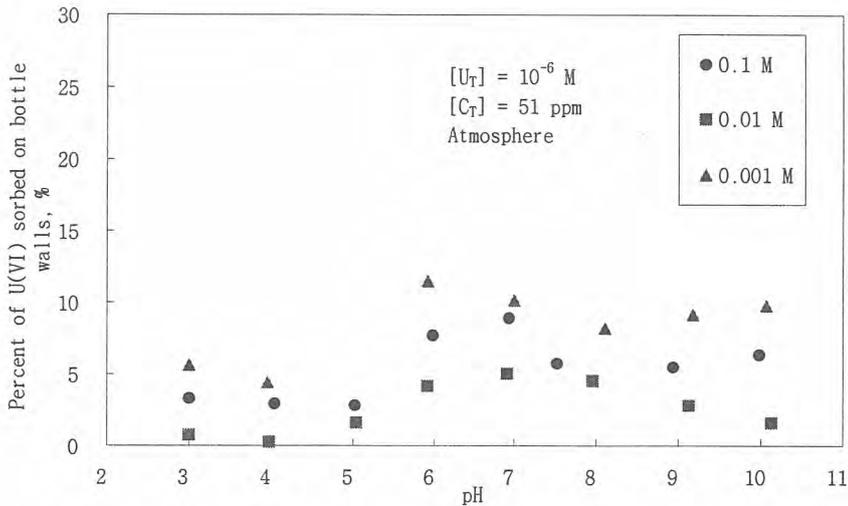


그림 3. 수착실험 용기에 의한 U(VI)의 손실 영향 공시험 결과

그림 4에는 한외여과에 의한 우라늄 손실량 분석을 위한 공시험 결과를 나타내었다. 한외여과에 의한 우라늄 손실의 경우엔 이온강도의 영향이 크게 나타나고 있음을 알 수 있다. 특히 이온강도가 0.001M 정도로 매우 낮은 경우엔 중성 pH 영역에서 거의 모든 우라늄이 한외여과에 의한 손실되는 것으로 나타났다. 따라서 벤토나이트-우라늄 수착반응 실험 시에 한외여과에 의해 벤토나이트를 분리하는 것은 용액의 이온강도가 0.01M 이하일 경우엔 오차가 매우 커서 신뢰할만한 결

과를 얻을 수 없음을 주지할 필요가 있다. 이러한 현상은 한외여과 필터 자체의 제타-전위의 변화에 기인하는데 이온강도가 증가할수록 제타전위가 감소하게 되고 결국은 우라늄과 같은 양이온들이 필터 표면에 수착 됨으로서 핵종양의 손실을 유발하는 것으로 알려져 있다[17,18].

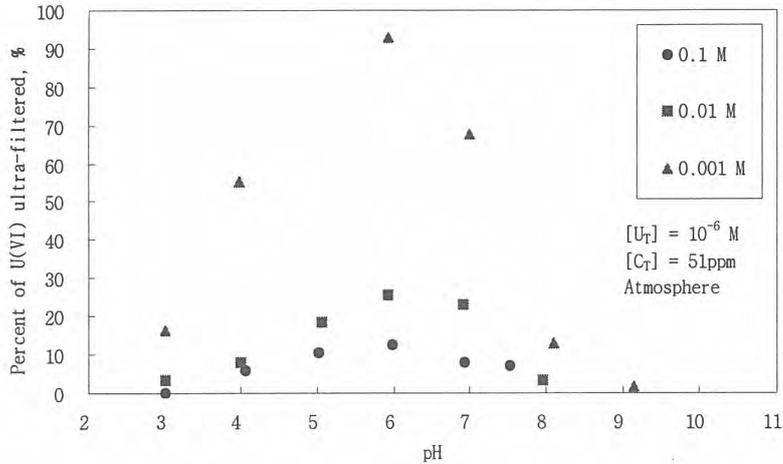


그림 4. 한외여과의 의한 U(VI) 손실 영향 공시험 결과

라. 우라늄 수착

벤토나이트 콜로이드에 대한 우라늄 수착계수를 용액의 이온강도와 pH를 변화시키며 측정한 결과를 그림 5에 나타내었다. 이온강도가 0.001M 일 경우엔 앞에서 논의된 바와 같이 한외여과에 의한 우라늄 손실양이 매우커서 신뢰할만한 결과를 얻을 수 없었다. 이온강도가 0.1M일 때와 0.01M 경우를 비교해보면 중성영역에서는 거의 영향이 나타나지 않지만 산 및 알칼리 영역에서는 이온강도의 영향이 나타나고 있으며 이온강도가 작을수록 수착량이 증가함을 보이고 있다.

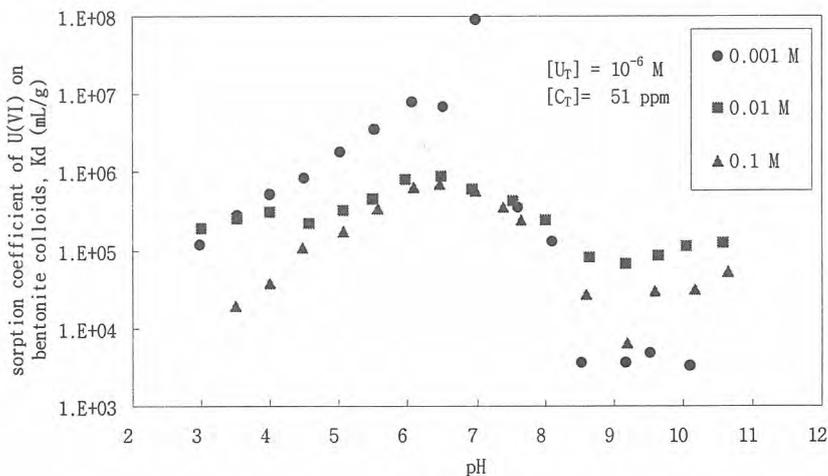


그림 5. 벤토나이트 콜로이드에 대한 U(VI)의 수착 실험 결과

수착계수는 pH에 따라  $10^4 \sim 10^6$  mL/g 정도의 값을 가지는 것으로 관측되었으며 중성 영역인 pH6.5 근처에서 최대값을 가지는 것으로 나타났다. 일반적으로 벤토나이트의 경우에 낮은 pH 영역에서는 이온교환 반응이 지배적이며 높은 pH 영역(pH>5)에서는 표면복합화 반응이 지배적인 것으로 알려져 있다[9,19,20]. 최근의 SCM(Surface Complexation Model)을 이용한 연구 결과들은 우라늄이 순수 벤토나이트에 수착될 경우에, pH5-9 사이에서는  $UO_2(OH)^+$ 가 주요 수착하는 핵종이며 pH9 이상에서는  $UO_2(OH)_3^{2-}$ 가 수착을 지배하는 것으로 해석되었다[19]. 그러나 이러한 표면 복합물의 형성은 높은 pH에서 음의 표면전하의 발달에 의해 제약받을 것이다. 그리고 이러한 핵종들의 복합화 반응은 주로 벤토나이트에 함유된 몬모릴로나이트의 edge-surface의 수산화기(hydroxy group)에서 발생하는 것으로 확인되고 있다[20-22].

그림 6에는 벤토나이트 콜로이드의 농도가 우라늄(VI)의 벤토나이트 콜로이드에 대한 수착에 미치는 영향을 분석하기 위한 실험 결과를 나타내었다. 벤토나이트 콜로이드의 농도를 0.5ppm에서 1000ppm까지 변화시키며 우라늄 수착량을 측정하고 그 증가의 경향은 S-곡선의 형태를 가지고 있음을 알 수 있다. 벤토나이트 콜로이드의 농도가 약 5ppm에서 부터 우라늄 수착량이 급격히 증가하다가 500ppm 이상이 되면 수착량이 거의 포화됨을 알 수 있다. 이러한 경향은 우라늄 핵종의 농도가 벤토나이트 콜로이드의 농도에 비해 매우 낮기 때문에 충분히 수착점(sorption site)를 제공하기 때문인 것으로 추측된다.

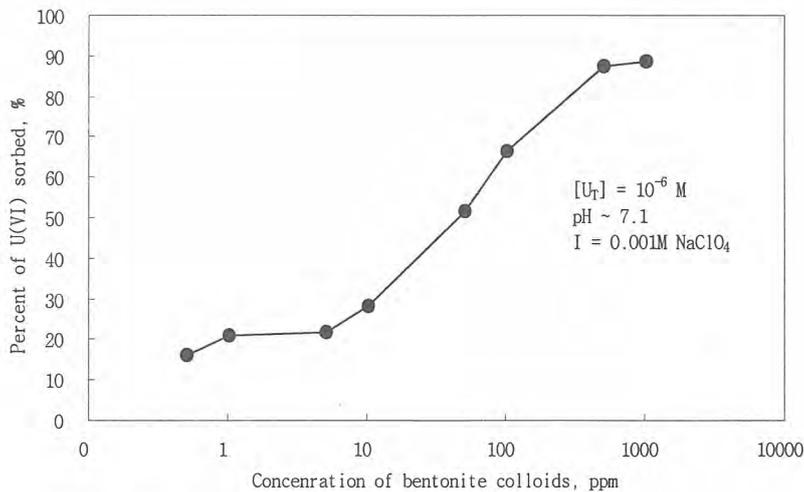


그림 6. 벤토나이트 콜로이드에 대한 U(VI)의 수착의 콜로이드 농도 영향 실험 결과

#### 4. 결 론

본 연구에서는 국산 벤토나이트 콜로이드에 대한 우라늄(VI)의 수착실험을 수행하였고, 수착계수 또는 의사콜로이드 형성상수를 구하였다. 이들 콜로이드에 수착계수는 일반 점토 입자들에 대한 수착계수보다 매우 크게 나타났는데 이는 콜로이드 입자의 크기가 매우 작기 때문에 수착에 필요한 보다 큰 표면적을 제공하기 때문인 것으로 사료된다. 아울러 이들 핵종에 대한 공시험을 수행하여 수착반응 용기 벽면에 의해, 침전에 의해, 한외여과 또는 콜로이드 형성에 의해 손실된 우라늄 양을 평가하였다. 한외여과의 경우 이온강도가 낮은 경우에 한외여과 필터의 표면전하 역

전에 의한 양이온 수착 영향으로 매우 높은 핵종 손실을 유발하였다.

## 5. 사 사

본 연구는 과학기술부에 의해 지원되는 원자력중장기연구개발의 일환으로 수행되었음.

## 참고문헌

1. Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI), Progress Report on the R&D Program for the Disposal of HLW in Korea, Korea Atomic Energy Research Institute, August 20, 2002, Daejeon(2002).
2. N.A. Chapman and I.G. McKinley, The Geological Disposal of Nuclear Waste, Wiley, Chichester(1987).
3. M. García-Gutiérrez, T. Missana, M. Mingarro, J. Samper, Z. Dai and J. Molinero, "Solute transport properties of compacted Ca-bentonite used in FEBEX project," J. Contam. Hydrol., 47, pp. 127-137(2001).
4. U. Alonso, T. Missana, A. Patelli, V. Rigato and P. Rivas, "Study of the contaminant transport into granite microfractures using nuclear ion beam techniques," J. Contam. Hydrol., 61, pp. 95-105(2003).
5. P. Grindrod, M. Peletier and H. Takase, H. "Mechanical interaction between swelling compacted clay and fractured rock, and the leaching of clay colloids," Eng. Geol., 54, pp. 159-165(1999).
6. W. Hauser, H. Geckeis, J.I. Kim and Th. Fierz, "A mobile laser-induced breakdown detection system and its application for the in situ-monitoring of colloid migration," Colloids and Surfaces A, 203, pp. 37-45(2002).
7. T. Missana and A. Adell, "On the applicability of DLVO theory to the prediction of clay colloids stability," J. Coll. Interf. Sci., 230, pp. 15-156(2000).
8. H. Geckeis, Th. Ngo Mahn, M. Bouby and J.I. Kim, "Aquatic colloids relevant to radionuclide migration: characterization by size fractionation and ICP-mass spectrometric detection," Colloids and Surfaces A, 217, pp. 101-108(2003).
9. M.H. Bradbury and B. Baeyens, "Modelling the sorption of Zn and Ni on Ca-montmorillonite," Geochim. Cosmochim. Acta, 63, pp. 325-336(1999).
10. O. Abollino, M. Aceto, M. Malandrino, C. Sarzanini, E. Mentasti, "Adsorption of heavy metals on Na-montmorillonite. Effect of pH and organic substances," Water Research, 37, pp. 1619-1627(2003).
11. S. Nagasaki, S. Tanaka and A. Suzuki, "Sorption of neptunium on bentonite and its migration in geosphere," Colloids and Surfaces A, 155, pp. 137-143(1999).
12. W. Xiangke, D. Wenming, G. Yingchun and T. Zuyi, "Sorption characteristics of radioeuropium on bentonite and kaolinite," J. Radioanal. Nucl. Chem., 250, pp. 267-270(2001).
13. W.J. Cho, J.O. Lee, C.H. Kang and K.S. Chun, Physicochemical, mineralogical and mechanical properties of domestic bentonite and bentonite-sand mixture as a buffer material in the high-level waste repository, KAERI/TR-1388/99, Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon(1999).
14. W.J. Cho, J.O. Lee, C.H. Kang and K.S. Chun, Effect of organic carbon content of the

- domestic bentonite on the performance of buffer material in a high-level waste repository, KAERI/TR-14393/99, Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon(1999).
15. C. Degueldre, H.J. Ulrich and H. Silby, H. "Sorption behaviour of  $^{241}\text{Am}(\text{III})$  on montmorillonite, illite and haematite colloid," *Radiochimica Acta*, 65, pp. 173(1994).
  16. M.H. Baik and P.S. Hahn, "Experimental study on uranium sorption onto silica colloids: Effects of geochemical parameters," *J. of the Korean Nuclear Society*, 33, pp. 261-269(2001).
  17. J.M.M. Peeters, J.P. Boom, M.H.V. Mulder and H. Strathmann, "Retention measurements of nanofiltration membranes with electrolyte solutions," *J. Membrane Sci.*, 145, pp. 199-209(1998).
  18. D.B. Burns and A.L. Zydney, "Buffer effects on the zeta potential of ultrafiltration membranes," *J. Membrane Sci.*, 172, pp. 39-48(2000).
  19. K.A. Boulton, M.M. Cowper, T.G. Heath, H. Sato, T. Shibusaki and M. Yui, "Towards an understanding of the sorption of U(VI) and Se(IV) on sodium bentonite," *J. Contam. Hydrol.*, 35, pp. 141-150(1998).
  20. M. Tsukamoto, T. Fujita, T. Ohe, "Surface complexation modeling for description of actinide sorption at the buffer materials/water interface," *J. Nucl. Mat.*, 248, pp. 333-337(1997).
  21. S.P. Hyun, Y.H. Cho, P.S. Hahn and S.J. Kim, "Sorption mechanism of U(VI) on a reference montmorillonite: Binding to the internal and external surfaces," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 250, pp. 55-62(2001).
  22. J.D. Morton, J.D. Semrau and K.F. Hayes, "An X-ray absorption spectroscopy study of the structure and reversibility of copper adsorbed to montmorillonite clay," *Geochim. Cosmochim Acta*, 65, pp. 2709-2722(2001).

Investigation of sequential separation method for  
 $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  and  $^{238}\text{Pu}$  isotopes

$^{90}\text{Sr}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  및  $^{238}\text{Pu}$  동위원소들을 분리하기 위한  
축차분리법에 대한 고찰

Myung-Ho Lee, Byoung-Chul Song, Young-Jai Park, Kwang-Young Gee  
and Wein-Ho Kim

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

이명호, 송병철, 박영재, 지광용, 김원호  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

Abstract

This paper presents a quantitative method of sequential separation of  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{241}\text{Am}$  and Pu nuclides with an anion exchange resin and a Sr-Spec resin. The Pu isotopes were purified with an anion exchange resin. The americium and strontium fractions were separated from the matrix elements with an oxalate co-precipitation method. Americium fraction was separated from the strontium fraction with iron co-precipitation method and purified from lanthanides with anion exchange resin. Strontium-90 was purified from other hindrance elements with the Sr-Spec resin after oxalate co-precipitation. The measurement of Pu and Am isotopes was carried out by an  $\alpha$ -spectrometer. Strontium-90 was measured by a liquid scintillation counter. The radiochemical procedure of  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{241}\text{Am}$  and Pu nuclides investigated in this study has been validated by application to IAEA-Reference soils.

**Key word** : Sequential separation,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{241}\text{Am}$  and Pu isotopes

요약

본 연구에서는 음이온 교환수지와 Sr-Spec 수지를 사용하여  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{241}\text{Am}$  및 Pu 동위원소들에 대하여 축차적으로 분리하는 정량법을 제시하였다. Pu 동위원소는 음이온 교환수지를 이용하여 분리하였다. 아메리슘 및 스트론튬은 옥살산 공침법을 사용하여 토양 매트릭스 성분으로부터 분리하였다. 아메리슘은 철공침법을 사용하여 스트론튬으로부터 분리한후 음이온 교환수지를 사용하여 란타나이드 성분으로부터 순수분리하였다. 스트론튬은 Sr-Spec 수지를 사용하여 순수분리하였다. Pu 및 Am 동위원소는 알파스펙트로메타로 정량하였고 Sr-90은 액체섬광계수기를 사용하여 베타 선을 측정하였다. 본 연구에서 고찰된  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{241}\text{Am}$  및 Pu 동위원소 분석법을 IAEA 기준시료에 적용하여 분석법의 타당성을 검증하였다.

**중심단어** : 축차분리,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{241}\text{Am}$  및 Pu 동위원소

1. 서론

과거 미국, 러시아 및 중국등의 강대국들이 실시한 대기권 핵실험에 의해 환경으로 방출된 수량

은 인공방사성 핵종들중에 반감기가 비교적 짧은  $^{131}\text{I}$  및  $^{55}\text{Fe}$  등의 방사능 농도는 대부분 감쇄되어 환경중에서는 거의 측정이 불가능하다. 그러나,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ , 및  $^{241}\text{Am}$  등의 장반감기 핵종은 아직도 환경중에서 검출되고 있다. 이들 인공방사성 핵종중에서 환경중에 아주 극소량 존재하는 베타 방출체인  $^{90}\text{Sr}$ , 알파방출체인  $^{239,240}\text{Pu}$  및  $^{238}\text{Pu}$  등에 대한 방사능분석은 검출하한치를 만족시키는 신뢰성 있는 자료를 산출하는 것은 상당히 어렵다. 또한 베타 방출핵종인  $^{241}\text{Pu}$ 의 딸 핵종인  $^{241}\text{Am}$ 은 알파방출체로 토양 및 농작물을 통한 먹이사슬을 거쳐서 인체로 유입되면  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  및  $^{238}\text{Pu}$  등의 핵종처럼 뼈에 쉽게 침적되어 장기간 동안에 방사성 독성을 유발한다. 현재  $^{241}\text{Am}$ 의 농도는  $^{241}\text{Pu}$  농도의 1/3 수준으로 순수분리 조작이 매우 어려울 뿐만 아니라 시간의 경과에 따라서 그 농도가 증가하여 방사화학적을 사용하여 이론적으로  $^{241}\text{Am}$  농도를 계산하면 2010 년도에  $^{241}\text{Am}$ 의 농도가 최대가 된다.

$^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ , 및  $^{241}\text{Am}$  등의 베타 및 알파방출핵종에 대한 기존의 방사능 분석법은 현재 환경중에 존재하는 방사능 농도가 극소량이므로 신뢰성 있는 자료를 생산하기 위해서는 많은 시료 (토양시료의 경우 20g 이상)가 필요하다. 특히 토양시료의 경우 많은 무기이온, 유기물 및 토양 매트릭스 성분들이 방사성 핵종들과 결합되어 있어서 목적하는 방사성 핵종을 방해원소로부터 완벽하게 제거하려면 복잡한 화학적 순수분리 조작이 필요하다. 미국 EML (Environmental Measurement Laboratory)[1], 일본 JCAC (Japan Chemical Analysis Center)[2], 독일의 FZK[3] 등의 원자력 관련기관에서 전통적인 습식분석화학 기술인 공침, 이온교환, 용매추출 및 전기전착 등의 방법들을 사용하여 독립적으로 알파 및 베타방출 핵종을 정량하고 있다. 최근에는 미국 Eichrom사에서 악티나이드 원소를 분리하고자 TRU, TEVA 및 Sr-Spec 등의 추출 크로마토그래픽 수지를 개발하였다[4-5]. Eichrom에서 생산되는 크로마토그래픽 수지 단가는 상용되는 양이온 및 음이온 수지 (DOWEX, BIO RAD)에 비해 현저히 비싼 단점이 있으나 분석시간 및 분석예약을 획기적으로 단축하는 장점이 있어 환경방사능 분석에 널리 사용되고 있다.

기존의  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ , 및  $^{241}\text{Am}$  등의 악티나이드 원소에 대한 분리법에 대해서는 많은 연구가 발표되었으나[6-8] 스트론튬-90을 포함한 악티나이드 원소들에 대한 축차분리법에 대한 연구는 미미한 실정이다[9].  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ , 및  $^{241}\text{Am}$  등의 인공방사성 핵종을 축차적으로 분리하는 기술은 각각의 핵종에 대한 독립분석법과 비교하면, 동일한 시료에 대하여 방사성 핵종 농도비에 대한 직접 비교가 가능하고 시료전처리 시간을 단축하는 장점이 있다. 본 연구의 목적은 기존의 독립적인 분석법과 비교하여 분석소요시간 및 분석경비를 단축하는 Sr-90, Am-241 및 Pu 동위원소 축차 분석기술을 개발하여 기존 독립적인 분석법에 비해 검출 하한치 향상에 의한 분석 신뢰도를 확보하고자 하였다.

## 2. 실험방법

환경시료에 대한  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ , 및  $^{241}\text{Am}$  축차분리 및 측정 절차를 그림 1에 나타내었다.  
2.1 시료 전처리 및 분해

500 °C로 회화시킨 토양시료 50 g를 테프론 비이커로 옮기고 Sr 추적자 50 mg,  $^{243}\text{Am}$  및  $^{242}\text{Pu}$  을 각각 0.037 Bq, 0.023 Bq를 가한후 65 % 질산 100 ml 및 HF 20 ml를 가해 토양시료를 분해시켰다(두번 반복). 잔유물을 8 M 질산 100 ml를 사용하여 hot plate위에서 2시간 이상 교반하여 방사성 핵종을 완벽하게 토양으로부터 추출한 후 원심분리하여 상등액을 membrane filter (0.2  $\mu\text{m}$ )로 여과하였다.

### 2.2 음이온교환수지를 이용한 Pu 동위원소 순수분리 및 측정

Sr, Am, U 및 Pu 성분들이 추출된 용액에 대하여 Pu 산화가를 +4로 고정시키기 위해  $\text{Na}_2\text{SO}_3$  2 g 및  $\text{NaNO}_2$  1 g를 첨가한 후 가열하였다. 음이온 교환수지 (Dowex 1 X 8, 100-200 mesh,  $\text{NO}_3^-$  form, 내경; 1 cm, 높이; 8 cm)를 사용하여 Pu 동위원소를 컬럼에 흡착시켰다. 컬럼을 8 M 질산 100 ml로 세정한후 여액과 세정액은 Am 및 Sr 분석에 사용하였다. 9 M 염산으로 컬럼을

세정하여 토륨을 제거한 후 음이온 교환컬럼에 흡착된 Pu성분을 20 ml 0.36 M HCl/0.01 M HF를 사용하여 추출한 후 전기전착[10]하여 알파 스펙트로메타로 Pu 동위원소를 측정하였다.

### 2.3 옥살산 공침법을 이용하여 Sr 및 Am을 매트릭스 성분으로부터 분리

음이온 교환수지를 통과한 여액과 세정액을 20 ml로 증발한 후 증류수 180 ml를 가한 후 옥살산 30 g를 첨가한후 암모니아수로 pH를 4로 조절하여 Am과 Sr 성분을 옥살산에 공침시킨후 원심분리하였다. 옥살산 침전을 65 % HNO<sub>3</sub> 10 ml 사용하여 옥살산을 분해시켰다 (세번 반복).

### 2.4 철공침에 의한 Sr 과 Am 분리

잔유물에 1 M HNO<sub>3</sub> 100 ml을 가해 녹인후 Fe (III) 5 mg을 가해 암모니아로 pH를 8-9로 조절하였다. Am, 희토류원소, 우라늄 및 토륨등은 철에 공침되지만 스트론튬과 칼슘은 공침되지 않고 상등액에 존재한다. 침전을 원심분리한 후 상등액은 스트론튬 분리에 이용하였다. 침전에 9 M HCl를 사용하여 녹인후 암모니아수를 사용하여 다시 철공침한 후 침전은 아메리슘 분리에 사용하고 상등액은 Sr 분석에 이용하였다.

### 2.5 철, 우라늄 및 희토류 원소들로부터 Am 순수분리 및 측정

철공침에는 Am 뿐만 아니라 희토류원소 및 소량의 우라늄이 함유되어서 음이온교환수지를 사용하여 방해원소를 제거하였다. 철공침시료를 9 M HCl 20 ml로 녹인후 9 M HCl로 전처리한 음이온 교환수지 (Cl<sup>-</sup> form, 내경; 1cm, 높이; 3 cm)에 통과시켰다. 컬럼을 9 M HCl 30 ml로 세정하면 철 및 우라늄등은 음이온 교환수지에 강하게 흡착되며 희토류 원소 및 Am은 컬럼에 흡착되지 않고 통과한다. 컬럼으로부터 여액과 세정액을 증발건고시킨 후 액상을 nitrate form으로 만들기위해 65 % HNO<sub>3</sub> 5 ml를 가한후 증발건고시켰다. 잔유물에 1 M HNO<sub>3</sub> - 93 % methanol 50 ml를 가한 후, 가열하여 녹인 후, 1 M HNO<sub>3</sub> - 93 % methanol 50 ml로 전처리한 음이온교환수지 (NO<sub>3</sub><sup>-</sup> form, 내경; 1cm, 높이; 5 cm)에 통과시켰다. 컬럼에 0.1 M HCl - 0.5 M NH<sub>4</sub>SCN - 80 % methanol 80 ml를 가해 희토류 원소를 제거하였다. 1 M HNO<sub>3</sub> - 93 % methanol 20 ml를 사용하여 컬럼을 세정하였다. 1.5 M HCl - 86 % methanol 용액 80 ml를 사용하여 Am 성분을 추출한후 전기전착하여 알파스펙트로메타로 Am 동위원소를 측정하였다.

### 2.6 Sr-spec 컬럼을 사용한 Sr-90 순수분리 및 측정

철에 공침되지 않은 성분을 증발건고한후 6 M HNO<sub>3</sub> 10 ml에 녹였다. 시료매질로부터 스트론튬만을 분리하기위해 6 M HNO<sub>3</sub>으로 전처리한 Sr-spec 컬럼에 통과시켰다. 6 M HNO<sub>3</sub> 20 ml를 사용하여 컬럼을 세척하여 칼슘 및 이트륨등의 방해원소를 제거하였다. 증류수 20 ml를 사용하여 Sr-spec 컬럼에 흡착된 스트론튬을 용출하였다. 포화 탄산 암모늄 2 ml를 Sr이 함유된 용출용액에 첨가한 후 암모니아수 (25 %)로 pH를 9로 조절하여 스트론튬 카보네트 침전을 만들어서 Sr 화학수율을 결정하였다. 0.1 M HCl 10 ml를 사용하여 침전물을 녹인후 폴리에틸렌 용기 (20 ml)로 옮긴후 액체선풍체 (Ultima Gold LLT, Packard Instrument) 10 ml를 가한후 액체선풍계수기 내에 내장된 spectrum unfolding 기법[11-13]을 사용하여 <sup>90</sup>Sr을 정량하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 Pu 동위원소 분석

8 M 질산에 추출된 Pu의 산화상태는 +3, +4, +5 및 +6 형태로 존재한다고 보고되었다[14]. Pu를 순수분리 하기위해 Pu가 추출된 용액을 음이온 교환수지에 통과시키면 Pu 산화상태가 +4가인 경우에 강하게 음이온 교환수지에 흡착된다. 만일 추출용액에 함유된 Pu의 산화상태가 +3가로 존재할 경우, Pu는 음이온 교환수지에 흡착되지 않고 용출되어서 Pu 회수율을 감소시키는 원인을

제공한다. 따라서 Pu 동위원소를 신뢰성 있게 검출하려면 산화/환원제를 사용하여 음이온 교환수지를 통과하기 전에 Pu 산화상태를 +4로 고정시키는 단계가 필요하다. 산화/환원제 종류에 따른 Pu 회수율을 표 1에 나타내었다. H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 및 NaNO<sub>2</sub> 등의 산화/환원제를 단독으로 사용한 경우에 회수율은 70 % 미만으로 측정되었고, NaNO<sub>2</sub>에 Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> 혹은 N<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH을 같이 사용한 경우에 Pu 회수율은 75 % 이상으로 측정되었다. Pu 분석에서 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 혹은 NaNO<sub>2</sub> 등의 산화/환원제만을 독립적으로 사용할 경우 종종 토양에서 추출된 무기/유기 원소들이 산화/환원제에 의한 Pu의 산화/환원 작용을 억제할 가능성을 있다. 결과적으로 추출용액에서 Pu 산화상태가 +4로 완벽하게 조절이 되지 않아서 Pu 회수율이 감소되었다고 생각된다. 또한 NaNO<sub>2</sub> 등/N<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH을 사용한 경우 NaNO<sub>2</sub>/Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>를 사용한 경우와 <sup>242</sup>Pu 회수율이 비슷하게 측정되었으나, 이 방법을 사용할 경우 N<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH가 폭발성이 강하여 사용시에 상당한 주의를 필요로 한다. 따라서 본 연구에서는 NaNO<sub>2</sub> 1 g과 Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> 2 g을 사용하여 Pu 산화상태를 +4가로 조절하였다. Pu 분석에 대한 검출하한치는 0.00450 Bq/kg로 기존분석법의 검출하한치인 0.00519 Bq/kg와 비교하면 약간 감소하여 분석신뢰도가 향상되었다.

### 3.2 Am 동위원소 분석

아메리슘 정량에는 란타나이드와 <sup>210</sup>Po 등이 아메리슘 스펙트럼 측정에 영향을 준다. 란타나이드 원소들이 방사화학 분리단계에서 완벽하게 제거되지 않으면 알파핵종에 대한 측정시료 조제시에 Am과 같이 전기전착 되어서 알파스펙트럼을 퇴화(degrade) 시켜 피크 분리를 어렵게 한다. 또한 <sup>210</sup>Po은 방출에너지는 5.30 MeV로 추적자로 사용하는 <sup>243</sup>Am의 방출에너지인 5.27 MeV와 비슷하여 아메리슘 방사능 농도값은 실제 농도보다 과소 평가될 위험성이 있다. 따라서 기존의 Am 분석법은 이러한 방해원소들을 제거하기 위해 여러단계의 분석 조작이 필요하여 결과적으로 Pu 분석법보다 낮은 화학수율이 측정되었다. 본 연구에서는 Am 분석에 중요한 영향을 주는 pH 변화에 따른 옥살산 공침효율을 조사하였다. 일정량의 방사능 추적자 (<sup>232</sup>U; 124 dpm, <sup>241</sup>Am; 543 dpm) 및 무기이온 (Ca<sup>2+</sup>, Sr<sup>2+</sup>, Fe<sup>3+</sup>, Al<sup>3+</sup>, Y<sup>3+</sup>) 50 ppm을 모의시료에 첨가하고 pH 변화 (0.5, 1, 1.5, 2, 2.5, 3, 3.5, 4)에 따른 옥살산 공침효율을 ICP-AES, 감마 및 알파스펙트로메타로 측정한 결과, 그림 2에 나타낸 것처럼 pH 3에서 무기이온 (Ca<sup>2+</sup>, Sr<sup>2+</sup>), <sup>232</sup>U 및 <sup>241</sup>Am 등은 옥살산에 90 % 이상 공침되나 토양 매트릭스 주성분인 Fe<sup>3+</sup>, Al<sup>3+</sup>, Y<sup>3+</sup> 등은 pH 3에서 옥살산에 거의 공침이 되지 않고 수용액에 옥살레이트 착물형태로 존재하므로 스트론튬 및 아메리슘을 토양 매트릭스 성분으로부터 완벽하게 분리할 수 있었다. 또한 철에 공침된 Am에 대하여 음이온 교환수지 (Cl<sup>-</sup> form)를 이용하여 철을 제거한 후 음이온 교환수지 (NO<sub>3</sub><sup>-</sup> form)를 사용하여 란타나이드 성분 및 <sup>210</sup>Po를 제거하여 순수한 Am만을 분리하였다. Am 분석에 대한 회수율 평균은 69 ± 6 %로 기존의 Am 분석법 (65 % 이하)보다 약간 증가되었다. <sup>241</sup>Am의 검출하한치는 0.00482 Bq/kg-dry로 기존 독립적인 분석법을 사용한 경우의 검출하한치인 0.00870 Bq/kg-dry와 비교하면 약간 감소되었다.

### 3.3 Sr-90 분석

최근 Moreno[9] 등은 옥살산에 공침된 스트론튬을 분리하기 위해서 TRU Spec resin를 이용하였으나 TRU resin 단가가 비싼 단점이 있으므로, 본 연구에서는 철공침으로 스트론튬을 아메리슘 성분들과 분리하였다. pH 8에서 대부분의 Am<sup>3+</sup>은 철에 공침되나 Sr<sup>2+</sup>는 철에 공침되지 않는 특성을 이용하여 Sr 성분을 Am으로부터 분리하였다. 또한 철에 공침되지 않는 Sr, Ba 및 Ca 이온들은 화학수율 결정 및 액체섬광 측정시 악영향을 주므로 Sr만을 순수분리하기 위해 Sr Spec resin를 사용하여 Sr만을 순수분리한후 화학수율을 측정한 결과 Sr 회수율의 평균은 68 ± 8 %로 기존의 발연질산법의 회수율과 유사하였으나 분석단계가 많이 축소되어 기존의 분석법에 비해 분석시간 및 분석단가가 절약되는 경제성이 있다. 또한 기존의 가스비례 계수기로 베타선을 측정할 경우 스펙트럼 분석이 불가능한데 비해 액체섬광계수기를 사용할 경우 Sr-90 스펙트럼 분석이 가능하였다.

### 3.4 Pu, Am 및 Sr 동위원소 분석법 검증

$^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  및  $^{241}\text{Am}$  핵종에 대한 측차 분리법을 IAEA Reference 토양시료[14]에 적용하여 얻은 결과를 표 2에 나타내었고 IAEA-375 토양시료에 대하여 측정된  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  및  $^{90}\text{Sr}$  스펙트럼을 그림 3 및 그림 4에 나타내었다. IAEA-375 Reference 토양시료에서  $^{90}\text{Sr}$  방사능 농도는 95 % 신뢰구간인 101-114 범위내의 값으로 허용오차 범위내에서 일치하였다. 또한  $^{239,240}\text{Pu}$  및  $^{241}\text{Am}$ 의 경우도 95 % 신뢰구간 ( $^{239,240}\text{Pu}$ ; 0.26-0.34,  $^{241}\text{Am}$ ; 0.11-0.15)내의 농도값을 나타내었다. IAEA-300 Reference 해저토의 경우  $^{239,240}\text{Pu}$  및  $^{241}\text{Am}$  농도는 95 % 신뢰구간 ( $^{239,240}\text{Pu}$ ; 3.44-3.65,  $^{241}\text{Am}$ ; 1.2-1.5)내의 값으로 측정되었으나  $^{90}\text{Sr}$ 의 농도값 (15.5 Bq/kg)은 95 % 신뢰구간 (8.2-12.1) 보다 높게 측정되었다. 이 결과치는 IAEA-300 해저토에 대한  $^{90}\text{Sr}$  순수분리시 소량의  $^{137}\text{Cs}$  (1066 Bq/kg)이 제거되지 않고 Sr 성분엔 함유되어서 액체섬광 계수기로 측정시  $^{90}\text{Sr}$  스펙트럼에 영향을 주어  $^{90}\text{Sr}$  농도가 과대평가 되었다고 사료된다. 따라서 차후 이러한 단점을 보완하기 위해서는 Sr-Spec Spec resin양을 증가시켜  $^{90}\text{Sr}$ 을  $^{137}\text{Cs}$ 으로부터 완벽하게 분리하여야 한다고 생각된다.

## 4. 결론

Pu 동위원소를 분리하기 위해 8 M 질산으로 Pu 성분을 추출한 후,  $\text{NaNO}_2/\text{Na}_2\text{SO}_3$ 을 사용하여 Pu 산화상태를 +4가로 조절한다음 음이온 교환수지를 이용하여 Pu 성분만을 순수분리하였다. 아메리슘 동위원소는 옥살산 공침 및 철공침법을 이용하여 무기이온 및 스트론튬과 분리한후 음이온 교환수지를 이용하여 순수분리하였다. 순수분리된 Pu 및 Am 동위원소를 각각 전기전착하여 Pu 및 Am 방사능을 측정하였다. Pu 및 Am 측차 분석법에 대한 검출한계치는 기존 분석법에 비해 향상되었다. 스트론튬-90은 옥살산 공침 및 Sr-Spec 수지를 사용하여 순수분리한 후 액체 섬광계수기로 Sr-90 베타선 스펙트럼을 측정하였다.  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  및  $^{241}\text{Am}$  측차 분리법을 IAEA Reference 시료에 적용한 결과,  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  및  $^{90}\text{Sr}$  방사능 농도는 95 % 신뢰구간에서 잘 일치하였다.

## 참고문헌

1. N. A. Chieco, D. C. Bogen, E. O. Knutson (Eds), EML Procedures Manual, 27th ed., U.S. Department of Energy, New York. 1992.
2. Analytical Methods of Uranium, Radioactivity measurement series no. 14, Japan Chemical Analysis Center, Science and Technology Agency in Japan (1991).
3. Schuttelkopf H. (1981) KfK-Report 3035.
4. E. P. Horwitz, M. L. Dietz, D. M. Nelson, J. J. Larosa, W. D. Fairman, *Analyt. Chim. Acta* 238 (1990) 263.
5. E. P. Horwitz, R. Chiarizia, M. L. Dietz, H. Diamond, *Analyt. Chim. Acta* 281 (1993) 361.
6. M. Yamamoto, K. Komura, M. Sakanoue, *Radiochem. Acta* 29 (1981) 205.
7. A. Yamato, *J. Radioanal. Nucl. Chem. Article* 75 (1982) 265.
8. K. Bunzl, W. Kracke, *J. Radioanal. Nucl. Chem. Article* 115 (1987) 13
9. J. Moreno, N. Vajda, P. R. Danesi, J. J. Larosa, E. Zeiller, M. Sinojmeri, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 226 (1997) 2799.
10. M. H. Lee and C. W. Lee, *Instrum. Methods Phys. Res.* 447 (2000) 593.
11. M. J. Kessler (Ed), *Liquid Scintillation Analysis*. Science and Technology, Packard Instrument Co., 1989.
12. K. H. Hong, Y. H. Cho, M. H. Lee, G. S. Choi, C. W. Lee, *Appl. Radiat. Isot.* 54 (2001) 299.

13. M. H. Lee, K. H. Chung, G. K. Choi, C. W. Lee, Appl. Radiat. Isot. 57 (2002) 257.
14. G. R. Choppin, J. Anal. Chem. 51 (1996) 1129.
15. Z. Radecki, M. Campbell, K. I. Burns, Radionuclides and Trace Elements in Soil, IAEA-375 Reference Material, Vienna, 1991.

표 1. 산화/환원제 종류에 따른 Pu 회수율 (IAEA-375 50g)

Separation	Method	Oxidizing/Reducing agent	chemical yield ( $^{242}\text{Pu}$ , %)
TOPO	Extraction	$\text{NaNO}_2$	$69 \pm 7$
Anion	Exchange	$\text{H}_2\text{O}_2$	$54 \pm 6$
Anion	Exchange	$\text{NaNO}_2/\text{N}_2\text{H}_5\text{OH}$	$75 \pm 9$
Anion	Exchange	$\text{NaNO}_2/\text{Na}_2\text{SO}_3$	$77 \pm 7$

표 2. 측차분리법을 사용한 IAEA 표준 시료에 대한  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  및  $^{241}\text{Am}$  방사능농도

Sample	Radionuclide	Recommended value(Bq/kg)	This method (Bq/kg)
IAEA-375	$^{90}\text{Sr}$	108	$113 \pm 7$
	$^{239,240}\text{Pu}$	0.30	$0.26 \pm 0.05$
	$^{241}\text{Am}$	0.13	$0.11 \pm 0.04$
IAEA-300	$^{90}\text{Sr}$	10.8	$15.5 \pm 2.1$
	$^{239,240}\text{Pu}$	3.55	$3.42 \pm 0.12$
	$^{241}\text{Am}$	1.38	$1.49 \pm 0.24$

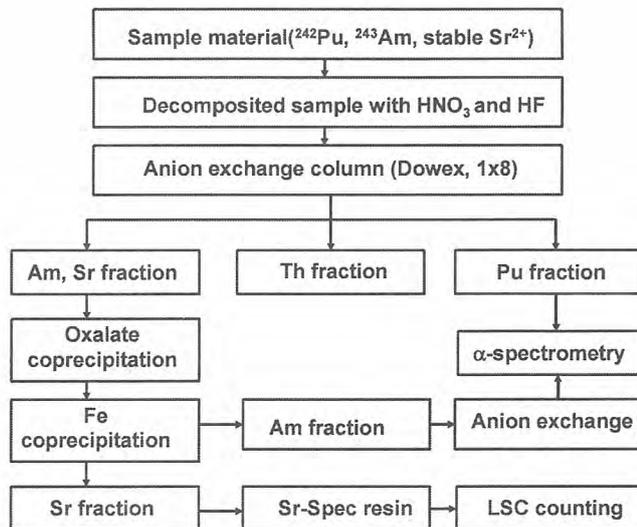


그림 1. Sr-90, Am-241 및 Pu 동위원소 측차분리 절차도

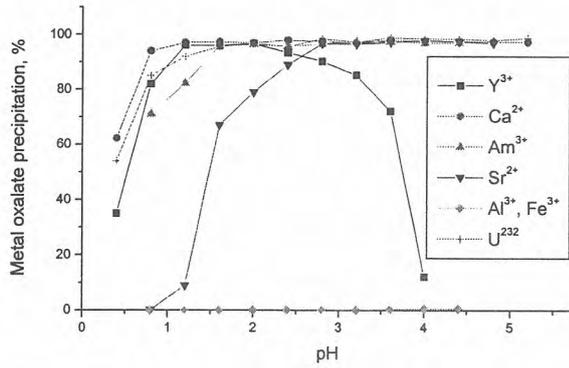


그림 2. pH변화에 따른 옥살산에 공침된 양이온들의 침전수율

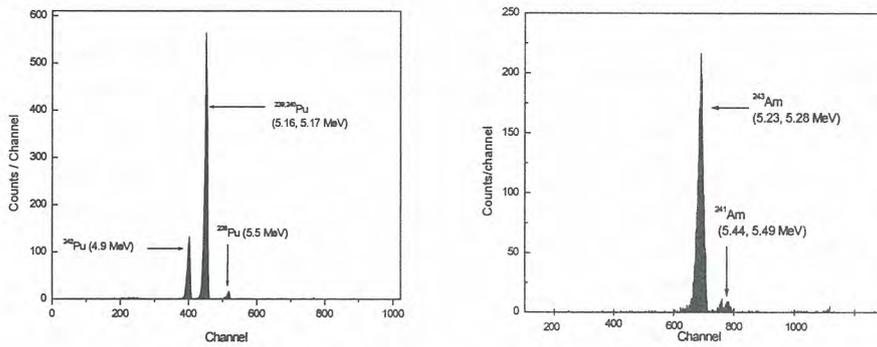


그림 3. IAEA-375 토양시료에 대한 Pu 및 Am 동위원소 알파스펙트럼

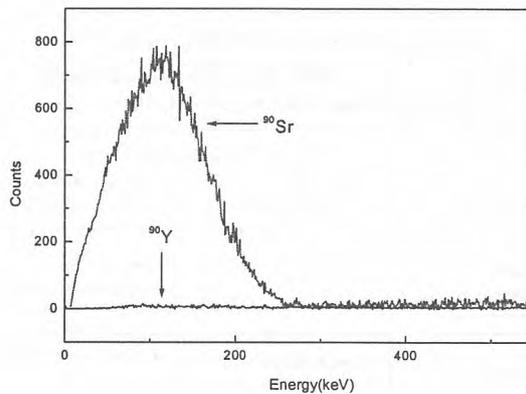


그림 4. IAEA-375 토양시료에 대한 Sr-90 및 Y-90 베타스펙트럼

## Migration of THO & Np in a Fractured Granite Core at Deep Underground Laboratory

Chung-Kyun PARK \*, Won-Zin CHO , Pil-Soo HAHN and B.KIENZLER  
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yuseong-Ku, Daejeon

[ckpark@kaeri.re.kr](mailto:ckpark@kaeri.re.kr)

### Abstract

Migration experiments of THO and  $^{237}\text{Np}$  have performed through a sampled granite core in Chemlab2 probe at the Äspö hard Rock laboratory. The elution curves of THO were analysed to determine hydraulic properties such as the extent of dispersion effect according to flow rates. The retardation phenomena of the solutes were observed and described with elution curves and migration plumes. After migration test, the rock core was opened, and the remaining radioactivities on the rock fracture surfaces were measured. The transport process was simulated with a two-dimensional channel model. The mass transport process was described with three types of basic processes ; advection, sorption and matrix diffusion. By the combination of these processes, effects of each process on transport were described in terms of elution curves and migration plumes. By comparing the simulation results to the experimental one, it was possible to analyse the retardation effect quantitatively.

### 1. Introduction

Actinide elements show a very complex geochemical behaviour, which is influenced by changes of redox state of the nuclides, complexation with groundwater constituents and colloid formation. Sorption of actinides depends strongly on the actual speciation in the groundwater. Investigation of the sorption behaviour under the most realistic conditions attainable is required. A series of Actinide migration experiments have been conducted at the ÄspöHard Rock Laboratory(HRL) in Sweden. The HRL was established in a granite formation for in-situ test on disposal topics. To guarantee most realistic conditions, the experiments have been performed in the in situ CHEMLAB 2 probe. This work is one of the series experiments and described experimental results of sorption and migration for THO and  $^{237}\text{Np}$ . Previous results of these kinds of experiments were reported [1,2].

The objectives of this study are as follows,

To investigate the applicability of retardation coefficient measured in batch test ,

To study the extent of matrix diffusion according to flow rates or contact times.

To validate migration processes by identifying the migration plumes between experiments and simulations for various cases, and

To study the applicability of the variable aperture channel model with the particle tracking method.

### 2. Experimental system

#### 2.1 Groundwater and rocks

For the in situ experiments, the groundwater was connected directly from the CHEMLAB2 probe. The pH was 7.5 and DOC was 42.3mg/l for the water. The Eh values were varied

from +50 mV to -200 mV. Other properties of the groundwater was well described in the reference.[.3] Granite cores were sampled at the boreholes in the Äspö HRL. Specific surface area of the grinded sample was about 1.1 m<sup>2</sup>/g by BET test. The fracture is several mm wide with different layers of K-feldspar, epidote/chlorite, Fe(III)oxide/hydroxide and calcite. Most of the surfaces seem to be covered with hydrothermally grown K-feldspar crystals or epidote but redistribution of quartz is associated with the hydrothermal alteration and it is possible that other parts of the fractures are coated with hydrothermally grown quartz crystals. The core was cut as the length of 150mm and the diameter of 52mm for the migration test.

2.2 Experimental system and procedures

The experimental setup was especially designed like an autoclave type reactor to endure high pressure conditions. A core sample having a single fracture was placed into a cylindrical stainless steel sleeves. The periphery was filled with epoxy resin. The leak tightness was up to 60 bar water pressure. While the water pressure in CHEMLAB2 is about 27 bar. The schematic diagram of the in-situ experimental setup was shown in Fig.1.

Before the in-situ experiment, the preliminary migration experiments using tritiated water (THO) were performed in a glove box under a 99% Ar & 1% CO<sub>2</sub> atmosphere in the laboratory. 0.01 bar of PCO<sub>2</sub> is exceeded the partial pressure at Chemlab2 site by about 10 times. On the other hand, a glove box was installed at the in-situ test site and equipped withan inert gas system restricting oxygen concentration to about 1 ppm. The autoclave was inserted into the drill hole, coupled to the glove box.

For the migration experiment, the actinide cocktail was prepared as described in Table 1 and injected for 10 days with a flow rate of 0.04 ml/h. Afterwards, natural groundwater of the drill hole was pumped. However, a technical problem caused fluctuations in the flow rate. Thus the test was interrupted after 45 days and the setup was fixed. The migration test was continued again at a higher flow rate of 0.3ml/h for 54 days. Afterwards, the core was recovered and opened.

Table. 1 Composition of the actinide cocktail of 50 ml used for the migration experiment

Nuclide	Activity of the cocktail (50 ml) <i>Bq / 50 ml</i>	Impurities <i>Bq / 50 ml</i>	Concentration <i>mol / L</i>
HTO	9x10 <sup>3</sup>		
<sup>237</sup> Np	3.3x10 <sup>3</sup>		1.1x10 <sup>-5</sup>
<sup>242</sup> Pu	1.7x10 <sup>2</sup>	<sup>238</sup> Pu: 38 <sup>239</sup> Pu: 15	9.7x10 <sup>-8</sup>
<sup>243</sup> Am	8.0x10 <sup>2</sup>	<sup>243/244</sup> Cm: 1.5x10 <sup>3</sup>	8.9x10 <sup>-9</sup>

3. Characterization of the aperture and Hydraulic properties

In order to map the aperture distribution in the fracture core, the optical images of the rock slices and the images of X-ray tomography were analysed. The fracture of the core was described as a two dimensional geometric field in the simulation with a variable aperture

channel model. The fracture field was divided by 20 (in the fracture plane) x 31 (in the direction of flow) subsquares reflecting its geometry ; the diameter of 5.2 cm and the length of 15cm. From the scanning image of the fracture at each slice, the aperture value at each subsquare point was calculated. A two dimensional distribution of the aperture in the whole fracture plane was obtained by the Krigging method and plotted with the graphic software, Surfer in Fig.2. The top figure shows a three dimensional contour of the aperture distribution in the fracture and the bottom plane was described as a flat one to figure out the aperture height easily. The plot of z- axis describing aperture values is exaggerated also for easy showing. The middle figure shows two dimensional contour map of the same aperture distribution. The fracture field is well developed and there is no local closed zone except both edges of the inlet face. By summing up the aperture value at each point, the pore volume in the fracture space was obtained as 2.33 cm<sup>3</sup>. And the mean aperture value was calculated 0.031 cm by dividing the pore volume with the geometric surface area of the fracture plane.

The flow system in the core was assumed as a line source-in and a line flow-out system, that is, a line source solution contacts on the surface boundary of the rock core and flow out the opposite side of the fracture boundary. A governing equation and boundary conditions were set for the flow system consisted of 20\*31 subsquares like the finite different meshes. The fluid flow through the fracture was then calculated for a constant flow rate as well as for constant pressure conditions. The volumetric flow rate,  $Q_{ij}$ , at a subsquare may be written as:

$$Q_{ij} = C_{ij} (P_i - P_j) \quad (1)$$

where  $P_i$  is the pressure at node i, Node i implies an index of the ith subsquare in the fracture surface.  $C_{ij}$  is the flow conductance between nodes i and j.

The mass balance at each node may be written as:

$$\sum_j Q_{ij} = \sum_j C_{ij} (P_i - P_j) = E_i \quad (2)$$

where  $E_i$  is the injection rate or elution rate at node i. The subscript j stands for the four facing nodes of surrounding subsquares to node i. By rearranging the above equation for each node, it can be obtained a system of linear equations in the form,

$$[B] [P] = [E] \quad (3)$$

where [B] is a coefficient matrix describing the flow conductance. The matrix [P] is an array describing the pressure distribution and [E] is an array describing net flow rates. Except for the nodes at the boundaries, the pressure at each node can be solved an iteration method. The flow between adjacent nodes can be calculated using equation (2). After obtaining flow vectors at all nodes, solute transport can be simulated in this flow field.

The simulated pressure distributions in the fracture were shown at the bottom figure in Fig.2. The pressure drop between the inlet and the outlet is about 24 dyne/cm<sup>2</sup> when flow rate is 0.04 ml/h. That is, there is only a little pressure drop along the main flow field. The pressure drop at the both edges in the inlet side having very small aperture can be ignored

because it gives little effects on the flow. The pressure drop in the CHEMLAB was measured less than 0.1 bar ( $\sim 105$  dyne/cm<sup>2</sup>) at the sample, which not only over the fracture but also over a 17-20m long 1/16" tube line. The distribution of the pressure shows almost symmetric to the center line of the fracture plane along the longitudinal axes.

#### 4. Migration of the Radionuclides

A two-dimensional random-walk particle tracking algorithm was used to simulate the solute transport through the flow fields. Four transport processes were considered : advection, longitudinal dispersion, diffusion into the rock mass, and sorption. Particle displacements in each time step consisted of an advective displacement based on local velocities calculated using the pressure field, random diffusive displacement, and retardation by sorption. Particles, which are representing the mass of a solute contained in a defined volume of fluid, move through a fracture with two types of motion. One motion is with the mean flow along stream lines and the other is random motion, governed by scaled probability for matrix diffusion and sorption[Washburn,1980]. At the inlet, a certain amount of particles were introduced and distributed at each node between flow channels with a probability proportional to the flow rates. Particles are then advected and retarded by discrete steps from node to node until they reach the outlet node at which point the arrival time is recorded. This procedure is repeated for all the particles to get a stable probability distribution which in turn can be regarded as an elution concentration. The residence time of a particle along each path is obtained as the sum of the residence times in all subsquares through which the particle had passed. The migration plume can be obtained by checking the positions of the particles in the fracture surfaces at a certain time.

##### 4.1 Transport of conservative tracer

The HTO elution curves according to various flow rates in the lab. experiment are shown in Fig.3. The hydraulic properties of the curves were arranged in Table 2. All three experiments were measured by means of a flow through detector. Thus, it has a certain uncertainty in quantifying sample volume because of the residence time of the solution in the detector and the continuous measurements. In order to analyse the elution curves quantitatively, the curves were normalized by summing up the eluted concentrations and volumes. And recovery percentages are assumed as 100 % or 80 % in order to the experimental uncertainty.

Two transport cases are considered in the simulation ; in the first case (S1), tritium transports only by advection along the flow field, and in the other case(S2), the tracer migrates by advection and diffusion through the pores of the fracture surface. The proposed pore diffusivity is  $1.5 \cdot 10^{-10}$  m<sup>2</sup>/s. [4] For this case, the formation factor,  $f$ , has about 0.06 , while it has a value in the range of 0.01 ~ 0.4 in rocks. In this paper it was not tried to get the optimum value of the diffusivity but choose a reasonable value as a measure of comparison.

The normalized experimental and the simulated curves were plotted together in Fig.3. There is no significant difference among the three experimental curves in this flow range. The jumped base lines of the experimental data at the early stages of the elution seems due to remaining tail of previous experiments. In order to check the degree of the matrix diffusion, a theoretical response function (S3) was plotted with the experimental curve (E1) of  $Q=0.26$ ml/h. The S3 was assumed a pulse injection and unlimited matrix diffusion. Hadermann[5]

suggested that the S3 has a functional form as

$$C/C_0 = \text{Const} * t^{-3/2} \quad (4)$$

The S2 shows similar slope to the S3. It means they have same migration trend in spite of their different system conditions. The three experimental curves also approaches to the S2. Thus, it is reasonable assumption that THO diffuses into the rock pore during transporting on the fracture in these flow rates. The fast flow curves, E1 and E2, show a little sharper slope than that of S3, while the slowest curve of  $Q=0.282\text{ml/h}$ , E3, approach to the slope of S3. It implies when the flow is slow, there is much chance to diffuse into the rock pore, Therefore, the in-situ test, the flow rate of  $0.04\text{ml/h}$ , will be given later, may show larger diffusion effect than E3.

The concentrations of the elution curves are summed up with time and plotted as cumulative elution curves as a function of the eluted volume. Because the recovery percentages of the three experiments were not clear, it was simulated its recovery as 80% or 100 % and shown in Fig.8 and 9, respectively. Though the deviation between the experimental and S2 curves in the case of 100 % recovery in Fig.4 is larger than that of 80 %, the slopes of the experimental curves are more similar to 100% case than that to 80%. When the tail and perturbation effects of previous experiments are compensated in the early elution stages, The experimental curves may approach closer to the S2 curve. And it implies that recovery percentage of THO is larger than 80% and close to 100 % in these experiments.

Table 2 Hydraulic properties of the migration system

Flow rate		6.36 ml/h	2.82 ml/h	0.282 ml/h
$l$	$m$	0.15	0.15	0.15
$t_0$	$s$	1448323	3954919	300976840
$u_0$	$m/s$	$(1.040.23) \times 10^{-4}$	$(3.790.88) \times 10^{-5}$	$(5.011.14) \times 10^{-6}$
$\sigma_t^2$	-	1.090	1.088	1.12
$D$	$m^2/s$	$8.48 \times 10^{-6}$	$3.07 \times 10^{-6}$	$4.19 \times 10^{-7}$
$a$	$m$	$8.17 \times 10^{-2}$	$8.08 \times 10^{-2}$	$8.36 \times 10^{-2}$
Pore Volume	$ml$	2.60.6	2.70.6	2.3 0.5
Porosity	%	0.82	0.85	0.72
Peclet Number	-	1.84	1.54	1.79

The elution curve of THO in the in-situ experiment is shown in Fig.5. It shows somewhat different characteristics comparing to the lab. tests. It may due to the different experimental environment between two systems. The experimental curve was normalized using above assumptions and shown as a function of the eluted volume. The transport of THO in the in-situ condition was also simulated with the flow rate of  $0.04\text{ ml/h}$  and pore diffusivity of  $1.5 \times 10^{-10}\text{ m}^2/\text{s}$ . The simulated elution and cumulative curves are also shown together in Fig.5. The simulated curves match each other with the experimental ones reasonably.

#### 4.2 The migration of $^{237}\text{Np}$

remaining concentration of <sup>237</sup>Np in the fracture after migration test is determined by  $\gamma$  -counting and dissolution of the slice. And an average concentration profile over the whole fracture is shown in Fig.6. This profile was obtained by taking into account that in total eluted water was about 210 ml. From the profile the retardation factor,  $R_s$ , is determined using eq.(1) as 243.

$$R_s = \frac{V_w}{V_n} = \frac{\ell_w}{\ell_n} = \frac{Vol}{S_a \cdot \ell_n} \quad (5)$$

Where  $V$  is flow velocity,  $\ell$  is migration length,  $Vol$  is eluted volume of the slolution,  $S_a$  surface area of the fracture, subscript  $w$  &  $n$  are water and nuclides, respectively.

In order to simulate the migration plumes of <sup>237</sup>Np, the following four cases were considered as summarized in the Table 2. The simulation was carried out with the particle tracking method when the water flow rate was 0.04 ml/h and shown as three dimensional plumes as a function of eluted volume[6].

Table 2 Simulation of the migration for sorbing tracers

	Retardation factor, $R_s$	Pore Diffusivity $D_p$ ( $m^2/s$ )	Remarks
Case 1	69	-	Elution peak around 50 ml
Case 2	69	$1.5 \cdot 10^{-10}$	Eluted from 100 ml Widely dispersed
Case 3	243	-	Elution peak around 80 ml
Case 4	243	$1.5 \cdot 10^{-10}$	Similar profile as the experimental
THO	-	$1.5 \cdot 10^{-10}$	Elution peak around 20 ml

In the first case, the radionuclide retards only by sorption with  $R_s = 69$ . The nuclides flow out almost when the water eluted about 50 ml. The case 2 is added the matrix-diffusion process from the case 1. The proposed pore diffusivity is  $1.5 \cdot 10^{-10} m^2/s$  as same as the tritium. It shows much retarding effect than the case 1. The nuclide starts to come out from the water elution volume of 100ml. In the case 3, the radionuclide retards only by sorption as the case 1 but  $R_s = 243$ . The main migration plume comes out when the water eluted about 80 ml. The case 4 is added the matrix diffusion process from the case 3. It shows much retarding effect than the case 3. Its migration plume at 210 ml of the eluted volume shows very similar profile with the experimental one as shown in Fig.7. Thus matrix diffusion process gives a significant retardation and dispersion effect in the migration process comparing to the case of sorption only in this flow system. Therefore, when  $R_s = 243$  and the pore diffusivity is  $1.5 \cdot 10^{-10} m^2/s$ . The migration plume fits very well to the experimental result.

### 5.2.2 Comparison to sorption behavior determined in batch tests

Following relation can be obtained for the retardation coefficient  $R_s$ :

Following relation can be obtained for the retardation coefficient  $R_s$ :

$$R_s = \frac{mass_{sorbed}}{mass_{dissolved}} = \frac{c_0 \cdot K_s \cdot surface_{fracture}}{c_0 \cdot volume_{fracture}} = \frac{K_s \cdot f}{\delta} \quad (6)$$

where,  $C_0$  : dissolved concentration,  $K_s$  : distribution coefficient based surface area,  $f$  : form factor for surface area,  $\delta$  : aperture of the fracture

The form factor for surface area includes deviations of the actual surface and void volume of the fracture from the calculated geometrical properties. Combining the Np sorption data with the information obtained from sorbed Np in the core, a form factor for the surface of 21.5 is calculated. From the batch  $K_s$  data,  $R_s$  value of  $^{237}\text{Np}$  can also be obtained. It is very interesting topic to compare the values secured from the static batch and the dynamic migration test. If the determined values are adopted from eq.(2), such as  $K_s = 0.16\text{cm}$  and  $f = 21.5$ , and  $\delta = 0.031\text{ cm}$ , then  $R_s$  of  $^{237}\text{Np}$  is calculated as 111, which is lower value than the value of 243 obtained from the migration simulation. It may be caused by the difference of contacting time. In the batch test, radionuclides were contacted for 14 days. While in the migration test, they were contacted more than 50 days. The longer contact time gives much chance to diffuse into the pore and to sorb. Thus it will give larger value of  $R_s$  than 111. That is,  $R_s = 243$  from the migration is seemed as a reasonable value.

### Conclusion

The migration of  $^{237}\text{Np}$  through a fractured granite core at in-situ condition showed much retarded effect than expected from the static sorption test. It is interpreted due to difference of the contact time between nuclides and rock fracture. That is, much contact time in migration test shows much retarding phenomena than the batch test. The developed variable aperture channel model was successfully applied in describing the migration of radionuclides in the rock fracture. Results from the migration test and modelling of the transport show that diffusion into the interconnected micropore space in the rock mass has an effect on the retardation, especially for the case of tritium and  $^{237}\text{Np}$ .

### References

1. B.Kinzler, P.Vejmelka, Römer, J., Fanghänel, Th., P.Wilberg, M.Jansson, T.Eriksen ; Swedish-German actinide migration experiment at ÄSPÖ HRL. , 8th Internat.Conf.on Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere (Migration '01), Bregenz, A, September 16-21, 2001, Journal of Contaminant Hydrology 61 (2003) 219- 233
2. J.Römer, Kienzler, B., Vejmekla, P. E.Soballa, A.Gortzen, M.Fuss, Actinide migration experiment in the HRL ÄSPÖ, Sweden: results of laboratory and in situ experiments (Part II). Wissenschaftliche Berichte, FZKA-6770 (Oktober 2002)
3. Moreno L. and Neretnieks I., Flow and nuclide transport in fractured media, J. of Cont. Hydrol. 13 (1993), 49-71
3. P.Vejmelka, Fanghänel, Th., Kienzler, B., Korthaus, E., Römer, J., Schübler, W., Artinger, R., 2000. Sorption and migration of radionuclides in granite (HRL ÄSPÖ, Sweden). For-schungszentrum Karlsruhe, FZKA 6488.

4. C.K.Park, T. T. Vandergraaf, D. J. Drew, and Hahn, P.S., Analysis of the Migration of nonsorbing tracers in a natural fractures in granite using a variable aperture channel model, J. of Cont. Hydrol.26, 97 (1997).
5. J.Hadermann, The Grimsel Migration experiment : integrating field experiments, laboratory nvestigations and modelling, J. of Cont. Hydrol. 21 (1996) 87-100
6. C.K.Park, Ryu,B.H., and Hahn, P.S., Migration characteristics of some chemical species in a granite fracture according totheir chemical properties, Kor. J. of Chem. Eng., 19(5) 765 (2002)

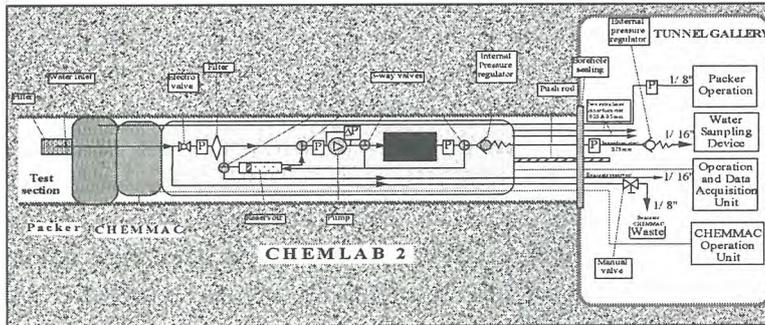


Fig. 1. in-situ experimental setup.

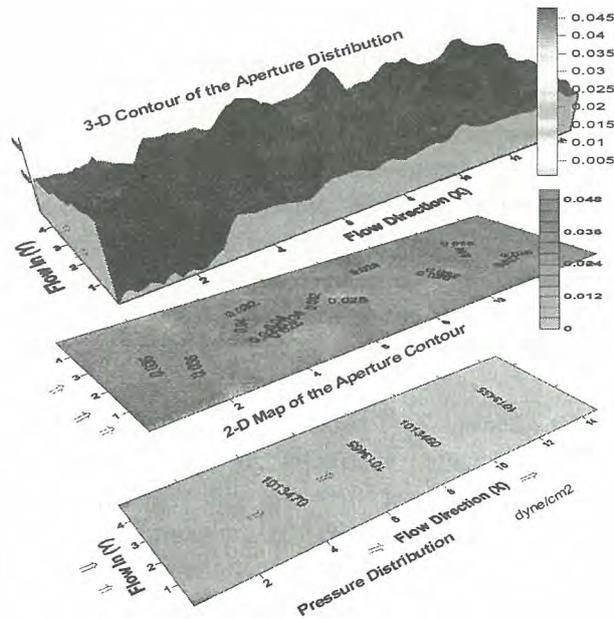


Fig.2 Aperture distribution of the granite core.  
Z axis is exaggerated for easy showing  
 $\Delta P = 24$  dynes/cm<sup>2</sup> between inlet and outlet through the main stream

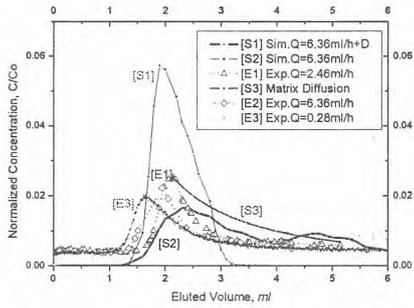


Fig. 3. Comparison of the elution curves of tritium to the simulated

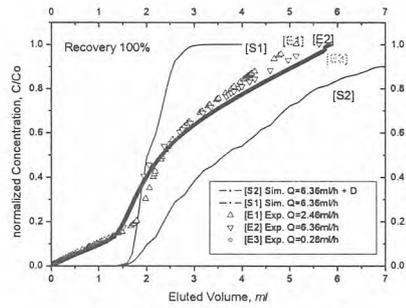


Fig. 4. Cumulative elution curves of tritium when the recovery is 100%.

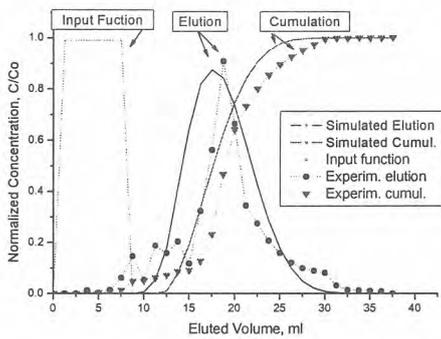


Fig. 5. Comparison of the in-situ elution curves to the simulated

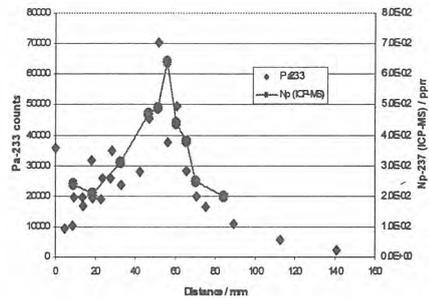


Fig.6. One dimensional Concentration profiles of nuclides in the fracture

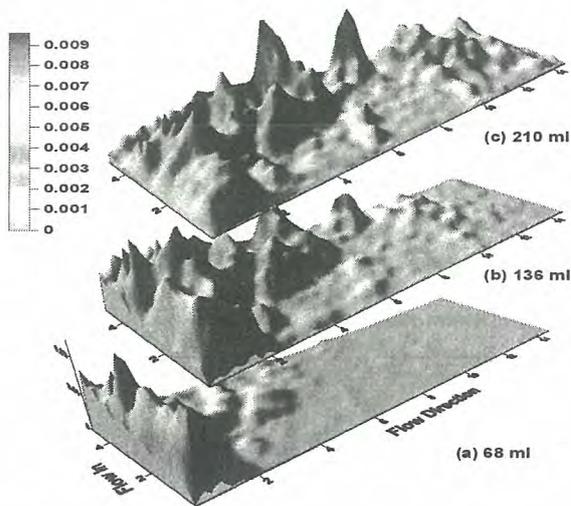


Fig.7 Simulation of the migration plumes of  $^{237}\text{Np}$  with the eluted volume when  $R_s = 243$  with diffusion

# 빈 면

제2-2분과  
방사성폐기물 처분  
(Poster)

# 빈 면

## Long-Term Leaching Test of 200L Cemented Waste Drum Incorporated Spent Filter

Ki-Hong Kim, Young-Geul Ryue, Young-Yong Ji, Kyung-Kil Kwak

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

He-on Kim, Duck-Sin Kim

KHNP Co., Ltd., Radwaste Project Site Office, 139-9 Gajeong-dong, Yuseong-gu, Daejeon

Whan-Gyeong Je

Hanil Nuclear Co., Ltd., 3F, Dongyoung Venturastel, 202-4, Anyang7-dong, Manan-gu, Anyang

The static leach test of spent filter drum produced in Young-Kwang NPP(0.6 mSv/hr) was carried out in a hot cell of the Radioactive Waste Form Characterization Facility (RWFCF) in KAERI. A lid-opened waste drum after decontamination of the drum's outer surface was immersed into a leach vessel, which contained 237 L of deionized water, equivalent to 10 times the surface area exposed in leachant. Deionized water with an electrical conductivity of less than 3.41 mho/cm was used as a leachant. The test temperature was constantly kept at 20°C in the hot cell. A leachate of 500 ml was periodically sampled a through timer-attached solenoid valve during the circulation of the leachate by a low flow rate pump. After an analysis of the radioactivity, an analyzed leachate was refilled into the leaching vessel. The amount of Cs-137 and Co-60 in the leachate was analyzed by  $\gamma$ -ray spectroscopy using a HPGe 25190-P detector. The effective diffusion coefficient of radionuclide of waste form (diameter/height  $\neq$  1) was determined by semi-infinite diffusion model.

The results of the pH and conductivity during 247 days of the leaching test were shown in Fig. 1. The range of pH and conductivity were 7.17 ~ 12.97 and 3.41 ~ 4,950  $\mu$ S/cm, respectively. The pH and conductivity rose sharply in the first leaching day and then rose gently according to the increase of leaching time.

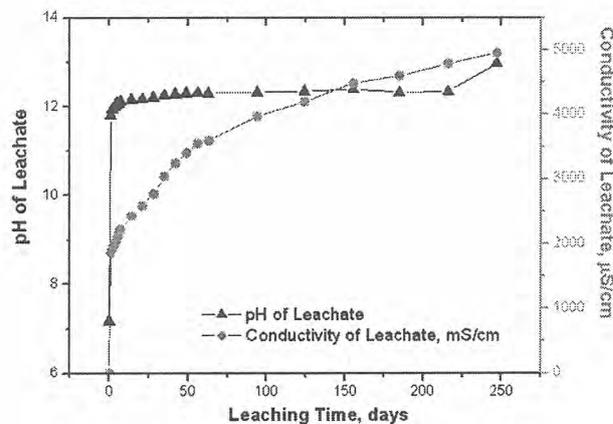


Fig 1. pH and Conductivity of Leachate

The relationship between the activity of Cs-137 in leaching vessel and the square root of leaching time is shown in Fig. 2. The black points represent the activity of Cs-137 in leaching vessel and the red points represent the change of the activity before and after the sampling of leachate. The activity curve (or cumulative fraction leached curve) showed two

modes such as a rapid release and a more slow release before and after the 49 days' leaching time. The leaching mechanism of radioactive nuclides from a cemented waste form was typically interpreted by diffusion as the expectation.

The activity of Co-60 in leaching vessel showed in Fig. 3 according to the function of the square root of leaching time. The black points represent the activity of Co-60 in leaching vessel and the red points represent the change of the activity before and after the sampling of leachate.

The leaching behavior of Co-60 from a cemented waste form was expected similar to that of Cs-137, but as shown in figure 4 the behavior did not show the diffusion mechanism. On the contrary, there were no changes in the activity of Co-60 during the leaching time. It could be the reason that the salt of Co is insoluble and the filter captured the salt of Co, tightly.

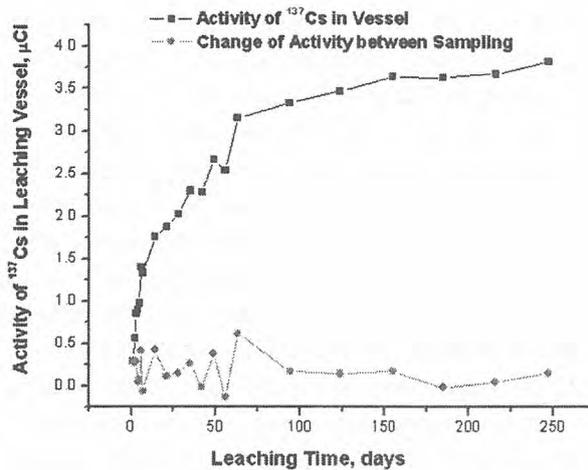


Fig. 2. Activities of Cs-137 in Leaching Vessel

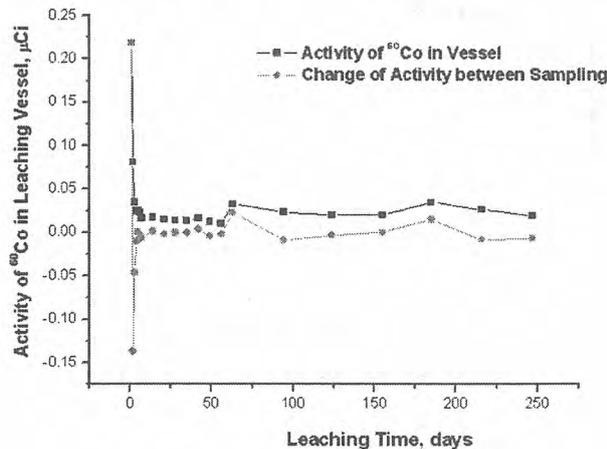


Fig. 3. Activities of Co-60 in Leaching Vessel

## 표준토양과 혼합토양의 수리특성 연구

이계민, 신상화\*, 황주호\*, 박주완\*\*, 김창락\*\*

(주)ACT, 대전광역시 대덕구 신일동 1688-5번지 벤처타운 장영실관 407호

경희대학교\*, 경기도 용인시 기흥읍 서천 1

한국수력원자력(주) 원자력환경기술원\*\*, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

[jmlee@actbest.com](mailto:jmlee@actbest.com)

중·저준위 방사성폐기물 처분시설 성능평가에 있어 토양의 불포화 수리특성 해석은 필수적이라고 할 수 있다. 국외의 경우 이미 불포화대 특성 자료의 데이터베이스를 이미 개발하여 활용하는 상태이나 현재 국내의 경우 포화대의 특성 평가는 비교적 많은 연구가 수행된 반면 불포화대 해석 연구가 미흡한 실정이다. 본 연구에서는 국내 특성에 맞는 대표적인 불포화대에서의 이동특성자료의 실험법을 정립하고 특성 실험을 통하여 불포화대 매질 특성자료를 분석의 기초를 확보하고자 한다.

토양수분 특성 곡선을 구하는 기존 방법에서는 순차적인 평형 상태의 비흡착과 흡착 실험이 포함된다. 포화도에 따른 수리전도도는 정상상태 방법이 주로 이용된다. 그러나 이러한 기존 방법은 수리전도도를 구함에 있어 매우 시간이 많이 소요되는 단점이 있다. 최근 몇 년에 걸쳐 실험소요 시간이 짧고, 실험이 용이하고 비용이 적게 드는 간접적인 실험 방법이 개발되었다. 이러한 방법 중의 하나로서 유출량 변화 측정을 통한 역해석 모델링(inverse modeling)으로 인자들을 평가하는 방법이 있다. 본 연구에서는 모래, 실트, 점토의 표준 토양을 분류하여 그 수리특성을 분석하였으며 각각의 혼합비에 따른 수리특성 또한 실험을 통하여 분석하였다. 실험방법은 단일단계 유출량 실험법(one-step outflow method)을 사용하였으며 고분 봉토의 특성자료와의 비교를 수행하였다. 경상남도 산청군 생초면 어서리의 가야시대 산청 생초 고분군의 토양을 채취하여 분석하였다. 실험자료의 분석은 HYDRUS 1D 소프트웨어를 사용하였다. Hydrus-1D는 Simunek, Van Genuchten, Sejna에 의해 1998년에 개발되어 물의 이동, 열, 복합적인 용질의 이동 등을 1차원적으로 모의하는 프로그램이다. 흐름 방정식은 Richard 방정식을 이용한다.

표준토양을 얻기 위하여 모래는 체가름법에 의하여 #18체(공극 : 1.0 mm)를 통과한 토양을 분류하여 얻었으며 실트는 체가름법에 의하여 #200체(공극 : 75 $\mu$ m)를 통과한 토양을 분류하여 얻었다. 점토의 경우 제부도 갯벌의 해성점토를 채취하여 염분제거 후 #200 체를 통과한 토양을 분류하여 실험을 수행하였다. 해성점토는 유수에 의해 강이나 하천을 지나 파도가 심하지 않는 바다에 고요히 퇴적된 흙으로 입자가 가늘고 두께가 두꺼운 특징이 있다. 바다의 염분에 의해 영성하게 영켜 먼모구조이며 간극비와 압축성이 크고 대단히 연약하여 가벼운 하중만 지지할 수 있다. 군산 이북쪽(서해)의 해성점토는 실트 성분이 우세하고 남해와 동해의 해성점토는 점토 성분이 우세하다고 알려져 있다. 실트와 해성점토를 SEM으로 분석하여 입자분포를 조사한 결과 실트의 경우 점토(입자크기 2 $\mu$ m)이하가 약 20%, 해성점토의 경우 약 28%였다. 표준토양과 표준토양을 일정 비율로 혼합한 혼합 토양에 대한 수리특성 실험을 수행하였고 가야시대 고분의 봉토의 수리특성과의 비교를 다음 그림4~6에 나타내었다.

해성점토의 차수능이 제일 높음을 알 수 있고 모래와 점토의 혼합비가 3:7, 7:3의 경우도 고분봉토에 비해 차수능이 우수함을 알 수 있다. 혼합비 9:1의 경우는 모래 입자간의 공극을 점토가 충분히 메우지 못함으로 인해 모래와 유사한 수리 특성을 나타내었고 혼합비 7:3의 경우 모래 입자간의 공극을 점토가 적절히 메워줌으로 차수능을 향상시킨 것으로 판단된다. 또한 수리혼합비에 따라 실트와 유사한 수리특성을 보유함을 알 수 있다. 일반적으로 #200체를 50%이상 통과하는 토양을 점토로 간주하며 본 연구에서 사용한 표준 실트의 경우 #200체를 100%이상 통과한 토양이

다. 적정 혼합비에 따라 점토와 유사한 차수 특성을 보유할 수 있음을 알 수 있었다.



그림 1. 실트 SEM 분석



그림 2. 해성점토 SEM 분석

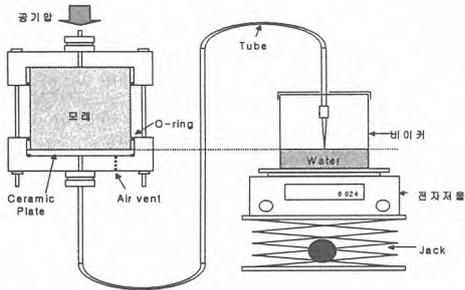


그림 3. 불포화 수리전도도 실험장비 구성도

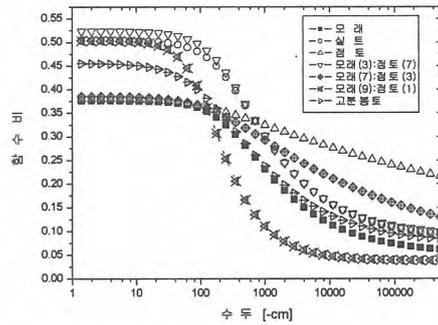


그림 4. 수두-함수비 비교

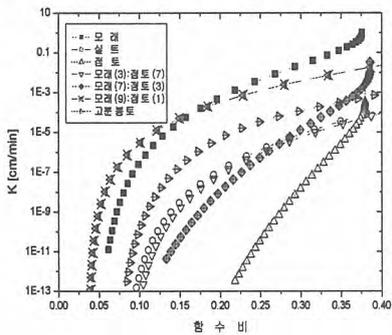


그림 5. 수두-수리전도도 비교

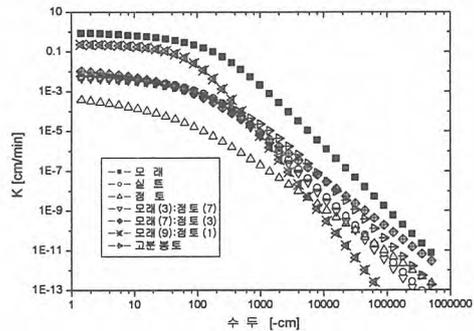


그림 6. 함수비-수리전도도 비교

## 천층처분 안전성평가를 위한 불포화매질에서의 핵종이동 특성 시험 및 분석

신상화\*, 황주호\*, 이재민, 박주완\*\*, 김창락\*\*

(주)ACT, 대전광역시 대덕구 신일동 1688-5번지 벤처타운 장영실관 407호  
 경희대학교\*, 경기도 용인시 기흥읍 서천 1  
 한국수력원자력(주) 원자력환경기술원\*\*, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

처분 안전성 평가를 위해서는 처분시설에서의 이동 경로 및 과정의 개념적 모델을 설정하기 위해 우선적으로 지질학, 수리학 및 지화학적 관련 자료가 필요하다. 현재까지 중·저준위 방사성폐기물 처분은 대부분 천층처분 방식으로 수행되어 왔으며, 이중 대부분은 불포화 매질 조건을 이용하여 처분되었다. 국내 특성에 맞는 대표적인 불포화대에서의 이동특성자료의 실험법을 정립하고 특성 실험을 통하여 불포화대 매질 특성자료를 분석을 통해 개발된 천층처분 확률론적 통합안전성평가코드의 입력자료를 제공하고, 신뢰성 있는 안전성평가 결과의 기초가 되며, 이를 통해 중·저준위 폐기물 처분의 종합 안전성평가 체계 구축 및 실증의 토대가 되도록 하고자 한다.

토양의 중요한 특성 중 하나는 용해된 이온을 다량으로 흡착 및 이온교환할 수 있는 능력을 지닌 것이다. 흡착능을 설명하기 위하여 실험적인 인자를 설정하였으며, 이를 분배계수(distribution coefficient)라고 하며 다음과 같이 정의한다.

$$K_d = \frac{\text{concentration of ionic species on the solid phase}}{\text{concentration of ionic species in the liquid phase}}$$

분배계수는 자연현상을 나타내는 관계식에 이용된다. 이 관계식은 다음과 같다.

$$\frac{v_i}{v_w} = \frac{1}{\left(1 + \frac{\rho_b k_d}{\theta}\right)}$$

$v_i$ 는 흡착핵종의 pore velocity이고,  $v_w$ 는 지하수의 pore velocity이다.  $\rho_b$ 는 토양의 겉보기 밀도이고  $\theta$ 는 부피함수비이다.

방사성핵종, 토양, 지하수 등의 조절에 따라 다양한 변수가 있기 때문에 실험을 통하여 분배계수를 구하는 것은 매우 어렵다. 일반적으로 분배계수 측정에는 회분식 방법과 컬럼 방법의 두가지 방법이 있다. 회분식 방법은 일반적으로 포화상태의 매질에 적용하며 실험 핵종수도 하나로 제한되는 반면 컬럼 방법은 포화 및 불포화 상태에 모두 적용 가능하며 여러 핵종에 대하여 실험을 수행할 수 있다.

아래 그림 1에서 그림 5는 불포화 컬럼 실험 결과로서 다양한 토양 매질에서의 핵종 흡착특성을 나타내고 있다.

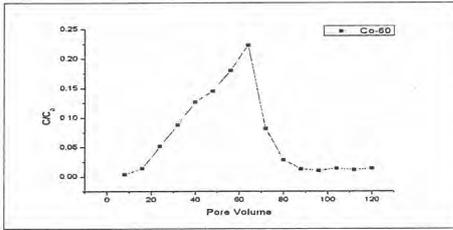


그림 1. 모래질 토양에서의 Co-60 흡착실험

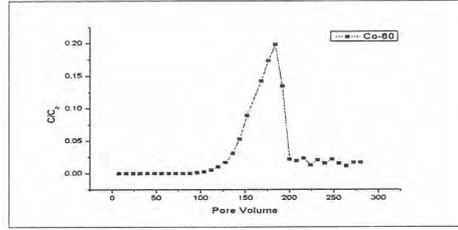


그림 2. 점토질 토양에서의 Co-60 흡착실험

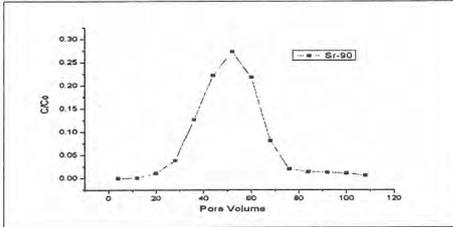


그림 3. 모래질 토양에서의 Sr-90 흡착실험

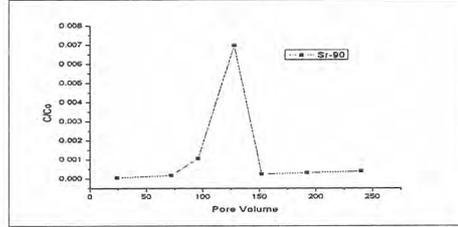


그림 4. 점토질 토양에서의 Sr-90 흡착실험

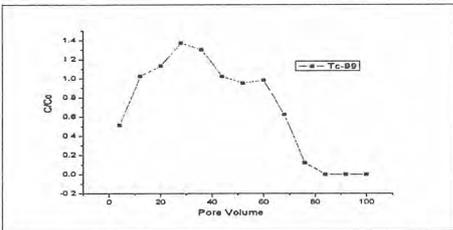


그림 5. 모래질 토양에서의 Tc-99 흡착실험

실험결과 분석을 위하여 STANMOD 소프트웨어의 CXTFIT 모델을 이용하여 분석을 하였으며, 분석을 위한 조건으로 Deterministic nonequilibrium CDE(Mode=2), Resident concentration (third-type input), Reduced time (T), Position (Z) (All parameters except D and V are dimensionless)등을 고려하였다. 아래 표 1과 2는 지연인자를 포화도에 따라 분배계수로 다시 계산한 결과를 나타낸다. 실험 시 포화도는 최대 포화도의 약 76%-81%로 유지하였다.

표 1. 모래질 토양에서의 분배계수( $K_d$ )

핵종	문헌값* (포화기준)	실험값	95%신뢰도 구간	
			Lower	Upper
Co-60	60.00	73.99	45.14	144.57
Sr-90	15.00	48.40	22.70	104.68
Tc-99	0.10	2.32	1.74	8.11

표 2. 점토질 토양에서의 분배계수( $K_d$ )

핵종	문헌값* (포화기준)	실험값	95%신뢰도 구간	
			Lower	Upper
Co-60	550.00	663.69	816.96	929.60
Sr-90	110.00	154.33	111.68	269.41

\* C, Yu, "User's Manual for RESRAD Version 6," ANL/EAD-4, U.S. DOE (2001)

분배계수의 경우 Co-60과 Sr-90 핵종의 경우 문헌값(포화기준)에 비해 다소 높은 값을 나타낼 수 있고, Tc-99핵종의 경우 문헌값(포화기준)에 비해 약 20배 정도의 차이를 나타내는 것을 알 수 있다. 지연인자의 경우 불포화 상태에서 더욱 우수한 물질이동 저지능을 보여주었고, 불포화 상태 토양에서의 물질의 이동이 포화상태 토양에서보다 더 지연됨을 알 수 있다.

표 3. 모래질 토양에서의 지연인자

핵종	문헌값 (포화기준)	실험값	95%신뢰도 구간	
			Lower	Upper
Co-60	169.00	266.60	127.40	405.80
Sr-90	43.00	179.30	64.55	294.10
Tc-99	1.28	8.92	5.87	23.70

표 4. 점토질 토양에서의 지연인자

핵종	문헌값 (포화기준)	실험값	95%신뢰도 구간	
			Lower	Upper
Co-60	1919.75	2730.00	2554.00	2906.00
Sr-90	344.75	596.40	350.00	842.90

## 천층처분 시설 처분덮개의 수리특성 분석을 위한 실험 및 고찰

김수곤, 황주호

경희대학교, 경기도 용인시 기흥읍 서천리 1번지

국내 원자력발전은 1978년 고리 1호기가 최초의 상업 운전을 시작한 이래 지난 28여 년 동안 전력생산의 40% 이상을 담당하며 산업 발전의 기저 역할을 수행하였다. 또한 고유가시대에도 전력을 저렴하고 안정적으로 공급하는 원동력이었다. 하지만 이에 따라 필수불가결하게 방사성폐기물의 발생량 및 누적량 또한 증대되고 있다. 중·저준위 방사성폐기물의 경우 2008년부터 발전부지의 임시저장시설이 포화될 것으로 예측되고 있다. 이에 원자력 산업 전반에서는 천층처분 방식을 포함한 중·저준위 방사성폐기물 처분장의 건설 및 안전성 확보 방안을 다각도로 분석 중이다.

본 연구에서는 처분시설 안전성 확보 방안의 일환으로 핵종이동의 매체가 되는 물과 방사성 폐기물의 접촉을 저지할 수 있는 인공방벽 처분덮개에 사용되는 매질 중 모래, 실트, 점토의 포화수리특성을 파악하기 위한 실험을 수행하였다. 포화 수리전도도 측정을 위하여 변수위법을 이용한 실험 장치를 고안하였고, 한국수력원자력(주) 원자력 환경기술원에서 수행하고 있는 '천층처분 시설의 인공방벽 실증 연구' 실증시설에 사용되고 있는 모래, 실트, 점토 매질을 교란시료로 사용하였다. 또한 단일매질에서의 포화 수리전도도 뿐만 아니라 층 매질에서의 포화 수리전도도를 측정하여 천층처분 시설 처분덮개의 인공 다중방벽 시스템의 안전성을 예측해 보았다.

변수위법은 실트와 점토 등 세립토의 수리전도도 측정에 적당한 실험법으로 압력수두의 압력에 의해 물이 매질을 통해 밀려나가는 정도를 측정하여 Darcy의 법칙에 의해 수리전도도를 계산할 수 있다. 수리전도도의 계산식은 다음과 같다.

$$K = 2.3 \times \frac{\alpha \cdot L}{A \cdot (t_2 - t_1)} \log\left(\frac{h_1}{h_2}\right)$$

Fig. 1에 포화 수리전도도 측정 실험 장치를 도식화하여 나타내었고, Fig. 2은 실제 실험 장치를 보여준다.

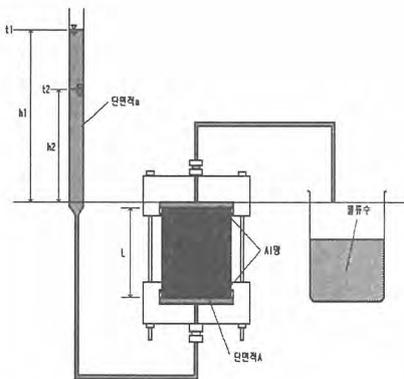


Fig. 1. Composition of experiment equipment

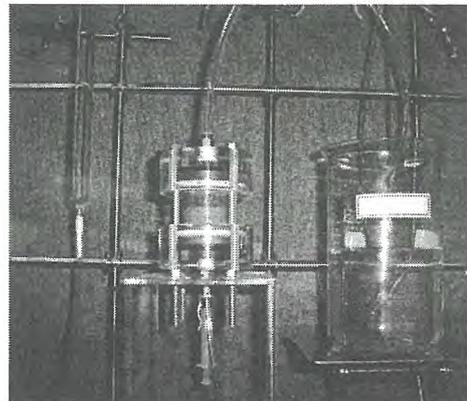


Fig. 2. Experiment equipment

각 매질의 수위 차에 의한 수리전도도의 변화를 Fig. 3에 나타내었다. 실험 과정에서 세립질 토양의 수리특성 파악에 유리한 변수위법을 사용하여 상대적으로 조립질인 모래의 실험 결과는 큰 오

차가 발생하였지만, 반대로 세립질인 실트와 점토에서의 데이터는 문헌값들과 비교하여 매우 근접한 수치를 보였다. 실트에 비해 점토가 처음에는 큰 수압으로 인해 큰 투수성을 나타내었지만, 수위차가 줄어들수록 본래의 불투수성이 나타났다. 수위 차가 100mm일 때, 점토의 수리전도도는  $4.5 \times 10^{-6}$  cm/sec로 문헌값인  $10^{-6}$  cm/sec와 비교하여 큰 값을 나타내었다. 이는 많은 시간이 소요되면 실험 온도나 습도, 증발량의 변화, 진동 등의 여러 오차원들로 인해 부정확한 데이터를 얻을 수밖에 없는 상황에 수위 차 100mm에서 실험을 중단했기 때문인데, 수위차가 더 작다면 더 정확한 데이터를 얻을 수 있다.

Fig. 4 에는 층 매질에서의 수위 차에 대한 수리전도도의 변화를 나타내었다. 모래와 점토로 구성된 층토와 실트, 점토로 구성된 층토가 비슷한 투수성을 보여주고 있다. 자세히 보면 예상과는 달리 투수성이 큰 모래와 점토가 층을 이루고 있는 매질이 점토 매질만의 투수성보다 더 작은 투수성을 보이는 것을 알 수 있다. 이는 두 매질 사이에 Wick effect로 인한 불투수성이 나타난 것으로, 이를 이용하여 처분토에 설계 시 배수층과 불투수층의 구성이 가능하다.

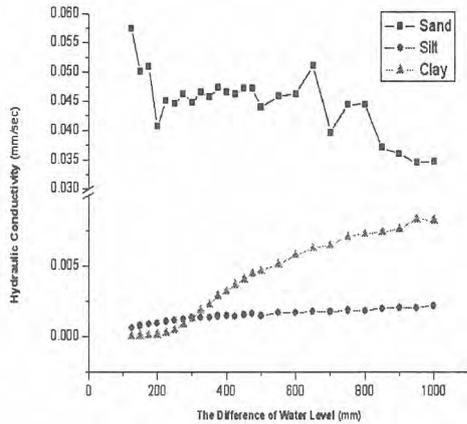


Fig. 3. Saturated hydraulic conductivity in uniform soil columns.

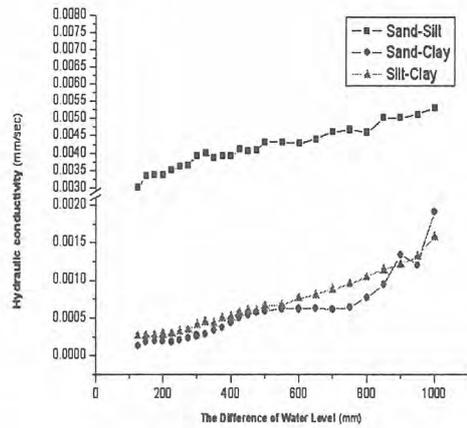


Fig. 4. Saturated hydraulic conductivity in layered soil columns.

포화 매질의 수리특성 실험결과 본 실험 방법의 적용이 가능하며 이를 통하여 현재 한국수력원자력(주) 원자력 환경기술원에서 실시하고 있는 '천층처분 시설의 인공방벽 실증 연구'에 대한 수리 특성 파악이나 처분장 건설시 안전성 예측에 도움이 될 것으로 기대된다. 본 실험에서는 변수 위법 만을 이용한 포화 수리전도도 측정 실험을 실시하였지만 모래 이상의 조립질 매질의 수리특성을 보다 정확히 파악하기 위하여 정수위법을 함께 이용한 포화 수리전도도의 측정 실험이 필요하다. 또한 현실성을 고려하여 포화대가 아닌 불포화대에서의 수리전도도 측정 실험도 수행해야 한다.

## Assessment on Reliability of Scaling Factor depending on the Size of the Database for the Activity of Radionuclides

Sang-Chul Lee, Ki-Ha Hwang and Kun-Jai Lee

Korea Advanced Institute of Science and Technology, 373-1, Gusong-dong, Yusong-gu, Daejeon

Tae-Wook Kim, Kyoung-Doek Kim and Myung-Jae Song

Nuclear Environment Technology Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

Final disposal of radioactive waste generated from Nuclear Power Plant (NPP) requires the information of the radionuclides inventories in waste package by national regulations and guidelines. However, the direct assessment through the destruction of the drummed radioactive waste for all stored drums is difficult economically and time-consuming. Thus it is well-known to rely on the indirect method by which the activities of the Difficult-To-Measure (DTM) nuclide are estimated using the correlations of the activities between the Easy-To-Measure (Key) nuclide and the DTM nuclide with the measured activities of the Key nuclide, so called the scaling factor method. Generally, the scaling factor is determined by the statistical process for the database for the each activity of the nuclides in waste stream sample. Therefore the reliability of the scaling factor determined depends on the size of the database for the activity of radionuclides. The assessment of the scaling factor depending on the size of the database is conducted by the blind test in which the number of data used for the calculation of scaling factor is increased as the number of 10, 20, 40, 80, 160. Figure I shows the procedure of the blind test. For the assessment, the data in EPRI-4037 is used, and  $^{63}\text{Ni}$  is selected as DTM nuclide and  $^{60}\text{Co}$  as Key nuclide. The assessment is conducted 5 times per each size of the database and the following formula is used the criterion of the assessment.

$$\text{Relative discrepancy (\%)} = \begin{cases} \frac{A_{\text{predicted}}}{A_{\text{measured}}} \times 100 & (\text{if } A_{\text{predicted}} > A_{\text{measured}}) \\ \frac{A_{\text{measured}}}{A_{\text{predicted}}} \times 100 & (\text{else}) \end{cases}$$

$A_{\text{predicted}}$  : Predicted activities of DTM nuclides

$A_{\text{measured}}$  : Measured activities of DTM nuclides

Figure II ~ VI show the box plot of the relative discrepancy depending the size of the database. As the size is larger, the value of the relative discrepancy is lower, and the deviation of it is shortened. It is concluded that the reliability of scaling factor is increased as the increase of the size of the database for the activity of radionclides.

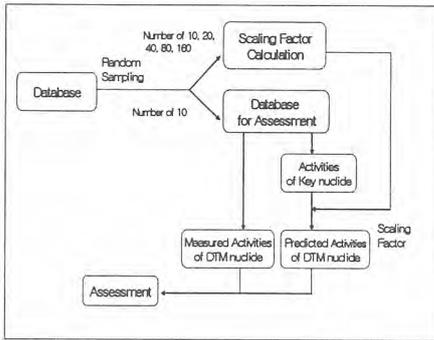


Figure I. Procedure of Blind Test

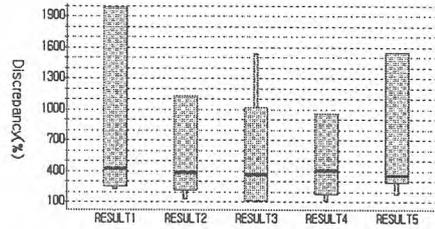


Figure II. Box Plot of Relative Discrepancy of Blind Test where Number of 10 Data are used for Scaling Factor Calculation

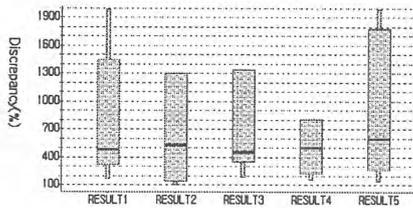


Figure III. Box Plot of Relative Discrepancy of Blind Test where Number of 20 Data are used for Scaling Factor Calculation

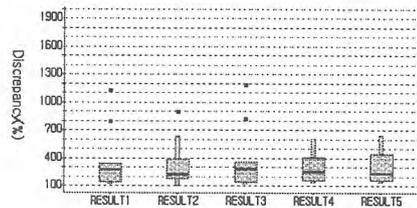


Figure IV. Box Plot of Relative Discrepancy of Blind Test where Number of 40 Data are used for Scaling Factor Calculation

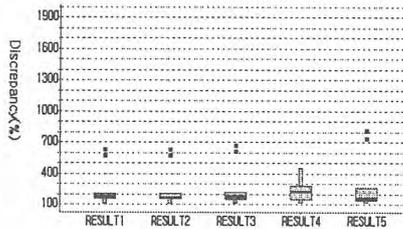


Figure V. Box Plot of Relative Discrepancy of Blind Test where Number of 80 Data are used for Scaling Factor Calculation

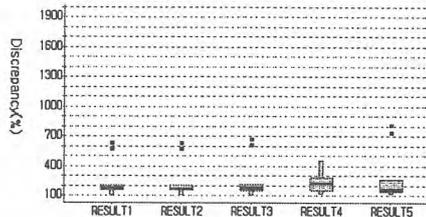


Figure VI. Box Plot of Relative Discrepancy of Blind Test where Number of 160 Data are used for Scaling Factor Calculation

## Chemical leaching of radioactive cement and paraffin waste form generated from NPPs

### 원전 발생 고화체 폐기물 핵종분석을 위한 침출 조건

이정진, 안홍주, 표형열, 전종선\*, 김도양, 지광용

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

\*(주) 액트, 대전광역시 대덕구 신일동 1688-5번지 벤처타운 장영실관 402호

#### Abstract

Cement and paraffin waste form were prepared with a acid extraction method for the analysis of radionuclides generated from nuclear power plants. The acid extraction method was carried out with HNO<sub>3</sub>-HCl acid. At first, we compared the method with the microwave acid digestion method using SRM. The solutions of decomposed SRM were then analyzed by AAS and ICP-AES. The acid extraction method had shown good results as microwave acid digestion method. This method provided recovery values greater than 80% for metallic elements.

**Key words** : Radioactive cement waste form, Radioactive paraffin waste form, Acid extraction method, Microwave acid digestion method

#### 요약

원자력 발전소에서 발생한 시멘트 또는 파라핀 고화체 중의 핵종분석을 하기 위해서는 시료의 용액화가 필요하다. 이를 위하여 산 침출법과 극초단파 산분해법을 이용하여 SRM(standard reference material)을 용액화한 다음 AAS와 ICP-AES를 사용하여 용액 속의 원소들을 분석 비교하였다. 완전 용액화가 가능한 극초단파 산분해법으로 처리한 결과와 일치하는 산 침출조건을 제안하여 많은 양의 시료를 한 번에 처리할 수 있는 산 침출법으로 방사성 고화체 시료 중의 비휘발성핵종분석을 위한 고화체 용액화 방법을 확립하였다. 방사성 고화체의 산 침출시마다 Re를 첨가하여 시료 전처리 단계에서의 회수율은 80% 이상으로 나타났다.

**중심 단어** : 시멘트고화체, 파라핀고화체, 산 침출법, 극초단파 산분해법

#### 서론

핵종분석에 있어서도 화학분석에서와 같이 시료의 전처리는 매우 중요하다. 기기를 이용하여 시료의 주성분 또는 미량성분을 분석하기 위해서는 시료를 산분해하여 용액화 하는 것이 필수불가결한 과정이다. 이 시료 전처리과정이 시료분석 전과정 중에서 가장 시간이 많이 소요되는 과정이 매우 많다. 따라서, 많은 분석기기가 발전하여 극미량 원소들을 측정할 수 있으나 분석기가 필요로 하는 시료의 전처리가 매우 필요하다[1]. 원자력 발전소에서 발생된 방사성폐기물에 포함된 핵종 중 특히 알파 또는 베타방출 핵종분석을 위해서는 방사성폐기물의 용액화가 필수적이다. 일반적으로 시료 용액화를 위한 과정에서 고려되어야 할 사항들은 시료의 완전 용액화, 휘발성원소들의 휘발방지, 외부조건에 의한 시료오염, 낮은 바탕값, 그리고 신속성을 고려해야 하며, 시료 전처리방법으로는 전통적인 혼합산과 열판을 이용한 침출법, 알카리 용제를 사용하여 시료를

고온 용융시키는 용융법, 압력용기를 이용하는 가압용기 분해법, 최근 이용되고 있는 극초단파를 이용한 산분해법 등이 있다.[2] 이러한 여러 전처리 방법 중에서 시멘트 또는 파라핀 고화체와 같이 방사능이 낮아 핵종분석이 어려운 시료는 보다 많은 양의 시료를 처리할 수 있는 혼합산 침출법을 선택해야 한다. 이를 위하여 SRM 시멘트 표준물질은 혼합산 침출법과 극초단파 산분해법[3]을 이용한 용액화 방법으로 SRM 시멘트 표준물질을 용액화한 다음 AAS와 ICP-AES를 이용하여 SRM 시멘트 표준물질 용해 용액 속의 원소들의 함량을 측정하여 두 방법간 측정결과를 비교 검토하였다. 시료를 완전 용액화 할 수 있는 극초단파 산분해법으로 처리한 결과와 일치하는 혼합산 침출조건을 수회 실험을 통하여 제안하였고, 5 ~ 10 g 정도의 시료를 한 번에 처리할 수 있는 혼합산 침출방법을 이용하여 방사성 고화체 시료 중의 비휘발성핵종분석을 위한 고화체 용액화 방법을 확립하였다. 방사성 고화체 시료 산 침출 시 마다 Re 을 첨가하여 시료 전처리 회수율을 측정하였다.

## 실험

### 1. 기기

고화체 시료의 용액화는 극초단파 산분해 장치(Milestone Model Ethos Plus)와 열판을 사용하고, 용해용액의 성분원소 측정을 위해서는 AAS(Perkin Elmer Model 3100)와 ICP-AES(JOBIN YVON Model JY 50 P, France)를 사용하여 분석하였다. 또한 파라핀 고화체의 용해용액 중의 잔유유기물 함량을 측정하기 위해 TOC(Total Organic Carbon analyzer, Shimadzs)를 사용하였다.

### 2. 시료, 시약 및 표준용액 제조

원전발생 이온교환수지-시멘트고화체와 농축폐액-파라핀고화체 모의시료는 원전에서 사용하는 것과 조성이 동일한 시멘트와 파라핀을 일정 비율의 이온교환수지(IRN-150LC)와 붕산(99.8% 미세분말 형태)을 혼합한 것으로 원자력연구소의 폐기물고화시설로부터 제공받았다. 실제 방사성폐기물 시료도 폐기물고화시설에서 고화체 물성을 측정하기 위하여 연구소에 보관 중인 고화체 드럼의 상, 중, 하부를 일부 채취하여 사용하였다. 고화체 용해시 사용한 산은 HNO<sub>3</sub>(Fisher, Trace Metal Grade, 70%), HCl(Merck, GR, 32%), 및 HF(Merck, Pro analysis, 48%)를 정제하지 않고 사용하였다. 성분분석을 위한 표준물과 회수율 측정을 위한 첨가원소는 ICP-AES용 표준용액(Spex plasma standard, 1000 µg/mL, 2% nitric acid solution)을 사용하였다.

### 3. 실험방법

#### 3.1 유기용매를 이용한 파라핀 용해

파라핀 1 g에 유기용매(CCl<sub>4</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>, Ether) 10 ~ 20 ml를 첨가하여 녹인 다음 증류수 10 ml를 첨가하고 흔들어서 주었다.

#### 3.2. 파라핀시료 전처리

파라핀 0.1 ~ 0.2 g을 취해 극초단파 산분해 장치에 넣고 혼합산(8 ml HNO<sub>3</sub> + 2 ml H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>)을 가한 후 산분해한 용액과 시료 1 ~ 2 g 정도를 비이커에 넣고 1 M HNO<sub>3</sub> 20 ml를 가하고 60°C에서 2시간 반응시킨 후 실온으로 식힌 다음 파라핀을 제거한 산 용액과 유기용매(CCl<sub>4</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>)로 처리한 다음 수용액을 첨가하여 잘 흔들어서 준 다음 수용액을 취해 각각의 용액 속에 존재하는 유기물 함량을 알아보기 위하여 TOC 측정하였다.

#### 3.3 모의 파라핀 시료중의 붕산 함량 분석

모의 파라핀고화체를 3등분하고 각각의 상, 중, 하에서 0.1 g을 4개씩 취해 극초단파극 산분해 장치에 넣고 혼합산(8 ml HNO<sub>3</sub> + 2 ml H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>)과 함께 산분해한 다음 2차 증류수를 사용하여 최종 용액의 부피를 20 ml로 한 용액과 파라핀 1 g을 20 ml 1 M HNO<sub>3</sub>용액에 넣고 침출한 용액을 ICP-AES로 용액 중의 붕산함량을 측정하였다.

### 3.3 모의 시멘트 시료의 전처리방법 간 비교

모의 시멘트고화체 0.1 g을 취해 혼산(10ml HCl + 2ml HNO<sub>3</sub> + 2ml H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> + 0.5ml HF)를 첨가하고 극초단파 산분해 장치로 산분해한 용액과 모의 시료 10 g을 취해 비커에 넣고 혼산(25ml HCl + 75ml HNO<sub>3</sub> + 2ml H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> + 0.5ml HF)을 가한 후 열판 위에서 60℃로 5시간 산 침출 시킨 용액의 성분원소를 ICP-AES로 측정하여 비교하였다.

### 3.4 SRM 1880a 포틀랜드시멘트의 전처리 혼산에 따른 비교

SRM 1880a 포틀랜드시멘트 0.1 ~ 0.5 g을 산조성에 변화를 주어 극초단파 산분해법을 이용하여 용액화한 다음 ICP-AES로 용액 중 원소의 함량을 측정함으로써 SRM 1880a 포틀랜드시멘트의 검정값과 비교하였다.

### 3.5 방사성 시멘트고화체의 전처리방법에 따른 비교

방사성 시멘트고화체 시료 5 g에 혼산(15 ml HCl + 20 ml HNO<sub>3</sub>)을 첨가하고 80 ~ 90℃의 열판 위에서 산 침출하여 얻은 용액과 동일 시료를 극초단파 산분해 장치로 산분해하여 완전히 용해시킨 용액의 성분원소를 ICP-AES를 이용하여 액속의 원소들을 측정하였다.

### 3.6 방사성 고화체 파라핀시료에 핵종분석원소 첨가 후 전처리용액 분석

방사성 파라핀고화체를 산의 조성에 변화를 주어 산 침출법으로 전처리한 용액과 극초단파 산분해법으로 처리한 용액 내의 B, Fe, Ni 및 Sr를 ICP-AES로 측정하였다.

## 결과 및 고찰

### 3.1 유기용매를 이용한 파라핀 용해 결과

세 가지의 유기용매(CCl<sub>4</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>, Ether)에서 파라핀은 밝게 용해되었지만, 파라핀을 제외한 나머지 원소를 수층으로 분리하기 위해 증류수를 첨가하여 흔들어 주면 CCl<sub>4</sub>만이 맑은 수층으로 분리되는 것을 확인할 수 있었다. 이는 파라핀고화체의 전처리 시 파라핀 성분만을 유기층에 남기고 수층으로 무기성분만을 분리할 수 있는 것을 나타낸다.

### 3.2. 파라핀시료 전처리 결과

표 1에 나타낸 TOC 측정 결과로부터 1 M HNO<sub>3</sub>에서 침출시켜 전처리한 경우에 유기물 함유량이 가장 적게 나타나는 것을 알 수 있었다. 극초단파 산분해 장치와 유기물의 분해를 위해 질산과 과산화수소를 이용하여 모의 파라핀고화체를 처리한 결과 맑은 용액을 얻었지만 일부 파라핀이 완전히 분해되지 않고 단량체로 존재하는 것으로 확인되었다. 이 결과로 파라핀고화체는 혼산으로 파라핀 내의 무기성분만을 산으로 침출하는 방법이 수층에 유기물 잔유량이 적어 전처리용액을 이용하여 핵종 분리시 적당함을 알 수 있었다.

### 3.3. 모의 파라핀고화체 중의 붕산 함량 분석 결과

극초단파 산분해 장치를 이용하여 산분해한 용액과 산 침출법에 의해 전처리한 용액 내에 존재하는 성분원소의 함유량이 동일하게 나타났다.(표 2) 이는 3.2. 결과와 마찬가지로 산 침출법을 이용하여 전처리할 경우 파라핀 내에 함유된 무기원소 침출에 문제없음을 알 수 있었다.

### 3.4 모의 시멘트고화체의 전처리 방법에 따른 비교 결과

SRM 1880a 포틀랜드시멘트와 모의 시멘트고화체를 극초단파 산분해법과 산 침출법을 이용하여 전처리한 용액의 성분원소를 분석한 결과는 표 3에 나타낸 것과 같이 성분원소의 함량이 거의 비슷하게 나타났다. 이로부터 1회 처리량을 5 ~ 10 g 까지 증가시킬 수 있는 산 침출법을 사용하여 전처리하는 것이 가능하다는 것을 알 수 있었다.

### 3.4 SRM 1880a 포틀랜드시멘트의 전처리 시 산조성에 따른 성분원소 비교 결과

산조성에 변화를 주고 극초단파 산분해법을 이용하여 녹인 다음 용액 중의 SRM 1880a 검정값과의 비교를 위해 ICP-AES로 측정한 결과 표 4와 같이 인산, 염산, 질산 및 불산을 포함한 혼산 처리 경우 SRM 1880a의 검정값과 원소들의 측정결과를 P를 제외한 나머지 원소들은 검정값의 90% 이상으로 나타났다. 그러나, 시료 전처리 후 핵종분리를 위해 용액의 매질을 전환할 때 P는

염을 생성시키기 때문에 염산과 질산만을 사용한 산 침출법이 시멘트 고화체의 전처리 방법으로 적절함을 알았다.

### 3.5 방사성 시멘트고화체의 전처리방법에 따른 비교 결과

방사성 시멘트고화체를 산 침출법으로 전처리하여 얻은 용액과 동일한 시료를 극초단파 산분해 장치로 완전히 용해시킨 용액을 ICP-AES로 용액 속의 원소를 측정된 결과 표 5와 같이 80% 이상의 회수율을 얻었다.

### 3.6 방사성 파라핀고화체의 전처리용액 분석 결과

방사성 파라핀고화체를 산의 조성에 변화를 주어 산 침출법으로 전처리한 용액과 극초단파 산분해법으로 처리한 용액을 ICP-AES로 용액 속의 B, Fe, Ni 및 Sr을 측정된 결과는 표 6과 같이 극초단파 산분해법으로 완전 용해한 용액의 분석 결과와 80%이상 일치하는 것으로 나타났다. 이 결과로 방사성 파라핀고화체 시료 5 g은 10 ml 질산과 20 ml 염산을 사용하는 산 침출법을 적용하는 것이 시료 전처리에 적합하다는 것을 알 수 있었다.

## 결론

방사성 시멘트 또는 파라핀고화체 중의 핵종분석을 위해 적합한 시료 전처리방법을 SRM 1880a 포틀랜드시멘트와 모의 고화체 시료를 이용하여 다각적으로 모색하였다. 혼합산 침출법과 극초단파 산분해법으로 전처리한 용액의 성분원소를 AAS와 ICP-AES를 이용하여 상호비교 분석하였고 이로부터 혼합산 침출법을 사용하는 것이 방사성고화체의 전처리 방법으로 적합한 방법임을 알았다.

## 참고 문헌

1. Alice M. Essling, Edmund A. Huff, and Donald G. Graczyk, "Innovative methods for inorganic samples preparation" ANL/ACL-92/1, (1992) 1-32.
2. D. N .Papadopoulou, G. A .Zachariadis, A. N. Anthemidis, N. C. Tsirliganis, J. A .Stratis, "Microwave-assisted versus conventional decomposition procedures applied to a ceramic potsherd standard reference material by inductively coupled plasma atomic emission spectrometry" Analytica Chimica Acta, 505 (2004) 173-181.
3. EPA method 3051A, "Microwave assisted acid digestion of sediments, sludges, soils, and oils" revision Jan., 1998, 1-24.

Table 1. TOC results according to sample preparation methods

Methods for sample preparation		TOC result (average ± RSD %)
Closed-vessel microwave acid digestion		7.7 ± 13.5
extraction-1M HNO <sub>3</sub>		0.02 ± 54.8
Organic solvent	Chloroform	35.2 ± 8.5
	Benzene	2.4 ± 10.5

Table 2. Amount of boron in simulated paraffin waste form

Method		Amount of B (average ± % RSD, n=4)
Microwave digestion	Upper	75.6 ± 3.1
	Middle	78.1 ± 2.3
	Lower	75.2 ± 3.3
Acid extraction	Middle	78.6 ± 2.5

Table 3. Result according to sample preparation method for simulated cement waste form

	SRM 1880a portland cement			Simulated cement waste form		
	Microwave digestion	Acid extraction		Microwave digestion	Acid extraction	
sample (g)	0.1	1	10	0.1	1	10
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	6.3 ± 3.3	5.3	4.5	3.4 ± 3.1	2.9	2.9
CaO	46.4 ± 3.3	39.8	33.6	44.1 ± 1.5	36.5	37.8
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.2 ± 2.1	1.8	1.6	2.1 ± 3.4	1.8	1.9
K <sub>2</sub> O	0.9 ± 4.2	0.7	0.6	0.7 ± 7.0	0.6	0.6
MgO	3.2 ± 2.3	2.9	2.5	2.2 ± 3.3	1.9	2.0
Mn <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.2 ± 2.4	0.3	0.1	0.2 ± 3.5	0.3	0.1
Na <sub>2</sub> O	0.1 ± 1.9	0.1	0.1	0.1 ± 4.6	0.1	0.1
SiO <sub>2</sub>	21.2 ± 3.4	-	-	13.4 ± 1.2	-	-
TiO <sub>2</sub>	0.4 ± 2.0	0.2	0.1	0.2 ± 1.7	0.2	0.1

Table 4. Recovery of constitute according to acid composition of SRM 1880a portland cement

Acid composition, Recovery (% , average ± STD, n=4)							
HCl	4.81 M			HCl	4.81 M		
HNO <sub>3</sub>	1.26 M			HNO <sub>3</sub>	1.26 M	HCl	4.81 M
H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub>	1.18 M			HF	0.56 M	HNO <sub>3</sub>	1.26M
HF	0.56 M						

Al	95.5 ± 1.0	88.2 ± 7.4	100.0 ± 1.9
Ca	97.6 ± 1.0	94.3 ± 1.3	96.0 ± 3.3
Cr	154.8 ± 1.7	100.7 ± 2.5	103.0 ± 2.7
Fe	108.4 ± 1.0	97.6 ± 0.4	101.0 ± 1.8
K	80.7 ± 1.2	101.8 ± 1.0	103.8 ± 0.2
Mg	107.2 ± 1.1	93.0 ± 1.0	97.8 ± 1.5
Mn	109.6 ± 1.0	96.0 ± 1.0	105.6 ± 1.9
Na	92.7 ± 2.9	110.9 ± 1.1	120.2 ± 3.8
P	95.5 ± 1.0	115.0 ± 9.1	97.5 ± 3.3
Si	91.9 ± 4.1	78.1 ± 7.2	0.35 ± 0.2
Sr	123.9 ± 1.7	91.0 ± 3.1	107.2 ± 3.1
Ti	106.4 ± 5.3	106.3 ± 1.8	93.7 ± 6.9

Table5. ICP-AES result according to sample preparation method for simulated cement waste form

	Microwave digestion	Acid extraction	extraction (%)
Al	14.3 ± 0.4	11.7 ± 4.2	81.8
Ca	234 ± 3.5	184 ± 3.1	78.6
Fe	10.7 ± 0.2	9.1 ± 0.2	85.0
Mg	8.7 ± 0.2	7.5 ± 0.1	86.2
Re	3.0 ± 0.1	2.5 ± 0.1	83.3

Table 6. ICP-AES result according to sample preparation method for simulated paraffin waste form

		B	Fe	Ni	Sr
Microwave digestion (mg/g ± % RSD, n = 4)		124 ± 17	0.38 ± 17	0.033 ± 17	0.018 ± 20
Acid extraction	HCl 10 ml HNO <sub>3</sub> 20 ml	113(91%)	0.35(88%)	0.026(80%)	0.017(94%)

## Recovery of C-14 in the Cement Waste Form

### 농축폐액 시멘트 고화체로부터 C-14 회수 특성

Hong-JooAhn, Jeong-JinLee, Hyung-YealPyo, Sun-HoHan, and Kwang-Young Jee

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

안홍주, 이홍래, 이정진, 표형열, 한선호, 지광용

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

#### Abstract

According to the nuclear safety regulation policy including the administration of radionuclides in low level radwastes, the evaporator bottoms were mixed with cement to form a stable solidification for identifying the recovery possibility of the C-14. The chemical oxidation method was applied for the extraction of C-14 from the cement waste form. The emitting beta ray of the C-14 extracted from the radwastes was measured with the liquid scintillation counter and calculated by using the quenching correction curves. Only the beta emitting radioactive nuclides of the C-14 in the radwastes was showed the radioactivities with the range of  $2.7E+00 \sim 3.07E+02$  Bq/g.

**Key word** : C-14, Cement Waste Form, Radioactive Waste

#### 요약

중저준위 방사성폐기물의 핵종 관리를 포함한 안전 규제 정책에 따라 핵종 유출을 방지하고 제조된 고화체로부터 C-14의 회수율을 알고자 국내 원자력 발전소에서 발생하는 중 저준위 방사성 폐기물 중 농축폐액을 시멘트로 일정시간 고화시켜 시료를 준비하였다. 이들 시멘트 고화체는 화학적 산화법을 적용하여 C-14를 분리하였으며, 화학적 분리된 C-14는 액체섬광계수기를 이용하여 방출되는 베타선을 측정하였고, 소광보정 곡선을 이용하여 방사능을 측정하였다. 또한 원전에서 제조된 시멘트 고화체를 동일한 방법으로 C-14를 정량하였으며, 그 방사능 결과는  $2.7E+00 \sim 3.1E+02$  Bq/g의 범위로 분리 검출되었다.

**중심단어** : 탄소-14, 시멘트 고화체, 방사성폐기물

#### 1. 서론

국내 원자력 산업은 1970년대 말부터 고리원전을 시작으로 국가 산업 발전과 비례하여 방사선 및 방사성동위원소의 이용이 큰 폭으로 늘어나고 그 이용분야가 더욱 다양화, 고도화되는 추세에 있지만, 국내 원자력 산업이 확대되면서 방사성 폐기물의 안전한 관리 및 최종 처분 문제는 국가적 현안으로 대두되고 있는 실정이다. 국내 원전은 2004년말 기준으로 64,213드럼의 중저준위 방사성폐기물을 지하 저장고에 보관중이며, 2008년부터는 울진원전을 시작으로 방사성폐기물이 포화 상태에 이를 것으로 예상되고 있다. 2004년 말 이들 중저준위 방사성폐기물의 핵종 관리를 포함한 안전 규제에 관한 초안이 작성된 이후 원자력안전전문분과위원회의 검토와 함께 원자력 안전위원

회의 의결을 거쳐 책임있는 중저준위 방사성폐기물 안전규제를 통해 국민이 안심할 수 있도록 하는 기본 원칙을 수립하였고, 원자력안전규제정책에 관한 세부 사항이 추진 중에 있다[1].

중저준위 방사성폐기물들은 주로 고체폐기물이 대다수로서 농축폐액, 폐수지, 폐필터, 잡고체 등으로 크게 구분되고 있으며, 열수송계통, 감속계통 등의 1차 냉각계통수가 오염원으로 작용하여 다른 중저준위 방사성폐기물을 발생시키는 것으로 알려져 있다[2]. 이중 농축폐액은 중성자량을 제어하기 위해 500 ~ 2,000 ppm의 붕산이 첨가된 1차 냉각계통수의 시료채취, 누수 등으로 발생되며, 발생된 폐액은 증발기를 통하여 붕소가 최대 20,000 ppm 함유되도록 농축시킨 후 응축수는 회석 방출시키고 잔여액은 농축폐액 분류시켜 저장시킨다. 농축폐액은 영구처분에 앞서 환경중의 매체를 통하여 지하수나 토양 등을 오염시키지 않도록 무해화시키거나 용출이 어려운 형태로 변화시키고자 보통 시멘트 및 파라핀을 이용하여 고형화시킨다. 이때 농축폐액을 시멘트와 혼합하여 고화할 때 붕산은 시멘트와 반응하여 시멘트 입자를 격리시켜 시멘트의 경화반응을 억제하는 경향이 있기 때문에 이를 방지하기 위해 국내 원전에서는 소석회나 규산소다를 첨가하여 고화시키는 공정이 요구되고 있다[3].

따라서 본 연구에서는 방사성폐기물 드럼 내 핵종 이력관리 규정에 따라 시멘트고화체 내 C-14를 정량하고자 국내 PWR형 원전인 고리, 울진, 영광원전으로부터 발생된 농축폐액을 시멘트로 고화시켜 화학적 산화증류법을 적용하여 C-14 함량 및 특성을 평가하였다. 또한 원전에서 제조된 시멘트 고화체를 동일한 방법으로 C-14를 분리, 정량하였다.

## 2. 실험 방법

### 2.1 C-14의 quench correction 곡선

C-14에 대하여 quench level에 따른 계측 효율을 구하고자 14,878Bq의 C-14 (spec-check, Packard)를 Carbo-Sorb E (Packard)와 Permafluor E+ (Packard)가 각각 10ml씩 첨가된 vial에 취하였다. Quenching agent로는 nitromethane을 사용하였고, 0에서 200 $\mu$ l까지 순차적으로 각 vial에 취하였다. Quench parameter로는  $^{133}\text{Ba}$ 의 감마 방사능을 external quench standard monitoring 선원으로 사용하고, Quench indicator로 tSIE/AEC (transformed spectral index of external standard) mode로 고정하여 quenching correction 곡선을 작성하였고, 이를 Figure 1에 나타내었다[4].

### 2.2 방사성 표준물로부터 C-14의 회수율 측정

방사성표준물로부터 화학적 산화법을 적용하여 C-14의 회수율을 검증하고자 Figure 2와 같은 산화증류 장치를 이용하였다. Figure 2(A)는 3구 플라스크 반응기이며, 시료 및  $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_8$ 의 산화제를 첨가하고 3N  $\text{H}_2\text{SO}_4$  20ml를 적가하여 산화반응을 통하여  $^{14}\text{CO}_2$ 를 발생시켰다. 발생된  $^{14}\text{CO}_2$ 는 carbo-sorb E(Packard) 용액(F)과 반응하여 안정된 carbamate를 생성시켰다. 이 때 반응 온도는 96 $^\circ\text{C}$ 이고, 반응하는 동안 He 기체를 5~100cc/min로 반응용액에 주입시켜 용액에 용존한  $^{14}\text{CO}_2$ 를 carbo-sorb과 완전히 반응하도록 유도함으로써 회수 효율을 높였다. 3시간 산화 반응 후 carbo-sorb 수용액 전량을 permafluor E+(Packard) cocktail과 혼합하고, liquid scintillation counter(LSC)로 C-14를 계측하였다. 여기서 회수율 검증을 위하여 사용된 모의 시료는  $\text{Na}_2^{14}\text{CO}_3$ 의 무기성과 1-pentanol과 1,3-butanediol의 구조를 갖는  $^{14}\text{C}$ -alcohol류 및  $^{14}\text{C}$ -toluene의 유기성 C-14의 3종류이었다.

### 2.3 원전 농축폐액 방사성폐기물 시료의 시멘트 고화체 제조 및 C-14 분리 정량

고리, 울진, 영광 원전으로부터 발생된 농축폐액 방사성폐기물은 온도를 60 $^\circ\text{C}$ 로 유지시킨 후  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 를 이용하여 pH를 8로 중화시켜 시멘트와 소석회의 혼합물에 첨가하여 혼합하고 상온에

서 일정시간 동안 방치하였다. 이때 고화체의 혼합 무게비는 봉산용액/시멘트/소석회를 0.39/0.55/0.06으로 하였다. 화학적 산화법을 적용하기 위하여 C-14 평가 직전에 직경 0.5mm이하로 미분쇄하였으며, 2.2절의 방사성표준물의 C-14 회수 측정과 동일한 방법을 적용하여 C-14를 분리 정량하였다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 방사성 표준물로부터 C-14의 회수율 측정

미지시료로부터 C-14을 분리 검출하고자 방사성표준물을 대상으로 화학적 산화법을 적용하여 C-14을 분리 검출하고, 이를 LSC로 계측 검증하였다. 일반적으로 C-14의 분리 검출은 고온산화법, 산소-고압산화법 등이 많이 이용되어 왔다[5-9]. 고온산화법은 밀폐된 공간내에서 시료의 온도를 900℃까지 올려  $^{14}\text{CO}_2$  형태로 완전산화를 꾀하였지만, 일부 C-14는 불완전 연소하여 CO 및 일부 탄화수소 형태로 방출되므로 회수율이 낮은 단점을 가지고 있다. 이를 보완하기 위하여 CuO 산화 촉매를 이용하기도 하여 장치의 비대화를 초래하였다. 이에 반하여 저온에서 산화시키는 산소-고압산화법은 산소압력하에 전기 방전에 의한 연소 방식으로 유기 탄화수소는 완전 연소되지만,  $^{14}\text{CO}_3^{2-}$ 와  $\text{H}^{14}\text{CO}_3^-$  형태의 화합물은 분해시키지 못하는 단점이 있어 산 적정법의 후처리를 필요로 하였다. 이와같은 단점에도 불구하고 방사성폐기물로부터 C-14의 분리 연구가 화학적 산화법보다는 위의 2개 방법이 선호된 것은 화학적 산화법에 대해 초기 연구자들의 낮은 회수율 보고 때문이었다. 그러나, 본 실험에서는 이들 실험에 대한 많은 단점을 보완하여 다양한 형태의 방사성표준물로부터 C-14의 높은 회수율을 조사하였으며, 이를 Figure 2에 나타내었다. Figure 3에서 C-14의 표준물의 시료는 113 Bq의  $\text{Na}_2^{14}\text{CO}_3$ 와 149 및 180Bq의  $^{14}\text{C}$ -alcohol과 toluene를 각각 반응기에 첨가하고 산화분해를 통하여  $^{14}\text{CO}_2$ 를 발생시켰다. Figure 2에서 점선은 표준 시료를 각각 일정량 취하여 계측한 곡선이고, 실선은 각 모의 시료를 산화분해법으로 처리하여 계측하여 표기한 곡선이었다. 93.2±0.85%의 회수율을 보인  $\text{Na}_2^{14}\text{CO}_3$ 은 실선과 점선이 거의 일치함을 보였고,  $^{14}\text{C}$ -alcohol과 toluene은 각각 90.1±0.58와 82.5±0.76%의 회수율을 보였다. 이처럼 유기성 특성인  $^{14}\text{C}$ -alcohol과 toluene이 무기성인  $\text{Na}_2^{14}\text{CO}_3$ 보다 낮은 회수율을 보이는 것은 불완전 산화에 의하여 일부 일산화탄소나 메탄가스 같은 탄화수소 형태의 기체가 발생되어 carbo-sorb E 용액에 흡착 반응하지 못하고 대기중으로 방출되었기 때문이며, M. S. Mozes의 유기성 시료 산화분해 실험에서도 CO/CO<sub>2</sub> 비율이 0.21~0.23으로 IR에 의한 가스상 분석에서 확인했었다고 보고하였다.

#### 3.2 원전 방사성 폐기물로부터 C-14 정량

원전에서 발생된 농축폐액 방사성폐기물로부터 제조된 시멘트 고화체 시료를 0.5 ~ 1 g의 시료를 채취하여 방사성 표준물 회수와 동일한 방법을 적용하여 C-14을 분리 검출하였다. 이때 액체섬광계수기를 이용한 검출한계(MDA)는 0.5 g의 시료를 30분간 계측하였을 경우 C-14이 0.09 Bq/g이었으며, 바탕값은 22.07 cpm으로 측정되었다. 액체섬광계수기를 이용하여 화학적 산화법으로 분리 검출된 C-14의 계측값은 바탕값을 차감하고 소광효과를 보정하여 방사능 값을 계산하였으며, 이를 각 시료의 선량율과 함께 Table 1에 나타내었다. Table 1에서 각 시료의 감마 선량율은 1.0E-02에서 5.0E-01  $\mu\text{Sv/g}$ 로 측정되었으며, 이에 따라 검출된 C-14의 농도는 대체로 비례하여 증가하는 경향을 보였다. 산화증류법으로 분리 검출된 C-14의 방사능은 2.7E+00 ~ 3.07E+02 Bq/g 이었다. 각 시료에 따라 C-14 방사능은 최대 110배의 차이를 나타내었다.

### 4. 결론

원자력 발전소에서 발생하는 고체폐기물 중 시멘트 고화체 내 C-14의 회수를 검증하고자 화학

적 산화법을 이용하여 농축폐액 시멘트고화체로부터 C-14을 분리 검출하였다. 방사성 표준물의 회수율은 C-14이 치환된 화합물에 따라 다소 차이를 보였지만, 82.5~93.2% 범위의 높은 회수율을 보였다. 이와 동일한 방법으로 국내 PWR형 원전으로부터 발생된 농축폐액의 C-14는 방사능이  $2.7E+00 \sim 3.07E+02$  Bq/g의 범위로 존재하는 것을 확인하였다.

#### 참 고 문 헌

1. 과학기술부, “원자력안전규제정책방향”, 2005
2. J. H. Saling, A. W. Fentiman, “Radioactive Waste Management”, 2nd, Taylor & Francis, pp. 213, 2001 2. EPRI Report, TR-105715, pp. 2-3, 1995
3. 김준형, 한국폐기물학회지, 6, 137, 1989
4. M. H. Lee, J. Environ, Radioactivity, vol. 37, pp. 1-16, 1997
5. J. E. Cline, NUREG/CR-4101, pp. 19, 1985
6. C. W. Thomas, NUREG/CR-6230, pp. 14, 1996
7. EPRI Report, NP-5983, pp. 5-58, 1988
8. EPRI Report, NP-5497, pp 5-51, 1987 .
9. M. F. L’Annunziata, Handbook of Radioactivity Analysis, Academic Press, pp364, 1998

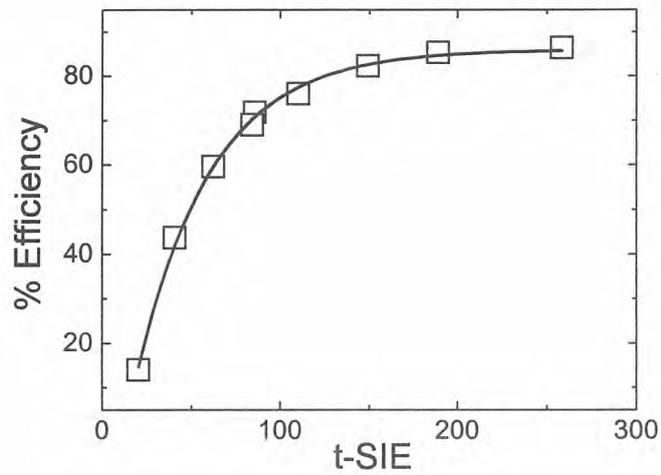


Figure 1. The quenching correction of C-14 using nitromethane as a quencher

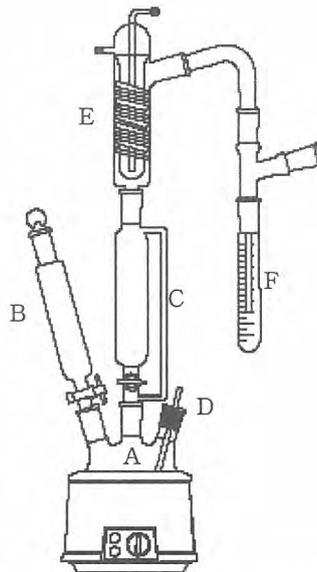


Figure 2. The extraction system of C-14 for the NPP radwastes. ( A: Reactor(200ml flask), B: 3M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, C: Tritium receiver, D: He Bubbler, E : Cooler, F: <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> absorber )

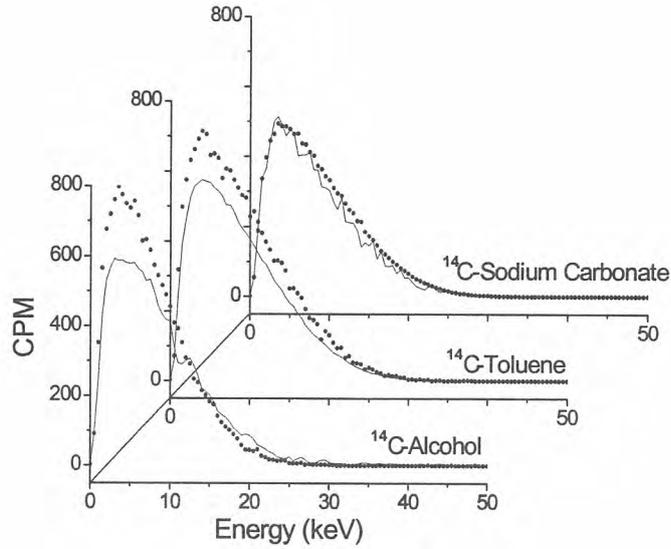


Figure 3. The recovery yield of the various C-14 standards by LSC— : Counts by the oxidation with potassium persulfate and sulfuric acid at 96... : Counts by each radioactive standard solution

Table 1. The radioactivity of C-14 assayed in cement waste form

Sample		Gamma dose rate μSv/hr	Bq/g
CE-2-EB	U	1.1E-02	3.3E+00
	M	1.0E-02	2.7E+00
CE-3-EB	B	1.3E-02	3.6E+00
	U	2.2E-01	1.2E+02
	M	2.6E-01	9.3E+01
CE-4-EB	B	1.4E-01	5.2E+01
	U	2.6E-01	1.22E+02
	M	2.4E-01	1.95E+02
CE-5-EB	B	2.4E-01	3.07E+02
	U	5.0E-01	1.1E+01
	M	5.0E-01	1.2E+01
	B	4.5E-01	5.5E+00

## <sup>59</sup>Ni 실험실 표준물 제조 및 적용

송병철, 정기철\*, 김영복, 손세철, 지광용

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

\* (주) 액트, 대전광역시 대덕구 신일동 1688-5

[nbcsong@kaeri.re.kr](mailto:nbcsong@kaeri.re.kr)

원자력 발전소의 가동에 따라 발생된 중저준위 방사성 폐기물이 영구처분장으로 이송될때 방사성 폐기물의 안전한 보관을 위해서 방사성폐기물 인도 규정에는 폐기물 내에 함유된 각종 방사성 핵종의 방사능량을 명시하도록 되어있다. <sup>59</sup>Ni는 원자로 내에서 중성자에 의하여 <sup>58</sup>Ni(n, r)<sup>59</sup>Ni 핵 반응으로 생성되며 방사화된 금속이나 수지등에 존재하며, 반감기가 7.5 x 10<sup>4</sup>로 매우길어 폐기물 처분시 중요하게 취급되는 핵종이다.

저에너지 감마선 및 X-ray를 방출하는 <sup>55</sup>Fe, <sup>59</sup>Ni, <sup>129</sup>I 등을 측정하기 위하여 NaI(Tl) Thin layer 검출기(3xM.040/3B, BICRON), Radiation Analyzer (Model 5000, Nucleus) 및 Spectra Analyzer(PCA-II, TENNELEC)로 LEPS(Low Energy Photon Spectrometer)시스템을 구성하였다. 저에너지 표준선원으로 <sup>109</sup>Cd 과 <sup>55</sup>Fe등을 사용하여 에너지 보정을 하였으며 <sup>59</sup>Ni 에너지 영역에서 ROI(Region of Interest)를 설정하고 바탕값을 3000 초 동안 3회 측정하였을 때 바탕값 평균은 1.2 cps 이었으며 바탕 값으로부터 구한 최소 검출 계수율은 3.0 cps 이었다.

Ni-59 표준물 제조를 위하여 NiO (MW 74.7, 분말) 4.5 g을 하나로 IP-5 조사공 B위치(5.24 x 10<sup>13</sup> n/sec.cm<sup>2</sup>)에서 48시간 중성자 조사 하였으며 예상 생성 방사능은 5 μCi로 산정 되었다.

50 mL P.E 비이커에 중성자 조사된 NiO 분말 0.4384 g을 평량하고 진한염산(37 %, Aldrich) 2 mL를 넣어 용해 시킨후 증발 건조 후 0.1 M HCl 5 mL로 녹인후 25 mL Vol-flask에 옮기고 표선 까지 증류수로 채웠다. 산화니켈 0.4384 g의 방사능은 2.845 x 10<sup>4</sup> Bq 이며 용액 25 mL에 들어있는 방사능량은 1138 Bq/mL (10 mg Ni/mL) 이었다.

이중 1 mL를 취하여 감마분광분석을 한 결과 불순물로 코발트 동위원소들이 검출되었으며 이를 분리하고 재측정 한 결과 미량의 <sup>51</sup>Cr이 검출되었으나 크롬은 최종 침전과정에서 제거되므로 <sup>59</sup>Ni의 측정에는 영향을 주지 않을 것으로 사료된다.

<sup>59</sup>Ni-DMG의 침전 무게에 따른 계측효율을 구하기 위하여 산화니켈 표준물(13.7 mg/mL, 1 M HCl)를 각각 0.05 mL, 0.10 mL, 0.15 mL, 0.20 mL, 0.25 mL 및 0.30 mL 원심분리관에 넣고 1 M HCl로 최종부피가 2 mL 되도록 채우고 증류수 7.5 mL, Acetone 13 mL, tataric acid 용액(250 mg/mL) 3 mL를 넣는다. 진한 암모니아수를 pale blue 색이 나타나고 약간의 암모니아 냄새가 날 때까지(pH 9) 방울 방울 넣고 65 °C에서 약 2분간 중탕하고 1 % DMG (95 % ethanol)를 5 mL 넣는다. 150 °C에서 1시간 건조시키고 무게를 기록하고 Collodion회석용액(collodion:EtOH-1:20) 소량으로 침전물을 고정시키고 계측한다. 염의 무게에 따른 계측효율을 구하고 다음과 같은 보정식을 얻었다.

$$\text{Log(Eff)} = -0.00513 \times w + 1.1128$$

시료는 산분해 및 마이크로웨이브를 이용하여 용해되었으며, 순수하게 분리된 Ni을 dimethyl-glyoxime을 사용하여 Ni(DMG)<sub>2</sub> 침전을 얻었고, 계측효율보정곡선으로부터 시료의 침전 무게에 따라서 계측효율을 결정하고 방사능을 구하였다. 잡고체, 농축폐액, 슬러지 및 폐수지에 대하여 <sup>59</sup>Ni 방사능을 측정 한 결과 잡고체, 농축폐액, 슬러지등에서는 검출되지 않았으며, 고준위 폐수 지의 경우 약 2.1 x 10<sup>3</sup> Bq/g 정도로 나타났다.

## Formation of a secondary phase on the leached waste glass in contact with bentonite under synthetic granitic groundwater

Kwan-Sik Chun, Seung-Soo Kim and Jong-won Choi

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

### Extended Abstract

In the KAERI, the long-term dissolution experiment of waste glass under a repository condition has been carried out since October of 2001. The purpose of this experiment is to identify what kinds of secondary phases could be formed on the glass in contact with the compacted bentonite blocks with their density of  $1.4\text{Mg/m}^3$  under a synthetic granitic groundwater and to support the release mechanism of radionuclides from a waste glass in the near field.

The domestic Ca-bentonite block was filled into the under-part of a leaching cell ( $30\text{mm}\ \varnothing$  x  $33\text{mm}$ , internal dimension) and the waste glass specimen ( $18\text{mm}\ \varnothing$  x  $3\text{mm}$ ) was mounted on these blocks and then the under-part was bolted with the upper-part in which only the compacted bentonite block was filled. And the other leach cell was filled with Kunigel V1 Na-bentonite blocks. The synthetic granitic groundwater continuously passed through the two kinds of leach cells. After a certain period of these leaching, each cell was dismantled, the leached glass was taken out from the cell and then the specimen surface was washed out with demineralized water to remove the remained bentonite deposited on the surface. And the washed specimen was analyzed by using XRD and EPMA.

The XRD patterns of the waste glasses before and after their leaching are illustrated in Figure 1, including the XRD pattern of the Na-bentonite. New phase was identified on the surface of the waste glass in contact with the Na-bentonite block as a cerium carbonate hydroxide. However, any new phase was not identified on the glass surface in contact with the Ca-bentonite.

By the EPMA results of the leached glasses shown in Table 1, the surface area of the glass in contact with the Na-bentonite except white spots was covered mainly with Ce and Nd, while the other with the Ca-bentonite was covered with Zr and the same components. But these amounts were much lower than that with the Na-bentonite.

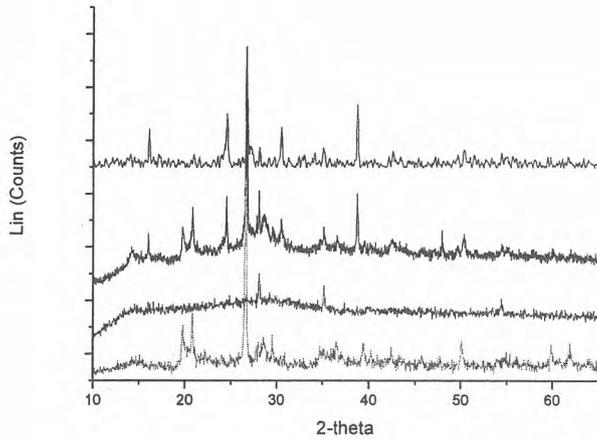
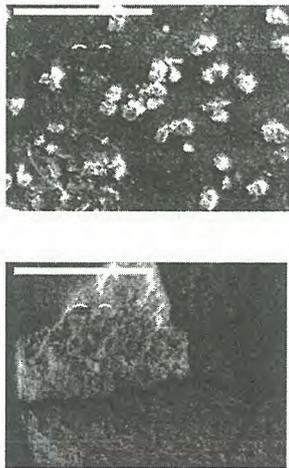


Fig. 1. XRD patterns of waste glasses before and after leaching, and Na-bentonite



	Initial value	1169 days		
	(wt.%)	(J)A	(J)B	(K)
Na	16.59	3.40	1.06	1.36
Al	5.80	15.91	2.11	6.81
Si	47.69	44.53	13.05	19.92
Mo	2.12	6.60	5.85	1.52
Ca	4.70	2.16	4.00	4.98
Fe	3.12	2.65	2.81	5.38
Zr	2.37	0.00	0.00	22.96
P	0.19	0.00	2.79	1.62
Cs	1.55	0.00	0.00	0.00
Nd	2.59	11.48	34.31	15.04
Ru	1.53	0.00	0.00	0.00
Mn	0.51	0.10	0.26	1.71
Ce	5.98	9.52	31.28	18.41
Zn	5.28	3.66	2.49	0.29
<b>Total</b>	<b>100.00</b>	<b>100.00</b>	<b>100.00</b>	<b>100.00</b>

Table 1. EPMA results of the leached glasses

## Leaching Test of 200L Cemented Waste Drum Incorporated Spent Resins

Young-Gerl Ryue, Young-Yong Ji, Kyung-Kil Kwak  
and Ki-Hong Kim

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

He-on Kim, Duck-Sin Kim

KHNP Co., Ltd., Radwaste Project Site Office, 139-9 Gajeong-dong, Yuseong-gu, Daejeon

Whan-Gyeong Je

Hanil Nuclear Co., Ltd., 3F, Dongyoung Venturistel, 202-4, Anyang7-dong, Manan-gu, Anyang

Spent resins were produced in the water treatment process in Kori NPP(#2), and then were solidified with cement in DOT-17H metal drum (210L). It was expected that the ratio of solidification was  $0.33 < \text{water/cement (wt.\%)} < 0.40$ ,  $0.134 < \text{incorporation ratio of spent resins(wt.\%)} < 0.179$ . The contact surface dose rate which was measured in October, 2003 was 1.5 mSv/hr.

The static leach test was conducted in a hot cell at the Radioactive Waste Form Characterization Facility (RWFCF) in KAERI. A lid-opened waste drum after decontamination of the drum's outer surface was immersed into a leach vessel, which contained 264L of deionized water, equivalent to 10 times the surface area exposed in leachant. Deionized water with an electrical conductivity of less than 3.41 mho/cm was used as a leachant. The test temperature was constantly kept at 20°C in the hot cell. A leachate of 500 ml was periodically sampled a through timer-attached solenoid valve during the circulation of the leachate by a low flow rate pump. After an analysis of the radioactivity, an analyzed leachate was refilled into the leaching vessel. The amount of Cs-137 and Co-60 in the leachate was analyzed by  $\gamma$ -ray spectroscopy using a HPGe 25190-P detector. The effective diffusion coefficient of radionuclide of waste form(diameter/height  $\neq 1$ ) was determined by semi-infinite diffusion model.

The pH and conductivity obtained during 247 days of the leaching test were shown in Figure 1. The range of pH and conductivity were 7.17 ~ 11.95 and 3.41 ~ 1,657  $\mu\text{S/cm}$ , respectively.

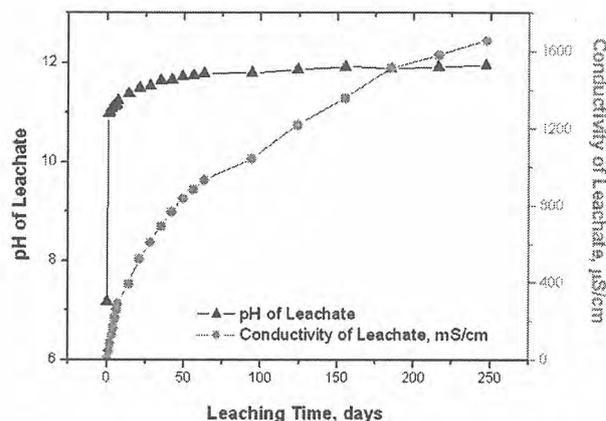


Figure 1. pH and Conductivity of Leachate

The conductivity rose sharply in the first leaching day and then rose gently according to the increase of leaching time, but the pH continuously rose with increasing of leaching time. These indicated that the release of radioactive nuclides and salts from the inside of drum continued. The relationship between the activity of Cs-137 in leaching vessel and the square root of leaching time is shown in Figure 2. The black points represent the activity of Cs-137 in leaching vessel and the red points represent the change of the activity before and after the sampling of leachate. The activity curve (or cumulative fraction leached curve) showed that the leaching mechanism of Cs-137 was controlled by the diffusion, typically, except some periods(before and after the 49 days' leaching time.).

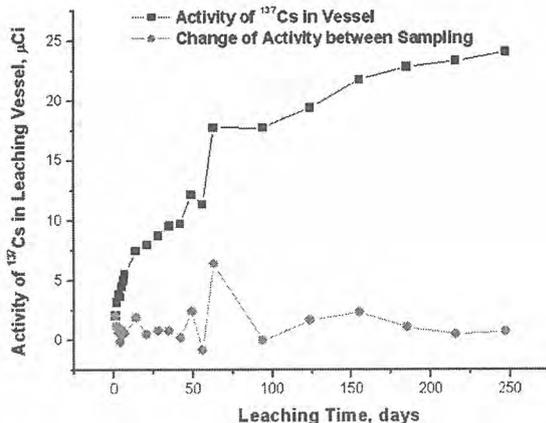


Figure. 2. Activities of Cs-137 in Leaching Vessel

The activity of Co-60 in leaching vessel showed in Figure 3 according to the function of the square root of leaching time. The black points represent the activity of Co-60 in leaching vessel and the red points represent the change of the activity before and after the sampling of leachate. The leaching behavior of Co-60 from a cemented waste form did not show the diffusion mechanism such as Cs-137, but we could interpret that his behavior meets the diffusion mechanism by fitting the points. However the leaching rate of Co-60 was very smaller than that of Cs-137.

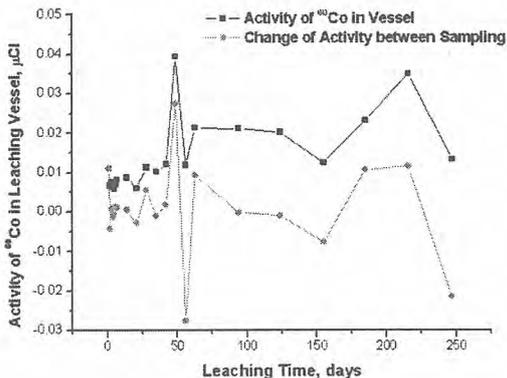


Figure. 3. Activities of Co-60 in Leaching Vessel

## 중저준위 방사성 폐기물 포장용기의 파손모델 비교연구

박주완, 박진백, 김현주, 김창락

한국수력원자력(주)원자력환경기술원, 대전광역시 유성우체국 사서함 149호

중저준위 방사성폐기물의 포장용기는 일정 기간동안 폐기물이 지하수와 접촉하는 것을 방지하는 기능을 가지나 시간이 지남에 따라 용기의 열화에 의해 방사성핵종의 누출이 일어나게 된다. 중저준위 방사성폐기물 처분시설의 선원항 평가는 이러한 폐기물 포장용기가 언제 그리고 어떤 메커니즘에 의해 파손되는지, 폐기물 용기 전체가 동시에 파손되지 않는다면 어떻게 파손이 일어나는지, 그리고 폐기물 용기가 부분적으로 파손된다면, 파손이 전체적으로 일어나는 경우와는 달리 어떻게 방사성핵종이 누출되는지를 규명하기 위한 폐기물 용기파손 모델링이 필요하다. 일반적으로 보수적인 평가에 있어서는 포장용기의 내구수명을 가정하고 수명이 다하게 되면 포장용기가 동시에 파손된다고 보는 순간파손(single-time-to-failure) 모델을 사용하고 있으며 이는 파손을 분포함수의 분산 폭이 매우 좁은 경우에만 적용된다. 한편, 포장용기 파손 시간에 대한 분포가 처분 시설 내에서 방사성핵종의 평균 잔류시간보다 긴 경우에는 평가 결과에 영향을 미칠 수 있으므로 시간에 따른 용기파손을 모사하는 시간중속적 파손(distributed failure) 모델의 적용이 필요하다.

본 논문에서는 시간에 따른 포장용기 파손을 모사하는 용기열화 모델을 포함하는 DUST-MSD프로그램을 사용하여 포장용기 파손시간 분포의 영향을 검토하였다. 처분시설에 균질의 포장용기를 설치하는 경우에 대해 순간파손모델과 시간중속적 파손모델(균일분포 파손모델 및 정규분포 파손모델)의 3가지 용기파손 모델을 적용하였고, 반감기가 짧은(반감기 44.7년) 핵종 A와 이의 붕괴로 생성되는 반감기가 긴(반감기 77,000년) 핵종 B를 고려하여 각각에 대한 파손모델별 핵종누출량과 농도를 계산하고 비교하였다. 모델링에 사용된 포장용기는 반경 25 cm, 체적 70,000 cm<sup>3</sup>의 원통형이며, 폐기물 고화체에서의 유효확산계수는 용기 파손시간대 보다 훨씬 긴 수백년 이상 누출이 일어나도록 하기 위해 두 핵종 모두 10<sup>-8</sup> cm<sup>2</sup>/s로 가정하였다. 용기 파손시간은 순간파손 모델에서는 모든 용기가 설치된 후 100년에 순간적으로 파손되며, 균일분포 파손모델에서는 50년에 파손되기 시작하여 적재 후 150년에 종결되는 것으로, 그리고 정규분포 파손모델에서는 평균 수명이 100년이고 표준편차가 25년인 Gaussian 분포 파손율을 보이는 것으로 가정하였다. 처분이 시작되고 난 후 15년 후에 대상 포장용기가 설치되기 시작하였다고 가정하였으며 따라서 순간 파손시간은 처분시설 운영 후 115년이 지난 시점이다. 폐기물고화체는 초기에 핵종 A를 1 g 포함하고 있으며, 핵종 B는 핵종 A의 방사성 붕괴로부터 생성된다.

그림 1에는 시간과 용기 파손율에 대한 함수로써 핵종 A와 B의 총 누적 누출량을 나타내었다. 핵종 A의 경우, 순간파손모델에서는 시설 운영시점 이후 115년에 누출되기 시작하며 가장 낮은 총 누출량을 나타내는데 이는 누출 시점이 늦은 것과 방사성붕괴의 영향 때문이다. 총 누출량은 초기 재고량 1 g중 약 0.075 g 정도이다. 정규분포 파손모델의 경우 분포함수의 끝부분 때문에 세 가지 모델 중 가장 먼저 누출이 일어난다. 균일분포 파손모델의 경우 대략 0.082 g의 핵종 A가 누출된다. 누출되기 전에 붕괴된 핵종 A는 모두 핵종 B로 전환된다. 핵종 B의 누출은 그림 1에 제시되어 있다. 총 누출량은 세 가지 파손모델에서 약 0.8 g 정도임을 보여준다. 모사 종료시점에서의 세 가지 파손모델에서의 누적 누출량 차이는 1% 이내이며 따라서 총 누출량의 경우 용기 파손율에 민감하지 않음을 알 수 있다.

그림 2는 폐기물 고화체와 접촉하고 있는 용액 내의 시간에 따른 핵종농도를 보여준다. 고화체로부터 핵종이 초기에 누출되면서 농도는 증가하고, 방사성 붕괴와 고화체로부터 이류에 의한 방사성핵종의 이동으로 인해 시간에 따라 감소하게 된다. 두 경우 모두 순간파손모델이 가장 높은 농도를 나타내는데, 이는 모든 용기가 단일 시간에 파손되기 때문이다. 핵종 A의 경우, 최대 농도

는 순간파손이 발생할 때 약  $1.3 \times 10^{-9}$  g/cm<sup>3</sup>이다. 정규분포 파손과 균일분포 파손의 경우 최대 농도는  $7 \times 10^{-10}$  g/cm<sup>3</sup> 이하이며 이는 순간 파손모델의 경우에 비해 거의 1/2 정도 낮은 값이다. 핵종 B의 경우도 유사한 결과를 보여주고 있다. 순간파손모델의 경우 최대 농도는  $8 \times 10^{-9}$  g/cm<sup>3</sup>이며, 정규분포 파손과 균일분포 파손의 경우 최대 농도는  $5 \times 10^{-9}$  g/cm<sup>3</sup> 이하이다. 균일 파손율의 경우 핵종 A에 대한 최대 농도는 대략 100년에서 120년 사이에 일어난다. 방사성 붕괴로 인하여 이 시점 이후에는 165년까지 추가적인 용기파손이 일어나더라도 농도는 낮아지게 된다. 핵종 B의 경우는 균일분포 파손모델에서의 농도는 모든 용기가 파손되는 165년까지 증가하며, 이 시점 이후는 고화체로부터 핵종 이동으로 인해 농도가 감소한다. 정규분포 파손의 경우 농도는 용기 파손율을 반영하는 분포를 보이고 있다.

파손모델에 따른 농도의 차이는 방사성붕괴, 용기 파손율, 고화체 누출율, 고화체로부터의 핵종 이동 관련 파라미터 등 다양한 파라미터의 영향에 의한 것이다. 그러나 본 해석사례에서 제시된 바와 같이, 중·저준위폐기물 처분시설에 대한 성능목표가 핵종의 누적 누출량을 기준으로 하는 경우는 파손분포 모델을 사용하는 것은 큰 의미가 없다고 할 수 있으나, 농도 혹은 농도에 선형적으로 비례하는 피폭선량을 기준으로 하는 경우에는 시간중속적 파손모델을 적용하는 것이 의미를 가지므로 선원항 평가 시에 필요한 용기 파손분포 데이터의 수집 등 이에 대한 대비가 필요한 것으로 판단된다.

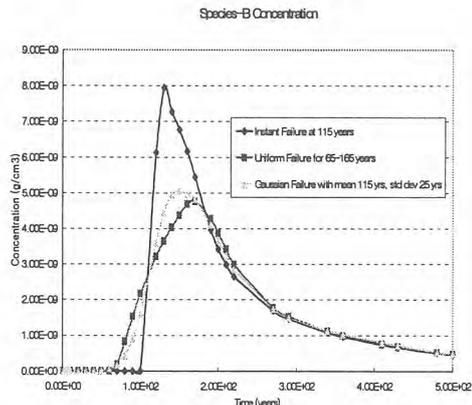
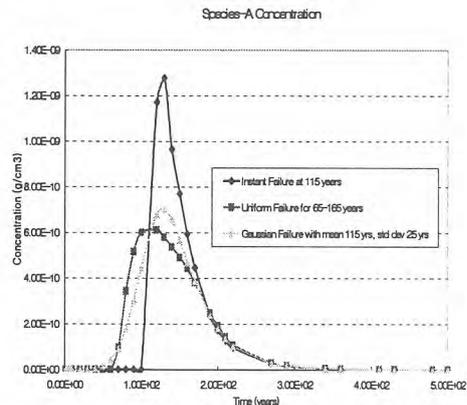
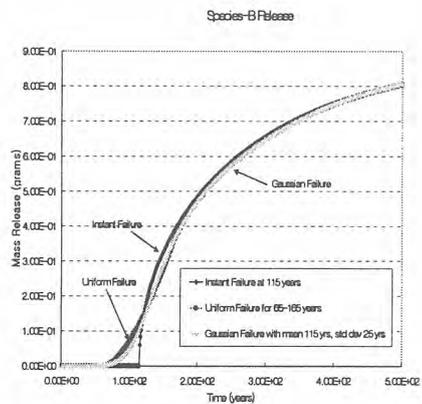
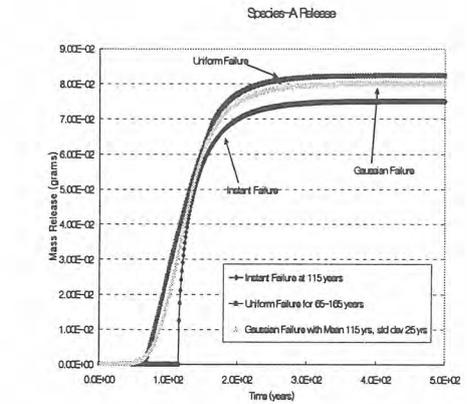


그림 1. 3가지 용기파손 모델에 대한 핵종 A와 B의 누적 누출량

그림 2. 3가지 용기파손 모델에 대한 핵종 A와 B의 시간에 따른 농도

## An Evaluation of Climate Change Scenario for Safety Assessment of a HLW Repository

Youn-Myoung Lee, Yong-soo Hwang, Chul-Hyung Kang and Pil-Soo Hahn  
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Dukjin, Yuseong, Daejeon 305-600

[ymlee@kaeri.re.kr](mailto:ymlee@kaeri.re.kr)

### 1. Background

It might be expected that climate change in the future somehow affects the surface and geological environment around the repository system. Past geological and archaeological evidence shows that, over the past million years, the Korean peninsula have experienced several cycles of climate change (four ice age cycles during the Quaternary, started since about 1.7 million years ago), varying from full glacial conditions to interglacial conditions warmer than or similar to the present condition. The similar pattern of climate change is likely to persist into the future over the timescales relevant to performance assessments since changes similar to those in the past are also expected to occur in the future. Therefore, it could be assumed that the present temperate climate is not the only climate condition in view of long term assessment of the repository system on the contrary of Reference Biosphere concept developed through BIOMASS.

The future evolution of the repository system should be analyzed based on such climate change scenario since no other way is possible. The safety assessment also covers such long periods of time commonly up to millions of years, during which major climate changes are necessarily expected. To this end, a base case normal scenario where the repository is postulated to be built entirely according to present-day conditions in the surroundings, including climate (temperate climate all the time long) even though, in the event of climate change, repository evolution suffers all processes including thermal, hydraulic, mechanical and chemical processes. And then proper evaluation of the performance of the repository should be followed to see if the safety margin is still enough to isolate the nuclides in the canisters and to retard any releases of radionuclides when canisters are damaged. However currently due to lack of in-depth information, a simple scenario evaluation has conducted by utilizing simple parametric studies with selected two parameters; varying DCFs and path lengths, associated with biosphere and geosphere components, respectively. In the biosphere analysis the transfer of radionuclides in the surface biosphere and the potential exposure dose to humans are evaluated with varying DCFs in accordance with climate changes. Also it is assumed that as climates are changed, groundwater pathways and their path lengths are also changed.

Through this work, the dose exposure calculations for the temperate (or current) climate and a boreal climate condition appeared in turn are made by utilizing ACGEO, an AMBER template case file, which is a compartment model where the flow of radionuclides between the compartments is described by transfer coefficients expressed as flux per year as similarly done through a couple of past works.

A preliminary reference geologic repository concept considering such established criteria and requirements as spent fuel and generic site characteristics in Korea was roughly envisaged in 2003 through the works done at Korea Atomic Energy Research Institute since early 1997, from which a conceptual Korea Reference Repository System for direct disposal of nuclear spent fuel is to be introduced by the end of 2007. According to above basic repository concept, which is much similar to that of Swedish KBS-3 repository, nuclide release from the near-field system has been investigated through the previous study by calculating some possible nuclide fluxes through several possible conduits as shown in Fig. 1.

### 2. Calculation

Future possible changes both in the climate and the biosphere should be considered in the modeling and assessment for HLW in view of simple future climate change scenario. As climatic components of the biosphere will always change with time, not remained constant, such more detailed studies as Paleoclimatic and paleohydrologic investigations of Quaternary should be followed for anticipating the next glacial cycle. However through current study only a simple parametric study has been made: two cases where DCFs and/or travel lengths in far-field rock medium are varying, but are otherwise identical, under the assumption of periodic climate changes as depicted in Fig. 2.  $DCF_B$  (DCF<sub>B</sub> for boreal condition) was adopted from the literature, while  $DCF_T$  (DCF<sub>T</sub> for temperate condition) was evaluated using ACBIO, an AMBER case template.

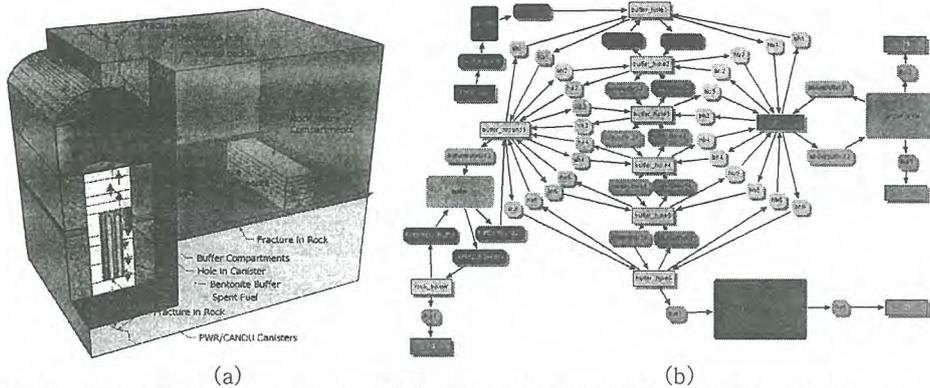


Fig. 1. a: Schematic near- and far-field system domain; b: Compartment structure.

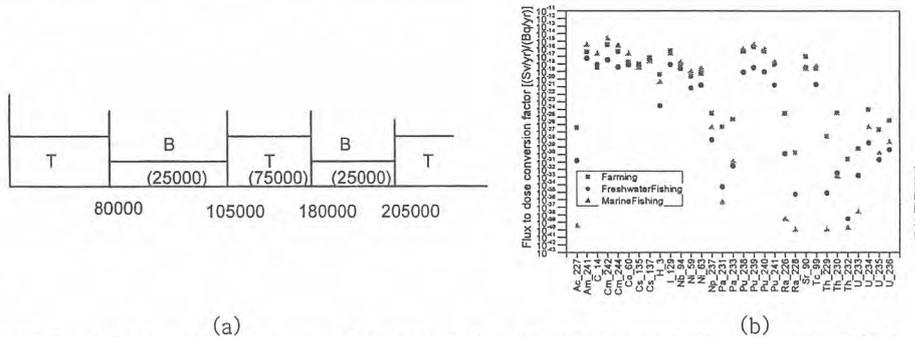


Fig. 2. a: Time scale cycling assumed for calculation (T: Temperate climate period; B: Boreal climate period); b:  $DCF_T$  calculated and used for Temperate period dose calculation.

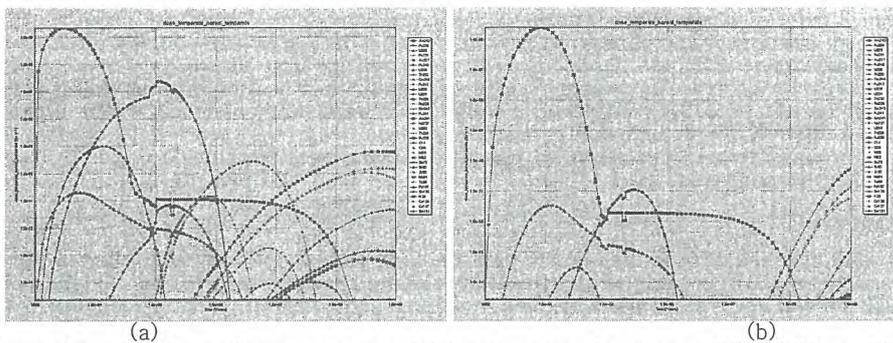


Fig. 3. Doses due to climate change scenario (a: fracture length changes 200→100 m,  $DCF_T$  during Temperate Period and  $DCF_B$  during Boreal Period; b: no fracture length changed,  $DCF_T$  during Temperate Period and  $DCF_B$  during Boreal Period).

### 3. Conclusion

As seen in Fig. 3 the overall conclusion is that no great changes in peaks due to climate change scenario are not observed as was expected. Another conclusion of the current safety assessment is that ACGEO are very useful for such discrete time modeling showing a proper methodology that could be used in-depth safety assessments that will be based on data from completed site specific investigations. The results of the assessment also serve as a basis for some feedback not only to design concept of the HLW repository and but for site investigations for formulating functional requirements especially on the near-field barriers, and for prioritization of relevant research associated with HLW repository system.

## 처분시스템 설계를 위한 ORIGEN2 및 ORIGEN-ARP 선원항 비교 분석

조동건, 최종원, 이종열, 최희주, 김성기  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

dkcho@kaeri.re.kr

현재, 전세계적으로 440기의 원자력발전소가 가동 중에 있으며, 이로부터 발생한 사용후핵연료는 약 255,000톤(2003년 초 기준)에 달하고 있다. 국내에는 20기의 원자로가 가동 중에 있으며, 이로부터 발생한 사용후핵연료는 2004년 12월 기준으로 PWR 핵연료 3,400톤, CANDU 핵연료 3,900톤에 달하고 있다. 이처럼 많은 사용후핵연료의 관리방안으로 영구처분시스템을 안전하게 설계하기 위해서는 연소된 핵연료로부터 기인하는 붕괴열, 방사능 세기, 핵종농도, 유해도 등의 특성을 정확히 알아야 한다. 지금까지, 처분시스템 설계에 필요한 사용후핵연료 특성 정량화를 위하여 주로 ORIGEN2 코드가 사용되어 왔으나, 1991년 이후부터 더 이상의 코드개발이 이루어지지 않았고, 현 핵연료의 추세가 ORIGEN2 코드가 중점적으로 개발된 1980년대와 비교하여 고연소도를 지향하고 있으므로 이 코드를 사용함에 있어 신뢰도에 대한 의문이 제기될 수 있다. 따라서, 본 연구에서는 새로 개발된 ORIGEN-ARP 코드를 이용하여 사용후핵연료에 대한 정량화를 수행하여 기존의 ORIGEN2 선원항 해석 결과가 ORIGEN-ARP(이하 ARP)으로 평가된 결과와 비교하여 어느 정도의 차이를 나타내는지를 산정하여 ORIGEN2 선원항 해석 결과를 입력자료로 활용하여 생산된 기존 처분시스템 설계 자료의 타당성을 검토하였다.

ORIGEN2와 ARP의 특징을 소개하면 표 1과 같다. 표에서 보듯이, ORIGEN2에 비해 ARP의 강점은 첫째, 핵반응단면적라이브리리를 핵연료 제원에 맞게 사용자가 직접 생산하여 해석할 수 있고, 둘째, 중성자 스펙트럼 계산 능력이 현저히 향상되었으며, 셋째, 최근의 핵자료를 기본으로 하고 있으며, 넷째, DOE 및 NRC의 지원 하에 검증작업이 광범위하게 수행되는 것 등이다.

Table 1. Major Characteristics of ORIGEN2 and ORIGEN-ARP

ORIGEN2	ORIGEN-ARP
Limited libraries/hardwired data	Flexible modular design - <i>cross-section generation based on assembly design</i>
No neutron spectra	Comprehensive neutron source - <i>spontaneous fission for 41 actinides</i> - <i>(<math>\alpha, n</math>) reaction for 89 <math>\alpha</math>-emitting actinides, 7 <math>\alpha</math>-emitting fission product, 19 light target nuclides</i> - <i>delayed neutron for 105 fission products</i>
Hardwired gamma group spectra	User-specified energy group for neutron/gamma spectra
No data improvement	Data reliability improvement - <i>completely updated cross section data(ENDF/B-VI, FENDL, EAF)</i> - <i>implementation of ENDF/B-VI fission product yields for 30 actinides and 1,119 fission products</i> - <i>Master photon library with ENDF/B-VI and ENSDF for 2,101 nuclides</i>
No V&V for burnup	Extensive V&V for burnup
No code/data development	Active code/data development sponsored by DOE & NRC

본 연구에서 비교 계산을 위해 고려한 사용후핵연료는 17×17 Westinghouse 표준형으로 Korea Optimized Fuel Assembly(KOFA)이다. 저연소도 핵연료(low-burnup fuel)로 초기 농축도 4.0wt.%, 방출연소도 45GWD/MTU를, 고연소도 핵연료(high-burnup fuel)로 초기 농축도 4.5%, 방출연소도 55GWD/MTU를, CANDU 사용후핵연료로 초기 농축도 0.7wt.%, 방출연소도 7.5GWD/MTU를 선정하였다. ORIGEN2 및 ARP 계산 시 연소이력, 물질조성 등은 상호간에 동일한 값을 적용하였다.

사용후핵연료에서 방출되는 붕괴열은 처분시스템 내에 존재하는 공학적방벽 및 천연방벽의 성능을 저하시키므로 이를 정확히 산정하여야 한다. 그림 1에서 보는 바와 같이, 총붕괴열은 초기 10년까지는 핵분열생성물에 의한 오차를 반영하여 ARP의 결과가 낮게 나타났으며, 10~1000년 사이에는 핵분열생성물과 액티나이드에 의한 오차가 서로 상쇄되면서 높게 나타나다가, 1,000년 이후에는 액티나이드에 의한 오차를 반영하여 낮아지는 경향을 보였다. 저연소도 및 고연소도 PWR 핵연료의 경우 총붕괴열에 대한 ARP의 계산결과가 5년 시점에서 각각 3% 및 4% 정도 낮게 나타났으며, 100년 시점에서는 각각 1.2% 및 2% 정도 높게 나타났다. CANDU 핵연료의 경우에는 5년 시점에서 2%정도 낮게 나타나다가 100년 시점에서는 5% 정도 높게 나타났다. 사용후핵연료로부터 발생하는 방사선은 처분 시 작업자에 대한 피폭과 처분 후에는 처분용기 주변물질에 방사분해를 일으켜 산화물을 생성하고 부식을 야기 시켜 용기자체의 성능을 저하시킬 수 있으므로 중요하다. 그림 2에서 보듯이 액티나이드 핵종의 총방사능은 원자로 방출직후 가장 큰 오차를 보이며, 고연소도 PWR 핵연료의 경우 약 20%, CANDU 핵연료의 경우 15% 정도의 오차를 나타냈다. 고연소도로 갈수록 액티나이드가 더 많이 생성(buildup)되어 이에 의한 오차는 더 커지는 것으로 나타났다. 총 방사능은 세 가지 경우에 대해 100년 이내의 시점에서 보면 최대 5% 정도까지 ARP이 크게 평가하였다.

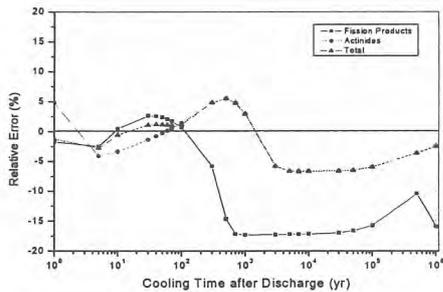


Fig. 1. Comparison of decay heat for low-burnup PWR spent fuel

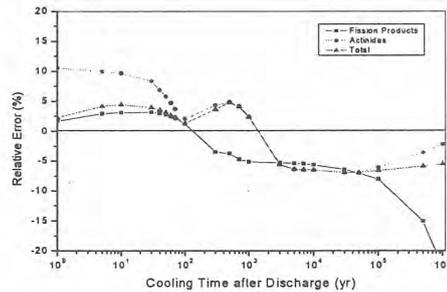


Fig. 2. Comparison of radioactivity for low-burnup PWR spent fuel

방사선차폐 관점에서는 선원의 스펙트럼 또한 중요도를 갖는다. 그림 3에서 보듯이, 감마선에 대한 각 그룹별 오차는 50% 이내에서 일치하고 있음을 볼 수 있으나, 2.0~2.5MeV 영역의 오차는 매우 크게 나타났다. 이는 핵자료의 개선으로부터 기인한 것으로 보인다. 중성자에 대해서는 ORIGEN2가 스펙트럼을 제공하지 않으므로 여기서는 사용후핵연료의 주 중성자 선원이 되는 (α, n) 반응 및 자발핵분열 반응에 의한 중성자선원의 크기를 비교하였다. 평가결과, (α, n) 반응에 의한 차는 최대 55%, 자발핵분열에 의한 중성자는 최대 140% 정도의 상대오차를 나타냈다. 사용후핵연료 내에 존재하는 액티나이드 및 핵분열생성물의 농도는 핵임계도 평가 또는 사용후핵연료 또는 고준위폐기물 내 방사성 물질의 용출거동 규명에 필요한 입력자료로 활용되므로 중요하다. 그림 4에서 보듯이, 핵임계에 기여도가 큰 핵종인 <sup>235</sup>U, <sup>239</sup>Pu, <sup>240</sup>Pu는 각각 6%, 9%, 7% 정도의 차이를 보였으며, 용출거동에 중요한 <sup>237</sup>Np의 경우는 최대 20% 정도의 오차를 나타냈다.

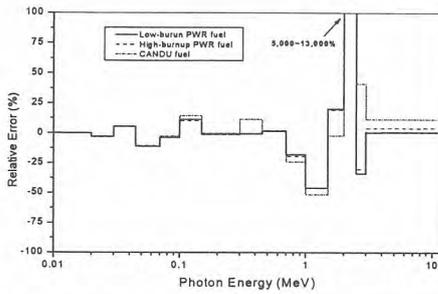


Fig. 3. Comparison of photon spectra for each fuel

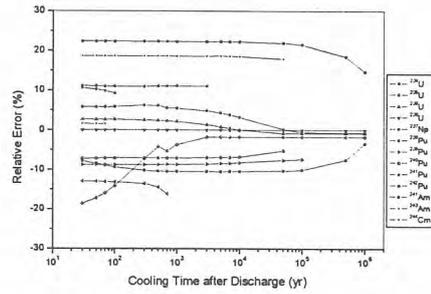


Fig. 4. Comparison of actinide concentration for low-burnup PWR fuel

신뢰도가 높은 ORIGEN-ARP을 통해 ORIGEN2로부터 산출된 선원항을 분석한 결과, 붕괴 열, 방사선의 세기에서는 큰 차이를 나타내지는 않았으나, 선원스펙트럼, 액티나이드 핵종 농도에서는 큰 차이를 나타냈다. 따라서, 처분시스템 설계를 위해 수행된 기존의 열해석 결과는 신뢰성에 문제가 없으나, 차폐 및 핵임계 계산은 기존에 수행된 결과를 추가로 검토하는 것이 바람직할 것으로 판단된다.

## 고준위방사성폐기물 처분장의 원계(far-field) 열역학적 거동 분석

이양, 김진웅, 이종열, 최희주, 최종원  
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

2015년까지의 원전개발계획을 근거로 국내의 28개 원자력발전소에서의 사용후핵연료 예상 발생량을 산출하여 설정한 고준위방사성폐기물의 처분용량은 36,000 tHM(PWR형 20,000 tHM, CANDU형 16,000 tHM)이다. 이를 심지층에 처분하기 위해서 PWR형 11,375개, CANDU형 2,835개의 처분용기가 필요하다. 또한, 심지층 처분장에서 처분공 구역에 존재할 가능성이 있는 균열에 따른 안전거리를 고려하면 약 5%의 처분부지의 증가가 예상된다. 따라서 필요한 처분공의 수는 PWR형 11,944개, CANDU형 2,977개이다. 본 연구에서는 처분터널의 간격을 40m, 처분공 사이의 간격은 PWR형과 CANDU형에서 각각 6m와 4m로 설정하였다. 하나의 처분터널의 길이는 플러그 설치와 운영공정을 위한 공간을 포함해서 251m이며, PWR형 323 터널, CANDU형 54 터널, 총 377개의 처분터널이 소요된다. 고준위폐기물 처분장의 지하시설은 기준심도 500m에 위치하며, 처분장 건설/운영 공정 및 배치 분석을 바탕으로 설계된 지하시설의 배치는 그림 1과 같다.

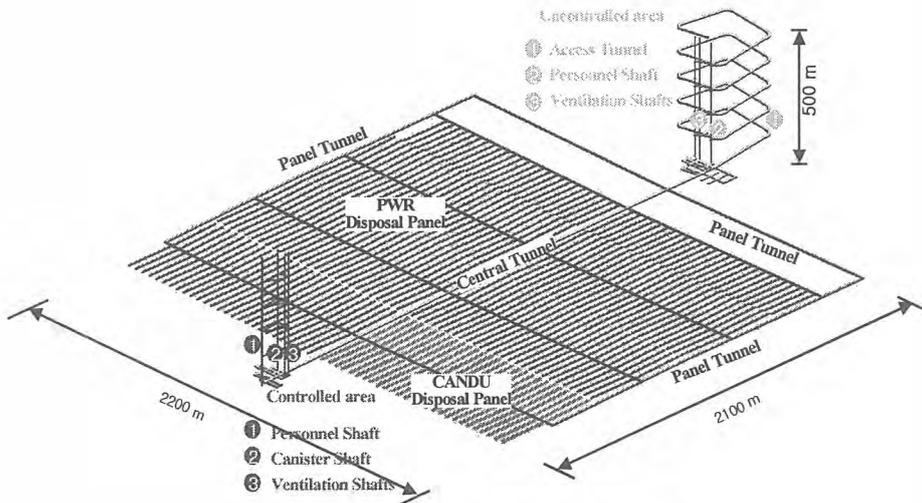


그림 1. KRS-1 처분개념의 지하시설 배치

본 연구는 고준위폐기물의 지하처분시설에 대한 원계(far-field) 열역학적 거동분석을 위해 수행되었다. 본 연구는 열역학적 거동 해석을 통하여 처분장의 열역학적 안정성을 확보하고 처분장내 처분공 배치 계획을 마련하는데 그 목적이 있다. 지하 처분시설을 PWR과 CANDU 영역으로 단순화한 모델의 열전달 해석을 수행한 결과, 처분시설에서 1km 이상 떨어진 지역의 온도변화는 2,000년동안 1°C 이내인 것으로 나타났다. 이 결과를 토대로 열역학 해석모델은 처분시설로부터 1km까지를 포함했다. 또한, 보수적인 해석과 계산시간 단축을 위해 모든 폐기물은 PWR형이며, 동시에 처분되는 것으로 가정하고, 대칭성을 고려하여 전체모델 중 1/4모델을 사용하였다.

설정된 모델을 통해서 50,000년 동안의 열역학적 해석을 수행하였다. 그림 2는 처분장의 중심과 모서리, 그리고 처분장 중심에서 수직으로 200m 떨어진 지점들에서의 50,000년간의 온도 이력을 보여준다. 처분장 중심에서의 온도는 처분 후 100년경에 70.2°C로 최고에 도달했으며, 이후에는 감소하여 50,000년 후에는 32.7°C로서, 대상 심도의 초기온도인 30.07°C에 근접했다.

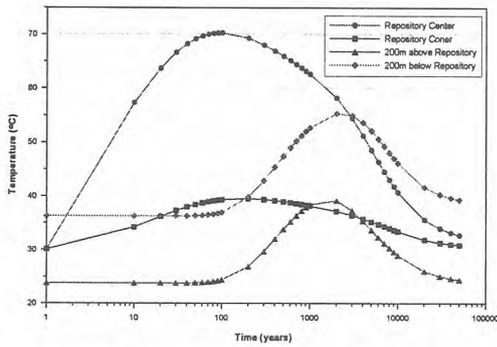


그림 2. 주요 지점의 온도 변화

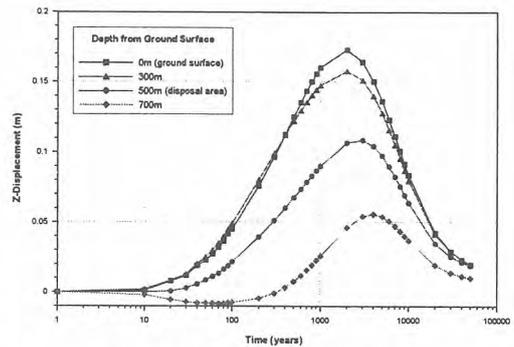


그림 3. 주요 지점의 수직변위

그림 3은 처분장 중심에서 수직방향에 위치한 지점들에서의 50,000년간의 수직변위의 양상을 나타낸다. 폐기물을 처분한 시점으로부터 약 2,000년 후에, 지표면에서의 최대 수직변위(0.173m)가 발생했으며, 처분영역에서는 약 3,000년 후에 최대 수직변위(0.109m)가 발생했다. 암반의 열팽창에 의해 발생한 수직변위는 수 만년 후에 회복되어, 폐기물 처분 이전의 상태와 근접해간다. 그러나 폐기물 처분 후, 장기간에 걸쳐 발생하는 온도 및 변위변화가 생태계에 미치는 영향에 대해 심도 있는 연구가 수행되어야 할 것이다.

본 연구에서는 KRS-1 개념에 기초하여, 500m 심도에 위치한 고준위폐기물처분장에 대한 열역학적 거동분석이 수행되었다. 폐기물의 처분에 의한 열적, 역학적 변화는 수 만년 이후에 처분 이전의 상태에 근접할 만큼 회복되는 것으로 판단되며, 현재 추가적인 해석이 진행 중이다. 또한, 처분장 운영의 효율성을 위해 고려되고 있는 복층처분장에 대한 열역학적 해석이 현재 진행 중에 있다.

## 사용후핵연료 심지층 처분을 위한 처분구역 배치 분석

이종열, 이양, 조동건, 김성기, 최희주, 최중원  
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

[njylee@kaeri.re.kr](mailto:njylee@kaeri.re.kr)

원자력 발전소에서 전기를 생산하고 난 후 발생하는 사용후핵연료는 각 발전소부지의 저장고에 임시저장 되어 있으며, '제2차 전력수급기본계획'에 따라 2013년에 폐로 예정인 월성1호기를 고려할 경우 2015년에 총 27기의 원전이 가동될 예정이다. 이후 더 이상의 추가 원전건설이 없다는 가정 하에, 이들 원전으로부터 예상되는 사용후핵연료 발생량을 추정하면 약 35,000톤에 이를 것으로 전망되며, 이를 바탕으로 사용후핵연료를 심지층에 처분하기 위한 연구가 진행되고 있다.

처분구역 배치를 위한 고려요소는 다양하지만, 여기서는 사용후핵연료 처분량 및 그에 따른 처분용기 제원 및 수량, 열-역학적 특성에 따른 처분동굴 및 처분공의 간격, 그리고 심부지하에 존재할 가능성이 있는 불연속면 등 주요 영향인자를 고려하였다. 국내 사용후핵연료 총 예상발생량으로부터 산출된 사용후핵연료 처분용기의 수량은 PWR 처분용기 11,375 개, CANDU 처분용기 2,835 개로 약 15,000 개를 처분해야 하고, 사용후핵연료를 포장하는 처분용기는 구조적 건전성을 유지하기 위한 탄소강과 내부식성을 위한 니켈합금 또는 구리로 이루어지며, 지속적인 개선이 이루어질 예정이나 현재의 제원은 외경 직경 1.22 m, 길이 4.83 m, 핵연료를 포함한 무게는 약 39 톤이다.

또한, 사용후핵연료로부터 발생하는 붕괴열을 고려하여 지하 처분장에서의 열적 기준(완충재 온도 100 °C 이하)에 부합하여야 하는 바, 우선 열해석의 결과를 토대로 처분터널과 처분공의 간격이 각각 30 x 6 m, 30 x 7 m, 35 x 6 m, 40 x 6 m인 네 개 모델을 이용하여, 열-역학 안정성을 분석한 결과 처분터널과 처분공의 간격이 40 x 6 m인 경우가 열역학적 측면과 처분장의 면적 최소화 측면에서 가장 합리적일 것으로 판단되었다. 그러나 이 경우에도 국부적인 응력집중과 소성대가 발생하는 영역에 대한 보장은 여전히 필요한 것으로 평가되었다.

심부지층 암반내의 균열대는 암반의 역학적 변위를 야기할 수 있는 연약면이고 지하수 흐름의 주된 통로가 되므로, 처분장의 건설과 폐기물 처분이 질리암반의 거동과 수리적 거동에 미치는 효과를 고려하는 것이 필요하며, 처분장주변에서 고려해야할 균열대의 분류체계를 표 1.에 나타내었다. 이로부터 처분공과 관련된 등급 3에 대한 처분터널에 직교하는 균열로부터의 처분공까지의 이론적인 안전거리와 그에 따른 처분터널의 증가량을 표 2.에 나타내었다.

표 1. 처분장 주변 균열대 분류체계

	Order	Length (m)	Width(m)	Interval(km)	T (m <sup>2</sup> /s)	Safety distance(m)
Regional fracture zone	1	>10,000	>100	>4	1E-05	100 (처분시설)
Local major fracture zone	2	1,000 - 10,000	5 - 100	1 - 4	1E-06	50 (처분터널)
Local minor fracture zone	3A	500 - 1,000	1 - 5	1<	1E-07 -	5 (처분공)
	3B	<500	<1		1E-08	3 (처분공)
Bedrock fracture system	4	<10	<0,01	-	<1E-9	-

표 2. 3등급 균열대에 따른 안전거리 및 증가율

Width of fracture (m)	Sum of safety distances (m)	Total (m)	Interval/1000 m	Proportion (%)
0,1	6	6,1	2	1,22
1	10	10,1	2	2,02
5	10	15	2	3,00

이상의 주요 고려인자에 대한 분석을 근거로 산출한 처분터널 및 처분공 소요수량 및 제원은 표 3 및 그림 1.에 나타낸 바와 같다.

표 3. 처분터널 제원 및 소요 수 산출

구분	내용
처분터널 제원	- PWR ; 37 처분홀/터널 → 36 x 6 m + 30 m + 5 m = 251 m - CANDU ; 55 처분홀/터널 → 54 x 4 m + 30 m + 5 m = 251 m
처분터널 소요 수	- PWR ; 1.05 x 11,375 = 11,944 처분홀 ▶ 11,944/37 = 323 처분터널 - CANDU ; 1.05 x 2,835 = 2,977 처분홀 ▶ 2,977/55 = 54 처분터널

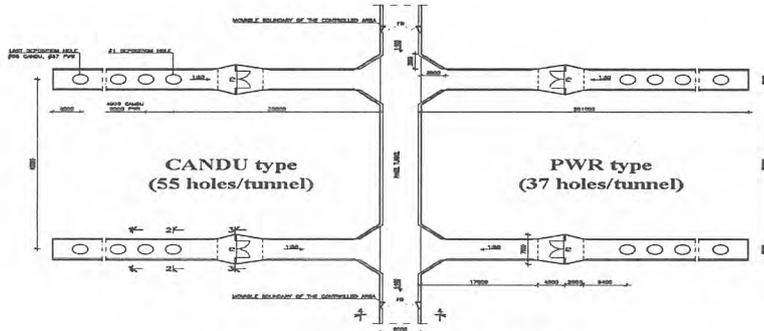


그림 1. 사용후핵연료 형별 배치계획

CANDU 처분영역은 251 m의 길이를 가진 54 개의 처분터널로 구성되고, PWR 처분영역은 251 m의 길이를 가진 323 개의 처분터널로 구성되는데, 각 처분터널 입구의 약 30 m지점에는 콘크리트 플러그와 방화벽이 설치되며, 플러그는 5 MPa의 수압과 터널 뒷채움재의 팽윤압에 견딜 수 있는 단단한 콘크리트 구조물이다. 이 구조물의 설치에 처분터널 입구의 근계영역에 높은 응력을 발생시킬 것으로 예상되므로, 이의 영향을 최소화하기 위하여 개략적인 산출에 의해 추정된 17 m를 확보하였다. 또한, 처분터널에서 처분이 진행될 때, 작업중인 터널을 패널터널과 분리하기 위해 방화문은 닫혀져 있어야 하는데, 첫 번째 처분공과 방화문 사이에 처분용기 차량의 작업공간이 필요하므로 이를 위하여 9 m를 확보하였다.

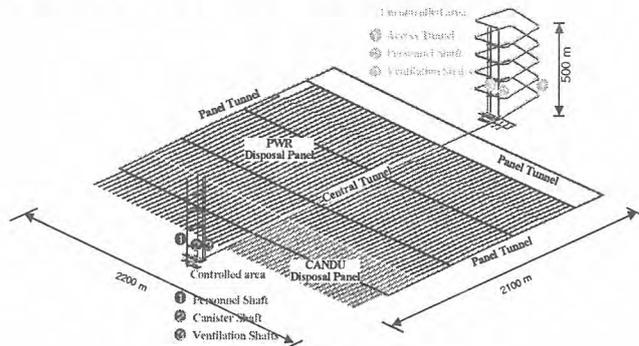


그림 2. 지하 처분구역 Layout

상기 처분 구역 배치 분석을 바탕으로 도출한 지하시설 layout을 그림 2.에 나타내었으며, 개요는 아래에 기술한 바와 같다. 처분구역은 중앙 지점을 중심으로 하여 각 터널이 1:100의 구배를 갖도록 하여, 누출수가 처분터널에서는 파넬터널로 배수되고, 파넬터널에서는 중앙터널(Central Tunnel)로 배수되며, 중앙 터널에서는 위치에 따라 통제구역과 비통제구역에 설치된 누출수 침전조로 배수가 용이하도록 배치하였다.

이상의 배치분석에 고려한 인자인 열-역학 분석 및 암반 균열대 영향 분석은 향후 실제 처분장의 물성자료를 입력하여 정량적인 해석이 필수적이다.

## 동적광산란 방법에 의한 칼슘벤토나이트 콜로이드의 안정성에 대한 연구

백민훈 · 박종훈 · 조원진 · 한필수

한국원자력연구소

점토광물의 안정성은 토양화학, 환경 과학, 몇몇 산업적 공정들에 있어 매우 중요한 요소 중의 하나이다. 특히 벤토나이트는 고준위방사성폐기물 심지층 처분장의 완충재 및 뒷채움재로 고려되어져 왔다. 최근에 이러한 처분장의 완충재와 주변 암반 사이의 경계에서 완충재로부터 벤토나이트 콜로이드가 발생되어 암반 균열을 따라 이동한다는 보고가 있었다. 이렇게 발생한 벤토나이트 콜로이드는 주변 환경에서 안정적이라고 가정하면 처분장으로부터 유출된 방사성의 이동을 가속화 시킬 수 있다. 따라서 이러한 벤토나이트 콜로이드의 심지층 처분 환경에서의 안정성에 대한 연구는 처분장 안전성 평가에 있어 고려되어야 할 부분이라고 하겠다. 그러나 지금까지 이러한 벤토나이트 콜로이드의 안정성에 대한 연구는 제한적으로 수행되어져 왔으며 특히 국내산 벤토나이트의 대부분을 차지하는 칼슘벤토나이트 콜로이드의 안정성에 대해서는 연구가 수행된 바가 없다. 따라서 본 연구에서는 우리나라의 경주에서 산출된 칼슘벤토나이트 콜로이드의 안정성에 대한 연구를 동적광산란(DLS, Dynamic Light Scattering)을 이용하는 PCS(Photon Correlation Spectroscopy) 방법을 이용하여 이온강도 및 pH 등의 지화학적 조건 변화에 따른 크기 변화를 관측함으로써 수행하였다.

벤토나이트 콜로이드는 준비된 국내산 경주벤토나이트를 초순수에 부유한 후 원심분리 방법(12000 rpm 으로 30 분)을 이용하여 분리 및 정제하여 제조하였다. 준비된 칼슘벤토나이트 콜로이드의 농도를 측정된 결과 약 1920 mg/L 인 것으로 관측되었다. 또 XRD 를 이용하여 구성광물을 분석한 결과 벤토나이트 콜로이드를 구성하는 주광물은 몬모릴로나이트 이며 다른 부광물은 거의 없는 것으로 나타났다. 양이온교환능(CEC, Cation Exchange Capacity)은 암모니아 전극(Thermo Orion)을 이용하여  $\text{NH}_4\text{Cl}$  을 벤토나이트의 이온교환양이온과 치환하여 측정하였고 약 93.3 meq./100g 인 것으로 측정되었다[25]. 실험에 사용된 벤토나이트 콜로이드의 농도는 1000 mg/L 이며 원액을 적당히 희석하여 사용하였다. 이온강도는 적정량의  $\text{NaClO}_4$  용액을 이용하여 조절하였고, pH 는 적당한 농도의  $\text{NaOH}$  와  $\text{HClO}_4$  를 이용하여 조절하였다. 시간 변화에 따른 벤토나이트 콜로이드의 크기를 측정하기 위하여 동적광산란(DLS, Dynamic Light Scattering) 또는 Quasi Elastic Light Scattering(QELS)을 이용하는 PCS(Photon Correlation Spectroscopy) 방법을 이용하였다(ZetaPlus BI-MAS, Brookhaven).

속도론적 및 평형 상태에서 pH 및 이온강도의 변화에 따른 칼슘벤토나이트 콜로이드의 크기 변화를 관측하였다. 실험결과 칼슘벤토나이트 콜로이드의 안정성은 시간, 매질의 이온강도와 pH 에 매우 크게 의존함을 보였으며 0.01M  $\text{NaClO}_4$  이상의 이온강도에서는 pH 에 상관없이 콜로이드가 불안정함을 보였다. 아울러 칼슘벤토나이트 콜로이드의 안정비(Stability ratio) W 와 CCC(Critical Coagulation Concentration) 등을 구하여 실험결과를 해석하였다. 안정비 W 는 이온강도가 증가함에 따라 감소하는 경향을 뚜렷하게 나타내었으며 pH 변화에 따른 W 값의 변화는 이온강도에 따라 다른 양상을 보였다. 또 pH 7 근처에서 칼슘벤토나이트 콜로이드의 CCC 는 약 0.05 M  $\text{NaClO}_4$  임을 알 수 있었다.

본 연구의 결과는 처분 환경의 지하수 조건에서 벤토나이트 콜로이드의 안정성을 평가함으로써 방사성 핵종의 지하매질을 통한 이동에 미치는 벤토나이트 콜로이드의 영향을 평가하는데 도움을 줄 것으로 간주된다.

## 사용후핵연료 배열을 개선한 고준위폐기물 처분용기 개발

최희주, 이종열, 조동진, 이양, 김성기, 최종원

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

한국원자력연구소에서는 고준위폐기물 한국형처분시스템의 주요한 인공방벽의 하나인 처분용기를 개발 중이다. 처분용기의 설계에 영향을 미치는 가장 중요한 인자는 용기 수명이나 이와 관련된 국내 법규는 결정되어 있지 않다. 처분시설을 준비 중인 국가들 중 일본의 경우 용기수명 1,000년을 스웨덴과 핀란드의 경우 10만년을 고려하고 있다. 국내의 경우 2가지 경우를 모두 고려하여 처분용기를 개발 중이다. 2단계 연구결과 개발된 처분용기는 2중 구조로 되어 있으며, 그 직경은 122 cm 이다. 사용후핵연료를 포함한 중량은 대략 39톤에 이르며, 이와 같은 과도한 중량은 처분시설을 구성하는 취급 시스템의 설계를 매우 어렵게 하였다.

최근 연구를 통하여 고준위폐기물 처분용기 경량화를 위하여 용기 무게의 대부분을 차지하는 내부 구조물(insert)에 대한 설계를 검토하여 그 크기를 최적화하였다. 기존의 처분용기의 사용후핵연료 배열 방식(KDC-1)은 그 구조상 사용후핵연료와 내부 구조물의 외경의 거리가 너무 작아 이를 개선한 새로운 내부 구조물(KDC-2)을 본 연구에서 제시하였다. 본 연구에서는 개선된 내부 구조물의 건전성을 평가하기 위하여 구조 및 열 해석을 통하여 기존의 사용후핵연료 배열과 비교하였다.

최적화 연구를 통하여 개선된 처분용기(KDC-1)의 외경은 102 cm이며, 높이는 483 cm이다. Fig. 1에 KDC-1과 KDC-2의 단면을 나타내었다. Fig. 1에 나타난 바와 같이 동일한 외경을 가졌을 경우 KDC-1은 사용후핵연료와 내부 구조물 외경과의 거리가 5cm밖에 되지 않아 더 이상 용기 크기를 줄이기에 어려움이 많았다. 사용후핵연료 배열을 KDC-2와 같이 45도 회전시킬 경우 사용후핵연료와 내부 구조물 사이의 거리가 약 8.4 cm가 되어 용기 크기를 더욱 줄일 수 있다.

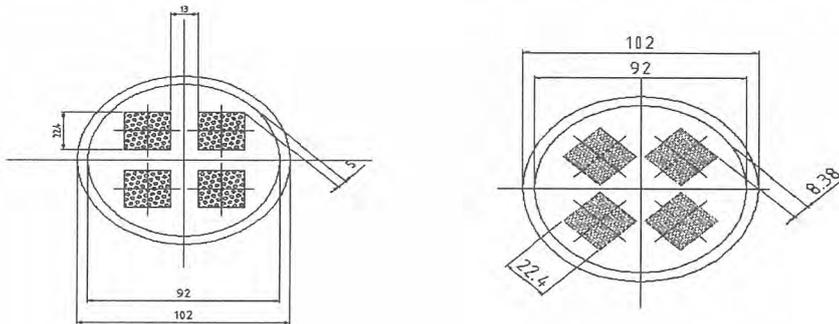


Fig. 1. Schematic of KDC-1 and KDC-2.

새로이 제안된 고준위폐기물 처분용기 내부구조물에 대한 구조 해석 및 열 해석을 수행하여 기존의 배열과 비교하였다. 용기의 구조 해석에는 유한 요소법을 이용하고 있는 NISA 프로그램을 이용하였으며, 계산에 이용된 하중 조건은 KDC-1 설계에 이용하였던 극한 조건과 정상 조건 2가지를 이용하였다. 계산 결과를 비교하기 위하여 극한 조건의 경우 안전계수 1.5와 정상 조건의 경우 안전계수 2.0과 비교하였다(Table 1 참조). 열 해석을 위하여 PWR 사용후핵연료에 관한 열원을 ORIGEN-ARP 코드를 이용하여 새로이 계산하였다(Fig. 2 참고). 열 해석 결과는 처분용기와 완충재 사이의 온도가 100 °C 이하가 되도록 하는 조건과 비교하였다. 열 해석은 구조물에 대한 3차원 해석을 이용하였다. 지열구배(thermal gradient)는 30°C/km를 적용하였으며, 지표면에서의

경계 조건은 15°C가 유지된다고 가정하였으며, 옆 단면에 대해서는 대칭 조건을 이용하였다.

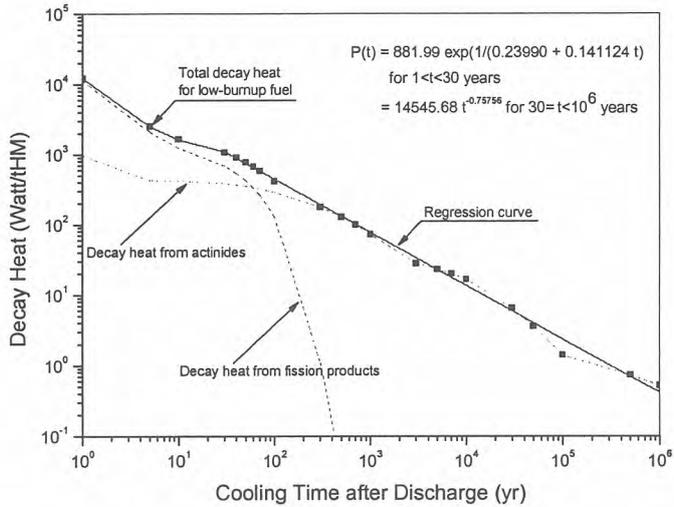


Fig. 2. Decay heat of spent PWR and CANDU fuels and the approximation formula for decay heat estimation.

Table 1. Comparison of von-Mises stresses under the extreme load conditions(case-1)

pressure direction (7 MPa)	von-Mises stress (cast insert)	Max von-Mises stress (FS)	max. deform
		111.9 MPa (1.79)	2.64mm
		121.4 MPa (1.65)	2.64mm

## 자연재해 사건에 대한 방사성폐기물처분장 안전성 평가 방법론

황용수, 한지웅, 서은진, 이연명, 강철형  
 한국원자력연구소, 대전시 유성구 덕진동 150

yshwang@kaeri.re.kr

### 요약

2007년 초 발간될 한국형기준처분시스템의 종합안전성 평가의 일환으로 수행될 자연 재해 사건들에 대한 평가를 위해 전체 안전성 평가 프레임워크 내에서 자연 재해 사건 평가 방법에 대한 접근론이 개발되고 이에 의거해 Process Model(PM)을 개발하기 위한 국내외적 자료가 분석 평가되었다. 이로부터 FEP, 평가 방법론 등 Analysis Model(AM)의 일부분이 개발되었으며 향후 이를 바탕으로 안전성 평가 계산이 수행될 예정이다. 연구 결과 지진과 관련된 자연 재해 사건의 국내의 사례를 종합해 볼 때 극히 보수적인 종합 안전성 평가를 위해서는 처분장 주변에 위치한 단층대가 지진 발생 시 단열이 최대 10 m 정도 변화할 것으로 예상하는 것이 타당할 것으로 판단된다.

### 본문

자연 재해 사건 중 처분장 안전성에 영향을 미칠 수 있는 사건들로는 그림 1에 도시된 바와 같이 화산 활동과 지진 활동이 있다. 미국 YMP와는 달리 국내에서는 화산 활동에 의한 안전성 문제는 중요하지 않으나 지진으로 인한 안전성 위협 문제는 많은 일반 대중들에게 있어 커다란 관심사 중의 하나이다. 이러한 처분 안전성에 대한 국민적 관심을 제고하기 위해 처분장 주변 단층대가 지진으로 인해 얼마나 영향을 받고 이러한 영향에 따라 처분장 주변 지하수 유동 및 방사성 핵종들의 유출 현상 변화를 예측하는 연구가 중요하다.

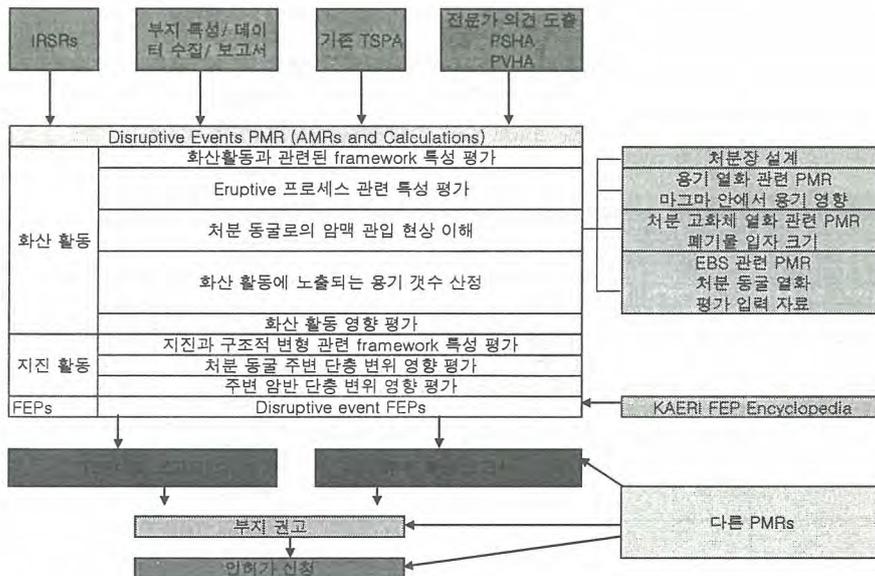


그림 1. 고준위 방사성폐기물 처분장 종합 성능 평가에서 다루는 자연 재해 사건 및 평가 방안

그러나 국내에서는 지진 관측 역사가 매우 일천하고 현장 데이터가 열악하기 때문에 지진과 관련

된 과학적 자료를 수집하는데 한계가 있다. 하지만 우리나라와 같이 결정질 암반이 잘 발달되어 있으며 우리나라와 유사하게 비교적 지진 활동이 적은 스웨덴의 연구 사례와 최근 비교적 활발하게 현장 조사가 수행되고 있는 입실 및 월성 지역 단층 조사 결과물들은 보수적인 종합 안전성 평가를 위해 필요한 최소한의 기본 자료를 제시하고 있다. 입실 단층대의 경우 지진으로 인해 기존 단층대에 약 1.2 미터 정도의 추가적인 변화가 발생하였으며 월성의 경우 공식적인 자료는 발표되지 않았으나 수 미터 규모의 변화가 발생한 것으로 판단된다. 그림 2에 도시된 스웨덴의 연구 결과는 처분장에 일정 규모의 지진이 발생할 경우 처분장으로부터 일정 거리에 떨어진 단층대에 최대 1 미터 이하의 변화가 발생할 것을 예측한다. 한편 미국 YMP에서는 표 1에 도시된 바와 같이 지진 및 지진 활동으로 인한 단층 영향 평가를 대부분의 경우 배제하고 있다. 그러나 국내 연구에서는 지진에 대한 국민적 관심이 점점하고 있기 때문에 특정 부지를 대상으로 하지 않는 현 단계 연구에서는 배제하지 않고 정량적인 안전성을 평가할 예정이다. 보수적인 관점에서 처분장 안전성 평가를 위해서는 처분장 중심이나 주변에 강력한 지진이 발생하더라도 유출된 방사성 핵종들의 주 이동 통로인 단층대는 10 미터 이하의 변화를 겪을 것으로 판단해도 무리가 없을 것이다.

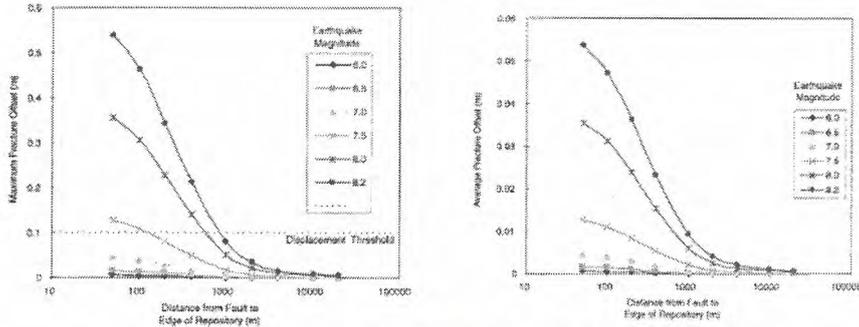


그림 2. 지진 규모와 단열 변화

표 1. 미국 YMP에서 지진과 관련된 FEP 선별 평가 결과

YMP1.2.02.02.00	Faulting	Include existing characteristics Exclude changes to	Low consequence
YMP1.2.02.02.05	Faulting/Fracturing	Include	
YMP1.2.02.02.08	Normal faulting occurs or exists	Include	
YMP1.2.02.02.09	Strike/slip faulting occurs or exists	Include	
YMP1.2.02.02.10	Detachment faulting occurs or exists	Exclude	Low consequence
YMP1.2.02.02.11	Dip/slip faulting occurs	Include	
YMP1.2.02.02.12	New fault occurs	Exclude	Low consequence
YMP1.2.02.02.13	Old fault strand is reactivated	Exclude	Low probability
YMP1.2.02.02.14	New fault strand is activated	Exclude	Low probability
YMP1.2.02.03.00	Fault movement shears waste container	Exclude	Low probability
YMP1.2.03.01.00	Seismic activity (including faulting, hydraulic heads, recharge-discharge zones, rock stresses, drift integrity)	Exclude for indirect effects Include for drip shield and fuel-rod cladding	Low consequence
YMP1.2.03.02.00	Seismic vibration causes container failure	Exclude TBV for WP Include for drip shield and fuel-rod cladding	Low consequence
YMP1.2.03.02.01	Container failure induced by microseisms associated with dike emplacement	Exclude TBV	Low consequence

Development of Cyber R&D Platform on Total System Performance  
Assessment for a Potential HLW Repository ; Application for  
Development of Scenario through QA Procedures

고준위 방사성폐기물 처분 종합 성능 평가 (TSPA)를 위한  
Cyber R&D Platform 개발 ; 시나리오 도출 과정에서의 품질보증 적용 사례

Eun-JinSeo, Yong-sooHwang, and Chul-HyungKang

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Deok-jin Dong, Yuseong-ku, Daejeon

서은진, 황용수, 강철형

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

[eiseo@kaeri.re.kr](mailto:eiseo@kaeri.re.kr)

**Abstract**

Transparency on the Total System Performance Assessment (TSPA) is the key issue to enhance the public acceptance for a permanent high level radioactive repository. To approve it, all performances on TSPA through Quality Assurance is necessary. The integrated Cyber R&D Platform is developed by KAERI using the T2R3 principles applicable for five major steps in R&D's. The proposed system is implemented in the web-based system so that all participants in TSPA are able to access the system. It is composed of FEAS (FEp to Assessment through Scenario development) showing systematic approach from the FEPs to Assessment methods flow chart, PAID (Performance Assessment Input Databases) showing PA(Performance Assessment) input data set in web based system and QA system recoding those data. All information is integrated into Cyber R&D Platform so that every data in the system can be checked whenever necessary. For more user-friendly system, system upgrade included input data & documentation package is under development. Throughout the next phase R&D, Cyber R&D Platform will be connected with the assessment tool for TSPA so that it will be expected to search the whole information in one unified system.

**Key word** : Total System Performance Assessment, Cyber R&D Platform, Quality Assurance, FEAS, PAID

**요 약**

고준위 방사성폐기물 처분 연구 사업이 법률적인 인허가 뿐만이 아니라 일반 국민의 동의를 얻기 위해서는 처분 사업의 안전성에 대한 신뢰성 획득이 중요하며 이를 위해 투명하게 공개될 수 있는 종합 성능 평가 (TSPA, Total System Performance Assessment)의 수행이 필요하다. 본 연구에서는 처분 성능 평가 투명성 제고와 신뢰성 향상을 위한 방안의 하나로 처분 종합 성능 평가에 대한 품질 보증 원칙을 도입하여 평가 관련 전체 업무에 관한 투명성 증진을 꾀하고자 한다. 특히 인터넷을 기반으로 하는 품질 보증 시스템의 개발을 통해 실험을 통해서 얻어지는 평가 입력 자료들 뿐 아니라 평가 수행을 위한 계획 수립과 결과물, 그리고 결과물에 대한 검토 등에 이

르기까지 안전성 평가 전 과정에서 투명성이 유지된 데이터들이 높은 신뢰성을 가지고 향후에도 활용될 수 있도록 하였다. 본 연구에서 개발한 Cyber R&D Platform은 인터넷을 기반으로 하는 프로그램으로 안전성 평가를 위한 시나리오 개발 관련 데이터인 FEP 목록과 관련 시나리오 정보, 관련 시나리오 도출 과정 및 평가 체계 등을 체계적으로 구축한 FEAS (FEp to Assessment through Scenario development) 프로그램과 안전성 평가에 필요한 입력 데이터들을 분류, 저장해 놓은 PAID (Performance Assessment Input Data) 프로그램, 그리고 이러한 자료들을 입력할 수 있는 품질 보증 시스템으로 구성되어 있으며 이를 통합 운영함으로써 도출된 데이터들의 신뢰성을 높이고자 하였으며 향후 이해 당사자들이 “처분장에서 생태계에 이르는 핵종들의 이동 경로에 대한 시나리오는 어떠한 것이며, 그 평가 결과들과 평가에 이용되는 실제 데이터들은 어떤 것인지”에 대해 쉽게 이해할 수 있고 또 관련 자료들이 어떠한 원칙에 따른 검토를 거쳤는지에 관해서도 확인할 수 있게 할 것이다.

**중심단어** : 처분종합성능평가, Cyber R&D Platform, 품질 보증, FEAS, PAID

## 1. 서론

고준위 방사성 폐기물 처분 종합 성능 평가 (TSPA, Total System Performance Assessment)란 오랜 기간에 걸쳐 반복적인 과정을 통해 향후 건설될 처분 시스템의 안전성을 입증해 나가는 것이다. 처분 종합 성능 평가에는 실제 안전성 평가 업무 뿐만 아니라 평가 수행을 위한 계획 수립과 평가 결과의 문서화 정리 및 결과에 대한 검토 등의 업무가 포함되어 있으며 이 외에도 평가에 필요한 입력 데이터 도출을 위한 계획 수립, 도출된 데이터를 문서화하는 작업과 도출 데이터에 대한 전문가의 검토 작업 등의 다양한 업무들로 구성되어 있다. 이들 업무들이 일관된 원칙 하에서 수행되고 평가 결과물을 포함한 업무 관련 내용들이 잘 기록 보존된다면 향후 처분장 관련 법률적인 인허가를 위해서 뿐만 아니라 지역 주민을 비롯한 일반 국민들의 처분 시스템 안전성에 대한 신뢰성 향상에도 기여할 수 있을 것이다.

본 연구에서는 처분 성능 평가 신뢰성 향상을 위한 방안의 하나로 처분 종합 성능 평가에 대한 품질 보증 원칙을 도입하여 평가 관련 전체 업무에 관한 투명성 증진을 꾀하고자 하였다. 특히 인터넷을 기반으로 하는 품질 보증 시스템의 개발을 통해 실험을 통해서 얻어지는 평가 입력 자료들 뿐 아니라 평가 수행을 위한 계획 수립과 결과물, 그리고 결과물에 대한 검토 등에 이르기까지 안전성 평가 전 과정에서 투명성이 유지된 데이터들이 높은 신뢰성을 가지고 향후에도 활용될 수 있도록 하였다. 본 연구에서 개발한 웹 기반 Cyber R&D Platform은 현재 안전성 평가를 위한 시나리오 개발 관련 데이터인 FEP 목록과 관련 시나리오 정보, 관련 시나리오 도출 과정 및 평가 체계 등을 체계적으로 구축한 FEAS (FEp to Assessment through Scenario development) 프로그램과 안전성 평가에 필요한 입력 데이터들을 분류, 저장해 놓은 PAID (Performance Assessment Input Data) 프로그램, 그리고 관련 자료를 입력할 수 있는 품질 보증 시스템으로 구성되어 있으며 이들을 통합 운영함으로써 도출된 평가 관련 데이터들의 신뢰성을 높이고자 하였다. 또한 평가 관련 계획에서부터 결과물 검토에 이르는 일련의 작업들이 웹 기반 품질 보증 시스템 내에서 일관된 원칙에 의해 수행되도록 하였다.

현재 사용자들이 이용하기에 좀 더 편리하고 친숙한 종합 시스템 구현을 위해 시스템의 개념적 구성 및 기술적 보완 등을 강화하는 작업이 진행 중이며 향후 연구에서는 Cyber R&D Platform과 평가 software와의 통합 운영으로 웹 기반 시스템에 대한 한 번의 접속만으로 평가 계획, 실제 수행, 관련 결과의 문서화 및 이에 대한 검토가 가능할 수 있도록 할 것이며 모든 기록은 저장 보존됨으로써 처분 연구의 신뢰성 증진에 중요한 역할을 하도록 할 것이다.

## 2. 품질 보증이란

일반적으로 품질 보증이란 시스템과 그 구성 요소가 지정된 품질 요구를 충족시키고 만족스럽게 임무를 수행할 수 있는 적절한 신뢰성을 제공하는데 필요한 계획된 체계적인 행동이라 정의된다 [1]. 처분 종합 성능 평가에 있어 품질 보증이란 평가 관련 전 과정이 일관된 원칙에 의해 수행되어 public acceptance를 위한 안전성 평가의 투명성 증진에 크게 기여할 수 있는 것이라 생각되며 특히 이해당사자들이 이해하기 쉬운 자료의 제공과 제공된 자료에 대한 품질 보증은 법률적인 인허가 절차뿐만 아니라 이해 당사자들 간의 상호 신뢰성 제고를 위해 매우 중요하다고 할 수 있다. 이에 본 연구에서는 평가 관련 전 과정이 통합 Cyber R&D Platform 내 품질보증 시스템에 기록될 수 있도록 하여 처분 안전성 평가에 대한 신뢰성을 높이고자 하였다. 적용되는 품질 보증 원칙은 T2R3의 개념을 만족시킬 수 있도록 하였다.

T2R3의 개념은 ISO 9001, ISO 9000-3과 같은 일반적 품질 보증 체계와 1997년 개정된 ANSI (America National Standard Institute)의 NQA 1/2 및 NQA 3과 같이 미국 NRC 10CFR50 부록 B에 규정된 원자력 관련 품질 보증 체계에서 강조된 품질 보증 개념을 정리한 미국 샌디아 국립 연구소의 방사성 폐기물 처분 연구와 관련한 품질 보증에 도입한 개념으로 그 내용은 다음과 같다[1].

- (1) 추적성 (Traceability) : 어떤 결론에 영향을 미친 입력 혹은 데이터의 근원과 합리적인 추론 과정을 이해한다.
- (2) 투명성 (Transparency) : 결과를 도출해 낸 논리, 계산 및 그 외 다른 운용 과정을 추적할 수 있다.
- (3) 평가성 (Reviews) : 주석과 해법을 포함한 문서화된 기술적이고 품질 보증 관련 검토 사항이 잘 수록되어 있다.
- (4) 재현성 (Reproducibility) : 결과를 재생산할 수 있다.
- (5) 회수성 (Retrievability) : 관련문서를 체계적으로 찾거나 복구할 수 있다.

그림 1은 이러한 T2R3의 개념 등이 처분 종합 성능 평가 수행의 다섯 단계인 (1) 기획, (2) 연구 수행, (3) 문서화, (4) 내부 검토, (5) 독자적인 외부 검토 과정에서 어떻게 적용되어야 하는지를 도시하고 있다.



그림 1. T2R3와 처분종합성능평가 수행 단계간의 상호 관계

### 3. Cyber R&D Platform 개발

본 연구에서는 전술한 바와 같이 고준위 방사성 폐기물 처분 연구에 적합한 품질 보증 원칙을 적용하여 모든 연구 참여자들이 쉽게 이용할 수 있는 웹 기반 품질 보증 시스템을 포함하는 Cyber R&D Platform을 개발하여 일관된 원칙 하에 관련 자료들을 입력하고 검색할 수 있도록 하였다. 본 연구에서는 종합성능평가 관련 품질 보증을 위해 다음과 같은 원칙들을 적용하였다.

가. 모든 자료들은 세부 프로젝트를 중심으로 입력한다.

나. 사용자는 전체 시스템 관리자, 세부 프로젝트 관리자, 일반 사용자로 구분하며 각 사용자 계층에 따라 프로그램 접근 방법이 달라진다.

다. 프로젝트에서 생성된 문서는 모두 기록되며 수정을 필요한 경우에는 기존 생성된 문서를 이용하여 수정할 수 있어야 한다.

라. 모든 문서들은 T2R3 원칙하에 단계별 검토 승인 후 해당 검토자의 서명이 있어야 유효하며 최종 승인된 자료들만 품질 보증 시스템에 기록 저장되어 열람할 수 있다.

프로젝트의 생성은 기술적으로 시스템 관리자가 할 수 있으며 해당 프로젝트의 책임자는 프로젝트 참여자들을 선택할 수 있다. 프로젝트 참여자들은 품질 보증 절차에 따라 관련 데이터를 입력, 수정, 검색할 수 있으며 해당 프로젝트의 참여자가 아니라면 관련 데이터들을 입력할 수는 없지만 관련 자료들을 검색, 확인할 수는 있으므로 사용자 누구든 쉽고 편리하게 신뢰성 높은 자료들을 종합성능평가에 활용할 수 있다.

그림 2는 전술한 품질 보증 적용 절차를 도식화하여 나타낸 것이다[2]. 품질 보증 관련 문서 작성, 승인 과정에서 사용자들은 서명이라는 절차를 통해 문서의 작성 확인, 검토 및 승인을 할 수 있는데 프로젝트 참여자들의 서명은 미리 저장되어 간단한 클릭에 의해 문서에 기록되도록 개발되었다.

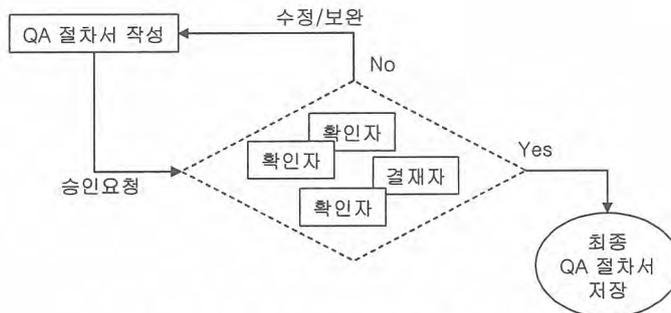


그림 2. 품질 보증 절차서 작성 과정 도식도

### 4. Cyber R&D Platform에서의 품질보증 적용 사례

: 시나리오 도출 과정 및 평가

FEP으로부터 시나리오까지의 구성 과정 그리고 관련 평가 방법 흐름도를 도출해 내는 것은 매우 복잡한 작업이다. 그러나 안전성 평가에 대한 신뢰성 증진을 위해서는 투명하게 공개될 수 있

는 평가 수행이 필요하다.

Cyber R&D Platform에서 FEP을 비롯한 관련 자료들은 품질 보증 시스템 내에서 품질 보증 절차에 따라 입력되며 이들 데이터들은 FEAS 시스템에 체계적으로 분류 저장되어 사용자가 편리하게 데이터를 검색, 확인할 수 있다.

예를 들면 “초기용기파손 시나리오 평가” 관련 자료들을 품질 보증 시스템을 통해 입력한다면 다음과 같은 단계를 거치게 된다.

- 가. 시스템 관리자가 “초기용기파손 시나리오 평가” 프로젝트를 생성하고 프로젝트 책임자를 선정한다.
- 나. 선정된 프로젝트 책임자는 참여자들을 선정하고 프로젝트 관련 품질 보증 입력 양식들을 선정한다.
- 다. 각 참여자들은 해당 품질 보증 입력 양식에 따라 데이터를 입력하고 정해진 절차에 따른 검토, 승인을 거친 데이터들은 시스템에 최종적으로 기록, 저장된다.

시나리오 평가 관련 입력 자료의 종류는 다음과 같다.

가. FEP : FEP은 물리적 방벽별로 구분되어 있으므로 먼저 해당하는 물리적 방벽 종류를 선택한 다음 평가 시나리오 관련한 FEP의 이름, 그 영향 (Influence) 및 관련 반응 (Process), 관련 규제, 전문가 평가 (우선 순위) 등을 입력한다. 그림 3은 이와 같은 FEP 입력 과정을 상세히 나타낸다.

나. RES : 해당 RES 이름을 입력하고 RES를 구성할 element의 종류와 그 중요도를 선택한다. 그리고 선택한 element와 관련 있는 FEP들도 FEP 목록에서 지정해 준다. 이 때 입력된 FEP 정보는 FEP 목록 내 관련 RES 정보에도 자동 저장되어 FEP 검색시 이를 확인할 수 있다.

그림 4는 RSE의 입력 과정을 나타낸다.

다. 시나리오 : 시나리오는 생성된 RES 정보를 이용하여 도출할 수 있다. 각 RES 구성 element 중 시나리오 도출을 위해 필요한 element만을 순서대로 선별하여 시나리오를 작성한다.

그림 5는 시나리오 입력 과정을 나타낸다.

라. AMF (Assessment Method Flowchart) : AMF는 생성된 RES(시나리오)에 대해 작성할 수 있다. AMF 입력은 RES element별로 개념모델, 평가 tool, 우선 순위, 입력 자료 현황, 향후 계획, 담당자 등의 정보를 입력한다.

마. 평가 결과 자료 : 이용한 평가 tool에 따라 해당 양식을 선택하여 시나리오 평가 결과를 입력한다.

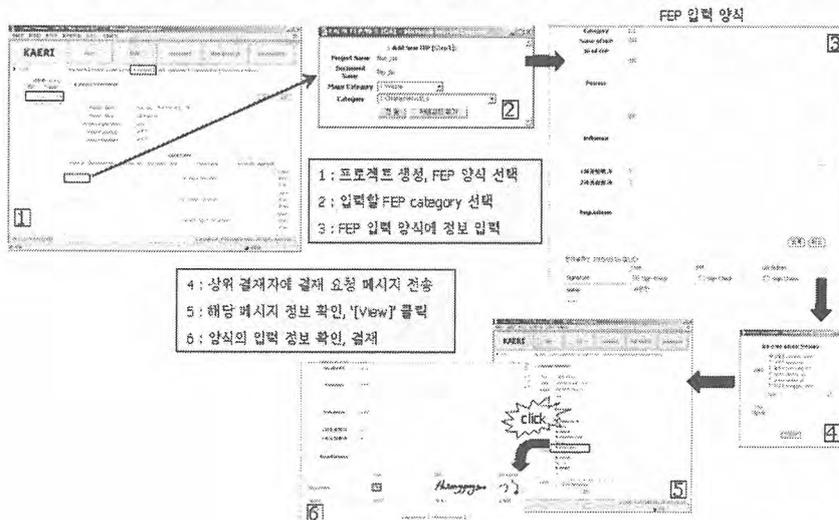


그림 3. 품질 보증 절차를 통한 FEP 데이터 입력

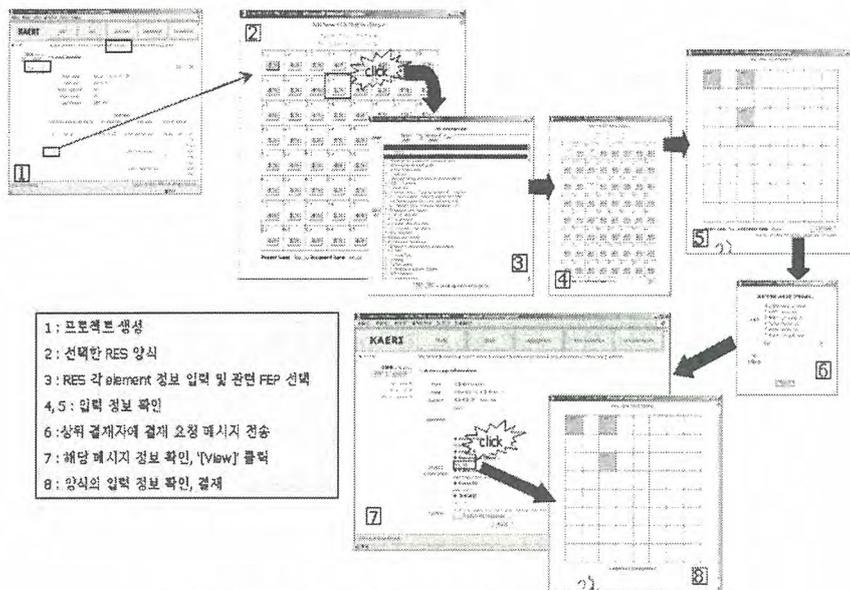


그림 4. 품질 보증 절차를 통한 RES 데이터 입력

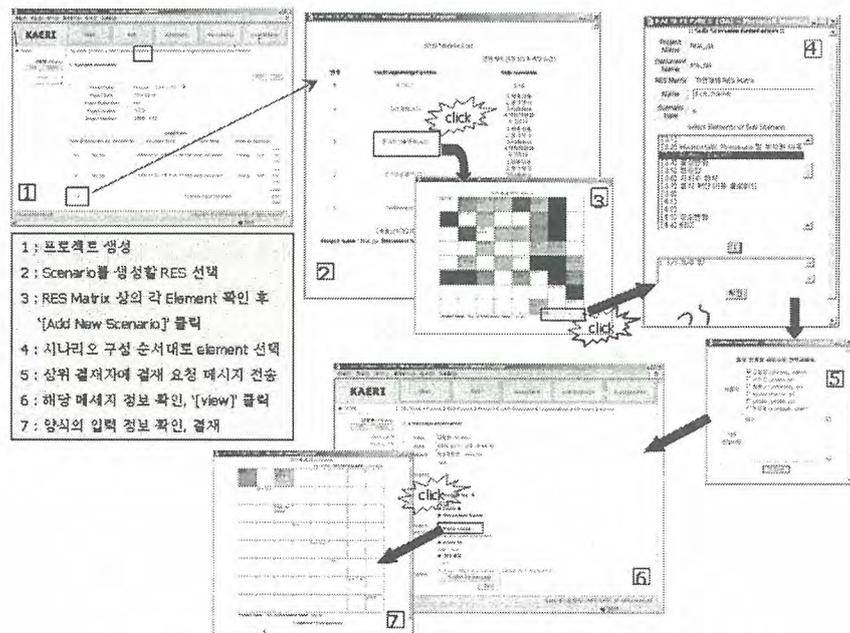


그림 5. 품질 보증 절차를 통한 시나리오 데이터 입력

그림 6,7은 FEAS 시스템에서 품질 보증 절차를 거친 FEP, RES, 시나리오 데이터의 검색 화면을 나타낸다.

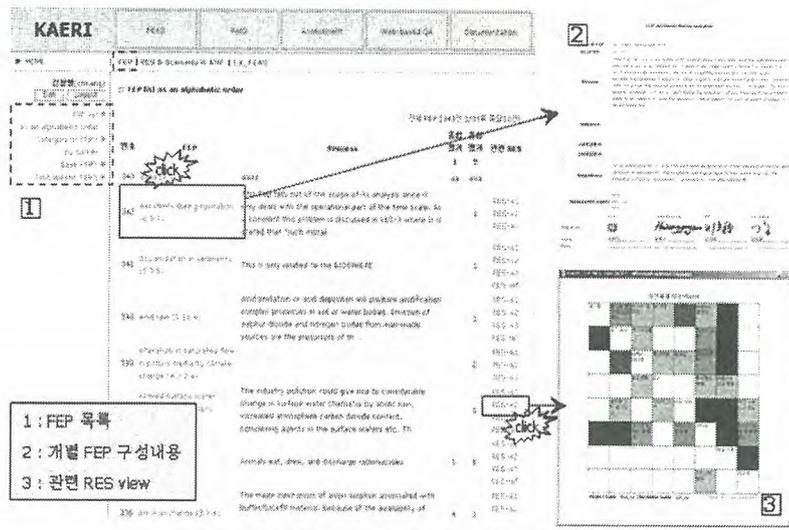


그림 6. FEAS system에서 FEP 정보 검색

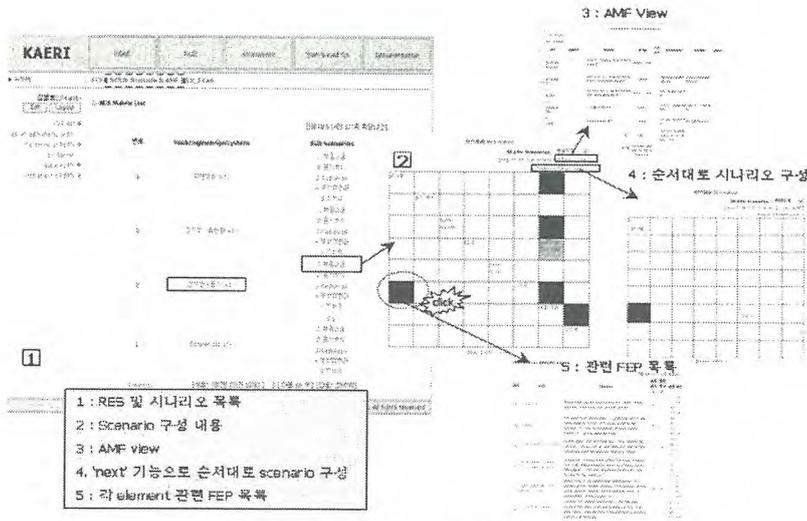


그림 7. FEAS system에서 RES/시나리오 정보 검색

## 5. 결론 및 향후 계획

처분 종합 성능 평가에 있어서 품질 보증이란 투명성 증진의 한 방안으로 매우 중요한 요소이다. 특히 각 이해당사자들이 이해하기 쉬운 자료의 제공과 제공된 자료에 대한 품질 보증은 법률적인 인허가 절차뿐만 아니라 이해 당사자들 간의 상호 신뢰성 제고를 위해서도 필요하다.

본 연구에서 개발한 웹을 기반으로 하는 Cyber R&D Platform은 평가 관련 FEP/시나리오 관련 데이터베이스인 FEAS와 평가 입력 데이터베이스인 PAID, 그리고 관련 자료를 입력할 수 있는 품질 보증 시스템으로 구성되어 있으며 이들을 통합 운영함으로써 종합 성능 평가에서 실험을 통해서 얻어지는 값들 뿐 아니라 평가 결과물에 이르기까지 전 연구 과정에서 투명성이 유지된 데이터들이 높은 신뢰성을 가지고 향후에도 활용될 수 있도록 하였다.

또한 Cyber R&D Platform에서 입력 저장되는 자료들에 대한 좀 더 높은 신뢰성 증진을 꾀하고 사용자에게 보다 편리한 시스템 개발을 위해 아래 내용들을 포함한 다양한 개선 보완 업무가 수행 중에 있다.

가. 안전성 평가 입력 데이터들은 그 종류가 매우 다양하므로 입력 데이터 종류별로 입력 양식 및 검색 양식들을 보완 개선하여 사용자들이 좀 더 쉽게 이용할 수 있게 하고자 한다.

나. 평가 관련 입력 데이터들의 향후 효율적인 이용을 위하여 특정한 목적에 맞는 데이터를 분류하여 기록 저장할 수 있는 문서화 기능의 추가 보완이 진행 중에 있다.

다. FEP/RES/시나리오 도출 과정에서의 데이터 입력과 검색 기능을 사용자 편의와 이해 증진을 보다 높일 수 있는 방향으로 보완, 개선하는 작업이 이루어지고 있다.

이 외에도 품질 보증 적용 과정에서의 수정 사항 등 실제 사용자들의 의견 수렴을 거친 개선 항목들을 선별, 수렴하여 개발 과정에 적극 반영해 나가고 있다.

또한 향후 연구에서는 Cyber R&D Platform과 평가 software와의 통합 운영으로 웹 기반 시스템에 대한 한 번의 접속만으로 평가 계획, 실제 평가 수행, 관련 문서화 및 이에 대한 검토가 가능할 수 있도록 할 것이며 이에 대한 모든 기록은 저장 보존됨으로써 처분 연구의 신뢰성 증진에 중요한 역할을 하도록 할 것이다.

## References

1. 황용수 외, “고준위 방사성폐기물 종합 성능 평가를 위한 품질 보증 체계 개발”, KAERI/TR-2296/2002, 2002.
2. 강철형 외, “심지층처분시스템 개발”, KAERI/RR-2336/2002, 2002.

## 완충재 첨가제에 의한 용액중 요오드 농도의 감소

김승수, 전관식, 최종원, 한필수

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

사용후핵연료를 재처리없이 직접 처분할 경우 연료봉을 담고 있는 금속용기의 수명을 1000년으로 가정하면 이 기간이 경과한 후 핵연료로부터 완충재 층을 통과하여 유출되는 핵종 중 I-129가 위해도가 가장 큰 핵종으로 예상된다. 따라서 이 I-129의 이동을 지연시키기 위하여 금속용기의 부식 생성물, 요오드 흡착광물 및 용해도가 작은 요오드 침전물을 형성할 수 있는 물질을 벤토나이트에 첨가하여 용액중 요오드 농도 감소를 검토하였다.

금속용기의 부식물로서 철, 구리 니켈의 산화물 및 황화물과, 요오드 흡착물질로 알려진 황동석, 황철석, 동광석, 고령토, 방연광과 활성탄, 그리고 요오드와 반응하여 용해도가 낮은 침전을 형성하는 은, 물리브렌, 텅스텐 산화물을 첨가제로 사용하였다. 이 첨가제 각각을 벤토나이트와 요오드를 포함한 모의 지하수(pH=9.5)에 넣고, 4주동안 상온에서 교반시킨 다음 여과하여 용액중 요오드 농도를 측정함으로써 표 1을 얻었다.

처분용기 재료의 철과 그 부식생성물들은 요오드를 거의 흡착하지 못했으나, Cu와 CuS의 경우는 용액중 요오드의 농도가 1/2로 감소하였다. 그러나 실제 고성지역 지하수를 사용하여 질소분위기에서 흡착시험한 결과 산화분위기와 달리 요오드가 거의 흡착되지 않았다. 요오드를 잘 흡착하는 것으로 알려져 있는 위의 첨가 광물들은 활성탄을 제외하고 요오드를 거의 흡착하지 못하였다. 그러나 Ag<sub>2</sub>O의 경우는 이를 0.3 mg 첨가하여도 0.12 mg의 요오드를 침전시켜 용액중 요오드가 거의 검출되지 않았다. 이는 AgI의 용해도가 25, 60°C 증류수에서 각각  $2.8 \times 10^{-8}$ ,  $2.5 \times 10^{-7}$  g/L로 매우 낮기 때문이다. MoI<sub>2</sub>와 WI<sub>2</sub>의 경우도 냉수에서 용해도가 작은 것으로 알려져 있으나, MoO<sub>3</sub>와 WO<sub>3</sub>가 요오드와 반응하지 않았으며, MoI<sub>2</sub>와 WI<sub>2</sub>가 열수에서 분해되는 경향이 있는 것으로 알려져 있다. 국내 금광산의 찌꺼기인 광미중 약 50 µg/g을 함유한 광미 1g을 요오드 용액에 첨가하였을 경우 벤토나이트가 없는 조건에서 용액중 요오드가 약 15 µg이 제거되었는데, 완충재의 첨가물로 사용하려면 보다 많은 양의 은을 함유한 광미를 사용하여야 할 것이다.

본 시험으로부터 철과 구리의 금속용기재료에 의한 요오드의 흡착은 기대하기 어렵고, 심부처분환경에서 I-129의 이동을 지연시키기 위해서 벤토나이트에 첨가 가능한 물질로는 은화합물과 활성탄 뿐으로 판단된다.

표 1. 벤토나이트 첨가제에 의한 요오드의 흡착실험 결과

첨가제		첨가제 무게 (g)	벤토나이트 (g)	용액중 초기농도 (mg/L)	실험후 용액농도 (mg/L)	Kd (ml/g)	흡착량 ( $\mu$ g)
-		-	1	9.09	8.8		
금속용기 재질 및 부식 생성물	Fe	0.1	1	9.09	8.9		
	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.1	1	9.09	9.5		
	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	0.1	1	9.09	9.4		
	Fe(OH) <sub>3</sub>	0.1	1	9.09	9.3		
	Cu	0.1	1	9.09	5.5 (9.9) <sup>a</sup>	108	
	CuO	0.1	1	9.09	9.9		
	Cu <sub>2</sub> O	0.1	1	9.09	9.2		
	CuS	0.1	1	9.09	4.3 (9.0) <sup>a</sup>	184	
	Cu <sub>2</sub> S	0.1	1	9.09	9.9		
	Cu(OH) <sub>2</sub>	0.1	1	9.09	9.0		
	CuCl	0.1	1	9.09			
	NiO	0.1	1	9.09	9.9		
광물	황동석	0.1	1	9.09	8.9		
	황철석	0.1	1	9.09	9.0		
	동광석	0.1	1	9.09	8.7		
	고령토	0.1	1	9.09	8.8		
	방연광	0.1	1	9.09	7.4	40	
은산화물 및 은 광석	Ag <sub>2</sub> O	0.1	1	9.09	<0.01		
		7.6x10 <sup>-3</sup>	1	9.09	0.04	4.9x10 <sup>5</sup>	
		1.2x10 <sup>-3</sup>	1	9.09	0.07	1.8x10 <sup>6</sup>	
		3x10 <sup>-4</sup>	1	9.09	0.8	5.7x10 <sup>5</sup>	124
	순신원광	1	-	1	0.92		
	광미1 <sup>b</sup>	1	-	2.5	1.55		14.3
	광미2 <sup>b</sup>	1	-	1	0.46		8.1
기타	활성탄	1	5	9.90	1.8	136	
	MoO <sub>3</sub>	0.1	1	9.09	9.0		
	WO <sub>3</sub>	0.1	1	9.09	9.0		

<sup>a</sup>Real groundwater was used for this test in a nitrogen-filled glovebox.

<sup>b</sup>광미1 and 광미2 contain about 50  $\mu$ g/g of silver.

## Swelling Pressures of an Untreated and a Na-treated Bentonite

Jae-Owan Lee and Won-Jin Cho

Korea Atomic Energy Research Institute, P.O. Box 105 Yusong, Taejon 305-353, Korea

One of the major functions of buffer in a high-level waste repository is to play a role of self-sealing. The bentonite, which is widely favored as a buffer material because of high swelling capacity, closes any voids and cracks in the repository thereby to prevent the intrusion of ground water into the repository. However, the bentonite should be designed to have a swelling pressure as low as possible to avoid excessive load to container and the surrounding rock when used for the buffer of repository. It, in this connection, is of essence to investigate the swelling pressure of the bentonite. This study presents the swelling pressures of an untreated bentonite taken from Jinmyeon mine and a treated bentonite which is obtained from its contact with 10 % of Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> solution in a commercial plant (hereafter referred to as a Na-treated bentonite). The swelling pressures are also presented as a function of the dry density of compacted bentonites.

The X-ray diffraction pattern of the untreated bentonite is shown in Fig. 1. The bentonite was found to be of Ca-type and its mineralogical composition was 64.7% montmorillonite, 34.3% feldspar, and 1.00% quartz. Its chemical composition was 56.8 % SiO<sub>2</sub>, 20.0 % Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 6.0 % Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 2.6 % CaO, 0.8 % MgO, 0.9 % K<sub>2</sub>O, 1.3 % Na<sub>2</sub>O, 0.2 % FeO, 1.3 % SO<sub>3</sub>, and 0.8 % TiO<sub>2</sub>. The cation exchange capacity was 57.6 meq/100g. Compacted bentonites were prepared as follows: Bentonite sample was oven-dried at 105 °C and weighed in a given mass; The water was added to the weighed sample using ultrasonic sprayer to adjust a desired water content; After the adjustment of water content, the sample was put into a polyethylene zip-bag and kept in a desiccator for overnight to give uniform distribution of the sprayed water in the sample; Then, the known mass of sample was compacted uniaxially into a stainless steel cylindrical mold to a given dry density and again was left in a desiccator for 24 hours to reach equilibrium. The swelling pressures were measured using an experimental apparatus shown in Figure 2. The main test section consists of a stainless steel cylindrical cell of which the dimension was 5x10<sup>-2</sup> m in height and 5x10<sup>-2</sup> m in diameter, porous metal filters to avoid the loss of bentonite particles, and swelling pressure sensors. Swelling tests start with feeding the pressurized water after the zero point of pressure sensor was adjusted, and the swelling pressures sent from the sensor were collected in a given time interval using personal computer. The swelling pressures are effective ones which are obtained by subtracting an applied pressure from the collected swelling pressures. These tests are performed at 20°C, and proceed until the swelling pressure reaches steady-state. Fig. 3 is an example to represent the change of swelling pressures with the contacting time of sample and water. As shown in the figure, the swelling pressures develop rapidly until they reach a peak in a few days. Subsequently, the swelling pressures start to decline gradually to a constant value. These tests ended in 30 days because the time-dependent behavior of the swelling pressure was regarded as reaching steady-state.

The swelling pressures obtained are plotted in Figure 4. The swelling pressures are in the range of 10 Kg/cm<sup>2</sup> to 143.5 Kg/cm<sup>2</sup> for the untreated bentonite and 3.7 Kg/cm<sup>2</sup> to 92.4 Kg/cm<sup>2</sup> for the Na-treated bentonite. They increase with increasing the dry density of

compacted bentonites. The dependence of the swelling pressure upon the dry density is more sensitive at higher dry densities. There is a slow increase of the swelling pressure up to a threshold dry density between 1.6 Mg/m<sup>3</sup> and 1.8 Mg/m<sup>3</sup>. Above the threshold dry density, the swelling pressure rises at a much steeper gradient. Such a behavior of the swelling pressure was also reported in Gray et al.'s experiment [1], in which the threshold dry density was found to be between 1.6 Mg/m<sup>3</sup> and 1.7 Mg/m<sup>3</sup>. The steep increase of the swelling pressure beyond the threshold dry density is supposed to be due to the anisotropic nature of the compacted bentonite. SEM analysis offered an explanation for the anisotropy. The bentonite at lower dry densities consists of randomly arranged aggregates of bentonite particles (micropeds), while, at the dry densities above the threshold value, interparticle voids are mostly eliminated, the micropeds become fused, and the topography is relatively uniform. This suggests that the micropeds of bentonite particles beyond the threshold dry density are arranged in a nearly parallel orientation and thus the corresponding swelling pressures increase steeply. On the other hand, Pusch [2] put out for this phenomenon the explanation that the force of hydration on the surface of particles or their interlamellar layers may be of significance in the swelling pressure of highly compacted bentonite with the densities of 2.0 - 2.1 Mg/m<sup>3</sup>.

1. M. N. Gray, S. C. H. Cheung and D. A. Dixon, "Swelling Pressures of Compacted Bentonite/Sand Mixtures," AECL TR-350, pp. 776-785, Canada (1985).
2. R. Pusch, "Water Uptake Migration, and Swelling Characteristics of Unsaturated and Saturated Highly Compacted Bentonite," SKBF/KBS Teknisk Rapport 80-11 (1980).

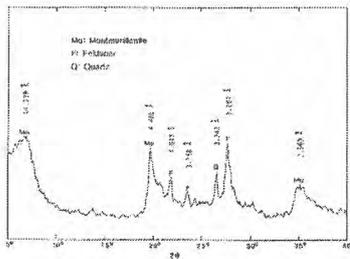


Figure 1 XRD pattern of untreated bentonite.

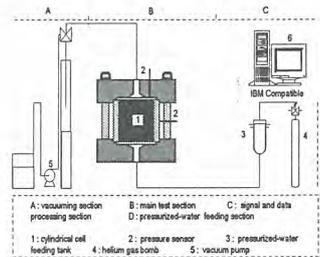


Figure 2 Swelling Test Apparatus

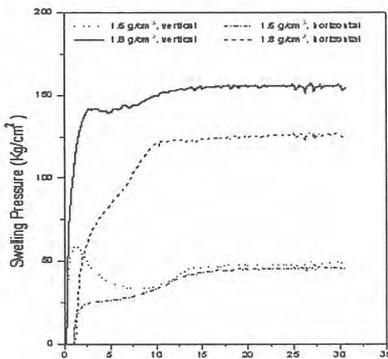


Figure 3 Development of swelling pressure versus elapsed time

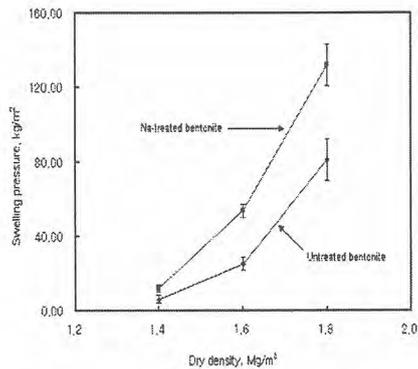


Figure 4 Swelling pressures of an untreated and Na-treated bentonite.

## Hydrochemistry, Origin and Residence time of Deep Groundwater in the Yuseong area

Yong-Kwon Koh, Geon-Young Kim, Dae-Seok Bae and Kyung-Woo Park

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Deok-Jin Dong, Yuseong-Gu, Daejeon

As a part of the radioactive waste disposal research program in Korea, the geological, hydrogeological and hydrogeochemical investigations have been carried out in the Yuseong area (KAERI). The 9 deep boreholes with depth of 200~500m were drilled in the KAERI, of which geology mainly consists of Jurassic two-mica granite (160 Ma). Fracture system (orientation, frequency and aperture size) in the boreholes was investigated by core logging and BHTV scanning, and hydraulic conductivities were estimated by hydraulic tests such as injection and pulse tests. The multi-packer system (Westbay Co., Canada) was installed in 3 boreholes and the borehole YS-01 with depth of 500m was isolated to 14 sections by packers according to fracture characteristics. The hydraulic and geochemical properties of groundwater including isotopes have been monitored since the installation of MP system on 2001.

The temperature of groundwater is measured up to 24°C and thermal gradient is obtained to 0.26°C/100m. pH of groundwater at upper section shows about 7 and the pH of groundwater of 200m below surface reaches almost constant value as 9.9~10.3. The redox potential of groundwater varied with depth and more negative values were recognized in deep groundwater. The redox potential of deep groundwater, main factor of U solubility, was measured up to -150 mV. These high pH and reduced conditions indicates that the maximum U concentration in groundwater would be limited by the equilibrium solubility of U minerals. The chemistry of shallow groundwater shows Ca-HCO<sub>3</sub> or Ca-Na-HCO<sub>3</sub> type, whereas the deep groundwater belongs to typical Na-HCO<sub>3</sub> type. The chemistry of groundwater below 250m from the surface is constant with depth, indicating that the extent of water-rock reaction is almost unique, which is controlled by the residence time of groundwater.

The  $\delta^{18}\text{O}$  and  $\delta\text{D}$  values are nearly plotted along the worldwide meteoric water line, which indicates that groundwater from the borehole was recharged from local meteoric waters under present climate conditions. It is noteworthy that isotopic compositions of deep groundwater are lighter than those of surface and shallow groundwater in the borehole of the Yuseong area. Considering the altitude effect (0.19/100m,  $\delta^{18}\text{O}$ ) of isotope for precipitation in Korea, the recharge area of deep groundwater is estimated to higher elevations than the local land surface. Tritium contents close to zero are observed in the deep groundwater, thus confirming a long residence time of deep groundwater. On the other hand, high tritium values characterized in the shallow groundwater are considered as recent waters with a very short circulating time. The carbon isotope data ( $\delta^{13}\text{C}$ ) of groundwater show the contribution of carbon from either that microbial oxidation of organic matter or carbon dioxide from plant respiration. The measurement and interpretation of C-14 indicate that the residence time of borehole deep groundwater ranges from about 2,000 to 6,000 yr BP. The high  $\delta^{34}\text{S}_{\text{SO}_4}$  value of groundwater indicate that the sulfate reduction might be occurred in the deep environment.

## 방사성 폐기물 처분 연구를 위한 화강암지역내 심부시추코아의 암석화학 및 단열충전광물 특성

김진영, 고용권, 박경우, 배대석

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

고준위방사성폐기물의 심지층 처분개념은 다중방벽 개념으로써, 처분장으로부터 핵종 유출을 최대한 차단하도록 설계되는 공학적 방벽과 더불어 수십만년에서 수백만년의 장기간의 안전성을 고려해야하는 지질학적 방벽으로서 이루어진다. 지질학적 방벽으로서 불투수성인 결정질 암반을 고려할 경우, 처분장으로부터 유출된 방사성 핵종의 이동은 주로 단열대를 따르는 지하수의 유동특성에 좌우되게 되며, 유출된 핵종의 지화학적 거동은 이를 운반하는 지하수의 화학성분 및 지하수와 접촉하는 암석과 광물특성에 좌우된다. 따라서 처분장의 안전성 평가를 위해서는 모암에 따른 수리지화학적 특성규명이 우선되어야 하며, 지하수와 접촉하는 모암 및 단열충전광물의 특성규명이 필수적으로 요구된다. 이를 위하여 한국원자력연구소에서는 우리나라의 대표적 결정질 암반인 주라기 화강암 중 영동형 (강원도 고성)과 영서형 (대전 유성) 화강암을 선정하여 이에 대한 심부시추조사 및 장기적 모니터링을 수행하고 있으며, 이번 연구는 이들 심부 시추코아로부터 얻어진 화강암 및 단열충전광물들의 광물학적 특성과 지화학적 특성분석 결과이다.

영동형 화강암의 연구지역은 강원 고성지역에 해당하며 주변에 다양한 편마암류가 분포하고, 화산암류가 소규모로 분포하고 있다. 시추위치의 지질은 전형적인 조립질 흑운모 화강암이며, 시추구간 전반에 걸쳐 매우 신선한 양상으로 단열대의 발달을 관찰하기 어렵다. 500m 시추공에서 심도별로 채취된 시료의 전암분석결과를 살펴보면 미세한 석영-장석맥이 지나가는 277m 구간에서  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Na}_2\text{O}$ 의 함량 증가가 관찰되며, 이 부분을 제외하고는 전 구간에 걸쳐 매우 일정한 화학 특성을 보이고 있다. 주구성광물은 석영, 사장석, 정장석, 흑운모, 각섬석 등이고, 이밖에 스피넬, 저어콘, 금홍석, 적철석 등이 소량 산출된다. 또한 지표환경에서 일라이트, 녹니석, 카올린 광물이 풍화산물로 산출된다. 장석은 알바이트에서 올리고클레이스까지의 조성을 보이고 흑운모는 엔나이트와 흑운모사이의 좁은 범위의 조성을 보인다. 각섬석은 칼슘계열로서 ferro-edenite 및 ferro-edenitic hornblende 조성을 보인다. 전체적인 연구지역 화강암의  $\text{SiO}_2$ 의 함량은 65.1~77.8%로 산성암에 해당되며, 과알루미나-준알루미나 성질을 나타내고, 0.92~1.19범위의 알루미나 포화지수를 갖는다. 전체적으로  $\text{SiO}_2$ 성분이 증가함에 따라,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{FeO}^T$ ,  $\text{CaO}$ ,  $\text{P}_2\text{O}_5$ ,  $\text{MnO}$ 는 감소하는 경향을 보이면서  $\text{K}_2\text{O}$ 는 증가하는 일반적인 화강암의 분화경향을 나타낸다.

영서형 화강암지역은 대전 유성북부지역으로서 경기변성암 복합체 내에 위치하며 주로 선캠브리아기의 편마암류와 중생대의 심성암과 맥암류로 구성되어 있다. 시추위치의 지질은 중립질 내지 조립질의 복운모화강암으로 이루어져 있으며 국지적으로는 미약하나마 편상조직을 보이기도 한다. 심부 시추공자료에 의하면 지표에서부터 심부에 이르기까지 크고 작은 단열대가 다수 발달해 있으며 이러한 단열대를 중심으로 다양한 변질양상을 보이고 있다. 변질대 및 단열대에서는 방해석, 불석 및 녹염석 세맥이 발달해 있으며 이러한 변질구간에서는 흑운모가 관찰되지 않고 녹니석화되어 있다. 또한 일부구간의 신선한 화강암 부분을 제외하고는 대부분의 장석이 견운모화되어 있는 양상을 보인다. 일부 석영맥이 산출되는 구간에서는 황철석 등의 광석광물이 산출되는 것으로 보아 국지적인 열수변질작용이 있었던 것으로 판단된다. 주구성광물은 석영, 사장석, 정장석, 흑운모, 백운모 등이며 석류석, 저어콘 등이 소량 관찰된다. 녹니석, 녹염석, 일라이트가 2차광물로 관찰되고, 퍼어다이트가 드물게 관찰되기도 한다. 영서형 화강암내 500m 시추공에서 심도별로 채취된 시료의 전암분석결과를 살펴보면 염기성 암맥이 지나가는 -105m 구간을 포함하여 -90m~-130m 구간과 -230m~-250m 구간에서 급격한  $\text{SiO}_2$  함량 감소와  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{CaO}$ 의 증가가 관찰된다. 특히 이 두 구간에서 L.O.I 값이 증가한 것은 이 구간에 점토광물과 같은 2차 광물이 많이 존재함을 지시

한다. 대부분 단열대에는 2차광물들이 충전하고 있으며, 국지적으로 저온의 열수변질작용에 의한 광물들이 증척되어 있기도 하다. 단열충전광물들은 대부분 단일광물보다는 여러 광물종의 혼합체로 존재한다. 특히 YS-01 시추공(500m 심도)으로부터 회수된 단열충전 광물에 대한 X-선 회절분석(XRD) 결과 불석 광물(로몬다이트, 홀란다이트), 방해석, 일라이트 (2M1과 1Md), 녹니석, 녹염석 등이 확인되었다. 이 중, 로몬다이트와 홀란다이트 같은 불석 광물들과 방해석이 가장 흔하게 관찰되는 단열충전광물이며 이들은 흔히 서로 intergrowth된 상태로 결정화 되어있다. 산출상태 또한 매우 다양하여 약 1~2mm 두께의 맥상으로 결정형이 잘 발달한 상태로 산출되기도 하고 단열 표면 코팅이나 미세 균열을 충전하는 형태로 산출되기도 한다. 일라이트와 녹니석 또한 흔하게 관찰되는 단열충전광물로서 녹니석으로 주로 코팅되어 있는 단열면은 어두운 녹색이나 검은색을 띠고 있다. 녹염석은 매우 미세한 균열을 충전하는 형태로 산출되며 흔히 녹니석이나 일라이트와 함께 존재한다. 녹염석으로 주로 구성된 단열은 주로 밝은 녹색을 띠고 있으며 대부분 hairline crack 형태로 존재하나 녹염석의 결정이 잘 발달되어 밀집되어 있는 부분도 관찰된다. 이밖에 소량의 카올린 광물이나 clinozoisite가 존재하기도 하며 특징적으로 물리브테나이트나 황철석과 같은 광석광물들이 산출되기도 한다. YS-01 시추공지하수의 화학조성자료로부터 PHREEQC를 이용하여 시추공지하수로부터 단열광물의 대한 포화지수를 계산한 결과는 이들 이외에 2차 광물로 철산화물 및 스�멕타이트가 2차광물로 침전될 수 있을 가능성을 보여주고 있다. 이들의 상대적인 산출량은 방해석  $\geq$  불석광물  $\gg$  일라이트  $>$  녹염석  $\gg$  녹니석  $>$  카올리나이트의 순이며, 심도의 증가에 의한 온도 및 압력 증가에 따른 광물상의 뚜렷한 변화는 관찰되지 않는다. 단열대를 따르는 지하수 유동에 의한 물-암석 반응 및 열수변질의 증척에 의한 원소거동을 알아보기 위하여 단열대의 화학분석결과로부터  $Al_2O_3$ 를 immobile element로 하여 isocon을 도시한 결과, 대부분  $SiO_2$ 도 immobile 한 것으로 나타났으며, 특히 로몬다이트와 방해석이 충전된 단열대는 CaO의 함량이 명확히 증가되었다. 일라이트가 산출되는 단열대는  $K_2O$ 의 증가와  $Na_2O$ 와 CaO의 감소가 함께 나타나기 때문에 대부분의 일라이트는 사장석의 변질로 생성되었음을 알 수 있다. 그러나 소량의 일라이트, 녹니석, 카올리나이트 등의 단열충전광물이 생성된 단열대는 대부분의 원소들이 일련의 isocon상에 도시되어 원암이 외부로부터의 원소의 추가나 제거 없이 변질되었음을 지시한다. 전체적으로 YS-01공은 변질정도에 따라 -13~+13%의 질량변화가 있었고 YS-04공은 -29~+28%의 질량변화가 있었다.

## 고준위방사성폐기물 처분을 위한 연구지역의 수리지질학적 예비모델 -연구지역의 Reference Pathway를 기준으로-

박경우, 김천수, 배대석, 김경수, 고용권, 김건영  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

[woosbest@kaeri.re.kr](mailto:woosbest@kaeri.re.kr)

고준위방사성폐기물 처분장의 안전성 평가를 위한 수리지질환경 특성 규명은 지표 및 천부 지하 환경뿐만 아니라 심부환경이 포함된다. 실제로 고준위 방사성폐기물이 처분될 영역은 지하 500m이하의 심부 지하 영역으로 초점이 맞춰지며, 심부지질환경의 특성 규명은 고준위방사성폐기물 처분의 주요 과제가 된다. 고준위방사성폐기물 처분장의 부지규모에 대한 수리지질학적 모델 연구는 현재 원자력연구소에서 건설 중인 지하처분연구시설을 대상으로 정밀하게 조사되어 구축될 예정이며, 본 논문에서는 원자력연구소 부지 내에 심부지질환경 조사를 시추공에서 연구된 자료를 이용하여 지하수 유동에 대한 Reference Pathway를 제시하였다.

한국원자력연구소 부지 내에 심부지질환경 조사용으로 총 9개의 시추공이 굴착되었다. 연구지역의 단열 분포를 조사하기 위하여 초음파 주사검층을 실시하였으며, 조사 영상에서 나타난 단열의 폭을 구간별로 더하여 그 정도를 살펴보았다. 또한, 각 시추공에서 현장수리시험을 실시하여 높은 투수성 구간과 단열의 분포 자료와 비교해 보았다. 그 결과 단열의 분포와 수리전도도와는 예상했던 결과대로 높은 상관성을 나타내었고, 일부 구간에서 단열대가 연결되어 있음이 예측되었다. 그러나 YS-01번 시추공의 경우 100m 깊이에서 빈도가 높은 단열이 관찰되었으나, 특이하게 수리전도도는 낮게 측정되었으며, 오히려 단열이 적은 것으로 예상되는 250m와 400m 깊이에서 높은 수리전도도 값을 얻을 수 있었다. 이러한 결과는 YS-06번 시추공의 자료에서도 확인할 수 있다. 이는 심부 지하수의 유동로가 단열의 빈도나 폭에도 상관성을 가지지만, 유로현상에 많이 지배받고 있음을 알려준다. Reference case의 3차원적 수리인자를 정의함에 있어, 단열의 연결성을 확인하여 수리투수성 구간을 규명하는 과정이 매우 중요하게 된다.

이를 위해 연구지역의 YS 시추공들의 양 끝에 있는 시추공과 중앙에 있는 시추공 3개(YS-01, YS-06, YS-07)를 선정하여 수리투수성 구간의 규명을 시도하였다. 연구지역의 시추공에서 수행한 현장수리시험 결과 YS-01번 시추공에서 16~26m, 240~251m, 394~403m, 484~495m 사이의 구간, YS-06번 시추공에서 40~69m, 88~98m, 184~194m, 262~272m 사이의 구간, YS-07번 시추공에서 244~253m, 382~391m 구간에서 투수계수가 높게 나타났다. 또한, 전체적으로 파쇄가 심한 지표 근처 부분에서 높은 투수계수를 볼 수 있다. 시추공의 투수성 구간에 대하여 초음파주사검층에서 조사된 단열의 방향성을 스테레오 망에 투영해 보았으며, 투영한 결과를 이용하여 연구지역의 예상 단열대에 대한 단면도를 작성해 보았다.

연구지역 시추공의 수위 관측결과 YS-02번 공과 그 주변의 시추공은 비슷한 고도를 가졌음에도 불구하고 YS-02, YS-02-1, YS-02-2번 시추공의 수위는 유사하지만, YS-03번 시추공의 수위는 1m 정도 낮은 값을 보이고 있음을 알 수 있다. 이는 YS-02, YS-02-1, YS-02-2 시추공의 심도가 200m이나, YS-03번 시추공의 심도는 300m이기 때문에 지하 200m~300m 구간에 수두압력이 낮은 감압대가 존재하여 YS-03번공의 수위를 낮춰주는 것으로 판단되는데, 이는 다중패커시스템 설치 시추공(YS-1)의 수압 변화에서도 이미 예측된 결과이다. 수리시험 결과 YS-03번 시추공의 지하 250m 구간의 투수성은 매우 높으며, 초음파주사검층에서 대규모의 단열대는 존재하지 않으나, 개구성 단열 및 반개구성 단열이 존재하는 것으로 확인되었다. 지하수의 유동 방향은 단열이나 단열대 내부에 존재하는 지하수에 미치는 압력 및 단열의 기하학에 의해 영향을 받게 된

다. 심부영역에 존재하는 단열은 심부지하수가 천부영역으로 움직일 수 있는 방어벽 역할을 하기도 하며, 유동로 역할을 하기도 한다.

위의 연구결과를 종합하여 YS-01, YS-03 시추공을 중심으로 연구지역에서 다음 그림과 같은 2차원 단면의 수리투수성 구간을 그릴 수 있다. 또한, 2차원적인 수리투수대를 이용하여 Source의 위치에 따라 다음과 같은 세 가지 경우의 Reference pathway를 구할 수 있다. 첫째, A영역의 수두압력이 상부에 비해 높으므로 심부지하수는 감압대 방향으로 위로 흐르게 되며, 흐르는 도중에 단열을 만나서 단열 방향으로 빠른 속도로 퍼지게 된다. 단열로 퍼진 지하수는 다시 감압대 방향으로 흘러 감압대의 수리투수대를 만나면 투수성이 큰 수리투수대를 따라 천부영역으로 움직이게 된다. 둘째, B영역이 수리투수대와 연결된 영역이므로, 빠른 속도로 수리투수대를 따라 천부영역으로 움직이게 된다. 마지막으로 C영역의 수두압력이 하부 감압대에 비해 높으므로 지하수는 감압대 방향으로 서서히 흐르다가 감압대를 만나면 투수성이 큰 수리투수대를 따라 천부영역으로 움직이게 된다.

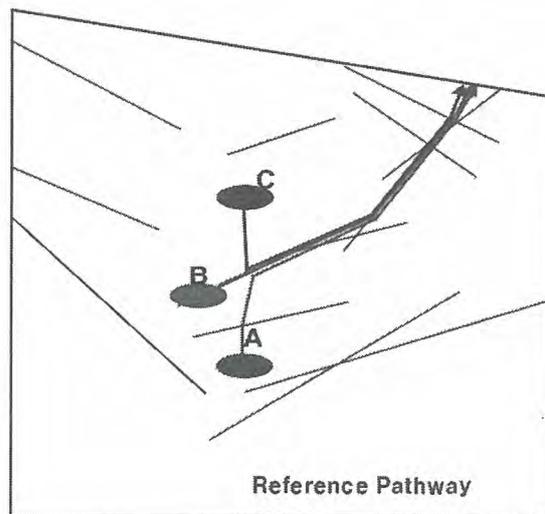


Fig 1. Reference Pathway of study site

연구지역의 시추공에서 조사된 현장측정자료를 이용하여 부지규모의 Reference Pathway를 세 가지로 도출하였다. 본 연구에서 제시된 Reference Pathway는 시추공의 단열 자료 및 수위자료, 깊이별 수두압 자료를 기준으로 제시된 예비 결론이며, 차후 연구지역에서 실시될 추적자 시험자료를 이용하여 이를 확인할 예정이다. 특히, 다중패커시스템을 적용한 깊이별 수두압 자료는 심부영역의 감압대 및 투수성 구간에 대한 연구에 많은 도움이 될 것으로 사료된다.

## 단·복층 처분장의 지하시설에 대한 비용평가

김성기

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

본 논문에서는 동일한 사용후핵연료를 처분할 수 있는 고준위 방사성폐기물처분장의 단·복층 구조에 대한 경제성분석을 수행하였다. 원자력발전소에서 필연적으로 발생하는 사용후핵연료는 지하의 심부암반에 처분하는 것이 가장 합리적인 방안으로 고려되고 있다. 그러므로 처분장을 건설하기 위해 경제성 분석이 필요하며, 처분장은 단층과 복층 또는 여러 층으로 건설할 수 있다. 따라서 이러한 대안 중에서 어느 것이 가장 경제적인 대안인가를 판단해야 한다. 물론 처분장의 구조는 처분장 심부암반의 균열 간극과 같은 지하수 유동경로 등의 안전성 요인을 고려하여 대안을 선정하는 것이며, 본 논문에서는 동일한 양의 사용후핵연료를 처분할 수 있는 조건하에서 경제성을 분석하였다. 이러한 분석을 위한 처분장 건설·운영계획은 그림 1과 같다.

KRS-1  
PRE-CONCEPTUAL DESIGN  
24.9.2004 Saanio & Riekkola Oy / Timo Saanio

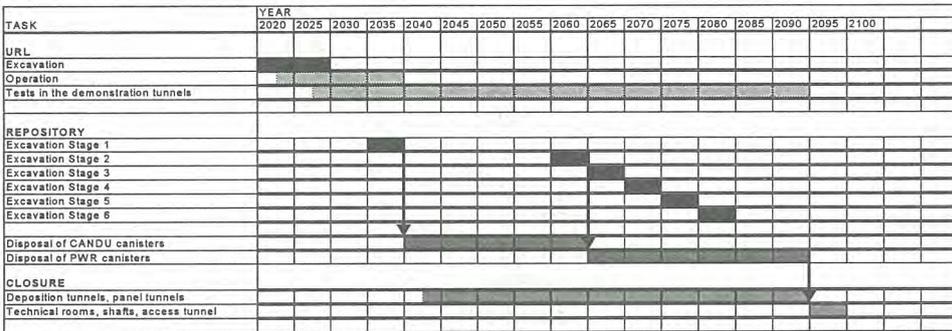


Fig. 1. Implementation schedule

정량적인 원가분석을 위하여 먼저 단·복층 처분장 구조의 총원가에 영향을 미치는 정성적인 원가동인을 살펴보면, 첫째, 복층구조에서는 필요한 부지가 더 작다. 왜냐하면 복층으로 처분패널이 구성되기 때문이다. 이러한 부지면적 차이는 처분장 지질과 간극지역의 geometry에 달려있다. 둘째, 복층구조에서 처분장 터널의 총길이가 볼륨은 더 크다. 셋째, 복층에서는 technical room이 두 개의 층에서 필요하게 될 것이다. 넷째, 복층에서 갱과 진입터널에 대한 처분터널로부터의 평균거리는 더 짧다. 다섯째, 뒷채움 비용은 복층처분장이 더 많다. 왜냐하면 터널 굴착볼륨이 더 크기 때문이다.

운영측면에서 복층구조의 장점을 살펴보면, 상하층에서 운영을 공유할 더 많은 가능성이 존재한다. 왜냐하면 운영은 두개의 층에서 동시에 이루어질 수 있기 때문이다. 또한 하나의 층에서 전체적인 정지일 경우라도 다른 층에서는 계속해서 운영할 수 있다.

복층대안은 심도를 400과 500m로 가정하였다. 처분은 더 낮은 level로부터 시작되어지며, 처분지역(Disposal area)은 중앙, 패널, 처분터널과 처분공을 포함하며, 규모는 약 1.8 X 2.2km이다. 복층 처분장의 구조는 단층처분장을 가로방향의 같은 크기로 2 분할 한 복층(가로분할)처분장과 세로방향의 크기로 2 분할 한 복층(세로분할)처분장으로 구분하였으며, 이러한 두 가지의 처분장을 원가 대상으로 설정하여 총원가에 영향을 많이 미치는 주요 원가동인에 대한 상대적인 소요원가를 비교·분석하였다. 처분장의 개념도는 그림 2, 3, 4와 같다. 원가분석을 위한 가정으로써, 처분용량은 PWR 20,000tU, CANDU 16,000tU으로 총 36,000tU으로 가정하고, 필요한 단가는 핀란드의 2004년 물가수준을 적용하였으며, 모든 비용은 Overnight cost 방법으로 주요원가를 계산하였다. 따라서

본 연구에서 산출된 원가는 총원가를 의미하지는 않는다.

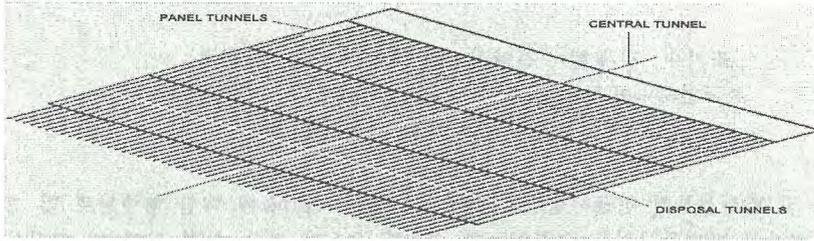


Fig 2. Single layer

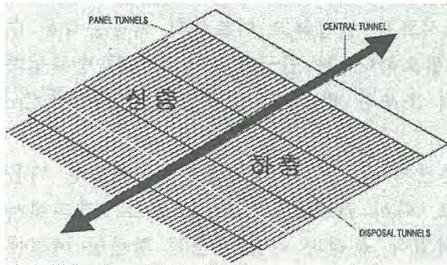


Fig 3. Double layer(horizontal partition)

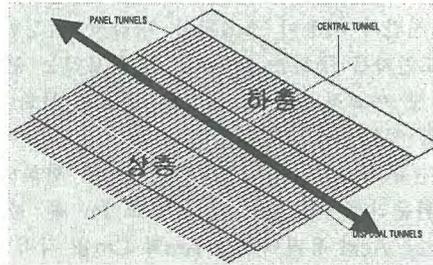


Fig 4. Double layer(vertical partition)

단층처분장과 복층처분장의 총원가 차이에 가장 많은 영향을 미치는 주요원가동인과 관련된 중앙터널, 패널터널 등의 건설투자비와 처분장의 운영비 등을 계산한 결과 그림 5, 6, 7, 8과 같이 전체적으로 단층처분장이 복층처분장 보다 유리한 것으로 나타났다. 이러한 이유는 복층처분장은 굴착량이 증가하여 건설투자비에서 단층처분장에 비하여 투자비용의 증가를 초래하고, 이러한 증가된 굴착부담을 폐쇄하기 위하여 더 많은 Back-filling 비용이 소요되기 때문이다. 또한 복층처분장에서는 세로분할이 가로분할 보다 더 경제적인 것으로 분석되었다.

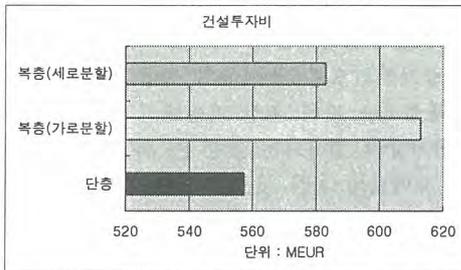


Fig. 5. Investment costs

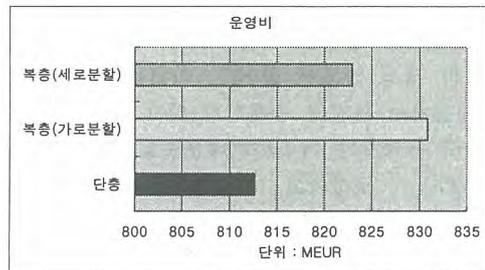


Fig. 6. Operating costs

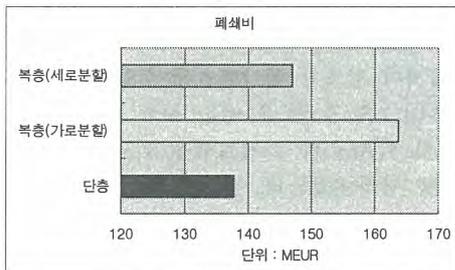


Fig. 7. Closure costs

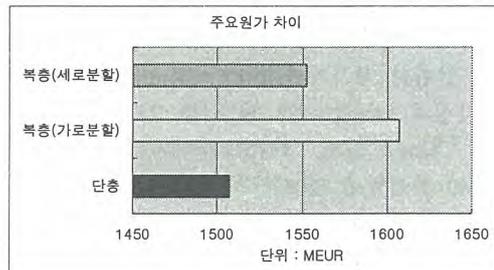


Fig. 8. Difference in dominant costs

## 알파분광법에 의한 방사성폐기물 시료 중 $^{241}\text{Am}$ , $^{244}\text{Cm}$ , $^{242}\text{Cm}$ 및 $^{238}\text{Pu}$ 의 정량

조기수, 김태현\*, 전영신, 박영재, 지광용, 김원호

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

\* 주식회사 액트, 대전광역시 대덕구 신일동 1688-5번지

원자력 발전소 및 방사성물질 취급시설에서 발생하는 각종 폐기물에 대한 핵종분포 및 그 농도를 구하는 것은 방사성 폐기물사업을 수행하는데 중요한 요소가 된다. 특히 알파 및 베타선 방출 핵종에 대해서는 화학적 방법으로 시료를 전처리한 후 각 핵종을 분리하여 정량하고 있으며, 이 경우 많은 시간과 비용이 소요된다. 따라서, 일정한 대표시료를 선정하고 이로부터 핵종분석을 수행하여 척도인자를 구하는 기초자료를 확보하는 연구가 필요하다. 본 연구에서는 다양한 방사성폐기물 시료 중 비교적 균일성이 낮은 잡고체 시료에 대해 초우란 원소(TRU;  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{242}\text{Cm}$  및  $^{238}\text{Pu}$ )를 정량하고자 하였다.

종이류, 면류 및 비닐류의 잡고체 시료를 회화하여 혼산처리( $\text{HNO}_3\text{-HCl-HF}$ )로 용액화한 다음 음이온 교환분리관에서 HI 용액으로 Pu를 분리하고, 다시 HDEHP 추출크로마토그래피에서 DTPA-Lactic Acid 용액으로 Am과 Cm을 각각 분리하였다. 분리된 이들 원소는 황산염 매질에서 전착한 후 알파분광분석법으로 각 핵종을 정량하였다. Pu 동위원소 정량은 일반적으로 질량분석법을 이용하여  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  및  $^{242}\text{Pu}$ 를 각각 정량하지만, 이때  $^{238}\text{Pu}$ 의 경우는 분리과정에서 우라늄 환경으로 부터  $^{238}\text{U}$ 이 오염될 가능성이 매우 높기 때문에, 본 연구에서는 분리된 Pu 원소를 전착한 후 알파분광법으로  $^{238}\text{Pu}$ 의 에너지(5.5MeV)를 측정하여 정량하고자 하였다. 본 연구에서는  $^{242}\text{Pu}$  및  $^{243}\text{Am}$ 을 각각 추적자(carrier)로 사용하여 Pu 및 Am/Cm 정량에 대한 회수율을 구하였다. 특히  $^{242}\text{Pu}$ 는 시료 중에 존재하므로 추적자로 사용하는 것이 제한적이지만, 시료 중에 존재하는  $^{242}\text{Pu}$ 의 양이 상대적으로 매우 낮기 때문에 무시할 수 있다.

잡고체 시료 중 TRU를 분리하기 위해 산화수 조절 등 매질변환을 하는 과정에서 일부 금속성분 이온이 완전히 용해되지 않고 침전물을 형성하였다. 이들 침전물은 TRU 분리과정에 방해가 되기 때문에 여과 또는 기타 방법으로 침전물을 제거하는 방법을 검토하였다. 전처리과정에서 생성된 침전물의 성분을 확인한 결과 주성분이 Ca, Si, Mg, Zn 및 Al인 것으로 나타났다. 그리고 침전물의 생성 정도는 종이류, 비닐류, 면류 순으로 증가되었으며, 용액중의 이들 원소들이 12M HCl 매질에서 완전히 용해되지 않고 일부 침전물이 생성되는 것은 혼산 매질에서 보다 12M HCl 매질에서 용해도가 더 낮기 때문으로 생각된다. 즉, 침전물이 생성되는 것은 Si의 경우는 불용성 물질( $\text{SiO}_2$ )이 생성되고, 그 외 원소들의 경우는 낮은 용액도에 의한 것으로 판단된다.

잡고체 시료에 추적자(carrier)를 가하여 회수율을 구한 결과, 침전물 제거방법에 따라 회수율이 다르게 나타났다. 즉, Pu의 경우 membrane syringe filter(0.45  $\mu\text{m}$ )를 사용했을 때(10 ~ 80%)가 상등액 만 취했거나(2.6 ~ 56%) filter paper를 사용했을 때(75%) 보다 높은 회수율을 보였지만 회수율의 편차가 매우 크게 나타났다. 이것은 잡고체 시료의 경우 시료유형이 매우 다르고, 균질성이 낮기 때문으로 생각되며, 또한 침전물 여과 시 syringe filter의 pore size가 크기 때문에 침전물이 완전히 제거되지 않기 때문으로 판단된다. 지금까지 검토한 분리방법을 적용하여 원전 발생 방사성폐기물(잡고체) 시료 중 TRU를 정량하였다. 그림 1과 2에는 시료 중의  $^{238}\text{Pu}$  및  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ , 그리고 추적자로 사용된  $^{242}\text{Pu}$  및  $^{243}\text{Am}$ 의 스펙트럼을 각각 나타내었다. 표 1에는 원전발생 잡고체 시료 중 이들 핵종의 함량을 나타내었는데, 잡고체 종류에 따라  $^{238}\text{Pu}$ 은 0.01 ~ 0.6 Bq/g,  $^{241}\text{Am}$ 은 0.04 ~ 0.34 Bq/g,  $^{244}\text{Cm}$ 은 0.13 ~ 0.66 Bq/g, 그리고  $^{242}\text{Cm}$ 은 <0.02 Bq/g의 방사능 값을 각각 나타내었다. 즉, 잡고체 종류에 따라 TRU의 농도분포가 매우 크게 나타났다.

Table 1. Amounts of TRU determined in radwaste samples collected from nuclear power reactors

Sample	$^{241}\text{Am}$		$^{244}\text{Cm}$		$^{242}\text{Cm}$		$^{238}\text{Pu}$	
	Bq/g	Unc.	Bq/g	Unc.	Bq/g	Unc.	Bq/g	Unc.
DAW-V-1	0.106	0.030	0.664	0.187	0.005	0.001	0.058	0.005
DAW-V-2	0.170	0.048	0.719	0.203	0.006	0.002	0.105	0.010
DAW-V-3	0.111	0.031	0.524	0.148	0.017	0.005	0.177	0.017
DAW-P-1	0.043	0.012	0.274	0.077	0.026	0.007	0.593	0.056
DAW-P-2	0.040	0.011	0.554	0.156	0.027	0.007	0.009	0.001
DAW-P-3	0.068	0.019	0.337	0.095	0.012	0.003	0.011	0.001
DAW-C-1	0.313	0.088	0.197	0.055	ND	ND	0.079	0.007
DAW-C-2	0.198	0.056	0.134	0.038	0.005	0.002	0.062	0.006
DAW-C-3	0.342	0.097	0.253	0.071	ND	ND	0.096	0.009

\* DAW-V, -P, -C : 잡고체 비닐류, 종이류, 먼류

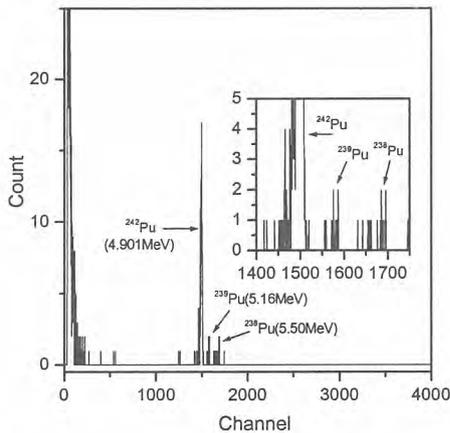


Fig 1. Alpha Spectrum of Pu Nuclides Electro-deposited after Separation in Radwaste Sample,  $^{242}\text{Pu}$ (Spike): 0.3858 Bq, Sample: YK4-DAW-P1, Counting Time: 5000sec, Counting Effi. : 22.2%

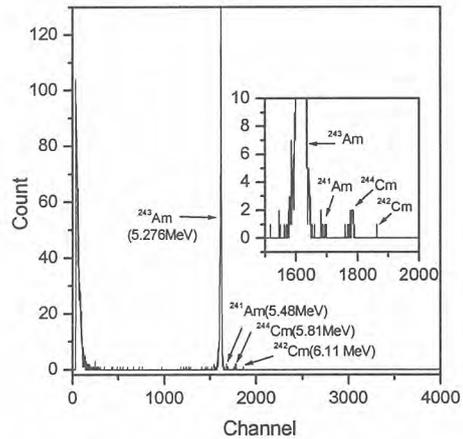


Fig 2. Alpha Spectrum of Am Nuclides Electro-deposited after Separation in Radwaste Sample,  $^{243}\text{Am}$ (Carrier): 4.13 Bq, Sample: YK4-DAW-P1, Counting Time: 5000sec, Counting Effi. : 22.2%

# 빈 면

제3분과  
사용후핵연료 및 핵연료주기

# 빈 면

## Analysis of Fission Products on Irradiated Fuels using EPMA

### EPMA를 이용한 사용후핵연료의 연소도 측정에 관한 연구

Yang-Hong JUNG, Byung-Ok YOO, Wan-Ho OH, Hong-Gy LEE, Yong-Sun CHOO  
and Kwon-Pyo HONG

Korea Atomic Energy Research Institute, 130 Duck-Jin Dong, Yuseong-Gu, Daejeon

정양홍, 유병옥, 오완호, 이흥기, 주용선, 홍권표

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

#### Abstract

The Methodology of burnup calculation with EPMA test set up in this study. The spent fuel from PWR nuclear power plant was used as specimen. This  $UO_2$  fuel with 3.2% of enrichment had been irradiated up to 35,000 MWd/MTU(reference data). The burnup is very important factor for nuclear fuel to estimate all fuel behaviors in reactor. To measure amounts of fission products and actinides for the burnup calculation, chemical analysis (destructive method) has been used but it makes long experimental time and second radio-wastes. In this study, EPMA test was available to measure amount of fission products. Neodymium is able to be detected and quantified. It can be compared with the results from chemical analysis and ORIGEN-2 code calculation. Concentration of Nd from EPMA test showed good agreement with result of ORIGEN-2 code in the same burnup.

**Key words** : EPMA, burnup, Neodymium

#### 요 약

차폐형 성분분석기(Shielded EPMA)를 이용하여 한국형 경수로발전소에서 연소된 35,000 MWd/MTU, U-235의 농축도 3.2%인  $UO_2$  사용후핵연료의 연소도 측정 방법을 제시하였다. 원자로의 출력과 핵연료의 특성 및 중성자속 분포 등 중요한 핵공학적 정보를 제공하는 사용후핵연료의 연소도는 U-235의 감손에 따른 무거운 핵종의 변화를 측정하거나 사용후핵연료 내에 생성된 핵분열생성물을 측정하는 방법 등이 있다. 이러한 방법은 비파괴시험으로도 하고 있으나 파괴시험인 화학적 분석방법이 보다 정확한 것으로 인식되고 있다. 그러나 화학분석법은 분석시간이 많이 걸리며, 방사선 시료의 취급으로 인한 시험자의 피폭 등의 어려움이 따른다. 화학적 분석방법에 의한 연소도 측정방법 대신 분석시료의 제작 및 분석시간이 화학적 분석방법에 비해 상당히 짧고, 또한 국부적인 연소도 측정이 요구되는 사고 핵연료나 고연소 핵연료의 위치별 연소도 측정이 가능한 EPMA를 사용한 연소도 측정기술이 개발되고 있다. 시험결과 ORIGEN2 코드로 계산한 연소도에 따른 Nd의 농도와 EPMA 분석에 의한 Nd의 농도는 거의 일치하였다. EPMA로 분석한 Nd의 조성과 ORIGEN-2 코드로 계산한 Nd의 조성 분포를 이용하여 사용후핵연료의 연소도를 예측하는 일차 실험식을 유도하였으며, 그 결과가 화학분석에 의한 연소도와 거의 일치함을 확인하였다.

## 1. 서론

연소도는 원자로의 출력과 핵연료의 특성 및 중성자속 분포 등 중요한 핵공학적 정보를 제공하는 사용후핵연료의 연소도 측정방법은 U-235의 감손에 따른 무거운 핵종의 변화를 측정하거나 사용후핵연료 내에 생성된 핵분열생성물을 측정하는 방법 등이 있다. 이러한 방법은 비파괴시험으로도 하고 있으나 파괴시험인 화학적 분석방법이 보다 정확한 것으로 인식되고 있다[1]. 조사된 핵연료를 질산에 녹여 각 핵분열 원소를 추출하고, 그 원소들을 다시 질량분석기로 핵종별 동위원소의 무게를 측정하여 연소도를 계산하는 방법으로 가장 정확한 연소도 측정 방법이지만, 오랜 분석시간과 높은 방사능으로 인한 사용후핵연료의 취급에 어려움뿐만 아니라 정교하고 복잡한 분리 및 추출과정을 필요로 하고, 특히 2차 방사성폐기물이 많이 발생하는 등의 문제점들이 있다.

이러한 문제점에 따라 화학분석법을 통한 사용후핵연료의 연소도 측정방법을 대신할 새로운 측정방법이 요구되고 있는데, 화학분석법에 대체할 방법으로 차폐형 성분분석기(Shielded EPMA)를 이용한 연소도 측정기술이 개발되고 있다. 차폐형 EPMA를 이용한 연소도 측정은 통상적으로 사용되는 습식 화학분석 방법보다 분석시간이 짧고, 고방사선 물질을 Glove box에서 각 핵종의 화학적 분리와 용액 처리 등의 복잡한 작업과정을 거치지 않고, 방사성 물질의 취급이 가능한 핫셀(hot cell)에서 시편의 제작 및 분석이 이루어지는 간단한 방법이라 제시하고 있다. 이에 대한 연구는 C.T. Walker[2]와 Shigeharu UKAI[3]가 플루토늄이 20% 이상 농축된 MOX(Mixed-Oxide) 연료를 사용하여 연소도 측정 가능성을 제시하였으나, 가압경수로 원자로(Pressurized Water Reactor. PWR) 핵연료 특히, 한국형 경수로 핵연료에 대한 연구는 전무한 실정이다.

Shigeharu UKA가 MOX 핵연료로 연소도를 측정하는 방법은 EPMA 분해능 등의 문제로 연소도 측정에 이용되는 핵분열생성물중 Nd의 조성을 정량분석 방법이 아닌 정성분석방법인 Nd 핵종의 X-선의 세기(Intensity)만을 측정하여 핵연료 반경방향에 따른 연소도의 특성 관찰만을 하였을 뿐이다. 그러나 MOX 연료를 이용하여 고출력 핵연료의 연소도 측정 가능성을 제시한 선행연구자들은 사용후핵연료의 국부적인 연소도와 연료의 반경방향 연소도 분포 경향 등의 분석에 유용한 측정기술로 제안하고 있다. 그러나 아직까지 EPMA를 이용한 연소도 측정방법은 정확한 결과를 제시할 수준에 이르지 못하고 있어, 사용후핵연료의 국부적인 연소도와 연료의 반경방향 연소도 분포 경향 등을 제시하는 수준에 머물러 있다.

EPMA를 이용하여 연소도 측정이 실용화 된다면 분석시료의 제작 및 분석시간이 화학적 분석 방법에 비해 상당히 짧고, 또한 국부적인 연소도 측정이 요구되는 사고 핵연료나 고연소 핵연료의 위치별 연소도 측정이 가능하기에 매우 유용한 연소도 측정방법으로 기대되고 있다. 그러나 알려진 바와 같이 핵분열생성물중 Nd의 함량이 워낙 미미하기에 정확한 조성을 분석하는 기술이 매우 중요하며, 또한 실험자의 경험과 실험기기의 조건 등에 따라 큰 오차 값을 나타낼 수 있기에 검증된 시험결과를 필요로 한다[4].

## 2. 실험 방법

### 2.1 시편준비

고준위의 사용후핵연료를 취급할 수 있는 시설인 한국원자력연구소 조사재시험시설 (Irradiated Material Examination Facility)의 핫셀(hot cell)에서 경수로발전소에서 연소된 35,000 MWd/MTU, U-235의 농축도 3.2%인 UO<sub>2</sub> 사용후핵연료를 절단하여 EPMA 시편을 제작하였다. 고방사능의 피폭을 방지하기 위하여 미세하게 절단된 시편을 이송하여 전도성 레진으로 mounting 한 뒤 연마 및 에칭하였다. 시편의 제조는 silver paint(Leistsilver 2000 silver paint, TED PELLA, INC.)를 충분히 묻힌 시료를 진공기에 넣고 시료 내부로 silver paint가 충분히 침투하게 하여 시료의 전도성을

보강시켰다. 이는 시편 홀더에 충분히 묻힌 silver paint가 표면 활성화(capillary active)현상을 일으켜 시료 내부로 침투하여 들어가므로 시료 표면에 입사된 빔의 전도체 역할을 하는 것으로 믿어진다[5].

일반적으로 핵연료 시편의 분석시 시편에 입사된 전자빔의 집지를 위해 전도성 재료의 증착 작업이 되어야 하나 본 시험에서는 전도성 레진으로 mounting 된 시편에 silver paint를 덧칠하는 방법으로 진행하였다. 이 방법은 고 방사능을 띤 시료를 핫셀에서 증착해야 하는 어려운 작업 과정을 피하고도 비 전도성 물질에서 발생하는 charging 현상 없이 시료를 분석할 수 있는 편리한 방법이다. 분석용 시료는 Hot press mounting (150 °C, 6 bar) 장치로 mounting 한 후 연마하였다. 미세 연마한 시편은 침탄법 (Immersion)으로 에칭 하였다. 에칭 용액은 증류수, 질산, 불산, citric acid를 각각 163 ml, 72 ml, 1 ml, 3.4 g을 혼합한 것으로 상온에서 약 40 - 45초 에칭 하였다.

## 2.2. Electron Probe Micro Analyzer

본 시험에 사용한 EPMA (Electron Probe Micro Analyzer, SX-50R, CAMECA, Paris, France)는 방사능을 띤 조사 핵연료를 시험할 수 있도록 시편 장착 부위, WDS 및 Chamber 등을 납과 텅스텐으로 차폐시켰으며, 시편의 방사능 세기가 37 GBq까지 시험이 가능하도록 하였다. 핵분열생성물인 Nd, Mo, Ru, Rh 와 Pd 등을 분석하기 위한 인가전압 은 25 kV, 전류는 20 nA로 하였다. Nd의 분석은 WDS-1의 PET X-tal의 La X-ray line을 이용하였으며, Mo는 WDS 1의 PET X-tal의 Ka X-ray line, Ru, Rh, Pd는 WDS-2의 PET X-tal의 La X-ray line을 이용하여 분석하였다.

## 3. 시험 결과 및 토의

### 3.1 연소도 측정방법 비교

EPMA를 이용하여 특정 핵종의 분석에 있어서 동위원소별로 분석은 할 수 없지만, 핵연료 연소도 지표핵종인 Nd(burn-up indicator)로 쓰이는 Nd의 총 함량 분석은 가능하다. 전자 빔을 이용한 EPMA 성분분석 방법은 원소의 조성을 알고 있는 표준시료에 대한 미지시료의 상대적인 조성을 획득하는 방법으로, 핵분열생성물과 같이 미량시료(trace)원소의 분석에 이용할 수 있다.

그러나 알려진 바와 같이 핵분열생성물의 조성이 워낙 미미하기에 특정 원소의 정확한 함량을 분석하는 기술이 매우 중요하며, 실험자의 경험과 실험기기의 조건 등에 따라 큰 오차 값을 나타낼 수 있기에 검증된 시험결과를 필요로 한다[6].

핵분열생성물 중 연소도의 지표핵종인 Nd-148을 이용하여 연소도를 계산하는 다음과 같은 식에서 Nd-148의 질량을 구해야 연소도를 계산할 수 있다.

$$Atom \% fission = \frac{Ft(148)}{N(U + Pu + \dots) + Ft(148)} \times 100 \quad \text{식(1)}$$

여기에서 Ft(148) : Nd-148 유효핵분열 수율에 대한 조사시료 중의  
Nd-148 원자수의 비 (N(Nd-148)/1.69)  
N (N+Pu) : 조사시료중의 U와 Pu 원자수의 합

EPMA로 Nd-148과 같이 동위원소별로 분석할 수 없고, 전체 Nd((143+ 144+145+146+148+150)의 조성만을 분석할 수 있기 때문에 위의 식을 이용하여 연소도를 분석하기가 불가능 하다.

그러나 Table 1과 같이 지표핵종인 Nd의 동위원소별 질량비에 따른 연소도와의 오차를 실험적으로 측정된 문헌에 의하면 전체 Nd의 조성의 분석방법으로 측정된 연소도와 Nd-147에 의해 구해진 연소도와의 차이가 크지 않다는 것을 알 수 있다. 실험에 의한 동위원소별 결과가 Table 1과 같이 문헌에 보고 되어 있으며[7],

Fig. 1에 보인바와 같이 조사된 핵연료를 질산에 녹여 각 핵분열 원소를 추출하고 그 원소들을 다시 질량분석법을 이용하여 동위원소들까지 질량화하여 핵분열수의 비를 알아내는 화학분석법은 시간적인 소모와 시료채취 등의 어려움이 다르기에 대체 방법을 모색할 필요성이 대두된다.

Table 1. Total burnup in Atom% calculated for difference Nd isotopes.

isotope	Atom% fission	difference
Nd-148	9.093	1.000
Nd-(145+ 146)	8.982	0.995
Nd-(143+ 144)	8.923	0.989
Nd-total	8.909	0.987

Table 2. Comparison of burnup determination by three measurements method.

methods	advantage	disadvantage
U-235 depletion method	- low enrichment U-235(2~5%) - available for thermal reactor	- not available for high enrichment, low burnup.
Nd-148 determination method	- accurate measurement (error 2%) - available to U, Pu mixed fuel - thermal fast reactor	- long exp. time. - difficult to separate chemically. - not available for U-Th fuel
γ-spectrometer (NDT)	- short exp. time - burnup distribution for fuel rod - comparison of relative burnup	- accuracy(error > 5%) - chemically inspection is needed

반면에 EPMA를 이용한 연소도 측정은 특정부위의 연료를 채취하여 마운팅 과정을 거치면 빠른 시간에 분석이 가능할 뿐만 아니라, 핵연료의 연소이력 중 가장 중요시 되는 연료봉의 반경방향 연소이력을 대단히 미세하게 분석할 수 있는 장점이 있다.

Table 2에 연소도를 측정하는 3가지 방법의 장점과 단점을 나타내었다. 감마분광분석(NDT)를 이용한 연소도 측정은 빠른 시간에 연료봉 전체의 연소도 분포를 확인할 수 있다는 장점과, 특히

비파괴 방법에 의한 측정 방법이 가능하기에 지금까지 가장 널리 사용되는 방법이기도 하나 결과가 부정확하다는 단점을 갖는다.

3.2 EPMA를 이용한 연소도 측정

Table 3은 EPMA를 이용한 사용후핵연료의 핵분열생성물 조성을 분석한 결과를 요약하였다. EPMA분석의 정확도를 비교하고자 Oak Ridge National Laboratory에서 개발한 ORIGEN-2 코드로 연소조건을 모사하여 제조된 비조사핵연료인 모의핵연료(Simulated Fuel)를 제조하여 습식 분석하였다. 동일한 시료를 사용하여 EPMA 분석 방법에 대한 기술을 배양하여 사용후핵연료에 적용하였다. Table 3에서 보는 바와 같이 모의핵연료 분석에서 화학적 습식 분석에 의한 결과와 EPMA를 이용한 분석결과가 거의 일치함을 알 수 있다.

그러나 사용후핵연료에 대한 핵분열생성물의 조성은 Table 3에서 보는바와 같이 상당한 차이를 갖는데, 이는 핵분열생성물의 특성 때문이다. 이미 기술한 바와 같이 30여종의 핵분열생성물 중 금속성출물이나 산화성출물의 형태로 존재하는 핵종과 고용되는 핵종 등으로 구분되는데 EPMA를 이용한 연소도 측정에 이용되는 Nd는 지표핵종(burn-up indicator)으로서 사용후핵연료에 균일하게 고용되어 있는 핵종이다.

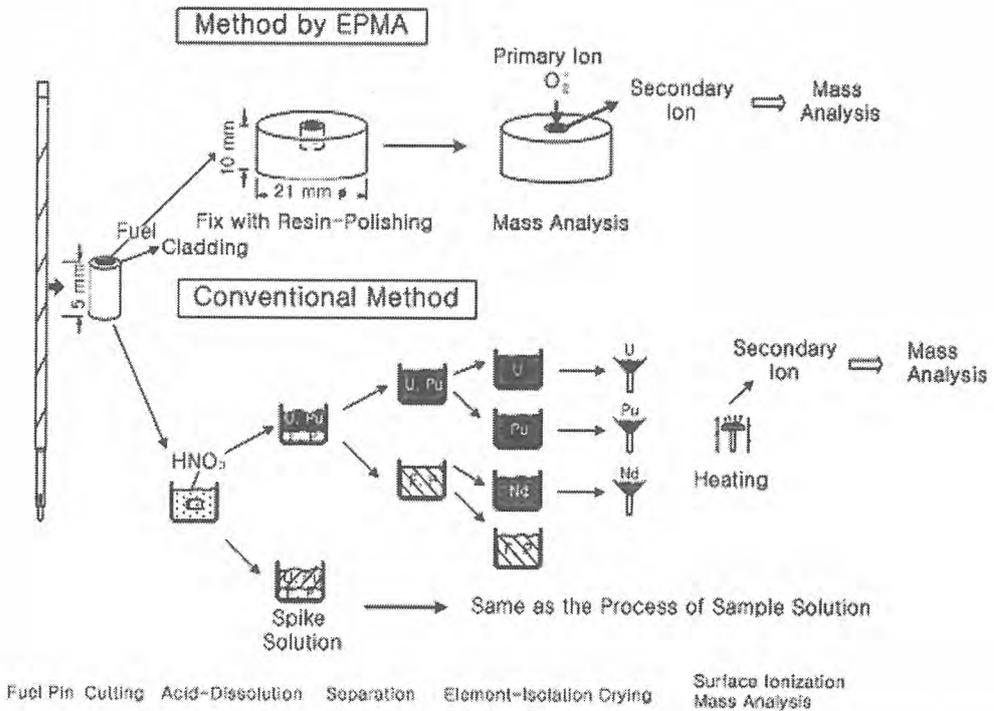


Fig. 1. Comparison of burnup measurement method using EPMA with chemical separation-mass analysis.

Table 4에서 Nd의 농도는 같은 농축도와 같은 연소도를 갖는 핵연료에서 조성이 거의 일치함을 확인할 수 있었다. 이는 Nd의 농도를 다양한 연소도를 갖는 사용후핵연료에서 정확하게 측정 가

능하다는 것을 의미한다. 또한 원자로에서 사고 발생시 연료봉의 극부적인 연소도 측정이 요구되지만, 현재의 연소도측정 방법으로는 시료의 채취 및 오랜 분석 기간 등으로 인하여 많은 어려움이 예상되지만, EPMA를 이용하여 Nd의 농도를 분석함으로써 상기의 문제점들을 해소할 수 있을 것이다.

Table 3. Composition the concentration between wet chemical analysis and EPMA (3.2% of enrichment and 35,000 MWd/MTU of burnup. wt.%)

fission product	SIMFUEL		KSNP *	DUPIC	research reactor
	chemical	EPMA			
Nd	0.480	0.476	0.446	0.42	1.908
Pd	0.028	0.187	0.314	0.02	0.299
Ru	0.239	0.269	0.385	0.22	0.963
Rh	0.073	0.049	-	0.06	0.131
Ba	0.203	0.218	0.374	-	0.560
Mo	0.449	0.392	0.319	0.27	0.27

\* KSNP : Korea Standard Nuclear Power

EPMA 시험으로 구한 Nd의 무게 분율을 이용하여 연소도를 구하기 위해선 중성자 플럭스를 알아야하고 UO<sub>2</sub>의 수밀도 그리고 핵분열 수율을 적용해야한다. 그런데 Nd 관련 동위원소 모두가 핵분열에서 생성된 것이 아니고 일부는 상위 핵종에서 붕괴되어 발생하는 경우와 중성자를 흡수하여 생성되는 경우가 있어서 이 모든 것을 고려하기가 어렵다. 아울러 핵분열 수율은 U-235, U-238, Pu-239 등 핵분열성 물질에 따라 서로 다르기 때문에 이들의 함량도 연소도에 따라 계산해야 하는 복잡성이 있다.

따라서 본 연구의 관심 핵종인 Nd 계열의 모든 동위원소들의 생성량을 연소도에 따라 그 거동을 알 수 있다. 코드에 내재되어 있는 기본계산에 적용된 주요 인자는 원자로에 분포되어있는 에너지에 따른 중성자속 분포, 핵분열을 일으킬 수 있는 확률(cross-section) 그리고 단위 핵분열시 생성되는 핵종들에 대한 발생 확률 등이 있다. 이러한 인자들은 연소기간과 함께 계산되어 최종적으로 알고자하는 시점에서 총 동위원소들의 정보를 보여주게 된다. 입력문으로서 적용물질의 조성 및 함량과 조사기간, 냉각기간 그리고 열출력이 필요하며 이 자료를 바탕으로 Nd의 연소도에 대한 거동을 그림 2에 나타내었다.

Fig. 2는 ORIGEN-2코드를 이용하여 연소도에 따른 Nd의 농도분포를 그린 그림이다. ORIGEN-2 코드는 3차원의 복잡한 구조 및 중성자속 분포를 갖고 있는 원자로를 대표할 수 있는 한 부분 또는 한 점(즉 평균치를 구하는 방법)으로 나타내어 그 부분 또는 점에서 핵분열에 의한 핵분열성 물질의 감소와 변화, 그리고 방사성 동위원소의 생성 및 붕괴를 계산하는 전산 코드인데, 주로 핵연료 주기의 관련된 계산과 연소도에 따른 핵연료 성분 및 특성 변화를 알아보는데 사용된다.

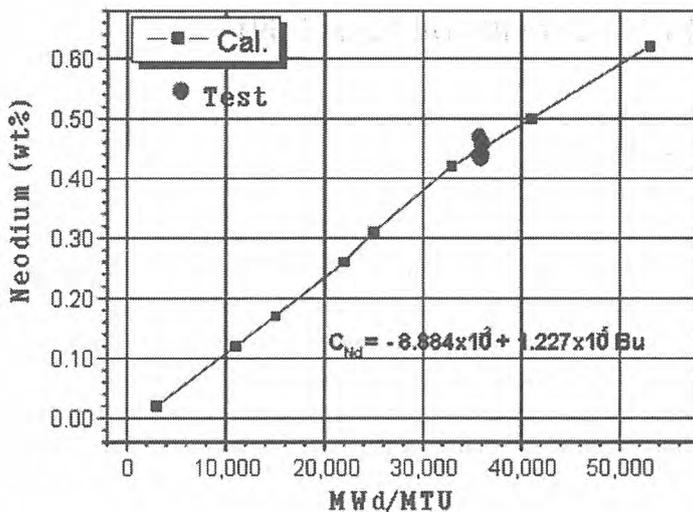


Fig. 2. Comparison between predicted and measured local Neodium concentrations as a function of the local burnup ; the threshold burnup was varied between 30,000 and 50,000 MWd/MTU.

Fig. 2에서 연소도가 35,000 MWd/MTU일 때 Nd 조성은 0.45 wt%임을 알 수 있다. 이 값은 Table 3에 나타낸 동일 조건의 농축도와 연소도를 갖는 모의핵연료 및 한국형경수로 핵연료와 DUPIC 사용후핵연료의 실험 연료에서 EPMA로 분석한 결과와 거의 일치한다.

Table 3에 사용된 모의핵연료는  $UO_2$  핵연료와 표준 가압경수로(PWR)에만 해당된다. 이는 원자로 형태나 핵연료의 종류가 달라지면 에너지에 따른 중성자의 분포와 핵분열을 일으킬 수 있는 확률이 달라지기 때문이다. 선형 연구자인 C.T. Walker 등이 플루토늄이 20 %이상 농축된 MOX (Mixed-Oxide) 연료를 사용하여 EPMA를 이용한 연소도 측정 가능성을 제시하였으나, 제시된 결과를 경수로핵연료에 사용할 수 없음도 같은 이유 때문이다. 따라서 다른 금속핵연료나 Mox 핵연료 또는 원자로형태가 다른 조건에서는 ORIGEN-2의 입력변수를 다시 조정하여 적합한 모의핵연료를 만들 수 있으며, 본 연구와 같은 시험방법으로 연소도 측정 등에 관한 연구를 할 수 있다.

본 연구에서 사용된 핵연료는 바로 표준 가압경수로에서 나온  $UO_2$  핵연료이므로 그 안에 있는 Nd의 무게 분율을 통해 코드 계산값과 비교한 결과 약 35,000 MWd/MTU 정도의 연소도임을 알 수 있었다. 따라서 Nd의 무게 분율을 실험적으로 알 수 있다면 이 식을 이용하여 대략적인 연소도를 알아낼 수 있다.

실험값으로서 여러 가지 다른 Nd의 무게분율을 지닌 시편을 구해서 보다 정밀성을 확인해야 하지만 조사된 핵연료를 대상으로 실험하기가 어려울 뿐더러 다양한 연소도를 지닌 핵연료 시료를 구하기가 어렵기 때문에 한 종류의 연소도를 갖는 핵연료만으로 Fig. 2에 나타낸 결과가 그림과 같이 일치한다고 단정하기는 부족한 면이 없지 않다.

앞으로 다양한 연소도를 갖는 핵연료 시험으로 Nd의 농도를 측정함으로써 Fig. 2의 결과의 유용성이 검증된다면 EPMA를 이용한 사용후핵연료의 연소도 측정의 실용화를 이룰 수 있을 것으로 사료된다. 아울러 계산된 값들의 거동을 좀더 편의성을 가지기 위해 일반화된 식으로 나타내기 위해서 연소도에 따른 일차식으로 나타낼 수 있었다.

Fig. 2에 나타낸 Nd의 조성의 실험값은 ORIGEN-2 코드로 계산한 결과에 근접하기에, Fig. 2를 최소자승법으로 피팅(fitting)하여 일차선형 방정식(linearly equation)을 아래와 같은 식으로 유도할 수 있다.

$$C_{Nd} = -8.884 \times 10^{-3} + 1.227 \times 10^{-5} Bu, (Y_{Nd} = 1.69)$$

식에서  $C_{Nd}$  = Concentration of Neodymium,

Bu = Burnup(MWd/MTU)

$Y_{Nd}$  = Nd Fission Yield of U-235

ORIGEN-2코드로 계산된 연소도와 실험 결과로부터 유도된 위의 실험식으로 한국형 경수로 핵연료의 반경방향 연소도 측정을 하였다.

반경방향 연소도 분포는 연료의 조사이력을 검증하는 중요한 기초 자료이며, 이 자료를 근거로 운전이력과 중성자속의 조절 등에 적절히 이용될 수 있다.

Fig. 3과 같은 한국형경수로 핵연료 시편의 중심부위에서 외면부위 방향으로 25 지점에 대해 Nd의 농도를 측정하였고, 측정된 Nd 농도부터 위에서 유도된 실험식으로 연소도를 계산하여 Fig. 3과 같이 핵연료의 연소도 분포를 나타내었다.

MOX 연료를 사용하여 연소도 측정 가능성을 제시한 C.T. Walker와 Shigeharu UKAI의 문헌에 따르면 핵연료와 연소조건에 따라 다르지만, 연료의 외면부위가 국부적으로 중성자 속(flux)이 많이 생성되는 외면부위 효과 때문에 상대적으로 연소도가 높게 나타난다고 알려져 있다. Fig. 3에서 연료의 중심부위보다 외면부위로 갈수록 Nd의 농도가 증가하고, 이에 따라 연소도가 증가하는 현상을 볼 수 있다. 또한 연소조건이 35,000 MWd/MTU인 한국경수로 핵연료에서 연료의 중심부위의 연소도는 20,000 MWd/MTU인 부위와 연료의 외면부위에는 국부적으로 70,000 MWd/MTU로 높은 연소도를 나타내고 있음을 알 수 있다. 이와 같은 부위별 연소 이력을 확인함으로써 원자로의 출력과 핵연료의 특성 및 중성자속 분포 등을 확인하는 중요 자료로 이용될 수 있으며, 또한 이 실험과정에서 얻어진 경험과 기술을 토대로 원자로 운전조건 및 새로운 핵연료의 개발에 활용 될 수 있을 것이다.

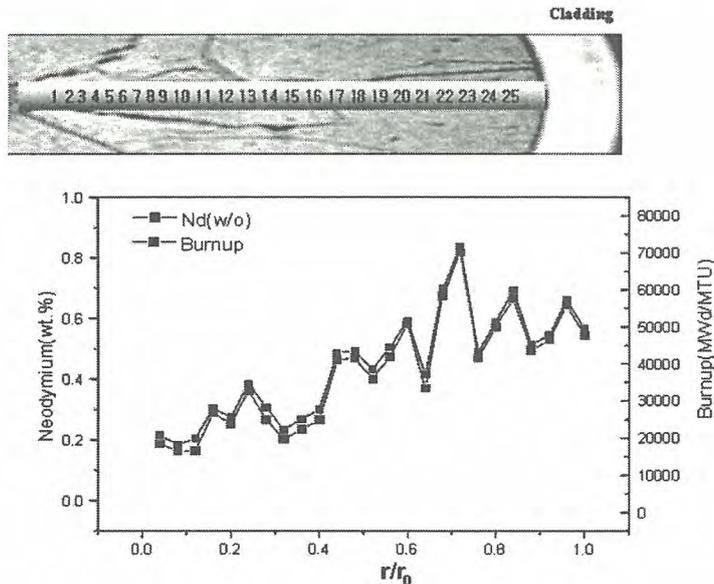


Fig. 3. Radial burnup and Nd concentration distribution measured by EPMA.

#### 4. 결 론

차폐형 성분분석기(Shielded EPMA)를 이용하여 한국형 경수로발전소에서 연소된 35,000 MWd/MTU, U-235의 농축도 3.2%인 UO<sub>2</sub> 사용후핵연료의 연소도 측정 방법을 제시하였다. ORIGEN2 코드로 계산한 연소도에 따른 Nd의 농도와 EPMA 분석에 의한 Nd의 농도는 거의 일치하였다. EPMA로 분석한 Nd의 조성과 ORIGEN2 코드로 계산한 Nd의 조성 분포를 이용하여 사용후핵연료의 연소도를 예측하는 다음과 같은 일차 실험식을 유도하였다.

$$C_{Nd} = -8.884 \times 10^{-3} + 1.227 \times 10^{-5} Bu, (Y_{Nd} = 1.69)$$

이 식을 실험에 사용한 3 종류의 사용후핵연료 Nd 농도 계산 결과와 비교한 결과 측정치와 거의 같은 값을 나타내었다. 비록 화학분석의 방법이 가장 정확하기는 하지만, 6개월 이상의 긴 분석기간, 높은 방사능으로 인한 시험자 피폭, 정교하고 복잡한 분리 및 추출과정을 피할 수 있고, 특히 2차 방사성폐기물의 발생을 억제할 수 있는 EPMA에 의한 사용후핵연료 연소도 측정이 가능하다고 판단된다.

#### 참 고 문 헌

1. M. E. Cunningham, M. D. Freshley, J. Nucl. Mater. 188 (1992) 19
2. Shigeharu UKAI, Ichiro UNNO., "Development of New Method for Burnup Measurement by SIMA", J. Nucl. JAERI, 528(1987) 54
3. C. T. Walker, T. Kameyama, J. Nucl. Mater. 188 (1992) 74
4. K. Une, M. Oguma, J. Nucl. Sci, Technol., 20 (1983) 844
5. C. Bagger, M. Mogensen., Uranium Dioxide properties and Nuclear Application, J. Nucl. Mater. 211 (1994) 11
6. K. Toshiaki, I. Kenichi, The effect of cleding restraint in fission gas release behavior, J. Nucl. Mater. 158 (1988) 64-70
7. J. S. Kim, S. H. Han., "Burnup Measurement of U3Si/Al by Chemical Methode", KAERI/GP-192/2002. 332.

## Neutron Count Rate Measurement of $\text{UO}_2$ powder by Neutron Source

Hee-YoungKang, Gil-MoKoo, Jang-HoHa, Ho-DongKim, and Myung-Seung  
Yang

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Dukjin-dong, Yusong-gu, Daejeon

[hykang@kaeri.re.kr](mailto:hykang@kaeri.re.kr)

### Abstract

Neutron count rate measurements to assay fissile content of uranium powder have been carried out in a neutron counter. The induced fission neutrons by Cf-252 neutron source are counted as the variation of fissile material in fuel material. The measured counts are compared with equivalent results obtained from calculation. It shows that the measured neutron counts versus quantity of  $\text{UO}_2$  powder enrichment agreed reasonably well with the calculated values.

**Keyword** : Neutron count rate, Uranium oxide, Enrichment

### 1. Introduction

Neutron detectors do not usually preserve information about energy of the detected neutrons. Consequently, neutron assay consists of counting the number of emitted neutrons without knowing their specific energy. It can be obtained a neutron signal that is proportional to the quantity of the isotope to be measured. Active NDA neutron counting method were developed for the assay of nuclear fuel material[1-6]. The active neutron measurement technique would be useful to determine the amount of fissile content in the fuel material. This is sensitive to the enrichment, density and material composition of samples. Active neutron multiplicity counting has become a nondestructive analysis technique for the assay of  $\text{UO}_2$  powder samples whose characteristics are well known. The measured total and coincidence count rates from a sample are used to solve the neutron multiplication from the spontaneous fission neutron yield.

In order to determine the fissile contents of a fuel sample, the NDA neutron measurement method has been applied by the variation of neutron counts. The fissile content of fuel material is measured by neutron counts due to induced fission dependent on the contents of fissile materials. The MCNP code[7] was used to calculate the neutron multiplicity count model for the examination of fissile contents in a fuel material sample. Because of neutron absorption and multiplication in uranium powder samples, the neutron count are effected on the geometry, powder density and enrichment. The calculations by MCNP code are compared with the measurement of

neutron counts using the neutron detector.

## 2. Active Neutron Count Method

The neutron sources are more important in active nondestructive assay measurements. The neutron sources originate from spontaneous fission as well as some (α,n) reaction neutrons for the fuel materials. The spontaneous fission and (α,n) neutron source terms are dependent on the kind of isotope and decay time.

The dominant source term of neutrons is spontaneous fission from Cf-252 for active NDA measurements. Fig. 1 shows an energy spectrum of the neutrons emitted during the spontaneous fission of Cf-252. The mean energy is 2.14 MeV. The spectrum depends on many variables such as fission fragment excitation energy and average total fission energy release, but can be approximated by a Maxwellian distribution. Table 1 summarizes some of properties of Cf-252. For active NDA applications it is important to remember that Cf-252 neutrons are emitted with an average multiplicity of  $\nu=3.757$ . Thus they are strongly correlated in time and will generate coincidence events.

However, there is an additional neutron source produced from the multiplication process from fuel materials. This multiplication is significantly increased when the fuel materials is measured under moderator material such as water, graphite and polyethylene. The Cf-252 spontaneous fission neutrons will be used as active neutron driving term. The U-235 and Pu-239 fissile contents determine the amount of neutron multiplication. The change of neutron count ratio called as the neutron multiplication is measured as induced fission neutrons of fissile material in fuel materials with Cf-252 spontaneous fission source.

The Bohnel point model equations[2] provide a means of predicting an observed neutron count rate from fuel material. The point equations for the real coincidence count rate(doubles rate), and total count rate(singles rate) are summarized below. The singles count rate S and the doubles count rate D are given by

$$S = \varepsilon M_L F_s \nu_{s1} (1 + \alpha) \quad (2)$$

$$D = \varepsilon^2 M_L^2 f F_s \left[ \nu_{s2} + \frac{M_L - 1}{\nu_{i1} - 1} \nu_{s1} \nu_{i2} (1 + \alpha) \right] \quad (3)$$

where,

$S, D =$  Singles and doubles count rate

$\varepsilon =$  detector efficiency

$M_L =$  leakage multiplication of fuel material

$\nu_{s1}, \nu_{s2} =$  1st and 2nd spontaneous fission moment (n/spon. fission)

$\nu_{i1}, \nu_{i2} =$  1st and 2nd induced fission moment (n/ind. fission)

$\alpha =$  ratio of (alpha, n) emission to spontaneous fission

$f =$  fraction in the doubles gate

The concept theory for fissile content measurement is to use a neutron counting ratio in terms of the multiplicity ratios to separate the primary emission neutrons from secondary fission neutrons induced in the fissile material. Therefore, fissile material

content measurement was based on the leakage multiplication theory in the fuel material[2]. One of the initial assumptions in the point model is that all of the neutrons under consideration are born at the same point in time.

The change of multiplicity ratio due to induced fission dependent on the contents of various fuel materials was proposed to determine the fissile content of fuel material. The multiplicity ratios means to measure neutron count for fuel material with removable Cd shutter between the fuel rods and moderator, and then to measure neutrons without Cd shutter. The effects of multiplicity ratios varied with fuel fissile material.

Table 1. Characteristics of Cf-252 neutron source

Item	Description
Total half-life	2.646 yr
Neutron yield	$2.34 \times 10^{12}$ n/s-g
Average neutron energy	2.14 MeV
Neutron activity	$4.4 \times 10^9$ n/s-Ci
Neutron dose rate	2300 rem/h-g at 1m
Average spontaneous fission neutron multiplicity	3.757

### 3. Measurement Test Model

The fissile measurement model was to develop the MCNP code simulation capable of measuring the neutron counting ratio due to the induced fissions. Some simplifications of the geometry in the Monte Carlo model were used for neutron counter measurement using the MCNP code. Fig. 2 shows a horizontal and vertical view of the neutron detector for neutron count rate measurement.

For comparison with the MCNP neutron calculations, a series of UO<sub>2</sub> powder can were measured with the Fissile Neutron Counter which was developed at KAERI. The fuel material in the cavity is composed of UO<sub>2</sub> powder cans with 13 cm in length and with 3.8 cm in diameter. These are made by selecting a series of enrichments from 0.71 to 4.1 % and then placed into encapsulated stainless steel can. The polyethylene reflector is placed between the powder can and the inner stainless steel shell. The neutron multiplication in UO<sub>2</sub> powder is caused by a thermal neutron, which the fast neutrons due to Cf-252 emission are moderated in polyethylene reflector.

The Cd shutter between the UO<sub>2</sub> can and poly is placed and removed for measuring multiplicity ratios. The thick lead layer gives gamma-ray shielding of the He-3 tubes for protection from gamma emission. The polyethylene encased with stainless steel shell has 32 holes for He-3 detector tubes which can detect neutrons by (n, p) reaction. The neutron counts from Cf-252 neutron source has been measured in 32 He-3 detector tubes. The singles and doubles rate neutrons were measured by using 32 He-3 tubes. The MCNP calculations were compared with experimental measurements. A series of measurements were done from the empty can to 4.1% enriched powder can.

#### 4. Results and Discussions

A series of uranium oxide powder were measured in a fissile neutron counter. The fissile content has been studied by using neutron count rate based on multiplicity of induced fission. The fissile measurement by using an active neutron count method could be available to assay powder enrichment. And this method would be utilized in determining the total fissile content in a given sample. The fissile content for fuel material has been studied by the comparison of the experiment measurement between the MCNP calculations. Fig. 3 shows a comparison of the measured and calculated count rate versus  $UO_2$  powder enrichment by using Cf-252 neutron source. The plot is in good agreement within 4 % difference.

#### 5. Conclusion

This experiment was carried out to study the enrichment measurement by using neutron counter. A MCNP calculation and experimental measurement was successfully accomplished with the fissile neutron counter at KAERI. To determine the enrichment in fuel material, the neutron count rate by active neutron source is considered to be an appropriate method. To enhance accuracy of the measurement method for predicting the enrichment and fissile content, the passive and active neutron count method will be continually developed by further study.

#### References

1. M. S. Zucker and A. Fainberg, "Assay of Low-Enriched Uranium Using Spontaneous Fission Neutrons," BNL-27664, Brookhaven National Laboratory(1980)
2. M. S. Krick and J. E Swansen, "Neutron Multiplicity and Multiplication Measurements," Nucl. Instr. Meth. 219, 384-393 (1984)
3. K. Bohnel, "The Effect of Multiplication on the Quantitative Determination of Spontaneously Fissioning Isotopes by Neutron Correlation Analysis," Nuclear Science and Engineering, 90, 75-82(1985)
4. H. O. Menlove, et al, "CANDUMOX(CMOX) Counter Design and Operation Manual," LA-12192-M, Los Alamos National Laboratory(1991)
5. H. O. Menlove, et al, "Plutonium Scrap Multiplicity Counter Operation Manual," LA-12479-M, Los Alamos National Laboratory(1993)
6. M. S. Krick, et al., "Active Neutron Multiplicity Analysis and Monte Carlo Calculations," LA-UR-94-2440 Los Alamos National Laboratory (1994)
7. J. F. Briesmeister, Ed., "MCNP - A General Purpose Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport," LANL report La-12625-M, Ver. 4A(1993)

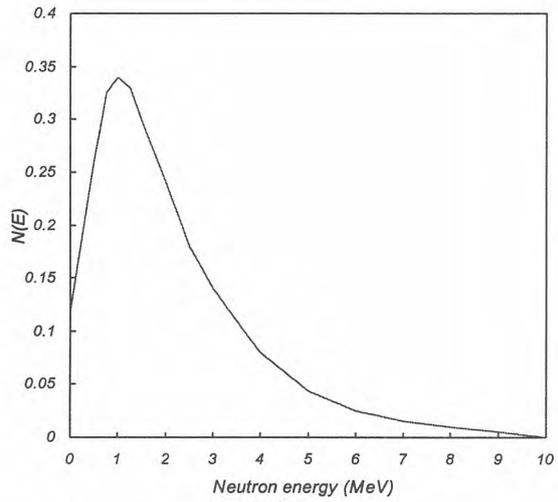


Figure 1 Neutron spectrum from spontaneous fission of Cf-252 source

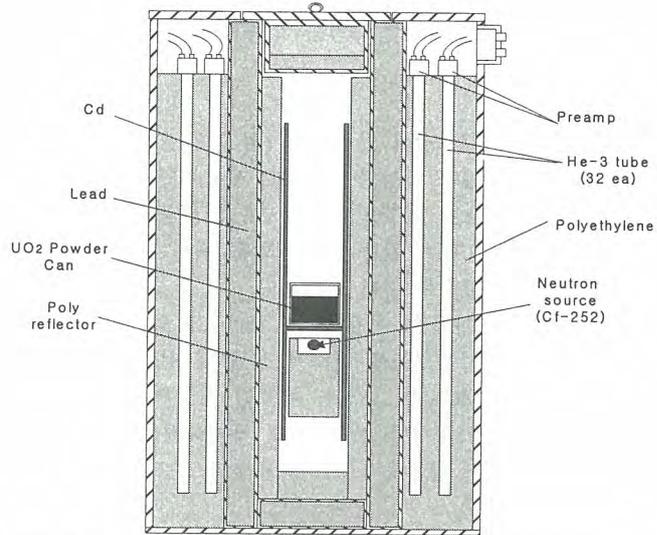


Figure 2 Neutron counter for neutron count rate measurement of UO<sub>2</sub> Powder

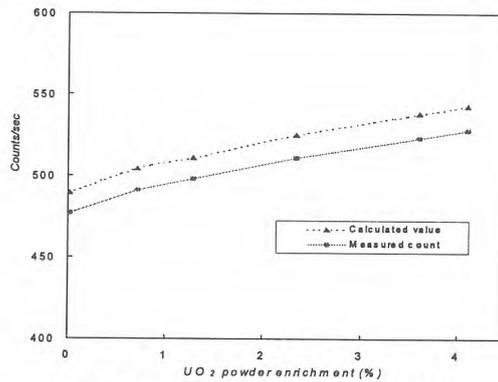


Figure 3 Doubles rate versus UO<sub>2</sub> powder enrichment used by Cf-252 source

## MCNPX 코드를 이용한 CANDU 사용후연료 조밀건식저장시스템 (MACSTOR/KN-400)의 방사선차폐 안전성평가에 관한 연구

김병수, 정계학, 이제성, 정찬우

한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 구성동 19번지

본 연구에서는 사용후핵연료 저장시설의 안전성평가와 관련한 방사선차폐해석 부문의 검증기술 검토 및 개발을 위하여 월성에 건설될 예정인 CANDU 사용후연료 저장을 위한 조밀건식저장시스템인 MACSTOR/KN-400을 대상으로 MCNPX 전산코드를 이용한 사례분석을 수행하였다. 본 연구는 장기적인 차원의 차폐안전성 평가 검증기술 개발을 위한 연구이므로, 사례분석의 차폐해석 결과는 실제 설계결과와 다를 수 있음을 미리 밝혀둔다.

MCNPX 코드는 Monte-Carlo 기법을 이용한 MCNP 코드의 기능을 일부 확장한 코드로서, MCNP 코드와 마찬가지로 3차원 기하구조에 대하여 선량 및 선속을 계산할 수 있는 범용의 방사선수송해석 코드이다. MCNP 및 MCNPX 코드는 컴퓨터 성능의 발전으로 다양한 분야에서 활용빈도가 증가하고 있는, 향후 발전가능성이 높은 주요 차폐해석 코드이기 때문에, 본 연구에서는 MCNPX 코드를 차폐 안전성 평가 검증목적으로 활용하여 보고, 적용 절차와 계산결과, 그리고, 적용시의 문제점을 파악하고자 한다.

MACSTOR/KN-400 개발에 관한 연구보고서를 토대로 설계자료 및 변수들을 입수하고, 차폐해석에 필요한 방사선원향 평가를 수행하였으며, MACSTOR 보고서의 결과와 다르지 않음을 확인하였다. 방사선 차폐해석과 관련하여, MACSTOR 보고서에서는 계산속도가 빠른 QAD-CGGP 전산코드를 활용하여 시설 외부의 선량을 계산하고, MACSTOR의 공기 입구 및 출구에서의 산란방사선에 대한 차폐해석은 이에 대한 차폐해석이 가능한 MCNP 코드를 적용하고 있으며, 이러한 방식은 계산효율을 최대화 하기 위하여 활용되는 전략이다. 본 연구에서는 설계 시설 외부의 선량 및 공기 입구와 출구에서의 산란방사선을 모두 MCNPX 코드를 이용하여 계산하였다. MACSTOR 보고서의 계산 절차, 변수 및 모델링에 관한 사항들을 살펴보았으며, 산란방사선 모델링에서 Variance Reduction을 위한 기법이 일부 적용되고 있음을 확인하였다.

MCNPX 코드를 이용한 사례분석을 위하여, 필요한 구성물질 조성은 MACSTOR 보고서에 근거하지 않고, 별도의 참고문헌을 통하여 입수하여 적용하였으며, 선량환산인자는 MACSTOR 보고서와 마찬가지로 ICRP-74 자료를 인용하였다. 대상 시설의 기하학적 구조는 설계와 최대한 동일하게 모델링하고, 사용후연료가 배치되는 저장 실린더 내부는 균질화되어 있다고 가정하였다. 또한 저장 실린더는 4열씩 10줄의 정형화된 구조로 구성되므로, 코드의 Lattice 기능을 이용하여 격자로 표현하고, 선원도 Geometric Chain에 의하여 지정하였다. Tally는 Point Detector Tally와 Mesh Tally를 이용하여 선량을 평가하였다. Point Detector Tally를 이용하여 주요 지점에서의 선량을 평가하고, Mesh Tally를 이용하여 선량분포를 공간적, 시각적으로 표현하여 방사선의 거시적인 거동을 동시에 확인해보고자 하였다.

MCNPX 코드를 이용한 감마선량 계산결과는 Table 1과 Fig. 1에 수록하였다. 시설 외부 표면에서의 결과는 설계기준 제한치 25  $\mu\text{Sv/hr}$ 를 만족하고 있지만, 공기 출구 및 입구에서의 선량은 설계기준을 만족하지 못한다. 이를 위해서는 추가적인 차폐가 필요할 것이며, MACSTOR 보고서에서도 추가적인 차폐조치를 취하고 있다. 계산결과 및 Mesh Tally에 의한 방사선 분포 거동을 살펴보면, 상단의 공기 출구의 선량 분포가 하단의 공기 입구보다 더 높은 것을 확인할 수 있다.

MCNPX 코드를 이용한 차폐안전성 평가 및 검증에서 신뢰성 있는 계산결과를 얻기 위해서는 계산오차를 줄일 수 있는 충분한 계산시간이 필요하다. 어떤 상황에서는 적절한 Variance Reduction(VR) 기법을 사용하여야 계산효율이 증가하여 합리적인 시간 내에 결과가 도출될 수도

있으므로, VR에 대하여 주의를 기울여야 하는 활용상의 어려움이 존재한다. 계산결과를 검증하기 위하여 선량평가 후에 확증을 위한 별도의 평가절차 또는 다른 방법론의 전산코드가 보조적으로 필요할 수도 있다. MCNPX 코드를 검증용으로 활용하고 신뢰성 있는 결과를 얻을 수 있기 위해서는 VR 및 검증계산 등에 관한 보완 절차가 검증목적에 맞게 검토되고 개발되어야 할 것이다.

Table 1. MCNPX 코드 계산 결과 (감마선량)

No.	위 치	높이 (cm)	선량 (Sv/hr)	비고
1	상부 슬래브 (중앙부분)	754	1.8459E-07	0.185 $\mu$ Sv/hr
2	상부 슬래브 (저장실린더 위쪽)	754	1.2752E-06	1.27 $\mu$ Sv/hr
3	공기 출구	603	1.4002E-04	140 $\mu$ Sv/hr
4	공기 출구 터널영역	603	1.1382E-02	(시설 내부)
5	MACSTOR 중앙 상부	603	2.6556E+01	(시설 내부)
6	옆면 외벽 (중앙)	377	7.0178E-06	7.02 $\mu$ Sv/hr
7	옆면 외벽 (저장 실린더 앞)	377	8.2495E-06	8.25 $\mu$ Sv/hr
8	MACSTOR 중앙	377	3.6229E+01	(시설 내부)
9	공기 입구	120	8.9150E-05	89.2 $\mu$ Sv/hr
10	공기 입구 터널영역	120	3.9028E-03	(시설 내부)
11	MACSTOR 중앙 하부	120	2.5764E+01	(시설 내부)

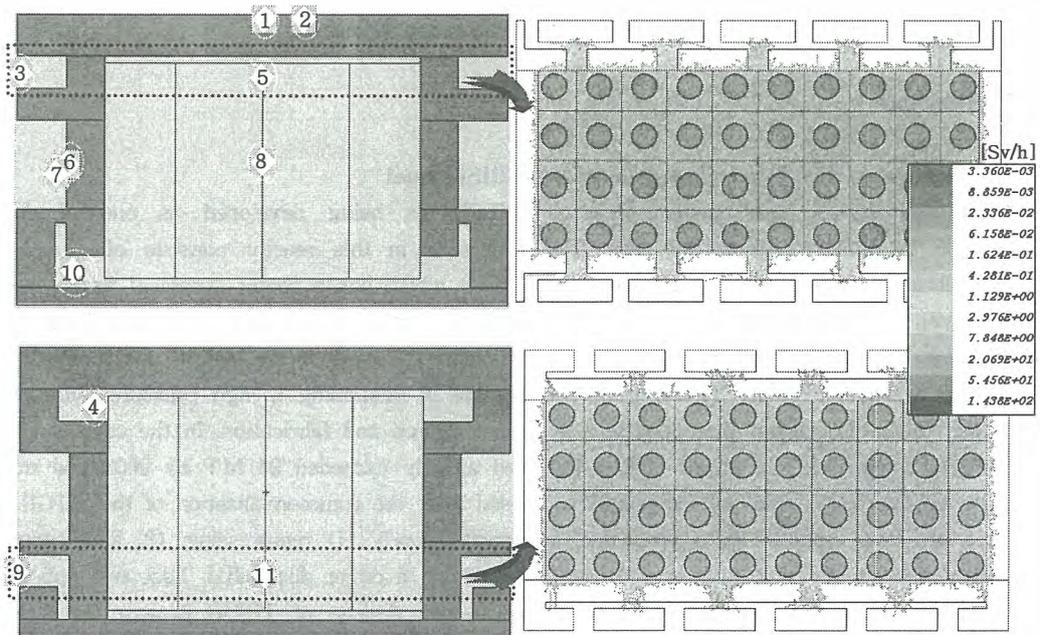


Fig. 1. 선량 계산 Tally 위치 및 Mesh Tally에 의한 감마선량 분포

## Feasibility Study on the Development of Alternative Methods for the Treatment of TRISO Fuels

Jong-Hyeon Lee, Joon-Bo Shim, Byung-Gil Ahn, Sang-Woon Kwon and Eung-Ho Kim

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

[jonglee@kaeri.re.kr](mailto:jonglee@kaeri.re.kr)

### Abstract

In this study, conventional head-end processes of spent TRISO fuel have been reviewed to develop more effective treatment methods. The main concerns in the TRISO treatment are to effectively separate the carbon and SiC contained in the TRISO particles. The crush-burn scheme which was considered in the early stages of the development has been replaced by the crush-leach process because of  $^{14}\text{C}$  problems as a second waste during the process. However there are still many obstacles to overcome in the reported processes. Hence, innovative thermomechanical concepts to breach the coating layers of the TRISO particle with a minimized amount of second waste are proposed in this paper and their principles are described in detail.

**Key Words** : TRISO, HTGR, reprocessing, thermal shock, breaching

### 1. Introduction

#### 1-1. Review of the Head-End Process of TRISO Fuel

High Temperature Gas Cooled Reactor (HTGR) is being developed as one of the Generation IV nuclear energy systems. The fuel used in this reactor consists of a small particle designated as TRISO (usually less than 1mm) which has a center kernel of fissile fuel coated with layers of pyrolytic carbon and silicon carbide. The silicon carbide layer is sandwiched between the inner and outer pyrolytic carbon layers to be laid in a compression during an operation. Hence, TRISO fuels are capable of sustaining a high pressure build up by a very high burnup but they require a good fuel design and fabrication. In the case of the USA, the inventory of the spent HTGR fuel had already exceeded 24 MT by 2002 and the quantity all over the world will be rapidly increased after the commercialization of the HTGR.

There are three options for a spent fuel treatment, namely (1) reprocessing, (2) long-period repository and reprocessing (intermediate storage) and (3) a direct disposal[1]. Last two options have been considered as an application to reprocess and dispose of TRISO because its three layers are able to serve as pressure vessels to contain the fission products and the fuel. However, the reprocessing concept has been accepted by most countries to get rid of the possible fission products released through coating failed particles. The key technology to treat spent HTGR fuel is how to separate the kernel which consists of the fuel and fission products from the coating layers.

Thermochemical, chemical, mechanical and electrical methods have been attempted for the reprocessing of the spent TRISO particle. Each process has unique features as shown in

Table 1. Summary of the head-end treatment procedures

Process	Thermochemical	Chemical				Mechanical		Electrical
	Thermal shock[2]	Electrolytical Disintegration[3]	Pure chemical disintegration[4]	Halogen gas oxidation [5]	Decomposition in molten salt[6]	Jet milling[7]	Crushing/Grinding and burning[8,9]	Electrical disintegration[6,10]
Description of the process	Treating whole fuel elements at 2500~3000 °C and a succeeding chemical separation treatment	Forming graphite intercalation compounds with anions of the electrolyte.	Applying vapors of potassium, cesium, bromine and FeCl <sub>3</sub>	Decomposing the coating layers by Cl <sub>2</sub> or F <sub>2</sub> at a high temperature	Decomposing SiC into SiCl <sub>4</sub> and Silicate in a molten chloride and carbonate	Jet grinding of burned TRISO particles and a leaching after a second burning	Thoroughly grinding the fuel element including the broken-open fuel particles or Separating the fuel particles from the element and coring a kernel	Passing high voltage electrical pulses through a compact in water
Advantages	Simple process	Low temperature process	Efficient process by K, Ce, Br, FeCl <sub>3</sub> gas	Selective volatilization, chemical extraction can be adopted	· Fast reaction rate · Dust free · Collectable silicon component	Easy scaling-up	· Reducing the number of processing steps · Low temperature, minimized 2nd contamination	Easy separation of the coated particles from the graphite fines
Disadvantages	U, FPs migration to PyC, SiC layers (2 <sup>nd</sup> contamination) and a reaction with the graphite part of the furnace	U, FPs co-dissolution(2 <sup>nd</sup> contamination), vessel corrosion, low reaction rate	Corrosive, sophisticated process	Corrosive, sophisticated process	Corrosive, difficulties in handling molten salt	Contamination of FPs to crushed fines due to possible Kernel breakage	· Kernel breakage and Off-gas treatment including <sup>14</sup> C, CO <sub>2</sub> · Difficulties in maintenance works of roll-gap clearance	Difficulties in a technological optimization due to the lack of phenomenological understandings

Table 1, however the procedure should be readily performed, provide a highly efficient disintegration of the fuel balls and a separation of the components and generate a minimum amount of waste material

In the case of the thermochemical process, a very high temperature ranging from 2500~3000 °C induces a thermal shock in the PyC and SiC and causes the fuel kernels to react with the layers, including graphite, to yield soluble carbides. As a consequence of the high temperature treatment, a succeeding chemical separation treatment is possible. However, FPs form intercalation compounds with the graphite components in the furnace during an operation which have been recognized as insurmountable amounts of material and corrosion problems [2]. Formation of graphite intercalation compounds with the anions of the electrolyte (e.g., sulfate or nitrate) lead to a lattice growth on the c axis and thus to a destruction of the lattice structure during the electrolytical disintegration process[3]. Similarly vapors of potassium, cesium, bromine and FeCl<sub>3</sub> are used to form graphite inter laminar compounds during the pure chemical process[4]. Although the effect is strong and efficient, its practical

application is of limited value due to the enormous corrosion problems along with the very sophisticated engineering process. The other chemical processes are to decompose the carbon and silicon carbide by the formation of gaseous halogens compounds in  $\text{Cl}_2$  and  $\text{F}_2$  at a high temperature[5] or in a molten chloride or carbonate[6]. These processes are advantageous in that crushed fines and a large volume of the CO or  $\text{CO}_2$  gases are not produced, whereas the difficulties in the handling of corrosive gases and a molten salt should be considered. A dry mechanical crushing and grinding cycle is regarded as a promising method for a practical head-end processing of the HTGR fuels. Mechanical process consists of two large directions, thoroughly grinding the fuel elements[7] and coring a kernel[8,9]. Former has potential drawbacks due to the formation of a mellithic acid ( $\text{C}_{12}\text{O}_{12}\text{H}_6$ ) or similar compounds from the interaction of a strong nitric acid with ground graphite. Their presence can affect the solvent extraction process by a complex Pu(IV) and probably Th(IV) and increasing the coalescence times under the uranium backwashing conditions. The latter was introduced to overcome the formation of an organic acid. This process involves the elimination step of the graphite during each crushing step, then it obtains the pure fuel kernel as an oxide powder[8]. To realize a coring without a failure of the kernel and a contamination of the FPs to the crushed fines, a sophisticated hard crusher is used. However the operation condition of the hard disk crusher is very limited, i.e. the clearance of the crushing gap should be kept to within  $\pm 0.15\text{mm}$  which is too risky in terms of a commercial scale. Hence an alternative crushing process which guarantees a soundness of the fuel kernel is necessary while minimizing the contamination of the FPs to the breached fines. Latest attempts to eliminate the carbon are with an electrical disintegration process[6,10]. In this process high-voltage electrical pulses are passed through a graphite compact. This results in an electrical breakdown of the substances with graphite and an explosion of the compact. The explosion is initiated by the pressure of the evaporated graphite built up as a result of the direct conversion of the solids into a gas during the high-voltage pulses. In this step, the coated particles should be intact while the size of the graphite is reduced to much lower than that of the coated particles. Hence the separation of the breached graphite from the coated particles could be easily achieved.

Among the reported head-end treatment processes of a coated fuel, only a few options have been continuously investigated. The main point that should be considered in the treatment process is how to minimize the carbon component combined with other elements such as  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CF}_4$  and  $\text{CCl}_4$  etc. Hence, the objective of this study is to develop innovative methods for breaching the protective outer layers (porous carbon, inner pyrolytic carbon, silicon carbide barrier coating, and outer pyrolytic carbon) of the spent TRISO nuclear fuel. The innovative technologies include a radio frequency (RF) induction heating and a microwave heating connected with a rapid quenching to accelerate the internal gas expansion in the fuel kernel and thereby cause a stress cracking of the outer layers surrounding the fuel kernel.

### 1-2. Stability of the TRISO Particle

In the high temperature condition, the SiC layer in TRISO is laid under a compression by the interaction between the IPyC and OPyC layers. Hence, the structural integrity of the TRISO particle such as it's pressure vessel makes it difficult to be breached especially by a pressure build up with a high temperature as shown in Fig. 1. The high temperature urability of the ceramic coated fuel particles were investigated by Schenk et al.[11] and Ogawa et al. [12]. Usually a SiC layer without an outer PyC layer can suffer a serious degradation by an

irradiation at about 1400 °C for less than two days. Even with the intact outer PyC, it

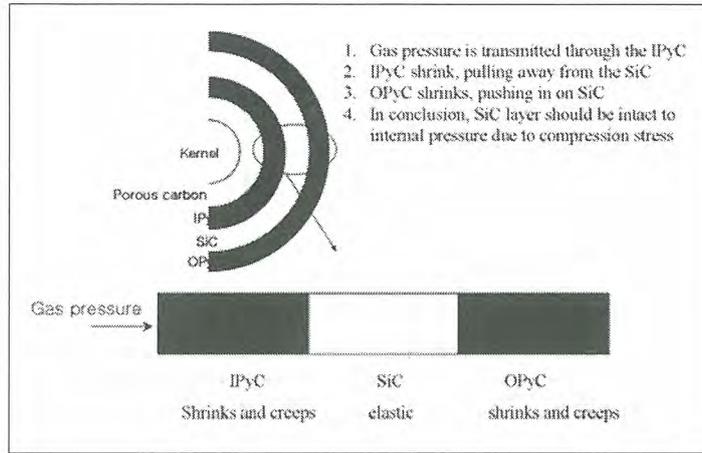


Fig. 1. Structural stability of TRISO[11].

decomposes so rapidly above 2300 °C that the coated fuel particles lose their diffusion barrier

Table 2. Published results on the stability of TRISO [12].

Temp. °C	SiC-Triso (conventional)	ZrC-Triso	ZrC/(Th,U)O <sub>2</sub>	Biso
1850	Intact	Intact	Intact	Intact
2100	Intact	Intact	Intact	Intact
2450	Pressure-failed	Swelling without U migration outside of ZrC	Intact	Swelling and U migration into PyC
2500	-	5/8 pressure failed U migration	Intact	Pressure-failed
2550	-	-	Intact	-

for the metallic FPs. Furthermore a pressure failure starts only after 2450 °C in the case of conventional TRISO, and more for the ZrC coated fuel particles, see Table 2. Consequently, a breaching without a contamination of the FPs to the breached fines by a conventional heating method appears to be difficult from a previous report on the stability of TRISO in a high temperature. There is a fundamental temperature limit in the thermal breaching method regardless of the heating scheme, because the temperature should not exceed more than ~ 2500 °C which is the onset temperature of a migration of the FPs through the diffusion barrier.

## 2. Treatment Concepts under Consideration

### 2-1. Critical $\Delta T$ for Inducing a Fracture (Simple Geometry)

When each face of a continuum is placed in a different temperature condition, there is a temperature gradient as shown in Fig. 2. This temperature difference causes a thermal stress which is expressed by Eq. 1.

$$\sigma_{\max} = \frac{E\alpha\Delta T}{1-\nu} f(\beta) \tag{1}$$

where

$\sigma_{\max}$  : maximum stress

$E$  : Young's modulus

$\alpha$  : thermal expansion coefficient

$\Delta T$  : quench temperature differential

$\nu$  : Poisson's ratio

$f(\beta)$  : function of the heat transfer conditions

$$\beta = \frac{ah}{k}$$

$a$  : characteristic length,  $h$  : surface conductance,

$k$  : thermal conductivity of sample

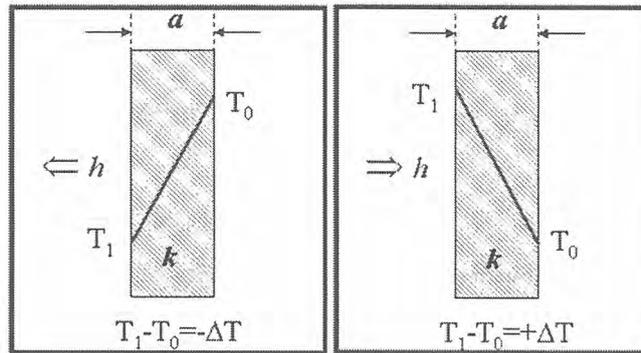


Fig. 2. Temperature gradient on cooling(left) and heating(right)

When the maximum stress,  $\sigma_{\max}$  exceeds the tensile stress of the material, there will be a crack. This temperature difference to induce a crack in the material is defined as the critical temperature difference,  $\Delta T_c$  as depicted in Eq. 2.

$$\Delta T_c = \frac{\sigma_i(1-\nu)}{E\alpha f(\beta)} \tag{2}$$

where  $\sigma_i$  : tensile strength

$\Delta T_c$  : critical temperature difference

The critical temperature is a function of the mechanical property of a material and also the dimension of the material as shown in Fig. 3. In the case of silicon nitride which has a good toughness comparable to SiC, the critical temperature reaches 1400 °C, approximately in TRISO size[13].

## 2-2. Rapid Heating and Quenching Schemes

### Skin Effect during an Induction and Microwave Heating

The radio frequency and microwave are used for a heat-treating and a higher frequency which causes a higher concentration of the induced current at the surface by the skin effect. Shorter gap between the coil and the conductor causes an induced current and a coil current which attract each other stronger at the surface by the proximity effect during the RF induction heating. The induced current flow within the object is most intense on the surface,

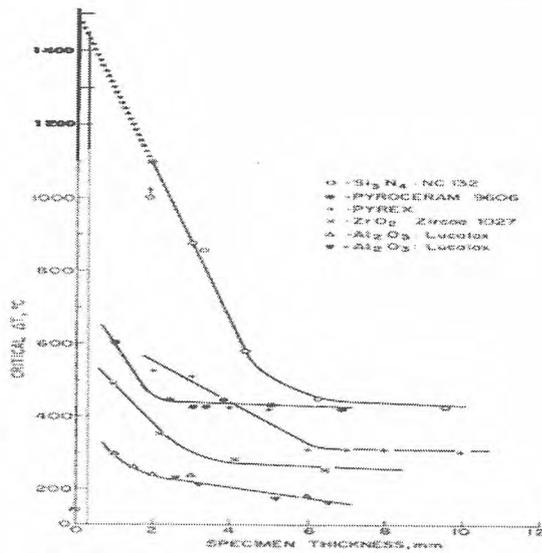


Fig. 3. Effect of a specimen size variation on the  $\Delta T_c$  for various ceramics. Note: Biot number is proportional to the specimen size (dotted line is interpolated)[13].

and decays rapidly below the surface. This is described as the "skin depth",  $d_s$  of the object as shown in Eq. 3. The skin depth decreases when the resistivity decreases ( $\rho$ ), permeability ( $\mu$ ) increases or the frequency increases ( $\omega$ ).

$$d_s = 5.03 \sqrt{\frac{\rho}{\mu\omega}} \quad (3)$$

Figure 4 shows the critical frequency as a function of the diameter for round bars[14]. Higher frequencies are needed to efficiently heat small bars, but once the critical frequency is

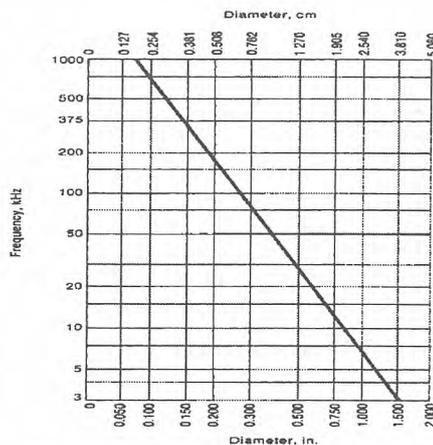


Fig. 4. Critical frequency as a function of diameter for round bars[14].

reached, increasing the frequency has very little effect on the relative efficiency. Hence, a careful choice of the frequency as well as the power is essential to achieve a maximum efficiency.

**Evaluation of the RF-Induction and Microwave Heating for a TRISO Heating**

The alternative heating processes considered in this study are summarized in Table 3. Each process has unique characteristics in the heating of a coated particle, but a common denominator is to heat up the TRISO fuel with a very high heating rate. The primary difference between the RF and microwave heating is the frequency range for deciding the heating mode. When we heat up a several centimeters sized sample as a fuel compact, the critical frequency should be chosen at below 10 kHz as shown in Fig. 4. The application of a higher frequency leads to only a surface heating of the compact. In the case of the heating of a TRISO particle, however, a much higher frequency is necessary to heat up an individual particle.

Hence, the frequency range should be decided upon according to which type of fuel, compact or coated particle, is to be treated. It is required that the filler carbon in the fuel compact is removed by a mechanical method before a breaching of the TRISO particle, so a microwave heating would be more preferable to heat up the particles as depicted in Table 3.

**Table 3. Characteristics of various induction heating methods.**

Heating methods	Frequency range	Characteristics
Induction heating	~10 kHz	Applicable to large sample, suitable for the heating of fuel compact
Radio frequency heating	70kHz~0.3GHz	Wide Choosability of frequency according to sample size, suitable for the heating of TRISO particle
Microwave heating	0.3~300 GHz	Surface heating, suitable for the heating of TRISO particle

**Application of a Plasma to a TRISO Treatment**

Plasma heat transfer processes are significantly more complicated than that for an unionized gas since the heat transfer phenomenon is greatly affected by the flow of the electrons and ions. An electrical boundary layer is formed around the particle apart from the hydrodynamic and thermal boundary layers. The electrical, thermal and hydrodynamic effects must be considered simultaneously with the surface phenomenon to accurately determine the heat transfer from the plasma to the item being heated. Due to the heat transfer from the plasma, the particulates heat up and eventually melt when the retention time is excessive. The temperature history of TRISO during its time in a plasma flame was preliminary calculated by the commercial FEM code, AnsysV.5.5.1. The material properties of each component in TRISO and their thermal boundary conditions are summarized in Table 4.

Table 4. Material properties of the components in the TRISO fuel for the calculation of the temperature distribution.

	Thickness(m)	Density(kg/m <sup>3</sup> )	Thermal conductivity(W/m <sup>0</sup> K)		Specific heat(Wsec/kg <sup>0</sup> K)		Heat transfer coefficient(W/m <sup>2</sup> K)
			300K	1773K	300	235	
Kernel	300E-6(dia)	10000	300K	9.76	300	235	-
			1773K	2.52	1773	338.4	
			3120K	3.959	3120	792	
Buffer layer	150E-6	1000	300K	~200	300K	~540	4500
IPyC	35E-6	1850	300K	340	300K	711.72	Thermal contact
SiC	35E-6	3200	300K	250	300K	720	Thermal contact
OPyC	40E-6	1850	300K	340	300K	711.72	10000

The FEM mesh indicating the temperature measuring points and temperature profiles are depicted in Fig. 5. The initial and environmental temperature of TRISO were set to 300K and 8000K (as a plasma temperature) respectively. It was calculated that the OPyC temperature rapidly increased to the environmental temperature within 0.2 second while the rate decreased in the inner layers. One interesting result is the temperature of the kernel which was kept below its melting point within the first 0.6 sec. This is because the gas gap between the kernel and buffer carbon layer and the porous buffer carbon layer itself with a lower thermal conductivity acted as thermal barriers. Hence, with a carefully considered design of the plasma flame, an extremely rapid heat up of the coating layers without a considerable heating of the kernel should be possible.

**Application of a Quenching to Proposed Heating Methods**

An example of the experimental apparatus utilizing a electromagnetic and a plasma heating with a subsequent quenching is shown in Fig. 6. The heat up particles are impinged on the chilled surface, which is designed to wrap the particles.

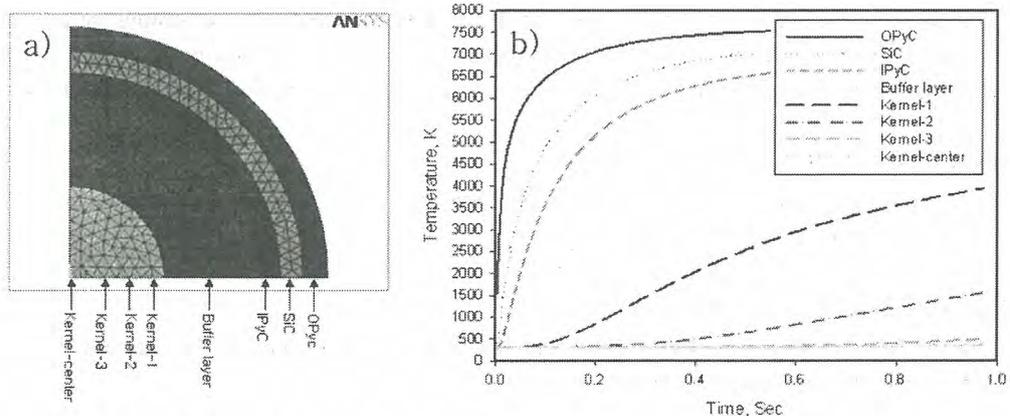


Fig. 5. FEM mesh indicating the temperature measurement points a) and their profiles b).

Liquid nitrogen could be chosen as a quenching medium, however gasified nitrogen would be an additional burden that would need to be treated. Heat transfer from the particles to the surface results in a rapid cooling and the formation of a temperature gradient on the surface. This induces a thermal crack in the coated layers which are laid under the critical T. At this moment, the temperature change of the kernel would be milder than in the coated layers because of the porous carbon layer and the gas gap in the buffer carbon layer of the spent TRISO particle. Hence macro and micro cracks would only be induced in the coating layers.

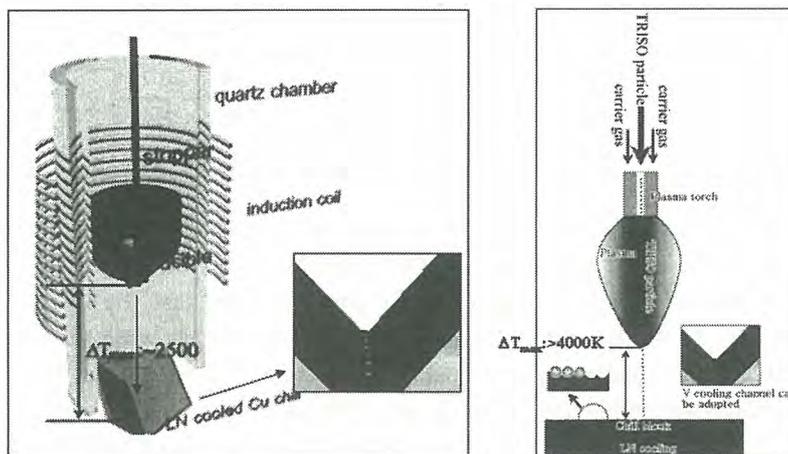


Fig. 6. Schematic diagram of the electromagnetic wave(a) and plasma(b) assisted quenching process of the spent TRISO particle

### 3. Conclusions

The conventional treatment technologies of spent TRISO fuel were reviewed. It was found that the existing processes still have many obstacles to overcome in terms of a second waste generation as well as proliferation resistance. Preliminary investigations have shown that the electromagnetic waves accelerate the internal gas expansion in the fuel kernel and thereby cause a stress cracking of the outer layers surrounding the fuel kernel. Also, a subsequent quenching process would enhance the formation of a microcracking in the coating layers. The innovative technologies such as a RF-induction, microwave and plasma heating with a rapid quenching under consideration in this study could be alternatives to treat spent TRISO fuel.

### Acknowledgement

This work was funded by the International Nuclear Energy Research Initiative (I-NERI) programme, Project Number : 2004-006-K.

### References

1. Lotts, A.L., et al., Options for Treating High-Temperature Gas-Cooled Reactor Fuel for repository Disposal, ORNL/TM-12027 (1992).
2. Norbert, G. Hoogen and Erich R. Merz, Evaluation of Potential Head-End Procedures for Graphite-Containing Fuel Elements, Nuclear Technology, 61, 380 (1983).
3. F. Calori, A. Compagnone, O. Nepi and G. Orsenigo, An Experimental Investigation and Assessment of Reprocessing and Refabrication of High Temperature Reactor Fuel:Part 1

- through 4, Dragon Project Report 461 (Feb. 1967)
4. E. Merz, Disintegration of the Graphite Matrix by Cesium Metal, Nukleonik, 11, 38 (1968).
  5. M. Maeda and E. Yagi, Feasibility Study for Removal of SiC Coating in HTGR-Type Fuel by F<sub>2</sub>-Fluorination, JAERI-M7060, Japan Atomic Energy Research Institute, April.
  6. G. Dominique, M. Michel and B. Philippe, The Reprocessing Issue for HTR Fuels: An Assessment of its Interest and its Feasibility, Global 2003, New Orleans, LA, Nov. 16-20, 2003.
  7. H. Tischer, Fluidized-Bed Burning as Part of an HTGR-Reprocessing Plant, Jahresbericht 1978/79, Kernforschungsanlage Julich(1979).
  8. K. Sawa, S. Yoshimuta, S. Shiozawa, S. Fujikawa, T. Tanaka, K. Watarumi, K. deushi, F. Koya, Study on Storage and Reprocessing Concept of the High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR) Fuel, in Technologies for gas cooled reactor decommissioning, fuel storage and waste disposal, Proceedings of a Technical Committee Meeting held in Julich, Germany, 8-10 September (1997), pp. 177-189, IAEA-TECDOC-1043.
  9. M. Meada, T. Tsujino, K. Iwamoto, Proc. of IAEA Specialists' Meeting on Gas Cooled Reactor Fuel Development and Spent Fuel Treatment, Moscow (1983) 345-356.
  10. U. Andres, Parameters of disintegration of rocks by electrical pulses, Powder Technology, 58, 265-269, 1989.
  11. W. Schenk and A. Naoumidis, Nucl. Technol. 46 (1979) 228.
  12. T. Ogawa and K. Ikawa, Journal of Nuclear Materials, 99 (1981) 85-93.
  13. D. Lewis III, Thermal shock and thermal shock fatigue testing of ceramics with the water quench test, in Fracture Mechanics of Ceramics, Vol. 6, ed. R.C. Bradt, A.G. Evans, D.P.H. asselman and F.F. Lange, Plenum press, New York (1983).
  14. S.L. Semiatin and D.E. Stutz, Introduction Heat Treating of Steel, American Society for Metals, 1986.

## Reaction Analysis of an Electrolytic Reduction Process of the ACP by Means of a Theoretical Approach

Byung-Heung Park, Sung-Bin Park, Hee-sung Shin, In-Kyu Choi and Chung-Seok Seo  
Korea Atomic Energy Research Institute, P.O. Box 150, Yuseong-gu, Daejeon, Korea

The advanced spent fuel conditioning process (ACP) has been developed by KAERI for the purpose of reducing the volume as well as the radiotoxicity of the spent fuels (SFs) which are discharged from PWRs as oxide forms. With an electrolytic reduction (ER) process the center of the whole process, the constituents of the SF undergo chemical and physical changes through a voloxidation, an electrolytic reduction, and a smelting process and then they are separated into waste steams. However, most of the chemical transitions take place in the molten-salt-based ER process which is a main part of the ACP: electrolytic reactions producing a reductive metal and chemical reactions between the metal and the metal oxides to be reduced. Consequently, a theoretical analysis of the reactions in the ER process is indispensable for carrying out the researches on the phenomena in an electrolytic cell at a high temperature. In the ER process which uses LiCl as an electric medium and Li metal as a reducing agent, which is a product of a  $\text{Li}_2\text{O}$  decomposition by an electric potential, the activity of  $\text{Li}_2\text{O}$  is the most important property to estimate the cell potential and the extents of the reactions. In this study, an operable range of the cell potential is evaluated with a consideration of the soluble fission products (FPs) and their reaction products with LiCl in the molten salt cell and the analyses for the reactions of the constituents of the SF in the  $\text{Li}_2\text{O}$ -LiCl system are performed with the  $\text{Li}_2\text{O}$  activity.

## 차세대관리 종합공정 실증시설(ACPF) 개발

유길성, 정원명, 구정희, 조일제, 국동학, 권기찬, 이원경, 이은표, 정기정  
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

한국원자력연구소에서는 사용후핵연료의 체적을 감소시켜 저장 안전성 및 경제성을 확보하고 국가가 추진하고 있는 제4세대 원자력시스템 등에 활용키 위한 사용후핵연료 차세대관리 공정(ACP)을 현재 개발 중이다. 이 기술의 완성을 위해서는 사용후핵연료를 사용한 실증시험이 필수적이며, 이를 위한  $\alpha$ - $\gamma$  type의 hot cell 시설 및 부속시설이 필요하다. 연구소는 별도의 실증시설 설치에 따른 고 비용을 줄이기 위해 현재 연구소가 보유하고 있는 조사재시험시설(IMEF)의 지하에 위치한 예비 hot cell을 활용키로 하고 차세대관리 종합공정의 특성 및 용도에 맞도록 시설을 수정/보완 해오고 있다. Fig. 1 및 2는 예비핫셀을 개조한 후의 차세대관리 종합공정 실증시설의 전체 모습과 핫셀의 열개도를 보여주고 있다.



Fig. 1. 실증시설 전체 조감도



Fig. 2. 실증시설 핫셀 열개도

2001년부터 추진된 이 시설개발 연구는 첫해에 기본설계 요건 검토를 거쳐 2002년에 시설의 기본 및 상세설계와 시설 전 분야에 대한 안전성 분석을 수행하였으며, 이 자료를 바탕으로 2003년에는 시설 인허가 업무를 추진되었다. 2003년에는 시설 건설에 대비한 주요 hot cell 설비 및 기기의 구매/발주 업무도 추진되었다.

실증시설의 인허가 추진업무로는 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.

2004년도에는 전년도에 수행된 실증시설의 기본, 상세설계 및 안전성 분석 자료를 바탕으로 핫셀 개조공사를 위한 B/M산출, 예가산정, 공사 발주품의 및 업체 선정을 완료하였으며, 핫셀의 부대설비에 대한 구매/제작 발주업무도 수행하였다. 예비핫셀의 개조공사는 크게 구조/건축분야, 기계/설비분야, 전기분야, 공정/계장분야로 나누어 진행하였으며, 각 분야별 상세도면 및 시방서를 면밀히 검토한 후 공사를 승인하였고 품질보증 업무도 병행하였다. 핫셀 부대설비에 대한 제작 상세도면 및 제작시방서도 검토/승인 하였으며, 핫셀 주변의 방사능 안전수위를 점검하기 위한 방사능감시시스템(RMS)의 제작시방서도 면밀한 검토 후 기기의 제작업체 선정 및 구매를 완료하였다. 이와 같이 각 분야별로 나누어 검토된 자료를 바탕으로 핫셀 개조공사 및 부대설비 설치의 진행을 감독하고 공사와 병행해서 만들어지는 제작물들을 현장점검 및 시험을 수행함으로써 전체적인 핫셀 개조공사의 완성도를 높였다. 핫셀 개조와 함께 핫셀 내에 공정장치 및 계측제어장치들을 설치하였으며 최종적인 As-Built 도면을 검토하고 승인하였다.

2005년에는 핫셀의 운영에 앞서 핫셀의 각 기능별 성능시험을 수행하게 되는데 주요 항목으로는 핫셀 차폐 성능시험, 기밀 성능시험, 환기설비 성능시험 등이 있다. 각 시험은 절차서에 따라 시험을 진행하여야 하므로 해당 절차서들을 작성하였으며 이 절차서들은 향후 시험과정 중에 다시 보완되어 시설의 운전절차서 등에 활용될 예정이다. 2005년 후반기에는 사용후핵연료 차세대관리 종합공정에 대한 미조사 핵연료를 사용한 inactive 성능시험을 수행할 계획으로 있다.

## 핫셀내 원격유지보수 작업을 위한 천정이동 서보 매니플레이터 시스템의 개발 및 성능테스트

### Development and Performance Tests of the Bridge Transported Servo Manipulator System for Remote Maintenance Jobs in a Hotcell

Jae-hyun Jin, Byung-suk Park, Byung-seung Ko, Jis-up Yoon and Ki-jung Jung  
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

진재현, 박병석, 고병승, 윤지섭, 정기정  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

#### Abstract

A prototype of the Bridge Transported Servo Manipulator (BTSM) system has been developed to do operation and maintenance jobs remotely in a hot cell. The system consists of a telescopic transporter, a slave arm, a master arm, and a control system. In this paper, the system is introduced and several performance test results are presented. The results have been used to design an upgraded system that will be used during demonstrations of the advanced spent fuel conditioning process.

**Key word** : Teleoperation, Servo manipulator, Remote maintenance, Performance tests.

#### 1. Introduction

Even though remote operations and maintenances in the nuclear field are common and ordinary, those are difficult, laborious and time-consuming. The operation and maintenance of process equipment for spent nuclear fuels in a hot cell must be done remotely because high level radiation from spent nuclear fuels is extremely dangerous to people. The ACP (Advanced spent fuel Conditioning Process), which is being developed by KAERI, is a pre-disposal treatment process for the spent nuclear fuels, and the process is operated in an intense radiation field[1]. So operation and maintenance of the process equipment must be performed remotely.

Actually, remote operations and maintenances are done by the wall mounted mechanical master-slave manipulators (MSM). But the MSMs are fixed and their handling capabilities are limited to 8 kg per one arm. Furthermore, some graphical simulations showed that the MSMs' workspace was decreased for practical reasons such as joint limits, approach directions and collisions with the process equipment of the ACP[2]. For these reasons, a servo manipulator system was determined to be developed as an alternative device to the MSMs.

In this paper, we introduce the developed servo manipulator system and the result of performance tests. We have done several performance tests to verify and confirm that the developed servo manipulator is reliable and easily operable. The system is moved by a transporter like an overhead crane, so it is named the bridge transported servo manipulator (BTSM) system. The whole configuration of the developed system is described, and then the

performance issues are discussed with the test results. The results show that the developed system has a good performance and it is proper to the remote maintenance jobs in a hot cell.

## 2. The configuration of the BTSM system

The BTSM system consists of a transporter, a slave arm, a master arm, and a main control system. Fig. 1 shows the system installed in a mockup cell.

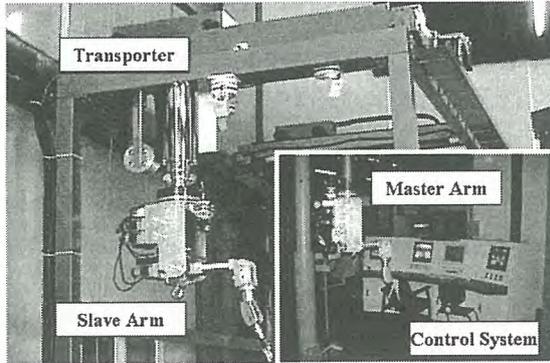


Fig. 1. The BTSM system in a mockup cell.

### 2.1. Transporter

The transporter looks and moves like a crane, and it has a telescopic tube set that connects with the slave arm. It can move the slave arm to anywhere inside the hot cell. The telescopic tube set has one fixed and three sliding tubes, and its stroke is about 1.1 m. Motions are controlled by the servo motors installed inside the trolley.

### 2.2. Slave and master Arms

The slave arm is a single arm and it has 6 joints and one gripper to grasp an object. It has been designed to handle 15 kg objects in any configuration. Fig. 2 shows the slave arm and its axes definitions.

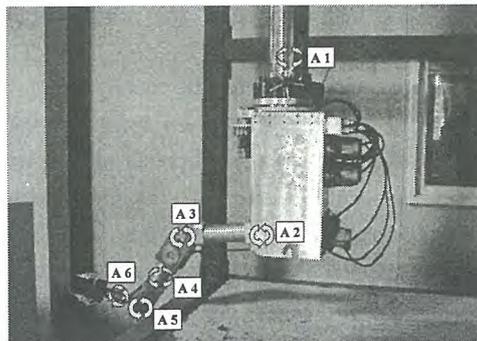


Fig. 2. The slave arm and its axes definitions.

Axes 1, 2, and 3 adopt gear transmission mechanisms. These axes are connected to servo

motors by gears. Axes 4, 5, 6, and the gripper adopt steel wire transmission mechanisms. Due to these mechanisms, all the servo motors can be installed on the backplate of the slave arm. A wire transmission mechanism is shown in Fig. 3. This mechanism has pros and cons. Even though there are couplings between the axes and modularized design is not easy[3], weight and friction are greatly reduced.

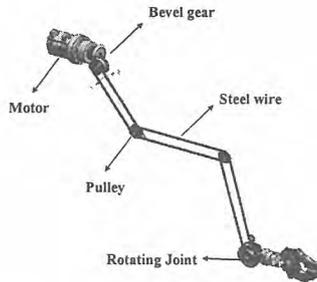


Fig. 3. The wire driving mechanism.

The master arm is a replica of the slave. They have the same configurations. So, it is easy to design a control algorithm since it does not need to solve the inverse kinematics. The master arm has a force reflecting function that enables an operator to feel interacting force with an object.

### 2.3. Main control system

The control system includes a control computer, three motion control boards, motor drivers, a manual control console, etc. The manual console is a central device for controlling the BTSM system, and it is installed by the side of the master arm. The GUI program displays the status of the system, updates several control parameters, and controls the transporter and the slave arm (Fig. 4).

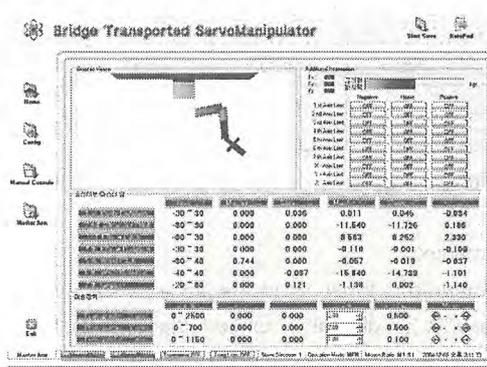


Fig. 4. The operating program of the BTSM system.

The architecture of the control system is shown in Fig. 5. The master arm's configuration is the command to the slave arm, and vice versa. The master arm's configuration is controlled to mimic the interacting forces. This force reflection scheme will be introduced at the following section. The AD board reads the joints' absolute positional information from the

potentiometers.

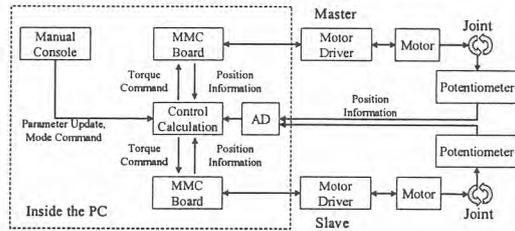


Fig. 5. The architecture of the control system.

### 3. Performance Issues and Tests

#### 3.1. General specification

Performance issues to be tested have been chosen from several references and categorized into four groups: general specification, reliability, operability, and useful functions. General specification includes the mechanical and control characteristics.

#### A. Joints motion and related specification

Table 1 shows each joint's range and driving motor's specification. Since Axes 2 and 3 require large torques, the reducing ratios are greater than any other axes. The upper arm's length is 350 mm and the lower arm's length is 350 mm. The length between the wrist and the center of the gripper is 250 mm.

Table 1. Axis definition and joints' range

Axis	1	2	3	4	5	6	7
Name	Body rotation	UA tilt	LA tilt	LA rotation	Wrist tilt	Wrist rotation	Gripper
Motion	Yaw	Pitch	Pitch	Yaw	Pitch	Roll	Grip
Range(deg)	-180 ~ 180	-45 ~ 45	-45 ~ 45	-180 ~ 180	-135 ~ 50	-180 ~ 180	65 mm
Power(W)	200	200	200	200	200	200	200
Reduction ratio	32	80	64	20	37	31	3

(UA = upper arm, LA = lower arm)

#### B. Force threshold measurement

Force threshold is the minimum force to rotate an axis backward. It is mainly related with friction and weight balance. It is desirable to be small. If the weight is balanced, the force threshold is defined as

$$F_{th} \times L \geq T_{JF} + NT_{MF}. \quad (1)$$

$L$  is the arm length,  $N$  is the reduction ratio, and  $T_{JF}$  and  $T_{MF}$  are the friction torques of the joint and the motor.  $N$  has to be small.  $T_{JF}$  of the wire mechanism is smaller than the gear mechanism's friction torque. Fig. 6 shows that the master's force thresholds. Threshold values are satisfactory because those are within target values which are 0.5 kg (5 % of the

continuous force). However, it is said that 1 % of the continuous force is good[4]. So we have to consider another methods to reduce friction.

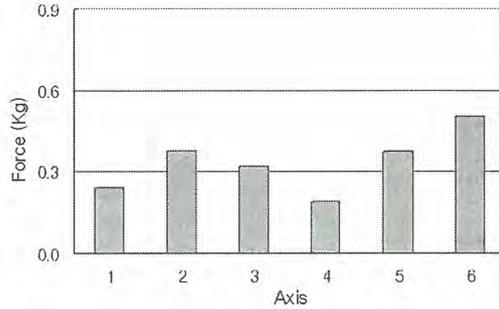


Fig. 6. Force threshold of the master arm.

C. Control characteristics

The general specification of the control system is as.

- Control PC: Pentium 4, 2 GHz
- Motion control board: Samsung’s 8 channel MMC, 3 EA
- Operating program: Windows 2000 based, developed by Boland C++
- Control update frequency: 50 Hz
- Control algorithm: PID control for independent joints

There are two control modes: manual and master. For the manual mode, the operator controls the slave arm with command buttons on the manual console. For the master mode, the operator controls by using the master arm. Two modes have the same control logic as shown in Fig. 7.

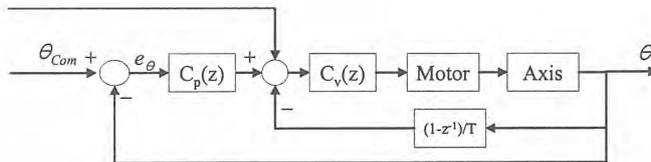


Fig. 7. The control block diagram.

The open loop transfer function of Fig. 7 is as.

$$G_o(z) = \left( K_P + K_I \frac{z+1}{z-1} + K_D \frac{z-1}{z} \right) \frac{a}{z-b} \frac{z+1}{z-1} = \frac{a(z+1)}{z(z-1)^2(z-b)} (c_1 z^2 + c_2 z + c_3). \quad (2)$$

Since this is a type 2 system, the steady state error in response to the ramp input is zero theoretically. However, the integrator windup and a limit cycle due to friction problems are present in practice. These are explained at the following section.

D. Positional tracking test

Positional tracking is a basic requirement for the servo manipulator systems. The slave has to move as the master moves. Since the configurations and arm lengths of the slave and the master are the same, the rotating angles of axes have been compared. Fig. 8 shows the time response of the selected axes’ rotation (Axes 4 and 6). Tracking is generally satisfactory.

Even though there are small errors, those are not significant in teleoperation[5].

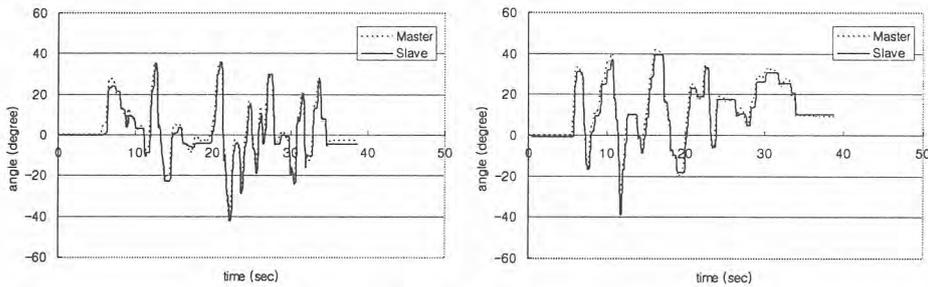


Fig. 8. Rotating angles of the master and slave's axes.

### 3.2. Reliability

The word of reliability has been chosen to express a qualitative property that the system does not have any malfunctions due to logical errors and discrepancy between the slave and the master. A quantitative property used in the reliability engineering is not pursued here.

#### A. Integrity of the operating program

Even though the control algorithm for the slave and master is simple, several events related with the modes and operations may occur in a complicated manner. Because of this, if there are logical errors, the system may malfunction.

A discrete event simulation tool has been used to eliminate such logical errors. Events of pressing any function buttons are randomly generated and the behaviors of the system are monitored. Fig. 9 is the simplest model of the system. Logical errors have been eliminated by this simulation and actual tests.

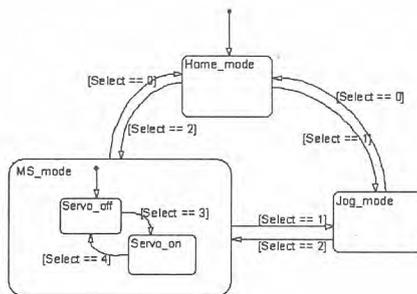


Fig. 9. Stateflow diagram of the system modes.

#### B. Limit cycle

Friction is a bothersome factor hindering positional tracking. It may cause a limit cycle if it combines with the integrating control. A limit cycle is mainly due to the sticking friction. Two options are available to avoid this problem: compensating friction exactly and introducing a dead band [6]. Here, the second option has been chosen because of simplicity and practicality.

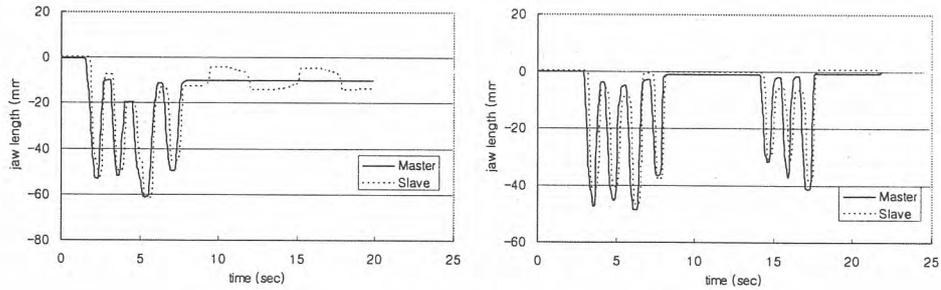


Fig. 10. The limit cycle and the improved response.

The integrating part of the control algorithm is useful to reduce the effect of disturbances, but it may cause other problems such as a limit cycle and the windup. So, if some performance deterioration due to disturbances is tolerable, it may be a remedy to exclude the integrating part.

### C. Coupling between axes

It has been mentioned that there are couplings between axes because of the wire transmission mechanism. The axes may be decoupled by a kinematic compensation [7]. The authors have presented the kinematic compensation method and its result at the reference [8].

### 3.3. Operability

The operability is a set of factors related with easy operation. We have done remote maintenance tests with a mock-up of process equipment as shown in Fig. 11. The mock-up has one lifting bail, three captive bolts, six non-captive bolts, and two connectors. Based on the remote maintenance tests, we have derived some items to be modified.

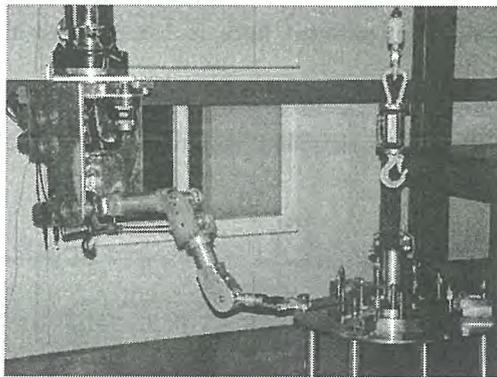


Fig. 11. The mockup and maintenance test.

### A. Interfaces for the operator

The interfacing devices for the operator are a manual console and 4 monitors. The manual console manages and controls the status and motions of the slave arm, the transporter, and the cameras.

For the transporter, a joystick is used as a control stick. The operator controls the three motions (X, Y, Z) of the transporter with this joystick.

The most important thing is the visual information of the slave and equipment. The monitors are installed to provide the visual information. However, those are not centralized but separated. The tests have shown that such an arrangement was not good and the operator could not monitor working situations exactly. So the arrangement has to be modified. The monitors will be centralized and the left and right view of the slave's end-effector must be shown together always(Fig. 12).

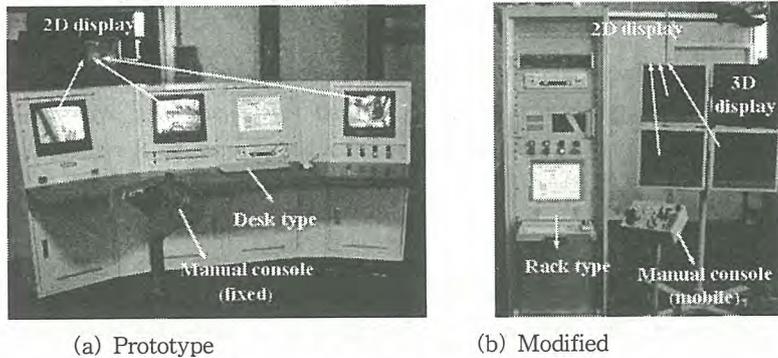


Fig. 12. Displays for monitoring remote jobs.

B. Force reflection

Force reflection is to transmit interacting forces between the slave and an object to an operator. Since it is not easy for an operator to do jobs with the visual feeling only, force reflection has been used as an auxiliary feeling (kinesthetic feeling) for most servo manipulators. There are several algorithms for force reflection: position-to-position, force-to-force, and force-to-position. For practical reasons, we have adopted the position-to-position algorithm. The reflected force is based on positional errors between the slave and the master (Fig. 13).

Fig. 13 is a block diagram for bilateral control. The master's and slave's signals become command signals to each other. This algorithm has proved to be simple and practical[9, 10].

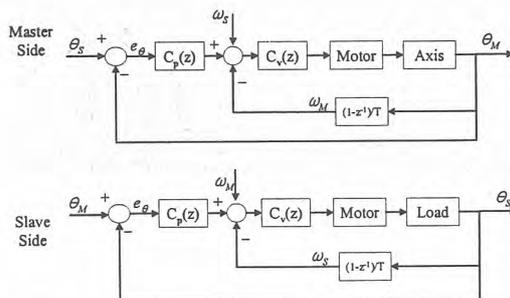


Fig. 13. Operation program of the BTSM system

Fig. 14 shows reflected forces (Axes 2, 3, and 5) during a free motion, a weight handling motion (6 kg at the gripper of the slave), and an interacting motion. Since a weight hinders

the slave from fast tracking, positional errors are greater than those during free motions. Also interactions with objects may induce large positional errors.

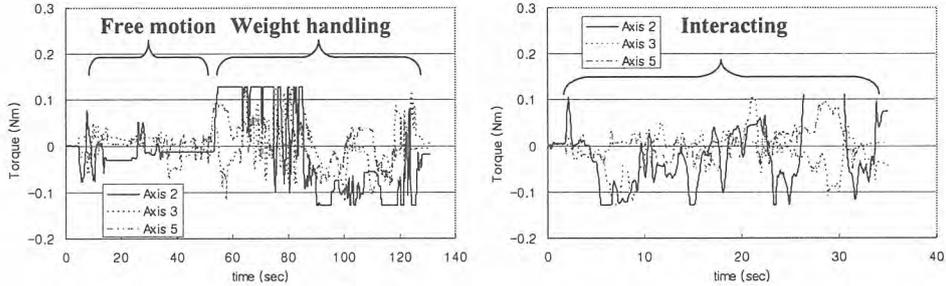


Fig. 14. Force reflection tests - reflected forces to the master.

Since this method is based on the position error, forces may be reflected to the master or the operator always receives reflected forces during operations even though there's no interaction with an object. It may fatigue an operator. Three approaches have been used to relieve the work load: balancing the weight, adjusting the ratio of force reflection, and cutting off slowly changing the positional errors. The last one means to filter off low frequency signals of the positional errors. It is named as the relieved force reflection and discussed at the following section.

### C. Relieved force reflection

Cut off low frequency positional error to reduce fatigue and increase sensitivity

$$e_r = \frac{1}{\tau s + 1} e. \quad (3)$$

This has a property cut off the low frequency positional errors. It means that only changes may be transmitted to the master as reflected forces.

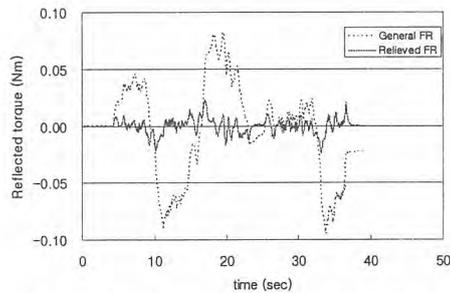


Fig. 15. Relieved force reflected to the operator.

### 3.4. Useful functions

Useful functions for remote operations are additional functions to ease an operation indirectly. Some examples are autonomous camera tracking, fault tolerance, telerobotic motions[11], and weight compensation. The developed system has no telerobotic function. The weight compensation is done manually.

A. Camera tracking

It has been mentioned that the visual information is the most important for remote jobs. For the prototype system, an operator can monitor remote jobs by 4 cameras. However, an operator has to adjust the cameras' attitude manually to obtain visual information around the slave's end effector. It is inconvenient and bothersome.

The system will be modified to have a camera tracking function as Fig. 16. The camera's attitude is controlled based on the position of the transporter and the configuration of the slave arm.

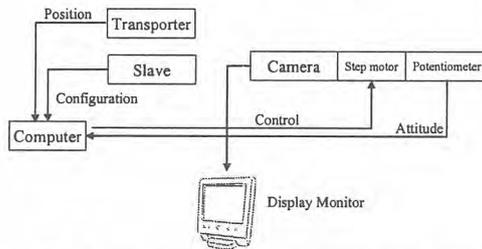


Fig. 16. The diagram of a camera tracking system.

B. Fault tolerant control

Fault tolerance is a system's property enduring unanticipated faults of components. Since the radiation from the spent fuels causes faults of electric components, fault tolerant designs have to be considered. For fault tolerance, radiation tolerant components have been used[10]. These include connectors and cables. The servo motors are not radiation tolerant, but their modules are designed to be easily maintained. Also, a reconfiguration algorithm has been developed to accommodate a single motor's failure. This algorithm aims to recover the end effector's motion despite of a single motor's failure[9].

Fig. 17 represents the dynamic model of the servo manipulator in planar motions.

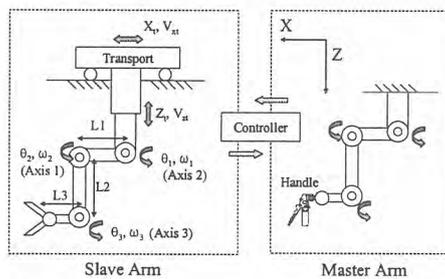


Fig. 17. Model of the transport, the slave, and the master.

The positional difference between the slave's end effector and the master's handle is represented as

$$e_p = J_s \Delta Q_s \tag{4}$$

where

$$e_p = \begin{bmatrix} x \\ z \\ \theta \end{bmatrix}_M - \begin{bmatrix} x \\ z \\ \theta \end{bmatrix}_S, \quad \Delta Q_s = [\Delta x_t \quad \Delta z_t \quad \Delta \theta_1 \quad \Delta \theta_2 \quad \Delta \theta_3]^T$$

$$J_S = \begin{bmatrix} 1 & 0 & -L_1 s_1 - L_2 c_{12} - L_3 s_{123} & -L_2 c_{12} - L_3 s_{123} & -L_3 s_{123} \\ 0 & 1 & L_1 c_1 - L_2 s_{12} + L_3 c_{123} & -L_2 s_{12} + L_3 c_{123} & L_3 c_{123} \\ 0 & 0 & 1 & 1 & 1 \end{bmatrix},$$

$$s_{ijk} = \sin(\theta_i + \theta_j + \theta_k), \quad c_{ijk} = \cos(\theta_i + \theta_j + \theta_k).$$

This reconfiguration problem has been formulated as an optimization problem as

$$\begin{aligned} & \text{minimize } \frac{1}{2}(e_p - J_s^f \Delta Q_s^f)^T (e_p - J_s^f \Delta Q_s^f), \\ & \text{subject to } \Delta Q_{s,\min}^f \leq \Delta Q_s^f \leq \Delta Q_{s,\max}^f. \end{aligned} \quad (5)$$

where  $J_s^f$  and  $\Delta Q_s^f$  are the jacobian matrix and the control vector whose failed axis has been excluded. This reconfiguration method has been solved by a modified pseudo inverse redistribution method, and it has been tested and verified[9].

#### 4. Conclusion

In this paper, a prototype of the bridge transported servo manipulator (BTSM) system has been introduced. It is developed for the remote operation and maintenance of the ACP. The BTSM system consists of a telescopic transporter, a slave arm, a master arm, and a control system. The transporter is a type of a crane and has a telescopic tube set moving the slave to any position. The slave and master have the same configurations. They are driven by servo motors.

Several performance tests have been done: force threshold, positional tracking, force reflection. Maintenance tests are being currently performed. Test results show that the prototype satisfies the requirements and its performance is satisfactory.

An upgraded servo manipulator system (the second prototype) is under development. Some of the test results of the first prototype have been used for designing the second one. It has been determined that the second will be used during the demonstration of the ACP. We expect The BTSM system to be one of the most useful devices.

#### Acknowledgement

The authors are grateful for the support provided by a grant from Atomic Energy R&D Program of Ministry of Science and Technology in Korea.

#### References

1. G. You, et al., "Development of hot cell facilities for demonstration of ACP," Proceedings of the 4th Korea-China Joint Workshop on Nuclear Waste Management, Seoul, pp.191-204, 2003.
2. J. Yoon, S. Kim, and T. Song, "Visualization and analysis of remote operation involved in advanced conditioning process," Proceedings of the 4th Korea-China Joint Workshop on Nuclear Waste Management, Seoul, pp.205-219, 2003.
3. J. Herndon, C. Kring, and J. Rowe, "Advanced remote handling for future applications: the advanced integrated maintenance system," Proceedings of Remote Systems and Robotics in

- Hostile Environments, pp.622-629, 1987.
4. P. Fischer, R. Daniel, and K. Siva, "Specification and design of input device for teleoperation," Proceedings of IEEE International Conference on Robotics and Automation, pp.540-545, 1990.
  5. R. Kress, J. Jansen, M. Noakes, and J. Herndon, "The evolution of teleoperated manipulators at ORNL," Proc. of the ANS 79th Topical Meeting on Robotics and Remote Systems, Georgia, USA, pp.623-631, 1997.
  6. G. Ellis, Control System Design Guide, Academic Press, pp.234-238, 2000.
  7. R. Murray, Z. Li, S. Sastry, A Mathematical Introduction to Robotic Manipulation, CRC Press, pp.293-300, 1994.
  8. B. Park, et al., "Transmission characteristics on wire driven links of a bridge transported servo manipulator for the ACP equipment maintenance," Journal of the Korean Radioactive Waste Society, vol.2, pp.189-199, 2004.
  9. J. Jin, et al., "Reconfiguration of redundant joints for fault tolerance of a servo manipulator," Journal of Control, Automation, and Systems Engineering, vol.10, no.10, pp.899-906, 2004.
  10. J. Jin, et al., "Fault tolerance design for servo manipulator system operating in a hot cell," Proceedings of International Conference on Control, Automation, and Systems, 2002.
  11. Y. Park, et al., "Enhanced teleoperation for D&D," Proceedings of IEEE International Conference on Robotics and Automation, pp.3702-3707, 2004.

제3분과  
사용후핵연료 및 핵연료주기  
(Poster)

# 빈 면

## 핫셀간 사용후 연료봉 수송용기 설계 및 안전성평가

이주찬, 김동학, 방경식, 신희성, 서기석, 김호동, 정기정

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

sjclee@kaeri.re.kr

사용후핵연료 차세대공정 실증시험 단계로 20 kg의 사용후핵연료 5 batch에 대한 금속전환공정 실증시험을 수행할 예정이며, 본 연구에서는 조사후시험시설(PIEF) 핫셀에 보관중인 PWR 사용후핵연료를 실증시험시설(ACPF) 핫셀까지 안전하게 운반하기 위하여 연료봉 운반캡슐 설계 및 수송용기 안전성 평가를 수행하였다.

사용후핵연료 수송 작업절차는 그림 1과 같이 조사후시험시설의 사용후핵연료 저장조의 연료봉을 인출하여 9404 핫셀에서 감마스캐닝 시험 수행하며, 9405 핫셀에서 연료봉을 절단하고 9406 핫셀로 이동한 후 rear door에 설치된 Padirac adaptor에 RD-15 수송용기를 접속하여 연료봉을 장전하여 실증시험시설 핫셀까지 운반한다.

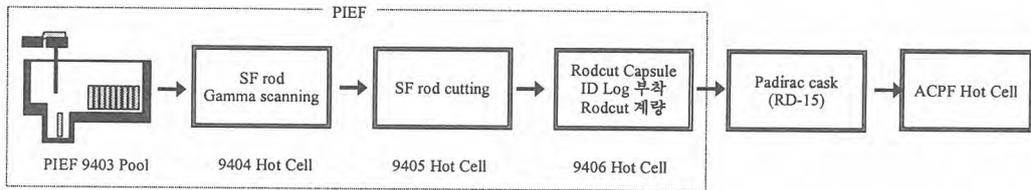


그림 1. 핫셀간 사용후핵연료 수송경로.

실증시험 공정에서는 연소도 35,500 MWd/tU, 냉각기간이 약 18년인 고리 1호기의 G23 핵연료 집합체를 사용할 예정이나, 연료봉 수송을 위한 기준 핵연료는 보수적으로 연소도 43,000 MWd/tU, 냉각기간 10년인 PWR 사용후핵연료를 고려하였다. 실증시험용 연료봉 길이는 핵물질 계량을 고려하여 길이를 25 cm로 결정하였다. 실증시험 단계에서 수행될 20 kg, 5 batch 시험을 위해서는 batch 당 25 cm 길이의 연료봉 130개가 필요하며, 연료봉 운반 시 취급이 용이하고 오염 확산을 방지하기 위하여 연료봉을 밀봉 캡슐에 담아 운반하도록 하였다. 조사후시험시설 핫셀 내 원격조종기의 취급 여건을 고려하여 1개의 캡슐에 25 cm 길이의 연료봉 5개를 담는 것으로 설계하였으며, 1회에 13개의 캡슐을 운반할 수 있도록 하여 batch 당 수송횟수를 2회로 결정하였다. 운반 캡슐은 외경 40 mm, 두께 2 mm의 알루미늄 재질을 사용하여 중량을 최소화하도록 설계하였으며, 캡슐 중량은 5개의 연료봉을 장전할 경우 약 1.2 kg 이다.

연료봉 운반을 위한 수송용기는 RD-15 Padirac 수송용기를 사용할 예정이며, RD-15 수송용기는 B형 용기로서 차폐체로 150 mm의 납이 사용되었으며, 9 m 자유낙하조건 및 800 °C 화재사고 조건 하에서 건전성을 유지하기 위하여 충격완충체로 100 mm의 balsa wood와 단열체로 50 mm의 limestone이 사용되었다. 그림 2는 연료봉 운반을 위한 캡슐, 콘테이너 및 Padirac 수송용기를 나타낸다.

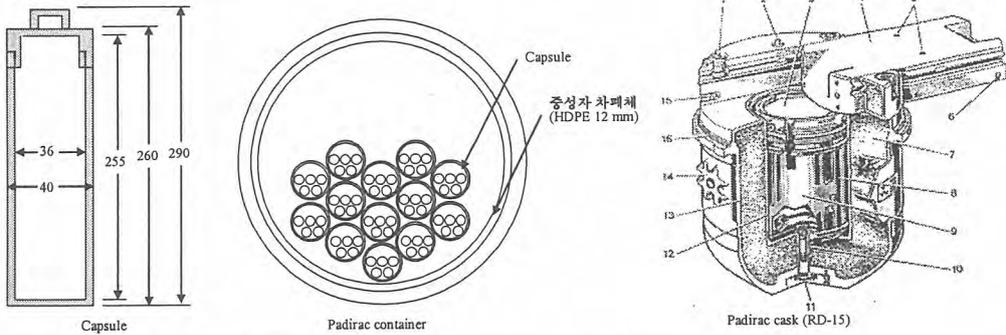


그림 2. 연료봉 캡슐, 컨테이너 및 Padirac 수송용기.

Padirac 수송용기를 이용하여 사용후핵연료를 운반할 경우에는 방사능 및 발열량 특성 변화에 따른 방사선차폐 및 열안전성 평가가 필요하다. 기존의 Padirac 수송용기는 방사성폐기물 수송용기로 중성자 차폐체가 없으므로, 차폐해석에서는 중성자 차폐체가 없는 경우와 12 mm 두께의 폴리에틸렌을 컨테이너 내부에 삽입한 경우에 대한 해석을 수행하였다. 차폐해석 시 5개씩의 연료봉이 장전된 13개의 캡슐이 수송용기 컨테이너의 한쪽 방향을 쏠린 것으로 가정하여 보수적인 해석을 수행하였다. 차폐해석 결과 중성자 차폐체를 고려하지 않을 경우 용기 표면 선량율은 중성자에 의한 선량율이 0.942 mSv/h, photon에 의한 선량율이 0.116 mSv/h로 계산되었다. 또한, 중성자 차폐체로 12 mm 두께의 폴리에틸렌을 고려할 경우에는 중성자 및 photon에 의한 선량율이 각각 0.675 mSv/h, 0.017 mSv/h로 계산되었다. 수송용기 내부 컨테이너에 중성자 차폐체를 적용할 경우 용기 표면 선량율이 약 40 % 정도 감소되었으며, 모든 경우에 있어서 수송법규에서 규정하는 표면 허용선량을 2 mSv/h 보다 낮게 나타나 방사선차폐 안전성이 입증되었다.

열전달해석은 법규에서 규정하고 있는 정상운반조건 및 화재사고조건을 적용하였으며, 정상조건은 대기온도 38 °C에서 최대 태양열이 유입되는 경우이며, 화재사고조건은 정상조건하에서 800 °C 화재가 30분 동안 진행된 후 자연 냉각되는 조건을 고려하였다. 25 cm로 절단된 핵연료봉 65개에서 발생하는 붕괴열은 16 W로 하였고, 용기 표면에 유입되는 태양열 유속은 400 W/m<sup>2</sup>을 고려하였다. 그림 3은 수송용기의 온도분포를 나타내며, 정상 및 화재사고조건에서 연료봉의 온도는 각각 113 °C, 117 °C로 계산되었고, 납 차폐체의 온도는 각각 83 °C, 89 °C로 계산되어 납의 용융온도 327 °C보다 훨씬 낮게 나타났다. 따라서 RD-15 수송용기로 연료봉을 운반할 경우 수송용기의 안전성이 충분히 유지될 것으로 판단된다.

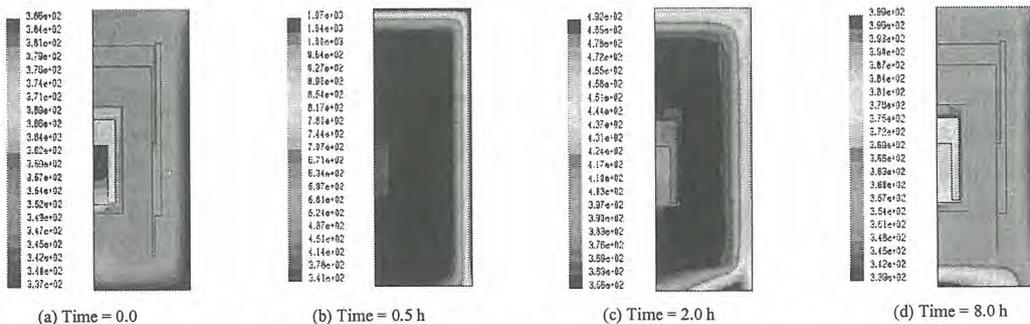


그림 3. RD-15 수송용기의 화재사고조건에 대한 온도분포.

## 사용후연료 수송용기의 누설평가방법

정진세, 조천형, 정성환, 백창열, 양계형, 이홍영

한국수력원자력(주) 원자력환경기술원, 대전시 유성구 덕진동 150번지

[shchung@khnp.co.kr](mailto:shchung@khnp.co.kr)

### 요약

원자력발전소에서 발생하는 사용후연료 집합체를 운반하기 위한 수송용기는 고준위 방사성물질의 위험으로부터 인간과 환경을 보호하기 위하여 안전성이 철저하게 보장되어야만 한다. 원자력법과 IAEA 안전수송규정 등 국내외의 관련규정에 의하면 사용후연료 수송용기는 정상운반조건은 물론 수송 도중 발생할 수 있는 운반사고조건에서 B(U)F형 운반용기에 대한 기술기준을 만족시키어 어떠한 경우에도 방사선차폐, 임계, 격납, 열 및 구조적 건전성을 유지하여 방사성물질을 누출시키지 않아야 한다고 규정하고 있다. 본 논문은 한수원(주)에서 개발하여 현재 사용하고 있는 경수로형 사용후연료 수송용기(KN-12 수송용기)의 격납계통에 대한 건전성을 확인하기 위하여 해석에 의한 격납평가 및 수송용기의 운영 중 수행하는 누설시험 등의 누설평가방법에 대하여 기술하였으며, 또한, 매 운반 시 측정된 실제 누설률을 제시하고 분석하였다.

### 수송용기 격납평가

수송용기의 격납계통은 그림 1에 나타난 것처럼 용기본체, 용기뚜껑, 뚜껑볼트, 뚜껑 이중 O-링 및 용기뚜껑 위의 배수구 뚜껑과 볼트, 그리고 배수구 O-링으로 구성된다. 용기본체의 재료적 결함이 없다면 용기내부로부터 방사성물질은 뚜껑부 내부 O-과 배수구 O-링을 통해서 누출이 가능하다. 이러한 수송용기 격납계통의 모든 부품은 ASME Sec.III Div.3에 따라 설계, 제작하여 제작 후의 성능시험(재료검사, 비파괴검사, 압력검사 및 누설시험 등)을 통하여 건전성을 입증하였다.

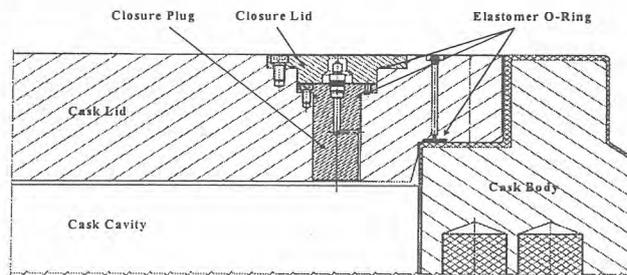


그림 1 사용후연료 수송용기 뚜껑부 단면

수송용기 격납계통에 대한 건전성을 평가를 위한 기술기준은 방사성물질의 누설률이 정상운반 조건의 경우  $10^{-6} A_2/h$ , 운반사고조건의 경우  $A_2/week$  (Kr-85는  $10 A_2/week$ )을 초과하지 않아야 한다. 본 논문의 사용후연료 수송용기는 농축도 5wt.%, 연소도 50,000MWD/MTU, 냉각기간 7년의 경수로형 사용후연료 집합체 12다발을 운반할 수 있다. ANSI N14.5에 따라 용기의 내부에 생성되는 방사성물질을 기준하여 격납해석을 수행한 결과, 허용누설률( $L_N$ )은 정상운반조건의 경우  $1.2 \times 10^{-4} cm^3/s$ , 운반사고조건이 경우는  $3.5 \times 10^{-2} cm^3/s$  이었다. 운반사고조건에 비하여 정상운반조건의 누설률이 더 보수적이기 때문에 격납 건전성을 유지하는 허용누설률을  $1.2 \times 10^{-4} cm^3/s$ 로 설정하였다. 이를 누설시험에 실제로 적용하기 위하여 기체온도, 압력, 누설경로 등과 관련하는 공기와 헬륨의 경우로 환산하여야 하는데, 25°C, 1기압(절대압력)에서 공기에 대한 기준공기누설률( $L_R$ )은

$2.7 \times 10^{-4} \text{cm}^3/\text{s}$ , 헬륨에 대한 누설률은  $3.3 \times 10^{-4} \text{cm}^3/\text{s}$ 로 산출되었다.

### 누설시험

수송용기에 대하여 제작과정 중 및 통상운반 시 누설시험을 수행하고 격납해석에서 구한 허용 누설률을 기준하여 격납 건전성을 확인하여야 한다. 현재 사용 중인 수송용기는 규제기관으로부터 승인된 방법과 절차에 따라 제작을 완료한 후 누설시험을 수행하였으며, 원전 내 운반의 경우 매 운반 시 연료장전 전후에 반드시 누설시험을 수행하도록 절차화하였다. 누설시험은 ANSI N14.5 또는 ISO 12807에 따른 시험방법에 따라 수행하는데, 본 논문에서는 헬륨누설시험 및 공기압누설 시험에 대한 시험장치 구성, 시험방법, 장단점 분석 등을 기술하였다.

헬륨누설시험은 헬륨진공법을 적용한 것이며, 공기압누설시험은 기체압력상승법에 따른 평가방법이다. 헬륨누설시험(그림 2 참조)은 용기의 내부에 순도가 높은 헬륨을 충전시키고 시험검사공간을 진공으로 만든 후에 헬륨누설시험장치를 이용하여 격납계통인 O-링을 통하여 나오는 헬륨의 누설량을 측정하는 방식이고, 공기압누설시험(그림 3 참조)은 내부는 대기압인 상태에서 시험검사공간을 진공으로 만든 후에 검사공간에 대한 압력의 상승여부를 측정하는 방식이다.

각 누설시험에 대한 허용누설률은 격납해석에서 구한 허용누설률보다 더 낮은  $1.0 \times 10^{-4} \text{cm}^3/\text{s}$ 로 설정하여 보다 보수적이 되게 하였다. 매 운반 시 마다 측정된 자료를 살펴보면, 실제 수송용기의 누설률은 허용치보다 훨씬 낮은  $10^{-5} \sim 10^{-6}$ 의 범위에 들어 내부 방사성물질의 누출은 거의 없이 격납 건전성을 유지하는 것을 확인하였다.

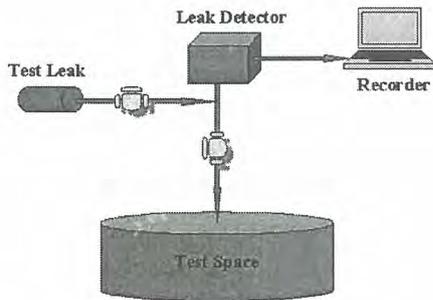


그림 2 헬륨누설시험 구성도

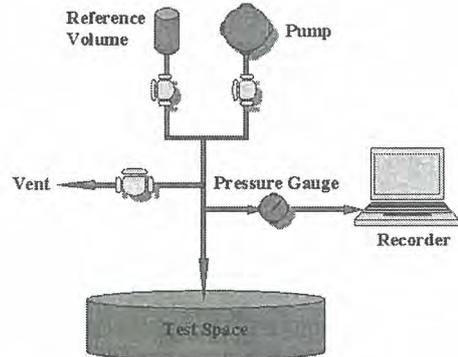


그림 3 공기압누설시험 구성도

### 참고문헌

- [1] 과학기술부 고시 제2001-23호, 방사성물질 등의 포장 및 운반에 관한 규정, 2001
- [2] IAEA Safety Standards Series No.TS-R-1, Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material(1996 Ed.), 2003
- [3] ANSI N14.5, American National Standard for Radioactive Materials - Leakage Tests on Packages for Shipment, 1997

## 중저준위 방사성폐기물 소내용 운반용기 설계개념

이경호, 윤정현, 조천형, 정성환, 김성환, 이홍영

한국수력원자력(주), 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

방사성물질의 운반에 관한 요건은 IAEA의 Safety Standard(ST-1)과 국내 과학기술부 고시(2001-23호)에 규정되어 있다. IAEA는 1985년도에 중저준위 방사성물질과 같이 방사선 준위가 낮으면서 대량으로 발생하는 운반물을 IP형으로 분류하는 규정을 제정하였다. 국내 과기부 고시 2001-23호인 '방사성물질 등의 포장 및 운반에 관한 규정'에서 IP형 운반물의 개념을 도입하였다.

현재 원전 사업소 내에서의 방사성폐기물 운반은 표면 방사선량률이 낮은 경우에는 Fig. 1에서 보는 바와 같이 폐기물용기를 원바디 형식의 컨테이너에 직접 적재하여 운반하고 있다. 준위가 높은 드럼은 별도의 차폐용기와 원바디 형식의 컨테이너에 적재하여 운반하고 있다. 최근 원전수거물 부지확보사업이 진행되면서 방사성폐기물 운반의 안전성에 대해 일반국민들의 관심이 증가하고 있다. 따라서 한수원(주)에서는 운반법규에서 요구하는 법적 규제요건을 충분히 만족시킬 뿐만 아니라 보다 운반의 안전성이 보다 증가된 방사성폐기물 운반용기를 개발하고자 한다.

운반용기는 운반법규에서 규정하는 시험요건 뿐만 아니라, 취급의 용이성, 폐기물 처리시설 내부에 있는 기존설비와의 간섭현상, 지게차 및 크레인과 같은 취급장비의 설계사양을 고려하여야 한다. 또한 운반시스템의 경제성을 감안하여 현재 운영중인 방사성폐기물 취급장비를 최대한 이용하고자 하며, 기존의 원바디 형식의 차량에 운반용기 적재가 가능하도록 중량과 크기제한을 고려하여 운반용기를 설계하였다.

운반용기를 설계하기 위해 적재할 폐기물 드럼의 표면선량률 준위에 따라 운반용기를 분류하였다. 현재 방사선안전규칙에서는 운반수단에서 2m 떨어진 위치에서 운반물의 이격선량률이 0.1mSv/hr 이하를 유지하도록 규정하고 있다. 이 요건을 만족시키기 위해 방사선 차폐해석을 통해 운반물을 표면선량률에 따라 IP-1, IP-2, A, B형으로 분류하였다. 또한 중량 제한치를 고려하기 위해 개별드럼의 무게는 400kg으로 하였으며, 운반물의 최대무게는 10톤 미만으로 하였다. 이는 현재 각 원전에서 가용할 수 있는 지게차의 최대용량을 고려한 것이다. 또한 법규에서 요구하는 이격선량률을 만족시키고 중량제한을 고려하여 차폐체 재질과 두께를 결정하였다. 저선량률 드럼을 운반하는 IP-1형 운반용기는 차폐가 필요하지 않기 때문에 ISO 20ft full height 컨테이너를 사용하고 있다. IP-2형 운반용기는 경차폐가 필요한 드럼을 대상으로 설계하였다. 운반용기에 대한 대표적인 개념도는 IP-2형에 대해 Fig. 2에 나타내었다. A형 운반용기는 운반법규에서 저준위비방사능(Low Specific Activity)물질 및 표면오염물체(Surface Contaminated Object)로 분류될 수 없는 방사능량이 A<sub>2</sub>값 이내인 방사능물질을 운반하도록 설계하였다. 또한 표면선량률이 최대 680mrem/hr인 드럼을 적재하도록 하였다. B형 운반용기는 방사능량이 A<sub>2</sub>값을 초과하면서 저준위비방사능물질 및 표면오염물체로 분류되지 않는 방사성폐기물을 대상으로 하였다. 주로 표면선량률이 높은 폐필터를 운반대상물로 하였으며, 최대 5,000mrem/hr까지의 표면선량률을 갖는 폐기물용기를 적재하도록 설계하였다. 각 운반용기별 운반대상 폐기물과 차폐체 두께, 취급방법 등을 Table 1에 요약하였다.

Table 1. Summary on the design concept of transport packaging for on-site transport

운반용기 종류	적재대상 폐기물	운반드럼 개수	차폐 재질 및 두께	드럼 적재방법	비 고
IP-1형	선량률 20mrem/hr 이하인 LSA 및 SCO로 분류되는 방사성폐기물	24개 (3×8배열)	차폐체 없음	지게차	후면개폐
IP-2-a형	선량률 20 - 200mrem/hr인 LSA 및 SCO로 분류되는 방사성폐기물	8개 (2×4배열)	탄소강 35mm	크레인	상부개폐
IP-2-b형	선량률 200 - 2000mrem/hr인 LSA 및 SCO로 분류되는 방사성폐기물	4개 (2×2배열)	탄소강 80mm	크레인	상부개폐
A형	LSA 및 SCO로 분류되지 않는 방사능 한도량 A <sub>2</sub> 값 이내의 방사성폐기물	4개 (2×2배열)	탄소강 50mm	크레인	상부개폐
B형	LSA 및 SCO로 분류되지 않는 방사능 한도량 A <sub>2</sub> 값 이상의 방사성폐기물	1개	탄소강 80mm	크레인	상부개폐

운반용기의 취급방법으로는 드럼을 IP-2, A, B형 운반용기에 적재할 경우에는 지게차로 빈 운반용기를 폐기물처리시설로 이송한 후, 크레인으로 개별 드럼을 운반용기에 적재하도록 하였다. 드럼을 적재한 운반용기는 지게차로 원바디 차량에 적재되도록 고려하였다. IP-1형 운반용기의 경우 운반용기를 외부차량에 적재한 후, 전동지게차를 이용하여 컨테이너 후면을 통해 개별드럼을 운반용기 내부에 적재하도록 하였다.



Fig. 1 Transport Conveyance for low and intermediate level radioactive waste

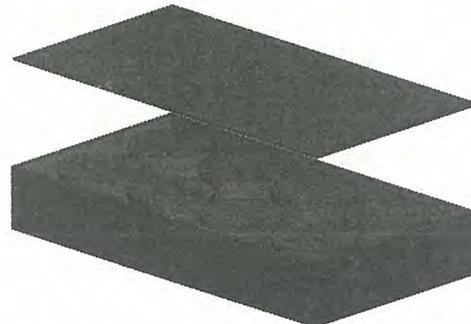


Fig. 2 Conceptual Design of Transport Packaging for type IP-2-a

향후 개념설계된 운반용기를 기준으로 시험모델을 제작할 예정이며, 시험모델의 안전성시험과 구조·열해석 결과의 비교를 통해 운반용기의 건전성을 입증하고자 한다.

## 사용후 연료 건식저장용기의 전복예비해석 평가

김동학, 서기석, 이주찬, 정기정, 최병일\*, 이연도\*, 이홍영\*

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

\* 한국수력원자력 원자력환경기술원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

사용후 연료 건식저장 용기는 전복사고 조건에 대하여 구조적 건전성이 유지되어야 한다. 건식 저장용기의 전복 평가를 위하여 간단한 모델을 이용하여 예비 해석 평가를 수행하였다. 모델은 건식저장용기 약 1/9크기로 콘크리트와 모의연료, 바스켓 등을 제외한 내·외부 강통형상만을 이용하였다. 전복해석은 초기의 강제운동, 바닥 면과의 1차 충돌, 반발, 2차 충돌 등으로 이루어진다. 초기의 강제 운동은 전체 해석 시간의 많은 부분을 차지하면서도 실제로 해석결과에서 중요한 바닥 면과의 충돌에 대한 초기 조건을 결정하는 역할을 한다. 강제 운동을 정확히 모사하여 전복직전 모델의 초기 조건을 결정하고 해석을 수행하면 해석시간을 크게 줄일 수 있다. 예비모델에 대하여 전복각도와 바닥 면과 모델의 마찰계수에 따른 해석을 수행하여 초기각속도를 이용한 해석 결과와 비교하여 보았다. 전복각도에 대한 영향을 알아보기 위하여 마찰력이 없는 경우와 마찰계수가 0.35인 경우에 대하여 전복각도가 10°~60°의 범위에서 해석을 수행하였다. 또한 마찰계수의 영향을 알아보기 위하여 전복각도가 50°인 모델에 마찰계수가 0.2, 0.5, 0.75 및 1인 경우에 대하여 해석을 수행하였다.

전복각도 [°]	바닥 면과 모델사이 마찰계수	최대운동에너지 [J]	이론 최대 운동에너지 [J]	전복충돌시간 [msec]	초기각속도 [rad/sec]
10	0	2.249	2.359	99.75	5.61
	0.35	2.138	2.359	103.5	5.47
20	0	4.205	4.646	140	7.67
	0.35	3.978	4.646	150	7.46
30	0	5.813	6.792	171.5	9.01
	0.35	5.51	6.792	196	8.78
40	0	7.071	8.731	202.5	9.94
	0.35	6.951	8.731	234.5	9.86
50	0	7.901	10.405	420.75	10.51
	0.35	7.911	10.405	379.5	10.52
60	0	8.52	11.763	331.5	10.91
	0.35	8.506	11.763	587.5	10.90
50	0.25	7.573	10.405	330	10.29
	0.5	7.958	10.405	382.5	10.55
	0.75	7.982	10.405	382.5	10.56
	1.0	7.983	10.405	382.5	10.56

Table 1. Maximum Kinetic Energy, Tip-Over Impact Time and Angular Velocity.

표1은 전복각도와 마찰계수에 따른 최대 운동에너지와 전복이 일어나는 시간을 나타낸다. 이러한 결과는 무게중심 전복각도에서의 전복충돌직전에서의 위치에너지의 차이인 이론적 운동에너지와 상이한 결과를 보여준다. 강제운동을 포함한 해석에서 전복시간이 최대 0.58msec로 20kHz(시험에서 실시하는 데이터 취득률)의 데이터를 얻기 위하여서는 약 만개 이상의 데이터를 얻어야 한다. 그러므로 충돌직전에서의 각 절점에서의 속도를 초기조건으로 하여 전복직전모델에 대한 해석을 수행하였다. 해석은 10msec의 시간동안 수행하였으며 200개의 데이터를 저장하였다. 몇 개의

초기 각속도를 가정하여 각 절점에서의 속도를 계산하여 전복직전모델의 초기조건을 결정하여 해석을 수행하여 최대운동에너지를 구하였다. 그림 1은 초기 각속도에 따른 최대 운동에너지를 나타낸다. 최대 운동에너지로부터 계산된 초기 각속도를 전복각도 및 마찰계수에 따라 표 1에 나타내었다. 그림 2는 전복각도 10°인 경우에 대한 해석에서 내부 원통 셀의 한 점에서의 응력을 나타낸다. 강제운동을 포함한 해석결과와 강제운동을 포함한 해석에서 얻은 속도를 이용한 해석결과는 유사한 결과를 보이지만 초기 각속도로부터 얻어진 속도를 이용한 해석결과는 이보다 더 큰 응력을 보여준다. 강제운동을 포함한 해석에서 얻어진 속도가 전복지지점(회전축)에 대한 회전속도와 다른 분포를 보여주기 때문이다.

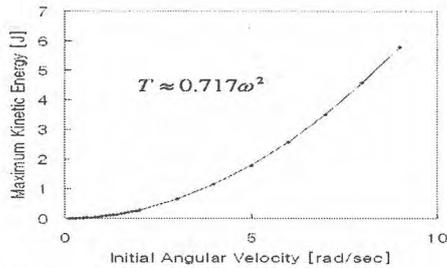


Fig. 1. Maximum Kinetic Energy for Initial Angular Velocity

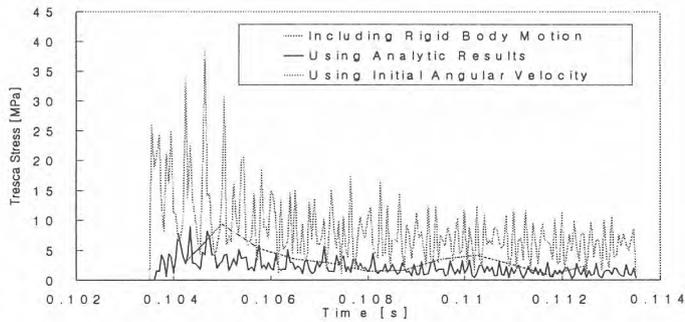


Fig. 2. Tresca Stress for 10° Tip-Over Analysis.

## 가압중수로 사용후핵연료 건식저장시설에 대한 방사선안전성 예비 검증평가

정재학, 김병수, 정찬우

한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 구성동 19번지

radwaste@kins.re.kr

사용후핵연료 건식저장시설(Spent Nuclear Fuel Interim Dry storage: SNUFI-D)에 저장된 사용후핵연료(Spent Nuclear Fuel: SNF) 내에 존재하는 방사성물질은 피복관 및 다중 격납경계(바스켓, 실린더, 캐스크 등)를 통해 누설된 후 궁극적으로 환경(대기중)으로 방출될 가능성이 있다. 이에 따라 정상운전, 예상운전과도 및 가상적인 사고시 건식저장시설 운영에 따른 안전성평가를 위하여 보수적으로 방사성물질의 누설을 가정하여 격납기능 및 방사선방호 측면에서의 적합성을 평가하는 것이 일반적인 접근방법이다.

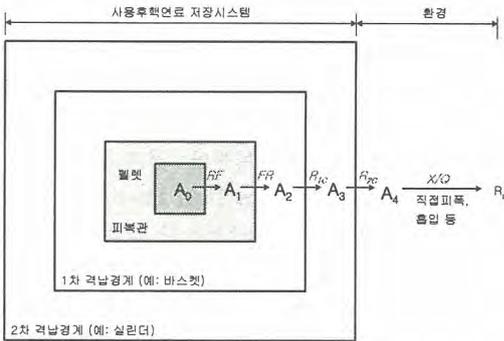


Fig. 1. SNUFI-D 방사성물질 누설경로 및 환경 누설량 평가모델

Fig. 1에 도시한 바와 같이 핵분열생성물 등을 함유한 펠릿은 피복관에 의해 일차적으로 격납된다. 일반적으로 펠릿 내에 존재하는 방사성핵종 중에서 일부만이 "누설 가능한 상태"로 존재하며, 이러한 방사성핵종의 일부가 피복관을 통해 누설될 수 있다. 피복관 외부로 누설된 방사성핵종은 1차 또는 2차 격납경계에 의해 격납되어 외부로의 추가 누출이 억제된다. 그러나 대부분의 경우 1차 격납경계가 방사성물질에 대한 격납기능의 대부분을 수행하게 되며, 2차 격납경계는 보조적인 역할을 수행하게 된다. 따라서 다중의 격납경계를 갖는 저장시스템의 경우, 안전성평가 측면에서는 보조적인 기능을 갖는 2차 격납경계의 기능을

고려하지 않는 것이 일반적인 관행이다.

본 연구에서는 Fig. 1에 도시한 방사성물질 환경누설 경로를 고려하여, SNUFI-D로부터 환경으로 누설될 수 있는 방사성물질의 수량을 예측하는 모델을 개발하였다. 방사성핵종  $i$ 의 누설률은 다음과 같은 관계식으로 계산할 수 있다:

$$R_i = A_{B,i} \cdot FR \cdot RF_i \cdot N_{B/1C} \cdot N_{1C/2C} \cdot N_{2C} \cdot R_{1C} \cdot \frac{1}{LT_{2C}},$$

여기서,  $A_{B,i}$  = 핵연료 다발당 핵종  $i$ 의 재고량(Bq),  $FR$  = 핵연료 손상률(-),  $RF_i$  = 누설가능 상태로 존재하는 핵종  $i$ 의 비율(-),  $N_{B/1C}$  = 1차 격납경계 구조물 내부 다발 수(개),  $N_{1C/2C}$  = 2차 격납경계 구조물 내부 1차 격납경계 구조물의 수,  $N_{2C}$  = 2차 격납경계 구조물의 수,  $R_{1C}$  = 1차 격납경계의 누설비율(1/s),  $LT_{2C}$  = 2차 격납경계의 누설 억제계수(-).

Table 1. SNUFI-D 예비 안전성평가용 표준 입력변수(안)

항목	정상운전	예상운전과도	가상사고	
누설 가능 비율	기체핵종	30%	30%	30%
	휘발성핵종	0.02%	0.02%	0.02%
	입자핵종	0.003%	0.003%	0.003%
	크리드	15%	15%	100%
핵연료 손상비율	1%	10%	100%	
대기 확산 조건	방법론	RG 1.145	RG 1.1.45	RG 1.25
	안정도	D	D	F
	풍속	5m/s	5m/s	1m/s
연간 피폭시간	8,760h	8,760h	720h	
호흡률	성인	$3.3 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$	$3.3 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$	$3.3 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$
	연령군별	KINS/GR-199 준용		
통제구역 최소거리	100m	100m	100m	

Table 2. 기존 원자력부지에 위치한 SNUFI-D의 규제제한치(안)

항목	정상운전	예상운전과도	가상사고	
운영 허가 단위	감마선 공기선량	0.1mG/y	0.1mG/y	N/A
	베타선 공기선량	0.2mG/y	0.2mG/y	N/A
	외부 유효선량	0.05mSv/y	0.05mSv/y	N/A
	외부 피부선량	0.15mSv/y	0.15mSv/y	N/A
	입자 등에 의한 장기선량	0.15mSv/y	0.15mSv/y	N/A
저장 시설	제한구역 농도	배출관리기준	배출관리기준	N/A
	유효선량	0.05mSv/y	0.05mSv/y	0.05Sv
부지	통제구역 농도	배출관리기준	배출관리기준	N/A
	유효선량	0.25mSv/y	0.25mSv/y	N/A
	감상선선량	0.75mSv/y	0.75mSv/y	N/A
	제한구역 농도	배출관리기준	배출관리기준	N/A

본 연구에서는 SNUFI-D에서 환경으로 누설될 수 있는 방사성물질에 의한 예상 피폭방사선량 규제검증평가를 위하여, 각종 주요 입력변수의 표준값을 도출하였다. 이를 위하여 시설의 운전조건을 정상운전, 예상운전과도 및 가상사고 조건으로 세분화하고, 각 운전상태에 대해 적용될 표준 입력변수를 선정하였다(Table 1 참조). 또한 SNUFI-D를 기존 발전용원자료가 운영중인 부지에 함께 건설할 경우 적용되어야 할 각종 규제제한치(안)를 도출하여 Table 2에 도시하였다.

가압중수로용 SNF에 존재하는 방사성핵종 재고량은 ENDF 27군 중성자 라이브러리와 SCALE 18군 감마선 라이브러리를 이용하여 ORIGEN-ARP 5.0으로 평가하였다. 한편 통제구역의 공기중 방사성물질 농도와 유효선량은 본 연구에서 개발한 스프레드시트를 이용한 평가도구 RASS-SNUFI(Radiological impact Assessment Spread Sheet for Spent Nuclear Fuel Interim storage)로 평가하였다. 배출관리기준 평가모듈은 방사성물질의 누설률과 대기확산인자를 고려하여 제한구역경계에서 핵종별 농도를 산출하고 이를 배출관리기준과 비교할 수 있는 기능을 갖추고 있다. 유효선량 평가모듈은 기본적으로 불활성기체에 의한 잠김(Submersion) 및 흡입에 의한 피폭경로를 고려할 수 있으며 필요시 직접방사선에 의한 외부피폭을 추가로 고려할 수 있도록 개발하였다. 한편 동일 부지내 다수의 원자력시설의 운영에 따른 영향을 종합적으로 고려하기 위해서는 보다 복잡한 피폭경로를 고려해야 하며, 이와 관련하여 국내 원자력이용시설에 대한 안전심사에 적용하기 위한 목적으로 개발된 INDAC(INtegrated Dose Assessment Code package for KINS) 코드의 GASDOS 모듈을 평가도구로 이용할 수 있다. 표준 입력변수는 KINS/GR-199 선량평가치침에 제시된 기본 입력변수를 활용할 수 있으며, INDAC/GASDOS 모듈을 이용해 불활성기체에 의한 잠김, 지표면 침적, 흡입, 음식물 섭취 등에 의한 다양한 피폭경로를 모두 고려한 세부평가가 가능할 것이다.

선정된 표준조건(즉, M/KN-400 개념설계)에 대하여 전술한 방사성물질 누설경로 및 누설량 평가모형을 적용하여 환경으로 누설 가능한 방사성물질의 수량을 평가하였다. 정상운전 및 예상운전과도시 누설방사능이 큰 핵종은 Kr-85, H-3, Co-60, Fe-55, Cs-137, Sb-125, Sr-90, Ru-106 등의 순서이며, 이중 Kr-85와 H-3의 방사능이 총방사능의 대부분(약94%)을 점유하는 것으로 나타났다. 한편 가상 사고시에는 Co-60, Fe-55, Sb-125 등의 부식생성물의 누설률이 크게 증가하는 경향을 보여주었다.

상기 사례에 대하여 RASS-SNUFI를 이용해 정상운전, 예상운전과도 및 가상사고시 통제구역의 공기중 방사능 농도를 평가하였다(Fig. 2 참조). 정상운전시 통제구역에서 배출관리기준 대비 핵종별 농도비는  $1.94 \times 10^{-37} \sim 3.59 \times 10^{-6}$ 의 범위였으며, 예상운전과도시 비율은  $1.94 \times 10^{-35} \sim 3.59 \times 10^{-4}$  범위로 나타났다. 한편 배출관리기준에 대한 예상농도의 비율이 높은 핵종은 Pu-241, Co-60, Sr-90, Ru-106, Cs-137, Sb-125, Rh-106, Ce-144, Ba-137m, Fe-55 등의 순서로 분석되었다.

동일한 사례에 대하여 RASS-SNUFI를 이용해 정상운전, 예상운전과도 및 가상사고시 통제구역에서 예상 피폭방사선량(유효선량)을 평가하고 그 결과를 Fig. 2에 함께 도시하였다. 정상운전 및

예상운전과도시 선량 기여도가 큰 핵종은 Pu-241, Sr-90, Co-60, Cs-137, Sb-125, Ru-106 등의 순서이며, 이들 핵종의 선량기여도가 대부분을 차지(약 99%)하는 것으로 나타났다. 한편 가상사고시 선량 기여도가 큰 핵종은 Co-60, Pu-241, Sr-90, Sb-125, Cs-137, Ru-106 등의 순서이며, 이들 핵종의 선량기여도가 대부분을 차지(약 99%)함을 알 수 있다.

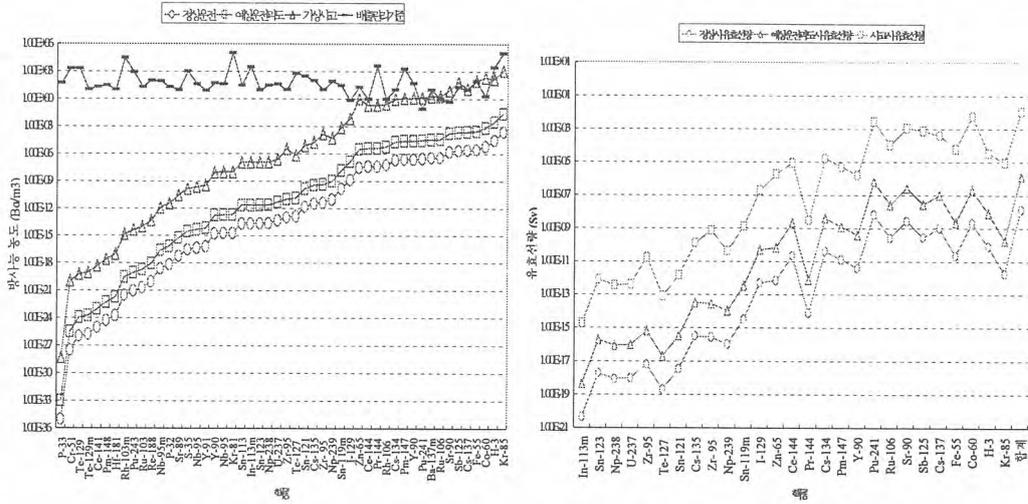


Fig. 2. SNUFI-D 통제구역경계 방사성물질 농도와 유효선량 평가결과(예비 사례연구결과)

## Experimental Evaluation for Passive Heat Removal System of the Dry Storage Cask

### 건식 저장용기 피동 열 제거시스템의 실험적 평가

방경식, 이주찬\*, 서기석\*, 정기정\*, 조천형\*\*, 최병일\*\*, 이흥영\*\*

\*한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

\*\*한국수력원자력(주), 대전광역시 유성구 덕진동 150

대부분의 원자력발전소는 습식 저장 풀에 사용후연료를 저장하고 있지만, 많은 저장 풀들이 그들의 용량을 채우고 있는 형편이다. 그러나 불행히도 지금까지 사용후연료 중간저장시설의 확보가 계속 지연되고 있기 때문에, 원자력발전소의 가동을 중지하지 않기 위해서는 사용후연료를 저장하기 위한 충분한 용량을 찾는 것이 필수적이며, 건식 저장용기는 중간저장문제를 해결할 수 있는 하나의 해결책이 될 수 있다.

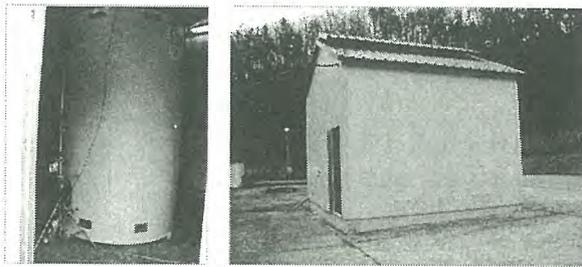
사용후연료를 저장하기 위한 건식 저장용기는 국내 실정에 적합한 최적 건식저장방식으로 선정된 콘크리트 저장용기이다. 콘크리트 저장용기는 사용후연료를 장전하는 캐니스터와 over-pack으로 구성된다. Over-pack은 외경 3,550 mm, 높이 5,885 mm를 가진 원통형 셀 구조물로서 내·외부의 탄소강 셀 사이에 차폐체인 콘크리트가 채워지며, 총 중량은 약 135 톤이다. 콘크리트 저장용기는 연소도 55,000 MWD/MTU, 냉각기간 7년인 PWR 사용후연료 집합체 24다발을 저장할 수 있으며, PWR 사용후연료 집합체 24다발로부터 발생하는 총 붕괴열은 25.2 kW이다.

콘크리트 저장용기에는 PWR 사용후연료 집합체로부터 발생하는 붕괴열을 외부 환경으로 적절히 방출하기 위한 피동 열 제거 시스템을 설계하였다. 피동 열 제거는 콘크리트 저장용기 하부에 설치된 공기 흡입구 8개와 상부의 공기 출구 8개에 의해 발생하게 된다.

본 논문에서는 건식 저장용기의 열 제거특성을 평가하기 위해 1/2 축소모델을 사용한 실험적 접근을 수행하였다. 그림 1은 열 제거실험을 수행하기 위한 모델 및 실험동안 외부 환경의 온도변화에 따른 영향을 감소시키고, 기후변화로부터 보호하기 위해 설치한 외부 건물을 보여주고 있으며, 그림 2는 열 제거실험 모델의 단면도를 보여주고 있다.

사용후연료를 모사하기 위한 전기히터는 캐니스터 내부의 바스켓에 설치되었으며, 히터 하나당 열 유량은 약 189 watt로 24개의 전기히터로부터의 총 열 유량은 약 4.5 kW이다. 전기히터의 power line 및 온도측정을 위한 열전대는 캐니스터 뚜껑의 24개 홀을 통하여 빠져나와 다시 over-pack 뚜껑의 3개의 홀을 통하여 컨트롤러 및 온도측정 장치에 연결되었다.

열 제거실험에서 모델의 온도를 측정하기 위해 0°, 90° 및 135° 방향의 3개의 단면으로 79개의 열전대를 설치하였으며, 주변온도 측정을 위해 26개의 열전대를 설치하였다. 또한 유속을 측정하기 위해 0°, 90° 및 135° 방향의 공기 흡입구에 열선 타입의 유속계 3개를 출구에 프로펠러 타입의 유속계 3개를 설치하였으며, 압력변화를 측정하기 위해 0° 방향의 공기 흡입구 및 출구에 압력 게이지 한 개씩을 설치하였다.



(a) 모델 (b) 외부 건물

그림 1. 모델 및 외부건물.

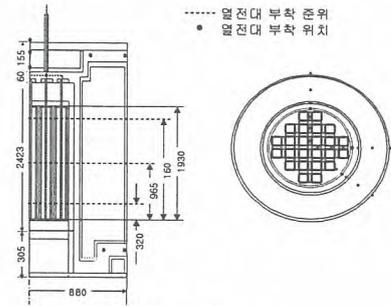


그림 2. 모델의 단면도.

건식 저장용기의 열 제거 특성을 평가하기 위한 실험은 법규에서 규정하고 있는 조건들 중 정상조건과 공기 흡입구의 50%를 봉쇄하는 비정상조건에 대해 수행되었다[1-2]. 그림 3은 정상조건에서 측정된 모델의 온도분포로서 135° 방향의 온도가 가장 높게 측정되었다. 공기 흡입구에서의 온도는 0°, 90°, 135° 모두 21 °C로 측정되었으며, 출구에서의 온도는 0°, 90° 및 135° 각각 70 °C, 65 °C 및 63 °C로 측정되었다. 따라서 피동 열 제거시스템의 성능이 잘 유지됨을 알 수 있었다. 공기 흡입구 및 출구에서의 온도차는 0° 방향이 50 °C로 가장 크게 났으며, 135° 방향이 42 °C로 가장 적었다. 이와 반대로 공기 흡입구 및 출구에서의 유속의 차는 그림 4와 같이 0° 방향이 0.16 m/s로 가장 적었으며, 135° 방향이 0.32 m/s로 가장 컸다. 이 결과로부터 0° 방향에서는 0.0075 m<sup>3</sup>/s의 공기가 유입되어 0.0096 m<sup>3</sup>/s의 공기가 빠져 나가지만, 135° 방향에서는 0.0055 m<sup>3</sup>/s의 공기가 유입되어 0.0096 m<sup>3</sup>/s의 공기가 빠져나감을 알 수 있다. 이것은 0° 방향보다 135° 방향의 온도가 높게 나타남을 말해주는 것으로서 캐니스터 내부의 바스켓이 135° 방향으로 접촉되었을 가능성이 있는 것으로 판단된다. 공기 흡입구의 50%를 봉쇄한 비정상조건 실험결과를 보면 그림 5와 같이 편류가 건식 저장용기의 온도 상승에 큰 영향을 미치지 않음을 알 수 있다.

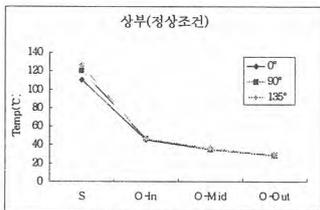


그림 3. 정상조건 온도분포.

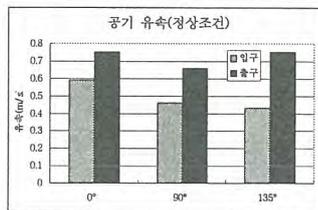


그림 4. 정상조건 공기유속.

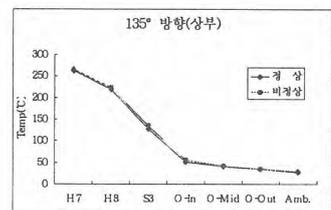


그림 5. 정상/비정상 온도.

[참고문헌]

- [1] IAEA Safety Series No.116, Design of Spent Fuel Storage Fuel Storage Facilities, 1994.
- [2] NUREG-1536, Standard Review Plan for Dry Cask Storage Systems, 1997.

감사의 글

본 연구는 한국수력원자력(주)으로부터 수탁사업의 일환으로 수행되었음.

## 20 kg U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>/Batch 급 반응기에서 사용후 핵연료의 전해 환원공정에 관한 연구

정상문, 오승철, 홍순석, 서중석, 정기정, 박성원  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

LiCl-Li<sub>2</sub>O 용융염계를 이용한 전해 환원 공정이 사용후 핵연료를 처리하기 위해 제안되었다 [1-2]. 이 공정에서 우라늄산화물은 환원전극에서 금속 형태로 전기화학적으로 환원되며, 산화전극에서는 산소가 방출된다. KAERI에서는 여러 가지 단점을 지니고 있는 기존의 Li 환원 공정을 대체하기 위해 전해 환원 공정을 개발해왔다. KAERI에서 개발된 신 공정 개념은 PWR 사용후 핵연료를 처리하기 위한 것이다. UO<sub>2</sub>로 구성된 PWR 사용후 핵연료는 건식분말화 공정을 거쳐 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 입자로 전환된다. 본 연구팀에서는 벤치 규모 반응기에서 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>의 환원반응에 대한 실험 결과를 통해 성공적으로 전해 환원 공정을 실증하였다. 최근에 이 공정을 20 kg U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>/batch 규모로 확장하여 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 으로부터 금속 우라늄을 제조하기 위한 연구를 수행해왔다. 본 논문에서는 20 kg U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>/batch 규모에서 진행된 전해 환원공정을 이용한 금속전환 반응 특성 및 scale-up 에 따른 영향에 대해 고찰하고자 한다.

20 kg/batch 반응기는 Ar 기체 및 반응물 주입 시스템, 전해 전지 및 온도제어 시스템으로 구성되어 있다. 전해전지는 일체형 환원전극과 6개의 백금 산화전극, 환원전극 및 열전대로 이루어져 있다. 일체형 환원전극은 다시 SUS 컨덕터, U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말 및 다공성 마그네시아 필터로 구성된다. U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 은 SUS 컨덕터와 마그네시아 필터 사이에 위치한다. 반응에 사용된 전해질은 Li<sub>2</sub>O-LiCl 용융염 계였다. 전기화학적 금속전환 반응은 Ar 분위기 하에서 650 °C에서 수행되었다. 반응이 진행되는 동안 용융염계에서 Li<sub>2</sub>O 농도를 적정법에 의해 측정하였다. 반응이 끝난 후 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>의 전환율을 열중량분석기를 통해 결정하였으며, XRD 및 SEM 을 통해 금속 우라늄의 특성을 분석하였다.

LiCl-Li<sub>2</sub>O 용융염 계에서 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>의 전해환원 실험은 정전류 실험을 이용하여 수행되었다. 전기화학 반응 속도를 제어하기 위해 전류가 40A부터 80A 까지 단계적으로 변화시켰다. 그림 1은 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>의 반응이 진행되는 동안 각 전극 및 전해질의 전위변화를 보여주고 있다. 셀 전위는 인가전류에 따라 2.72 V에서 3.45 V 까지 변함을 알 수 있다. 이 전위값은 LiCl-Li<sub>2</sub>O 용융염 계에서 Li 금속이 생성될 수 있는 Li<sub>2</sub>O의 분해 전위 (-2.47 ~ -3.46 V)내에 존재한다. 환원전극에서 생성된 Li 는 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말과 반응하여 다음과 같은 화학반응식에 의해 금속 우라늄을 생성한다.

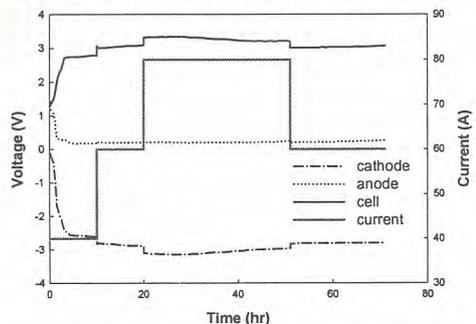


Fig. 1 Chronopotentiometric voltage curves and applied current with time in the U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>-Li<sub>2</sub>O-LiCl system



식 (1)에 의해 생성된  $\text{Li}_2\text{O}$ 는  $\text{Li}^+$  와  $\text{O}^{2-}$  이온으로 해리되며  $\text{O}^{2-}$  이온은 U 금속과 미반응된  $\text{U}_3\text{O}_8$  층을 통해 확산되어 산화전극 쪽으로 향하게 된다. 산화전극에서  $\text{O}^{2-}$ 는 전기화학 반응을 거쳐  $\text{O}_2$  로 가스상으로 배출된다.  $\text{Li}_2\text{O}$ 의 전해 반응 동안 셀 전위는 일정 전류조건에서 약간 증가하는 경향을 보이며 이는 용융염내의  $\text{Li}_2\text{O}$  농도가 감소하기 때문이다.

전해환원 반응이 진행되는 동안 용융염 내의  $\text{Li}_2\text{O}$  의 농도가 적정법에 의해 측정되었으며, 이 실험치가 Faraday's law 에 의해 계산된 값과 비교되었다. 그림 2는 반응기 규모에 따른 용융염 내  $\text{Li}_2\text{O}$  농도를 보여주고 있다.  $\text{U}_3\text{O}_8$ 의 전해환원 반응이 진행됨에 따라 용융염 내의  $\text{Li}_2\text{O}$  농도는 지속적으로 감소하게 된다. 반응초기 (높은  $\text{Li}_2\text{O}$  농도)에서  $\text{Li}_2\text{O}$  농도는 반응기 규모에 관계없이 이론값과 잘 일치한 것으로 나타났다. 그러나 반응이 진행됨에 따라 40 g/batch 규모 반응기에서는 이론값보다 더 높은  $\text{Li}_2\text{O}$  농도가 관찰되었다. 반면 20 kg/batch 규모에서는 반응 후반부 (낮은  $\text{Li}_2\text{O}$  농도)에서도 이론값과 실험값이 거의 유사함을 알 수 있다. 5 kg/batch 반응기는 40g/batch 급과 20kg/batch 급의 중간 영역에 위치한다. 이 결과는 일체형 환원전극에 충전된  $\text{U}_3\text{O}_8$  층의 두께가 전해환원 반응에 의해 생성된  $\text{O}^{2-}$  이온의 확산에 영향을 미치고 있음을 보여주고 있다. Scale-up 에 의한  $\text{U}_3\text{O}_8$  층 두께의 증가는 궁극적으로 용융염 벌크에서  $\text{Li}_2\text{O}$  의 부족을 야기하며, 이 결과로 산화전극의 전위가 급격히 증가하여 반응이 종결되게 된다. 따라서, 일체형 환원전극과 용융염 사이의  $\text{Li}_2\text{O}$  리사이클을 유지하기 위하여  $\text{U}_3\text{O}_8$  층 두께를 최적화시키는 것이 중요하다.

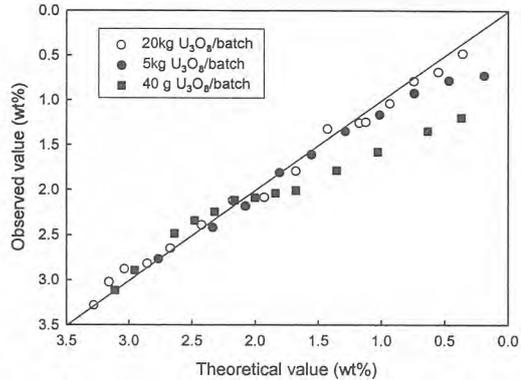


Fig. 2 Comparison of  $\text{Li}_2\text{O}$  concentration obtained by the theoretical equation and the experimental data.

참고문헌

[1] S. X. Li, S. D. Herrmann, M. F. Simpson, D. R. Wahlquist, Global 2003, New Orleans, LA, (2003) 986.  
 [2] J.-M. Hur, C.-S. Seo, S.-S. Hong, D.-S. Kang, S.-W. Park, React. Kinet. Catal. Lett., 80 (2003) 217.

## LiCl-Li<sub>2</sub>O 용융염계에서 우라늄산화물의 전해환원에 관련된 산화전극의 전기화학적 연구

박성빈, 박병홍, 서중석, 강대승, 권선길, 정기정  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

최근 고온용융염 상에서 산화물 사용후핵연료를 전기화학적으로 환원하는 공정에 대한 연구들이 진행되고 있다. 이 공정은 양호한 경제적 잠재력과 고유의 증식 저항성이 있는 차세대연료주기의 첫 번째 단계이다. KAERI에서는 PWR 사용후핵연료를 다루는 혁신적인 기술로 ACP (Advance Spent Fuel Conditioning Process) 공정을 제시하였고 그 공정의 일환으로 우라늄산화물을 우라늄금속으로 금속전환하는 ER(Electrolytic Reduction) 공정을 개발하였다. ER 공정에 적용되는 전해셀은 일체형 음극전극, 용융염 그리고 양극전극 등으로 이루어져 있다. 여기서 고온용융염계에 사용되는 양극전극은 용융염에 대한 용해도가 낮아야 하며 발생하는 산소에 대한 저항성이 좋아야 한다. 또한 전기전도도가 뛰어들 뿐 아니라 산소이온의 산화반응에 대한 과전압이 낮아야 하고 산화전극에 발생하는 부반응에 대한 과전압이 높아야 하는 특성을 갖추어야 한다. 본 연구에서는 LiCl-Li<sub>2</sub>O 용융염계에서 Li<sub>2</sub>O 전해반응과 우라늄산화물의 금속전환이 동시에 진행되는 통합 반응메카니즘에 적용되는 양극전극의 재질을 선정하고, 양극전극의 재질에 따른 전해셀의 전기화학적 특성을 연구하고자 하였다.

ER 공정에서 주로 사용하는 백금전극은 용융염 및 전극 표면에서 발생하는 산소에 의하여 부식이 진행되어 산화피막을 형성하는 것과 가격이 비싼 단점이 있다. 이러한 백금전극의 단점을 보완하기 위해 제조가 용이하며 가격이 싸고 용융염에 대해 좋은 저항성을 가지며 전기전도도가 좋은 양극전극의 재질을 선정하였다. 본 실험에 적용한 양극전극은 SnO<sub>2</sub>, LiFeO<sub>2</sub> 및 Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>이다. 각 양극전극의 재질에 대하여 순환전압측정법을 이용하여 산소이온 및 염소이온에 대한 산화전위를 측정하였고 이를 각 재질의 전기전도도와 관련하여 비교하였다. 그리고 각 재질의 산화전극을 사용하여 대시간전위차법을 통해 금속전환실험에 적용하였고 그 결과를 백금전극의 결과와 비교하였다.

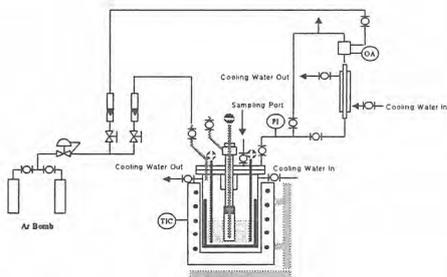


Fig.1 Experimental apparatus for the electrolytic reduction

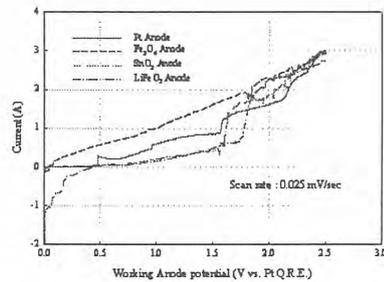


Fig.2 Linear sweep voltammograms of anodes.

Fig. 1은 본 연구에 사용된 전해셀 장치를 설명하는 그림이다. Fig.2는 순환전압측정법을 사용하여 각 양극전극의 재질에 따른 산소이온 및 염소이온의 산화전위를 측정한 그림이다. 그 결과를 각 양극전극의 재질의 전기전도도와 함께 Table 1에 비교하였고 백금전극의 결과를 기준으로 비교하였다. 전기전도도가 높을수록 산소 및 염소 기체가 발생하는 전위는 낮아짐을 확인할 수 있었다. 높은 전기전도도를 나타내는 Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>가 양극전극으로 유리함을 확인할 수 있었다. 그리고 각 양

극전극의 재질을 사용하여 대시간전위차법을 사용하여 우라늄산화물을 우라늄금속으로 환원시키는 실험을 수행하여 각 양극전극에 대하여 성능평가를 수행하였다. 백금전극을 이용한 Fig.3의 대시간전위차도의 결과를 기준으로 Fig.4와 Fig.5는 SnO<sub>2</sub>와 Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>를 사용하여 얻은 대시간전위차도의 결과이다. Fig.4에서 SnO<sub>2</sub>의 경우 전류밀도의 현저한 감소로 과전압이 높아져 전류효율이 떨어짐을 확인할 수 있었다. Fig.5에서 Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>의 경우 백금전극과 유사한 경향을 보여주지만 양극전극의 전위가 백금전극보다 다소 높음을 확인할 수 있었고 또한 용융염계면에서 일부 단락하는 현상이 발생하였다. 이는 Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> 전극제조시 소결의 문제로 판단되어지며 소결에 대한 연구로 그 문제점을 보완해야 할 것이다. 또한 LiFeO<sub>2</sub>의 경우 Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>와 같이 소결의 문제로 용융염에 대한 침해가 심하여 그 성능을 제대로 평가할 수 없었다.

Table 1. 산화전극 재질에 따른 전기전도도 및 O<sup>2-</sup> 와 Cl<sup>-</sup>의 산화전위

항목	Pt	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	SnO <sub>2</sub>	LiFeO <sub>2</sub>
전기전도도 (Ω <sup>-1</sup> cm <sup>-1</sup> )	9.43x10 <sup>4</sup>	125	28	0.05
O <sup>2-</sup> 산화전위 (V)	0.48	0.74	1.85	1.57
Cl <sup>-</sup> 산화전위 (V)	1.57	1.78	2.23	2.00

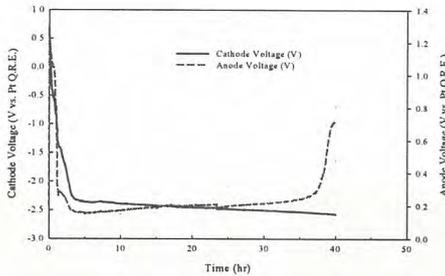


Fig.3 Chronopotentiogram of electrolytic reduction of U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> using Pt anode at 0.8 A

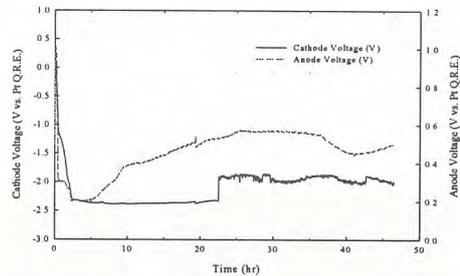


Fig. 4 Chronopotentiogram of electrolytic reduction of U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> using SnO<sub>2</sub> anode at 0.8A

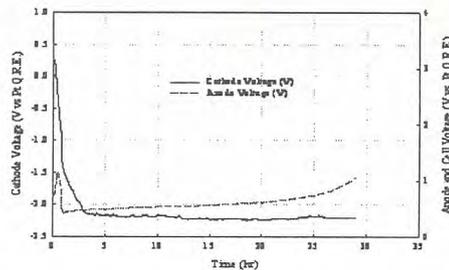


Fig. 5 Chronopotentiogram of electrolytic reduction of U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> using Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> anode at 0.8A

## 금속전환 공정물질 Ingot 제조 및 특성 분석

주준식, 유길성, 조일제, 국동학, 이은표, 김호동, 정기정  
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

사용후핵연료를 안전하고 경제적으로 저장 관리하기 위하여 기존의 세라믹형 사용후핵연료를 금속전환하여 관리부피를 줄이고 고방열성핵종들을 선별적으로 분리하여 냉각부하를 줄일 수 있는 사용후핵연료 차세대관리 종합공정개발(ACP) 과제를 수행하고 있다. 이 공정에서 발생하는 사용후핵연료 금속전환체는 상온에서도 표면산화가 진행될 정도로 매우 불안정한 상태이다.

본 연구에서는 사용후핵연료 차세대관리 종합공정의 최종 단계인 Smelting 공정을 거치지 않은 금속우라늄분말을 방사성동위원소(RI)실험실에서 금속우라늄 산화실험실(R&D KMP)로 이송하였다. 이송된 금속전환체의 성분 및 재료특성 분석을 위해 Arc melting furnace(Fig. 1)를 이용하여 Ingot으로 주조하였으며, 다이아몬드 절단기를 이용하여 절단 및 가공한 후 산화특성 및 미세구조를 분석하였다.

금속분말의 Ingot 제작은 반응로(Fig. 2) 내부의 온도가 2000 °C 이상의 고온으로 상승하면서 NU 금속분말 표면이 급속하게 세라믹 형태로 전환되어 용융점이 높아지기 때문에 이러한 표면 산화현상을 줄이기 위해  $10^{-4}$  Torr 이하의 고진공상태에서 Ar gas 분위기로 수행하였다. 주조된 Ingot(Fig. 3)은 다이아몬드 절단기를 이용하여 470 ~ 550 mg 정도로 절단 및 가공하였으며, 아세톤에 세척한 후 건조하여 준비하였다.

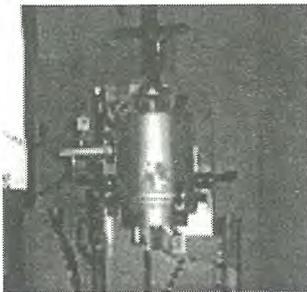


Fig. 1. Arc furnace.

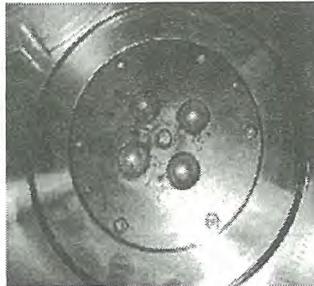


Fig. 2. Copper hearth.

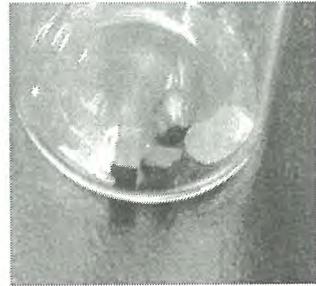


Fig. 3. NU Ingot.

시료에 대한 실험은 순도 99.999 %의 순수 산소분위기로 150 °C ~ 250 °C 온도구간에서 실험 장비는 TA-2050 TGA를 사용하여 산화거동 시험을 수행하였다. 실험시간은 각 시편당 48시간 동안 수행하였으며, 산화율은 시편의 초기 무게에 대한 무게증가율로 정의하였다.

NU 시료의 실험 결과 150 °C에서는 시료의 모양은 변화가 없고 표면 산화만 진행되었고, 200 °C에서는 시료의 원형은 유지되었으나, 시료 외부에서 약간의 산화분말이 생성되었으며, 250 °C에서는 시료 표면으로부터 산화막이 떨어지고 산화분말이 형성되었다.

시험 후 시편에 대한 미세성분 및 조직을 SEM, EPMA, XRD 등을 통해 시료에 대한 Point(점) 분석 결과(Fig. 4) U의 분포는 64 ~ 66wt% 정도로 고르게 산화가 진행되었으며, XRD 분석(Fig. 5)결과 Mockup 공정에서 발생된 NU Ingot 의 실험결과 보다 산화율이 높게 나타났다.

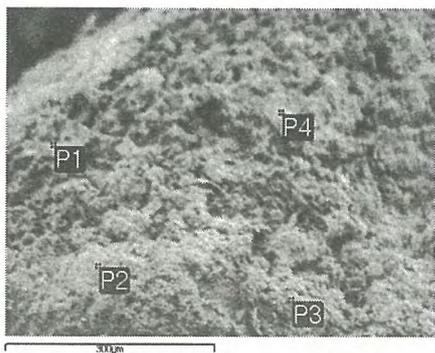


Fig. 4. EPMA micrographs of NU.

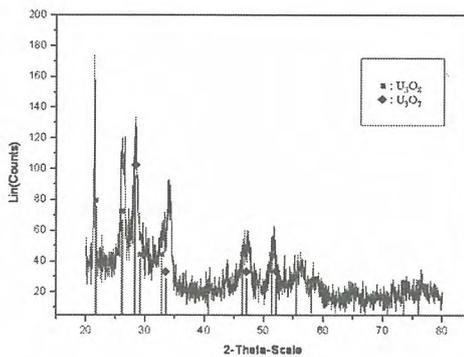


Fig. 5. XRD pattern.

## 리튬용융염계 산화성분위기에서 Haynes 및 Inconel 합금의 고온부식거동

조수행, 임중호, 박성빈, 서중석, 정기정, 박성원  
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

### 1. 서론

고온 용융염 환원법을 이용한 금속전환기술의 일환인 Li-Reduction 공정은 핫셀 내에서 금속 Li 을 취급하는데 따른 안전성의 문제와 Li 재생 및 재순환을 위한 Electrowinning 공정의 복잡성 등 많은 문제점이 대두되었으나, 이를 개선할 수 있는 고온용융염 전해환원법을 개발하였다. 전해환원공정은 650°C 이상의 고온에서 부식성이 강한 용융염 상에서 반응이 이루어지고, 또한 사용후핵연료의 취급으로 인해 핫셀 내에서 원격으로 조업이 수행되어야 하기 때문에 공정의 성공적인 산업화를 위해서는 무엇보다도 고온용융염 상에서 안정하고 신뢰성 있는 재료개발이 선행되어야 한다. 더욱이 고온용융염 전해환원공정은 양극에서 산소가 발생하는 산화성분위기이기 때문에 이에 적합한 반응기재료의 개발은 매우 중요하다. 그러나 고온 용융염 취급장치재료의 내식성에 관한 연구는 아주 미미한 실정이다. 따라서 본 연구에서는 산소가 발생하는 고온 LiCl-Li<sub>2</sub>O 용융염계 분위기에서 고온용 재료로서 우수한 기계적 성질 및 내부식성을 지닌 합금으로 알려진 Inconel 600, 690 및 Haynes 75, X-750 합금의 부식거동을 고찰하여 용융염부식억제형 재료개발에 필요한 자료를 도출하고자 한다.

### 2. 실험방법

부식환경 온도는 전해환원공정이 이루어지는 650°C로 설정하였으며, 부식시간은 72 ~ 360시간, Li<sub>2</sub>O 농도는 3wt.%, 혼합가스의 농도는 Ar-10%O<sub>2</sub>로 하였다. 부식실험은 혼합용융염 LiCl-Li<sub>2</sub>O를 MgO 실험도가니에 넣고 아르곤 분위기에서 가열하였으며, 용융염의 온도가 650°C에 도달하면 시편을 용융염에 침지시킨 후 용융염 중에 알루미늄나 튜브(6φ)를 통해 혼합가스를 공급하였다. 주어진 부식반응시간에 도달하면 시편을 용융염으로부터 분리시킨 후 아르곤 분위기에서 로냉하였다. 실험 종료 후 부식된 시편을 증류수에서 초음파 세척하여 용융염을 제거한 다음 건조로에서 24시간 이상 건조한 다음 무게변화를 측정하였으며, 또한 부식생성물 및 부식층의 미세조직 관찰을 위해 XRD, SEM과 EDS를 사용하여 관찰하였다.

### 3. 결과 및 고찰

Fig. 1에서 보는 바와 같이 모든 합금들은 반응시간의 증가에 따라 무게감소를 나타냈으며, 특히 Inconel 690은 가장 큰 무게감소를 보이고 있는 반면 Haynes 75가 가장 우수한 내부식성을 나타내었다. 대부분 합금의 부식생성물은 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>로 나타났으며, 산소와 친화력이 큰 원소인 Al, Nb 및 Ti를 포함한 Haynes X-750의 부식생성물은 부식초기에 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 및 NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>가 표면부식층을 형성하다가, 이들 원소들이 외부확산하여 산화물을 이루었다. Ni-Cr-Fe계 합금의 경우 열역학적 측면에서 초기에 생성되는 산화물은 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>인데 Fe 및 Ni이온은 초기 생성된 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>층을 통해 외부확산하여 산화물을 생성하는 것으로 표면에 생성된 철계산화물인 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>는 NiO와 고상반응을 일으켜 NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>의 스피넬형 산화물을 생성하는 것으로 생각된다. 결국 부식생성물은 표면으로부터 NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>를 이루고 그 직하에 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 형성하고 있는 것으로 생각된다. Fig. 2에 나타난 Inconel 690의 부식생성물은 다른 합금과는 달리 초기 부식단계에서 단상의 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>만 나타났는데 그것은 Cr의 농도가 약 30% 정도로 높아 산화막으로 공급되는 Cr의 양이 많기 때문으로 판단된다. 즉, Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 산화물층의 성장속도가 Fe 및 Ni 이온의 외부 확산속도보다 크므로 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 산화물층으로만 구성되는 것으로 생각된다. 그러나 부식시간의 증가에 따라 기지금속내의 Cr이 고갈되면서, Fe 및 Ni 이온의 외부확산으로 인해 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 산화물층 외부에 NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 부식층이 형성되는 것으로 판단된

다. 특히 단상의  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  피막을 형성하는 Inconel 690의 내부식성이 가장 떨어지는 것으로 보아  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 은 효과적인 보호피막의 역할을 하지 못하는 것으로 생각된다. 따라서 Cr, Fe 및 Ni의 양이 내식성을 결정하는 중요한 인자라고 판단되며 용융염 중에 내부식성을 향상시키기 위해서는 일정량 이상의 Ni 첨가 및 Fe와 Cr의 과도한 함유는 내식성 저해에 큰 영향을 미칠 것으로 생각된다. 이러한 결과는 높은 Ni 양, 적은 Fe 양을 지닌 Haynes 75가 가장 우수한 내식성을 보인 Fig. 1의 결과와 일치한다. Fig. 3은 Haynes 75의 부식단면층의 조직과 EDS분석결과로 부식층은 Fe계 산화물, Cr계 산화물의 순으로 적층되었으며, 부식층 직하에 Ni-rich 현상을 보이고 있다. Ni 성분이 산화물 주위에 농축됨으로서 산화속도를 감소시키는 것으로 생각된다. 이는 Ni 함량이 높은 Haynes 75 합금의 부식속도가 낮은 반면 Ni 함량이 낮은 Inconel 690의 부식속도가 높게 나타난 Fig. 1의 결과와 일치한다.

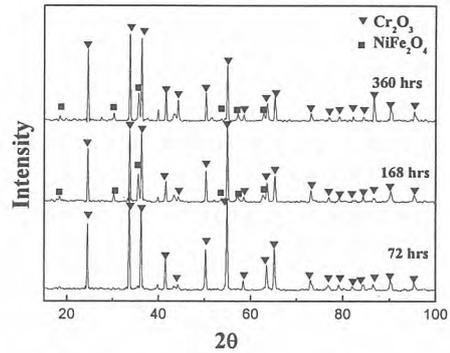
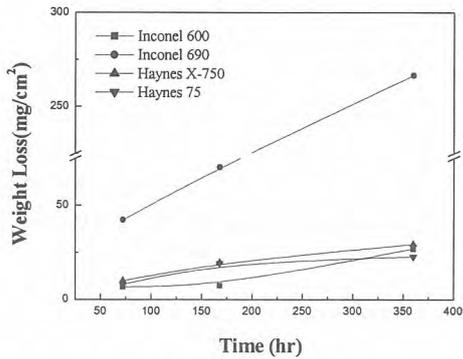


Fig. 1. Weight loss of superalloys corroded at 650°C, as a function of time.

Fig. 2. Corrosion products of Inconel 690 corroded at 650°C for 72 ~ 360 hrs.



Fig. 3. SEM cross sectional image and elemental distribution of Haynes 75 corroded at 650°C for 168 hrs.

## LiCl-Li<sub>2</sub>O 용융염계에서 전해환원 반응에 의한 탄탈륨 금속의 제조

정상문, 정진영, 서중석, 정기정, 박성원

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

미세 탄탈륨 금속입자는 통신장비 커패시터의 제조를 위해 사용된다. 일반적으로 알려진 산업용 탄탈륨 입자는 1000 °C 이상의 고온에서 Na 용융염으로 K<sub>2</sub>TaF<sub>7</sub> 을 환원시킴으로써 제조되고 있다. 이 방법은 에너지 절약, 폐기물 관리 및 생성물 수율 측면에서 단점을 가지고 있다. 최근에 탄탈륨 금속입자를 제조하기 위한 다양한 방법들이 제시되고 있다. 이러한 방법에서는 주로 탄탈륨 금속입자를 제조하기 위한 전구체 물질로 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 가 사용된다. Nersisyan 등[1] 은 SHS 합성법에 의해 탄탈륨 나노입자를 제조하였으며, Baba 등[2] 은 CaCl<sub>2</sub> 용융염에서 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>의 환원반응을 통해 미세 탄탈륨 입자를 제조하였다.

본 연구팀은 LiCl-Li<sub>2</sub>O 용융염계에서 사용후 연료의 효율적 처리를 위해 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>을 전해환원 반응을 이용하여 금속 우라늄을 제조하는데 성공하였다 [3]. 전해환원을 이용한 금속전환법은 비교적 낮은 온도에서 조업이 가능하며 99% 이상의 높은 금속전환율을 얻을 수 있다는 장점이 있다. 본 연구에서는 탄탈륨 금속입자를 효율적으로 제조하기 위해서 LiCl-Li<sub>2</sub>O 용융염계를 이용한 전기화학적 금속환원법을 이용하였다. 본 논문에서 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>의 환원에 대한 반응기구와 생성된 탄탈륨 금속입자에 대한 기기분석 결과를 고찰하였다.

그림 1은 탄탈륨 금속입자 제조를 위한 전해 전지를 보여주는 그림이다. 전해 전지는 중심부에 위치한 환원전극과 3개의 산화전극, 기준전극 및 열전대로 구성되어 있다. 환원전극은 다공성 마그네시아 필터 내부에 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 가 충전되어 있으며 SUS conductor에 의해 전류가 공급된다. 금속 전환 반응은 650 °C의 용융염계에서 수행되었다. 반응이 진행되는 동안 용융염계에서 Li<sub>2</sub>O 농도는 적정법에 의해 측정되었다. 반응이 종결된 후 탄탈륨 금속입자의 표면 형상을 SEM 으로 관찰하였으며, 결정 상태가 XRD 방법으로 확인되었다.

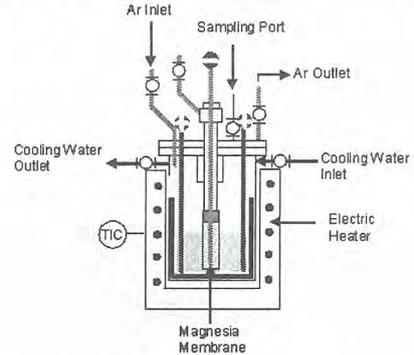
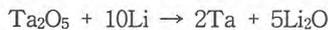


Fig. 1. Experimental apparatus for the electrochemical reduction of Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>

본 연구에서 전기화학적 금속전환 반응은 LiCl 과 Li<sub>2</sub>O 의 분해 전위차 (LiCl: -3.46 V, Li<sub>2</sub>O: -2.47)에 근거한다. 각 분해전위의 중간 전위에서는 LiCl-Li<sub>2</sub>O 용융염계에서 Li<sub>2</sub>O 의 선택적 전해를 통해 환원전극에서는 Li 가 생성되며, 산화전극에서는 O<sub>2</sub> 가 생성되어 가스상으로 방출된다.

본 연구에서 Ta 금속입자를 제조하기 위해 대시간전위차법 (chronopotentiometry)이 이용되었다. 그림 2는 1.2 A의 정전류에서 얻어진 chronopotentiogram 을 보여주고 있다. 초기단계에서 전지 전위는 약 2.5 V 를 보이고 있으며 반응이 진행됨에 따라 Li<sub>2</sub>O 농도의 감소 때문에 전지의 전위도 점차적으로 증가하는 경향을 보인다.

한편 산화전극에서 생성된 Li 금속은 마그네시아 필터에 충전된 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 와 다음과 같은 반응을 거침으로써 탄탈륨 금속이 생성된다.



반응 후반부에 O<sup>2-</sup> 이온이 용융염계에서 고갈되면서 산화전극의 전위가 급격히 상승함으로써 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>의 금속전환 반응이 종결된다.

생성된 탄탈륨 금속입자의 형상을 관찰하기 위해 SEM 분석이 수행되었다. 그림 3은 1.2 A의

전류 조건에서 생성된 탄탈륨 금속입자를 보여주고 있다. 이 그림에서 알 수 있듯이 약 2 - 5  $\mu\text{m}$  크기의 탄탈륨 금속 입자들이 서로 엉겨 붙어 있는 형상을 보여주고 있다. 이런 형상의 입자들은 Baba 등 [2]의 결과에서도 나타났으며, 브로컬리 형상이라고 명칭하였다. 이 입자들은 입방형 (cubic)의  $\alpha$ -탄탈륨 금속상으로 커패시터 제조용으로 우수한 특성을 지니는 것으로 알려져 있다. 생성된 탄탈륨 금속입자에 대한 XRD 결과에서는 가해준 전류의 세기에 따라 탄탈륨 금속이 입방형의  $\alpha$ -상과 정방구조 (tetragonal)의  $\beta$ -형상이 존재한다는 것이 밝혀졌다.

본 연구에서 전기화학적 금속전환 공정은 고부가가치의 금속을 제조하기 위한 매우 효과적인 수단인 것으로 확인되었다.

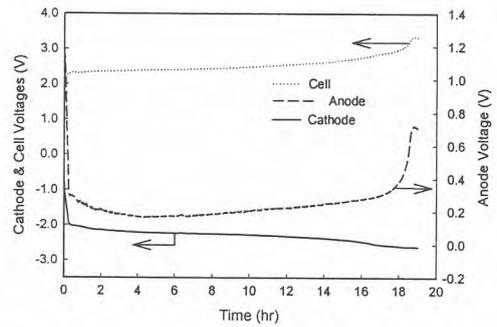


Fig. 2 Chronopotentiogram as a function of time in the electrolysis cell

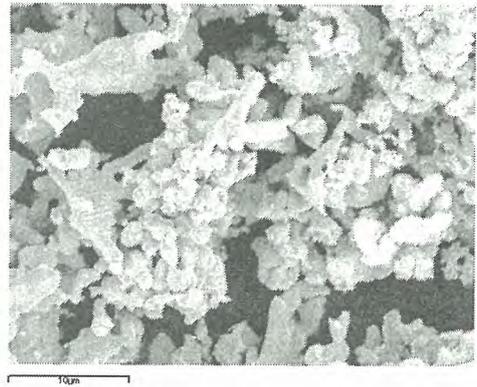


Fig. 3. SEM photograph of metallic tantalum produced.

참고문헌

[1] H. H. Nersisyan, J. H. Lee, S. I. Lee, C. Won, Combustion and Flame 135 (2003) 539.  
 [2] M. Baba, Y. Ono, R. O. Suzuki, J. Phys. Chem. Solid 66 (2005) 466.  
 [3] J.-M. Hur, C.-S. Seo, S.-S. Hong, D.-S. Kang, S.-W. Park, React. Kinet.Catal. Lett., 80 (2003) 217.

## 우라늄 산화물의 전해환원으로 제조된 미세 우라늄 분말의 용융

허진목, 조수행, 임중호, 서중석, 정기정, 박성원

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

한국원자력연구소에서 1997년부터 연구를 수행하고 있는 사용후핵연료 관리·이용 기술개발 (Advanced Spent Fuel Conditioning Process (ACP))은 사용후핵연료의 발열량, 부피 및 방사능을 감소시키기 위하여 1) 사용후핵연료 산화물 펠렛을 분말화 하기 위한 air voloxidation, 2) 산화물 분말의 금속분말로의 전해 환원, 3) 금속분말을 용융한 후 잉곳 형태로 고화시키는 smelting 등의 회분식 단위공정들로 이루어져 있다. 2002년에 금속전환의 방법이 기존의 Li reduction에서 LiCl-Li<sub>2</sub>O 용융염상에서의 전해 환원으로 수정되었으며, 2007년 hot cell 실증을 목표로 연구가 추진 중이다.

ORIGEN2 code를 이용하여 분석한 ACP 물질수지 계산결과에 따르면 전해 환원된 금속전환체 전체 질량의 96% 이상이 우라늄이다. 이에 ACP 전해환원공정의 mock-up 실험은 천연 우라늄 분말을 사용하여 수행되었으며, U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말을 우라늄 금속분말로 99% 이상 전해 환원할 수 있었다. 생산된 미세 우라늄 금속분말은 약 40 wt%를 차지하는 잔류염과 함께 다공성 마그네시아 용기에 담겨 smelting 공정으로 이송되어, 용융 및 고화 과정을 거치게 된다.

본 연구에서는 ACP smelting 공정 고도화를 위하여 우라늄 금속 분말의 용융 특성을 조사하였다. 그런데 특수제작한 진공 유도로를 사용하여 수행한 실험에서 우라늄 피의 용융과는 달리 전해 환원된 미세 우라늄 분말의 경우, 순수 우라늄의 녹는점인 1,132 °C 보다 훨씬 높은 1,300 °C 온도에서의 용융 실험 후에도 일부는 분말 형태를 유지하고 있음이 관찰되었다.

회분식 단위공정간 이송 과정 등에서 우라늄 분말이 공기 중 산소에 노출되면 표면은 산화막으로 덮이게 된다. 본 연구에 사용된 전기화학적으로 금속전환된 미세 우라늄 분말의 표면에도 Fig. 1 (a)에서 보듯이 수 nm 두께의 산화피막이 관찰되었다. 산소와의 반응에 의하여 생성된 산화피막의 경우, 200 °C 미만의 반응온도에서는 UO<sub>2+x</sub> (x = 0.2 ~ 0.4)이나 275 °C 이상의 반응온도에서는 일부 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 상도 생성되며, 수증기와 반응에 의한 산화피막은 UO<sub>2+x</sub> (x = 0.0 ~ 0.1)인 것으로 알려져 있다. 1,300 °C 진공조건에서 이루어지는 용융실험에서는 산화피막은 UO<sub>2</sub> 구조를 가질 것이다. 따라서 용융과정에서 고체에서 액체로 상변화한 산화피막 내부의 우라늄 금속이 녹는 점이 2,847 °C인 UO<sub>2</sub> 고체 산화피막에 갇혀 우라늄 분말의 용해 합체가 저해되었을 수 있다. 이에 산화피막의 안정성을 조사하였다. UO<sub>2</sub>의 탄성계수, 포와송비, fracture 강도를 대표적인 문헌값을 적용하여 각각 192.9 GPa, 0.302, 0.15 GPa이라고 가정하고 thin-walled pressure-vessel mechanics를 적용하면, 0.15% 이상의 부피변화가 있으면 산화피막이 파괴될 것이다. 그런데, 우라늄 금속의 밀도가 상온과 1,300 °C에서 각각 19.05 g/cm<sup>3</sup>와 17.73 g/cm<sup>3</sup>임을 감안하면 산화피막은 1,300 °C의 용융온도에서 기계적 안정성을 유지 못하고 파괴될 것임을 유추할 수 있다.

나노크기의 금속분말이 matrix에 coherent한 경우 절대온도 단위로 bulk 금속의 평형녹는점보다 최대 20%이상 높은 온도에서 녹는 supermelting 현상이 발생할 수 있다. 그러나, 본 연구의 경우 1,500 °C의 용융 실험 후에도 분말 형태가 유지되고 있음을 고려할 때, supermelting 현상이 지배적이지 않은 것으로 판단되었다. 더구나 U<sub>2</sub>와 UO의 결합길이가 각각 2.686 Å와 1.814 Å으로 큰 차이가 있는 점을 감안하면 우라늄 금속은 UO<sub>2</sub> 산화피막에 coherent하지 않을 것이다.

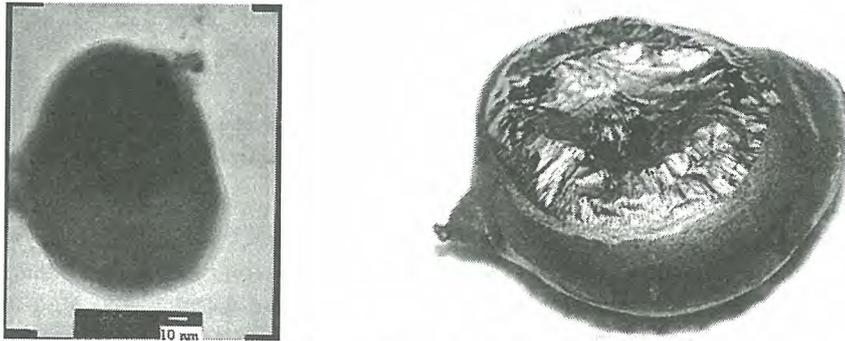


Fig. 1. TEM image of the electrochemically reduced U metal powder (a) and the smelted U metal ingot (b).

진공 유도로의 경우 자기장에 의하여 발생된 전류 통과에 의하여 대상물이 가열된다. 진공 유도로의 용해과정을 optical window를 통하여 육안으로 관찰한 결과 용해가 일어나기 전에 분말 유동현상이 발생함을 관찰하였다. 미세분말을 유도로에서 녹이는 경우 전류경로가 길어져 가열효율이 감소하여 긴 가열시간이 소요되며, 이는 고온에서 대상물이 산소와 반응하여 산화될 확률을 불가피하게 높게 된다. 따라서 미세분말의 용해에는 간접가열방식이 아니라면 직접유도에 의한 방식은 적합하지 않다. 성공적인 smelting 공정을 위해서는 가열방식 및 가열 분위기 제어가 주요하게 고려되어야만 한다.

아크로를 사용하여 전기화학적으로 금속전환된 우라늄 금속분말을 용해한 다음 고화시켜 제조한 우라늄 금속잉곳을 Fig. 1 (b)에 나타내었다. SEM-EDX로 확인한 결과,  $UO_2$ 와 아울러 전해반응기 재질에 기인하는 Cr-Fe- $O_x$  구조가 표면 일부에서 관찰되었다. 이들 불순물들은 dross로 smelting 공정의 마지막 단계에서 금속 잉곳으로부터 분리될 것이다. 제조된 금속 잉곳의 밀도는  $15.9 \text{ g/cm}^3$ 이었으며, 이는 압출 과정이 없는 분말 용해에 기인하는 특성이라고 판단된다. 즉, 불순물의 존재에 의한 밀도감소와 아울러 내부에 존재하는 poro에 의하여 이론적인 밀도값보다 낮은 값을 나타내는 것으로 추정되었다.

## 사용후핵연료 탈피복에 관한 연구

정재후, 김영환, 진재현, 홍동희, 윤지섭  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

### 1. 사용후핵연료 탈피복 장치 개발

탈피복 장치는 250 mm의 길이로 절단된 연료봉으로부터 사용후핵연료 pellet과 hull을 분리하는 장치로 여러 쌍의 blade로 구성된 blade module 속으로 연료봉을 밀어 넣어 3개의 조각으로 찢는 장치이다. 이 장치는 연료봉을 장치에 장착하거나 slitting할 때 사용후핵연료 pellet이 공기중으로 노출되며 튀어나갈 수 있기 때문에 hot cell 내부를 오염시킬 수 있다. 또한, 종합공정의 목표인 20 kgHM/batch의 사용후핵연료를 확보하기 위해서는 약 135개의 절단 연료봉(250 mm)을 slitting하여야 하는 데 이에 소요되는 시간은 약 19시간으로 다른 공정장치에 비하여 훨씬 많은 시간이 소요된다. 또한, 연료봉을 하나하나씩 수작업으로 취급하기 때문에 작업자의 부주의로 인한 pellet 누출 및 장치 파손 등의 사고 발생 위험 가능성도 매우 높다. 따라서 당해연도에는 탈피복 시간의 단축(반자동화 개념 도입, pellet과 hull의 자동 분리) 및 작업의 안전성 향상(pellet 조각 확산 방지, 유지 · 보수 구조개선)에 중점을 두어 기존에 고안한 장치를 이용하여 여러 가지 실험을 수행하였고, 그 결과를 바탕으로 실증용 장치를 그림 1과 같이 설계 · 제작하였다.

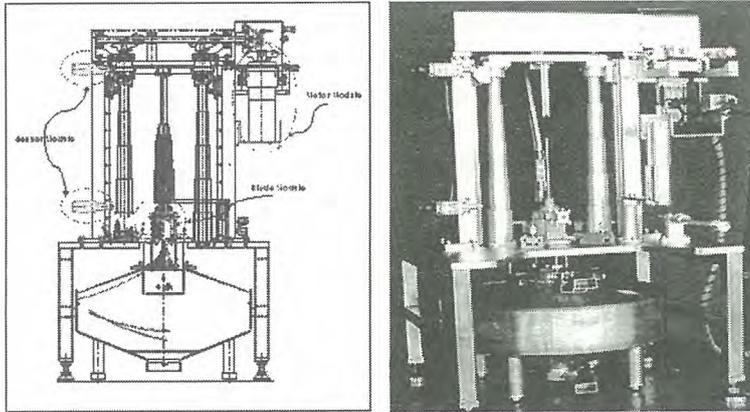


그림 1. 실증용 slitting 장치 설계 및 제작.

### 2. 탈피복 장치 실험

탈피복 장치를 이용하여 연료봉 장입 및 연료봉 지지시험, pellet과 hull 분리시험, 연료봉 압출 시험, slitting 시간 및 힘 측정 등의 시험을 수행하였다. 시험 결과를 토대로 연료봉의 반자동 장전 mechanism, pellet 조각 및 분진 확산방지 mechanism, pellet과 hull의 자동 분리 mechanism 등을 추가 또는 보완하였고, 장치의 유지 · 보수를 용이하게 하기 위하여 지지대와 blade body를 단일 구조로 개조하는 등 장치의 설계를 보완하였다. 연료봉 장입 및 지지시험은 그림 2에서 보는 바와 같이 절단된 연료봉을 capsule에 넣어 탈피복 장치에 장전하는 반자동 장전 mechanism을 고안하고 이를 이용한 연료봉 장입 및 지지시험을 수행하였다. Pellet과 hull의 자동 분리시험은 자동분리 mechanism을 고안하고 이의 성능 시험을 수행한 결과 약 95 % 이상의 연료봉이 자동 분리되었으며, 그림 3에서와 같다. 연료봉 압출 시험의 결과는 그림 4에서 보는 바와 같이 연료봉 탈피복시 소요되는 압출력은 최대 200 kgf 이하이며, 압출 시간은 100 sec 이하가 됨을 알 수 있었다. 이와 같이 확보된 실증용 장치를 이용하여 일련의 시험을 통하여 장치를 보완함으로써, 탈피복 시간을 180 sec(250 mm 연료봉 1개 기준)로 단축시킬 수 있었으며 이는 당초 목표인 기존

장치(310 sec) 대비 탈피복 속도를 40 % 이상 단축됨을 알 수 있었다.

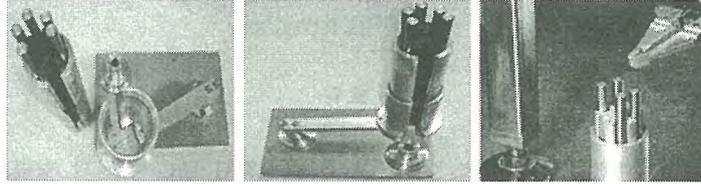


그림 2. 연료봉 capsule 장입 및 manipulator 취급.

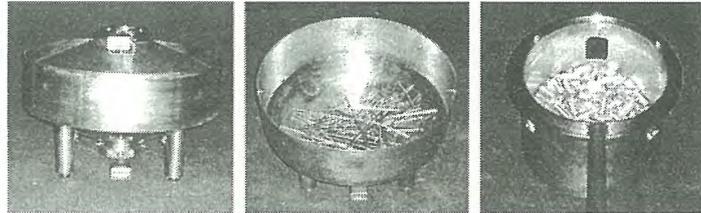


그림 3. 자동 분리된 pellet과 hull.

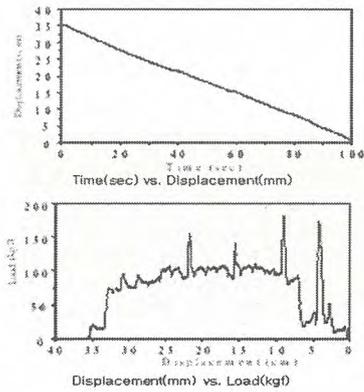


그림 4. 연료봉 압출 시험 결과.

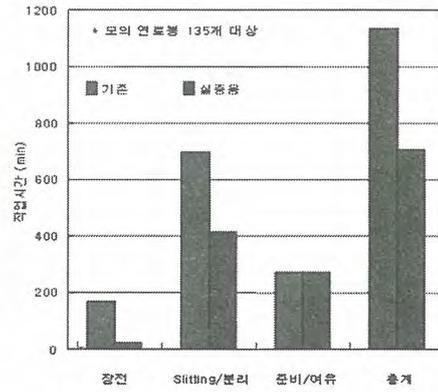


그림 5. Slitting 작업 시간.

## 소형 산화 장치를 이용한 공급 유량별 $UO_2$ Pellet 산화 연구

엄재범, 김영환, 윤지섭, 정운관\*

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

\*조선대학교, 광주광역시 동구 서석동 375번지

[demo3195@naver.com](mailto:demo3195@naver.com)

### 요약

사용후핵연료 차세대관리공정에서는  $UO_2$  펠릿을 균질화된  $U_3O_8$ 의 분말 형태로 되어야만 금속 전환공정에서 반응효율을 높일 수 있다. 본 연구에서는 실증용 건식분말화 장치에서 분말의 비산을 방지하면서 산화 효율을 최대한 높일 수 있는 최적 조건을 찾는 데 있다고 할 수 있다. 본 연구의 실험에서  $UO_2$  펠릿(약 90 g)에 유량별 공정 변수를 주어 최적화된 산화 조건을 조사하였다. 그 결과, 500 °C 에서 유량은 이론 산화량의 2배(1640 cc/min)의 조건에서 최적의 산화 효율을 보여주었다. 따라서 본 연구에서 실증용 건식분말화 장치의 비산을 방지하면서 산화 효율을 최대한 높일 수 있는 최적 유량을 결정하였다.

### 1. 모의실험장치

$UO_2$  펠릿을 이용하여 산화 실험을 하기 위해 Fig 1처럼 실험장치를 제작하였다. 모의실험용 장치의 재질은 SUS 304L이며, 높이 210 mm x 지름 100 mm의 원통형의 장치와 온도 조절 제어 Thermocouple와 프로그램 상으로 읽는 Thermocouple, 실증용 장치에서는 모터를 구동시켜서 산화 시간을 단축하고, 99 %이상의 회수율을 얻어내며 모의실험용 장치에는 Impeller와 Handle를 설치하여 유사한 조건을 만들었다.

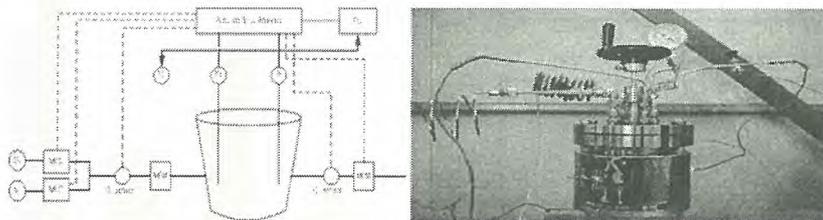


Fig 1. The outline plan and the equipment of a mock test of the vol-oxidation.

### 2. 실험방법 및 고찰

모의 소형 산화 장치를 이용하여  $UO_2$  펠릿 산화 연구에서는 조사되지 않는 CANDU형 천연 우라늄을 빠른 시간에 최대한의 비산을 막으면서 최적의 산화 유량을 찾기 위해 500 °C의 고온에서 유량의 변화를 주면서 산화 실험을 수행하였고,  $UO_2$  Pellet 5개의 완전 산화를 위해 필요한 공기량은 아래 표를 근거로 520 cc/min로 설정하였다.

UO<sub>2</sub> 분자량은 270.02이다. 따라서 UO<sub>2</sub> Pellet 1개(18.26 g)는 0.0666b mol에 해당한다. UO<sub>2</sub> + 1/3O<sub>2</sub> → 1/3U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>이며, UO<sub>2</sub> 1 mol의 산화에는 1/3 mol의 산소가 필요하고, 결국 UO<sub>2</sub> Pellet 1개의 산화에는 0.0222 mol의 공기가 요구된다. 이상 기체로 가정하면 1기압 298 K에서 이상기체 1 mol은 22.4 ℓ 이고, 산소는 보통 공기 중에 21 %를 차지한다. 따라서 21/100 x 0.0222 mol x 22.4 ℓ x 5 = 520 cc의 공기가 소요된다.

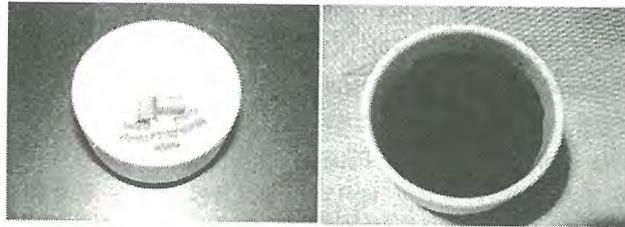


Fig 2. UO<sub>2</sub> Pellets used in a vol-oxidation test and U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> powers after a vol-oxidation.

각 실험의 시편을 채취한 후, TGA(Thermogravimetric Analysis) 및 XRD(X-ray Diffraction)으로 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말을 확인하였다. Fig 3은 완전 산화 유량의 약 2배인 조건에서 산화 최단 시간을 보여줬으며 99.9 %의 β-U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>의 분말을 얻을 수 있었다. 또한 최종적 산화 반응물인 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>의 TGA 결과와 XRD 결과를 보여준 것이다.

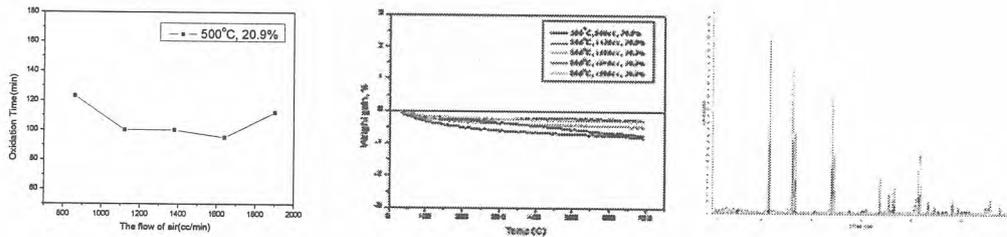


Fig 3. The result of an oxidation time and a XRD and TGA analysis in a vol-oxidation.

### 3. 결론

본 연구에서는 소형 산화 장치를 이용하여 UO<sub>2</sub> 펠렛의 산화 실험을 수행하였고 UO<sub>2</sub> 펠렛을 공급 유량별 산화 실험하여 TGA분석 및 XRD분석 결과 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>의 99.9 %가 분말화 되었음을 알 수 있었다. Vol-oxidation 공정의 안전성과 경제성 그리고 산화시간의 최소화 등을 고려하여 500 °C에서 완전 산화량의 약 2배(1640 cc/min)의 조건에서 비산을 방지하는 최적화 점을 찾아내었다.

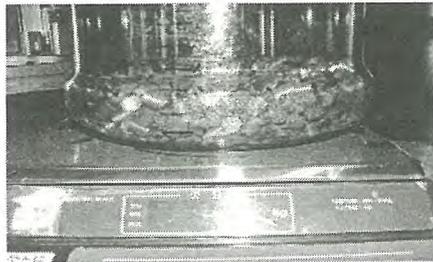
향후 대용량(20 kg/batch)의 UO<sub>2</sub> 펠렛의 산화를 위해 최적 유량을 바탕으로 한 산화 온도 및 O<sub>2</sub>농도 등의 다른 공정 변수를 두어 산화 최단 시간을 알 수 있는 연구를 수행할 예정이며 이로써 실증용 건식분말화 장치 운전의 기본 데이터로 이용될 수 있을 것으로 본다.

## 20 kgHM/batch용 분말화 장치 설계를 위한 $UO_2$ Pellet 의 산화반응 연구

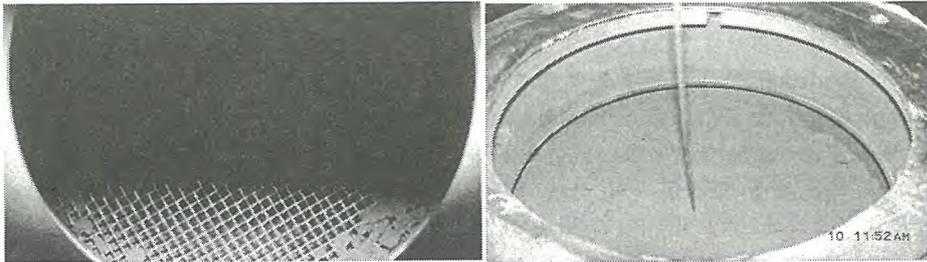
김영환, 윤지섭, 정계후, 홍동희, 엄제법  
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

20 kgHM/batch용 분말화 장치는 차세대관리 공정의 금속전환로에 균질화된 분말을 공급하기 위하여  $UO_2$  Pellet을 산화하여  $U_3O_8$ 으로 분말화하는 장치이다. 본 연구에는 실증용 분말화 장치 상세설계를 위하여 산화반응 및 산화반응 후 분말투과율 실험을 수행하였으며, 실험결과를 상세설계에 반영하였다. 실험방법으로는 20kg의  $UO_2$  Pellet과 산화 후  $U_3O_8$  체적을 조사하여 장치크기를 결정하였으며, Mesh의 구조 및 형상 설계를 위하여 산화분말에 대하여 진동 후 Mesh의  $U_3O_8$  분말 투과율 시험을 수행하였다. 최적설계와 운전조건을 결정하기 위하여 장치 부위별 온도 분포 측정 실험(Heating Zone 설계)과  $UO_2$  Pellet의 산화 실험을 수행하여 분석을 하였다. 이러한 실험을 토대로 실증용 장치 설계에 필요한 데이터를 확보하여 실증용 분말화 장치를 제작 하였다.

실험결과는 다음과 같다. 사용후핵연료 20 kgHM/batch를 처리할 수 있는 실증용 분말화 장치를 설계하기 위하여 실험 대상핵연료는  $UO_2$  Pellet(14x14, J23,  $\phi$ 9.2, L15mm) 을 사용하였다. Fig. 1-a 와같이 20kg의  $UO_2$  Pellet에 대한 반응 전 체적 과 반응 후  $U_3O_8$ 의 체적을 측정한 결과 Pellet은 3.7L, 135개,  $U_3O_8$ 은 10~13L로 조사되어 장치내부의 상부Mesh 공간과 가열로 크기를 결정하였다. 진동 후 Mesh에 대한 분말투과율을 조사하기위하여 1kg, 20kg의  $U_3O_8$  으로 투과 실험을 한 결과, Fig. 1-b와 같이 1kg의  $UO_2$  Pellet 투입 시 잔여분말이 남아있었으며, Fig. 1-c와 같이 20kg의  $U_3O_8$ 은 Mesh를 전혀 통과하지 못하였다. 따라서  $U_3O_8$ 분말이 잘 투과 될 수 있도록 Mesh의 형상구조 설계에 반영하였다.



(a)



(b)

(c)

Fig. 1. Volume of 20kg  $UO_2$  Pellet(a) and permeability test of  $U_3O_8$ (b, c)

실증용 분말화 장치의 Heating Zone을 결정하기위하여 기존의 시험용 분말화 장치내부의 온도 분포를 측정하였다(Fig. 2-a). 그 결과 가열로 장치내부의 중심부분이 500~510℃, 하부가 390~400℃, 내부 가장자리는 540~550℃로 조사되었다.

기존 시험 장치를 이용하여 산화반응특성과 운전조건에 대한 문제점을 검토하고 처리용량 20kg HB/batch의 실증용 장치설계에 반영하였다. Fig. 2-b에서와 같이 20kg UO<sub>2</sub> Pellet를 산화할 경우 반응종료까지 12시간의 장시간이 소요되었다. 따라서 반응 효율을 높일 수 있는 가열로 구조로 설계를 고려하였다. Fig. 2-c 는 UO<sub>2</sub> Pellet(500g, 1kg, 20kg)에 대한 농도, 유량, 온도 변화에 대한 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>분말의 TGA(Thermal Gravity Analyser)분석결과이다. 여기서 보면 대부분 무게변화가 없고 99%이상 β-type U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>임이 판명되었다.

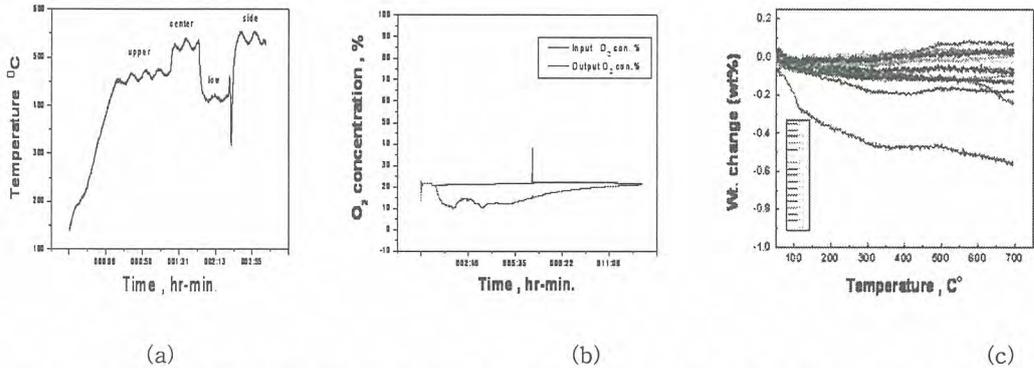


Fig. 2. Temp. distribution in the furnace (a), oxidation of 20 kg UO<sub>2</sub> Pellet(b), and TGA(c)

실증용 분말화 장치 제작을 위하여 위와 같은 산화반응 실험결과를 토대로 다음과 같이 고안, 개발하여 상세설계(Fig. 3-a)에 반영하였다. 기존시험 장치 내 Mesh의 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 투과효율을 높이기 위해서 Cone Type Mesh를 고안하였고, U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>의 산화/배출/혼합효율을 증가하기위하여 Rotation Part에 Mechanical Seal 과 Knife Blade를 설계하였으며, 분말의 원활한 흐름조절을 위한 Shaft Valve를 개발하여 20 kgHM/batch용 분말화 장치(Fig. 3-b) 제작에 반영하였다.

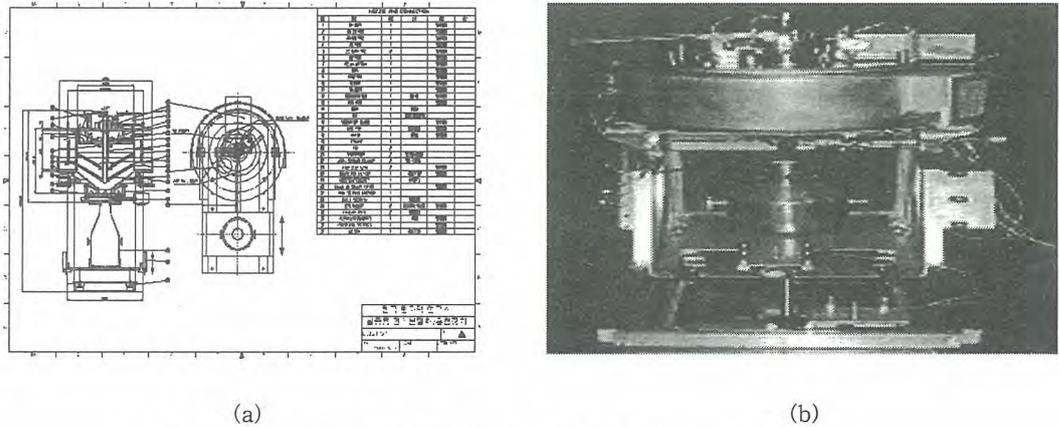


Fig. 3. A design(a) and voloxidizer(b) for demonstration.

## 플라즈마에 의한 핵연료 분말 산화

정인하, 류호진, 김종호, 조광훈, 송기찬, 박장진

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

사용후핵연료를 에너지 자원으로 재활용하기 위하여 PUREX 공정과 같이 U 및 Pu를 분리하여 재활용하는 방법들이 개발되어 왔다. 이와 같은 기존의 처리방식은 습식공정이므로 다량의 폐기물이 발생하게 되며 핵확산저항성에 있어서도 문제점이 있다. 따라서 최근에는 핵확산저항성을 가지고 있으며, 공정 폐기물이 감소되는 건식처리기술을 이용한 사용후핵연료 재활용 기술이 각광을 받고 있다. 건식공정 중에서는 사용후핵연료의 산화-환원을 통하여 분말화한 다음 소결체를 제조하는 기술도 있다. 기존 공정의 경우, 산화 및 환원을 위한 열처리 시간이 길고 추가로 기계적 분쇄가 필요하므로 공정이 복잡하고 처리 시간이 오래 걸리는 등의 문제점이 있어 공정의 개선이 필요하다.

최근 전 세계적으로 플라즈마를 이용하는 재료공정에 대한 연구 및 개발의 비약적 발전이 있었으며, 플라즈마 이용기술은 높은 열 및 화학적 반응성, 공정 단순화 등의 장점 때문에 원자력 산업 분야에서도 각광을 받고 있다. 현재의 플라즈마 응용기술은 유리화, 건조, 식각 등에 이용되는 것이 대부분이나, 본 연구에서는 플라즈마의 높은 화학반응성을 이용하여 핵연료 건식 세가공 처리에 응용하고자 하였다.

UO<sub>2</sub> 분말 혹은 사용후핵연료 등의 산화-환원 등 기존의 열처리방식에 의한 화학반응 공정에 플라즈마를 응용할 경우 별도의 외부 가열장치 없이 화학반응을 유도할 수 있으며, 기존의 방식에 비하여 공정장치가 간단해지고, 유지·보수 횟수가 줄어들며, 공정시간도 크게 감소시킬 수 있는 장점이 있다.

실험에 사용한 분말은 농축도 0.71 wt.%의 ADU분말로 제조한 소결 밀도 95%의 펠렛을 막자로 분쇄한 입도 약 1~2 mm의 파쇄 분말을 사용하였다. 실험방법은 1)Furnace를 이용하는 기존의 UO<sub>2</sub> 분말 산화 모사실험, 2) 반응용기 회전에 의한 기-고 반응면적 증대효과, 3) Stainless steel ball 첨가에 의한 반응성 향상효과 등에 대하여 각각 실험하고, 그 결과를 서로 비교하였다. 실험의 변수는 플라즈마 power, stainless steel ball의 첨가 효과, Ar 및 산소 기체유량 및 반응시간 등을 변화시켰다.

아래의 그림 1은 플라즈마에 의한 분말의 산화 실험장치이며, 그림 2는 내경 약 10cm의 PYREX glass tube 내에 발생된 Ar 플라즈마 및 r.f.에 의해 금속구 사이에 유도된 전기 스파크, 그리고 이로 인하여 발생된 고밀도 플라즈마 사진이다. 전기 스파크는 분말의 분쇄효율을 40~100 배 정도 증가시키는 것으로 알려져 있다.

그림 3, 4 및 5에 각각의 실험조건에서 관찰한 분말의 사진을 나타내었다. 실험한 범위 내에서 플라즈마 power가 높을수록 분말화 속도가 빠른 것으로 관찰되었다. 이는 높은 플라즈마 power에서 보다 많은 양의 산소 이온이 생성되고 반응기 내부의 온도도 함께 상승하기 때문인 것으로 판단된다. 기존의 실험 결과가 반응온도 700°C 미만까지는 산화 속도가 증대된다는 결과로 판단해 볼 때 보다 power 용량이 큰 장치를 사용한다면 산화속도는 더욱 빨라질 것으로 판단된다. 또, stainless steel ball을 첨가함으로써 분말화 속도가 매우 빨리 진행될 수 있음을 확인하였다. 첨가한 stainless steel ball의 효과는 다음과 같다고 할 수 있다. 즉, 볼이 분말 표면을 마찰하게 되므로 이미 산화되어 밀도 및 입도가 작아진 분말이 제거되고 이로써, 새로운 반응면이 노출되므로 반응 기체의 접촉이 용이해지며, 볼과 볼의 틈새에서 기체의 체류시간이 증가되므로 산소 이온의 농도가 증가되며, 이 때문에 분말과 산소 이온과의 반응 시간이 증가되는 효과가 생기며, 볼의 크기가 작아서 큰 효과의 기대는 어려우나, ball의 하중에 의한 충격과 회전으로 인한 전단 응력이 가해지는 것으로 판단되며, 금속 재질인 볼은 세라믹 분말에 비하여 열용량 및 열전도도가 크므로

반응중 발생된 열을 흡수하여 반응열로 제공하는 것으로 판단되었다. 실험 조건 500W, Ar 50sccm, O<sub>2</sub> 5sccm, 200Torr, 20rpm의 조건에서 약 2시간 만에 산화분말의 크기는 1 $\mu$ m 미만의 크기를 나타내었다.

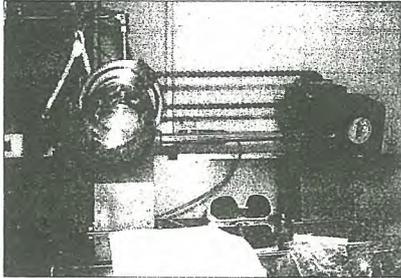


그림 1. 플라즈마 산화-환원 장치



그림 2. 반응기 내부에 생성된 Ar 플라즈마 및 전기스파크



그림 3. Furnace를 이용하는 기존의 UO<sub>2</sub> 분말 산화 모사실험 (500W, Ar 50sccm, O<sub>2</sub> 5sccm, 200Torr, 1hr)

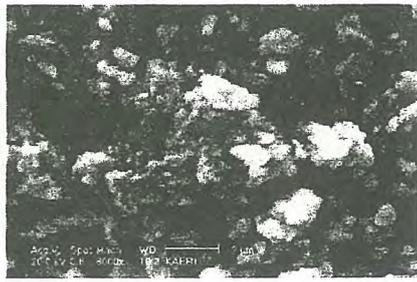


그림 4. 반응용기 회전에 의한 기-고 반응면적 증대 효과 비교실험 (500W, Ar 50sccm, O<sub>2</sub> 5sccm, 200Torr, 20rpm, 2hr)

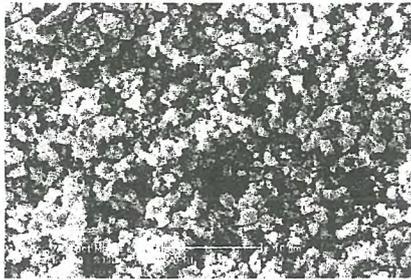


그림 5. Stainless steel ball 첨가에 의한 반응성 향상효과 (500W, Ar 50sccm, O<sub>2</sub> 5sccm, 200Torr, 20rpm, 2hrs)

## 핫셀에서 절단 사용후핵연료봉 이송 및 장전 방안에 관한 연구

홍동희, 진계현, 정계후, 김영환, 윤지섭, 정기정  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

### 1. 절단 사용후핵연료봉의 이송 및 취급방안 도출

본 연구는 사용후핵연료 차세대관리공정을 수행하기 위하여 조사후 시험시설에서 사용후핵연료 집합체에서 연료봉을 인출한 후에 25cm 간격으로 절단하여 공정을 수행 할 조사제시험시설 지하에 위치한 핫셀의 Slitting장치로 이송하여야 한다. Slitting 장치에서는 사용후핵연료봉을 탈피복하기 위하여 이송용 Capsule로부터 절단 연료봉을 인출하여 장치에 장전하고 Slitting 작업이 완료되면, 절단 연료봉을 장전하여 Slitting하는 작업을 반복하여야 한다. 이러한 공정은 절단 연료봉을 1개씩 이송하고 취급하여야 하는 공정을 반복 하여야 하므로 시간이 많이 소요될 뿐만 아니라 핫셀에 사용후핵연료 분말이 비산될 가능성이 높다. 본 연구에서는 이와 같은 문제점을 개선하기 위하여 절단연료봉의 이송절차, 이송용기, 슬리팅장치 등 공정장치, 핫셀 내부에서의 취급방안 등을 분석하여 다음과 같은 절단연료봉의 이송 및 취급방안을 도출하였다.

- ① Slitting작업의 효율성, 핫셀 내부에서 이송시 분말의 비산방지를 위하여 연료봉을 1개씩 취급하지 않고 여러개를 Capsule에 담아 운반하고 Capsule 자체를 Slitting 장치에 장전한다.
- ② 핫셀에 설치된 매니플레이트의 조작 능력을 감안하여 절단연료봉 이송용 캡슐은 절단연료봉을 포함하여 2 kg 이내로 하고 캡슐의 재질은 충격 및 낙화 등에 대비하여 충분한 강도를 유지하여야 한다.
- ③ Capsule은 핵물질 계량을 위한 NDA장치의 장전을 위하여 길이 300 mm, 지름 50 mm 이내로 한다.
- ④ 캡슐은 이송 중 절단 연료봉이 외부로 이탈되는 것을 방지하기 위하여 Cap으로 단아야 하며, Cap은 매니플레이트를 이용하여 조작이 용이하여야 한다.
- ⑤ 핫셀 및 설치하는 슬리팅장치의 높이, 핫셀에 설치되는 매니플레이트의 조작능력 등을 분석한 결과 절단연료봉의 Slitting장치에 장전은 Capsule의 측면을 절개하여 이루어져야 한다.
- ⑥ 캡슐은 절단연료봉을 분리된 셀에 각 1개씩 꽂아 Capsule이 회전할 때마다 연료봉이 1개씩 Slitting 장치의 연료봉 가이드로 자동 투입되어야 한다.
- ⑦ 절단연료봉의 효과적인 Slitting장치의 장전을 위하여 절단 연료봉 1개를 Slitting장치에 장전한 후에는 이송용 캡슐을 장치에서 분리 하여야 하므로 캡슐을 장착하고 분리하는 캡슐장전 및 이송용 안착대를 제작하여 Slitting장치에 부착하여야 한다.

### 2. 장치의 설계/제작 및 시험

절단 연료봉 이송 및 취급방안 분석에서 도출한 여러 요건을 반영한 시험용 장치는 절단 연료봉을 수집하여 운반하는 Capsule 및 Capsule을 Slitting 장치에 안착시키는 안착대의 2개 Part로 구성하여 그림 1과 같이 설계하여 제작하였으며, Capsule의 내부는 5개의 분리된 셀로 구성하여 절단연료봉 5개를 장전하여 Capsule이 60도 회전하면 1개의 절단연료봉이 하부의 연료봉 주입구로 장전 될 수 있도록 설계 하였다. 또한 핫셀이 협소하기 때문에 매니플레이트를 이용하여 capsule 및 안착대를 조작 할 경우 조작성이 좋아야 하며, Slitting장치 자체의 높이를 고려하여야 하기 때문에 사용후핵연료 절단연료봉의 장전은 그림에서 보는바와 같이 Capsule의 측면을 절개하여 장전하여야 한다. 이때 절단연료봉의 절단부위를 통하여 펠릿이나 분말이 핫셀로 비산되지 않고 Slitting 장치의 주입구로 들어 갈 수 있도록 Capsule의 연료봉 출구와 장치의 연료봉 입구가 일치 하도록 설계하였다. 연료봉의 장전 원리는 절단연료봉 5개가 장전된 Capsule을 캡슐 안착대에 장전한 후에 매니플레이트로 안착대를 밀어주면 Capsule이 슬리팅 장치의 절단연료봉 주입

구에 접촉되고, 매니플레이트로 Capsule을 시계의 회전방향으로 60도 돌려주면 봉 1개가 Slitting 장치에 장전된다. 장전이 완료되면 Slitting 장치와의 마찰을 피하기 위하여 매니플레이트로 안착대를 밀어서 장치와 분리 시킨 후에 장전된 절단 연료봉이 Slitting되어 사용후핵연료 펠릿과 Hull로 분리된다. 본 연구에서는 핫셀에서의 실증시험 수행시의 안전성을 위하여 그림 1과 같은 시험용 사용후핵연료 절단연료봉 장전 Capsule, 안착대 등을 제작하여 절단 연료봉의 이송/장전 시험을 반복하여 수행한 결과 연료봉 5개(1 Capsule)의 이송/장전 시간은 연료봉 하나씩 취급할 경우에 비하여 대폭 단축되었으나, Capsule에 절단연료봉 5개를 담았을 때의 무게가 약 4 kg으로 매니플레이트로 이송 및 취급하기가 무거웠고, 잡을 수 있는 손잡이가 없어 취급이 용이하지 않았으며, Capsule이 완전히 밀폐되지 않아 이송 중에 절단연료봉이 외부로 이탈 할 가능성이 있었다. 그러나 capsule로 절단 연료봉을 이송하고 취급하므로 작업자의 부주의로 인한 연료봉의 낙하사고와 사용후핵연료 펠릿 조각의 비산은 없었다. 시험 결과 발견된 문제점 및 모의 장치 설계 자료는 실증용 절단연료봉 운반 및 취급 용기설계에 반영하여 핫셀에서 공정장치 성능시험 수행 중에 검증할 예정이다.

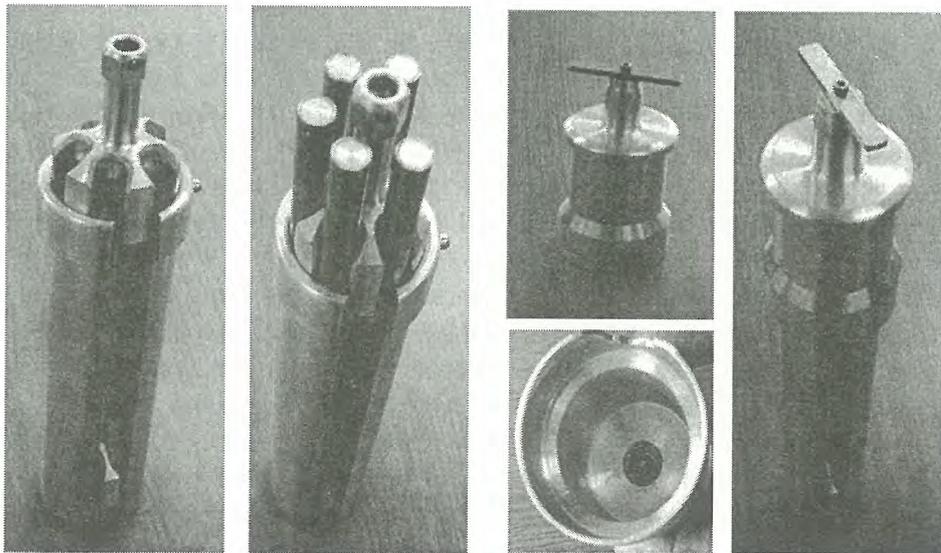


그림 1. 사용후핵연료 절단연료봉 이송용 capsule

### 3. 결론

본 연구에서 개발한 절단연료봉이송/취급용 capsule은 핫셀에 고방사성물질인 사용후핵연료 분말을 비산하지 않고 절단연료봉을 안전하게 이송하는 방안을 도출하여 실험용 장전장치를 제작하고 성능 시험을 수행하여 타당성과 안전성을 검증하였다. 시험결과 1 Capsule(절단연료봉 5개)의 장전에 소요되는 시간은 절단연료봉을 1개씩 취급하여 5번 장전하는 경우에 비하여 단축 되었으며, capsule이 밀폐된 상태에서 절단 연료봉을 취급하므로 작업자의 부주의로 인한 연료봉의 낙하사고 및 사용후핵연료 펠릿 조각 등 분말의 비산 문제를 원천적으로 해결하였다. 이러한 연구결과는 대형 핫셀에 설치되는 성능이 우수한 매니플레이트를 이용 할 경우 1 Capsule에 장전하는 사용후핵연료의 절단연료봉의 숫자를 늘릴 수 있어(10 개이상) 공정에 소요되는 시간을 많이 단축 할 수 있고, 고방사성 핵물질인 사용후핵연료 절단연료봉의 이송 및 취급에 대한 신뢰성을 높일 수 있다. 향후 대형 핫셀 등 사용후핵연료를 이용하기 위한 공정에서 본 연구 결과를 보완하여 활용 할 경우 사용후핵연료 절단연료봉을 이송, 장전 및 취급공정을 자동화 하여 공정의 효율성을 높이고 안전성을 향상시킬 수 있다.

## 사용후핵연료 차세대관리공정 유지보수용 서보조작기 제작 : BTSM-2

박병석, 진재현, 이종광, 고병승, 윤지섭  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

한국원자력연구소에서 개발하고 있는 사용후핵연료 차세대관리공정(Advanced Spent Fuel Conditioning Process, ACP)은 고방사선 환경의 핫셀(Hot cell)에서 원격조작에 의해 이루어진다. 따라서, ACP 핫셀에는 일반적인 핫셀 처럼 원격조작 장비인 벽 부착형 원격 조종기 및 1톤 크레인 이 설치된다. 그러나, ACP 공정은 핫셀 크기에 비해 공정장치의 규모가 크고, 장치간의 간격이 협소한 특수 환경 때문에 장치가 원격 조종기의 물리적인 작업공간 내에 있다라도 장치의 상부 및 후면에 대한 운전/유지보수 작업에는 어려움이 따르고, 일부는 불가능하다. 따라서, ACP의 성공적인 운전 및 유지보수를 위해서는 핫셀 내에서 공간적인 제약 없이 자유롭게 이동할 수 있는 장비가 필요하게 된다. 본 연구에서는 이의 장비로서 천정이동 서보조작기(Bridge Transported Servomanipulator, BTSM)를 개발하고 있다. 이를 위해 차세대관리공정의 핫셀 및 장치 크기, 공정장치의 배치, 운전 기간, 환경 조건(방사선, 온도, 및 습도 등) 및 작업내용 등을 분석하여 차세대관리공정의 원격 유지보수 작업용 천정이동 서보조작기의 성능 요건을 도출하였으며, 1차적으로 2003년도에 이의 시제품(BTSM-1)을 개발하였다. 2004년도에는 기 제작한 시제품을 개선한 실증용 천정이동 서보조작기(BTSM-2)를 그림 1에서 보는 바와 같이 제작 하였으며, 현재 성능시험 중에 있다. 성능 시험 완료 후 2006년도 6월에는 그림 2에서 보는 바와 같이 ACP 핫셀에 설치할 예정이다. 이는 사람 팔과 유사한 슬레이브 조작기, 이를 이동시키는 이송장치, 슬레이브 조작기를 움직이는 같은 구조의 마스터 조작기 및 이들을 제어하는 제어반으로 구성되어 있다. 작업자가 모니터를 보면서 마스터 조작기를 움직이면 슬레이브 조작기는 같은 동작으로 움직인다. 특히, 슬레이브 조작기가 작업 대상물과 접촉을 하면 작업자는 이의 접촉력을 마스터 조작기를 통해서 느낄 수 있게 하는 힘반영 기능을 적용함으로써, 작업자는 마치 자신의 팔로 직접 작업하는 것처럼 느낄 수 있어 작업을 쉽게 할 수 있다. 슬레이브 조작기 이송장치와 슬레이브 조작기는 핫셀에 설치되기 때문에 이 장치에 대한 유지보수를 고려하여 모터 모듈 등과 같은 중요부를 모듈화 하였으며, 슬레이브 조작기 이송장치의 비상대책으로는 수동 방식으로 유지보수 셀로 이동시킬 수 있도록 설계,제작 하였다. 슬레이브 조작기는 연속적으로 15 kgf의 취급하중을 갖는다. 7개의 모터 모듈은 기계식 원격 조종기를 사용하여 원격으로 유지보수 할 수 있도록 모듈화 하였으며, 슬레이브 조작기 자체도 원격 조종기로 이송장치의 텔리스코프로부터 탈부착 할 수 있게 하였다. 마스터 조작기는 핫셀 운전 지역의 벽에 고정시키도록 하였으며, 작업자는 제어반에 구성되는 카메라 시각반을 통해서 핫셀 내부의 4대의 카메라(BTSM-2의 거더에 2개, 1톤 크레인에 1개, 벽에 1개)로부터 전송되는 화상을 보면서 이를 조작하게 된다. 핫셀 내부에 설치되는 카메라, 커넥터는 내방사선 제품을 사용하였으며, 전기 케이블은 내방사선용으로 설계,제작 하였다. BTSM-2는 핫셀에 실제 사용될 예정이므로 BTSM-1에 비해 차세대관리공정의 성능요건, 작업자 편의성, 강도, 유지보수성, 내방사선 등을 좀더 고려하여 설계,제작하였다. 이는 1년간의 차세대관리공정 공정장치 및 유틸리티의 유지보수 시험을 거친 후 핫셀 운전시 사용할 예정이다. BTSM-2는 비좁은 차세대관리공정의 핫셀에서 원격 조종기의 접근이 어렵거나 불가능한 지역의 유지보수에 크게 활용될 것으로 기대된다

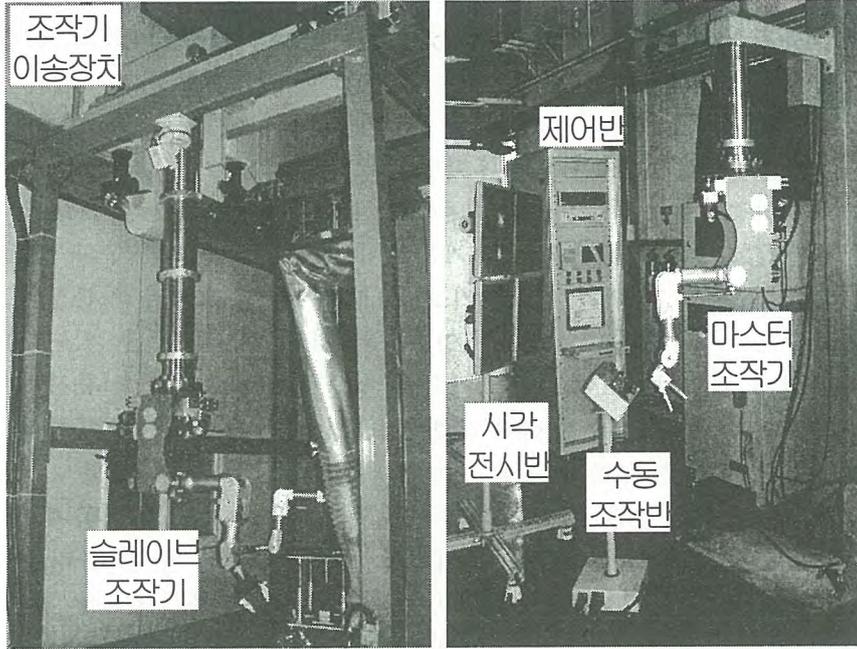


그림 1. Mockup에서 성능시험 중인 BTSM-2.

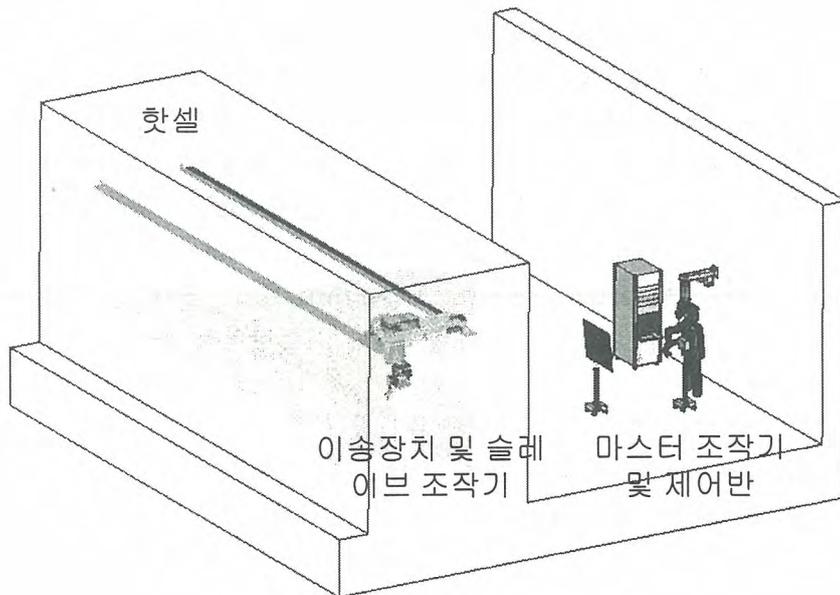


그림 2. ACP 핫셀에 설치될 BTSM-2 시스템 모습.

## 차세대관리 종합공정 실증시험을 위한 핫셀 시설

정원명, 유길성, 구정희, 조일제, 국동학, 권기찬, 이원경, 이은표, 정기정

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 연구개발에 착수하였으며, 현재 기초 공정연구가 완료되어 실증시험 수행을 위한 상세계획이 확정되었다. 그러나 개발된 공정의 실증시험을 수행하기 위해서는 공정 규모 및 특성을 고려한 핫셀 시설의 확보가 선행되어야 한다.

차세대관리 종합공정 실증을 위한 핫셀 및 부대설비의 확보를 위하여 한국원자력연구소 조사재시험시설의 지하층에 위치한 예비 핫셀을 차세대관리 종합공정 실증시험에 맞도록 개조하여 차세대관리 종합공정 실증시험 요건을 만족하도록 핫셀의 구조물 및 부대설비와 시험장치의 설치를 완료하였으며, 2005년 하반기에는 cold test를 거쳐 natural uranium을 사용 차세대관리 종합공정 inactive test를 수행할 예정이다.

핫셀 구조물은 기존의 구조물(중량콘크리트 70 cm 두께)을 차세대관리 종합공정 실증시설 특성에 부합하는 구조물로 개조하기 위하여 소음과 진동을 최소화할 수 있도록 wire saw를 이용하여 절단, 해체하였으며, 방사선 기준선원의 차폐능(37,000 Ci)을 고려하여 중량콘크리트 90 cm 두께로 핫셀을 개축하였다.

핫셀에 설치된 핫셀장비로는 핫셀 운전을 위한 Radiation shielding windows, MSM(9 kg), In-cell crane(1 ton), Jib crane(1 ton), Crane gate, Inter-cell crane door, Rear doors, Protection screws, Pass-thru door, Storage vaults와 각종 Penetration(배관 및 배선용, Shield plug 등)이 시험장치의 용도와 특성을 고려하여 제작, 설치되었다.

그리고 환기 설비는 필요한 환기용량(급기량 1770 CMH, 배기량 2110 CMH)이 기존 설비 용량에 반영되어 있어 배기 fan은 기존설비를 활용하고 개조되는 핫셀을 위한 급기 및 배기 filter(HEPA)들이 추가 설치되었다.

전기설비는 핫셀장비 및 공정장치 전기부하 자료를 기준으로 460V MCC(20 KVA), 220V MCC(150 KVA), 220V 비상전원(30 A), 120V/220V UPS(50 A)가 설치되었으며, 조명 및 화재감지설비 등이 설치되었다.

공정시험장치로서 Vol-oxidizer, Metalizer, Smelter, Waste molten salt 처리장치, 폐가스처리장치 등이 핫셀 내에 설치되었으며, 압축공기 및 아르곤 가스 공급설비가 핫셀 외부에 설치되었다. 공정시험장치의 제어 및 감시를 위해서 설치된

계측제어장치로서 고온에서 시험하는 공정장치 특성상 온도제어를 위한 heater 전원제어를 위한 SCR unit들이 각 시험장치가 핫셀 전면에 설치되었다. 또한 instruments는 핫셀 내에 설치되는 field instruments와 핫셀 전면에 설치되는 operating console 및 board instruments(console에 설치)로 구분 설치되어 이중 제어시스템으로 구성되어 공정시스템의 안정성을 확보하였으며, 각 공정장치의 요건 및 특성을 고려하여 Instruments의 측정모드와 범위를 결정하고 운전 및 유지, 보수 특성을 고려하여 이에 적합한 모델을 선정하고, operating console의 board Instruments가 최적의 배치 구조를 갖도록 제작, 설치하였다.

그리고 차세대관리 종합공정 실증시설은 고준위 방사능물질을 취급하므로, 시설 주변의 방사능을 항상 감시하여 실험자들과 주변 환경에 대한 방사선 안전성을 확보하기 위하여 방사능감시시스템(RMS)을 구성, 설치하였으며, RMS 시스템은 Area Monitor(구역별 선량을 측정), Hot Cell Door Monitor(핫셀 내 방사선 준위 측정), Room Air Monitor(구역별 방사성 입자 및 옥소의 방사능 측정), Duct Monitor(배기체의 선량을 측정), Iodine Monitor(배기체 옥소기체 선량을 측정), CCTV(시설운영상태 확인) 및 시스템 운영을 위한 Server 등으로 구성되었다.

## 차세대관리 종합공정 실증시설 핫셀의 Intercell Crane Door 설계

이은표, 유길성, 정원명, 구정희, 조일제, 국동학, 권기찬, 이원경, 주준식, 정기정  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

사용후핵연료 차세대관리 종합공정은 사용후핵연료를 안전하고 효율적으로 관리하기 위한 공정으로 이 공정을 이용하여 사용후핵연료를 금속으로 전환하고 고발열성 핵종(Cs, Sr)을 효율적으로 제거할 경우 사용후핵연료의 부피, 발열량 및 방사선의 세기를 최대 1/4까지 감소시키고, 처분 용기의 소요량과 처분장의 소요면적을 1/2 이상으로 축소함으로써 처분 안정성과 경제성을 높일 수 있다. 현재 원자력연구소에서는 차세대관리 종합공정에 대한 기초연구를 완료하고 실증시험을 위한 구체적인 계획을 수립하였으며, 실증시험을 수행하기 위한 핫셀 확보를 위하여 기존 조사재 시험시설 예비핫셀을 개조하기 위한 설계를 완료하였으며 현재 개조공사가 완료시점에 있다. 실증 시설은 실증시험 셀과 유지보수 셀의 2개의 중 콘크리트 핫셀로 구성된다. 그 중 하나인 실증시험 셀에는 금속전환체를 제조하기 위한 공정장비들과 금속전환체 및 폐용융염을 저장하기 위한 Storage vault 그리고 배기체 필터뱅크 등이 위치하고 있으며, 유지보수 셀은 공정장비 및 핫셀 크레인 등을 유지보수하고 금속전환체 및 폐용융염을 저장하기 위한 Storage vault 그리고 배기체 필터뱅크 등이 위치한다. Intercell crane door는 핫셀 간의 분리벽에 위치한 도어로서 원격 조작기 및 핫셀 내의 크레인으로 인양한 대형장비와 금속전환체 등을 이 두 핫셀 간에 이동시키기 위한 상부가 열린 개구부와 이 개구부를 열고 닫을 수 있는 슬라이딩 납 차폐문 등으로 구성된다. 이 도어의 상부에는 독립적으로 운전되는 핫셀 크레인과 원격 조작기가 이동할 수 있도록 열려 있으며, 핫셀 크레인과 원격 조작기를 사용하지 않을 때는 독립적으로 운전되는 납 차폐 크레인 게이트를 핫셀간 분리벽 상부에 위치시켜 핫셀간의 방사능 차폐가 유지될 수 있도록 하였다. Intercell crane door 개구부의 단면 크기는 원격 조작기 등이 통과할 수 있도록 가로 600mm 높이 1270mm로 하였으며, 모터 구동으로 슬라이딩 납 차폐문을 열고 닫을 때의 작동거리는 645mm이며, 슬라이딩 납 차폐문을 닫았을 경우 대각선 방향으로도 동등한 차폐능을 유지할 수 있도록 개구부의 단면적보다 조금 큰 가로 835mm 높이 1370mm 두께 250mm로 하였으며, 유지보수가 용이하도록 방사선 준위가 상대적으로 낮은 유지보수 핫셀쪽에 놓이게 하였다. 슬라이딩 납 차폐문이 작동하는 영역은 핫셀 간의 중 콘크리트 차폐벽 두께(700mm)에 상응하는 차폐능을 유지하기 위하여 265mm 두께의 중 콘크리트에 100mm 두께의 납 차폐체와 50mm 두께의 스테인리스 강판으로 차폐보강을 하였으며, 10mm 두께의 스테인리스 강판으로 슬라이딩 납 차폐문의 커버를 하였고, 이 커버 강판 외측 상부에는 Pass-thru door의 슬라이딩 납 차폐문을 지탱하기 위한 Rope pulley 기구가 부착되고 하단부 코너에는 열림 리미트 스위치 및 체인을 설치/점검하기 위한 열고 닫을 수 있는 개구부가 있다. 슬라이딩 납 차폐문이 닫히는 부분에도 동일 수준의 차폐능을 유지하기 위한 가로 100mm 폭 100mm 높이 1275mm의 납 차폐 보강체를 슬라이딩 납 차폐문과 중첩되도록 설치하였다. 슬라이딩 납 차폐문은 중하중용 베어링(63계열)을 2개씩 사용한 4개의 단차 바퀴로 지지되며 길이 1455mm 폭 38mm 높이 16mm의 평행한 2개의 사각단면 레일을 따라 작동한다. 레일을 받혀주는 강판은 레일의 변형과 대각선 방향의 차폐능을 고려하여 길이 1700mm 폭 290mm 높이 100mm로 하였다. 이동형 슬라이딩 납 차폐문은 모터와 감속기 및 체인으로 구동되며 구동영역 양단에는 2중의 리미트 스위치를 병렬로 설치하여 안전을 도모하였다.

## ACP 실증시설 개폐형 워킹테이블의 안전성 평가

권기찬, 구정희, 이은표, 정원명, 유길성, 정기정

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

한국원자력연구소에서 건설중인 차세대관리종합공정(ACP) 실증시설은 지하에 건설되는 핫셀이기 때문에 일반 핫셀과는 달리 루프도어(roof door)가 없다. 따라서 모든 물품의 반출입에는 리어도어(rear door)를 이용할 수밖에 없다. 따라서 ACP 실증시설에서는 리어도어의 앞 부분의 워킹테이블을 개폐가 가능한 구조로 설계하여 물품을 반출입할 때에는 워킹 테이블의 일부분을 개방하고, 평상시에는 일반 워킹테이블과 마찬가지로 여러 가지 공정장치 또는 물품을 적재 또는 보관할 수 있도록 설계하여 핫셀 공간의 효율성을 높였다. 핫셀의 설계에 있어서 이러한 효율성과 아울러 중요한 것은 구조적인 안전성이기 때문에 워킹테이블의 실제 운전시의 안전성에 대하여 실증시설의 운전 중에 발생 가능한 최대 하중조건을 고려하여 정적인 구제안전성 평가와 동적인 평가를 함께 수행하여 안전성을 유지함을 입증하였다.

개폐형 워킹테이블은 길이 980 mm, 폭 966 mm이나, 폭을 이등분하여 두 개로 나뉘어 지기 때문에 길이 980 mm, 폭이 483 mm이며, 하단에는 75 x 40 mm의 C형강을 부착하여 테이블의 굽힘강성(bending stiffness)을 높이도록 하였다. 핫셀 내부에서 중량물을 운반할 수 있는 핫셀 크레인은 용량이 1톤으로 최대 취급용량이 1톤이지만 핫셀 내 공정장치 등의 최대 자중이 200 kg 이하인 점을 고려하여 개폐형 워킹 테이블 위에 올려놓을 수 있는 물체의 최대중량을 500 kg으로 고려하였다.

개폐형 워킹 테이블에 대한 안전성 평가는 정적해석과 동적해석의 두 가지로 평가하였는데, 정적해석에서는 범용 구조해석코드인 ABAQUS와 LS-DYNA 코드를 함께 사용하여 해석을 수행하고 그 결과를 비교하였다. 동적해석에서는 동적해석 능력이 뛰어난 LS-DYNA 코드를 사용하였으며, 물체가 크레인의 하역시의 운전 속도인 1~3.5 m/min의 속도로 워킹 테이블에 안착하는 경우에 대하여 충돌-접촉 문제로 가정하여 평가하였다. Fig. 1과 2는 ACP 실증시설 개폐형 워킹테이블의 동적해석모델과 해석결과로 얻은 변위분포를 나타내고 있다. 워킹테이블은 150 mm x 75 mm의 C형강 위에 안착되는데, 정적해석과 동적해석 모두 수직방향의 경계조건은 워킹 테이블의 양 끝단의 C형강에 안착되는 부분의 수직방향 변위를 구속하는 것으로 하였다.

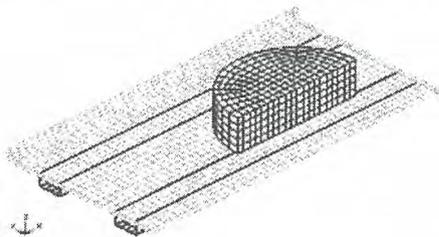


Fig. 1. 개폐형 워킹테이블의 해석모델



Fig. 2. 개폐형 워킹테이블의 변위분포

정적해석 모델은 워킹 테이블과 하단에 부착된 C형강을 1,855개의 절점과 1,856개의 셸요소(shell element)로 모델링한 후 워킹 테이블의 중앙부에 400 mm x 400 mm의 정사각형부에 500 kg의 자중과 등가의 압력하중으로 하중이 작용하는 것으로 가정하였다. 정적해석에서는 워킹 테이블의 자중을 무시한 경우와 자중을 고려한 두 가지 경우에 대하여 해석을 수행하였는데 해석결과 거의 차이가 없었으며, 자중을 고려한 경우에서 수직방향의 최대변위는 0.61 mm이고, 최대응력은 34 MPa로 구조적으로 충분히 안전함을 확인할 수 있었다.

동적해석 모델은 Fig. 1과 같이 하단에 C형강을 부착한 워킹 테이블과 테이블 상단에 안착되는 원통형 물체를 3,781개의 절점과 1,856개의 셸요소(shell element) 및 1,500개의 솔리드요소(solid element)로 모델링한 후, 이 500 kg의 자중을 갖는 원통형 물체가 0.1 m/s의 속도로 워킹테이블에 안착되는 것으로 가정하였다. 동적해석결과 수직방향의 최대변위는 1.45 mm이고, 최대응력은 81 MPa로 정적해석의 경우보다 변위나 응력이 약 두 배 정도로 증가했으나 매우 작은 값으로서 구조적으로 충분히 안전함을 확인할 수 있었다.

동적해석에서 제시한 최대 변위와 응력은 충돌속도를 실제 크레인의 인양 속도인 0.06 m/s의 약 17배의 속도로 충돌시 발생하는 최대값을 나타낸 것이며, 시간이 경과함에 따라 점차 정적해석시의 값에 가까워지므로 충돌속도를 실제 물체의 안착속도로 가정할 경우 정적해석결과에 가까운 값을 얻을 수 있음을 알 수 있다. 이와 같이 정적해석 및 동적해석을 이용한 구조해석을 통하여 ACP 핫셀의 개폐형 워킹테이블이 최대 500 kg의 중량을 갖는 물체의 안착시에도 구조적으로 충분한 안전성을 가짐을 확인할 수 있었다.

## ACP 실증시설 핫셀 리어도어의 구조건전성 평가

구정희, 권기찬, 이은표, 정원명, 유길성, 정기정

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

한국원자력연구소의 차세대관리종합공정(ACP) 실증시설은 공정셀(process cell)과 유지보수셀(maintenance cell) 두 가지로 구성되며, 각 셀에는 한 개씩의 리어도어(rear door)가 설치된다. 이 시설은 지하에 건설되는 핫셀이기 때문에 각각의 셀별로 루프도어(roof door)가 설치된 일반 핫셀과는 달리 루프도어가 없다. 그러므로 실증시설에서의 모든 물품의 반출입에는 리어도어를 이용할 수밖에 없으므로 리어도어의 사용빈도가 그만큼 높을 것으로 예상된다. 따라서 리어도어에 대한 안전성은 차폐 및 밀봉에 대한 안전성뿐만 아니라 구조적 건전성의 유지가 매우 중요하기 때문에 본 연구에서는 유지보수셀의 리어도어를 기준으로 하여 리어도어 및 리어도어와 접속하는 핫셀의 리어도어 프레임 등의 안전성을 평가하였다.

ACP 핫셀의 리어도어는 철재 빔 구조물에 구동용 바퀴와 모터 등을 장착하고 외부의 철판 케이스 내부에 중콘크리트를 타설하여 제작하며, 차폐를 보완하기 위하여 일부분에 납 차폐체를 부착하여 차폐성능을 유지하도록 설계하였다. 리어도어는 높이 2,050 mm, 폭 1,100 mm, 두께가 1,000 mm로서 총 중량이 약 8.5톤에 이른다. 리어도어를 구속하고, 리어도어와 결합하는 프레임은 60 mm 두께의 플랜지와 앵글 구조물 및 이들을 서로 연결하고, 핫셀 벽면의 콘크리트의 거푸집 역할을 하는 철판 구조물로 구성된다.

ACP실증시설 핫셀 리어도어의 구조건전성 평가에서는 동적해석능력이 우수한 구조해석코드인 LS-DYNA 코드를 사용하였으며, 리어도어가 전진하여 리어도어 프레임에 결합되는 경우에 대하여 충돌-접촉 문제로 가정하여 평가하였다. Fig. 1은 리어도어의 유한요소 해석모델을 나타내고 있는데 총 절점 수는 37,362개이며, 7,853개의 셀요소와 31,114개의 솔리드요소로 모델을 구성하였다. 외부의 철재 케이스 등은 셀요소로 모델링하였으며, 내부의 납 차폐체, 두께가 두꺼운 철재 구조물, 그리고 콘크리트 등은 솔리드 요소로 모델링하였다. 핫셀의 벽면은 수평방향으로는 도어 프레임부에서 약 30 cm 떨어진 곳까지 모델에 반영하고 그 끝단은 변위를 구속하여 단단한 벽면에 고정된 것으로 가정하였고, 상하부는 바닥면과 천장에 붙는 벽면을 모두 모델링하고 그 끝단은 각각 바닥과 천장면에 고정된 것으로 가정하였다. 실제 콘크리트 벽면은 중콘크리트 내부에 철근 구조물이 가로와 세로 방향으로 매우 촘촘히 삽입되어 있어 콘크리트 자체의 강성보다 훨씬 높은 강성을 갖지만 본 해석에서는 콘크리트의 강도만을 갖는 것으로 가정하였다.

콘크리트와 철재 케이스는 서로 단단하게 결합된 상태로 가정하였으며, 리어도어의 프레임과의 접촉부시 충격을 흡수하는 고무 가스켓은 철재와 같이 단단한 것으로 가정하여 핫셀 벽면과 리어도어에 미치는 충격력을 매우 보수적인 것으로 가정하였다. 리어도어의 구동속도는 2.0 m/min(0.033 m/s)이나 보수적인 해석을 위하여 실제 구동속도보다 약 3배 빠른 0.1 m/s로 가정하였다.

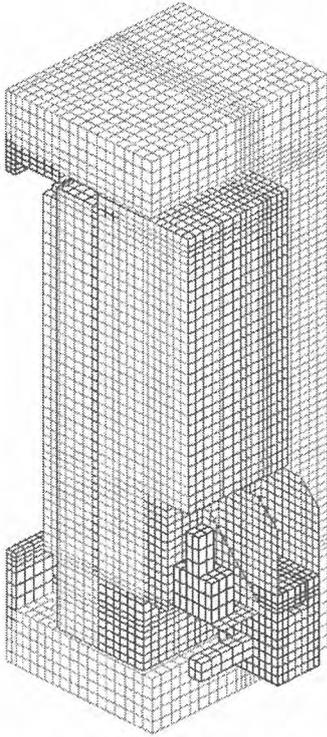


Fig. 1. 리어도어의 해석모델

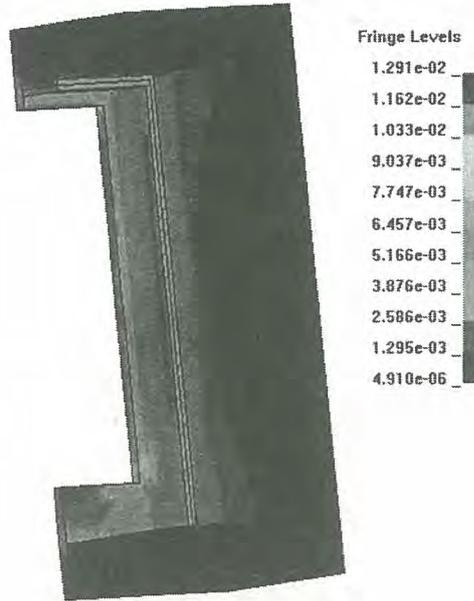


Fig. 2. 리어도어 프레임의 응력분포

해석결과 충돌이 발생할 때 프레임의 최대 변위는 0.10 mm로 거의 변위가 발생하지 않음을 알 수 있었다. 그리고 도어에 발생하는 최대 응력은 54 MPa이고, 도어의 철재 프레임에 발생하는 최대응력은 Fig. 2의 응력분포에서와 같이 13 MPa로서 구조적으로 충분히 안전함을 확인할 수 있었다.

## ACP 핫셀의 안전을 위한 RMS 구성

국동학, 정원명, 구정희, 조일제, 이은표, 이원경, 권기찬, 유길성, 정기정  
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

현재 원자력연구소에서 추진중인 사용후핵연료 차세대관리 종합공정은 사용후핵연료의 안전하고 효율적인 관리를 위하여 제시된 건식처리공정으로 기존의 이산화우라늄 형태의 핵연료를 금속으로 전환시켜 저장시의 부피, 발열량 및 방사선의 세기를 감소시킴으로써 최종적으로는 처분용기의 소요량과 처분장의 소요 면적을 축소시키는 목적으로 추진중에 있다.

전체 공정 중 이산화우라늄을 금속으로 전환시키는 공정이 가장 핵심공정이며 방사성 물질인 사용후핵연료를 취급하는 관계로 이 과정은 반드시 핫셀내에서 이루어져야 하므로 이의 실증을 위해서는 새로운 핫셀의 건설이 불가피하다. 또한 사용후핵연료를 취급하게 되는 핫셀 내부와 시설의 운영을 위한 운전구역 및 서비스구역에는 공정운영 중 발생하는 방사선에 대한 안전성을 확보하기 위해 방사선안전관리시스템(RMS)을 반드시 설치하여야 하며 본 공정에서 취급하게 될 방사능의 평가와 방사선안전관리 규제치를 바탕으로 핫셀에 필요한 시스템의 사양을 도출하였다.

본 공정의 핫셀은 조사재시험시설(IMEF)의 지하에 설치되며 Process Cell과 Maintenance Cell 두 개의 셀로 구성된다. 아래 그림1에서 보는 바와 같이 각 핫셀 내부에는 Rear Door 개방 판단 여부를 기준이 될 Hotcell Door Monitor가 설치되며 핫셀을 중심으로 운전구역과 서비스구역에 공간선량을 측정할 Area Monitor와 공기중 입자와 요오드의 오염도를 측정할 Room Air Monitor가 각각 설치된다. 또한 본 공정 자체에서 발생하여 배기덕트로 빠져나가는 방사능량을 측정하기 위하여 Duct Monitor와 함께 Iodine Monitor를 설치하여 본 공정의 운영으로 인한 발생량만 별도로 측정할 수 있다. 아울러 작업자들의 동선과 공정의 장치들이 동작하고 있는 상황을 쉽게 파악할 수 있는 위치에 폐쇄회로화면을 설치하여 시설 운영에 대한 안전성을 높이게 된다. 위의 개념설계를 바탕으로 공정 운영 상황에 맞는 방사선 측정 범위를 결정하고 그에 따른 장비를 선정하였으며 이와 같은 방사선안전관리시스템을 통하여 전체 공정의 원활한 진행을 위한 안전성 확보를 얻을 수 있다.

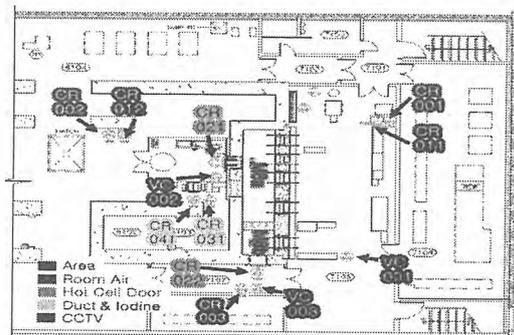


그림 1 IMEF 지하의 평면도 및 RMS 장비 설치 위치도

## A Preliminary Study on the Simulation of a Spent Oxide Fuel Metalization Process

Yun-Hee Lee, Hee-Sung Shin, Ji-Woon Jang, Ho-Dong Kim, and Ki-Jung Jung

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

### 1. Introduction

A computer code simulating a metalization process of spent fuels is very useful from various aspects. There is the GC code[1] which is a computer code simulating such a situation but it is not available because its source has been unpublished. So it is necessary to develop a computer code that can simulate a metalization process of spent oxide fuels and finally, generate a database with information on the process.

In this study, we establish an algorithm through analyzing the properties of a metalization process of spent oxide fuels and develop a computer code to construct a database which provides overall information on the process. We also apply the code to the first batch.

### 2. Properties Analysis of the Metalization Process

The metalization technique is a method to reduce spent oxide fuels into metals and recover them. The method consists of four important sub-processes which are the reduction, electrorefining, transuranium extraction(TRUX), and salt recovery processes. In the reduction process, actinide and noble metal(NM) oxides are reduced into their corresponding metal in Li-LiCl molten salt at 650 °C. Fission products(FP) and rare earth(RE) oxides are transformed into chlorides or mixed oxides. In the electrorefining process, the reduced actinide elements are transformed to trichlorides such as  $UCl_3$  through reactions with  $FeCl_2$ . The remaining RE oxides react with  $UCl_3$ , which are then transformed to trichlorides, producing pure U and  $UO_2$ . In the TRUX process, pure actinides and RE elements are reduced from the trichlorides in a Cd-Li mixture. The salt recovery process transforms  $Li_2O$  to Li by a reaction with carbon.

### 3. Algorithm

The computer code has been developed based on PV-WAVE programming language. The code has composition elements of the spent oxide fuels, their initial quantities, free energies, and chemical reaction equations as input variables. After checking whether the chemical reactions occur with the standard reaction free energy,  $\Delta G_r^* = \sum n \Delta G_f^*(product) - \sum n \Delta G_f^*(reactant)$ , where  $\Delta G_f^*$  is a standard production free energy and n is a coefficient of each compound, the products or the remaining reactants and their quantities are determined. A database containing information on the process is finally generated.

The computer code is composed of four main modules, simulating the sub-processes which were explained earlier, and several other modules which handle the separation, delivery, and storage of the products and the remaining reactants. The four main modules generate the above chemical reactions, then carry out the following evaluations. The reduction module calculates 97.7 % of the quantities of the chlorides and mixed oxides, which are transferred to the electrorefining module along with the reduced metals. The remainder are transferred to the salt recovery module. The electrorefining module recovers the reduced NMs and calculates the

trichloride quantities and 98 % of the produced U quantities. The TRUX module evaluates the quantities of the pure actinides and the remainder. The CAT PROC module recovers only the U among the U, Li, and LiCl calculated from the TRUX module, and stores the Li and LiCl. The DIST CDLI module recovers the pure actinides transferred from the TURX module and stores the Cd and Li. The salt recovery module calculates 95 % of the Li quantities among the Li<sub>2</sub>O obtained from the reduction module. The SP LI module stores the metalized Li along with the Eu and LiCl. The ZE SP module rejects 1 % of the quantities of the remaining elements in the salt recovery module, and then saves the remainder.

#### 4. Comparison Analysis of the Results and the Database Construction

We have compared the results of our developed code with the previous code executed on the basis of the first batch. Table 1 shows only a few important products and their quantities, which are computed for some modules. Our results are almost the same as those of the previous code within the calculation error.

Table 1. The results of the developed code and the previous code.

Oxides	Initial Quantities	Reduction		TRUX and Salt recovery	
		Ref.[1]	This study	Ref.[1]	This study
UO <sub>2</sub>	70.749	U : 70.749	U : 70.749	U : 69.989	U : 69.987
Li	350.0	Li (52.368,1.244) Li <sub>2</sub> O(144.63,3.436)	Li (52.368,1.244) Li <sub>2</sub> O(144.63,3.436)	Li : 297.97	Li : 297.97
LiCl	4500.0	(4394.3,104.37)	(4394.3,104.37)	0.651	0.651

The database produced as a result of executing our code, consists of many entries such as spent fuel elements, their initial quantities, free energies, and the products yielded from each module. This database will provide input data for the next stage of our simulation code.

#### 5. Conclusions

We have developed a computer code to construct a database containing information associated with a metalization process of spent oxide fuels. As a result of the application of our developed code based on the first batch, it has shown that this code is reliable. It is possible to improve this code for a more detailed process than in this paper. We will further study the development of a computer code that could be applied to several batches based on this database.

#### REFERENCE

- [1] RAhluwalia, and H.Geyer, The GC Computer Code for Flow Sheet Simulation of Pyrochemical Processing of Spent Nuclear Fuels, Nuclear Technology, v116, p.180-195(1996).

## Development of Safeguards System for Advanced Spent Fuel Conditioning Process

Tae-Hoon Lee, Dae-Yong Song, Won-Il Ko, Ho-Dong Kim, Ki-Jeong Jeong, and Seong-Won Park

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

[typhoon@kaeri.re.kr](mailto:typhoon@kaeri.re.kr)

### Abstract

Advanced Spent Fuel Conditioning Process (ACP) is a pyrochemical process in which the spent fuel of PWR is transformed into the uranic metal ingot. Through this process, which has been developed in KAERI since 1998, the radioactivity, the radiotoxicity, the heat and the volume of the PWR spent fuel are reduced by a quarter of the original. To demonstrate a lab-scale process and extract the data for the later pilot-scale process, a demonstration facility of ACP (ACPF) is under construction and the lab-scale demonstration is slated for 2006. To establish the safeguardability of ACPF, a safeguards system including a neutron counter based on non-destructive assay, which is named as ACP Safeguards Neutron Counter (ASNC), the ACP Safeguards Surveillance System (ASSS) which consists of two neutron monitors and five IAEA cameras, and Laser Induced Breakdown System (LIBS) have been developed and are ready to be installed at ACPF. The target materials of ACP to assay with ASNC are categorized into three types among which the first is the uranic metal ingot, the second is the salt waste and the last is  $UO_2$  and  $U_3O_8$  powders, rod cuts and hulls. The Pu content of process nuclear materials can be accounted with ASNC. The ASSS is integrated in the ACP Intelligent Surveillance Software (AISS) in which the IAEA camera images and background signals at the rear doors of ACPF are displayed. The composition of special nuclear materials of ACP can be measured with LIBS which can be a supporting measurement tool for ASNC. The conceptual picture of safeguards system of ACPF is shown in Fig. 1.

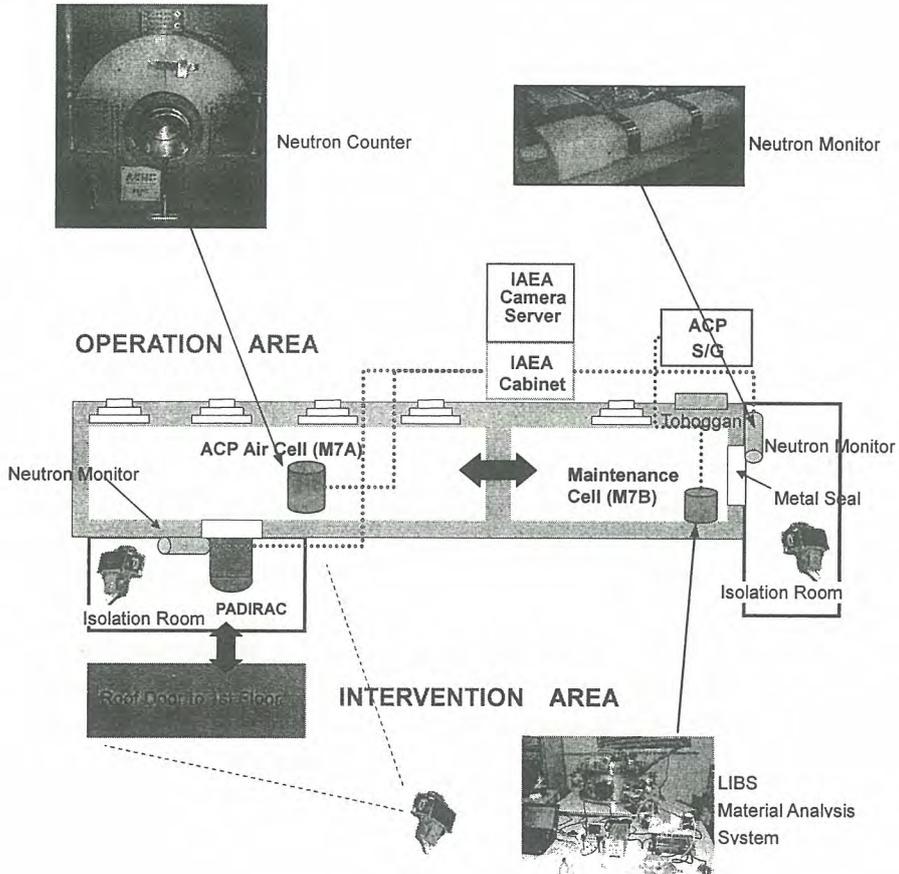


Fig. 1. Safeguards system of ACPF including one neutron counter (ASNC), two neutron monitors (ASNM), five IAEA cameras and LIBS.

## 감마스캐너 장치의 스펙트럼 측정·분석용 프로그램 개발

장지운, 신희성, 이윤희, 김호동

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

### 1. 서론

감마스캐너 장치는 제작된 새 핵연료봉 내의 U-235가 방출하는 감마선 Peak를 분석하여 핵연료봉 길이방향에 대한 핵연료의 균질성을 입증하는 시스템이다. 본 장치는 실험특성상 핵연료봉 이송장치와 스펙트럼 측정·분석용 MCA(Multi Channel Analyzer)의 제어가 동시에 이루어져야 하고 이러한 요구에 맞는 통합 자동 구동화 프로그램이 필요하다. 특히, MCA 제어의 경우는 제조사에서 제공한 상용소프트웨어가 있지만 실험환경에 특화되지 않은 관계로 활용도가 제한적이다. 따라서 실험특성과 다른 장치와의 연동부분을 고려하다보면 MCA 제어에 대한 프로그램 개발이 필수 불가결하게 된다. 본 연구에서는 감마스캐너 장치의 자동 구동화 프로그램 중의 한 부분으로 스펙트럼 측정·분석용 프로그램을 개발하고 성능평가를 수행하여 차후에 개발하게 될 통합 프로그램에 적용하고자한다.

### 2. 장치구성 및 실험방법

감마스캐너 장치는 핵연료봉 이송장치, 검출기, MCA 및 스펙트럼 측정·분석용 PC로 구성되어 있다. 이송장치는 Servo Motor, 이송대, PLC(Programmable Logic Controller)를 내장한 Control 박스로 구성되어 있다. 핵연료봉 시료의 이송은 Control 박스의 Front Panel 상에 장착된 타이머로서 제어되며, 사용자가 설정한 Delay Time 동안 모터가 정지된 후 Delay Time 이후 모터가 움직이도록 되어 있다. 검출기로부터 들어온 신호는 MCA를 거치고 PCI-GPIB 데이터 수집 카드를 통해 PC로 입력된다. 핵연료봉을 대상으로 하는 감마스캐닝 실험은 다음과 같이 이루어진다. 측정대상 핵연료봉을 이송대에 장착하고 측정위치를 고려한 원점을 설정한다. 핵연료봉 상의 설정된 원점으로부터 길이 방향으로 거리 25 mm씩 이동하면서 총 28 개 지점에서 감마선 스펙트럼 측정이 실시된다. 모터가 다음 이동을 위해 대기하는 설정된 시간은 66초이다. 이는 MCA 측정시간 50초, 대기시간 14초와 25 mm 이동하는데 걸리는 시간은 2초를 포함한 최적화된 시간이다. 한 지점에 대한 측정이 종료되면 스펙트럼 파일이 저장되고 U-235 감마선 Peak Area(ROI : 755 ~ 767 Channel)의 총 계수(Gross Count) 값이 그래프 상에 디스플레이 된다. 총 28 개의 측정이 종료된 후 각 결과들은 Data Sheet 및 Graph Sheet 형태로 저장되고 출력된다.

### 3. 스펙트럼 측정·분석용 프로그램

MCA 제어를 통한 스펙트럼 측정·분석용 프로그램은 Canberra 사의 GENIE2000 Library를 이용하여 Visual C++로 개발하였으며 그림 1에 알고리즘을 도식화하였다. MCA의 하드웨어 컨트롤과 측정 스펙트럼의 데이터 컨트롤을 위해 라이브러리에서 제공하는 Device Access Class 와 MVC Class의 Active-X 개체를 사용하였다. 그림 2에서 보는 바와 같이 메인 윈도우는 MVC Class를 이용한 스펙트럼 윈도우와 파일 리스트를 볼 수 있는 리스트 박스로 구성되어 있고, 스펙트럼 파일로드를 위한 파일 Open 버튼과 스펙트럼 측정을 위한 Data Acquisition 버튼으로 구성하였다. 파일 Open 버튼을 클릭할 경우 기존에 측정한 스펙트럼 파일(확장자가 CNF인 파일)들의 목록을 리스트 박스로 불러오도록 하고 각 파일 리스트를 선택할 경우 선택된 스펙트럼에 대한 정보들이 메인 윈도우에 디스플레이 되도록 설정하였다. Data Acquisition 버튼을 클릭할 경우 미리 셋팅된 측정조건(Acquisition Mode, Start Channel, End Channel, Live Time, File Name)에 따라 MCA 측정을 시작하도록 하였다. 측정이 종료된 후 자동으로 스펙트럼 파일이 저장되고, 결과보고서를 저장 및 출력하도록 하였다. 프로그램에 대한 성능평가는 데이터 컨트롤 테스트와 하

드웨어 컨트롤 테스트로 나누어 실시하였다. 데이터 컨트롤의 경우 기존 스펙트럼 파일의 업로드 및 윈도우 디스플레이 테스트를 수행하였고, 하드웨어 컨트롤의 경우 상이한 측정조건에 따른 MCA의 동작여부 및 실시간 스펙트럼 측정과 디스플레이에 대한 테스트를 수행하였다. 성능평가 결과 각각의 테스트에 대해 기본 조건을 모두 만족하는 프로그램 성능을 보여주었고, 통합프로그램 적용에도 적합함을 보여주었다.

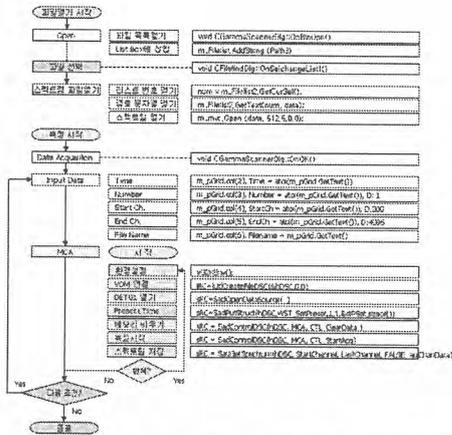


그림 1. 스펙트럼 측정·분석용 프로그램 알고리즘.

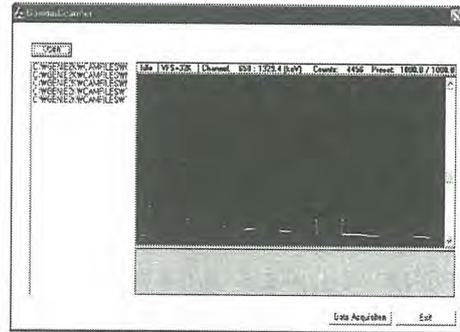


그림 2. 스펙트럼 측정·분석용 프로그램의 메인 윈도우.

#### 4. 결론 및 향후 계획

사용자 편의성을 높이고 특이한 감마선 측정환경에 적합한 스펙트럼 측정·분석용 프로그램을 개발함으로써 감마스캐너 장치를 자동 구동화하기 위한 전산 프로그램 개발의 기반을 마련하였다.

향후, 기존 장비의 모터와 PLC를 교체함으로써 측정정확도 및 작업 효율성을 높이고 이에 적합한 PLC 제어프로그램을 개발하고 스펙트럼 측정·분석용 프로그램과 통합하여 감마스캐너 장치의 자동 구동화 프로그램을 완성할 계획이다.

#### REFERENCE

- [1] Hee Sung Shin, et. al., "Improvement of the Exponential Experiment System for the Automatical and Accurate Measurement of the Exponential Decay Constant", Proceeding of Korea Radioactivity Waste Society Autumn Meeting (2004).
- [2] Chul Gyo Seo, et. al., "Gamma-scanning and Nondestructive Measurement of the Rod Power Distribution for a New HANARO Fuel", KAERI/TR-2273/2002 (2002).
- [3] Canberra Industries, Inc., "Model S560 Geine-2000 Programming Library", S560 user documentation (2001).

## 핵물질 계량 관리를 위한 레이저 분광 원소 분석 장치 특성연구

조운호, 하장호, 이상윤, 이태훈, 고원일, 송대용, 김호동, 정정환

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

현재 개발되어 적용되고 있는 핵물질 계량관리 기술들에는 크게 화학분석법, 비파괴적 측정법, 열량계법 등이 있다. 화학분석법은 공정 물질의 일부를 화학적으로 처리하여 방사성 원소를 제거한 후 ICP-MS, ID-MS 등의 고자 장비를 통해 민감 핵물질을 정량 분석하는 기법으로 가장 정확한 분석법으로 인정되고 있다. 그러나 이 기법은 고 방사선 환경에서는 용매 화학분석을 위한 전처리 과정이 복잡하고 시간이 많이 소요되며 spectrometer가 오염될 가능성이 있는 단점이 있다. 이러한 기존의 핵물질 측정 개념들은 차세대 사용후 핵연료 관리·이용 기술 개발에서의 핵물질 안전 조치에 적용하기에 부적합하며, 이러한 한계점을 극복하기 위해서는 고 방사선, 고온 환경에서 적용 가능하고 측정 장비의 오염이 없으며 화학 분석법 정도의 정확도를 가질 수 있는 측정 기법의 개발이 필요하다. 이러한 요구 조건을 만족시킬 수 있는 새로운 측정 기법으로 레이저 유도 파열 분광(Laser Induced Breakdown Spectroscopy : LIBS)기술이 대안으로 제시되고 있다. LIBS기술은 레이저를 직접 시료에 조사하여 시료가 플라즈마 화한 상태의 스펙트럼을 측정하여 분광분석을 하는 기술로서, 시료의 전처리 단계가 필요 없어 실시간으로 분석이 가능하고, 분석을 위해서는 극소량의 시료만 필요하다. 또한 측정 장비를 간소화 하여 휴대와 이동이 가능한 제품으로 제작이 가능하기 때문에 물질 분석분야에 있어서 새로운 대안으로 떠오르고 있다.

본 실험에서 사용한 LIBS 시스템은 Big Sky 사의 Fiber Optic Launch Adapter available for the Ultra(FOLA) 시스템을 적용한 Ultra CFR series Nd:YAG laser를 사용하였고, 시료고정용 홀더, 수광렌즈, OceanOptics사의 HR2000 series의 Spectrometer 등을 사용하여 시스템을 구성하였다.

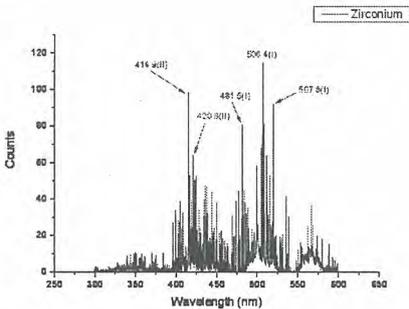


그림 1. Zirconium spectrum

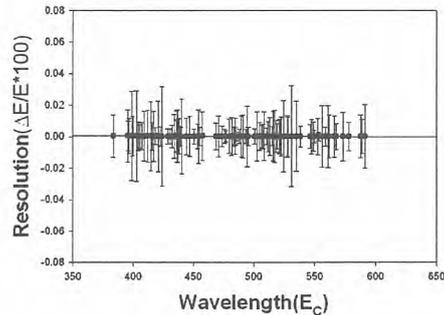


그림 2. Spectrometer의 분해능

그림 2.에 나타나 있는 분해능은 가장 많은 peak가 측정된 zirconium spectrum을 사용하여 분석하였고, 분해능의 오차가 4% 이내인 것을 확인하였다.

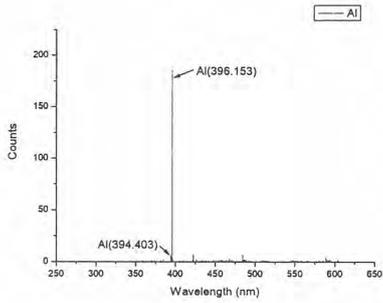


그림 3. Aluminum spectrum

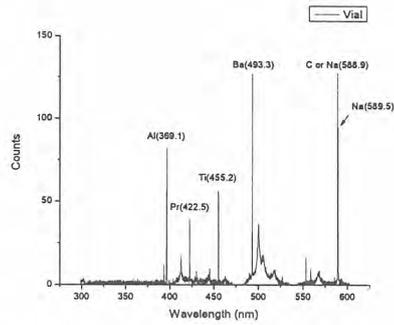


그림 4. Vial spectrum

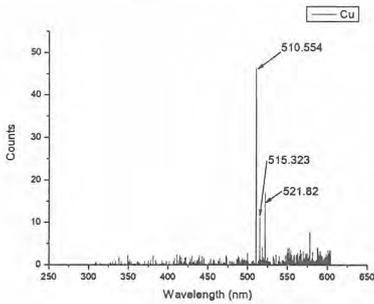


그림 5. Copper spectrum

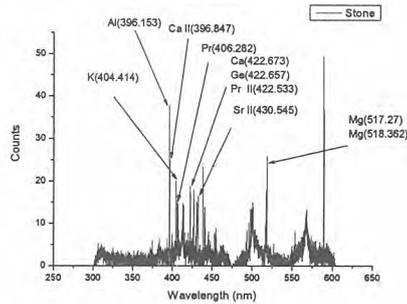


그림 6. 지층굴착 시료 spectrum

그림 3.과 그림 5.에 aluminum과 copper의 spectrum을 나타내었다. Copper 시편의 경우 진공용 부품으로 제작된 순도 99%의 제품을 사용하여 측정하였다. 위 그림에 표시된 대로 각각의 원소에 대한 peak가 정확하게 확인되었고, 이를 National Instituted of Standards and Technology(NIST)의 측정데이터와 비교하여 정확하게 일치하는 것을 확인하였다. 그림 4.는 vial의 유리벽을 LIBS 시스템을 사용하여 측정한 결과이다. 이는 유리의 성분과 거의 일치하는 결과를 보여주고 있다. 그림 6.은 지층을 굴착하여 얻은 시편을 LIBS 시스템을 사용하여 측정한 결과이다. 이 시료에서 측정된 원소들은 우리나라의 토양에서 가장 많이 포함된 성분들과 일치하였다.

\* 본 연구는 과학기술부 원자력증장기 과제의 지원으로 수행되었음.

## 중성자방사화분석을 이용한 사용후핵연료 중 요오드 정량

김정석, 박순달, 이창현, 문종화, 정용삼, 김종구  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

[njskim1@kaeri.re.kr](mailto:njskim1@kaeri.re.kr)

### 요 약

사용후핵연료시료 중에 함유된 요오드(I-127 및 129)를 정량하기 위하여 화학적 방법으로 분리 회수하고 중성자방사화분석법을 이용하였다. 사전실험으로 모의사용후핵연료를 이용하여 회수율을 측정하였다. 모의 및 실제사용후핵연료시료를 90°C에서 8 M HNO<sub>3</sub> 용액으로 용해하고 용해 후 용해용액 중의 잔류 요오드, 응축 및 휘발된 요오드 각각을 정량하였다. 응축 요오드는 핵연료 용해 후 재증류하여 회수하였다. 잔류 및 응축 요오드는 시료의 산화상태를 조절한 후 용매추출로 요오드를 회수한 다음 이온교환 또는 침전법으로 방사화학적으로 분리한 후 중성자방사화분석(RNAA)으로 정량하였다. 제작한 이온교환분리관 및 여과키트에 요오드를 흡착 또는 침전시켜 분리한 다음 중성자조사를 위한 삽입체(Insert)로 이용하였다. 휘발 요오드는 제조한 흡착체(Ag-silica gel)를 담은 흡착관에 포집하고 흡착체를 구간별 균질시료로 만든 다음 비파괴중성자 방사화분석(INAA)으로 정량하였다. 침전 및 흡착 요오드의 화학적 특성을 EPMA(electron probe microanalysis) 분석으로 조사하였다. 요오드 정량결과를 다른 방법으로 비교분석하기 위하여 음이온교환수지상에서 요오드를 정제 및 회수하기 위한 용리거동을 조사하였다.

고연소도사용후핵연료의가열산화와고온가열을통한미세조직변화고찰

김대호, 방제건, 양용식, 송근우, 이형권, 권형문  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

고연소도  $UO_2$  사용후 핵연료의 산화특성 및 사고시 변화예측은 폐기물저장과 관리에 중요한 기술적 역할을 담당하게 된다. 시험에 사용된 국산 경수로용 고연소도 사용후 핵연료 소결체는 연소도가 붕평균 57,000 MWd/MTU.rod 로 핵분열생성물에 의한 산화거동이 일반적인 연소도의 소결체와 다르고, 기타 핵비확산성 재활용 연구시 이용될 수 있는 재가공기술에 있어 가열에 의한 미세조직이 다르게 나타나고 있다. 본 연구에서는 국부연소도 65,000MWd/MTU  $UO_2$  소결체의 Fragment 200mg을 자체 개발된 사용후 연료 가열(PIA) 시험장비를 이용하여 핫셀 내에서 3시간의 산화시험과 연속적으로 1400℃ 까지 가열하여 소결체의 미세구조변화를 관찰하였다. 산화조건은 500℃에서 Helium 50ml, STD-Air 100ml를 혼합하여 50분간의 온도상승과 500℃에서 3시간을 유지하였으며, 연속해서 1400℃의 온도상승과 4시간의 온도유지를 통하여 핵분열기체의 방출거동을 확인하였다. 이때 핵분열기체 Kr-85의 방출을 확인하기 위해 베타 측정기와 감마측정기를 이용하여 그림 1과 같이 온도에 따라 실시간으로 측정 하였다. 고연소도 핵연료 산화시 고연소도에 따라 생성된 핵분열생성물에 의해 안정화된  $U_4O_9$ 의 중간 형태가 화합물을 구성함으로써 산화거동을 지연시키는 현상이 발생하며 미조사  $UO_2$ 와는 산화거동이 다르게 나타난다. 가열시험이 종료된 후 전자주사현미경(SEM)을 이용하여 미세구조의 변화를 관찰하였다. 시편의 무게이득이 대략 3%로  $UO_2$ 의 시료가 대부분  $U_3O_8$ 으로 변화하여 가열에 의한 핵분열생성물이 급격하게 외부로 이동한 결과를 보였다. 관찰결과 그림 2와 같이 부분적으로 표면이 녹아 흐른 흔적이 있으나 이는 환원과정을 통하여 재결정립화가 발생한 것으로 판단된다. 대부분 5 ~ 10 $\mu$ m 정도의 결정립크기를 보였으며 결정립표면이 둥근 타원형의 형상을 하고 있다. 또한, 결정립경계와 표면에 핵분열생성물로 보이는 입자상이 형성되어 있는 것을 확인하였다.

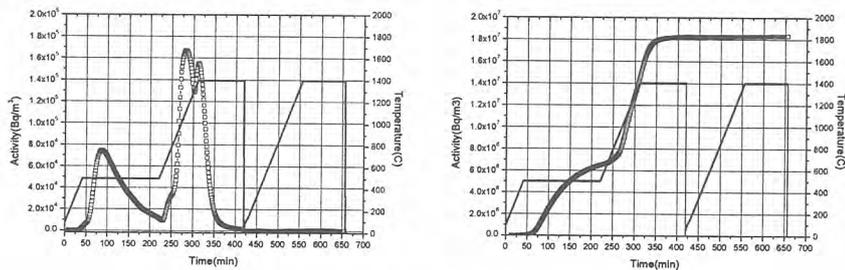


그림 1. 핵분열기체(Kr-85)의 실시간 Beta 측정결과

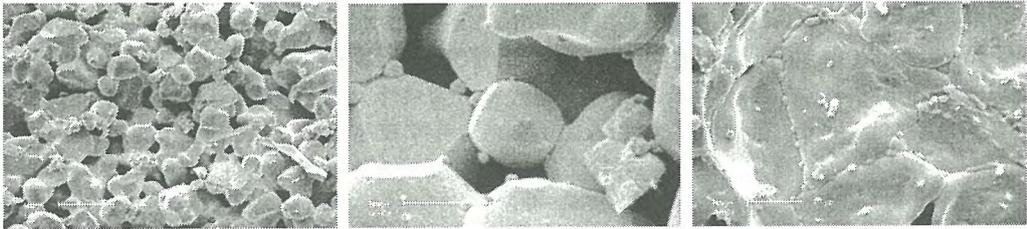


그림 2. 고연소도 핵연료의 산화와 가열을 통한 미세조직(SEM)

## Kinetic Study of the Reduction of Np(VI) by Acetohydroxamic Acid in the Aqueous Solution

Dong-Yong Chung and Eil-Hee Lee

Korea Atomic Energy Research Institute, P.O. Box 105, Yuseong-gu, Daejeon

[ndychung@kaeri.re.kr](mailto:ndychung@kaeri.re.kr)

Irradiated spent nuclear fuel is reprocessed commercially by the Purex process to recover the uranium and plutonium from the radioactive fission products. However, spent nuclear fuel contains minor actinides other than the useful U and Pu. Neptunium is the most prevalent of these minor actinides. In current reprocessing plants Np is generally regarded as an unwanted component and both the Pu and particularly the U products have restrictive specifications for it. Therefore, its effective control in the Purex process is important for the efficient production of purified U and Pu products.

In a nitric acid solution, Np can exist simultaneously in three stable oxidation states, Np(IV), Np(V) and Np(VI) ( $\text{Np}^{4+}$ ,  $\text{NpO}_2^+$ ,  $\text{NpO}_2^{2+}$  ions). Np(V) is almost inextractable, while Np(IV) and Np(VI) can be readily extracted into a TBP/n-alkane solution and this can cause problems in reprocessing, as the Np can pass into more than one product or waste stream in the Purex process. Such a contamination makes a significant contribution to the complexity of the reprocessing plants. Efficient control of Np can also increase the range of products available from the process by allowing the recovery or recycle of Np as a minor actinide.

Formohydroxamic acid(FHA) and acetohydroxamic acid(AHA) are especially suited to the separation of Np(IV) from U(VI) by a selective formation of a hydrophilic complex with Np(IV). U(VI) extraction in to 30%TBP is unaffected. Additionally these hydroxamic acids will reduce Np(VI) to inextractable Np(V), thus allowing for the separation of Np from U. The reduction of Np(VI) by formohydroxamic acid in 2.0 M  $\text{HNO}_3$  has been reported. A rapid reduction, taking less than a few seconds to complete, was demonstrated. The kinetics, as determined by a stopped-flow spectrophotometry, have been shown to be a first order with respect to  $[\text{FHA}]$  and  $[\text{Np(VI)}]$  with a rate constant  $k=1019 \text{ M}^{-1}\text{s}^{-1}$  at  $22^\circ\text{C}$  and  $[\text{HNO}_3]=2.0 \text{ M}$ . However, a rate constant for the reduction kinetics of Np(VI) by AHA has not been reported. This paper will determine the rate constant for the reduction reaction of Np(VI) to Np(V) by AHA. The rate equation for the reduction of Np(VI) to Np(V) in nitric acid aqueous solution have been determined as:

$$-\frac{d[\text{NpO}_2^{2+}]}{dt} = k[\text{NpO}_2^{2+}][\text{AHA}]$$

with  $k=191.2 \pm 11.2 \text{ M}^{-1}\text{s}^{-1}$  at  $25^\circ\text{C}$  and  $[\text{HNO}_3]=1.0 \text{ M}$ .

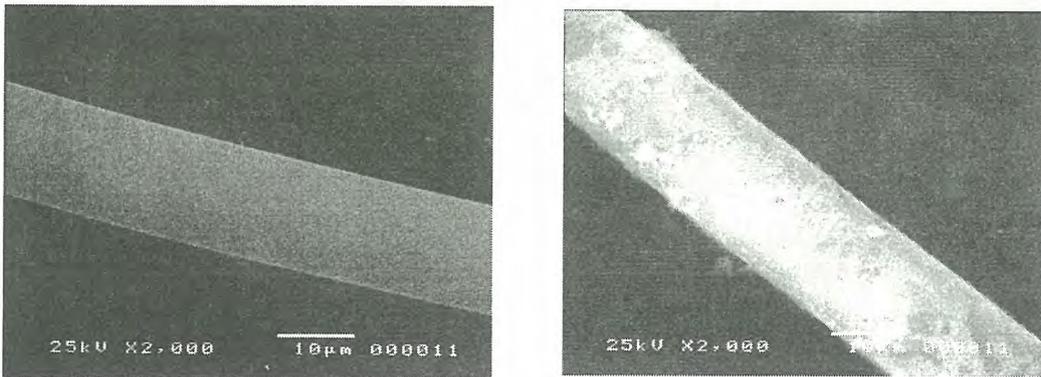
Comparison with other reductants available in the literature, acetohydroxamic acid is a strong agent for  $\text{NpO}_2^{2+}$ .

## ACF를 이용한 Pd 흡착분리 특성

문제권, 한윤주, 이일희, 양한범, 임재관, 정종현  
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

사용후핵연료(Spent Nuclear Fuel, SNF)에는 방사성독성이 강한 핵종뿐만 아니라 백금족 원소인 Pd, Rh, Ru 등 경제적 가치가 큰 유용원소도 다량 포함되어 있다. 이 백금족 원소는 우수한 활용성에 비해 자연 존재량이 적고, 특히 우리나라는 거의 수입에 의존하기 때문에 이들 물질을 SNF로부터 회수하는 방안을 적극적으로 검토해볼 필요가 있다. 아직 SNF에 정부 정책이 확립된 것은 아니지만, 원자력에너지의 비중을 생각할 때 SNF의 환경위해도 완화에 필요한 대책을 수립해야 할 것으로 본다. 이를 위해서는 SNF 내의 주 독성으로 작용하는 소량의 장반감기 핵종을 분리하여 고준위 폐기물 양을 최소화하고, 경제적으로 유용한 금속원소를 분리 활용하는 방안이 고려될 수도 있을 것이다. 따라서 본 연구에서는 질산 매질에 존재하는 Pd, Rh 등의 백금족 원소와 고방사능의 장반감기 핵종인 Tc-99의 혼합물 중에서 Pd를 선택적으로 분리하고자 하였다. 이를 위하여 NaOH로 전 처리한 ACF를 선택적 흡착제로 선정하였으며, 흡착이온 용액은  $\text{Pd}(\text{NO}_3)_2$ 와  $\text{Rh}(\text{NO}_3)_3$  그리고 Tc-99 대신에 화학적 특성이 유사한  $\text{Re}_2\text{O}_3$ 를 질산용액에 용해하여 사용하였다.

Figure 1에는 흡착제로 사용한 ACF를 원래 시료와 1M NaOH로 24시간 처리하고 세정한 후의 ACF를 SEM으로 관찰한 것이다. 처리하기 전에는 ACF의 표면이 아주 매끄럽게 되어 있으나, NaOH로 처리한 경우에는 많은 움푹 모양이 잘 발달된 거친 표면을 나타내고 있다. 또한, 정확히는 알 수 없으나, 흰 분말이 충분히 세정한 후에도 계속 관찰되고 있으며, 아마도 NaOH성분이 표면에 흡착되어 존재하는 것으로 보여진다.



(a)

(b)

Fig.1. SEM of ACF (a) As recived, (b) After treatment with 1M NaOH

Figure 2는 1M NaOH 로 24시간 전처리 한 ACF를 이용하여 0.5M 질산용액에 함유된 Pd, Rh, Re의 3성분계 흡착 등온선을 나타낸 것이다. 그림에서 보는 바와 같이 Pd에 아주 뛰어난 선택성을 나타내고 있으며 다른 성분은 거의 흡착이 이루어지지 않고 있다. Pd의 흡착 등온선은 Langmuir 식으로 잘 표현되었으며, 1.30 meq/g의 흡착 용량과 1,596의 Langmuir 상수를 얻었다. Langmuir 상수는 흡착의 선호도를 나타내는 지표로서 그림에서와 같이 뛰어난 선택성이 있음을 나타낸다. 이 결과로부터 NaOH로 처리한 ACF를 이용하면 3성분으로부터 순수한 Pd의 회수가 가능할 것으로 보인다. 이러한 선택성은 확실하진 않으나, NaOH에 의해 ACF의 표면이 알카리

성으로 변하고 여기에 Pd 이온이 하이드록사이드 형태로 흡착이 이루어지기 때문으로 판단된다.

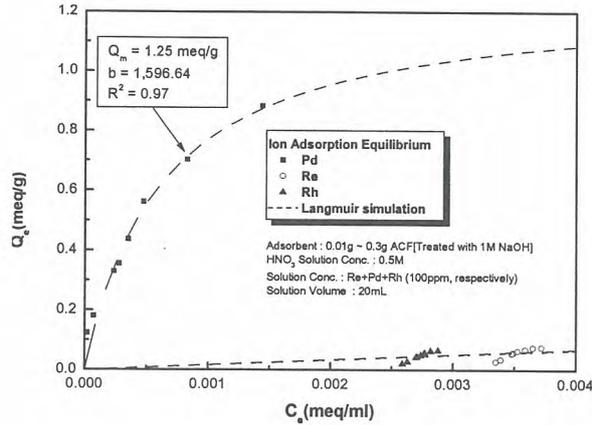


Fig. 2. Multi-Component Isotherms for ACF/Pd-Rh-Re System.

3성분계의 흡착평형 후 흡착제를 건조하여 SEM으로 관찰한 결과를 Fig. 3에 나타내었다. Pd이 ACF 표면에 국부적으로 두껍게 부착되어 있음을 알 수 있다. 이는 ACF 표면이 균일하지 않으며 국부적인 활성점을 가지고 있는 것으로 평가된다.

이상의 결과로부터 NaOH로 처리한 ACF를 사용하여 Pd의 선택적 흡착 특성을 확인하였으며, 회수의 효율성 평가를 확인하기 위해서는 확장된 성분계에서 선택적 흡착 특성을 확인해야 할 것으로 본다.



Fig. 3. SEM of Pd on the ACF Surface

## 다성분계 모의폐액에서 DMBTDMA에 의한 $\text{Ans}^{(+3)}/\text{Lns}^{(+3)}$ 의 공추출 및 역추출 거동

양한범, 임계관, 문계권, 이일희

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

방사성폐기물에 존재하는 악티나이드(minor actinide)와 희토류(rare earth) 원소들은 독성을 가지고 있을 뿐만 아니라 대부분 반감기가 긴 핵종들로서 장기간 방사선을 방출하여 사람이 살아가는데 막대한 영향을 미치므로 안전한 처분 EH는 장수명 핵종을 단수명 핵종 또는 안정핵종으로 바꾸어 주는 핵종변환과 같은 방법을 사용하여 인간 생활환경에 격리시킬 필요가 있다. 이와 같은 과정에서 사용되는 처리기술로서 핵종의 독성 또는 화학적 성질이 유사한 핵종끼리 군(group)으로 분리하여 처리하는 기술이 사용된다. 일반적으로 MA(minor actinide) 원소군, Cs/Sr 원소군, 백금족 원소군, 기타 원소 군으로 나누어 분리하는 것이다. 분리방법으로 여러가지 기술이 사용되고 있는데 이온교환수지를 이용하여 분리하는 방법, 침전분리법, 용매추출법, 전해정제법, 용융염 침출법과 같은 분리방법이 연구되어 왔다. 이들 분리 방법중에서 가장 대표적인 방법으로 용매추출법이라 할 수 있는데, TRUEX, TALSPEAK, Reverse-TALSPEAK, CTH, 그리고 JAERI 공정이 연구개발 되고 있으며 최근에 연구되고 있는 방법으로는 악티늄 및 란타늄 금속의 공추출제로 아미드 화합물을 사용하는 DIAMEX 공정이 개발되고 현재도 계속 연구중에 있으나 기존의 연구개발된 공정보다 뛰어난 연구결과는 발표되어 있지 않은 상태이다. 현재까지 발표된 자료에 의하면 Diamide 추출제는 악티늄과 란타늄 원소를 공추출한 후 picolinamide 계열의 화합물을 사용하여 악티늄 원소만을 쉽게 분리할 수 있다고 알려져 있는데 이러한 연구들은 프랑스를 비롯한 외국에서 연구된 결과들이며, 국내에서는 고준위 방사성폐기물의 처리기술에서 악티늄과 란타늄 원소를 선택적으로 공추출 할 수 있는 추출제의 합성 및 연구가 원자력연구소에서 일부 시도되고 있는 실정이다. 그리고 추출제 diamide 화합물의 구조적인 특이성은 아미드기의 질소에 서로 다른 알킬사슬이 치환되어 있다는 점이다. 이러한 비대칭적인 N-Alkyl 아미드는 일반적인 축합반응을 통해서는 쉽게 합성되지 않기 때문에 외국에서도 실험실규모로 합성하여 사용하고 있으며 아직 상용화되지 못하고 있는 상황이다. 본 연구에서는 이러한 비대칭 Diamide 계열의 화합물중의 하나인 N,N'-dimethyl-N,N'-dibutyl(tetradecyl) malondiamide(DMDBTDMA)을 합성하여 3가의 악티늄( $\text{Ans}^{(3+)}$ )과 란타늄( $\text{Lns}^{(3+)}$ ) 원소에 대한 공추출 거동에 대한 연구를 수행하였다. 3가의 악티늄( $\text{Ans}^{(3+)}$ )과 란타늄( $\text{Lns}^{(3+)}$ ) 원소를 공추출할 수 있는 DMBTDMA를 합성하였으며 합성경로는 Fig. 1과 같다. 합성물의 수득율은 65%이고 DMBTDMA 최종 생성물에 대한  $^1\text{H-NMR}$ ,  $^{13}\text{C-NMR}$ , IR의 분석결과로부터 구조분석 및 합성물에 대해 확인하였으며, 열적안정성 시험은 DMBTDMA를 25-100°C에서 60분간 열처리 한 후 GC-MS로 분석한 결과 25 - 80°C 영역에서는 안정하였으나 80°C부터 열분해하기 시작하여 100°C에서 7.5%가 열분해 되었다. 그리고 25-100°C에서 열분해된 DMBTDMA 각각을 희석제 n-dodecane(NDD)를 사용하여 0.5M로 만들어 3.5M  $\text{HNO}_3$ 에서  $^{241}\text{Am}$ 과  $^{152}\text{Eu}$  추출한 결과 추출율이 6%까지 감소하였다. DMBTDMA의 GC-MS로 분석한 열분해 결과와  $^{241}\text{Am}$ 과  $^{152}\text{Eu}$  추출결과를 비교해 보면 Fig. 2와 같이 두 결과의 경향이 일치하고 있음을 알 수 있다. 다성분계 모의폐액에서 추출제로 0.5M DMBTDMA /NDD, 방사성 동위원소  $^{241}\text{Am}$ 과  $^{152}\text{Eu}$ 과 비방사성원소인 Eu, Nd, Ce, Y, Cs, Sr

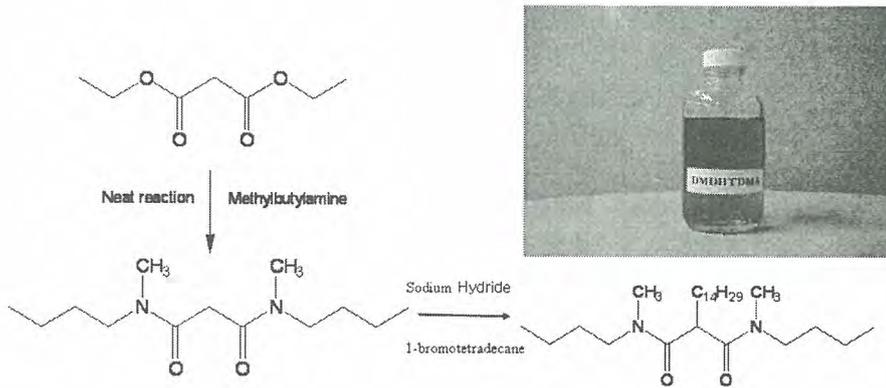


Fig. 1 Synthesis scheme of DMDBTDMA and product compound 0

모의용액을 사용하여 질산매질에서 회분식 추출실험 결과는 Fig. 3과 같으며 질산농도가 증가할수록  $^{241}\text{Am} > \text{Ce} > \text{Nd} > ^{152}\text{Eu} > \text{Y} > \text{Cs}$ , Sr의 순서로 추출율이 증가하였다. DMDBTDMA에 대한 악틴족(III)과 란탄족(III) 원소의 친화도는 비슷한 경향을 나타내었으며 란탄족(III) 계열 원소간에는 원자번호가 증가할수록 DMDBTDMA에 대한 친화도가 감소하는 경향을 나타내었다. 추출계의 온도를 25, 30, 35, 40°C로 변화시켜 실험한 결과 추출온도가 증가할수록 추출율이 감소하였다.  $^{241}\text{Am}$ 과  $^{152}\text{Eu}$  경우 40°C에서 추출율이 25°C에서의 추출율보다 각각 18%씩 감소하였다. ( $^{241}\text{Am}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  - Metal) - 3.5M  $\text{HNO}_3$  - 0.5M DMDBTDMA/NDD 추출계에서 추출시간이 추출에 미치는 영향을 시험하였다. 추출시간 변화는 1분-15분으로 하였으며 추출시간이 10분 이상 영역에서  $^{241}\text{Am}$ 과  $^{152}\text{Eu}$ 의 추출율이 일정한 상태에 도달하였으며, 이 결과를 근거로 하여 회분식 실험에서 추출시간은 30분으로 결정하였으며, 향후 연속식공정에서 체류시간 결정도 활용 가능하다고 생각된다. ( $^{241}\text{Am}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ -Metal)-3.5M  $\text{HNO}_3$ -0.5M DMDBTDMA/NDD 추출계에서 추출한 유기상을 사용하여 역추출 실험하였다. 역추출제로는  $\text{H}_2\text{O}$ 와 0.05M, 0.1M, 0.3M, 0.5M  $\text{HNO}_3$  용액을 사용하였으며, 악틴족 원소인  $^{241}\text{Am}$ 과 란탄족원소인  $^{152}\text{Eu}$ , Ce, Nd등은 1회에 90%이상 역추출되었으며 Y도 악틴족, 란탄족원소의 역추출을 보다는 약간 작지만 0.05M-0.5M  $\text{HNO}_3$  용액에서 88% 이상 역추출되었다.

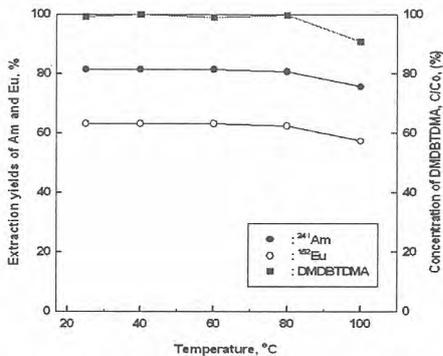


Fig. 2. Thermal Stability of DMDBTDMA Ce, and extraction yields of Am, Eu DMDBTDMA /NDD

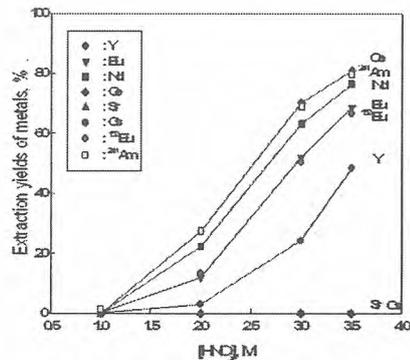


Fig. 3. Extraction yields of Am, Eu, Nd, Y, Cs and Sr with 0.5M

## 고산도 취급 CMPO-TBP/NDD-착물 계에서 Am/RE 추출 특성

이일희, 김광욱, 정동용, 문제권, 임재관, 양한범

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

산화가 3가( $M^{3+}$ )의 Am, Cm과 희토류 원소(RE)를 상호분리하는 일반적인 방법은 O 주개 원자를 함유한 유기인산 추출제로 공추출한 후, 금속이온-DTPA 간의 착물안정도 차를 이용하여 Am을 분리하는 것이다. 그러나 이 경우 취급용액의 산농도가 낮아 선 탈질이 필요하고, 탈질 시 고온조작, 침전물 여과, 배기체 처리 등이 요구되며 특히 Am 분리 시 DTPA/lactic acid 혼합용액의 pH를 3.5~4 정도로 유지해야 하는 단점을 지니고 있다. 따라서 본 연구는 취급 용액의 산도를 증가시키며, Am/RE 상호분리 시 역추출 용액의 pH를 감소시킬 수 있는 새로운 분리기술의 적용성을 평가하기 위하여, Am/RE의 공추출제로는  $M^{3+}$ 에 대한 추출성이 양호하며, 고산도 질산에서 사용 가능한 CMPO-TBP/NDD를, Am/RE의 역추출제로는 DTPA- $NaNO_3$  혼합용액 및 질산용액을 각각 선정하여 수행하였다.

### 1. Am/RE 공추출

Fig. 1은 0.2M CMPO-30% TBP/NDD-2M  $HNO_3$  및 O/A=3에서의 각 원소의 추출율이다. Am은 99%(D=34.1), Ce 및 Nd는 96.9%(D=10.6), Eu는 96.3%(D=8.6), Dy는 92.7%(D=4.2), Y은 81.6%(D=4.1) 추출되어 별 문제 없이 Am과 RE를 공추출할 수 있었다.

### 2. 질산 역추출

질산 역추출은 0.2M CMPO-30% TBP/NDD-2M  $HNO_3$  및 O/A=3에서 공추출한 유기상을 대상으로 O/A=1에서 pH=2로 조정된  $NaNO_3$ 의 농도를 변화시켜 수행하였다. Fig. 2는 pH=2에서  $NaNO_3$  농도 변화에 따른 Am, Ce, Nd, Eu, Y, Dy 및 질산의 역추출율로  $NaNO_3$  농도 증가에 따라 역추출율이 모두 감소하였다. 이는  $NO_3^-$  농도가 증가함에 따라  $H^+$  및  $M^{3+}$ 의 추출능이 증가하여 역추출이 감소된 데 기인한다. 역추출 횟수 영향은 pH=2에서 0.5M  $NaNO_3$ 과 2M  $NaNO_3$ 에 의해 각각 수행하였다. DTPA에 의한 Am의 분리 한계조건인 유기상 내 질산농도 0.01M 이하로 감소시키기 위해서는 0.5M  $NaNO_3$ 의 경우 3회 정도, 2M  $NaNO_3$ 의 경우는 5회 정도 역추출 하면 각각 98.4%, 99%가 역추출 되어 유기상 내 질산 농도가 0.0069M, 0.0043M된다. 이때 Am, Ce, Nd, Eu, Y, Dy의 누적 역추출율은 0.5M  $NaNO_3$ 의 경우 각각 8.1%, 15.5%, 15.8%, 19.1%, 79.8%, 30.2%였고, 2M  $NaNO_3$ 의 경우는 각각 2.3%, 2.7%, 2.8%, 3.3%, 14.6%, 3.5%였다.

### 3. Am 역추출

Am 역추출은 0.5M  $NaNO_3$ , pH=2에서 3회 역추출한 유기상을 대상으로 O/A=1로 수행하였다.

#### 3.1. DTPA 농도 영향

Fig. 3은 pH=2, 2M  $NaNO_3$ 에서 DTPA 농도 변화에 따른 각 원소의 역추출율이다. DTPA 농도 증가에 따라 역추출이 증가하고 있으며, Am, Eu, Dy, Y의 경우 0.05M 까지 급격히 증가하다가 그 이상에서는 변화가 적었다. 그러므로 DTPA 농도는 0.05M 정도면 충분하리라 판단된다. 한편 역추출 순서는  $Dy \geq Am > Y > Eu > Nd \geq Ce$ 로 Y의 경우를 제외하고는 DTPA- $M^{3+}$ 의 착물 안정도 상수  $Am \geq Dy > Eu > Nd > Ce$  순과 거의 일치하고 있다. 이때 DTPA 농도 변화에 따른 각 원소의 분배계수에 대한 기울기가 -0.94~-0.98을 나타내어 DTPA와  $M^{3+}$ 간의 착물은  $M^{3+} + DTPA^{5-} \rightarrow M_3(DTPA)^{2-}$  로 거의 1:1의 몰 비로 형성됨을 알 수 있었다.

#### 3.2. $NaNO_3$ 농도 영향

Fig. 4는 0.05M DTPA, pH=2에서  $NaNO_3$  농도 변화에 따른 각 원소의 역추출율로  $NaNO_3$  농

도 증가에 따라 역추출율이 감소하고 있다. 이는  $\text{NO}_3^-$  농도가 증가함에 따라  $\text{M}^{+3}$ 에 대한 CMPO의 추출능이 증가되어 역추출이 감소한 데 기인한다.

### 3.3. pH 영향

Fig. 5는 0.05M DTPA, 2M  $\text{NaNO}_3$ 에서 pH 변화에 따른 각 원소의 역추출율로 pH 증가에 따라 역추출이 증가되는 경향이지만 pH=1.5 이하에서는 역추출율이 5% 미만이었다. 이는 DTPA가 pH=1.5 이하에서 해리되지 않거나 또는 부분적으로 해리되어 DTPA- $\text{M}^{3+}$ 의 착물 형성이 미비한데 기인한다. 반면에 pH=2.5 이상에서는 DTPA가 완전 해리되어 Am의 역추출율이 증가되었으나 상당량의 RE가 공역추출 됨을 알 수 있다.

### 4. RE 역추출

RE 역추출은 0.5M DTPA, 2M  $\text{NaNO}_3$  및 pH=2에서 Am을 역추출 한 유기상을 대상으로 O/A=1에서 수행하였다. Fig. 6은 질산농도 변화에 따른 Ce, Nd, Eu, Y 및 Dy의 역추출율로 Dy를 제외하고는 질산농도 증가에 따라 역추출율이 감소하고 있다. 이는 CMPO의 고유특성으로 산도가 높을수록  $\text{M}^{+3}$ 에 대한 추출율이 증가하여 역추출이 감소되었다. 0.01M 질산에서 Ce, Nd, Eu, Y 및 Dy이 각각 68.1%, 75.0%, 68.9%, 84.1% 및 40.6% 역추출 되었다.

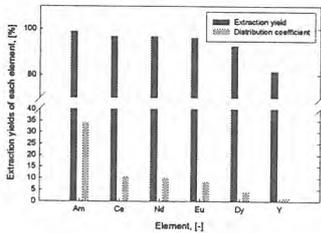


Fig. 1. Extraction yields and distribution coefficients of each element in the 6 components solution at 0.2M CMPO/30% TBP and O/A=3.

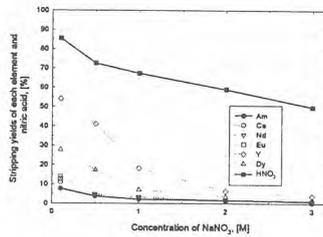


Fig. 2. Stripping yields of each element with concentration of  $\text{NaNO}_3$  at pH=2

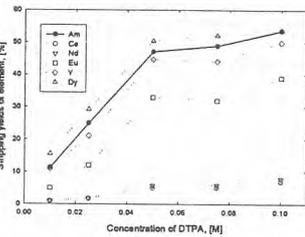


Fig. 3. Stripping yields of each element with concentration of DTPA at 2M  $\text{NaNO}_3$  and pH=2.

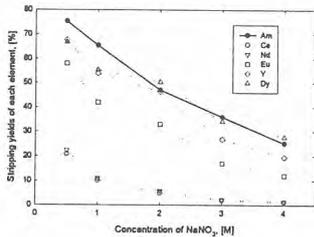


Fig. 4. Stripping yields of each element with concentration of  $\text{NaNO}_3$  at 0.05M DTPA and pH=2.

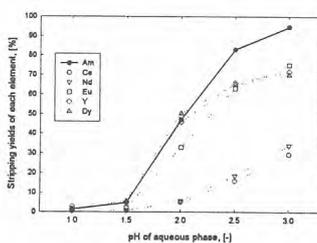


Fig. 5. Stripping yields of each element with pH of aqueous phase at 2M  $\text{NaNO}_3$  and 0.05M DTPA

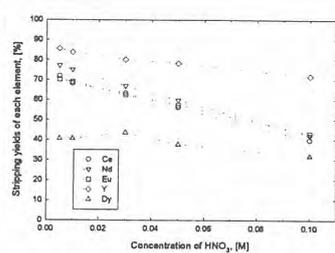


Fig. 6. Stripping yields of RE element with concentration of  $\text{HNO}_3$

## Chemical Behavior of Europium Oxides in LiCl-KCl Eutectic Melt

Tack-Jin Kim, Young-Hwan Cho, In-Kyu Choi and Kwang-Yong Jee

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Dukjin-Dong Yusong-Gu, Daejeon Korea

[yhcho@kaeri.re.kr](mailto:yhcho@kaeri.re.kr)

The electrochemical behavior of lanthanide oxides in molten alkaline chloride media is of great concern in pyrochemical processes for advanced nuclear fuel cycle. We have studied the solubilities of various lanthanide oxides in LiCl-KCl eutectic melt. In general, lanthanide oxides appeared to be insoluble/sparingly soluble in LiCl-KCl eutectic at 723 K. However, europium oxide exhibited an abnormal behavior in solubility and redox chemistry. The solubility of europium oxide was measured to be 1-2 order of magnitude higher than those of other lanthanide oxides. This abnormal solubility may be attributable to different electrochemical behavior of europium in the same experimental conditions. Most lanthanides ion exists as trivalent oxidation states. However, we observed divalent europium dissolved in LiCl-KCl molten salt by applying electron paramagnetic resonance(EPR) spectroscopy. (Figure 1)

With the aid of this spectroscopic tool, it was found that stable Eu(II) species was formed at 723 K under anaerobic conditions. However, other lanthanides existed as trivalent species in the same conditions. It seems that above mentioned unusual redox behavior of europium in LiCl-KCl eutectic melt are closely related to higher solubility in the same condition.

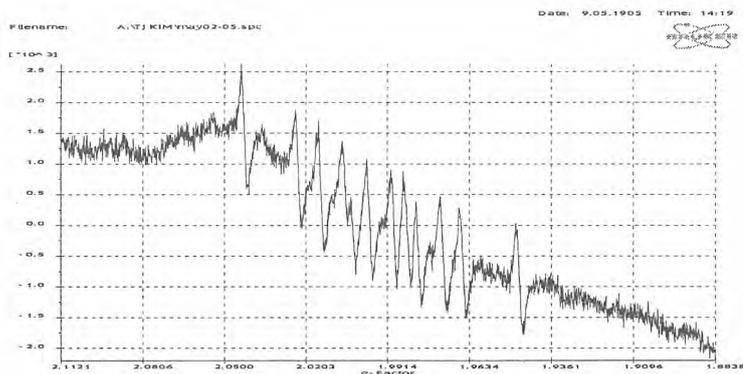


Figure 1. EPR spectrum of Eu(II) in LiCl-KCl matrix

EPR spectroscopy was useful for detecting Eu(II) species in molten salt matrix non-destructively, with high sensitivity.

## 전해정련공정을 이용한 세륨/우라늄 분리

권상운, 이종현, 강영호, 안병길, 심준보, 우문식, 김응호  
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

장 반감기 원소들의 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 한다. 분리방법 중 용융염을 이용하는 건식공정은 습식공정에 비해 2차 방사성폐기물의 발생량이 적고, 공정이 간단하며, 핵확산에 대한 저항성이 매우 크다는 장점 때문에 많은 연구가 이루어지고 있다. 건식분리방법 중에서 용융염 매질에서 전기화학적으로 분리하는 전해정련 공정에 대한 연구가 가장 활발하며, 전해정련 공정의 전극은 크게 양극, 기준전극, 고체음극 및 액체음극으로 구성되어 있다. 전해정련 공정의 원리는 우라늄, 희토류 원소, TRU 원소 및 귀금속 등으로 구성된 ingot 양극으로부터 용융염으로 녹아나오는 우라늄을 고체음극에 전착시켜 제거하고, 나머지 원소들 중에서 TRU 원소들을 액체음극에 전착시켜 회수하는 것이다. 이 때 우라늄과 소량의 희토류 원소도 액체음극에 함께 탈러 나온다. 액체음극은 cadmium의 증발문제, 전해조 구조의 복잡성 및 분리계수가 낮다는 등의 문제점이 있다.

본 연구에서는 액체음극을 이용하는 기존 공정의 단점을 극복하기 위하여, 고체음극을 이용하려는 연구를 수행하였다. 고체음극은 전착물이 쉽게 이탈하기 때문에 세라믹 container가 달린 고체음극을 이용하였으며, TRU 대체물질인 우라늄을 희토류 대표원소로 사용된 세륨과 분리하는 실험을 통하여 기존의 액체음극의 대체가능성을 확인하였다. 실험에 사용된 장치는 Fig.1.에서처럼 열전대, 교반기, reference electrode, anode 및 cathode등으로 구성하였다.

우라늄과 세륨의 분리특성을 알아보기 위해 전압-전류 관계를 측정하였으며, 20-600mA의 전류를 전극에 가하여 전극의 전압을 측정하였다. Fig.2에서처럼 우라늄과 세륨의 전압차이는 상당히 커서 분리가 용이할 것으로 추정되며, 우라늄의 전착이 진행됨에 따라 용융염 채취시료의 냉각후 색상은  $UCl_3$ 의 색상인 짙은 보라색에서  $CeCl_3$ 의 색상인 백색으로 바뀌었으며(Fig.3), 이는 우라늄이 성공적으로 cathode에 착되었음을 의미한다.

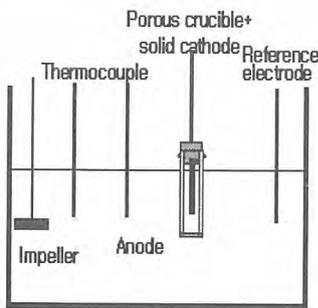


Fig. 1. Experimental set-up for electrorefining.

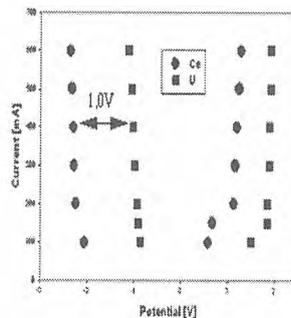


Fig. 2. Current - potential plot of uranium and cerium(anode:glassy carbon, cathode: molybdenum, current: 300mA).

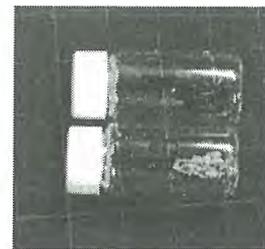


Fig.3 Colors of salt sample before and after uranium deposition

LiF-BeF<sub>2</sub>-ZrF<sub>4</sub> 용융염계에서 열가수분해에 의한 ZrO<sub>2</sub> 제조 특성

우문식, 권상운, 김용호

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

장수명핵종을 원자로에서 소멸처리시 중성자 효율을 증대시키기 위하여 고준위 폐기물에 존재하는 전이금속 및 지르코늄을 U 및 TRU와 상호 분리할 필요가 있다. 그리고 분리된 TRU를 용융염 연료형태나 금속 연료형태로 원자로에서 중성자를 이용하여 소멸처리하게 된다. 본 실험은 600℃에서 LiF-BeF<sub>2</sub>-ZrF<sub>4</sub> 용융염계에 수증기를 공급하여 열가수분해 반응(MF<sub>4</sub>+2H<sub>2</sub>O=MO<sub>2</sub>+4HF)으로 분리하고자하는 대상 금속 불화물을 금속 산화물로 침전시켰다. 침전된 산화물은 침출 또는 진공 증류법을 이용하여 LiF-BeF<sub>2</sub> 용융염으로부터 침전물을 분리하였다. 본 연구는 LiF-BeF<sub>2</sub>-ZrF<sub>4</sub> (62.3-30.7-7 mol%) 용융염계에서 열가수분해시 반응온도, 냉각시간, 교반용 Ar가스 공급속도에 따라 전환율 및 결정입자의 평균크기 및 분포의 변화에 대한 연구를 수행하였다. 이때 사용된 실험장치의 주요 구성은 전기가열로 및 반응기, 증기발생장치, 아르곤 가스 공급 장치와 배출가스 포집장치, 그리고 기록장치로 구성되었다. 전기로는 220volt, 30A, 6kw용 muffle furnace를 사용하였다. 반응기는 외부 용기와 내부 용기로 구분되며, 내부 용기는 고온에서 불소화합물에 내부식성이 강한 50ml nickel 용기(OD 45 x H 47mm)를 O-ring 형태의 지지대를 이용하여 외부용기의 하단 중앙에 설치하였다. 외부 용기의 상부 플렌지는 4개의 3/8" STS tube 연결관이 설치 되어있으며, 이 연결관 내부에 1/4" nickel tube를 삽입하여 사용하였다. 4개의 연결관은 각각 Ar-bubbling관, 스팀 주입관, 가스 배출관, 열전대 삽입관으로 되어있다. 증기발생 장치의 반응기 역시 외부 용기와 내부 용기로 구분되며, 외부 용기는 monel pipe(OD 114.3 x H 160 x t 3.3mm)를 사용하였고 증기발생기의 외부를 220volt, (500W)용 멘틀을 사용하여 내부온도를 최고 550℃까지 가열하였다. 수증기량 조절은 master flex 펌프를 이용하여 증류수를 정량적으로 증기 발생장치에 주입하였고 발생된 증기를 일정한 속도로 반응기에 주입 될 수 있도록 유량계를 이용하여 고순도 Ar 가스를 주입하였다. 가스 배출관은 KOH 용액이 채워진 가스 포집기를 통과시킨 다음 후드를 통하여 배출시켰다. 온도 및 압력 변화는 Data Acquisition board를 PC에 장착하여 저장하였다. 그리고 SEM 및 XRD분석을 통하여 전환된 ZrO<sub>2</sub> 산화물의 입자형태 및 화합물의 성분을 분석하였다. 실험 결과 반응온도가 500℃, 600℃~800℃, 900℃에서 전환율은 각각 80, 97.9, 87.6%이었고, 생성된 산화물의 결정입자는 구형과 주상형 및 판상형이 항상 존재하였고, 온도가 증가할수록 입도크기는 증가하였다. 냉각시간에 따른 전환율은 평균 93.1%정도로 영향이 없었다, 입자 평균 크기는 13.5μm 이었고, 냉각시간이 길어질수록 증가하였다. 반응기의 용융염 교반을 위한 Ar 가스 공급속도의 영향은 초기(0~75ml/min)에는 공급속도가 증가할수록 전환율이 증가하였다. 그러나 일정속도(75ml/min)이상은 교반효과가 없었고, 평균입자 크기도 Ar 가스의 공급속도가 일정속도(75ml/min)까지는 증가하나 그 이상은 감소하였다.

## V-pleats형 filter의 여재설계 및 효율특성

황용화, 이형권, 전용범, 엄성호

한국원자력연구소 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

해파필터는 분리판형(separator type)과 v-pleats형(or separator-less)의 2가지 타입이 있으며, v-pleats형은 특이한 구조로 원자력분야에 주로 사용되고 있다. 현재 조사후시험시설의 배기계통에 설치된 해파필터는 분리판형에 비해 교체주기가 훨씬 연장되는 v-pleats형으로 설계, 제작하여 사용 중이다. 이 타입을 선정하는 이유는 여재 본체 내에 일정간격으로 프레임(Frame)강재를 보강하는 구조이며, 제한된 공간에 분리판 모델보다 더 많은 양의 여재가 사용되며 견고하다. 따라서 공기저항을 적게 받으며 차압발생이 적고, 운반 및 사용 중에 손상이 거의 발생하지 않는 장점이 있었다. v-pleats의 다풍량 설계에는 먼지의 농도, 흡수되는 공기의 양 등 여러 요소의 영향을 감안하여 결정하였으며, 99.97% 이상의 필터효율과 25mmWg 이하의 초기압손이 유지되도록 하였다. 사용수명은 100mmWg 이상의 차압에서도 사용가능하지만 안전성을 고려하여 50-60mmWg에서 교체를 지시하는 최종압손점으로 설정하였다. 유량설계에는 여재의 면적, 압력손실, 필터의 외형크기(H\*W\*D)(mm), 필터면속 100mm하의 유속(m/sec)과 설치 면적을 등이 선행 계산되었다. 압손 설계는 여재의 주름깊이(mm), 여재와 여재 사이의 간격(mm), 필터 프레임의 두께에 따른 구조저항(mmAq), 여재 자체의 고유저항(유속5.33 cm/sec시)과 여재면적 (100cm<sup>2</sup>)당 압력손실(mmAq)등의 조건을 더해서 아래식으로 여재의 소요면적이 결정하였다.

$$A_m = (Q_f \times \Delta P_m) / (\Delta P_f \times V_m)$$

$A_m$ : 여재의 소요면적(m<sup>2</sup>) /  $Q_f$ : 필터풍량(m<sup>3</sup>/min) /  $\Delta P_m$ : 여재의 압손(mmAq)

$\Delta P_f$ : 필터의 압손(mmAq) /  $V_m$ : 여재의 표준풍속(320cm/min)

그 결과 여재의 깊이(여재의 두께와 겹치는 여재의 수)에 비례하여 압손이 증가됨을 알 수 있었고, 필터의 지수에도 비례하였다. 해파필터의 효율시험은 5fpm(2.5Cm/sec)이하의 설계유속에서 0.3 $\mu$ m 크기의 DOP(dioctyl phthalate) 입자를 99.97% 이상 여과를 기준으로 정하고 있다. DOP 입자발생기(NUCON F-1000-DG)와 검출기(NUCON F-1000-DD)를 사용하여, Fig.1에서와 같이 20개의 필터뱅크(Bank)에 대한 효율 검사를 실시하였다. 필터전단부에 DOP농도 평균 50X10<sup>2</sup>개의 입자를 주입하고, 필터를 통과한 후단부의 시료는 12X10<sup>-2</sup>(DOP농도 평균)로 아래의 누설식(1)에서 구하면 Fig.2와 같이 누설율이 평균 0.0015로 99.99% 이상의 효율이 유지됨을 알 수 있었다.

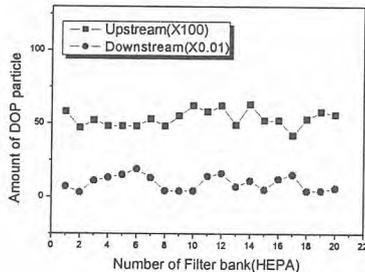


Fig. 1 Amount of upstream & downstream at v-pleats HEPA

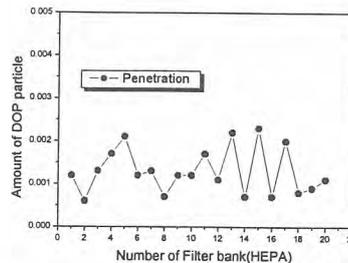


Fig. 2 DOP Penetration of HEPA

$$\text{Penetration } P = \frac{C_d}{C_u} \times 100$$

$$(1) \quad \begin{aligned} P &= \text{Percent Penetration} \\ C_d &= \text{Downstream} \\ C_u &= \text{Upstream} \end{aligned}$$

## 방사성부식생성물에 의한 저장풀 재질의 부식 평가

손영준, 양송열, 전용범

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

조사후시험시설의 사용후핵연료 저장수조의 Liner의 재질은 스테인레스 스틸로 저장조의 벽과 바닥에 설치되어있다. 저장수조의 내벽과 바닥에 설치된 스테인레스강의 재료부식은 저장수조의 안전성에서 매우 중요하다. 이 시험에서는 저장수조의 주요성분 재질인 스테인레스강에 의해서 풀물속으로 녹여 나오는 미소 부식 생성물(Fe, Ni, Cr)을 풀물을 채취하여 스테인레스강의 부식을 관찰하였다. 또한 주기적인 풀물 분석으로 방사성핵종 및 온도, pH, 전도도, 할로젠 원소도 측정하였다. 사용후핵연료 저장수조의 저장수에 녹아있는 방사성핵종이 구조재인 스테인레스강에 흡착되는 거동에 관한 연구는 작업자의 피폭량과 재료의 부식 거동과의 상호 관련설 때문에 매우 중요하다. 이 시험은 풀을 구성하고 있는 구조재 성분의 부식을 점검하기 위하여 수행하였다. 본 시설에 설치된 사용후핵연료 저장수조에 구성하고 있는 풀의 모든 구조재 성분들은 스테인레스 스틸로 이루어져 있으며 그 스테인레스 스틸로부터 풀물 속으로 녹여 나오는 미소 부식생성물(Fe, Ni, Cr)을 풀물을 채취하여 저장조의 재질인 스테인레스 스틸의 부식 거동을 관찰하였다. 원자력 발전소에서 발생된 사용후핵연료는 사용후핵연료 저장랙에 저장풀의 저장랙에는 총 20개의 사용후핵연료 집합체를 저장 할 수 있으며 총 3개의 저장풀로 구성되어 있으며 각각의 풀들은 Interpool Door가 설치되어 연결되어 있다. 핵연료 저장풀의 물은 저장 수조내에 설치된 깊이1.5m의 흡입 배관을 통해 순환 펌프에 의해 20m<sup>3</sup>/hr 유량으로 Precoat Filter와 양이온, 음이온 교환탑과 열교환기를 통해서 풀물이 순환된다. 그림 1에서는 저장 수조의 계통도와 수처리공정의 계통도를 나타내었다. 그림 2에서는 2003년도(1월-12월)까지의 저장수의 방사성 핵종의 농도 및 온도, 전도도, pH, Cl<sup>-</sup>의 농도를 나타내었으며 온도는 전도도, pH, 할로젠 원소인 Cl<sup>-</sup>는 0.01ppm 이하로 측정 되었다.

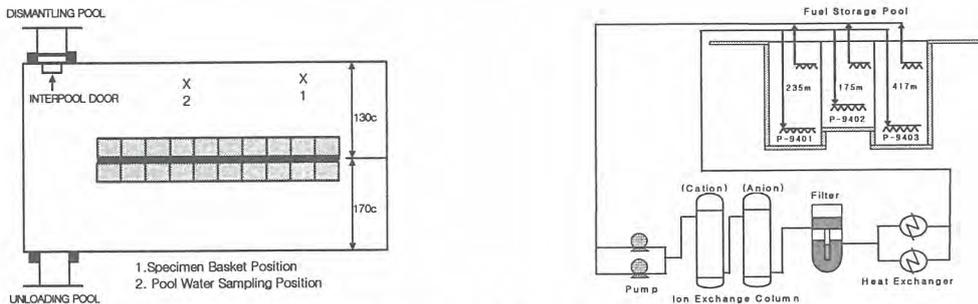


그림 1. 저장수조의 계통도와 수처리공정의 계통도

03년도(1월-12월)까지의 저장수의 방사성 핵종의 농도 및 온도, 전도도, pH, Cl<sup>-</sup>의 농도와 그리고 저장풀을 구성하고 있는 재질인 스테인레스 스틸(SUS 316)의 주요부식 생성물인(Fe, Ni, Cr)의 농도를 1년 동안 1개월 주기로 측정하였다. 그 시료들은 그림 1에 나타났는 시료 채취 지점에서 채취하였다. 본 시설의 풀물의 방사성 핵종 농도와 화학성분 및 온도 측정결과를 그림 2에 나타내었으며 Co-60의 수중 방사성 핵종농도가  $1 \times 10^{-3}$  Bq/ml로 년중 분포로 보여주고 있으며 Cs-137  $1 \times 10^{-3}$  Bq/ml, Cs-134  $1 \times 10^{-3}$  Bq/ml로 나타났다. 저장수조의 년중 온도, pH, 전도도 분포는 21~25℃, 2~5, 1~5μs/cm로 유지되었으며, 수중 할로젠 원소인 Cl<sup>-</sup>는 0.001ppm으로 아주 낮게 나타났다. 그리고 감마선 조사에 의해 생성되는 것으로 알려진 과산화수소는 측정되지 않았다.

이는 수조내 방사선 세기가 낮으며 풀물의 정화가 계속적으로 이루어지기 때문인 것으로 판단된다.

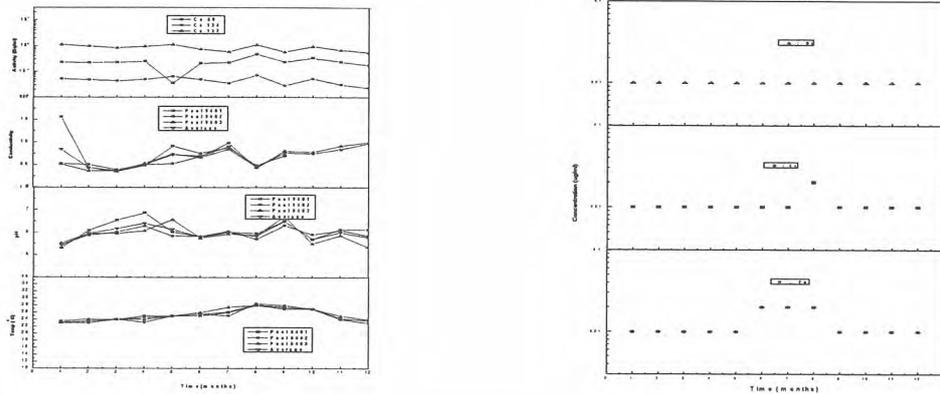


그림 2. 사용후핵연료 저장수조의 방사성핵종 농도와 부식생성물의 농도 분포

표 1에서는 저장 수조의 풀물을 1년 동안 스테인레스 스틸(SUS 316)의 주요부식 생성물인(Fe, Ni, Cr)의 농도 분포를 나타내었으며 년 평균 부식 농도는 Fe, Ni, Cr로 나타났으며 Fe가 Ni, Cr보다 약간 높게 나타났으며 이 실험에서 얻어진 부식 농도가 매우 낮은 값이어서 직접적인 부식속도 비교는 어려웠다. 이 값을 이용하여 저장 수조 재질의 부식속도를 계산하면  $10^{-5}$  mm/Year의 값을 얻을 수 있었다 이 값은 Pool Lining인 스테인레스 스틸(SUS 316)의 두께 3~4mm와 비교하면 아주 미소한 값으로 나타났다.

항목 \ 월	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	평균
Fe(ppm)	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.02	0.02	0.02	0.01	0.01	0.01	0.01	0.013
Cr(ppm)	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Ni(ppm)	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.02	0.01	0.01	0.01	0.01	0.011

## 경수로 원자로에서 발견된 금속파편(Debris) 분석

### Analysis of Debris Found in PWR Reactor

정양홍, 유명옥, 이흥기, 김희문, 주용선

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

경수로 원자로에서 발견된 금속 파편을 채취하여 화학조성을 분석하였다. 상용발전소의 원자로 내에서 발견된 고 준위 방사성 물질의 화학 조성 분석은 차폐형 극미세 성분 분석기(EPMA)를 이용하였다. 본 시험에 사용된 EPMA는 (Electron Probe Micro Analyzer, SX-50R, CAMECA, Paris, France) 조사재시험시설(KAERI, IMEF)에서 운영 중인 기기로서, 고 방사능을 띤 조사 핵연료의 시험을 수행할 수 있도록 기기의 적절한 부위에 납과 텅스텐으로 차폐되어 시편의 방사능 세기가 1 Ci 까지 시험 가능하다. 경수로 원자로 내에서 발견된 시료의 방사능 세기는 그림 2와 4에서 보인 바와 같이 28 R/h 였다. 발전소에서 시험시설까지 시편의 이송은 그림 1에서 보인 바와 같이 납 블록으로 고정시킨 Cask의 정 가운데 시편 굽기 만한 구멍을 뚫어 이송되었다. 시편의 방사화 분석 및 핵종 분석의 요구가 있었으나, 방사화 분석장치의 최대 방사능 허용값이 500 mR/h 이하이기에 방사화 분석은 실시되지 못했다. 시편의 방사능 세기를 줄이고, 시험 시편의 마운팅 작업을 위해 시편을 핫셀(hot cell)내에서 절단 하였으며, 마운팅 된 시편을 연삭 및 연마 작업을 행한 뒤, 그림 3과 같이 핫셀 지붕에 설치된 Glove Box에서 시편 Holder 에 장착하는 작업을 행하였다. 원자로 내에서 방사화 정도에 따라 생성되는 핵분열생성물 인 Nd, Mo, Ru, Rh 와 Pd 과 미지시료의 분석을 위한 시험 기기의 인가전압은 25 kV, 전류는 20 nA로 하였다. Nd의 분석은 WDS-1의 PET X-tal의 La X-ray line을 이용하였으며, Mo는 WDS 1의 PET X-tal의 K $\alpha$  X-ray line, Ru, Rh, Pd는 WDS-2의 PET X-tal의 La X-ray line을 이용하여 분석하였다. 표 1은 미지시료에 함유된 조성을 파악하기 위해 WDS(wavelength dispersive spectrometer)로 분석한 원소들에 대한 성분분석을 수행한 결과이다. 표 3에 보인 저탄소 마르텐사이트강의 조성과 시험 시편의 조성을 비교하면 원자로에서 발견된 시험시편은 저탄소 마르텐사이트강으로 확인되었다. 일반적으로 원자로 내의 일차계통에는 표 1과 같은 조성을 갖는 재료는 사용하지 사용되지 않기에 시험시편은 원자로내에서 파손된 재료가 아니라 외부에서 유입된 금속파편임을 알 수 있었다. 그러나 언제부터 원자로내에서 방사화가 되었는지에 대한 방사화 분석이 시편의 고방사능으로 인해 수행될 수 없기에 방사화 정도에 다른 핵분열 생성물의 원소에 대한 시험을 수행하여 표 2에 나타내었다.



그림 1. 파단시편 이송 Cask

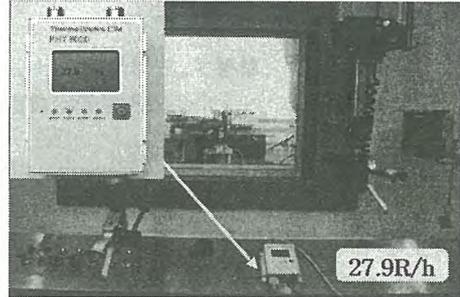


그림 2. 시편의 방사능세기 측정

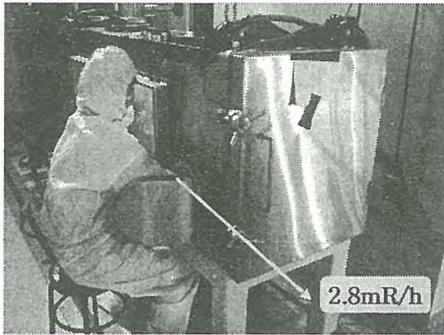


그림 3. 시편 준비 작업

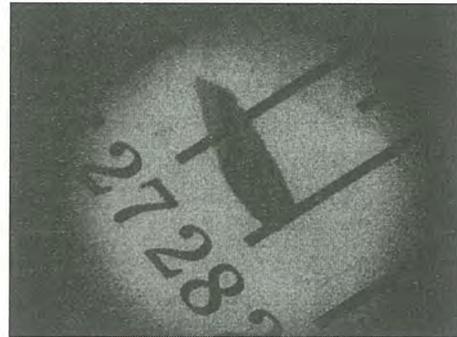


그림 4. 시편의 거시 형상

표 1. 시험 시편의 조성

	Cr	Mn	Fe	Mo	Ni	Cu	Zn	Total
1	2.016	0.555	94.796	0.576	2.322	0.028	0.049	99.766
2	2.109	0.561	93.917	0.442	2.2	0.068	0	98.855
3	2.18	0.552	93.649	0.372	2.268	0	0.034	98.683
4	1.998	0.494	96.232	0.463	1.758	0.023	0.003	100.508
5	1.819	0.486	95.212	0.430	1.668	0	0	99.173
ave	2.024	0.529	95.758	0.445	2.043	0.024	0.017	99.397

표 2. 시험 시편의 핵분열생성물 조성

	Cs	Ba	Nd	Pd	Rh	Ru	Zr	Si	Sr	Al
1	0.029	0.031	0	0	0	0	0.093	0.168	0	0.026
2	0.031	0.009	0.037	0.081	0.043	0.114	0	0.192	0.025	0.017
3	0.027	0	0	0.089	0	0.027	0.015	0.165	0.024	0.02
ave	0.029	0.013	0.012	0.056	0.014	0.047	0.036	0.175	0.016	0.021

표 3. 저탄소 마르텐사이트강 조성

C	Si	Cr	Mn	Ni	Cu	Mo	Fe
0.15~0.22	<0.40	1.8~2.23	0.80~1.20	1.8~2.32	0.02~0.03	0.3~0.6	Bal.



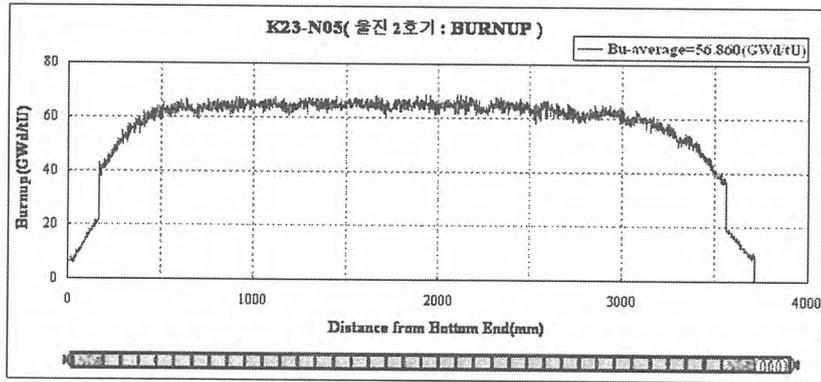


Fig. 2. Burnup of Cs-137 Isotopic Axial Distribution for Spent Fuel Rod.

### 사용후 핵연료봉의 와전류시험 평가

양승열, 손영준, 전용범

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

금속 등의 도체에 시간적으로 변화하는 자속을 작용시키면, 도체의 내부에 와전류가 유도된다. 와전류는 도체내의 균열 등의 불연속이 존재하면, 그 크기와 분포가 변화한다. 이 와전류의 변화를 이용하여 결함을 검출하는 시험방법이다. 즉, Encircling Coil Type의 경우 피 탐상체의 바깥쪽에서 Exciter Coil로 피 탐상체에 와전류를 발생시키고, 이 와전류와 결함과의 상호작용에 의한 와전류의 변화를 관의 바깥쪽에서 Receiver Coil로 감지하여 결함을 검출해낸다. Eddy Current Test에서는  $\sigma$ (전기전도도),  $\mu$ (자기투자율), D(Dimension)의 변화를 Electromagnetic Induction(전자기유도) 원리에 의해 감지하므로 전자유도시험 이라고도 한다. 와전류란 교류 자장 속에 전도체를 놓았을 때 전도체에 유도되는 와류 모양의 전류를 말하고, 와전류탐상 검사는 검사체에 와전류를 발생시켜 시험체 내, 외부의 특성변화를 예측하는 비파괴검사 기술 중 하나이다.

본 연구에서는 최적시험조건을 결정하기 위하여 프로브를 표 1과 같이 제작하였다.

Items	Design Spec	
Outer Diameter of Fresh Fuel Rod	10.72mm	9.8mm
Lift-off between Coil and Fresh Fuel Rod	0.6mm	0.5mm
Wire Diameter	0.08mm	0.1mm
Width of Coil 1 and Coil 2	0.6mm	0.5mm
Number of Coil Winding	50 Turns	40 Turn
Coil to Coil Spacing	0.6mm	0.5mm

Table 1. Design specification of ECT probe

표준시편은 관통결함, 외부결함, 내부결함으로 구성되어 있으며, 결함유무 및 형태를 알 수 있는 시험조건을 찾기 위하여 위상 및 감도특성시험을 수행하였다. 그림 1은 핫셀 내, 외부에서의 와전류시험 계통도를 나타낸 것이며, 미조사피복관에 관통결함, 외부결함, 내부결함을 가공하여 최상의 시험조건을 결정하는 것을 나타낸 것이다.

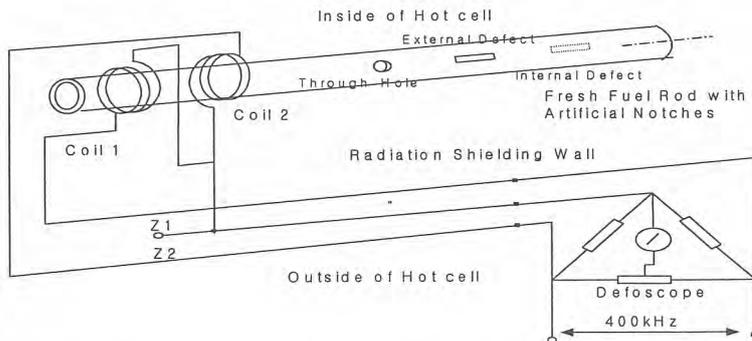


Fig 1. Schematic diagram of probe and standard specimen

제작된 시편에 대한 위상특성시험을 수행하기 위하여 와전류시험 주파수를 100kHz에서 500kHz까지 변화시키면서 관통결함에 대한 와전류신호를 측정하였으며, 시험 주파수가 증가함에 따라 와전류 신호의 위상이 커짐을 알 수 있었다. 결함유형에 따른 위상특성을 구하기 위하여 관통결함에 대하여는 시험 주파수와는 무관하게 위상을 45°로 고정한 상태에서 내부결함 및 외부결함에 대한 위상특성시험을 수행하였고, 위상특성시험결과는 내부결함의 경우에는 시험 주파수가 커짐에 따라 위상이 증가하고, 외부결함의 경우에는 감소하였으며, 200kHz 이상에서 외부결함의 위상과 내부결함의 위상이 뚜렷이 구분됨을 알 수 있었다. 또한 결함유무 및 크기 판단을 위한 감도특성시험을 수행하였고, 200kHz에서 감도가 가장 우수하였다. 따라서 위상이 뚜렷이 구분되는 조건을 만족하면서 감도가 우수한 최적 주파수는 200kHz-400kHz 이었다.

연구결과 와전류시험용으로 차동 환상형 프로브 및 핵연료봉 표준시편을 설계, 제작하여 와전류 신호특성을 분석한 결과 결함형태 및 결함위치를 정확히 판별하였고, 와전류시험 장치의 신호 신뢰성이 양호함을 확인하였다. 분석된 와전류 신호특성을 이용하여 원자로 조사 핵연료봉에 와전류 시험검사법을 적용하여 얻은 결과는 연료봉 결함부위를 파괴하여 찍은 금속조직시험결과와 잘 일치하였다. 그림 2는 상부 및 하부에 생긴 관통결함의 와전류신호를 나타내었고, 그림 3은 미세한 외부결함 신호와 전체 ECT 시험결과를 나타낸 것이다.

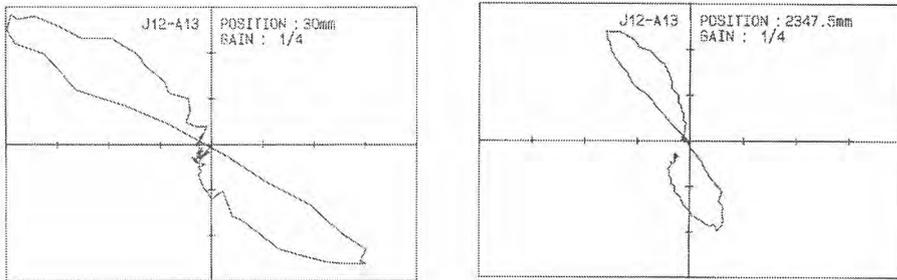


Fig 2 ECT signal through-hole

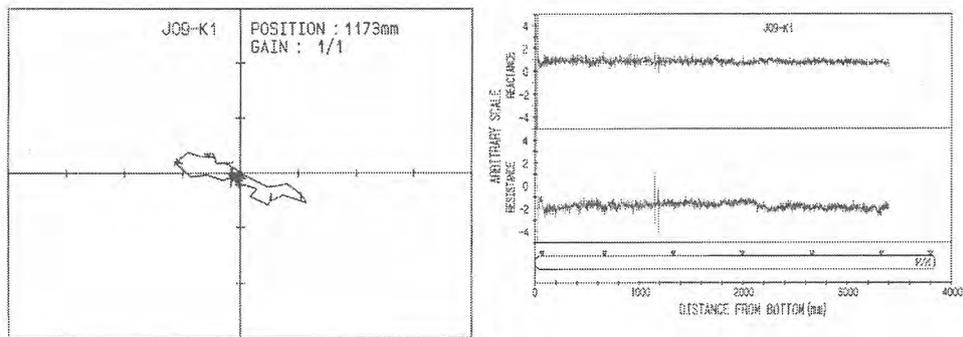


Fig 3. ECT signal full scanning and External Defect

# 빈 면

제4분과  
방사선 안전 및 환경

# 빈 면

## Radiation Shielding Analysis for Conceptual Design of HIC Transport Package

### HIC 전용 운반용기 개념설계를 위한 방사선 차폐해석

Chun-Hyung Cho, Kang-Wook Lee, Yun-Do Lee, Byung-II Choi, Heung-Young Lee  
Nuclear Environment Technology Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

조천형, 이강욱, 이연도, 최병일, 이홍영  
원자력환경기술원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

#### Abstract

KHNP(Korea Hydro and Nuclear Power Ltd., Co.) is developing a HIC transport package which is satisfying domestic and IAEA regulations and NETEC(Nuclear Environment Technology Institute) is conducting a conceptual design. In this study, the shielding thickness was calculated using the data from radionuclide assay program which is currently using in nuclear sites and Micro Shield code. Considering the structural safety, carbon steel was chosen as shielding material and the shielding thickness was calculated for 500 R/hr and 100 R/hr at HIC surface, respectively. Through the shielding analysis, it was evaluated that the regulation limit is satisfied when the shielding thickness is 22 cm for 500 R/hr and 17 cm for 100/hr.

**Key word** : HIC, Spent Resin, Shielding Analysis, Type B Package, Micro Shield

#### 요 약

현재 HIC는 차폐용기를 이용하여 소내 중간저장시설로 운반되고 있으나, 차폐용기가 국내 방사성폐기물 운반관련 규정에 부합하는지에 대한 논란이 있어왔다. 이에 따라 한국수력원자력(주)에서는 국내 규정 및 IAEA 규정을 만족하는 HIC 전용 운반용기 개발을 추진 중에 있으며, 원자력환경기술원에서는 이를 위한 개념설계를 수행 중에 있다. 본 연구에서는 원전 현장에서 활용중인 방사성핵종분석 프로그램 자료와 Micro Shield 전산코드를 활용하여 법적기준을 만족하는 차폐체의 두께를 계산하고자 하였다. 차폐체는 구조적 안전성을 고려하여 탄소강으로 결정하였으며, 차폐체의 두께를 HIC 표면선량을 500 R/hr와 100 R/hr의 경우로 각각 나누어 계산하였다. 계산결과 표면선량이 500 R/hr일 경우 차폐체의 두께가 22 cm, 표면선량이 100 R/hr일 경우는 차폐체의 두께가 17 cm 일 때 법적 제한치를 만족 하는 것으로 평가 되었다.

**중심단어** : HIC, 폐수지, 차폐해석, B형용기, Micro Shield

#### 1. 서 론

폐수지는 화학 및 체적계통, 사용후연료 저장조, 붕소 회수계통, 붕소열 재생계통, 폐기물처리계통 등에서 발생되며 건조처리 설비(SRDS : Spent Resin Dry System)를 이용하여 건조시킨 후 고전선성 용기(HIC : High Integrity Container)에 저장하고 있다[1]. 현재 HIC는 차폐용기를 이용하여 소내 중간저장시설로 운반되고 있으나, 차폐용기가 국내 방사성폐기물 운반관련 규정에 부합하는지에 대한 논란이 있어왔다. 이에 따라 한국수력원자력(주)에서는 국내 규정 및 IAEA 규정을

만족하는 HIC 전용 운반용기 개발을 추진 중에 있으며, 원자력환경기술원에서는 이를 위한 개념 설계를 수행 중에 있다.

폐수지의 방사능은 운전조건, 교환주기 등에 따라 다를 것으로 예상되나, 고선량 폐수지의 경우 A형 운반물에 허용되는 최대방사능인  $A_2$ 값을 초과할 것으로 예상되는바, 과학기술부고시 제 2001-23 호에 따라, HIC 전용운반 용기는 B형으로 개발하기로 결정되었다. 방사선원항으로는 원전 현장에서 활용중인 방사성핵종분석 프로그램 자료를 활용하였으며, 건조된 폐수지에 방사성핵종이 균일하게 분포된 것으로 가정하였다. 차폐체는 B형 운반용기 기술기준을 만족시키는 구조적 안전성을 고려하여 탄소강으로 결정하였으며, 작업자들의 편의성과 현장여건 등을 고려하기 위하여 차폐체의 두께를 HIC 표면선량을 500 R/hr와 100 R/hr의 경우로 각각 나누어 계산하였다. 차폐계산은 Micro Shield 전산코드를 사용하였으며, 향후 MCNP 코드를 이용하여 계산결과를 검증 비교할 계획이다.

## 2. 차폐해석 모델링

### 2.1. 운반용기 기술기준

방사성물질 운반용기 관한 기술기준은 “방사선안전관리등의 기술기준에 관한 규칙” 및 “방사성물질등의 포장 및 운반에 관한 규정”에 잘 나타나 있다[2,3]. 용기의 설계/제작시 기술기준의 준수여부를 확인하기 위하여 정상조건 및 비정상조건에 대한 입증시험이 실시되어야 한다. 정상조건에 대한 입증시험으로는 살수시험, 자유낙하시험, 압축시험 및 관통시험 등이 있으며, 운반사고조건에 대한 입증시험으로는 기계적시험, 열시험 및 침수시험 등이 있다. 방사선 차폐에 관련된 규정으로는, 사업소 내의 운반인 경우, 방사선량이 운반물 외부 표면으로부터 10 cm 떨어진 위치에서 10 mSv/hr, 운반차량 외부표면에서 2 m 떨어진 위치에서 0.1 mSv/hr 이내 이어야 한다.

현재까지 각 원전에서 발생한 HIC의 표면 선량을 측정치를 조사한 결과 최대 표면 방사선량은 은 고리분부의 427 R/hr로 나타났으나, 발생되는 HIC 용기의 약 90%이상이 표면선량을 100 R/hr 이하인 것을 고려하여, 표면선량을 500 R/hr 와 100 R/hr의 두 가지 경우에 대하여 차폐해석을 수행하였다.

### 2.2. 방사선원항의 결정

방사성물질내 핵종별 방사능농도를 결정하는 방법에는 방사성물질을 직접 시료채취 하여 화학분석 등을 통해 방사능농도를 알아내는 직접법과 감마 핵종분석장치를 이용하여 방사성물질내 감마 핵종농도를 측정하고 알파 및 베타핵종은 척도인자(Scaling Factor)를 이용하여 방사성물질내 핵종별 농도를 추정하는 간접법이 있다. 방사성폐기물내 핵종별 농도를 정확히 알기 위해서는 직접법을 이용하여야 하지만 측정장비, 인력 및 통계학적 자료처리 등 현실적으로 많은 어려움이 있어 본 연구에서는 척도인자를 통한 방법을 이용하였다.

현재 각 원전에서는 “척도인자 및 선량-핵종농도 환산 (SF-CALW)” 프로그램을 활용하여 폐기물내 핵종 및 농도를 산출하고 있다. 이를 그대로 적용할 경우 핵종분석자료의 획득은 용이하나, 수지내 방사성핵종의 양이 과대평가되는 경향이 있음을 알 수 있었다. 예를 들어 울진의 최대표면선량을 드럼의 경우 SF-CALW를 이용하여 산출된 폐수지내 총 방사능량은 789 Ci 이고 이때 측정된 표면 선량은 334 R/hr 이었다. 그러나 Micro Shield를 이용하여 동일한 핵종별 방사능량에 대하여 역으로 HIC의 표면선량을 계산한 결과 650 R/hr로서 실측치보다 약 1.95배 정도 높게 나타났다. 따라서 본 연구에서는 SF-CALW에서 얻어진 핵종별 농도분포는 이용하되, 알고자하는 표면선량에 일치하도록 핵종별 방사능량을 조절하여 방사선원항으로 사용하였다. 표 1에는 표면선량을 500 R/hr와 100 R/hr에 해당하는 방사성핵종의 양을 표시하였으며, HIC내 총 방사능량은 표면 선량이 500 R/hr의 경우 583.5 Ci, 100 R/hr인 경우 118.3 Ci인 것으로 나타났다. 법규상 각 핵종별 방사능농도의  $A_2$ 에 대한 비의 합계가 1을 초과하면 B형 운반물로 규정되므로, HIC의 표면선량이 500 R/hr 및 100 R/hr인 경우 모두 위의 기준을 초과하여, HIC 전용운반용기는 B형 운반물로 분

류된다.

### 2.3. 기하학적 모델링

차폐해석을 위하여 방사성폐수지는 높이 약 110.3 cm, 지름 약 114.4 cm이며, 방사성핵종들이 균일하게 분포하는 원통형 체적선원으로 가정하였다. 폐수지는 양이온 건조수지(밀도 : 0.68 g/cm<sup>3</sup>)를 기준하였으며, 입력된 폐수지의 화학적 조성은 표 2에 나타내었다[4]. 운반용기의 차폐체는 구조적 안전성을 고려하여 탄소강(밀도 : 7.85 g/cm<sup>3</sup>)으로 선정하였으며, 화학적 조성은 표 3에 나타내었다.

표 3-1 HIC 표면선량률에 따른 핵종별 방사능량(Ci)

핵종	방사능 농도(Ci)	
	표면선량 500 R/hr 경우	표면선량 100 R/hr 경우
Ag-110m	87.52326919	17.74120322
C-14	27.94104247	5.663724825
Ce-144	0.02784213	0.005643675
Co-58	28.35822598	5.74828905
Co-60	116.761565	23.66788479
Cs-134	38.81788481	7.868490165
Cs-137	9.537300856	1.93323666
Fe-55	105.6575402	21.41706896
H-3	24.30975783	4.927653615
I-129	0.00001369	0.000002775
Mn-54	27.42254808	5.55862461
Nb-94	0.023352328	0.00473358
Ni-63	97.19232668	19.7011473
Sr-90	3.242682294	0.657300465
Tc-99	0.00112924	0.0002289
Zr-95	16.76262881	3.397830165
Total	583.5791095	118.2930627

표 2. 양이온 건조수지의 화학적 조성

	화학적 조성 (wt. %, 건량기준)						
	C	H	O	S	B	Fe	Na
양이온수지	45.5	4.30	32.7	13.6	2.4	0.5	1.0

표 3. 탄소강의 화학적 조성

	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	Cu	Nb	V	Fe
화학적 조성 (wt.%)	0.043	0.151	0.886	0.019	0.006	3.942	0.279	0.206	0.455	0.033	0.027	93.952

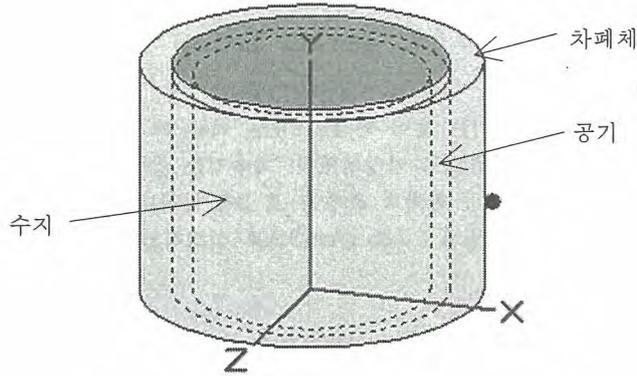


그림 1. 차폐해석을 위한 기하학적 모델링

### 3. 차폐해석 결과

#### 3.1. 방사선원항의 검증

SF-CALW의 핵종분포비율을 이용하여 표면선량율에 따라 변환된 핵종농도의 타당성을 검증하기 위하여 각 원전의 실측치와 비교하였다. 실측치로는 HIC 용기 표면과 현재 사용 중인 차폐용기의 표면 및 1m 떨어진 거리에서 측정된 표면선량율을 이용하였다. 울진, 영광, 고리로부터 얻은 실측 데이터 중, 임의로 한 개씩을 선정하여 계산값과 비교하였으며, 이 결과를 표 2에 나타내었다. 표 2에 나타난 바와 같이 울진의 경우는 계산값과 측정치와의 차이가 컸으나, 영광, 고리의 경우는 1 m 떨어진 지점에서 측정값과 계산값이 유사하게 나타났다. 따라서 표면선량율에 맞추어 핵종별 방사능량을 조정하여 사용한 방사선원항이 어느 정도 타당성을 가짐을 알 수 있었다.

표 2. 원전별 실측값 및 계산값의 비교

드림번호	HIC 표면 (R/h)		HIC운반용기 (mR/h)			
			표면		1m 이격	
	측정값	계산값	측정값	계산값	측정값	계산값
U1-2002-R05-0002 (울진)	307.7	300	60.3	260.9	7	87.3
Y1-01-HIC-005 (영광)	28	22	35	19.1	7	6.39
K11-2002-R05-0002 (고리)	25	22	35	9.233	5	4.054

#### 3.2. 표면선량 500 R/hr 에서의 차폐두께

고리에서 측정된 HIC 용기표면 최대선량율이 427 R/hr 이었음을 고려하여, 최대면선량율을 500 R/hr로 설정하여 차폐두께를 계산하였다. 차폐체는 탄소강으로 된 원통형 용기를 가정하였으며, 운반용기 표면 및 표면으로부터 1 m, 2 m 떨어진 지점에서의 선량율을 차폐두께를 1 cm 씩 증가

시켜 가면서 계산하였다. 표 3에 나타난 바와 같이 표면선량을 기준인 10 mSv/hr 보다 2 m 떨어진 지점에서의 기준인 0.1 mSv/hr 가 차폐두께에 더 큰 영향을 주는 것으로 나타났으며, 이에 따라 표면선량을 500 R/hr 에서의 차폐두께는 22 cm로 결정되었다.

표 3. 표면선량을 500 R/hr 기준 차폐해석 결과

Shield Thickness (cm)	Dose Rate at Surface (mSv/hr)	Dose Rate at 1m (mSv/hr)	Dose Rate at 2m (mSv/hr)
19	1.456	0.5314	0.2326
20	0.9811	0.3635	0.1601
21	0.6621	0.2478	0.1103
22	0.4474	0.1703	0.0760
23	0.3027	0.1167	0.0524
24	0.2050	0.0800	0.0362

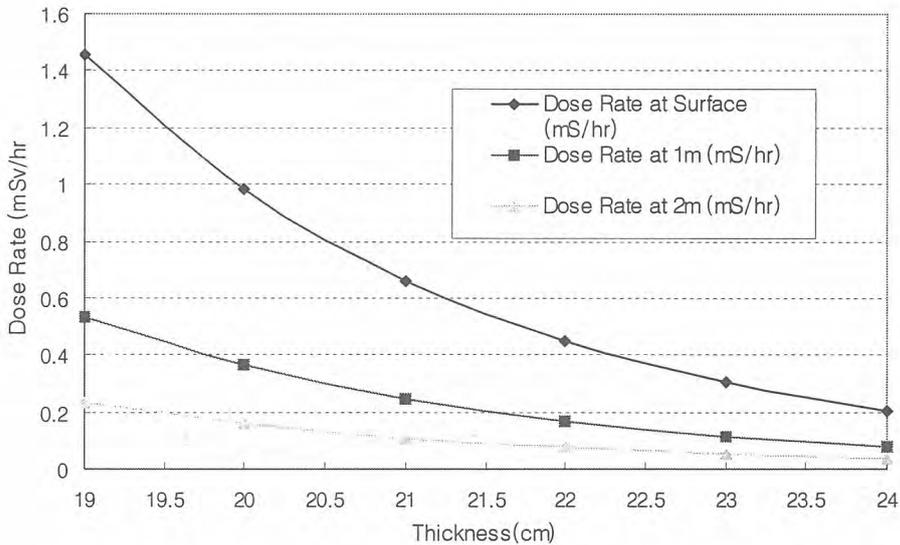


그림 2. 차폐체 두께 및 측정위치에 따른 선량을 (표면선량 : 500 R/hr)

### 3.3. 표면선량 100 R/hr 에서의 차폐두께

현장 작업자들의 편의성과 작업공간 등을 고려하여, 최대면선량을 100 R/hr에 대한 차폐두께를 계산하였다. 500 R/hr의 경우와 마찬가지로, 차폐체는 탄소강으로 된 원통형용기를 가정하였고, 운반용기 표면 및 표면으로부터 1 m, 2 m 떨어진 지점에서의 선량을 차폐두께를 1 cm 씩 증가시켜 가면서 계산하였다. 표 4에 나타난 바와 같이 표면선량을 100 R/hr에서의 차폐두께는 17 cm로 결정되었다.

표 4. 표면선량을 100 R/hr 기준 차폐해석결과

Shield Thickness (cm)	Dose rate at surface (mSv/hr)	Dose rate at 1m (mSv/hr)	Dose rate at 2m (mSv/hr)
10	11.1200	3.3930	1.3870
11	7.3680	2.3070	0.9506
12	4.8920	1.5690	0.6519
13	3.2560	1.0680	0.4472
14	2.1720	0.7270	0.3069
15	1.4510	0.4954	0.2107
16	0.9720	0.3379	0.1448
17	0.6521	0.2306	0.0995
18	0.4382	0.1575	0.0685

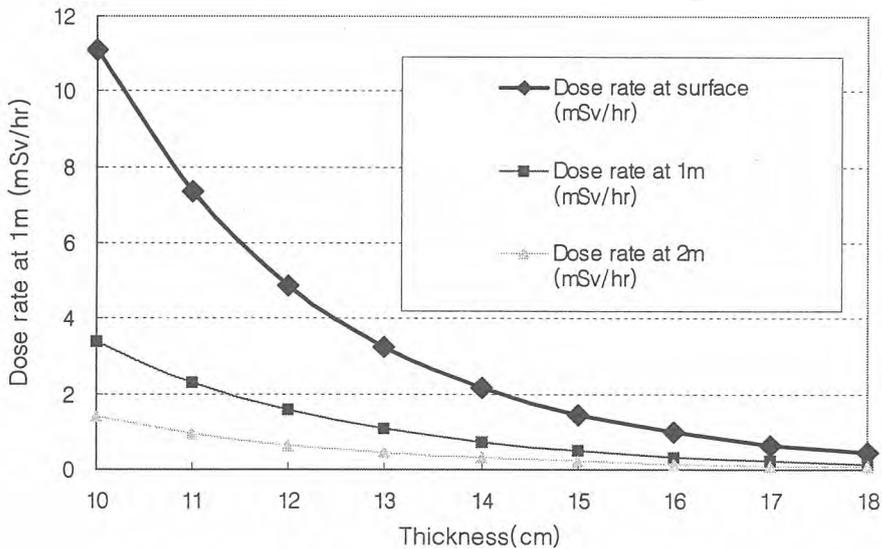


그림 3. 차폐체 두께 및 측정위치에 따른 선량을 (표면선량을 : 100 R/hr)

#### 4. 결론 및 향후계획

현재 원전에서 활용중인 SF-CALW 프로그램의 핵종분포 비율과 Micro Shield 차폐계산 코드를 이용하여 HIC 운반을 위한 용기의 차폐두께를 계산할 수 있었다. 원전 현장의 실측치와 비교를 통해 방사선원항의 타당성을 확인하였고, 운반용기의 활용성 측면을 고려하여 표면선량을 500 R/hr과 100 R/hr를 기준으로 하여 차폐해석을 각각 수행하였다. 차폐계산결과 두 경우 모두 운반용기 표면에서의 선량기준 보다는 2 m 떨어진 지점에서의 표면선량이 차폐두께에 더 큰 영향을 미치는 것으로 나타났으며, 이에 따라 탄소강 차폐체의 두께는 500 R/hr의 경우 22 cm, 100 R/hr의 경우 17 cm 로 각각 결정되었다.

향후 MCNP 코드를 이용하여 계산결과를 비교 검증할 계획이며, 방사선원항, 즉, 폐수지내 핵종분포, 핵종별 방사능량 및 폐수지의 물성치 등에 대해 좀더 면밀한 연구가 필요할 것으로 사료된다.

5. 참고문헌

- [1] 전력연구원, “방사성폐기물 유리화 기술개발(I)”, 중간보고서, TM.96NJ17.1998.600, 1998
- [2] 과학기술부령 제30호, “방사선안전관리등의 기술기준에 관한 규칙”, 2001
- [3] 과학기술부고시 제2001-23호, “방사성물질등의 포장 및 운반에 관한 규정”, 2001
- [4] 원자력환경기술원, “중·저준위 방사성폐기물 유리화 기술개발(I)”, 최종보고서, TR.96NJ17.J2000.3, 2003

## 삼중수소의 환경방출에 따른 주민선량 규제모델의 비교

### Comparison of the Regulatory Models Assessing Off-Site Radiological Dose due to the Routine Releases of Tritium

황원태, 김은한, 한문희, 최용호, 이한수, 이창우  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

W. T. Hwang, E. H. Kim, M. H. Han, Y. H. Choi, H. S. Lee and C. W. Lee  
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duckjin, Yusung, Daejeon

#### Abstract

Methodologies of NEWTRIT model, NRC model and AIRDOS-EPA model, which are off-site dose assessment models for regulatory compliance from routine releases of tritium into the environment, were investigated. Using the domestic data, if available, the predictive results of the models were compared. Among them, recently developed NEWTRIT model considers only doses from organically bounded tritium (OBT) due to environmental releases of tritiated water (HTO). A total dose from all exposure pathways predicted from AIRDOS-EPA model was 1.03 and 2.46 times higher than that from NEWTRIT model and NRC model, respectively. From above result, readers should not have an understanding that a predictive dose from NRC model may be underestimated compared with a realistic dose. It is because of that both mathematical models and corresponding parameter values for regulatory compliance are based on the conservative assumptions. For a dose by food consumption predicted from NEWTRIT model, the contribution of OBT was nearly equivalent to that of HTO due to relatively high consumption of grains in Korean. Although a total dose predicted from NEWTRIT model is similar to that from AIRDOS-EPA model, NEWTRIT model may be have a meaning in the understanding of phenomena for the behavior of HTO released into the environment.

**Key words** : Tritium, NEWTRIT Model, NRC Model, AIRDOS-EPA Model, Environmental Release

#### 요약

삼중수소의 환경방출에 따른 주민선량의 규제이행을 위해 개발된 NEWTRIT 모델, AIRDOS-EPA 모델, NRC 모델의 평가 방법을 고찰하고, 활용 가능한 국내 특성자료를 사용하여 예측결과를 비교하였다. 이들 모델 중에서 가장 최근에 개발된 NEWTRIT 모델만이 tritiated water (HTO) 방출에 따른 organically bounded tritium (OBT)의 영향을 고려한다. 평가결과 삼중수소의 환경방출로 인해 모든 가능한 경로로부터 받게 되는 총 피폭선량은 AIRDOS-EPA 모델의 예측결과가 NEWTRIT 모델과 NRC 모델에 비해 각각 1.03배, 2.46배 높은 결과를 나타냈다. 이러한 결과로부터 NRC 모델로 예측되는 피폭선량이 실제 주변주민이 받을 수 있는 피폭선량을 과소평가할 수 있다고 이해해서는 안될 것이다. 왜냐하면 삼중수소의 환경내 거동에 대한 불확실성은 매우 크기 때문에 규제이행을 위한 수학적 모델과 관련 변수 값은 극히 보수적 가정에 근거하기 때문이다. NEWTRIT 모델로 예측된 식품섭취에 의한 피폭선량에서 우리나라의 주식인 곡류의 상대적으로 많은 섭취로 OBT는 HTO와 거의 대등한 수준의 영향을 나타내었다. 삼중수소의 환경방

출에 따른 총 피폭선량에서 NEWTRIT 모델은 AIRDOS-EPA 모델과 유사한 예측결과를 나타내지만, NEWTRIT 모델은 식품섭취에 따른 OBТ의 영향을 고려함으로써 환경으로 방출된 HTO 거동의 현상적 이해 등에 있어서 보다 의미가 있다고 판단된다.

**중심단어** : 삼중수소, NEWTRIT 모델, NRC 모델, AIRDOS-EPA 모델, 환경방출

## 1. 서론

원자력시설의 운영은 미량이나마 불가피하게 방사성물질의 환경방출을 수반하게 되며, 이로 인해 주변 주민의 인체에 대한 방사능 위해를 줄 수 있다. 이러한 인체에 대한 방사능 위해를 최소화하기 위해 각 국에서는 다양한 규제 기준치를 설정하고 있다. 이러한 규제 기준치에 따라 시설이 적절히 운영, 관리되고 있는지 확인하는 절차로 시설의 운영 사업자는 주기적으로 주변 주민에 대한 피폭선량 평가를 실시하고 있다.

삼중수소는 원자력 시설의 운영 중에 환경으로 방출되어 인체에 중요한 피폭영향을 줄 수 있는 방사성 핵종이다. 삼중수소는 자연에서 빠르고 쉽게 혼합되는 특성으로 일반적으로 비방사능 모델 (specific activity model)에 근거하여 농도를 예측한다. 이 모델의 기본적 개념은 인체를 포함하여 공기, 토양, 작물 등과 같은 모든 환경매체의 수분내에서 수소에 대한 삼중수소의 비 (T/H)는 동일하다는 가정에 근거한다[1]. 그러나 실제적으로 모든 환경매체의 수분내에서 T/H는 동일하지 않다. 예로 작물체 수분내에서 T/H는 공기 수분내에서 T/H에 비해 대부분 낮은 값을 나타낸다. 그 이유는 작물체의 수분흡수는 잎의 기공 뿐 아니라 많은 부분은 뿌리를 통해 이루어지고 일반적으로 토양 수분내에서 T/H는 공기 등과 같은 다른 환경매체의 수분내에서 T/H에 비해 상대적으로 낮기 때문이다[2,3]. 따라서 비방사능 모델에 의한 예측결과는 과대평가될 수 있으며 규제 이행을 위한 많은 수학적 모델에서는 이를 일부 변형하여 적용하고 있다[3,4,5,6]. 또한 삼중수소는 광합성 작용 등으로 동식물체 등의 유기물에서 다양한 화학적 결합을 갖는 형태의 삼중수소를 생성한다. 원자력시설 특히 원자력발전소로부터 방출되는 대부분 삼중수소의 화학적 형태는 tritiated water (HTO)이며, 작물체에 흡수된 HTO는 광합성 작용 등으로 일부는 organically bounded tritium (OBT) 형태로 전환된다. 그동안 OBT에 대한 지식의 부족으로 규제 목적의 대부분 수학적 모델에서는 HTO의 영향만을 고려하고 있지만 최근에는 OBT에 대한 선량환산인자를 포함한 축적된 지식과 경험 등을 통해 OBT의 영향을 반영하려는 시도가 있다. 미국 Lawrence Livermore National Lab. (LLNL)에서는 HTO의 영향만을 고려한 기존모델을 탈피하고 삼중수소에 대한 보다 과학적 이해와 신뢰성 있는 평가를 위해 OBT의 영향을 반영한 수학적 모델 NEWTRIT[3]를 개발하였다. 이 모델은 규제 활용을 위해 미국 환경보호청 (EPA)에 승인을 신청한 상태이다.

본 연구에서는 원자력시설 운영의 규제이행을 위해 개발된 삼중수소의 환경방출에 따른 대표적 주민선량 평가모델인 미국 LLNL의 NEWTRIT 모델, 미국 원자력규제위원회 모델 (NRC 모델 [4]), 미국 EPA의 AIRDOS-EPA 모델[5]의 평가 방법을 고찰하고 예측결과를 비교하였다.

## 2. 재료 및 방법

방사성 핵종의 환경내 거동은 물리적, 화학적으로 매우 복잡하여 수학적으로 정확하게 표현하기란 거의 불가능하다. 다시 말하면 현재의 지식수준에서 개발된 수학적 모델은 실제적 현상의 단순한 표현에 불과한 것이다. 따라서 수학적 모델에서 많은 복잡한 현상을 고려하였다고 하여 예측결과의 신뢰성이 반드시 향상되었다고 볼 수 없다. 왜냐하면 수학적 모델이 복잡할수록 많은 입력변수가 필요하게 되고, 변수 값의 불확실성으로 예측결과에 대한 신뢰성은 오히려 떨어질 수 있기 때문이다. 이러한 이유로 원자력시설의 운영 규제에 활용하기 위한 수학적 모델은 최소한의 입력변수를 사용하여 환경에서 핵종의 거동을 명료하게 설명해 줄 수 있어야 하고 예측결과는 과소평가되지 않아야 한다는 기본 전제가 뒷받침되어야 한다[7]. 삼중수소의 환경방출에 대한 규제 모델

은 대부분 비방사능 개념에 근거한다. Evan은 1969년 사슴에 대한 실험결과로부터 인체를 포함하여 모든 환경매체의 수분에서 T/H는 동일하다는 비방사능 모델을 처음 제안하였는데 이는 만성적 피폭 (chronic exposure)으로 인체가 받을 수 있는 상한치를 나타낸다[1]. Evan이 제안한 비방사능모델의 지나친 보수성으로 U. S. NRC 등과 같은 여러 규제기관에서는 일부 변형된 방법을 규제에 활용하고 있다. 아울러 인체를 포함하여 동식물체에서 삼중수소의 물리적, 화학적 메커니즘이 어느 정도 규명됨에 따라 이에 대한 영향을 규제에 반영하려는 움직임도 있다.

## 2.1 NEWTRIT 모델

최근에 미국 LLNL에서 개발한 모델로 HTO의 환경방출에 따른 식품내 HTO 뿐 아니라 OBT의 섭취에 따른 피폭영향을 고려한다. 원자력시설로부터 삼중수소는 HTO 형태 뿐 아니라 tritiated hydrogen gas (HT) 형태로도 환경으로 방출될 수 있는데, 이 모델에서는 HT 형태의 삼중수소 방출에 따른 피폭영향도 고려한다. 원자력발전소의 경우 삼중수소는 대부분 HTO 형태로 환경으로 방출되나, 재처리시설의 경우에는 삼중수소의 총 환경 방출량 중에서 HT 형태가 약 40%를 차지한다[2]. HT는 인체 피폭에 대한 영향이 상대적으로 낮아 많은 경우 무시되기도 하지만 한편으론 HT가 토양에 있는 미생물 등과 상호작용으로 산화되어 HTO 형태로 전환되므로 결국 HTO 또는 OBT 형태로 인체에 피폭의 영향을 주기 때문에 중요할 수 있다. 그러나 본 연구는 현재 국내에서 운영되고 있는 원자력시설이 주요 관심대상이기 때문에 HT의 환경방출에 따른 피폭영향은 논의 대상에서 제외하였다.

NEWTRIT 모델은 많은 실험 자료에 근거하여 공기중 HTO의 농도로부터 작물체 수분내에서 HTO와 OBT 농도 ( $C_{pp}$ , Bq kg<sup>-1</sup>-fresh)를 다음 식으로 평가한다.

$$C_{am} = \frac{C_a}{H} \tag{1}$$

$$C_{pp,HTO} = C_{am} RF_{pp} F_{wf,pp} \tag{2}$$

$$C_{pp,OBT} = C_{am} RF_1 ID_{pp} F_{dm,pp} W_{eq,pp} \tag{3}$$

여기서,

$C_a$  : 공기중 HTO 농도 (Bq m<sup>-3</sup>)

$H$  : 공기의 절대습도 (kg m<sup>-3</sup>)

$C_{am}$  : 공기 수분내에서 HTO 농도 (Bq L<sup>-1</sup> 또는 Bq kg<sup>-1</sup>)

$RF_{pp}$  : T/H 감소분율

$F_{wf,pp}$  : 수분 분율 (kg kg<sup>-1</sup>-fresh)

$RF_1$  : 잎에 대한 T/H 감소분율

$ID_{pp}$  : isotopic discrimination 인자

$F_{dm,pp}$  : 건조물 (dry matter) 분율 (kg kg<sup>-1</sup>-fresh)

$W_{eq,pp}$  : 수분 등가인자 (L kg<sup>-1</sup>)

T/H 감소분율  $RF_{pp}$  는 작물체 수분내에서 T/H는 공기 수분내에서 T/H와 다르다는 것을 말해 주는데 그 이유는 앞서 언급한 바와 같이 작물체의 수분흡수는 잎의 기공 뿐 아니라 많은 부분은 상대적으로 농도가 낮은 토양의 뿌리를 통해 이루어지기 때문이다. 잎에 대한 T/H 감소분율  $RF_1$  도 이와 유사하게 설명될 수 있다. Isotopic discrimination 인자  $ID_{pp}$  는 작물체의 수분에서 T/H와 유기물에서 T/H의 차이를 반영하기 위해 도입되었다. 광합성 작용의 과정에서 질량의 차이로 유기물로의 이동은 삼중수소가 수소보다 느리지만 삼중수소-탄소 결합이 수소-탄소 결합보다 강하여 분해는 상대적으로 잘 이루어지지 않는다. 이러한 상반된 효과의 영향으로 작물체의 유

기물내에서 T/H는 수분내에서 T/H에 비해 약 20%~35% 정도 낮은 것으로 보고되고 있다. NEWTRIT 모델에서 적용되는 변수 값을 표 1에 나타냈다.

Table 1. Suggested parameter values in NEWTRIT model for calculating HTO and OBT concentrations of plant products[3].

변수 \ 작물	엽채류	과일류	기타작물	곡류	목초
(T/H) 감소분율 ( $RF_{pp}$ )	0.9	0.8	0.8	0.8	0.9
잎에 대한 (T/H) 감소분율 ( $RF_1$ )	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9
Isotopic discrimination factor ( $ID_{pp}$ )	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9
수분 분율 ( $F_{wf,pp}$ )	0.906	0.853	0.824	0.117	0.8
건조물 분율 ( $F_{dm,pp}$ )	0.094	0.147	0.176	0.883	0.2
수분 증가인자 ( $W_{eq,pp}$ )	0.6	0.59	0.58	0.577	0.616

축산물에 대한 HTO와 OBT 농도 ( $C_{ap}$ , Bq kg<sup>-1</sup>-fresh)는 다음 식으로 평가된다.

$$C_{ap,HTO} = [RF_{pp} F_{fr} + RF_1 ID_{pp} D_{fr} + W_{fr} RF_{dw} + ISA_{fr}] C_{am} F_{wf,ap} \quad (4)$$

$$C_{ap,OBT} = [RF_{pp} F_{fr} + RF_1 ID_{pp} D_{fr} + W_{fr} RF_{dw} + ISA_{fr}] C_{am} F_{dm,ap} W_{eq,ap} \quad (5)$$

여기서,

$F_{fr}$ : 사료 수분에 의한 물 공급분율

$D_{fr}$ : 사료 건조물에 의한 물 공급분율

$W_{fr}$ : 가축 공급용 음용수에 의한 물 공급분율

$RF_{dw}$ : 공기 수분내 HTO 농도에 대한 음용수내 HTO 농도 분율

$ISA_{fr}$ : 가축의 호흡과 피부흡수에 의한 물 공급분율

$F_{wf,ap}$ : 축산물의 수분 분율 (kg kg<sup>-1</sup>-fresh)

$F_{dm,ap}$ : 축산물의 건조물 분율 (kg kg<sup>-1</sup>-fresh)

$W_{eq,ap}$ : 축산물의 수분 증가인자 (L kg<sup>-1</sup>)

NEWTRIT 모델에서 축산물에 대한 HTO와 OBT 농도를 평가하기 위해 적용되는 변수값을 표 2에 나타냈다[3].

HTO의 환경방출로 인한 인체로의 피폭경로는 식품섭취에 의한 영향 뿐 아니라 호흡, 피부흡수, 음용수 섭취에 의한 영향도 고려된다. 피부흡수에 의한 선량은 호흡에 의한 선량의 50%, 사람이 섭취하는 음용수는 10%가 오염되었다고 가정한다. 음용수를 포함한 식품섭취에 따른 피폭선량은 식품의 농도, 섭취율, 선량환산인자를 곱하여 평가한다. 또한 흡입에 의한 피폭선량은 공기중 농도, 호흡율, 선량환산인자를 곱하여 평가한다.

## 2.2 NRC 모델

원자력시설로부터 환경으로 방출되는 삼중수소는 모두 HTO로 가정하며, 식품의 오염은 단지 HTO 형태로 오염되어 이를 섭취함으로써 인체에 대한 피폭영향을 준다고 가정한다. NRC 모델은 Anspaugh 등에 의해 제안된 모델[8]에 근거하며, 작물체 수분내에서 T/H는 공기 수분내에서 T/H의 50% ( $F_{cr} = 0.5$ )로 가정한다.

Table 2. Suggested parameter values in NEWTRIT model for calculating HTO and OBT concentrations of animal products[3].

변수	축산물				
	난류	우유	쇠고기	돼지고기	가금류
작물 수분에 의한 수분 섭취분율 ( $F_{fr}$ )	0.034	0.371	0.409	0.031	0.034
작물의 건조물에 의한 수분 섭취분율 ( $D_{fr}$ )	0.149	0.065	0.074	0.135	0.149
음용수에 의한 수분 섭취분율 ( $W_{fr}$ )	0.781	0.544	0.490	0.782	0.781
흡입/피부흡수에 의한 수분 섭취분율 ( $ISA_{fr}$ )	0.036	0.021	0.028	0.052	0.036
공기 수분에 대한 음용수 HTO 농도비 ( $RF_{dw}$ )	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
수분분율 ( $F_{wf,ap}$ )	0.74	0.897	0.668	0.50	0.67
건조물분율 ( $F_{dm,ap}$ )	0.26	0.103	0.332	0.50	0.33
수분 등가인자 ( $W_{eg,ap}$ )	0.835	0.669	0.795	0.904	0.796

(주) 돼지와 가금류는 1년 내내 건조물만을 섭취하며, 젖소와 육우는 8개월은 목초를 4개월은 건조물을 섭취한다고 가정

$$C_{pp} = C_a F_{wf,pp} \left( \frac{F_{cr}}{H} \right) \tag{6}$$

여기서 작물체의 수분함량 분율  $F_{wf,pp}$  는 작물의 종류에 관계없이 75%를 가정한다. NEWTRIT 모델에서 기술한 바와 같이 작물체의 수분 흡수는 많은 부분이 뿌리를 통해 이루어지기 때문에 NRC 모델에서는 공기 수분내에서 T/H에 대한 작물체 수분내에서 T/H를 50%로 가정하고 있는 것으로 추측된다. 축산물에 대한 농도는 사료에서 축산물의 핵종 전이계수  $F_m$  ( $d L^{-1}$  또는  $d kg^{-1}$ )를 사용하여 평가한다.

$$C_{ap} = C_{pp} Q_F F_m \tag{7}$$

여기서,

$Q_F$  : 가축의 사료 섭취율 ( $kg$ -fresh  $d^{-1}$ )

$F_m$  : 사료에서 축산물의 핵종 전이계수 ( $d L^{-1}$  또는  $d kg^{-1}$ -fresh)

NRC 모델에서는 사람이 섭취하는 음용수의 오염에 따른 피폭영향 평가에 대한 지침은 제공하고 있지 않다. 이는 NRC의 규제지침에서 기술한 바와 같이 음용수에 의한 피폭선량은 원자력발전소 주변 주민이 다양한 경로를 통해 받을 수 있는 총 피폭선량의 10% 이하로 판단하기 때문인 것으로 추측된다. 피부흡수에 의한 피폭영향은 오염공기 흡입에 의한 영향의 50%로 가정하며, 이를 반영하기 위해 흡입에 의한 선량환산인자에 1.5를 곱한 값이 적용된다. 피폭선량은 NEWTRIT 모델과 마찬가지로 식품내 농도에 식품 섭취량, 호흡량 등 여러 인자를 곱하여 평가된다.

### 2.3 AIRDOS-EPA 모델

원자력시설의 운영으로 인해 환경으로 방출되는 삼중수소는 NRC 모델과 마찬가지로 모두 HTO로 가정하며, 식품은 단지 HTO 형태로 오염되어 이를 섭취함으로써 인체에 대한 피폭영향을 준다고 가정한다. 그러나 NRC 모델과 달리 작물체 수분내에서 T/H는 공기 수분내에서 T/H와 동일하다고 가정하며 ( $F_{cr} = 1$ ), 식품섭취에 의한 피폭선량 ( $D_{fp}$ ,  $mSv yr^{-1}$ )은 식품의 소비에 따른 수분의 섭취량에 근거하여 평가한다.

$$D_{fp} = 0.365 C_a \left( \frac{F_{cr}}{H} \right) U_{tw} F_{wc} DF_g \quad (8)$$

여기서,

0.365 : 단위환산인자

$U_{tw}$  : 식품의 소비에 따른 총 수분의 섭취량 (=1,600 g d<sup>-1</sup>)

$F_{wc}$  : 식품의 섭취에 따른 수분 섭취분율 (농작물 : 0.505, 육류 : 0.185, 우유 : 0.31)

$DF_g$  : 섭취에 의한 선량환산인자 (mSv Bq<sup>-1</sup>)

사람이 섭취하는 음용수 섭취에 의한 피폭영향을 고려하며, 음용수는 1%가 오염된 것으로 가정한다. 피부흡수에 의한 피폭선량은 오염공기 흡입에 의한 영향의 50%로 가정한다. 흡입에 의한 피폭선량은 다른 모델과 마찬가지로 공기중 농도, 호흡율, 선량환산인자를 곱하여 평가한다.

### 3. 결과 및 고찰

원자력시설의 운영중 환경으로 방출되는 삼중수소로부터 주변주민이 받을 수 있는 피폭영향에 대해 NEWTRIT 모델, NRC 모델, AIRDOS-EPA 모델을 사용한 적용결과를 고찰하였다. 상기 언급한 3가지 모델에서는 섭취되는 오염 식품의 분율 등 부지특성 변수치를 고려할 수 있는 유연성이 있으나 본 연구의 취지상 이들 변수에 의한 영향은 고려하지 않았다. 바꾸어 말하면 피폭자는 평가하고자 하는 지점에서 일년내내 거주하고 동일지점에서 생산된 식품을 전량 소비하며, 동일지점에서 생산된 사료를 전량 가축의 사육을 위해 공급된다고 가정하였다. NRC 모델은 국내 원자력시설의 운영에 따른 주민선량평가의 기본 골격으로 사용되고 있으며[9], 식품 소비량과 호흡량 등과 같은 모델의 일부 변수 값은 국내 또는 부지 특성치를 고려하여 평가하고 있다. 국내 원자력시설의 운영에 따른 주민선량평가에 적용되고 있는 식품 소비량과 사료에서 축산물로의 전이계수 값을 표 3[9]에 나타냈으며, 모델간 예측결과의 상호비교를 위해 3가지 모델에 동일하게 적용하였다. 또한 국내 성인에 대한 호흡량은 7,400 m<sup>3</sup> yr<sup>-1</sup>이며[9], 선량환산인자는 국제 방사선방호위원회의 권고 (ICRP-60)에 따라 HTO의 섭취와 흡입에 대한 유효 선량환산인자 1.8 x 10<sup>-8</sup> mSv Bq<sup>-1</sup>, 섭취에 대한 OBТ의 유효 선량환산인자 4.2 x 10<sup>-8</sup> mSv Bq<sup>-1</sup>를 적용하였다[10]. 사람이 섭취하는 음용수 섭취량은 NEWTRIT 모델에서 권고하는 440 L yr<sup>-1</sup>를 적용하였다[3]. 삼중수소는 모두 HTO 형태로 환경으로 방출되며, 이 때 공기중 HTO의 연간 평균 농도는 1 Bq m<sup>-3</sup>으로 가정하였다.

Table 3. Parameter values to be applied for off-site dose calculation due to the operation of domestic nuclear facilities[9].

변수 식품	식품 소비량 <sup>1)</sup> (kg-fresh yr <sup>-1</sup> )	사료에서 축산물로의 전이계수 (d kg <sup>-1</sup> )
곡류	188.5	-
엽채류 <sup>2)</sup>	193.0	-
과일류	66.3	-
우유	63.0	1.0 x 10 <sup>-2</sup>
쇠고기	20.7	1.2 x 10 <sup>-2</sup>
돼지고기	12.4	1.2 x 10 <sup>-2</sup>
닭고기	22.0	1.2 x 10 <sup>-2</sup>

<sup>1)</sup> 성인에 대한 최대 소비량

<sup>2)</sup> 김치 포함

그림 1은 NEWTRIT 모델에 의한 식품내 삼중수소 농도의 예측결과를 나타냈다. 대부분 식품에서 HTO 농도가 OBT 농도보다 높게 평가되나 곡류와 돼지고기의 경우에는 OBT 농도가 HTO 농도에 비해 높거나 유사하게 나타났다. 그 주된 이유로 곡류는 다른 식품에 비해 건조물의 함량이 약 88%로 월등히 높으며, 돼지고기는 건조물의 함량과 수분 증가인자 등이 상대적으로 높기 때문이다. 삼중수소 농도 (HTO와 OBT 농도의 합)에 대한 OBT 농도의 비는 농산물 식품 중에서는 곡류가 약 81.5%로 가장 높고 엽채류는 약 5.3%로 가장 낮게 나타났다. 또한 축산물 식품 중에서는 돼지고기가 약 47.5%로 가장 높은 반면 우유는 약 7.1%로 가장 낮게 나타났다.

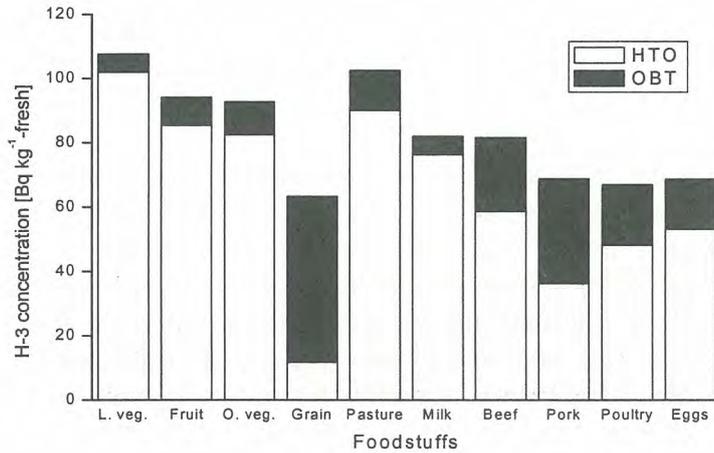


Fig. 1. Tritium concentration in foods predicted from NEWTRIT model ; It is assumed that HTO concentration in air is 1 Bq m<sup>-3</sup>.

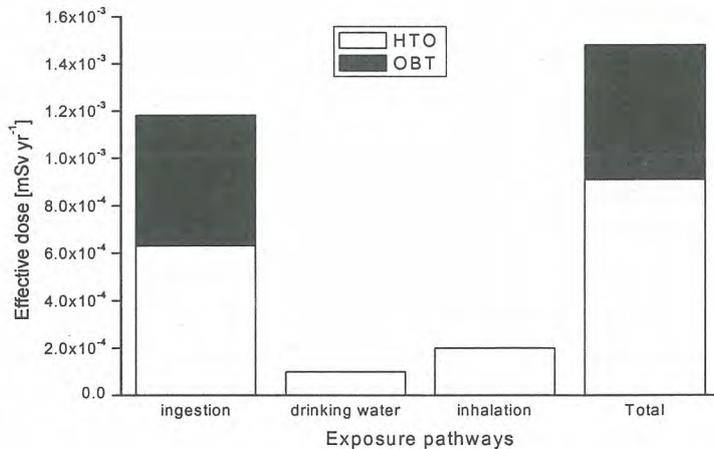


Fig. 2. Effective dose as a function of exposure pathways predicted from NEWTRIT model ; It is assumed that HTO concentration in air is 1 Bq m<sup>-3</sup>.

그림 3은 3가지 다른 모델을 사용하여 평가한 농산물과 축산물 식품의 섭취에 따른 피폭선량을

나타났다. HTO 영향만을 고려할 경우 농산물과 축산물 식품 모두에 대해서 AIRDOS-EPA 모델로 예측된 피폭선량이 가장 높고 NRC 모델로 예측된 피폭선량이 가장 낮게 평가되었다. 이러한 예측결과와의 근본적 차이는 공기 수분에 대한 작물체 수분에서 농도간의 비에 대한 가정에 있다. 우리나라의 주식인 곡류에 대해서는 모델의 예측결과 간에 큰 차이를 나타냈다 (NRC 모델과 NEWTRIT 모델의 예측결과는 각각  $1.59 \times 10^{-4} \text{ mSv yr}^{-1}$ ,  $4.0 \times 10^{-5} \text{ mSv yr}^{-1}$ ; AIRDOS-EPA 모델은 농산물의 종류를 세분화하지 않음). 이는 앞서 설명한 모델의 근본적 가정뿐 아니라 작물체의 수분함량 분율에 큰 차이를 나타내고 있기 때문이다 (NRC 모델과 NEWTRIT 모델은 각각 75%, 11.7%로 가정). 그러나 NEWTRIT 모델에서 OBT의 영향을 고려할 경우에는 전혀 다른 결과를 나타냈다. NEWTRIT 모델에서 HTO 영향만을 고려할 경우 모든 식품의 섭취에 대한 곡류의 피폭선량 기여는 약 6%에 불과하였으나 OBT의 영향을 포함할 경우에는 약 38%를 차지했으며, 이는 고려되는 여러 식품 중에서 가장 높은 피폭선량의 기여를 나타냈다. NRC 모델의 예측결과에서 모든 식품의 섭취에 대한 곡류의 피폭선량 기여는 NEWTRIT 모델의 예측결과와 유사하게 약 38%를 차지했다. NRC 모델과 AIRDOS-EPA 모델은 HTO만을 고려하고 있으며, 농산물 식품에 대해 AIRDOS-EPA 모델의 예측결과는 NRC 모델의 예측결과에 비해 약 1.8배 높게 평가되었다. 피폭선량과 직접 비례하는 농산물 식품섭취에 따른 수분 섭취량은 NRC 모델이 AIRDOS-EPA 모델의 가정보다 높은 값을 나타낸다. AIRDOS-EPA 모델에서는 농산물 식품섭취에 따른 수분 섭취량을 약  $808 \text{ g d}^{-1}$ 로 가정하며, NRC 모델에서는 모든 작물체의 수분비를 75%로 가정할 경우 환산하면 수분 섭취량은 약  $920 \text{ g d}^{-1}$ 에 해당한다. 그러나 공기 수분내에서 T/H에 대한 농산물 수분내에서 T/H의 비에 대한 가정은 AIRDOS-EPA 모델이 NRC 모델보다 2배 높다. 축산물 식품의 섭취에 따른 피폭선량은 AIRDOS-EPA 모델의 예측결과가 NRC 모델에 비해 10배 이상 높게 평가되었다. 이러한 차이는 공기 수분내에서 T/H에 대한 가축사료 수분내에서 T/H의 비, 축산물 식품섭취에 따른 수분 섭취량, 수학적 모델의 차이 (NRC 모델에서는 사료에서 축산물로의 핵종 전이계수를 사용하여 축산물의 농도로부터 피폭선량을 예측하나 AIRDOS-EPA 모델에서는 사료의 농도와 축산물 섭취에 따른 수분섭취량으로부터 직접 피폭선량을 예측함) 등에 기인한다. 이들 각 변수는 모두 AIRDOS-EPA 모델의 예측결과가 NRC 모델에 비해 높은 예측결과를 갖게 한다.

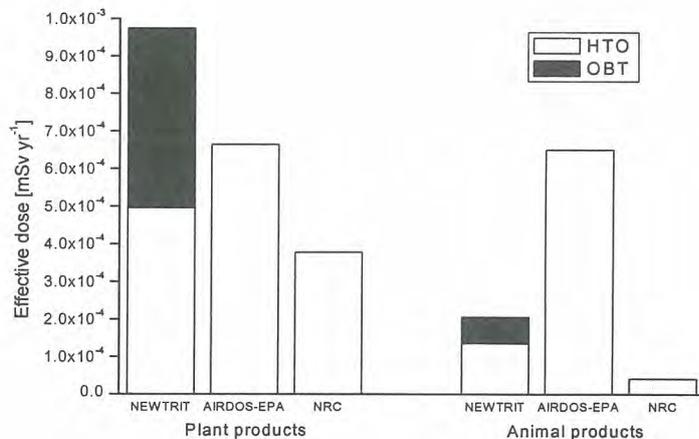


Fig. 3. Comparison of predictive results among the models for plant and animal products ; It is assumed that HTO concentration in air is  $1 \text{ Bq m}^{-3}$ .

그림 4는 3가지 다른 모델을 사용하여 평가한 피폭경로별 선량을 나타냈다. 삼중수소의 환경방출로 인해 모든 경로로부터 받게 되는 총 피폭선량은 AIRDOS-EPA 모델의 예측결과가 가장 높게 나타났다. AIRDOS-EPA 모델의 예측결과는 NEWTRIT 모델과 NRC 모델의 예측결과에 비해

각각 1.03배, 2.46배 높은 결과를 나타냈다. 피폭경로별 중요도는 3가지 다른 모델의 예측결과에 대해 일관성을 보이는데 식품섭취, 호흡, 음용수 섭취 (NRC 모델에서는 고려되지 않음)의 순으로 높았다. NRC 모델이 상대적으로 낮게 평가되고 있는데, 이러한 결과로부터 NRC 모델이 실제 주변주민이 받을 수 있는 피폭선량을 과소평가하고 있다고 이해해서는 안될 것이다. 왜냐하면 삼중수소의 환경내 거동에 대한 불확실성은 매우 크기 때문에 규제이행을 위한 주민선량 평가에서는 앞서 언급한 바와 같이 피폭자는 평가하고자 하는 지점에서 일년내내 거주하며, 동일지점에서 생산된 식품을 전량 소비한다는 현실적으로 불가능한 극히 보수적 가정에 근거하기 때문이다. 다른 모델에 비해 상대적으로 낮게 평가되는 NRC 모델의 예측결과 조차도 식품의 유통경로 등과 같은 부지 특성자료를 고려할 경우 피폭선량은 약 1/4로 낮출 수 있다고 보고되고 있다[2].

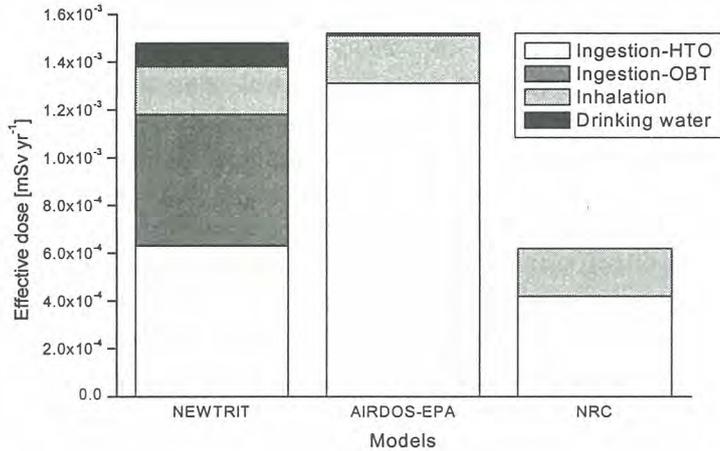


Fig. 4. Comparison of predictive results among the models as a function of exposure pathways ; It is assumed that HTO concentration in air is 1 Bq m<sup>-3</sup>.

#### 4. 결론

삼중수소의 환경방출에 따른 주민선량의 규제이행을 위해 개발된 NEWTRIT 모델, NRC 모델, AIRDOS-EPA 모델의 평가 방법을 고찰하고, 활용 가능한 국내 특성자료를 사용하여 예측결과를 비교하였다.

평가결과 삼중수소의 환경방출로 인해 모든 가능한 경로로부터 받게 되는 총 피폭선량은 AIRDOS-EPA 모델의 예측결과가 NEWTRIT 모델과 NRC 모델에 비해 각각 1.03배, 2.46배 높은 결과를 나타냈다. 이러한 결과로부터 NRC 모델로 예측되는 피폭선량이 실제 주변주민이 받을 수 있는 피폭선량을 과소평가할 수 있다고 이해해서는 안될 것이다. 왜냐하면 삼중수소의 환경내 거동에 대한 불확실성은 매우 크기 때문에 규제이행을 위한 수학적 모델과 관련 변수 값은 극히 보수적 가정에 근거하기 때문이다. NEWTRIT 모델로 예측된 식품섭취에 의한 피폭선량에서 우리나라의 주식인 곡류의 상대적으로 많은 섭취로 OBT는 HTO와 거의 대등한 수준의 영향을 나타내었다. 삼중수소의 환경방출에 따른 총 피폭선량에서 NEWTRIT 모델은 AIRDOS-EPA 모델과 유사한 예측결과를 나타내지만, NEWTRIT 모델은 식품섭취에 따른 OBT의 영향을 고려함으로써 환경으로 방출된 HTO 거동의 현상적 이해 등에 있어서 보다 의미가 있다고 판단된다.

참고문헌

1. A. G. Evans, "New Dose Estimates from Chronic Tritium Exposures", Health Physics 16(1), 57-67 (1969).
2. J. E. Till and E. L. Etnier and H. R. Meyer, "Methodologies for Calculating the Radiation Dose to Man from Environmental Releases of Tritium", Nuclear Safety 22(2), 205-213 (1981).
3. S-R. Peterson and P. A. David, "Tritium Doses from Chronic Atmospheric Releases : A New Approach Proposed for Regulatory Compliance", Health Physics 82(2), 213-225 (2002).
4. Nuclear Regulatory Commission, Regulatory Guide 1.109, Rev. 1, "Calculation of Annual Doses to Man from Routine Releases of Reactor Effluents for the Purpose of Evaluating Compliance with 10 CFR Part 50, Appendix I" (1977).
5. R. E. Moore et al., "AIRDOS-EPA : A computerized Methodology for Estimating Environmental Concentrations and Dose to Man from Airborne Releases of Radionuclides", Report EPA 520/1-79-009 (PB 90-147838), Environmental Protection Agency (1979).
6. National Council on Radiation Protection and Measurements, "Tritium in the Environment", NCRP Report No. 62 (1979).
7. J. E. Till and H. R. Meyer, "Radiological Assessment - A Textbook on Environmental Dose Analysis", U. S. Nuclear Regulatory Commission, NUREG/CR-3332, ORNL-5968 (1983).
8. L. R. Anspaugh et al., "Dose to Man Via Food-Chain Transfer Resulting from Exposure to Tritiated Water Vapor", UCRL-73195 Rev. 1 (1972).
9. 한국에너지연구소, "고리 주변 환경종합평가 및 관련모델개발 : 고리 원자력 주변 주민피폭선량 계산지침서", KAERI/NSC-397/89 (1989).
10. International Commission on Radiological Protection, "1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection", ICRP Publication 60 (1991).

## 월성원전 방사선비상계획구역에 대한 주민소개시간 산정 예비결과

정양근, 이갑복, 김성민, 방선영

한국전력공사 전력연구원, 대전시 유성구 문지동 103-16

원자력발전소 사고시 다량의 방사선물질이 주변 환경으로 누출되어 인근 주민들에게 일정기준 이상의 방사선량 피폭이 예상될 경우, 주민보호조치의 일환으로 소개시키는 방법이 고려된다. 지금까지 국내에 수립되어 있는 소개시간 추정방법의 전반적인 가정 및 분석절차는 미국 관련규정 NUREG-0654[1]를 준용하고 있으나 원전 주변의 교통흐름 분석 등이 고려되지 않은 단순가정에 근거하고 있어 예상되는 사고 시나리오의 상황을 적절히 반영하기 어렵다.

교통흐름 모형으로 미시적 교통통제시스템인 NETSIM[2]은 도시내의 교통을 정밀하게 모사하는 것이 특징으로 차량추종이론에 의해 각각 차량의 이동상황을 매초간격으로 계산하여 도로 네트워크상의 교통흐름을 분석하는 모델이다.

NETSIM 코드에서는 교차로에서의 병목현상으로 인한 지체시간 및 비상계획구역을 벗어나는 시간대별 차량수를 계산하여 전체적인 소개시간을 산정하게 된다. 이러한 출력결과를 얻기 위해 도로의 기하학적 구조(차로, 교차로 등), 도로상태, 지역·시간별 소개차량 분포 등이 필요하다.

본 연구에서는 월성원전을 대상으로 미시적 교통흐름분석 시뮬레이션 NETSIM을 이용하여 방사선비상구역내 주민들의 소개시간을 산정하였다[3]. 월성원전 주변지역의 교통흐름분석을 위해 제반 교통현황여건 및 계절별·요일별 교통량조사를 실시하였다. 교통환경 분석에 필요한 자료의 수집과 교통특성 파악을 위해 2004년 7월부터 2005년 2월까지 3차에 걸친 현장조사를 실시하였으며, 그 결과로 계절별·요일별 배경교통량과 관광지별 차량 유입대수를 도출하였다.

교차로에서의 차량 통행방법은 우선통행순위를 직진, 좌회전, 우회전 순으로 정했으며 우선순위 차량이 포화일 경우에 차순위 차량은 정체를 하는 것으로 가정하였다. 이는 직진차량의 정체는 바로 원전 부근에서 차량의 정체를 유발하기 때문에 이를 방지하기 위함이다.

비상계획구역으로의 차량유입 통제 및 회전을 변경은 그룹 I 지역(반경 2km이내)은 소개결정후 45분부터, 기타지역(반경 2km~8km이내)은 소개결정후 1시간부터 이루어지며, 비상계획구역내 진입차량은 교통혼잡을 피하기 위해 U-turn 하지 않는 것으로 가정하였다.

계절별 교통량조사 및 분석을 실시한 결과 계절별 첨두일 교통량은 관광객의 유입에 의해 주말에 나카나고 있다. 본 연구에서는 미국 NUREG-0654에서 제시하는 조건을 고려하여 평상 및 첨두교통일에 대해 <표 1>과 같이 시나리오를 설정하였다. 소개차량 도로유입율은 소개시작시간을 5등분하여 총 누적 소개차량을 Trip Loading Curve라고 하는 S자 curve의 원칙으로 배분하였다.

본 논문에서 제시된 월성원전에 대한 주민소개시간 산정결과는 교차로회전을 등에 대해 최적화 과정을 거치지 않은 예비적인 결과이다. 본 연구에서는 월성원전에 대한 주민소개시간 산정 프로그램 체계를 구축하기 위해 예비적으로 평상교통/여름철 첨두교통/겨울철 첨두교통, 주/야간, 평기상/악기상 등 모두 6가지 경우를 가정한 시나리오에 대해 모의 시뮬레이션을 수행하였다.

<그림 1>은 31번국도의 EPZ 경계 남단과 북단에서 모든 소개차량(인구)이 비상계획구역을 벗어나는 데 걸리는 시간을 나타낸 것이다. 비상계획구역내 전 주민을 소개하는데 걸리는 시간은 전체적으로는 210 ~ 360분 정도로 마지막 소개대상차량이 도로로 유입된 후 최대 160분 정도 소요된다. 소개시간은 밤이 낮보다 약 120분정도 더 소요되며, 기상상태가 좋지 않을 경우도 최대 120분 정도가 더 소요되는 것으로 모의되었다. 이는 낮보다 밤의 경우가 도로자유속도가 더 작고, 평기상보다 악기상의 경우가 또한 더 작아서 나타난 결과로 판단된다.

향후 교차로 회전에 대한 최적화, 지방도 929호선 노선 확장공사 등에 대한 교통여건 등을 반영하여 보다 실제적인 주민소개시간 산정이 수행될 예정이다.

감사의 글

본 논문은 과학기술부 원자력 중장기사업 “방사선비상시 주민소개시간 산정기술개발”의 일환으로 수행되었습니다.

참 고 문 헌

- [1] US Nuclear Regulatory Commission, "Criteria for Preparation and Evaluation of Radiological Emergency Response Plans and Preparedness in Support of Nuclear Power Plants", US NRC, NUREG-0654 Rev. 1, 1980
- [2] US FHWA, "CORSIM User's Manual ; Version 5.0", Federal Highway Administration of US Department of Transportation, 2001
- [3] 정양근 등, “방사선 비상시 주민소개시간 산정기술 개발”, 과제최종보고서, 과학기술부, 2005

Table 1. Scenarios for Evacuation Time Estimate

항목		평상교통		여름철 첨두교통		겨울철 첨두교통		
		주간	야간	주간	야간	주간	야간	
		평기상	악기상	평기상	악기상	평기상	악기상	
도로 자유속도 (mile/hour)		37	15	37	15	37	15	
내부 배경교통 유입율 (대/hour)		60	30	80	40	80	40	
배경 교통유입량 (대/hour)	북단	국도 4호선	301	151	778	389	358	179
		국도 14호선	31	16	149	75	55	28
		국도 31호선	281	141	906	453	569	285
	남단	275	138	541	271	240	120	

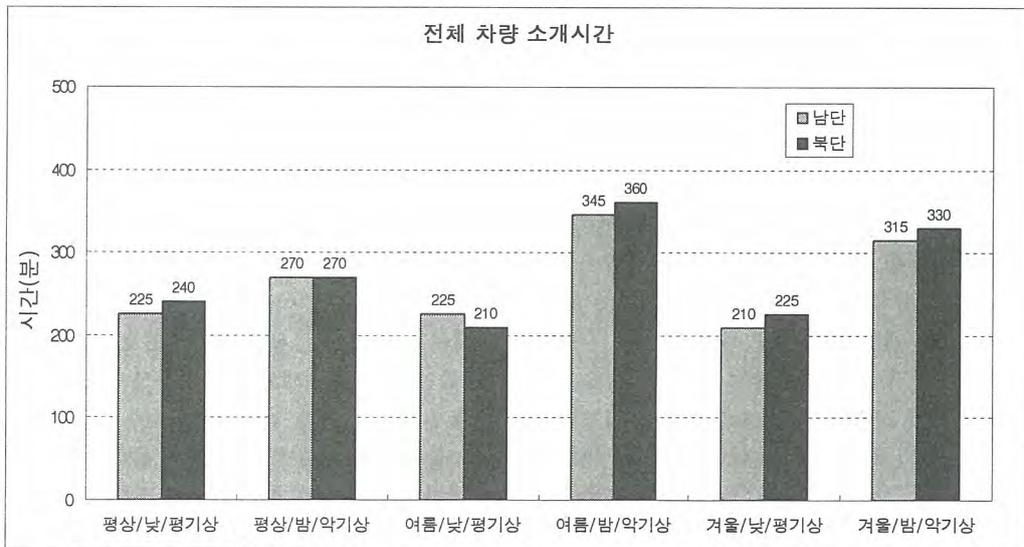


Fig. 1. Results of Evacuation Time Estimate by Scenario

## Research on the Transfer Factor for $C^{14}$ Ingestion Dose Evaluation in PWR plant

### PWR 발전소에서 $C^{14}$ 섭취선량 평가를 위한 전이계수 연구

김승평\* · 한영옥\* · 박경록\*\*

조선대학교\*, 한수원(주)원자력환경기술원\*\*

Soong-Pyung Kim<sup>\*</sup>, Young-Ok Han<sup>\*</sup>, Kyeong-Rok Park<sup>\*\*</sup>)  
CHOSUN University<sup>\*</sup>, KNETEC<sup>\*\*</sup>)

#### Abstract

This paper is to evaluate rather correctly  $C^{14}$  ingestion dose that inhabitants around PWR plants can receive, and draw how to apply TF(Transfer Factor) to evaluate dose by the ingestion of animal products. For this, in this paper, dose assessment and analysis about existing materials related to TF were carried out, and the methodology to present TF was based on dose assessment and analysis result.

The ingestion dose calculated using TFs presented by CSA and KEPRI was high or equal compared with SAM(Specific Activity Model) which is the most conservative, on the other hand, TFs given by NEC did not consider the effect according to volume change of animal at all, Therefore, it is judged that models used in the existing codes to asses the  $C^{14}$  concentration into animal products must be improved to apply fundamentally hybrid model using transfer factors, that transfer factor on each animal products have to be developed through experiment for applying to our country.

**key word :  $C^{14}$  Ingestion Dose, Animal Transfer Factor**

#### 요 약

본 논문은 PWR 발전소에서 환경으로 방출된 기체 형태의  $C^{14}$ 에 의해 발전소 주변 주민이 받을 수 있는 선량을 비교적 정확하게 평가하기 위한 것으로 국내의 선량평가 프로그램에서는 축산물 섭취선량을 평가하기 위해 동물성 전이계수를 적용하고 있지만 전적으로 해외의 자료를 적용하고 있고, 동물의 체적에 따른 영향을 반영하지 못하고 있다. 본 연구에서는 동물성 전이계수 관련 자료 및 개발 방법론에 대한 분석을 수행함과 동시에  $C^{14}$  피폭선량을 평가하였고, 그 결과에 근거하여 국내 환경을 충분히 고려할 수 있는 동물성 전이계수 적용 방안을 도출하였다.

CSA 및 KEPRI에서 제시한 자료를 적용하여  $C^{14}$  피폭선량을 계산한 결과 가장 보수적인 비방사능 모델에 비해 높거나 동일한 결과를 주었는데 이는 물리적으로 타당성이 없는 결과였고, NRC에서 제시한 자료를 적용한 경우 피폭선량은 낮게 나타났지만 동물의 체적변화에 따른 영향을 전혀 반영하지 못하고 있었다. 따라서 경제 성장에 따른 축산물 섭취량 증가와 발전소 주변 환경을 충분히 반영함으로써  $C^{14}$ 에 의해 발전소 주변 주민이 받을 수 있는 피폭선량을 비교적 정확하고 현실성 있게 평가하기 위해서는 실험을 통해 동물성 전이계수를 제시해야 할 것으로 판단되며 이에 대한 구체적인 실험 방법 및 방안은 제시하였다.

**요약어 :**  $C^{14}$  섭취선량, 동물성 전이계수

## 1. 서 론

반감기가 5,730년인  $C^{14}$ 는 순수 베타 방출핵종으로 원자로 내에서  $C^{14}$ 의 주 생성원은 냉각재, 감속재, 구조재, 연료물질 등에 포함된 탄소, 산소, 질소의 중성자 포획반응에 의한 것으로 원자로에서 생성되는 양은 발전소 설계 및 운전 조건과 계측 조건에 따라 다르고, 발전소 내에서 생성된  $C^{14}$ 는 컨테이너먼트나 발전소 배기계통 등을 통해 환경으로 방출된다.  $C^{14}$ 의 방출 화학형태는 크게  $CO_2$ 와 C-유기물 형태로 PWR 발전소에서  $CO_2$ 와 C-유기물 형태로 방출되는 평균 분율은 각각 20%, 80% 정도인 것으로 알려져 있지만[1], 발전소 설계 및 운전 조건과 계측 조건에 따라 많은 차이가 있다.

$C^{14}$  섭취선량이 총 피폭선량의 99% 정도를 차지하는 것으로 알려져 있지만[2] 국내에서  $C^{14}$  선량평가를 위해 사용되는 프로그램에서는[3, 4] 축산물 섭취에 따른 선량을 평가할 때 가장 보수적인 비방사능 모델을 적용하거나 NRC에서 제시한 동물성 전이계수를 적용하고 있다. NRC에서는 우유와 육류에 대한 전이계수로 각각 0.012와 0.031을 제시하였지만 육류의 경우 동물의 체적에 따라 동물체 내에서  $C^{14}$  거동 메커니즘에 차이가 있을 수 있는데 이러한 현상을 반영하지 못하는 단점을 가지고 있다.

따라서 경제 발달에 따라 축산물 섭취량은 지속적으로 증가하는 추세를 보이고 있는 국내의 환경과 발전소 주변 특성을 충분히 고려할 수 있는 동물성 전이계수를 실험을 통해 제시함으로써 축산물 섭취에 따른  $C^{14}$  피폭선량을 보다 현실적이고 정확하게 평가할 필요가 있다.

## 2. 연구 내용

현재 전 세계적으로 식물체 및 축산물에서  $C^{14}$  농도를 구하는데 가장 널리 사용되고 있는 모델은 비방사능 및 하이브리드 모델로 발전소 정상가동 중 환경으로 방출된  $C^{14}$  선량평가에 가장 적합한 모델이라고 할 수 있다.

비방사능 모델은 음식물 섭취에 의한 선량을 가장 보수적으로 구하는 방법으로서 환경에서 천연 탄소와 방사성 탄소의 농도비( $C^{14}/C^{12}$ )가 공기 중의 농도비( $C^{14}/C^{12}$ )와 같다는 가정과 방사성 붕괴는 일어나지 않는다고 가정하여 음식물 내에서  $C^{14}$  방사능 농도를 구하고 있다.

기존의 연구 결과[2]에 의하면  $C^{14}$ 가 발전소로부터 만성적으로 방출되거나 자연적으로 생성되는 경우에 비방사능 모델을 적용하여 식물체 내에서  $C^{14}$  농도를 예측하는 것이 적절한 방법이라고 보고 되었다[2]. 그러나 이 모델은 시간 항이 없기 때문에 발전소로부터  $C^{14}$ 가 비정상적으로 방출되거나 과도 및 사고 상태에 따라 환경에서의  $C^{14}$  농도 변화가 있을 경우에는 예측하기 어렵다는 단점이 있다.

또한, 연구결과에 의하면[2] 농·축산물에서 천연 탄소와 방사성 탄소의 농도비( $C^{14}/C^{12}$ )가 공기 중의 농도비( $C^{14}/C^{12}$ )와 평형상태에 도달하는데 약 2~3개월과 1.8년이 걸리는 것으로 알려져 있지만 비방사능 모델을 적용하여  $C^{14}$  피폭선량을 계산할 경우 사용된 가정으로 인해 Time Delay를 고려할 수 없기 때문에 상당히 보수적인 결과를 가져올 수 있다.

반면, 하이브리드 모델은 농작물에서  $C^{14}$  농도를 평가할 때는 기본적으로 비방사능 모델을 적용하고 있고, 축산물에서는 전이계수(TF : Transfer Factor)를 적용하여  $C^{14}$  농도를 계산하는 방법으로 비방사능 모델에 비해 현실성 및 유연성을 가지고 있는 모델로 축산물 섭취에 따른 선량을 계산할 때 전이계수를 적용해야 할 것으로 판단되며 이에 대한 타당성은 다음과 같다.

- 동물의 경우 식물과 달리 운동성으로 인해 사료의 오염 정도가 다를 수 있음

- 또한, 동물의 사료에 포함된 탄소 함량 및 농도가 동일하더라도 이를 섭취한 동물 내에서도 부위에 따라 침적량이 다를 수 있음

- Canadian Standard CSA-N288.1[2, 5] 및 USNRC Reg. Guide 1.109[2, 4]에서도 식물체에서  $C^{14}$  농도를 구하기 위해 비방사능 모델을 사용하고 있고, 축산물에 대해서는 전이계수를 적용하여 선량을 평가하고 있음

위의 분석 결과에 근거하여 본 연구에서는 농작물에서의  $C^{14}$  농도를 계산할 때 비방사능 모델을 적용하였다. 축산물의 경우는 국가 경제의 발달에 따라 그 섭취량은 계속적으로 증가하는 추세를 보이고 있기 때문에[6] 이러한 현상을 현실적 및 물리적으로 평가하기 위해 전이계수를 적용하여 축산물 섭취선량을 평가함과 동시에 동물성 전이계수 관련 자료를 분석하였고, 그 결과에 근거하여 국내의 환경을 충분히 반영할 수 있는 동물성 전이계수 적용 및 실험 방안을 구체적으로 제시하였다.

비방사능 및 하이브리드 모델은 Time term이 존재하지 않기 때문에  $C^{14}$ 가 발전소로부터 비정상적으로 방출되는 경우 환경에서의  $C^{14}$  농도를 평가하기에는 부적합하고, 이러한 경우 AECL[2]에서 제시한 POM(Process Oriented Model)을 적용하여 선량을 계산할 수 있지만 구체적인 방법론과 선량 평가식을 제시하지는 않았기 때문에 이에 대한 추가적인 연구가 필요할 것으로 판단된다.

### 3. 전이계수 관련 자료 분석

비방사능 모델은 축산물의 운동성에 기인한 사료의 오염 정도와 동물체 내에서  $C^{14}$  거동 메커니즘을 고려하지 못하고, 또한 사용된 가정으로 인해 Time delay를 고려할 수 없기 때문에 물리적으로 상당히 보수적인 결과를 줄 수 있다. 이러한 단점을 극복함으로써 축산물 섭취에 따른  $C^{14}$  피폭선량을 보다 현실적 및 물리적으로 타당성 있게 평가하기 위해서는 전이계수를 적용하여 축산물에서  $C^{14}$  농도를 구해야 할 것으로 판단되며, NRC 및 CSA에서도 전이계수를 적용하여 축산물의  $C^{14}$  농도를 평가하고 있다[2, 4, 5].

국내의  $C^{14}$  선량평가 프로그램에서는 축산물 섭취에 따른 선량을 평가할 때 가장 보수적인 비방사능 모델을 적용하거나 전이계수를 적용하고 있지만 NRC에서 제시한 전이계수를 사용하고 있기 때문에 국내의 환경을 충분히 고려하지 못하고 있고, 또한 동물의 체적에 따라 대사 메커니즘이 다르게 나타나고 있지만 NRC의 전이계수는 이러한 현상을 반영하지 못하고 있다.

#### 3.1 전이계수 정의 및 관련 식

전이계수를 적용하여 축산물에서  $C^{14}$  농도를 계산하기 위해서는 아래의 식에서 볼 수 있듯이

동물의 사료 섭취량과 사료 내의  $C^{14}$  농도 및 전이계수를 파악해야 한다.

$$TF = \frac{C_{ap}}{C_{veg} Q_f} \quad \text{식(1)}$$

위의 식에서,  $C_{veg}$ 는 식물체에서  $C^{14}$  농도(Bq/kg)를,  $C_{ap}$ 는 축산물에서  $C^{14}$  농도를,  $Q_f$ 는 동물의 사료 섭취량(g C/kg weight)을 각각 나타내고,  $C_{veg}$ 는 다음의 비방사능 모델에 의해 계산 될 수 있다.

$$A_n^{air} = A_n^{veg} \quad \text{식(2)}$$

위의 식에서,  $A_n^{veg}$ 는 위치 n에서 식물체의 비방사능을,  $A_n^{air}$ 는 위치 n에서 공기 중의  $C^{14}$  비방사능을,  $Veg_c$ 는 식물체의 탄소함량(g C/kg weight)을 각각 나타내고, 공기 중의  $C^{14}$  비방사능은 아래의 식에 의해 계산할 수 있다.

$$C_{ac} = XOQ_n \times Q_c \quad \text{식(3)}$$

$$A_n^{air} = C_{ac}/M_c \text{ (Bq g/C)} \quad \text{식(4)}$$

위의 식에서,  $C_{ac}$ 은 위치 n에서 공기 중  $C^{14}$  농도(Bq/m<sup>3</sup>)를,  $Q_c$ 는 발전소로부터 방출량(Bq/yr)을,  $M_c$ 는 공기 중의 안정 탄소 질량(g/m<sup>3</sup>)을,  $XOQ_n$ 는 위치 n에서  $C^{14}$  대기확산인자(sec/m<sup>2</sup>)를 각각 나타낸다. 캐나다의 CSA[2, 5] 및 NRC Reg. Guide 1.109[2, 4]에서는 공기 중 안정탄소의 질량으로 0.16 g/m<sup>3</sup>을 사용하였지만 본 연구에서는 최근 전 세계적으로 탄소의 증가로 인해 안정탄소의 질량이 증가하는 추세를 반영하기 위해 0.18 g/m<sup>3</sup>을 적용하였다.

### 3.2 전이계수 개발 방법론

전이계수를 구하는 방법은 첫째, 자료 검토를 통해 국내에 가장 적합한 값을 적용하는 것이고, 둘째 실험을 수행하여 동물성 전이계수를 직접 개발하는 것이 우리나라의 현실을 가장 잘 반영할 수 있는 이상적인 방법이라 할 수 있지만 현재까지 국내에서 동물성 전이계수를 개발하기 위한 실험을 수행하지 않았기 때문에 본 연구에서는 자료 검토를 통해 전이계수관련 자료에 대한 분석을 수행하였으며, 특히 KEPRI[2]에서 전이계수를 제시하기 위해 사용한 자료 및 방법론에 대해 집중적으로 분석하였다.

1997년 전력연구원(KEPRI)에서는 월성 원전을 대상으로 12 Bq/L의  $^3H$  측정치와 0.012 kg/m<sup>3</sup>의 절대 습도를 이용하여 공기 중  $^3H$  농도를 0.144 Bq/m<sup>3</sup>로 계산하였다.  $^{13}C / ^3H$  방출비는 약 0.00227로 이 값을 사용하여 공기 중의  $C^{14}$  농도를 0.000326 Bq/m<sup>3</sup>로 계산하였고, 계산된 공기 중  $C^{14}$  농도와  $M_c$  값으로 0.18을 적용하여 계산한 결과 공기 중  $^{14}C$  비방사능은 1.811E-5 Bq/gC이었다.

식(1)을 통해 볼 수 있듯이 동물성 전이계수를 제시하기 위해서는 동물의 사료 섭취량을 파악해야 하는데 KEPRI에서는 소(젖소 포함)를 제외한 동물의 사료 섭취량으로 [표 1] 및 [표 2]에 제시된 NRC 및 K-DOSE60의 자료를 사용하였고, 소의 경우 사료 섭취량으로 fresh weight 기준이

아닌 dry weight 기준의 목초를 사용하였는데 이에 대한 타당성은 다음과 같다.

- 외국과 달리 우리나라의 경우 방목보다는 일정 공간 내에서 집단적으로 소를 사육하는 경우가 대부분이고,

- 육우 및 젖소가 섭취하는 목초를 처음 채취할 때 수분함량이 많지만 시간이 지남에 따라 건조 상태가 되기 때문에 fresh weight 기준으로 섭취량을 적용하여 선량을 평가할 경우 많은 오차를 수반할 것으로 판단됨

사료 내의  $C^{14}$  농도는 [표 1]에 제시된 사료의 탄소 함유량 자료와 비방사능 모델을 이용하여 계산하였고, 국내의 일조시간을 고려한 광합성 분율은 적용하지 않았는데 이에 대한 타당성은 다음과 같다.

- 인간이 섭취하는 목초의 경우 섭취가 주 목적이기 때문에 수확기까지 목초의 성장기간이 짧을 것으로 판단됨으로 일조시간을 고려한 광합성 분율을 적용해야 할 것으로 판단됨

- 반면, 동물 사료인 목초의 경우 사람이 섭취하는 목초와 달리 수확기까지의 성장기간이 일정하지 않고, 인간이 섭취하는 목초에 비해 성장기간이 상당히 길 수 있기 때문에 광합성 분율을 적용하지 않는 것이 타당하다고 판단됨

[표 2]를 분석해 보면 NRC 및 FOOD II [8] 모델에서는 fresh weight 기준의 섭취량을 적용하였고, K-DOSE60에서는 육우를 제외한 축산물에 대해서는 캐나다의 FOOD II 모델에서 적용하고 있는 값을 그대로 사용하고 있으며, 동물의 사료 섭취량은 각 연구기관마다 차이가 있음을 확인할 수 있다.

본 연구에서는 KEPRI에서 적용한 방법론에 따라 dry 기준의 사료 섭취량 자료를 적용하였고, 해외에서 제시한 자료와 비교 분석하였다. 비교 분석한 결과 돼지의 사료 섭취량은 CSA에서 dry 기준으로 제시한 값에 비해 약 28% 정도로 높게 나타난 반면, 나머지 사료의 경우 10% 정도 높게 나타났다. IAEA 및 NCRP에서도 dry 기준으로 사료 섭취량을 제시하였지만 육우 및 젖소의 사료 섭취량만을 제시하였기 때문에 비교 분석을 수행하는 것은 무의미 할 것으로 판단된다.

전이 계수를 적용하여 축산물에서  $C^{14}$  농도를 계산할 때 사료 오염정도 및 섭취량에 따라  $C^{14}$  농도는 다르게 나타날 것으로 판단되지만 비방사능 모델의 경우 동물의 음식물 섭취량에 무관하게 동물체에서 농도를 구하고 있는데 KEPRI에서는 동물이 섭취하는 음식물들은 모두 오염된 지역에서 나온 것이란 아주 보수적인 가정을 사용하여 위의 단점을 보완하였다.

또한, 공기와 사료의  $C^{14}$  비방사능은 서로 평형 상태에 있다는 가정과 돼지 및 닭은 곡류만을 섭취한다는 가정을 사용하였다. 위의 가정을 적용할 경우 전이계수 정의식인 식(1)은 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$TF = \frac{C_{ap}}{C_{veg} Q_f} = \frac{M_{ap}}{M_{veg} Q_f} \quad \text{식(5)}$$

위의 식에서  $M_{ap}$ 와  $M_{veg}$ 는 각각 축산물과 사료의 탄소함유량(g C/kg weight)을 나타내고 KEPRI에서는 축산물 및 사료의 탄소함유량으로 AECL에서 제시한 자료를 그대로 적용하여 제시

한 전이계수를 [표 3]에 도시하였다.

[표 3]을 분석해 보면 K-DOSE60 및 INDAC에서는 NRC에서 제시한 전이계수를 그대로 적용하고 있고, NRC에서는 육류에 대한 대표 값으로 0.031을 제시하고 있는 것을 볼 수 있다. 반면, CSA 및 KEPRI에서 제시한 전이계수는 동물의 체적이 감소함에 따라 증가하는 경향을 보이고 있는 것을 볼 수 있는데, NRC에서 제시한 전이계수는 이러한 현상을 반영하지 못하고 있다.

즉, 실험 결과에 의하면[7] 동물의 체적에 따라  $^{14}\text{C}$  잔류 및 배출 함수에 차이가 존재하는데 NRC의 전이계수는 이러한 현상을 전혀 반영하지 못하고 있다는 것이다.

[표 2]와 [표 3]을 통해 확인 할 수 있듯이 제시된 전이계수 값 및 사료 섭취량은 연구수행 기관마다 차이가 있기 때문에 각 기관에서 제시한 자료에 근거하여 선량평가를 수행하고, 그 결과에 근거하여 국내에 가장 적합한 자료를 도출해야 할 것으로 판단된다.

#### 4. $\text{C}^{14}$ 선량평가 결과

피폭선량을 계산하기 위해 가장 중요한 변수는 발전소로부터 방출되는 화학 형태별 양과 대기 확산인자로 본 연구에서는 선량평가 대상 발전소로 영광 4호기를 선정하였고  $\text{C}^{14}$  선량평가를 위해 사용된 모델 및 입력 자료를 [표 4]에 제시하였다. [표 4]에 제시된 자료를 근거로 계산한 피폭 선량 결과를 [표 5]에 나타내었고 다음과 같은 결론을 도출하였다.

- $\text{CO}_2$  와 C-유기물에 의한 호흡선량은 섭취선량의 약 0.2%로 무시할 수 있을 정도로 작은 양으로  $\text{CO}_2$  섭취선량만을 평가해도 큰 문제는 없을 것으로 판단됨
- K-DOSE60 default option은 축산물 섭취에 따른 선량을 평가할 때 광합성 분률로 0.5를 적용하였는데, 이는 물리적 타당성이 없는 option으로 비방사능 모델을 적용하여 축산물 섭취에 따른 선량을 평가할 때는 가장 보수적인 GEN II option을 적용해야 할 것으로 판단됨
- KEPRI 방법론에 따라 계산된 전이계수를 적용하여 선량을 계산한 결과 GEN II option과 동일하였는데, 이러한 경향을 보이는 것은 앞에서 언급하였듯이 축산물에서  $\text{C}^{14}$  농도를 계산할 때 비방사능 모델을 적용하여 축산물의  $\text{C}^{14}$  농도를 계산하였고, 계산된 결과에 근거하여 전이계수를 제시하였기 때문에 당연한 결과라 판단되며, 이러한 결과로부터 KEPRI 방법론에 따라 제시된 전이계수를 적용하여  $\text{C}^{14}$  선량을 계산하는 것은 의미가 없을 것으로 판단됨.
- CSA에서 제시한 전이계수를 적용하여 피폭선량을 계산한 결과 가장 보수적인 모델인 GEN II option보다 높게 나타났는데 이는 물리적인 타당성이 없는 결과로 CSA의 전이계수는 국내에 적용할 수 없을 것으로 판단됨
- NRC에서 제시한 전이계수는 육류에 대해서 일률적으로 0.031을 적용함으로써 축산물 섭취 선량을 평가하고 있는데, 동물실험 결과[7]에 의하면 동물 체적에 따라 신진대사 메커니즘이 다르게 나타나는 것으로 보고 되었지만 NRC에서 제시한 전이계수는 이러한 현상을 전혀 고려하지 못하고 있음.

이러한 분석 결과로부터 보다 현실적으로 축산물 섭취에 의한 선량을 평가하기 위해서는

NRC에서 제시한 전이계수를 그대로 적용하기보다는 국내 환경을 충분히 반영할 수 있는 전이계수를 실험을 통해 체계적으로 제시함으로써 보다 현실적인 선량평가가 필요할 것으로 판단된다.

### 5. 결 론

$C^{14}$  선량을 평가한 결과 섭취선량이 전체 피폭선량의 99% 이상을 차지하고 있고, 경제 성장에 따라 축산물에 대한 섭취량은 지속적으로 증가하고 있기 때문에 축산물 섭취에 의한 선량을 현실적으로 평가할 필요가 있다.

이를 위해 본 연구에서는 PWR 발전소로부터  $C^{14}$  방출에 의해 주변 주민이 받을 수 있는 선량을 비교적 정확하고 현실성 있게 평가하기 위해 동물성 전이계수 관련 자료에 대한 분석을 수행함과 동시에 선량평가 결과에 근거하여 동물성 전이계수 제시 및 적용 방안을 다음과 같이 도출하였다.

- 국내의 여건 및 동물의 체적 변화에 따른 영향을 충분히 반영하기 위해서는 실험을 통해 동물성 전이계수를 적용해야 할 것으로 판단됨.

- 본 논문에서는 영광 4호기를 대상으로 연구를 수행하였기 때문에 연구의 일관성을 유지함과 동시에 발전소 주변 환경을 고려하기 위해 영광원전으로부터 반경 기준으로 환경시료를 채취하여 LSC 계측 및 분석 수행

- 섭취량에 대한 자료 조사 결과[6] 섭취량이 많은 축산물은 소/돼지/닭/우유/계란으로 나타났기 때문에 이들 축산물에 대한 실험 수행

- 일정 공간 내에 사육하는 집단 사육장이 존재할 경우 사육장을 중심으로 자료조사를 수행한다.

- ㉠ 사료의 출처를 확인함과 동시에 사료 섭취량 파악

- ㉡ 축산물 및 사료를 채취하여 실험을 수행함으로써 탄소함유량 및  $C^{14}$  농도 파악

- 원전으로부터 일정 반경 이내에 집단 사육장이 존재하지 않을 경우에는 시료의 판매처를 중심으로 자료 조사를 수행하고, 실험 수행 방법론은 일정 반경 이내에 집단 사육장이 존재하는 경우와 동일하다.

위와 같은 방법으로 전이계수를 제시할 경우 예상되는 문제는 시료의 대표성으로 영광원전으로부터 일정 반경 이내에 집단 사육장이 존재하더라도 사료를 외부로부터 구입할 경우 발전소 주변 환경을 고려할 수 없고, 이러한 경우 판매처를 중심으로 자료 조사를 수행함으로써 전이계수 및 전이계수 관련 자료를 제시해야 할 것으로 판단된다.

표 1. 전이계수 관련 자료

종류	$Q_f$ (kg/day)	사료 종류	$M_{veg}$	$M_{cp}$	비고
소	11 <sup>1)</sup>	우유	408 <sup>2)</sup>	225 <sup>3)</sup>	<sup>1)</sup> dry 기준
돼지	4.2 <sup>1)</sup>	소고기	403 <sup>3)</sup>	326 <sup>3)</sup>	<sup>2)</sup> AECL 자료
닭	0.12 <sup>1)</sup>	돼지고기	403 <sup>3)</sup>	163 <sup>3)</sup>	<sup>3)</sup> K-DOSE60 자료

$Q_f$ 는 동물의 사료 섭취량이고,

$M_{veg}$ 와  $M_{cp}$ 는 각각 사료와 축산물의 탄소함유량임

표 2. 사료 섭취량 비교(kg/d)

종류	NRC	FOOD II	IAEA/ NCRP	CSA	본 연구
젖소	50 <sup>1)</sup>	55 <sup>1)</sup>	16 <sup>2)</sup>	10 <sup>2)</sup>	11 <sup>2)</sup>
소	50 <sup>1)</sup>	68 <sup>1)</sup>	12 <sup>2)</sup>	10 <sup>2)</sup>	11 <sup>2)</sup>
돼지	-	4.2 <sup>1)</sup>	-	3.0 <sup>2)</sup>	4.2 <sup>2)</sup>
가금류	-	0.12 <sup>1)</sup>	-	0.1 <sup>2)</sup>	0.12 <sup>2)</sup>

여기서 <sup>1)</sup>은 wet 기준이고, <sup>2)</sup>는 dry 기준임

표 3. 전이계수 비교

축산물	NRC	CSA	K-DOSE60 /INDAC	KEPRI
우유	0.012	0.015	0.012	0.013
육류	0.031	-	0.031	-
소고기	0.031	0.064	0.031	0.047
돼지고기	0.031	0.180	0.031	0.220
가금류	0.031	4.200	0.031	4.200
달걀	0.031	3.100	0.031	-

표 4. 사용된 모델 및 입력 자료

구분	내용	비고
평가 모델	하이브리드	축산물의 <sup>14</sup> C 농도 계산
	비방사능	농·축산물의 <sup>14</sup> C 농도 계산
입력 자료	방출량	영광 4호기 예상 방출량 적용
	대기확산인자	2004년도 값 적용
	기타 자료	AECL 및 기존 자료 사용

표 5. 총 피폭선량(mSv/yr) 결과  
(장기등가선량기준, 성인)

구분	K-DOSE60		전이계수 적용		
	default	GEN II	NRC	CSA	KEPRI
농 작 물	곡식	1.12E-2	1.12E-2	1.12E-2	1.12E-2
	과일	6.85E-4	6.85E-4	6.85E-4	6.85E-4
	채소	5.62E-4	5.62E-4	5.62E-4	5.62E-4
	엽채류	5.53E-4	5.53E-4	5.53E-4	5.53E-4
	합계	1.30E-2	1.30E-2	1.30E-2	1.30E-2
축 산 물	우유	6.31E-4	1.26E-3	1.11E-3	1.39E-3
	소	7.64E-4	1.53E-3	9.45E-4	1.95E-3
	돼지	6.63E-4	1.33E-3	2.14E-4	1.24E-3
	닭	5.96E-4	1.19E-3	1.08E-5	1.47E-3
	합계	2.65E-3	5.31E-3	2.28E-3	6.05E-3
총 섭취선량	1.57E-2	1.83E-2	1.53E-2	1.91E-2	1.83E-2
총 호흡선량	2.44E-5	2.44E-5	2.44E-5	2.44E-5	2.44E-5
총 피폭선량	1.57E-2	1.83E-2	1.53E-2	1.91E-2	1.83E-2

참고 문헌

- [1] "Characterization of C-14 Generated by the Nuclear Power Industry", ETRI TR-105715 Research Project 2724-04, Final Report, 1995.
- [2] "Modelling Doses from Tritium and C<sup>14</sup> in the environment", S-R. Peterson, P.A. Davis and P.R. Rao, 1997 October.
- [3] "방사능 방재 환경 규제기술 개발", KINS/GR-199, 한국원자력안전기술원.
- [4] "원자력발전소 주변 주민선량 계산지침 개요 및 관련 규정", 한국전력공사, 한국수력원자력, 2003.6
- [5] "Guidelines for Calculating Derived Release Limits for Radioactive Material in Airborne and Liquid Effluents for Normal Operation of Nuclear Facilities", CAN/CSA-N288.1-M87.
- [6] "계절별 국민영양조사", 보건복지부 한국보건산업진흥원, 2002.
- [7] "A Biokinetic Model for Carbon Dioxide and Bicarbonate", Radiation Protection Dosimetry Vol. 108, No. 3, pp. 203-213, 2004.
- [8] "고리 주변환경종합평가 및 관련모델 개발", 한국에너지 연구소, 1989.

## Analysis of Sorption and Desorption Behaviors of Radionuclides (Cobalt and Strontium) in Natural Soil

자연 토양에서의 방사성 핵종(Co, Sr)의 흡/탈착 거동 특성 평가

Kyeong-Ho Cheon, Won Sik Shin, Jeong-Hak Choi\*, and Sang June Choi

Kyungpook National University, 1370 SanKyuk-Dong, Buk-Gu, Daegu

\*Research Institute of Industrial Science and Technology, #32 Hyoja-Dong, Nam-Gu, Pohang City, Kyungbook

천경호, 신원식, 최정학\*, 최상준

경북대학교, 대구광역시 북구 산격동 1370번지

\*포항산업과학연구원, 경북 포항시 남구 효자동 산32

### Abstract

This study was conducted to investigate sorption and desorption behaviors of radionuclides (Cobalt and Strontium) in natural soil. Sorption kinetics and isotherms were analyzed to predict sorption behaviors of radionuclides in natural soil and the experimental data were fitted to several sorption models. Desorption experiments were also performed with or without CMCD at constant pH and ion strength conditions. The results showed that  $Sr^{2+}$  was more strongly sorbed than  $Co^{2+}$  in natural soil. Both  $Co^{2+}$  and  $Sr^{2+}$  followed a pseudo-second order kinetics and Sips model. The desorption-resistance of  $Co^{2+}$  and  $Sr^{2+}$  was estimated using a natural surfactant Carboxymethyl- $\beta$ -cyclodextrin(CMCD) or non-desorbing fraction. Desorption of radionuclides was partially irreversible and  $Sr^{2+}$  was more resistant than  $Co^{2+}$ . Addition of CMCD facilitated desorption of  $Co^{2+}$  and  $Sr^{2+}$  from soil.

**Key word** : radionuclide, sorption, desorption, desorption resistance, CMCD, Cobalt, Strontium

### 요약

본 연구에서는 자연토양에 대한 방사성 핵종(Co, Sr)의 단일 성분의 흡착 및 탈착 거동 특성과 Carboxymethyl- $\beta$ -cyclodextrin(CMCD)를 이용한 탈착저항성에 대한 연구를 수행하였다. 방사성 핵종의 흡착 거동을 살펴보기 위하여 흡착속도 실험과 등은 흡착 실험을 수행 하였으며, 흡착 실험 결과를 기존의 흡착 모델식에 적용하여 보았다. 탈착 실험은 일정한 pH와 이온강도 조건에서 CMCD를 주입하였을 때와 주입하지 않았을 때의 탈착경향을 비교분석 하였다. 흡착 실험 결과 자연토양에 대해 스트론튬(Sr)이 코발트(Co) 보다 흡착이 잘 되었고, 코발트, 스트론튬 모두 흡착 속도는 pseudo-second order model을, 그리고 등은 흡착결과는 Sips model을 따르는 것으로 나타났다. 방사성 핵종의 탈착은 비가역적인 형태의 탈착거동을 보였으며, CMCD의 주입량 증가함에 따라 탈착도 증가하는 결과를 나타냈다.

**중심단어** : 방사성 핵종, 흡착, 탈착, 탈착저항성, CMCD, 코발트, 스트론튬

## 1. 서 론

원자력 산업에서 발생되는 방사성 액체폐기물은 대부분  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ 과 같은 중·장반감기 핵종을 다량 함유하고 있다. 생물독성학적 관점에서 봤을 때, 이러한 방사성 핵종은 반감기가 길고, 수중에서 높은 용해성을 가지고 있어 지하 유출시 지하 생태계 파괴 및 지하수 오염 등의 문제점을 안고 있다(1). 이들 방사성 핵종을 제거하기 위해 주로 사용되어온 전통적인 방법으로는 공침(co-precipitation), 응집(coagulation), 이온교환(ion exchange), 용매 추출법(solvent extraction) 그리고 흡착(adsorption)과 같은 방법이 있고, 비교적 최근 연구되어지고 있는 방법으로는 생물축적법(bioaccumulation)등이 있다(2). 이러한 방법들 중에서 이온교환법은 기술 적용이 복잡하지 않고, 액상과 고체상으로의 분배비가 100~10,000 정도로 효율적인 농축이 가능한 장점이 있어 여러 가지 흡착제를 이용한 수중의 방사성 핵종을 제거하는 연구가 진행되어 왔다.  $\text{Co}^{2+}$ 와  $\text{Sr}^{2+}$ 과 같은 2가 금속 이온의 흡착 및 탈착거동에 대한 연구는 주로 자연토양 및 montmorillonite, hematite, kaolinite 그리고 magnetite와 같은 토양 구성성분, 인공적으로 합성한 철산화물 또는 망간산화물 그리고 퇴적물(sediment)을 이용한 연구가 진행되어 왔다(2-8).

흡착에 영향을 미치는 인자로는 토양 수용액의 이온강도, 양이온, 음이온, 유기물질의 양, 금속의 농도 그리고 pH 등과 같은 실험에 관련된 인자와 압력, 온도, 토양/용액 비, 그리고 보관방법 등의 외부적 인자가 있다(9). 일반적으로 수용액 상의 중금속 이온은 토양 내에 존재하는 점토광물질, 철산화물과 망간산화물, 그리고 유기산을 비롯한 유기물에 흡착되며 수중에 존재하는 Carbonate와 착화합물을 형성하여 침전을 일으키기도 한다. 특히 철산화물과 망간산화물은 중금속 이온을 chemisorption 형태로 흡착하고 토양 내 유기물은 중금속을 강하게 흡착하여 탈착이 잘 일어나지 않는 것으로 보고되고 있다.

중금속 이온의 탈착은 오염지속시간이 길수록 줄어드는 것으로 나타났다. 이와 같이 시간이 지남에 따라 탈착되지 않는 현상의 원인을 밝히기 위해 오염지속시간, 흡착제의 미세공극과 입자내부 공간으로의 확산, 흡착제 표면의 착화합물형성에 따른 변화, 재결정을 통한 광물구조의 형성 등에 따른 탈착능의 변화에 대한 연구가 진행되어 왔다(10-17). 최근에는 토양 내에 있는 중금속 물질과 결합하여 착화합물을 형성하는 토양 세척물질을 통한 중금속 탈착에 대한 연구가 진행되고 있는데, 대표적인 토양세척 물질로 CMCD와 ethylenediaminetetraacetate(EDTA)를 들 수 있다. EDTA는 비교적 효율적으로 토양에서 중금속을 제거하는 물질이지만 중금속이온의 흡착 사이트로 작용하는 철산화물이나 망간산화물까지 녹이는 특성이 있어 토양의 흡착 지속성을 떨어뜨리며 비교적 독성이 강한 물질로 알려져 있다. 반면, 바이오 계면활성제인 CMCD는 저극성 유기오염물질의 용해성을 증가시켜줄 뿐만 아니라 토양으로부터 중금속이온을 제거하여 착화합물을 형성하므로 유기오염물질과 중금속이 혼합된 오염토양으로부터 오염물질 제거에 적용가능성이 높고 토양과 반응성이 낮으며, 비교적 독성이 약한 것으로 알려져 있다(18-21). 본 연구에서는 자연토양에 대한 코발트와 스트론튬의 흡착 거동 및 특성을 Freundlich, Langmuir, 및 Sips 모델을 적용하여 평가하였으며, CMCD를 이용한 자연토양에서의 방사성 핵종의 탈착저항성을 평가 하였다.

## 2. 실험방법

### 2.1 실험재료

자연토양은 대구시 소재 OO정수장 부근 야산에서 채취한 오염되지 않은 토양을 수일간 풍건시킨 다음, 2mm 표준체를 통과한 토양을 상온 건조하여 플라스틱 용기에 담아 상온에서 보관하며 사용하였다. 방사성 핵종 중금속인 코발트(Co)와 스트론튬(Sr)은 실제 방사성 폐액을 구하기가 어렵고, 실험실에서의 취급의 용이성을 위해 비방사성 중금속 시약인 Sigma-Aldrich사의  $\text{Co}(\text{NO}_3)_2$  와  $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ 를 사용하였고, 일정 pH를 유지시키기 위한 buffer로는 Sigma-Aldrich사의 MES(2-[N-Morpholino]ethanesulfonic acid)를 사용하였다. 문헌에 따르면 MES는 중금속의 흡착에

영향을 미치지 않는 것으로 알려져 있다(15). 이온강도를 일정하게 유지하기 위하여 전해질 물질로 Sigma-Aldrich사의  $\text{NaNO}_3$ 를 사용하였으며, 탈착실험에 사용한 CMCD는 Cargill, Inc.(Ceder Rapids, IA, USA)제품을 사용하였다. Co의 분석에 AAS(Varian, Spectra AA-250 Plus)를 사용하였으며, Sr의 분석에는 ICP-AES(Leeman Labs. Inc., PRODIGY SPEC.)를 사용하였다.

## 2.2 실험방법

### 2.2.1 토양분석

자연 토양의 구성물질을 알아보기 위하여 X-ray diffraction(XRD)를 측정하였으며, 그 결과를 Table1.에 나타내었다. 자연토양의 pH는 4.60이었다.

Table 1. Analysis of components of natural soil with XRD

mineral	Quartz	Albite	Sandinine	Hematite
contents(%)	32.3	35.4	29.3	3.0

### 2.2.2 전처리 실험

흡착 실험을 pH 5.50에서 수행하여 본 결과, 흡착 후의 pH가 4.70-4.80의 범위로 나타났다. 따라서 흡착실험 전후의 pH 변화에 의한 영향을 최소화하기 위하여 buffer를 이용하여 자연토양의 pH를 5.50으로 맞추어 주기 위한 전처리 실험을 수행하였다.

전처리 실험에 사용된 용액은 증류수에 0.05M MES buffer와 0.01M  $\text{NaNO}_3$ 를 주입하여 제조하였다. 이 때, 용액의 pH를 5.50에 맞추기 위하여 0.1N  $\text{HNO}_3$  또는 0.1N  $\text{NaOH}$ 를 이용하였다. 용액제조 후 50mL의 Conical tube에 토양 4.0g을 넣고 무게를 측정하고, 토양이 든 tube에 제조한 용액을 가득 채우고 다시 무게를 측정하였다. 시료를 shaker에 넣고 24시간 혼합(25°C, 200rpm) 후에 원심분리기로 고액분리(2000rpm, 30분)를 하였다. 고액분리 후 상등액의 pH를 측정하고, 상등액 제거 후 무게를 측정하였다. 전처리 후 상등액의 pH를 측정한 결과 5.45-5.51의 범위로 나타났다.

### 2.2.3 흡착/탈착 실험

토양의 pH를 5.50으로 맞추기 위한 전처리 실험 후 흡착 실험을 수행하였다. 흡착 속도 실험을 위해 각각, 0.05M MES buffer, 0.01M  $\text{NaNO}_3$ , 그리고 200mg/L의  $\text{Co}^{2+}$  또는  $\text{Sr}^{2+}$ 을 주입하고, 0.1N  $\text{HNO}_3$  또는 0.1N  $\text{NaOH}$ 를 이용하여 pH를 5.50으로 맞추어 용액을 제조하였다. 제조된 용액을 전처리한 토양이 들어있는 tube에 용액을 넣고 무게를 잰 후, Voltex mixer를 이용하여 토양과 용액을 고르게 섞고, Shaker에 넣어 48시간 동안 흡착 속도 실험(25°C, 200rpm)을 수행하였다. 분석을 위해 시료를 3000rpm, 30분간 원심분리 한 후, 0.2 $\mu\text{m}$ 의 syringe filter(Whatman, Cellulose Nitrate Membrane Filter)를 이용하여 여과하여 분석하였다. 또한 등온흡착 실험을 위해 모든 조건은 흡착 속도실험과 동일하게 하고,  $\text{Co}^{2+}$ 와  $\text{Sr}^{2+}$ 의 농도를 증가 시켜가면서 수행하였다. 흡착 실험이 끝난 후 상등액의 pH를 측정하여 본 결과, pH 5.40-5.48의 범위로 나타났다.

탈착 실험은 전처리 실험에 사용한 용액과 동일한 용액을 사용하였으며, 흡착 실험과 똑같은 조건에서 실험을 수행하였다.

### 2.3.4 CMCD를 이용한 탈착 실험

자연토양에 각각 200mg/L의 농도로 제조한  $\text{Co}^{2+}$ 와  $\text{Sr}^{2+}$  용액을 흡착시킨 후, 탈착실험과 동일한

방법으로 2g/L CMCD를 이용한 탈착 속도 및 등은 탈착 실험을 수행하였다. 또한 CMCD의 주입량과 탈착량과의 상관관계를 알아보기 위해 모든 조건을 동일하게 하고, CMCD의 양을 0.5g/L-10g/L의 농도로 주입하여 실험을 수행하였다. 그리고 탈착 저항성을 평가하기 위해 연속 흡착 시킨 후 저농도(2g/L)와 고농도(10g/L)의 CMCD를 주입하여 연속탈착 실험을 수행하였다.

### 3. 이론

#### 3.1 흡착 속도 모델

Pseudo-first order kinetic model은 흡착질(solute)이 수용액상에서 고체표면으로 흡착 되는 것을 나타낸 식으로 Lagergern(1898)에 의해 소개되었다.

$$\frac{dq}{dt} = k_1(q_e - q) \quad [1]$$

여기서  $k_1$ 은 유사일차속도상수(Pseudo-first order rate constant),  $q$ 는 시간  $t$ 에서의 흡착량,  $q_e$ 는 평형상태에서의 흡착량을 나타낸다. [1]식을  $t = 0$  일 때,  $q = 0$  그리고  $t = t$  일 때  $q = q$  의 조건에서 적분하면,

$$\ln \frac{(q_e - q)}{q_e} = -k_1 t \quad [2]$$

이 된다. 따라서 [2]식에서 좌변은 시간에 대한 1차 함수가 된다.

Pseudo-second order kinetic model은 비교적 최근에 Ho 등(1999)에 의해 소개된 모델로 용액으로부터 다양한 흡착제나 이온교환물질로의 이동을 나타내 주는 모델이다.

$$\frac{dq}{dt} = k_2(q_e - q)^2 \quad [3]$$

여기서  $k_2$ 는 유사이차속도상수(Pseudo-second order rate constant)이다. [3]식을  $t=0$  일 때,  $q=0$  그리고  $t=t$  일 때,  $q=q$ 의 조건에서 적분하면,

$$\frac{1}{(q_e - q)} = \frac{1}{q_e} + k_2 t \quad [4]$$

이 되고 다시 [4]식을 정리하면,

$$\frac{t}{q} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{1}{q_e} t \quad [5]$$

이 된다. 위의 두 흡착속도 모델은 특정한 처리조건이나 가정 없이 수학적으로 파생된 이론적인 모델이다(22).

#### 3.2 흡착 Isotherm 모델

Langmuir model은 흡착면이 균일하고, 용질에 대한 친화도가 같으며, 용질간에 상호작용이 없

다는 가정 하에서 만들어진 모델이다(Langmuir, 1918).

$$q = \frac{Q^{\circ}bC}{1 + bC} \quad [6]$$

여기서  $Q^{\circ}$ (mg/g),  $b$ (l/mg),는 각각 흡착능과 흡착 에너지를 나타내는 상수이고,  $C$ 는 흡착평형에서 수용액상의 중금속 농도(mg/L),  $q$ 는 흡착평형에서 토양에서의 중금속 농도(mg/g)를 나타낸다. Freundlich model은 흡착제의 성능을 비교하는데 많이 사용되는 식으로 다음과 같이 표현된다.

$$q = KC^{1/n} \quad [7]$$

여기서  $K_F$ 는 Freundlich 등온선 상수로 어떤 특정한 수용액상의 용질의 농도에서 고체상의 흡착능을 나타내고,  $n$ 은 흡착제의 흡착강도를 나타내는 상수이다.

Sips model은 평형 흡착을 나타내기 위한 모델로서 Langmuir 와 Freundlich 모델을 합쳐놓은 모델이다.

$$q = \frac{q^{\circ}(bC)^{1/n}}{1 + (bC)^{1/n}} \quad [8]$$

이 모델은  $q^{\circ}$ (mg/g),  $b$ (l/mg), 그리고  $n$ 의 3개의 매개변수를 가지고 있으며, 다성분 흡착 평형에 대한 식으로 확장이 가능하여 다성분 흡착을 표현하기에 좋은 모델이다.

#### 4. 결과 및 고찰

##### 4.1 방사성 핵종( $Co^{2+}$ , $Sr^{2+}$ )의 흡착

방사성 핵종의 흡착 특성을 평가하기 위해 각각 200mg/L 코발트(Co)와 스트론튬(Sr)을 주입하여 흡착 속도실험을 수행하였고, 그 결과를 pseudo-first order model 그리고 pseudo-second order model에 적용시켜 평가하였다(22). 흡착실험 결과  $Sr^{2+}$ 이  $Co^{2+}$ 보다 흡착량이 많은 것을 나타냈고, 두 물질 모두 실험 시작 3시간 이내에 흡착평형에 도달 하는 것을 알 수 있었으며, 두 물질 모두 pseudo-second order model을 따르는 것으로 나타났다(Fig. 1, Fig. 2). Table 2.에 각 모델의 매개변수를 정리하였다. 이와 같은 결과는 여러 문헌에서도 동일하게 보고 되고 있다. 그리고, 같은 2가 양이온 금속임에도 불구하고  $Sr^{2+}$ 의 흡착량이  $Co^{2+}$ 보다 높게 나타난 원인으로 Sahai 등은 이온의 크기가 더 큰( $Sr^{2+}$ ) 이온이 흡착제와 수용액의 경계면으로 접근할 때 수화효과에 대한 반반력이 커서 더 높은 흡착능을 가진다고 주장했고(23), Lehto등의 Sodium titanate를 이용한 스트론튬의 이온교환 실험에서 공존이온으로  $Na^{+}$ 가 존재할 경우  $Sr^{2+}$ 에 대한 높은 선택계수를 가진다는 것을 증명하였다(24). 따라서,  $Sr^{2+}$ 의 흡착량이  $Co^{2+}$ 보다 큰 것은 실험에서 사용한  $NaNO_3$  와  $NaOH$ 에 의해 수용액 상에 존재하는  $Na^{+}$ 이온의 영향과  $Sr^{2+}$  와  $Co^{2+}$ 의 이온 크기 차이에 의한 영향으로 사료된다.

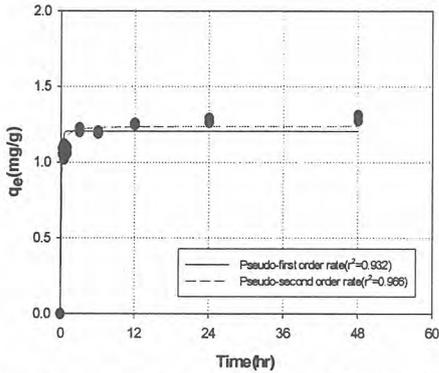


Fig. 1 Sorption kinetics model of  $\text{Co}^{2+}$  in natural soil (0.05M MES buffer, 0.01M  $\text{NaNO}_3$ , pH = 5.50)

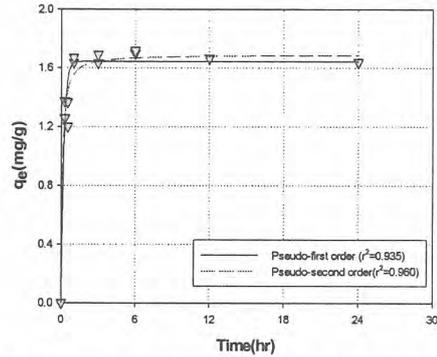


Fig. 2 Sorption kinetics model of  $\text{Sr}^{2+}$  in natural soil (0.05M MES buffer, 0.01M  $\text{NaNO}_3$ , pH = 5.50)

Table2. Pseudo-first order and pseudo-second order model parameters for sorption kinetics of  $\text{Co}^{2+}$  and  $\text{Sr}^{2+}$  in natural soil

model Parameter	Pseudo-first order			Pseudo-second order		
	$q$	$k_1$	$r^2$	$q$	$k_2$	$r^2$
$\text{Co}^{2+}$	1.205	7.956	0.932	1.239	14.418	0.966
$\text{Sr}^{2+}$	1.643	5.137	0.935	1.692	6.778	0.960

등은 흡착 실험 결과를 2개의 매개변수를 가지는 Freundlich model, Langmuir model 그리고 3개의 매개변수를 가지는 Sips model에 적용시켜 본 결과,  $\text{Co}^{2+}$ 의 경우에는 Sips model에  $\text{Sr}^{2+}$ 의 경우에는 Langmuir model과 Sips model에 가장 잘 맞는 것으로 나타났다(Fig. 3, Fig. 4). Table3. 에 각 모델의 매개변수를 정리하였다.  $\text{Sr}^{2+}$ 의 경우 Langmuir model과 Sips model의 fitting이 거의 일치하는 것으로 나타났는데, 이는 Sips model은 매개변수 n의 값이 1일 때 Langmuir model과 일치하기 때문이다(25).

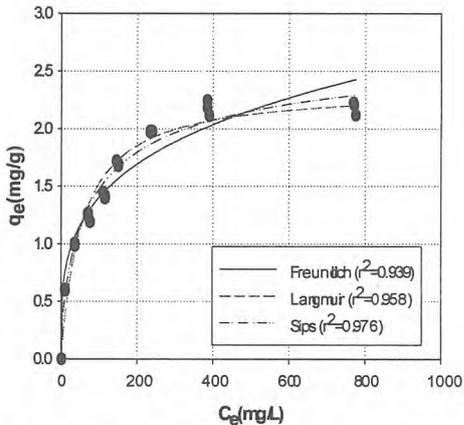


Fig. 3 Sorption isotherm of  $\text{Co}^{2+}$  in natural soil (0.05M MES buffer, 0.01M  $\text{NaNO}_3$ , pH = 5.50)

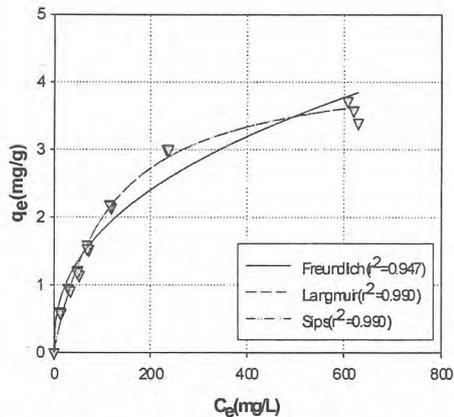


Fig. 4 Sorption isotherm of  $\text{Sr}^{2+}$  in natural soil (0.05M MES buffer, 0.01M  $\text{NaNO}_3$ , pH = 5.50)

Table3. Freundlich, Langmuir and Sips model parameters obtained by sorption isotherm of  $\text{Co}^{2+}$  and  $\text{Sr}^{2+}$  on natural soil

model Parameter	Freundlich			Langmuir			Sips			
	$K_F$	$n$	$r^2$	$Q^o$	$b$	$r^2$	$q^o$	$b$	$n$	$r^2$
$\text{Co}^{2+}$	0.411	3.747	0.939	2.355	0.0184	0.958	2.815	0.0116	1.487	0.976
$\text{Sr}^{2+}$	0.272	2.433	0.947	4.307	0.0086	0.990	4.299	0.0086	0.997	0.990

4.2 방사성 핵종( $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{Sr}^{2+}$ )의 탈착

동일한 조건에서 탈착실험을 수행한 결과 흡착실험 결과와 반대로  $\text{Co}^{2+}$ 가  $\text{Sr}^{2+}$ 에 비해 탈착이 더욱 잘 일어나는 것을 알 수 있었다. 탈착 속도는 실험 시작 1시간 이내에 평형에 도달하는 것으로 나타났다(Fig. 5). CMCD를 이용한 탈착 실험에서는 CMCD를 주입하지 않았을 때보다 더 많은 탈착이 이루어지는 것을 알 수 있었다. 이것은 토양에 붙어 있는  $\text{Co}^{2+}$ 와  $\text{Sr}^{2+}$ 이온이 CMCD와 착화합물을 형성하여 수용액 상으로 이동하기 때문으로 생각된다(Fig. 6).

Fig. 7과 Fig. 8에서는 탈착 isotherm에 대한 실험 결과를 나타내었다.  $\text{Co}^{2+}$ 와  $\text{Sr}^{2+}$  두 금속 모두 비가역적 탈착에 의한 hysteresis가 나타났는데, 이것은 자연토양 내에 있는 유기물질과 철산화물에  $\text{Co}^{2+}$ 와  $\text{Sr}^{2+}$ 이온이 강하게 결합되어 있기 때문인 것으로 보인다.

CMCD의 주입량에 따른 탈착량의 변화를 살펴보기 위해 CMCD의 주입량을 증가시키면서 실험을 수행해 본 결과 Fig. 9와 Fig. 10에서 보는 것과 같이  $\text{Co}^{2+}$ 와  $\text{Sr}^{2+}$  모두 CMCD의 주입량에 따라 탈착량이 증가하였는데, CMCD의 주입량을 0.5g/L~10g/L까지 증가시키며 탈착량을 측정해 보았으나 탈착량의 증가는 직선형태로 계속해서 증가하였다. 그리고 CMCD의 증가에 따른 탈착량의 증가는  $\text{Co}^{2+}$ 보다  $\text{Sr}^{2+}$ 이 더 큰 것으로 나타났다. 이것은 CMCD의 양이온 선택성(selectivity)이

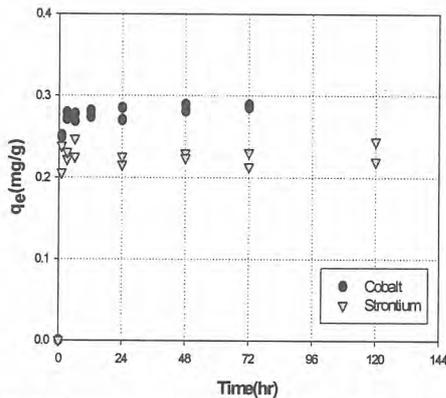


Fig. 5 Desorption kinetics of  $\text{Co}^{2+}$  and  $\text{Sr}^{2+}$  in natural soil (0.05M MES buffer, 0.01M  $\text{NaNO}_3$ , pH = 5.50)

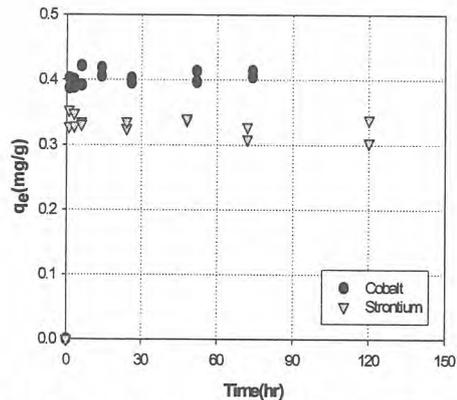


Fig. 6 Desorption kinetics of  $\text{Co}^{2+}$  and  $\text{Sr}^{2+}$  with CMCD in natural soil (0.05M MES buffer, 2g/L CMCD, 0.01M  $\text{NaNO}_3$ , pH = 5.50)

$\text{Co}^{2+}$ 보다  $\text{Sr}^{2+}$ 이 더 크기 때문에 나타나는 것으로 보이는데, 이러한 현상은 연속탈착 실험에서도 동일하게 나타났다. 이러한 현상에 대해 Baudin 등은 CMCD의 양이온에 대한 선택성은 양이온의 입자 크기나 charge만으로 설명할 수는 없고, CMCD의 하이드록실기(hydroxyl function)에 의한 영향이 크기 때문이라고 하였다(21).

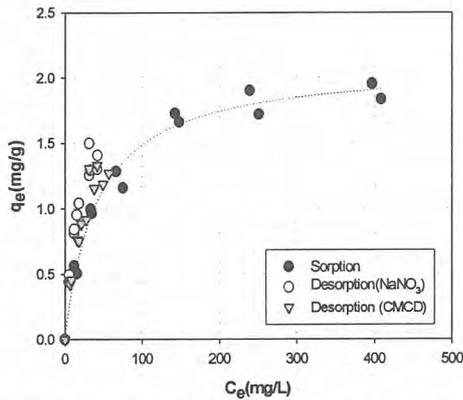


Fig. 7 Desorption isotherm of  $Co^{2+}$  from natural soil using  $NaNO_3$  and CMCD (0.05M MES buffer, 0.01M  $NaNO_3$ , 2g/L CMCD, pH = 5.50)

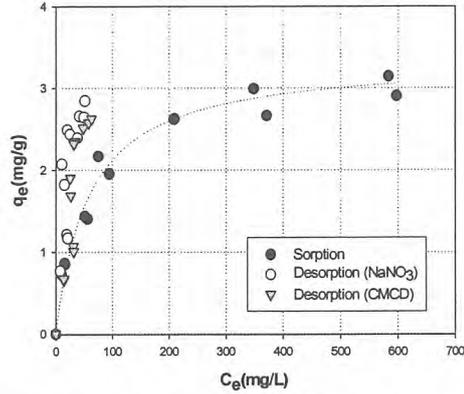


Fig. 8 Desorption isotherm of  $Sr^{2+}$  from natural soil using  $NaNO_3$  and CMCD (0.05M MES buffer, 0.01M  $NaNO_3$ , 2g/L CMCD, pH = 5.50)

연속 흡착/탈착 실험은 흡착이 포화에 도달할 때까지 연속적으로 흡착실험을 반복 수행하였고, 포화흡착에 도달한 시료를 다시 CMCD의 양을 달리 하여 연속탈착 시켰다.  $Co^{2+}$ 의 경우, 연속탈착 실험결과 CMCD를 주입하지 않은 경우와 2.0g/L CMCD를 주입한 경우에 탈착이 종료 된 후에도 토양내에 흡착되어 있는 중금속의 양이 많은 것으로 나타났다. 상대적으로 10g/L CMCD를 주입한 경우 토양에 흡착되어 있는 중금속은 작았으나, 완전한 탈착은 일어나지 않았다(Fig. 9).  $Sr^{2+}$ 의 경우도  $Co^{2+}$ 와 비슷한 결과를 나타냈다. 하지만 10g/L CMCD를 이용하여 연속탈착 실험

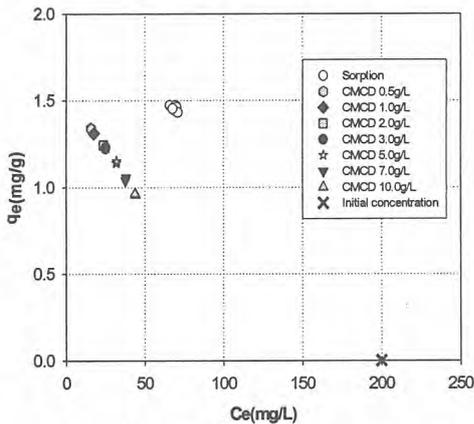


Fig. 7 Desorption of  $Co^{2+}$  from natural soil using different CMCD (0.05M MES buffer, 0.01M  $NaNO_3$ , pH = 5.50)

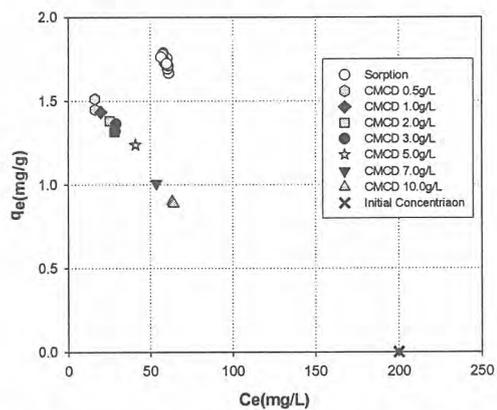


Fig. 8 Desorption of  $Sr^{2+}$  from natural soil using different CMCD (0.05M MES buffer, 0.01M  $NaNO_3$ , pH = 5.50)

을 수행한 경우, 3번의 연속 탈착만으로 토양 내에 있는  $Sr^{2+}$ 의 탈착이 완전히 이루어지는 것으로 나타났다(Fig. 10). 이는 앞서서도 언급한 것과 같이 CMCD에 대한  $Sr^{2+}$ 양이온 선택성이 매우 높기 때문에 일어나는 것으로 보인다. 그러나 보다 명확한 결론을 얻기 위해서는  $Co^{2+}$ 와  $Sr^{2+}$  이온의 흡착 사이트에 대한 연구가 부가적으로 수행되어야 할 것으로 판단된다.

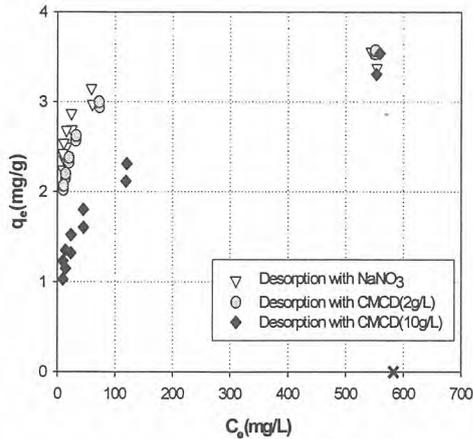


Fig. 9 Sequential desorption of  $\text{Co}^{2+}$  from natural soil using different CMCD (0.05M MES buffer, 0.01M  $\text{NaNO}_3$ , pH = 5.50)

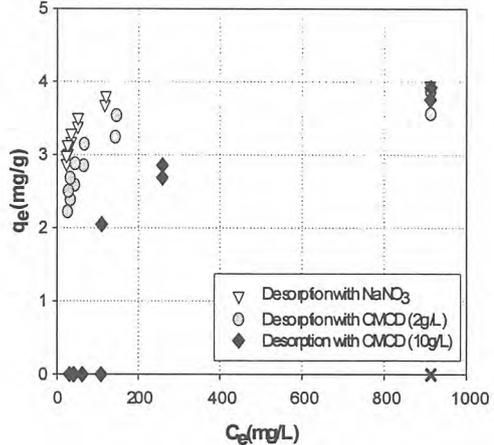


Fig. 10 Sequential desorption of  $\text{Sr}^{2+}$  from natural soil using different CMCD (0.05M MES buffer, 0.01M  $\text{NaNO}_3$ , pH = 5.50)

## 5. 결론

자연토양에 대한  $\text{Co}^{2+}$ 와  $\text{Sr}^{2+}$ 이온의 흡착은 실험 결과  $\text{Co}^{2+}$ 와  $\text{Sr}^{2+}$  모두 3시간 이내에 흡착평형에 도달하였으며,  $\text{Co}^{2+}$ 에 비해  $\text{Sr}^{2+}$ 이 흡착 친화도가 큰 것으로 나타났다. 흡착속도 실험 결과  $\text{Co}^{2+}$ 와  $\text{Sr}^{2+}$  모두 pseudo-second order model을 가장 잘 따르는 것으로 나타났으며, 등온 흡착은 Langmuir model과 Freundlich model의 혼합형 모델인 Sips model을 잘 따르는 것으로 나타났다.

탈착 실험 결과, 탈착은  $\text{Co}^{2+}$ 와  $\text{Sr}^{2+}$  모두 1시간 이내에 탈착평형에 도달하였고,  $\text{Sr}^{2+}$ 에 비해  $\text{Co}^{2+}$ 가 토양으로부터 용액 상으로 더 많이 탈착 되었다. 또한,  $\text{Co}^{2+}$ 와  $\text{Sr}^{2+}$  모두 비가역적인 탈착에 의한 hysteresis 현상을 나타냈다. 양이온 계면활성제인 CMCD를 이용한 토양 내 중금속이온의 탈착실험에서는 CMCD 주입량이 증가함에 따라 탈착량도 증가하였으며,  $\text{Co}^{2+}$ 에 비해  $\text{Sr}^{2+}$ 에 대한 양이온 선택성이 높아 탈착이 더욱 잘 일어났다. 따라서, CMCD를 통해 토양 내 중금속이온, 특히  $\text{Sr}^{2+}$ 를 효율적으로 제거할 수 있으리라 사료된다.

## 사사

본 연구는 과학기술부 원자력 연구기반확충사업(M20408000025-04B0500-01410)에 의해 수행되었습니다. 이에 감사드립니다.

## 참고문헌

- (1) M. V. B. Krishna, S. V. Rao, J. Arunachalam, M. S. Murali, S. Kumar, and V. K. Manchanda, "Removal of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  from Actual low Level Radioactive Waste Solutions Using Moss as a Phyto-Sorbent," Sep. Purifi. Technol., 38, pp. 149-161(2004).
- (2) A. D. Ebner, J. A. Ritter, and J. D. Navratil, "Adsorption of Cesium, Strontium, and Cobalt Ions on Magnetite and a Magnetite-Silica Composite," Ind. Eng. Chem. Res., 40, pp. 1615-1623(2001).
- (3) S. E. Bailey, T. J. Olin, R. M. Bricka, and D. D. Adrian, "A Review of Potentially Low-Cost Sorbents For Heavy Metals," Wat. Res., 33(11), pp. 2469-2479(1999).

- (4) B. H. Jeon, B. A. Dempsey, W. D. Burgos, R. A. Royer, and E. E. Roden, "Modeling the Sorption Kinetics of Divalent Metal Ions to Hematite," *Water Res.*, 38, pp. 2499-2504(2004).
- (5) J. A. Stephens, F. W. Whicker, and S. A. Ibrahim, "Sorption of Cs and Sr to Profundal Sediments of a Savannah River Site Reservoir," *J. Environ. Radioact.* 38(3), pp. 293-315(1998)
- (6) N. Lu and C. F. V. Mason, "Sorption-Desorption Behavior of Strontium-85 onto Montmorillonite and Silica Colloids," *Appl. Geochem.*, 16, pp. 1653-1662(2001).
- (7) F. Esmadi and J. Simm, "Sorption of Cobalt(II) by Amorphous Ferric Hydroxide," *Colloids Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects*, 104, pp. 265-270(1995).
- (8) H. A. Thompson, G. A. Parks, and G. E. Brown, Jr., "Formation and Release of Cobalt(II) Sorption and Precipitation Products in Aging Kaolinite-Water Slurries," *J. Colloid Interf. Sci.*, pp. 222, 241-253(2000).
- (9) R. D. Harter and R. Naidu, "An Assessment of Environmental and Solution Parameter Impact on Trace-Metal Sorption by Soils," *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 65, pp. 597-612(2001).
- (10) L. J. Glover II, M. J. Eick, and P. V. Brady, "Desorption Kinetics of Cadmium<sup>2+</sup> and Lead<sup>2+</sup> from Goethite: Influence of Time and Organic Acids," *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 66, pp. 797-804 (2002).
- (11) L. Axe and P. R. Anderson, "Sr Diffusion and Reaction within Fe Oxides: Evaluation of the Rate-Limiting Mechanism for Sorption," *J. Colloid Interf. Sci.* 175, pp. 157-165(1995).
- (12) R. G. McLaren, C. A. Backes, A. W. Rate, and R. S. Swift, "Cadmium and Cobalt Desorption Kinetics from Soil Clays: Effect of Sorption Period," *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 62, pp. 332-337(1998).
- (13) M. J. Eick, B. R. Naprstek, and P. V. Brady, "Kinetics of Ni(II) Sorption and Desorption on Kaolinite: Residence Time Effects," *Soil Sci.*, 166(1), pp. 11-17(2001).
- (14) A. Rigol, M. Vidal, and G. Rauret, "Effect of the Ionic Status and Drying on Radiocesium Adsorption and Desorption in Organic Soils," *Environ. Sci. Technol.*, 33, pp. 3788-3794(1999).
- (15) D. G. Strawn and D. L. Sparks, "Effects of Soil Organic Matter on the Kinetics and Mechanisms of Pb(II) Sorption and Desorption in Soil," *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 64, pp. 144-156(2000).
- (16) C. C. Ainsworth, J. L. Pilon, P. L. Gassman, and W. G. Van Der Sluys, "Cobalt, Cadmium, and Lead Sorption to Hydrous Iron Oxide: Residence Time Effect," *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 58, pp. 1615-1623(1994).
- (17) C. A. Backes, R. G. McLaren, A. W. Rate, and R. S. Swift, "Kinetics of Cadmium and Cobalt Desorption from Iron and Manganese Oxides," *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 59, pp. 778-785(1995)
- (18) X. Wang and M. L. Brusseau, "Simultaneous Complexation of Organic Compounds and Heavy Metals by Modified Cyclodextrin," *Environ. Sci. Technol.*, 29, pp. 2632-2635(1995).
- (19) X. Wang, I. Yolcubal, W. Wang, J. Artiola, R. Maier, and M. Brusseau, "Use of Cyclodextrin and Calcium Chloride for Enhanced Removal of Mercury from Soil," *Environ. Toxicol. Chem.*, 23(8), pp. 1888-1892(2004).
- (20) M. L. Brusseau, X. Wang, and W. Z. Wang, "Simultaneous Elution of Heavy Metals and Organic Compounds from Soil by Cyclodextrin," *Environ. Sci. Technol.*, 31, pp. 1087-1092(1997).
- (21) C. Baudin, C. Pean, B. Pellizzari, A. Gabelle, F. Fauvelle, J. C. Debouzy, J. P. Dalbiez, and B. Perly, "2-O-Substituted-3,6-per-anhydro- $\alpha$ -Cyclodextrin as Potential Biocompatible Agents for the Selective Complexation of Heavy Ions with Special Attention to Lead," *Journal of Inclusion*

Phenomena and Macrocyclic Chemistry, 38, pp. 287-296(2000).

(22) S. Azizian, "Kinetic Models of Sorption: A Theoretical Analysis," J. Colloid Interf. Sci. 276, pp. 47-52(2004).

(23) N. Sahai and D. A. Sverjensky, "Solvation and Electrostatic Model for Specific Electrolyte Adsorption," Geochim. Cosmochim. Acta, 61(14), pp. 2827-2848(1997).

(24) J. Lehto, R. Harjula, and A. M. Girard, "The Equilibrium of Strontium Ion Exchange on Sodium Titanite,  $\text{Na}_4\text{Ti}_9\text{O}_{20} \cdot x\text{H}_2\text{O}$ ," Inorg. Chem., 1, pp. 101-103(1989).

(25) S. Al-Asheh, f. Banat, R. Al-Omari, and Z. Duvnjak, "Predictions of Binary Sorption Isotherms for the Sorption of Heavy Metals by Pine Bark Using Single Isotherm Data," Chemosphere, 41, pp. 659-665(2000).

## Environmental Monitoring for the Decision-Aiding on Public Protective Actions in a Nuclear Emergency

### 원자력 비상시 주민 보호조치 결정 지원을 위한 환경감시

Y.H. Choi, H.S. Kang, I. Jun, W.T. Hwang, D.K. Keum, M.H. Han, G.S. Choi, H.S. Lee and C.W. Lee  
Korea Atomic Energy Research Institute, P. O. Box 105, Yuseong, Daejeon, Korea  
[yhchoi1@kaeri.re.kr](mailto:yhchoi1@kaeri.re.kr)

최용호, 강희석, 전인, 황원태, 금동권, 한문희, 최근식, 이한수, 이창우  
한국원자력연구소, 대전시 유성 사서함 105호

#### Abstract

It is internationally proposed that generic intervention levels (GILs) and generic action levels, determined based on cost-benefit analyses, be used as the decision criteria for public protective actions in a nuclear emergency. Operational intervention levels (OILs) are directly or easily measurable quantities corresponding to these generic levels. To assess the necessity of protective actions in a nuclear emergency, it is important that the environmental monitoring data required for applying and revising OILs should be promptly produced. It is discussed what and how to do for this task in the course of emergency response and preparedness.

**Key words** : Nuclear Emergency, Public, Protective Action, Intervention Level, Environmental Monitoring,

#### 요 약

원자력 비상시 주민 보호조치에 대한 결정기준은 국제적으로 비용-이득 분석에 의해 산정된 일반개입준위와 일반조치준위를 사용토록 제안되어 있다. 운영개입준위는 이러한 일반준위를 직접 또는 쉽게 측정할 수 있는 물리량으로 나타낸 것이다. 비상시 보호조치의 필요성을 판단하기 위해서는 운영개입준위를 적용하고 수정하는 데 요구되는 환경감시 자료를 신속히 생산하는 것이 중요하다. 비상대응의 일환으로서 이를 위해 무슨 일들이 어떻게 수행되어야 하는지 고찰하였다.

**중심단어** : 원자력 비상, 주민, 보호조치, 개입준위, 환경감시

#### 1. 서 론

원자력 발전소의 사고로 인하여 일시에 다량의 방사성 물질이 대기중으로 방출되거나 그럴것으로 예상되는 경우에는 주민의 방사선 피폭선량을 신속히 평가하여 적기에 적절한 보호조치를 취해야 한다. 비상시에는 일차적으로 예측모델을 이용하여 주민의 피폭선량을 사전에 신속히 예측할 필요가 있다. 그러나 모델에 의한 예측은 비교적 불확실성이 크므로 예측결과를 검토·수정하고 보호조치에 관한 의사결정에 필요한 실제적인 정보를 제공하기 위하여 반드시 환경방사선 및 방사능에 대한 실측이 수행되어야 한다[1-3].

IAEA[1,3-5]와 ICRP[6]는 원자력 사고시 방사선 방호활동은 방사선 개입준위에 의거하여 수행

토록 권고하고 있다. 개입준위는 통상 일반개입준위와 운영개입준위로 나누어진다. 일반개입준위는 개입을 통하여 회피할 수 있는 피폭선량, 즉 회피선량이 그 이상이어야 함을 나타내고 운영개입준위는 일반개입준위를 실측할 수 있는 물리량으로 환산한 것이다. 최근에 우리나라에서도 한국원자력안전기술원(KINS)[7]이 회피선량에 입각한 방사선 비상시 일반개입준위와 운영개입준위를 설정, 제안한 바 있다. 한편, 운영개입준위는 본질적으로 환경에서의 핵종 존재비에 따라 달라져야 하므로 대표적인 존재비에 입각하여 설정된 초기운영개입준위는 비상시 환경감시 결과에 따라 수정되어야 한다[1,3].

이상과 같이 원자력 사고시 환경감시는 주민 보호조치에 관한 의사결정에 필요한 정보를 적기에 신속히 제공해야 하므로 일상적으로 행하여지는 정상가동시 환경감시와는 구별되어야 한다. 즉, 원자력 비상시에는 운영개입준위를 적용하고 수정하는 데 필요한 각종 측정 및 분석 정보를 신속히 제공하기 위한 환경감시가 이루어 져야 한다. 본 연구에서는 이러한 비상시 환경감시의 특성에 입각하여 비상시 환경감시가 어떠한 내용과 형태로 이루어 져야 할 것인가를 고찰하고 이를 위해 평상시에 어떠한 대비태세를 갖추고 있어야 할 것인지 살펴보고자 한다. 본 연구의 범위는 원자로 사고로 인한 비상시 육상 환경방사선(능)에 대한 감시에 국한한다.

## 2. 비상시 주민 보호조치 결정기준

### 2.1. 심각한 결정적 건강영향 예방을 위한 개입준위

IAEA[3-5,8]는 심각한 결정적 건강 영향을 방지하기 위하여 어떠한 상황에서도 긴급한 개입이 이루어져야 될 피폭선량으로서 표 1과 같은 기준을 정해놓고 있다. 여기서 기준 선량은 예상피폭선량으로서 그 이하에서는 통상적으로 심각한 결정적 영향이 나타나지 않는 준위이나 방사선 고위험군(예: 비건강자)에 대해서는 보다 낮은 값이 적절할 수 있다[4].

우리나라의 경우 사고시 결정적 건강영향 예방과 관련하여 명시적인 기준은 없으나 '원자력시설 등의 방호 및 방사능방재 대책법 시행령' 제25조에 제시된 '방사능재난 발생의 선포기준'이 유사한 부류에 속하는 것으로 판단된다.

한편, IAEA[3]는 사고시 시설 내의 상황이 심각하여 일반비상(General Emergency, 우리나라의 적색비상과 유사)이 발령된 경우에는 예방조치구역(Precautionary Action Zone)내 주민들의 심각한 결정적 건강장해를 방지하기 위하여 즉시 보호조치를 취해야 할 것으로 보고 있다.

Table 1. IAEA dose levels at which intervention is expected to be undertaken under any circumstances

Organ or tissue	Action level of dose (Gy) <sup>a</sup>	
	Dose type A <sup>b</sup>	Dose type B <sup>c</sup>
Whole body (bone marrow)	1	-
Lung	6	25
Skin	3	-
Thyroid	5	-
Lens of the eye	2	-
Gonads	3	-
Fetus	0.1	-

<sup>a</sup> applicable to a population characterized by a typical age and sex distribution[8]

<sup>b</sup> projected absorbed dose from low LET radiation in less than 2 days[3]

<sup>c</sup> projected absorbed dose from high LET radiation due to inhalation for 1 year[3].

Table 2. IAEA generic intervention levels for urgent protective actions

Protective action	Generic intervention level <sup>a</sup>
Sheltering	10 mSv
Evacuation	50 mSv
Iodine prophylaxis	100 mGy

<sup>a</sup> avertable doses averaged over suitably chosen samples of the population

2.2. 일반개입준위 및 일반조치준위

IAEA[1,3-5,8]가 설정한 일반개입준위(Generic Intervention Level, GIL)는 특정 보호조치에 대해서 그것의 실행으로 달성되어야 할 최소 회피선량으로 주어져 있다. 일반개입준위는 크게 긴급 주민 보호조치에 대한 일반개입준위(표 2)와 장기적인 보호조치에 대한 일반개입준위(표 3)로 나누어진다. 이것들은 보호조치를 실행하는 데 드는 비용과 피폭선량의 금전가에 입각한 비용-이득 분석에 의하여 결정된 것이다. 음식물에 대해서는 일반개입준위와 유사한 것으로 일반조치준위(Generic Action Level, GAL)가 제안되어 있다(표 4). KINS[7]가 제안한 일반개입준위는 IAEA와 동일하나 일반조치준위는 표 5에서 보는 바와 같이 IAEA와 다소 다르다. 이상과 같은 일반준위들은 확률적 건강 영향을 합당한 정도로 낮추기 위한 것이다.

비상시에는 보호조치를 실행하기 전에 피폭이 시작되는 경우도 있을 수 있다. 이 때 비용-이득 분석의 대상은 보호조치를 실행함으로써 앞으로 회피할 수 있는 선량이지 이미 받은 선량이나 잔여선량은 포함되지 않는다[4,7].

우리나라의 관련 법규에서는 비상시 주민 보호조치 결정기준이 예상피폭선량(아무런 조치를 취하지 않았을 때 예상되는 피폭선량)인 것으로 보이게 되어 있다. 그러나 결정기준의 수치와 단위는 회피선량으로 나타낸 IAEA 및 KINS의 일반개입준위와 동일하여 결정기준이 회피선량인 것이 분명해 보이므로 관련 법규에서도 결정기준이 회피선량임을 명시할 필요가 있다. 또한 회피선량으로 나타낸 결정기준을 IAEA나 KINS가 제안하고 있는 일반개입준위와 같은 것으로 적용하기 위해서는 운영개입준위에 대한 규정도 반드시 포함되어야 할 것이다. 이때 비상시 환경감시를 통하여 운영개입준위를 제대로 적용하고 수정하는 것을 담보할 수 있는 방향으로 규정을 만드는 것이 중요하다고 본다.

Table 3. IAEA generic intervention levels for longer-term protective actions

Protective action	Generic intervention level <sup>a</sup>
Temporary relocation	Initiate at 30 mSv for 30 days (1st month) Terminate at 10 mSv for 30 days (Subsequent months)
Permanent resettlement	1 Sv for lifetime (50-70 years)

<sup>a</sup> to be compared with the mean per caput avertable committed effective dose involving all the exposure routes usually except food and water ingestion[4,8].

Table 4. IAEA generic action levels for foodstuffs

Food type	Group of radionuclides		Generic action level <sup>a</sup>
Foods for general consumption	G 1	Cs-134, Cs-137, I-131, Ru-103, Ru-106, Sr-89	1 kBq/kg
	G 2	Sr-90	0.1 kBq/kg
	G 3 <sup>b</sup>	Am-241, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-242	0.01 kBq/kg
Milk, infant food and drinking water	G 4	Cs-134, Cs-137, Ru-103, Ru-106, Sr-89,	1 kBq/kg
	G 5	I-131, Sr-90	0.1 kBq/kg
	G 6 <sup>b</sup>	Am-241, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-242	0.001 kBq/kg

<sup>a</sup> to be compared independently with the sum of the activities of the radionuclides in each group

<sup>a</sup> for foods prepared for immediate consumption and for the 1st year after a nuclear emergency

<sup>b</sup> These groups need not be considered for LWR reactor accidents[1].

Table 5. Generic action levels for foodstuffs recommended by the KINS

Group of radionuclides		Generic action level (Bq/kg or Bq/L)			
		Meat, fish and cereals	Vegetable and fruit	Water and milk	Infant food
G 1	Cs-134,Cs-137,Ru-103, Ru-106,Sr-89	2,000	1,000	200	100
G 2	I-131,Sr-90	1,000	500	100	10
G 3	Am-241,Pu-238,Pu-239, Pu-240,Pu-242	10	10	10	1
G 4	H-3	100,000			

### 2.3. 운영개입준위

일반개입준위 또는 일반조치준위를 직접 측정할 수 있는 물리량이나 분석이 용이한 대표핵종(marker isotope)에 대한 값으로 환산한 것이 운영개입준위(Operational Intervention Level, OIL)이다[1,7,8]. 즉 일반개입준위의 실제적 적용을 위하여 비상시에 측정이 가능한 운영량으로 표시한 것이 운영개입준위이다.

IAEA[1]는 비상시 우선 사용할 목적으로 원전 사고시 핵종의 대표적인 존재비에 입각하여 운영개입준위에 대한 일반치(default value)를 도출·권고하고 있다. 사고시 핵종의 방출 특성에 따른 환경에서의 핵종 존재비는 원전의 종류, 가동이력 및 사고유형 등에 따라 다르므로 운영개입준위도 달라져야 한다. IAEA가 일반치로 권고한 운영개입준위와 우리나라의 KINS[7]가 제안한 값을 비교한 것은 표 6과 같다. 선량율로 표시한 운영개입준위는 서로 동일하다. 이것은 KINS가 IAEA의 절차를 표준적인 것으로 보고 거의 그대로 채택한 결과이다. 한편, 식품에 대한 운영개입준위는 IAEA와 우리나라 간에 차이가 있다. 이것은 식품에 대한 일반조치준위가 다른 데 따른 당연한 결과이다. 표 6에 주어진 운영개입준위는 보다 자세한 측정이 이루어져 수정하기 전까지 적용하게 될 초기운영개입준위에 해당한다.

표 6. 운영개입준위에 대한 IAEA와 KINS의 권고치

운영량 (피폭근거)	OIL 번호	OIL 권고치		보호조치
		IAEA	KINS	
방사능구름속 공간선량율	OIL1	1 mSv/h <sup>a</sup>	1 mSv/h	소개 또는 (고수준) 대피 <sup>b</sup>
	OIL2	0.1 mSv/h	0.1 mSv/h	옥소재 복용 및 옥내대피 <sup>c</sup>
지상 침적에 의한 공간선량율	OIL3	1 mSv/h	1 mSv/h	소개 또는 (고수준) 대피
	OIL4	0.2 mSv/h	0.2 mSv/h	일시이주 고려 <sup>d</sup>
	OIL5	1 μSv/h	1 μSv/h	식품섭취 잠정 제한
지상침적 준위 I-131	-	일반식품(F) <sup>e</sup>	일반식품(F) <sup>e</sup>	식품섭취 잠정 제한
	OIL6 <sup>e</sup>	10 kBq/m <sup>2</sup> f	우유(M) 2 kBq/m <sup>2</sup> f 10 kBq/m <sup>2</sup>	
Cs-137	OIL7 <sup>e</sup>	2 kBq/m <sup>2</sup> f	우유(M) 10kBq/m <sup>2</sup> f 3 kBq/m <sup>2</sup>	식품섭취 잠정 제한
	-	일반식품(F)	일반식품(F) <sup>e</sup>	
음식물내 농도 I-131	OIL8 <sup>e</sup>	1 kBq/kg	우유, 물(M) 1 kBq/kg	식품섭취 제한
	OIL9 <sup>e</sup>	0.2 kBq/kg	0.1 kBq/kg 1 kBq/kg	
Cs-137	-	0.3 kBq/kg	우유(M) <sup>h</sup> 0.2 kBq/m <sup>2</sup> 0.4 kBq/m <sup>2</sup> 우유, 물(M) <sup>h</sup> 0.01 kBq/kg 0.05 kBq/kg	

<sup>a</sup> 노심손상의 징후가 없으면 10 mSv/h

<sup>b</sup> 고수준 대피는 특별히 설계된 대피소나 대형 석조(벽돌) 건물의 내부 홀 또는 지하실에 대피하는 것을 말함. 대피는 24-48 시간 동안만 고려되어야 하고 고선량률 지역에서의 모니터링을 통하여 효과가 확인되어야 함. 해당 sector 및 2 개의 인접 sector, 그리고 발전소에 보다 근접한 sector들에 대하여 실시함. 소개될 때까지 주민들은 창문을 닫고 실내에 대기해야 함.

<sup>c</sup> 실내에서는 창문을 닫고 라디오와 TV를 경청

<sup>d</sup> 사고후 2-7일 사이에 실시, 이주시 큰 혼란이 초래되면 더 높은 OIL 적용

<sup>e</sup> 식품이 부족하거나 먹기 전에 세척, 껍질벗김, 저장 등의 과정을 거칠 경우 더 높은 OIL 적용.

<sup>f</sup> In-situ 감마스펙트로메타에 의한 지상침적 농도 측정치와 비교함.

<sup>g</sup> 일반조치준위로 I-131은 1000 Bq/kg, Cs-137은 2000 Bq/kg 적용

<sup>h</sup> 일반조치준위로 I-131은 10 Bq/kg, Cs-137은 100 Bq/kg 적용.

비상시에 초기운영개입준위를 적기에 적용하기 위해서는 사고 방출 직후에 공간방사선량을 신속히 측정하고 방사성 플룸 통과완료 직후에는 공간방사선량을 신속히 측정한 다음 표시 핵종의 지표침적 농도와 식품내 농도를 신속히 측정해야 한다.

**2.3.1. 운영개입준위의 계산·수정**

원자로의 종류나 가동이력 및 사고의 유형에 따라 핵종의 방출비가 다를 뿐 아니라 사고의 진행에 따라 핵종의 방출비가 변하고 방사성 핵종의 붕괴와 침적이 계속되므로 대기나 지표면에서의 핵종의 존재비가 변한다. 따라서 비상시에는 대기(플룸 통과중) 및 지표면과 식품(플룸 통과 후) 내의 각 핵종 농도를 신속히 측정하여 아래 식들과 같이 운영개입준위를 수정해야 한다[1,7].

**2.3.1.1. OIL1**

OIL1(mSv/h)은 소개 또는 고수준 대피(substantial shelter)를 위한 운영개입준위이다. 이것은 방사성 플룸 통과중 공간방사선량률로 운영되며 아래와 같이 계산된다.

$$OIL1 = GIL_{ev} \frac{1}{R_1} \frac{1}{T_e} \tag{1}$$

여기서,

$GIL_{ev}$  : 소개를 위한 일반개입준위 (50 mSv)

$R_1$  : 공간선량률에 대한 총유효선량률의 비 (일반치는 10으로 봄)

$T_e$  : 피폭 지속시간 (4 h, 풍향이 통상 4 시간마다 변하는 것으로 봄.)

⇒  $R_1$ 은 아래와 같이 계산·수정되어야 한다.

$$R_1 = \frac{E_{inh}}{H^*} + 1 \tag{1.1}$$

여기서,

$E_{inh}$  : 흡입에 의한 유효선량률 (mSv/h)

$H^*$  : 공기시료를 채취한 플룸 속에서의 평균 공간선량률(mSv/h)

⇒  $E_{inh}$ 는 공기시료 분석결과를 이용하여 다음과 같이 구한다.

$$E_{inh} = \sum_1^n C_{a,i} CF_{1,i} \tag{1.1.1}$$

여기서,

$C_{a,i}$  : 플룸내 핵종  $i$ 의 농도 (kBq/m<sup>3</sup>)

$CF_{1,i}$  : 핵종  $i$ 에 대한 흡입 유효선량률 환산인자 ((mSv/h)/(kBq/m<sup>3</sup>))

식 (1.1.1)에서  $CF_{1,i}$ 은 IAEA[1]가 Sr-90, I-131, Cs-137, Pu-238 등 약 50 가지 핵종들에 대해서 제시한 값을 사용하면 된다.

식 (1)에서 피폭 지속시간  $T_e$ 는 4 시간에 불과한데 대피 및 소개 기간은 각각 2일 및 7일까지로 하고 있다. 이것은 일단 대피 또는 소개가 실시되면 그 기간은 적어도 며칠은 되어야 한다는 것이다. 대피소나 소개지로의 이동, 사고 추이에 따른 후속대책 결정, 복귀 및 복귀후 정상생활 개시 등을 위해서는 상당한 시간이 필요할 것으로 본다. 이 시간을 2일 또는 7일보다 짧게 할 수 있다면 OIL1보다 낮은 준위에서 고수준 대피나 소개가 가능할 것이다.  $T_e$ 가 4 시간보다 길게 예상되는 경우에도 마찬가지이다.

### 2.3.1.2. OIL2

OIL2(mSv/h)는 옥소제 복용을 위한 운영개입준위로서 역시 방사성 플룸 통과중 공간방사선량률로 운영되며 아래와 같이 계산된다.

$$OIL2 = GIL_{thy} \frac{1}{R_2} \frac{1}{T_e} \quad (2)$$

여기서,

$GIL_{thy}$  : 옥소제 복용을 위한 일반개입준위 ( $\beta, \gamma$  선에 대해서는 100 mGy = 100 mSv)

$R_2$  : 공간선량률에 대한 흡입에 의한 감상선 선량률의 비 (일반치는 200으로 봄)

$\Rightarrow R_2$ 는 아래와 같이 계산·수정되어야 한다.

$$R_2 = \frac{H_{thy}}{H^*} \quad (2.1)$$

여기서,

$H_{thy}$  : 흡입에 의한 예탁감상선선량률 (mSv/h)

$\Rightarrow H_{thy}$ 는 공기시료 분석결과를 이용하여 다음과 같이 구한다.

$$H_{thy} = \sum_{i=1}^n C_{a,i} CF_{2,i} \quad (2.1.1)$$

여기서,

$CF_{2,i}$  : 핵종  $i$ 에 대한 흡입 감상선선량률 환산인자 ((mSv/h)/(kBq/m<sup>3</sup>))

식 (2.1.1)에서 IAEA[1]는 iodine (I) 동위원소 5 가지와 tellurium (Te) 동위원소 3 가지만 고려의 대상으로 보고 이 8 가지 핵종에 대해서  $CF_{2,i}$  값을 제시하고 있다.

### 2.3.1.3. OIL3

OIL3(mSv/h)은 방사성 플룸 통과후 소개 또는 고수준 옥내대피를 위한 운영개입준위로서 지표침적으로부터의 공간선량률로 운영되며 아래와 같이 계산된다.

$$OIL3 = GIL_{ev} \frac{1}{F_h} \frac{1}{F_d} \frac{1}{T_e} \text{ 또는 } GIL_{ev} \frac{1}{F_{all}} \frac{1}{T_e} \quad (3)$$

여기서,

$F_h$  : 옥내거주에 따른 저감계수 (일반치 0.5 적용)

$F_d$  : 방사능 붕괴에 따른 저감계수 (사고 초기 수일간은 0.5가 유효)

$F_{all}$  : 방사능 붕괴, 옥내거주 등 모든 요인에 따른 저감계수 (0.25)[1]

$T_e$  : 피폭기간 (소개의 경우 최장 7일(168 h))

OIL3의 계산에 있어서는 침적한 방사성 물질의 재부유에 의한 흡입선량은 무시하고 외부피폭 선량만 고려한다. 또한 OIL3 값은 사고 초기 수일간 크게 변하지 않으므로 핵종별 농도 측정결과에 의거한 수정절차는 필요치 않다[1,7].

#### 2.3.1.4. OIL4

OIL4(mSv/h)는 방사성 핵종의 침적에 의해 오염된 지역으로부터 일시이주를 위한 운영 개입준위로서 역시 지표침적으로부터의 공간선량률로 운영되며 아래와 같이 계산된다.

$$OIL4 = GIL_{rel} WR \frac{1}{(SF \times OF) + (1 - OF)} \quad (4)$$

여기서,

$GIL_{rel}$  : 일시이주를 위한 일반개입준위 (mSv, 표 3 참조)

$WR$  : 지표침적에 따른 장기간 피폭선량에 대한 공간선량률의 비

$SF$  : 옥내거주시 지표침적에 대한 차폐계수, 즉 실외 선량에 대한 실내 선량의 비 (일반치 0.16 또는 건물별 차폐계수[1])

$OF$  : 점유계수 또는 차폐계수  $SF$ 가 적용되는 기간의 분률, 즉 실내에서 보내는 시간의 분률 (일반치 0.6)

⇒  $WR$ 은 지표 시료 분석결과에 따라 다음과 같이 수정된다.

$$WR = \frac{\sum_{i=1}^n (C_{g,i} CF_{3,i})}{\sum_{i=1}^n (C_{g,i} CF_{4,i})} \quad (4.1)$$

여기서,

$C_{g,i}$  : 핵종  $i$ 의 지표면 농도 (kBq/m<sup>2</sup>)

$CF_{3,i}$  : 지표침적에 따른 공간방사선량률 환산인자 ((mSv/h)/(kBq/m<sup>2</sup>))

$CF_{4,i}$  : 지표침적에 따른 장기간 피폭선량 환산인자 (mSv/(kBq/m<sup>2</sup>))

식 (4.1)에서  $CF_{3,i}$ 와  $CF_{4,i}$ 는 IAEA[1]가 50 여 가지 핵종들에 대해서 제시한 값을 사용하면 된다.  $CF_{4,i}$ 에 대해서는 첫달, 다음 달 및 평생의 세 가지 피폭기간에 대한 값이 주어져 있으므로 각각 용도에 맞게 사용되어야 할 것이다.

지표에 침적한 방사성 핵종의 존재비는 시간 및 공간에 따라 다를 것이나 현실적인 이유와 인적 요인 때문에 영향지역 전체에 대하여 단 하나의 OIL4 값을 사용하는 것으로 한다. 따라서 지

표 시료는 도출한 OIL4 값이 전지역을 대표할 수 있도록 넓은 면적으로부터 채취되어야 한다. 또한 OIL4는 첫째 달에는 매주, 그 다음부터는 붕괴의 영향이 미미해질 때까지 매월 재평가 되어야 한다.

### 2.3.1.5. OIL5

OIL5는 식품섭취를 잠정적으로 제한하기 위한 운영개입준위로서 역시 지표침적으로부터의 공간선량률로 운영된다. 이것은 침적으로 인한 공간방사선량률이 백그라운드 이상인 것이 분명한 지역에서는 음식물의 오염준위가 일반조치준위를 초과할 가능성이 있다는 전제하에 적용하는 것으로 수정의 대상은 아니다. 다만 지상 침적농도나 식품내 농도가 구해져서 보다 확실한 OIL(예: OIL6 또는 OIL8)을 적용할 수 있기 전까지 잠정적으로 사용한다.

### 2.3.1.6. OIL6

OIL6(Bq/m<sup>2</sup>)는 일반식품(OIL6F) 및 우유(OIL6M)의 섭취제한을 위한 운영개입준위로서 I-131의 지표면 농도로 운영되며 아래와 같이 수정한다.

$$OIL6 = GAL_G \frac{C_{g,I-131}}{\sum_{i=1}^n C_{G,i}} \quad (5)$$

여기서,

$GAL_G$  : 음식물에 대한 I-131 핵종 그룹의 일반조치준위 (Bq/kg) (표 4 및 5 참조)

$C_{g,I-131}$  : I-131의 침적농도 (Bq/m<sup>2</sup>)

$C_{G,i}$  : 식품시료내 I-131 핵종 그룹에 속하는 각 핵종( $i$ )의 농도 (Bq/kg), 단 농도는 최종 소비자의 것(예: 밀가루의 경우 빵, 쌀알의 경우 쌀밥내 핵종 농도)이라야 하고 우유의 경우에는 해당 지역에서 방목중인 젖소에 대하여 가능한 최대농도를 대표하는 것이어야 한다. 따라서 이에 대한 농도 보정 절차가 IAEA[1]에 의해 제시되어 있다.

### 2.3.1.7. OIL7

OIL7(Bq/m<sup>2</sup>)은 일반식품(OIL7F) 및 우유(OIL7M)의 섭취제한을 위한 운영개입준위로서 Cs-137의 지표면 농도로 운영되며 아래와 같이 수정한다.

$$OIL7 = GAL_G \frac{C_{g,Cs-137}}{\sum_{i=1}^n C_{G,i}} \quad (6)$$

여기서,

$GAL_G$  : 음식물에 대한 Cs-137 핵종 그룹의 일반조치준위 (Bq/kg) (표 4 및 5 참조)

$C_{g,Cs-137}$  : Cs-137의 침적 농도 (Bq/m<sup>2</sup>)

$C_{G,i}$  : 식품시료내 Cs-137 핵종 그룹에 속하는 각 핵종( $i$ )의 농도 (Bq/kg), 여기서도 OIL6에서의와 같은 농도보정이 필요하다.

### 2.3.1.8. OIL8

OIL8(Bq/kg)은 일반식품(OIL8F) 및 우유나 물(OIL8M)의 섭취제한을 위한 운영개입준위로서 식품내 I-131 농도로 운영되며 아래와 같이 수정한다.

$$OIL8 = GAL_G \frac{C_{f,I-131}}{\sum_i^n C_{G,i}} \quad (7)$$

여기서,

$GAL_G$  : 음식물에 대한 I-131 핵종 그룹의 일반조치준위 (Bq/kg) (표 4 및 5 참조)

$C_{f,I-131}$  : 대표 식품시료내 I-131 농도 (Bq/kg)

$C_{G,i}$  : 대표 식품시료내 I-131 핵종 그룹에 속하는 각 핵종( $i$ )의 농도 (Bq/kg)

### 2.3.1.9. OIL9

OIL9(Bq/kg)는 일반식품(OIL9F) 및 우유나 물(OIL9M)의 섭취제한을 위한 운영개입준위로서 식품내 Cs-137 농도로 운영되며 아래와 같이 수정한다.

$$OIL9 = GAL_G \frac{C_{f,Cs-137}}{\sum_i^n C_{G,i}} \quad (8)$$

여기서,

$GAL_G$  : 음식물에 대한 Cs-137 핵종 그룹의 일반조치준위 (Bq/kg) (표 4 및 5 참조)

$C_{f,Cs-137}$  : 대표 식품시료내 Cs-137 농도 (Bq/kg)

$C_{G,i}$  : 대표 식품시료내 Cs-137 핵종 그룹에 속하는 각 핵종( $i$ )의 농도 (Bq/kg)

OIL8과 OIL9에서도 각각 OIL6과 OIL7에서의 같은 농도보정 절차가 필요하다. 한편 식품내 각 핵종의 농도가 모두 측정되면 다음과 같이 일반조치준위와 직접 비교할 수도 있다.

$$\sum_i^n C_{G,i} > or \leq GAL_G \quad (9)$$

여기서,

$C_{G,i}$  : 식품 시료내 핵종 그룹 G에 속하는 각 핵종( $i$ )의 농도 (Bq/kg)

$GAL_G$  : 핵종 그룹 G에 대한 일반조치준위 (Bq/kg) (표 4 및 5 참조)

그러나 비상시에 식품 하나하나에 대해서 완전한 핵종 분석을 기대하기는 어려우므로 식품 종류별(예: 우유, 열채류, 기타 채소, 과일 등)로 대표시료의 핵종분석을 통하여 핵종 구성비를 구하고 전형적인 식품 조리법을 고려하여 식 (5)~(8)과 같이 운영개입준위를 수정한 다음 여타 시료에 대해서는 한 개의 표시핵종 (marker isotope, I-131 또는 Cs-137) 농도만을 측정하여 운영개입준위와 비교하면 될 것이다. 한편 식품에 대한 방호조치로 인하여 식품부족 사태가 초래될 경우에는 10 배 (첫 달)에서 50 배 (첫 주)까지 높은 운영개입준위를 적용해도 좋다고 한다[1,4].

### 3. 비상시 환경방사선(능) 측정

#### 3.1. 환경방사선 측정

원자력 비상시에는 표 6에서와 같이 공간선량률로 주어진 운영개입준위와 비교될 측정치를 빨리 확보하는 것이 중요하다. 비상시 공간방사선 측정에는 평상시 운영하는 고정식 모니터링 스테이션, 비상시에 설치되는 임시 모니터링 포스트, 차량을 이용한 주행감시(carborne survey) 및 이동식 survey meter 등이 이용될 수 있다[2,9-11]. 이 때 운영개입준위에서와 같이 유효선량률(effective dose rate, Sv/h)의 단위로 선량률 측정이 이루어져야 한다.

고정식 모니터링 스테이션은 평상시 원자력 시설 부지내 및 부지 경계 부근에 방위별로 설치되어 공간선량률 정보를 연속적으로 감시본부에 전송하고 있다. 원자력사업자의 비상대책실이 모니터링 스테이션과 on-line으로 연결되어 있으면 비상시 신속하게 방사성 물질의 환경방출을 확인하고 초기운영개입준위(표 6)를 적용하는 데 필요한 선량률 정보를 조기에 확보할 수 있다.

임시 모니터링 포스트는 방사성 물질의 확산경로 및 인구분포 등을 고려하여 부지 경계선 밖 비상계획구역 내에 임시로 설치하여 무인으로 운영되는 것이다. 임시 포스트에서의 측정 결과는 on-line 전송이 곤란하므로 자기기록 장치가 부착되어 선량률의 변화가 기록되게 하고 환경감시요원이 주기적으로 이를 확인하여 보고토록 하는 방식이 바람직할 것이다.

이동식 survey meter 이용은 환경감시요원이 survey meter를 휴대하고 미리 정해진 (또는 환경탐사반장이 지정하는) 루트를 따라 신속히 이동하면서 지정된 지점에서 선량률을 측정하고 즉시 무선통신기나 휴대폰을 이용하여 환경탐사반장(비상대책실 근무)에게 보고하는 방식이다. 이것은 인력이 다소 많이 소요되는 단점이 있으나 원하는 장소와 시점에서 비교적 손쉽게 측정결과를 얻을 수 있는 이점이 있다. 방위별로 적정개수의 측정지점을 미리 정해서 익혀 두어야 비상시에 위치 선정에 혼란이 없고 또한 현장과 비상대책실 간 의사소통이 원활히 이루어 질 수 있다.

차량주행 감시는 차량에 공간방사선량률 측정기를 탑재하여 정해진 루트를 따라 주행하면서 일정한 시간 간격으로 선량율을 측정하는 것이다. 측정 결과는 무선으로 비상대책실에 실시간 전송하는 방식이 가장 좋다. 이를 위해서는 차량에 위치추적 시스템(GPS)을 갖추고 비상대책실에서는 차량 위치 정보와 측정 정보를 송신 받아 화면에 바로 표시할 수 있는 전산 시스템이 구비될 필요가 있다.

이밖에 항공기를 이용한 항공감시도 생각해 볼 수 있다. 항공감시는 광범위한 지역에 대해 신속하게 측정정보를 획득하는 데 적합하나 비용이나 기술적인 측면에서 어려운 점이 많다. 따라서 비상시 항공감시의 타당성에 대해서는 면밀한 검토가 필요하며 현재로서는 위에 언급한 방법들을 적절히 이용하는 것이 좋을 것으로 판단된다.

#### 3.2. 환경방사능 측정

##### 3.2.1. 대기중 농도

대기중 농도를 신속히 측정하기 위해서는 초고체적 공기채취기를 이용하여 필요한 양의 공기에 포함된 미립자와 iodine 가스( $I_2$ ,  $CH_4I$  등)를 단시간 내에 포집해야 한다. 이때 사용하는 포집제는 상기 물질들에 대한 포집효율은 높고 Xe이나 Kr과 같은 불활성 기체에 대한 포집 효율은 최대한 낮은 것을 사용해야 한다[9,12].

대기중 핵종 농도는 OIL1과 OIL2의 수정을 위한 것으로 IAEA[1]에 따르면 OIL1의 경우 약 50가지, OIL2의 경우 8 가지 핵종들에 대한 측정자료가 필요하다. 많은 핵종들이 감마스펙트로메트리법으로 비교적 용이하게 분석될 수 있지만 Sr-90이나 몇몇 알파 핵종들은 화학분석이 필수적이다. 이와 같이 화학분석이 필요한 핵종에 대해서는 가능한 한 단시간 내에 소정의 결과를 얻을 수 있는 분석법을 도입해야 한다.

트리튬의 경우 IAEA는 사용후 핵연료 저장조에서만 중요한 것으로 보고 있으나 우리나라의 중수로나 연구용원자로인 하나로에서도 중요시될 필요가 있다. 트리튬은 대기중에서 주로 HTO와

HT의 형태로 존재하나 인체에 대한 영향 면에서 HT는 무시할 수 있다. 따라서 대기중 HTO를 포집하는 것이 중요하다. 비상시에는 버블러(bubbler)를 이용하여 증류수에 HTO 분자들을 포획한 다음 액체섬광계수기로 측정하는 것이 좋을 것이다[2].

### 3.2.2. 지표면 농도

지표면에서의 핵종 농도( $Bq\ m^{-2}$ )는 OIL4, OIL6, OIL7의 수정 및 OIL6와 OIL7의 적용을 위한 것이다.

식 (4)~(6)에서 보듯이 OIL4를 수정하기 위해서는 50 여 가지 핵종들에 대한 지표시료 분석결과가 필요하다[1,2]. 이를 위해서는 광범위한 지역을 대표하는 지표시료를 채취하여 감마스펙트로메트리를 실시하거나 화학분석후 알파선 또는 베타선을 계측해야 한다. OIL6와 OIL7을 적용하기 위해서는 I-131과 Cs-137의 지표면 농도가 필요하다. 이때에는 In-situ 감마스펙트로메트리로 신속히 측정하도록 되어 있다[1]. 이 경우 OIL6와 OIL7을 수정하기 위해서도 각각 I-131과 Cs-137에 대한 In-situ 감마스펙트로메트리 분석결과가 필요할 것이다[1]. 한편 OIL6와 OIL7이 지표 시료 분석결과에 따라 수정되었을 경우에는 그 후의 적용도 지표시료 분석결과에 따라야 할 것으로 본다. 목표 핵종이 I-131과 Cs-137 두 핵종일 경우에는 In-situ 감마스펙트로메타의 검출기로 계측효율이 높은 Na(Tl) 형이 Ge 형보다 유리할 것이다[2].

### 3.2.3. 식품내 농도

식품내 핵종 농도는 OIL6와 OIL7의 수정 및 OIL8과 OIL9의 적용 및 수정을 위해 필요한 정보이다. 분석 대상 핵종들은 표 4 및 5와 같다.

비상시에는 정확도가 다소 떨어지더라도 신속히 분석할 필요가 있다. 생체시료의 화학분석을 위해서는 건조·회화 같은 전처리 과정이 필요하지만 감마스펙트로메트리는 생체상태로도 가능하다. 따라서 시료채취 즉시 생체 상태로 감마스펙트로메트리를 실시하여 주요 감마핵종(특히 I-131 및 Cs-137)을 측정하고 그 결과를 초기 OIL8 및 OIL9와 비교한 다음 전처리하여 화학분석 또는 2차 감마스펙트로메트리를 실시하면 될 것이다. 처음부터 시료를 충분히 채취하여 생체 감마스펙트로메트리와 화학분석을 동시에 수행하면 더욱 좋을 것이다.

트리튬은 우리나라의 중수로형 원자로에서 중요하므로 표 5에서와 같이 식품에 관한 일반조치 준위에 포함되어 있다[7,13]. 식품내 트리튬은 TFWT와 OBT의 형태로 존재한다. 그러나 플룸 통과 후 수 시간 동안에는 대부분 TFWT로 존재할 것으로 판단되고[14] 또한 표 5의 조치준위도 편의상 매우 낮게 정해진 것이므로 비교적 신속하게 측정할 수 있는 TFWT만 대상으로 하는 것이 바람직할 것으로 본다. 식품내 TFWT 분석을 위해서는 시료를 채취 즉시 냉동·보관하여 실험실로 운반한 후 동결건조법으로 수분을 추출하고 액체섬광계수기로 베타선을 계측해야 한다.

## 4. 비상시 환경감시요원의 역할

그림 1은 원자력 사고시 사업자에 의해 운영되어야 할 방사선비상대책본부[15](과학기술부 고시 제 2004-11호, 원자력사업자의 방사선비상계획 수립 등에 관한 기준[16] 제 12조에 규정된 '비상대책실'에 해당) 내 환경탐사반의 역할을 기술지원팀에 소속된 타 조직과의 연계성을 고려하여 모식적으로 도시한 것이다.

환경탐사반(장)의 가장 주된 임무는 환경평가반(장)이 최적의 주민보호조치를 적기에 결정하여 기술지원팀장에게 건의할 수 있도록 환경감시 자료를 신속히 취득하여 운영개입준위를 평가·수정하고 그 결과를 환경평가반(장)에게 제공하는 것이다. 이를 위해 환경탐사반(장)은 환경평가반(장)으로부터 방사선영향 예상지역을 통보 받아 탐사지점을 결정, 탐사반원을 출동시키고 현장탐사 결과를 초기운영개입준위와 비교하는 한편 각종 시료의 분석결과에 입각하여 운영개입준위를 수정한다. 이런 작업을 통하여 필요한 보호조치를 조속히 판단하고 그 결과를 환경평가반장에게

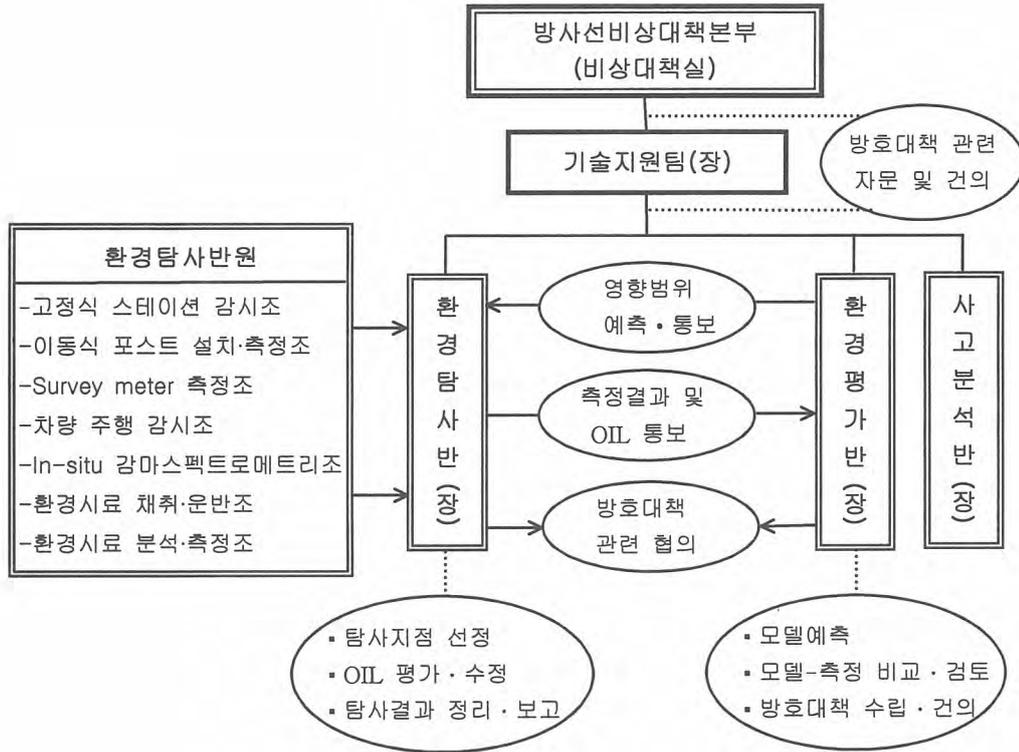


그림 1. 환경탐사반의 역할 모식도.

즉시 통보해야 한다.

환경평가반(장)은 비상발령을 접수하면 즉시 주민의 예상피폭선량을 계산하고 환경탐사반(장)의 주민 보호조치에 대한 의견 및 각종 통보 사항(환경탐사 결과, OIL 수정 자료 등), 사고분석반(장)이 제공하는 사고진행 경과에 관한 정보 및 자체 모델로 예측한 회피선량과 영향범위(거리) 등에 입각하여 주민 보호조치의 종류 및 실시 지역을 결정한다. 이 때 측정과 모델 양자의 장단점을 고려한 결정이 이루어질 필요가 있다. 즉 특정 지점이나 지역에 대하여 적절한 보호조치의 종류를 정하는 데에는 가능한 한 측정 결과에 입각하는 것이 좋고 보호조치 실시지역의 범위나 향후 추이 등에 대해서는 모델 예측 결과를 활용하는 것이 좋을 것이다.

기술지원팀장은 환경평가반(장)이 건의한 보호조치에 대해서 의사결정을 내려야 한다. 이를 위해 기술지원팀장은 환경탐사반(장)으로부터 환경방사선(능)의 현재 준위와 그 변화경향 등에 관한 최신정보를 보고받아 참고할 필요가 있다. 기술지원팀장은 과학적인 판단과 통찰력에 입각하여 필요 이상의 조치는 최대한 지양하는 방향으로 보호조치를 결정하여 비상대책실장에게 건의해야 한다. 보호조치의 이행에는 막대한 사회·경제적 비용이 소요되므로 부적절한 비판적 평가에 따른 보호조치는 자칫 득보다 실이 크기 때문이다[3,4]. 이것은 환경평가반(장)이 기술지원팀장에게 보호조치를 건의할 때에도 마찬가지이다.

이상에서 본 바와 같이 환경탐사반(장)과 환경평가반(장)은 유사시 유기적이고 긴밀한 협조 하에 업무를 수행하여 보호조치에 대한 기술지원팀장의 의사결정을 효과적으로 지원할 수 있도록 해야 한다.

## 5. 평상시 대비

비상시 위와 같은 내용의 환경감시를 차질없이 수행하기 위해서는 평상시에 아래와 같은 사항에 대해 철저히 준비할 필요가 있다[2,3,8].

### 5.1. 조직 정비

원자력사업자는 평상시에도 의무적으로 환경감시를 수행하고 있다. 사고시에 평상시 환경감시를 위한 인원과 장비를 비상환경감시에 투입하여 이용한다면 기술적으로나 경제적으로나 매우 효율적인 것이다. 원자력 사업자의 평상시 환경감시 요원과 장비들이 비상시에 총동원되기 위해서는 비상기간에는 평상시 감시 의무를 면제해 주는 법 규정이 마련되어야 할 것으로 본다.

비상시 환경감시 조직은 업무의 연속성을 위하여 적어도 2교대가 가능하도록 편성되어야 한다. 또한 만일의 사태에 대비하여 대체 요원이 확보되어야 한다. 각 교대조에는 조장 휘하에 위에서 언급한 환경방사선측정, 환경방사능분석, 운영개입준위 수정 등의 업무가 상호 유기적으로 원활히 수행될 수 있도록 인원이 구성되어야 한다.

### 5.2. 설비 보유 및 관리

평상시 환경감시에 이용되고 있는 시설과 장비의 대부분은 비상시에도 그대로 이용될 수 있다. 특별히 비상시에 필요한 것은 survey meter, 이동식 공기시료채취기, 임시 모니터링 포스트용 환경방사선연속 측정·자기 장치 및 in-situ 감마스펙트로메트리시스템 등이다.

비상시 야외용 장비들은 온도와 습도에 대한 적용범위가 넓어야 하고 수분과 충격에 대한 내구성도 충분해야 한다. 또한 측정선량율의 범위는 환경준위에서부터 사고시 예상되는 최대선량률보다 수 배 높은 선량률까지 측정할 수 있도록 준비되어야 한다. 한편 원전 사고시에는 대량방출 핵종인 Xe-133으로부터의 저에너지(81 keV) 감마선의 영향을 과대평가하지 않도록 에너지 의존성이 가능한 한 낮은 것을 선택할 필요가 있다.

비상시 환경감시를 위한 야외출동 요원들은 survey meter, TLD 배지, 시료채취 도구, 필기구, 통신장비, 지도, 개인방사선방호장비 등 여러 가지 물품들을 휴대해야 한다. 이러한 물품들을 요원의 임무별로 kit화 하여 하나의 용기에 넣어 두어 비상시에 그대로 갖고 출동할 수 있도록 하면 매우 편리할 것이다. Kit 용기는 가능한 한 가볍고 휴대가 간편해야 하며 양손의 움직임에 제약을 주지 않아야 한다. 따라서 방수 기능을 갖춘 배낭 형태가 알맞을 것으로 판단된다.

사고로 인한 대피나 소개에 따라 환경실험실의 주거성이 상실될 경우에 대비하여 제 2의 실험실이 필요하다. 과학기술부고시 제 2004-11호[16] '원자력사업자의 방사선비상계획 수립 등에 관한 기준'에 의하면 환경실험실이 비상계획구역 내부에 위치할 경우 동 구역 외부에 예비환경실험실을 지정하고 이동환경감시차량을 확보할 것을 요구하고 있다. 이동환경감시차량에는 이동식환경실험실이라고 할 만한 설비가 갖추어져야 할 것이다. 각종 장비들은 차량에 단단히 고정되어 충격에 따른 손상을 방지해야 한다. 차량은 고장시 교체가 가능하도록 트레일러 식으로 하는 것이 바람직하다.

비상시에만 특별히 사용되는 장비의 경우 사고가 없으면 무용지물이라는 생각에 보유·설치 및 유지·관리를 소홀히 할 개연성이 있다. 그러나 평상시에 이와 같은 대비를 철저히 하지 않으면 비상시에 환경감시를 제대로 수행할 수 없고 방호대책 수립에 큰 혼선이 초래될 수 있으므로 비상시 필요한 설비를 평상시에 충분히 보유하여 관리할 수 있도록 예산과 인력의 지원이 있어야 할 것이다.

### 5.3. 관련 절차 수립

비상시 환경감시에 관련된 업무를 신속하고도 효율적으로 수행하기 위해서는 평상시에 기능 및 임무별로 명확한 업무수행 절차를 매뉴얼 형태로 마련해 두어야 한다.

사고의 진행경과에 따라 비상대책실 근무 요원(환경탐사반장 및 보조요원)에게 필요한 절차를 순서적으로 나열하면 다음과 같다.

① 비상발령 접수 절차, ② 환경탐사반원 소집 절차, ③ on-line 공간방사선량을 측정결과 접수 절차, ④ 환경감시 지역 및 지점 선정 절차, ⑤ 야외 탐사반원 출동지시 절차, ⑥ 야외 및 실험실 측정결과 접수 절차, ⑦ 운영개입준위 적용 및 수정 절차, ⑧ 예비실험실 및 이동환경감시차량 운영지시 절차, ⑨ 보호조치 관련 건의 및 협의 절차, ⑩ 환경탐사반원 교대·철수지시 절차 등

야외 환경탐사 반원에게 필요한 절차를 순서적으로 나열하면 다음과 같다.

① 환경탐사반원 응소 절차, ② 개인장비 분배·수령 절차, ③ 탐사현장 이동 절차 ④ 야외 survey meter 측정 절차, ⑤ 야외측정자료 보고 절차, ⑥ 공기시료(미립자 및 수분) 채취 절차, ⑦ 임시 모니터링 포스트 설치 절차, ⑧ 차량 주행감시 절차, ⑨ in-situ 감마스펙트로메트리 절차, ⑩ 지표시료 채취 절차, ⑪ 식품시료 채취 절차, ⑫ 시료 운반 및 전달 절차, ⑬ 환경탐사반원 교대·철수 절차

환경실험실 근무 요원에 대해서는 다음과 같은 절차가 필요하다.

① 환경탐사반원 응소 절차, ② 시료 수령 및 전처리 절차, ③ 각종 분석 및 계측 절차, ④ 측정결과 보고 절차, ⑤ 주거성 상실시 예비실험실 운용 절차, ⑥ 이동환경감시차량 운영 절차, ⑦ 환경탐사반원 교대 절차, ⑧ 각종 장비 유지·관리 절차 등

#### 5.4. 비상 환경감시 업무 지원 전산체계 개발

사고로 인하여 매우 혼란스럽고 급박한 상황속에서 환경감시 업무를 통하여 획득한 각종 정보를 일일이 손으로 적어 보관하고 지면상에서 필요한 계산을 하게 되면 많은 오류와 지체를 초래하게 된다. 따라서 비상시환경감시 업무를 지원하고 수집한 정보를 저장·가공·처리하기 위한 전산 시스템의 수립이 필요하다. 이 전산 시스템은 원자력사업자가 수립하여 유사시에는 비상대책실 내에서 가동되는 것이 바람직하다.

비상시 환경감시 업무 지원을 위한 전산시스템에는 보호조치 기준, 각종 절차 및 양식, 환경탐사 장비 내역, 요원의 인적 정보 등 기본적인 사항의 저장과 함께 환경탐사 자료의 입력·처리 기능과 측정결과를 이용하여 운영개입준위를 수정하기 위한 전산 프로그램 등이 반드시 포함되어야 한다. 또한 지리정보시스템(GIS)이 갖추어져 야외 탐사요원들의 현위치와 각 지점에서의 측정결과를 저장하는 동시에 부지 주변 지도상에 시간대 별로 나타내는 기능이 부여될 필요가 있다. 지리정보시스템은 환경평가반과 호환이 가능하여 그들이 제공하는 예상영향범위 등이 on-line으로 전송, 출력될 수 있어야 할 것이다.

#### 5.5. 교육 및 훈련

비상시 환경탐사반원들이 주어진 임무를 신속·정확하게 완수하기 위해서는 평상시에 교육과 훈련을 통하여 임무를 숙지하고 적절한 숙련도를 유지하고 있어야 한다. 이러한 교육과 훈련에 관한 사항은 관련 법규에도 명백히 규정되어 있다.

특히 방재훈련을 통하여 비상시 환경감시를 위한 제반 절차가 제대로 이행될 수 있는지 점검하는 것이 중요하다. 이 때 야외탐사의 경우 기상에 따른 제약이 클 것이므로 악천후 및 야간에서의 훈련을 통하여 경험을 쌓는 동시에 문제점을 파악하여 해결하려는 노력이 요구된다.

#### 6. 결 론

원자력 발전소 비상시 환경감시는 주민 보호조치 결정을 위한 가장 신뢰도 높은 정보를 제공하는 수단이다. 비상시에는 환경감시를 통하여 초기운영개입준위를 평가하기 위한 측정결과를 신속히 획득하고 사고의 경과에 따라 운영개입준위를 적기에 수정하기 위한 분석결과를 생산해야 한

다.

이를 위해서는 평상시에 비상시 환경감시 조직을 구성하여 인원과 설비를 확보·관리하고 각종 절차서를 수립하는 한편 주기적 교육과 훈련을 통하여 비상시 환경감시 요원들이 각자의 임무를 숙지하고 작업 숙련도를 높임으로써 비상시에 필요한 업무가 차질 없이 수행될 수 있도록 해야 한다. 한편 비상시 급박한 상황 속에서 각종 정보 및 자료의 관리, 운영개입준위의 수정, 환경탐사 결과 도시 등의 업무를 신속·정확하게 수행하기 위해서는 비상시 환경감시 업무를 지원하기 위한 전산시스템의 구축이 요구된다.

비상시 방사성 물질이 방출되기 전에는 사고 등급이나 모델의 예측 결과에 입각하여 주민 보호 조치를 결정할 수밖에 없다. 그러나 모델에 의한 예측은 일반적으로 불확실성이 크고 심각한 사고의 경우에는 더욱 그러하므로 반드시 방출개시 후에 얻어지는 측정결과에 입각하여 보호조치를 재평가하고 필요시 수정해야 한다. 비상시 보호조치에 관한 의사결정을 지원하는 데 측정결과보다 확실한 정보는 없기 때문이다. 그러나 측정에는 시간 및 공간적인 제약이 있으므로 모델과 측정의 장단점을 고려한 주민 보호조치 결정이 필요하다. 따라서 양자 간에 긴밀하고 유기적인 협조가 요구된다.

한편, 우리나라의 관련 법규에 보호조치 결정기준이 회피선량으로 주어진 것임을 명시하고 운영개입준위에 관한 규정도 포함시키는 것이 필요하다고 본다. 또한 일반개입준위(음식물에 대한 일반조치준위 포함)와 운영개입준위는 사회·경제적 여건이나 원자로 및 부지의 특성에 따라 달라져야 하므로 우리나라 또는 부지의 제반 사정에 보다 적합한 값을 도출하기 위한 연구가 수행되어야 할 것으로 본다.

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 지원으로 수행되었습니다.

#### 참고문헌

1. IAEA, Generic assessment procedures for determining protective actions during a reactor accident, IAEA-TECDOC-955, Vienna (1997).
2. IAEA, Generic procedures for monitoring in a nuclear or radiological emergency, IAEA-TECDOC-1092, Vienna (1999).
3. IAEA, Method for developing arrangements for response to a nuclear or radiological emergency, EPR-METHOD(2003), Vienna, (2003).
4. IAEA, Intervention criteria in a nuclear or radiation emergency, Safety Series No. 109, Vienna (1994).
5. IAEA, International basic safety standards for protection against ionizing radiation and for the safety of radiation sources, Safety Series No. 115, Vienna (1996).
6. ICRP, Principles for protection of the public in a radiological emergency, Report of a Task Group of Committee 4 of the ICRP, Publication No. 63, Pergamon Press (1993).
7. 한국원자력안전기술원, 방사선비상 개입준위 기술기준(안), KINS/HR-448/SUP (2002).
8. IAEA, Preparedness and response for a nuclear or radiological emergency, IAEA Safety Standards Series, No. GS-R-2, Vienna (2002).
9. 이정호, 이영복, 최용호 등, 방사선환경안전연구, KAERI/RR-710/87, 한국에너지연구소, 과학기술처 (1988)
10. 南賢太郎, 國分守信, 緊急時 環境放射線 モニタング 指針, 日本原子力學會誌, 26, 753-761 (1984)

11. 原子力安全委員會(日本), 緊急時 環境放射線 モニタング 指針 (2001).
12. S. Kato, H. Noguchi, M. Murata et al., Selective collection of organic iodine from the radioactive noble gas-containing atmosphere in nuclear reactor accident, 保健物理, 17, 427-436 (1982).
13. 과학기술부, "원자력시설 등의 방호 및 방사능 방재 대책법 시행규칙," 과학기술부령 제 55호 (2004).
14. Y. H. Choi, K. M. Lim, W. Y. Lee, S. Diabaté, S. Strack, Tissue free water tritium and organically bound tritium in the rice plant acutely exposed to atmospheric HTO vapor under semi-outdoor conditions, J. Environmental Radioactivity 58, 67-85 (2002).
15. 한국원자력연구소, 하나로 방사능방재 훈련실시계획서(안) (2004).
16. 과학기술부, "원자력사업자의 방사선 비상계획 수립 등에 관한 기준," 과학기술부 고시 제 2004-11호 (2004).

## Development of Dark-striped Field Mice, *Apodemus agrarius*, as a Biological Dosimeter in a Radio-ecological Monitoring System

### 3. Radio-sensitivity between *A. agrarius* and ICR Mice

Hee-sun Kim, Y. Nishimura\*, Young-Woo Jin, Chong-Soon Kim

Radiation Health Research Institute, KHNP, 388-1, SSangmun-dong, Dobong-ku, Seoul 132-703, Korea

\* National Institute of Radiological Sciences, 4-9-1 Anagawa, INage-ku, Chiba 263-8555, Japan

[hskimdvm@khnp.co.kr](mailto:hskimdvm@khnp.co.kr)

#### Abstract

This study examined the possibility of using striped field mice as a biological dosimeter or indicator for the environmental radio-surveillance. For this study, the external morphological characteristics and isoenzymic types of dark-striped field mice were studied after they were captured. Among the morphological external characteristics, the dark-brown coat, dark back stripe, head-to-tail length, tail length, and ear length matched the taxonomical characteristics of dark-striped field mice. The analyses on L-lactate dehydrogenase, aspartate aminotransferase, and malate dehydrogenase revealed that one species of dark-striped field mice, called *Apodemus agrarius*, was inhabited throughout a wide range of Korea. On the other hand, *A. agrarius* and ICR mice to analyze their survival rate and frequency of micronuclei in peripheral polychromatic erythrocytes after irradiation (0, 0.5, 1, 3, 5, 7, 9 Gy). The  $LD_{50/30}$  of *A. agrarius* and ICR mice were approximately 5 Gy and 7Gy, respectively. The results of the study reveal that wild *A. agrarius* have a high potential as a biological monitoring system to determine the impact of radiation effect in areas such as those within the vicinity of nuclear power plants.

**Key words:** *Apodemus agrarius*, radio-sensitivity, ecological and Biological dosimeter, and ICR.

#### Introduction

Regarding the management of nuclear power plants and the installation of facilities for radiation waste storage: social concerns over radiation safety are increasing. To understand how environmental radiation affects on human beings, the development of an unmanned monitoring system is required. The existing radio-environmental surveillance systems can be classified into physical and biological monitoring systems. The physical monitoring system includes food [1], assessment of radiation concentration in soil and water [2], the assessment of ambient dose rate, and the assessment of radioactive materials accumulated in trees and other plants [3]. On the other hand, wild small animals were reported to be effective biological indicators of environmental radiation after the Chernobyl incident [4,5,6]. Moreover, livestock such as cows [7] also used as indicators for the biological effects of radiation, but the development of new models is required, as they involve many confounding factors. This study investigated the possibility of using dark-striped field mice as a biological dosimeter to assess the radiation effects on the enviro-ecology. The taxonomically classified dark-striped field mice, *A. agrarius*, were then irradiated to investigate their radio-sensitivity based on survival rates, body weight and micronuclei frequency in polychromatic erythrocytes. The radiation sensitivity between *A.*

*agrarius* and ICR mice was compared in this study.

### Materials and Methods

**Collection of dark-striped field mice and breeding:** For this study, dark-striped field mice, sampled from five regions in Korea (Kyonggi, Chungchong, Cholla, Kyongsang and Kangwon province), were collected with Sherman trap (H.B. Sherman trap, USA) in a single month (October). The dark-striped field mice were subjected to controlled breeding by allowing the specimens to mate with only one partner at a time. Breeding was continually induced after the newborn mice were five weeks old by mating four females with one male. Female mice that were 5-6 weeks old were used for this study.

**Analysis of morphological external characters:** In order to classify the species of dark-striped field mice, the *Apodemus* taxonomic classification of Corbet [8] was used to examine the coat color and to measure the length between the head and the basal parts of the tail, tail length, and the length of the ears.

**Analysis of isoenzymes:** After assessing the morphological external characteristics, the livers of the mice with dark-colored stripes on their backs were collected and analyzed for the electrophoretotypes of enzymes (Lactate dehydrogenase, aspartate aminotransferase, malate dehydrogenase) [9]. The comparison model for this study was the livers of an ICR mouse at 6 weeks age (female), and all processes were conducted under a temperature of 4°C.

**Irradiation:** In order to examine the radiation sensitivity of *A. agrarius* and ICR mice, the five groups with different doses (0, 0.5, 1, 3, 5, 7, 9 Gy) were irradiated with gamma rays ( $^{137}\text{Cs}$ , dose rate: 0.8 Gy/min).

**Survival rate:** After irradiation, the mice were kept in three sterilized cages in groups of five to examine their survival rate for 30 days. The chow (Samyang, Korea) and beading (JRS, Germany) were used with those exposed to gamma rays. The mice were given feed and acidified (pH 2.5) water freely. For this study, the survival rate of the mice for 30 days from irradiation was examined and it was determined that the dose (LD<sub>50/30</sub>) eventually killed about half of the mice. As the birth rate of wild mice is low, the number of mice was restricted to fifteen per dose in this study.

**Weight:** The exposed *A. agrarius* and ICR mice were examined for 30 days to assess the changes in their weight.

**Micronuclei in polychromatic erythrocytes:** For the analysis of micronuclei in polychromatic erythrocytes of *A. agrarius* and ICR mice after irradiation, acridine orange staining method was used Hayashi et al [10].

**Statistical analysis:** The survival rate after irradiation was analyzed using GraphPad Prism (Ver. 4). The micronuclei frequency in polychromatic erythrocytes for different doses of radiation was analyzed using SAS (Version 8.1).

### Results

**Survival rate:** This study examined the survival rate of *A. agrarius* after irradiation. To our surprise, most of those exposed to 3 Gy to 9 Gy of radiation died within 10 days. Although this study could only use fifteen mice for each group, as field mice with low reproductive rates were difficult to find, the dose that killed 50% of the mice within 30 days was 5 Gy (Fig. 1). However, the survival rate of ICR mice was decreased from 5Gy after irradiation and LD<sub>50/30</sub> was 7.9 Gy

(Fig. 2).

**Body weight:** Examining the weight of dark-striped field mice after irradiation revealed that the weight of the 2 Gy and 3 Gy groups showed a slight increase compared with that of the 0.5 Gy group, but there was no significant difference. However, the groups higher than 5 Gy showed a drastic decrease in weight and died. However, the body weight of ICR mice were decreased highly after 9Gy irradiation compared with other irradiated groups.

**Micronuclei in polychromatic erythrocytes:** The micronuclei in polychromatic erythrocytes of *A. agrarius* were detected to understand the chromosomal damage after irradiation. The frequency of micronuclei was highest in those exposed to 3 Gy, but was impossible to examine in higher doses. However, the micronuclei frequency in polychromatic erythrocytes of ICR mice was increased with doses on day 3rd after irradiation.

### Discussion

There have been reports on the development and usage of biological dosimeter for the surveillance of the biological effect of radiation emitted from nuclear power plants or related facilities. However, as the existing biological assessment dosimeter have many confounding factors, it was difficult to assess the radiation effect. For example, the *Clethrionomys glareolus*, *Microtus agrestis* and *A. sylvaticus* that were reported after the Chernobyl incident were not highly applicable as they only inhabited in a limited range of habitat and in low numbers [4,5]. Moreover, it is difficult to develop a cellular-genetic methodology to adequately assess the effect of radiation and identify the dose-response relationship. Recently, Kim et al reported that the relative radiation sensitivity of cows, sheep, pigs, and rabbits are 0.86, 0.98, 0.41, and 0.39, compared to that of humans, to reveal the importance of confounding factors in selecting a biological animal dosimeter[7]. This study investigates the possibility of using dark-striped field mice as the radiation bio-monitoring model by solving the weaknesses of the biological dosimeter mentioned above.

This study investigated the radiation sensitivity of *A. agrarius*. First, the *A. agrarius* clear dark-stripes on their coats are irradiated to determine which dose would kill 50% of the mice within 30 days. The study revealed that the LD<sub>50/30</sub> of *A. agrarius* was about 5 Gy and showing higher radiosensitivity than those of ICR (7.9 Gy). The results suggests that genetic condition is one of the major factors influencing radiation sensitivity in mice. Moreover, this value is similar to 3~5 Gy, the LD<sub>50/60</sub> value of humans, as reported by Fujita et al [11]. Based on the report of Kim et al [7] that compared the radiation sensitivity of mice and human and the report of Abramsson-Zetterberg et al [5] proposing that the radiation sensitivity of *A. flavicollis* and *A. sylvaticus* is similar to that of CBA mice, the possibility of using *A. agrarius* as an environmental surveillance dosimeter can be assumed. Since one of the main purposes of this study is to interpret the effect of radiation emitted from nuclear power plants or facilities for radiation waste storage by using *A. agrarius*, this result is significant as basic data. In other words, the data obtained from this study on *A. agrarius* can be directly applied to humans.

When examining the biological effects of radiation on mice, chromosomal aberrations or micronuclei in bone marrow or spleen cells are generally examined. This study irradiated *A. agrarius*, stained the red blood cells from a peripheral blood with acridine orange, and analyzed the micronuclei frequency in polychromatic erythrocytes. The 3 Gy groups exhibited the highest number of micronuclei, but it was impossible to examine the micronuclei in other higher doses. This reveals that the radiation sensitivity of *A. agrarius* makes their marrow cells vulnerable to

irreversible damage when exposed to radiation doses exceeding 3 Gy. This is one of the reasons why the death rate of the mice increased drastically after five days from 3 Gy after irradiation. In this study, the *A. agrarius* radiated with 1 Gy and 3 Gy showed an increase in weight compared to those radiated in 0.5 Gy. This is a pathological phenomenon after irradiation, and these results are similar to those reported by Tsiperson and Soloviev [6], who examined the increase in the weights of bodies and organs of bank voles and shrews due to chronic exposure (0.07 Gy/year) around Chernobyl. The data accumulated by studying *A. agrarius* can be applied to human beings, because the LD<sub>50/30</sub> was revealed to be approximately 5 Gy and cellular-genetic responses against radiation dose were identified. However, a study on the dose-response relationship and its correlation to human response against low-dose or low-dose-rate radiation is required deeply in the future.

### References

1. Shirashi K, Yamamoto M (1996): Internal dose from ingestion for Japanese adult males. Health Physics 71(5): 700-704.
2. Tagami K, Uchiyama S (1996): Analysis of Technetium-99 in soil and deposition samples by inductively coupled plasma mass spectrometry. Appl Radiat Isoat 47: 1057-1060, 1996.
3. Yukawa M, Watanabe Y, Nishimura Y, Guo Y, Yongru Z, Lu H, Wei L, Tao Z (1999): Determination of U and Th in soil and plants obtained from a high natural radiation area in China using ICP-MS and  $\alpha$ -counting. Fresenius J Anal Chem 363: 760-777.
4. Wickliffe JK, Chesser RK, Rodgers BE, Baker RJ (2002) Assessing the genotoxicity of chronic environmental irradiation by using mitochondria DNA heteroplasmy in the bank vole (*Clethrionomys glareolus*) at Chernobyl, Ukraine. Environ Toxicol Chem 21(6): 1249-1254.
5. Abramsson-Zetterberg L, Grawe J, Zetterberg G (1997) Spontaneous and radiation-induced micronuclei in erythrocytes from four species of wild rodents: a comparison with CBA mice. Mutat Res 393(1-2): 55-71.
6. Tsiperson VP, Soloviev MY (1997) The impact of chronic radioactive stress on the immunophysiological condition of small mammals. Sci Total Environ 203(2): 105-113.
7. Kim R, Han DU, Lim JT, Jo SK, Kim TH (1997) Induction of micronuclei in human, goat, rabbit peripheral blood lymphocytes and mouse splenic lymphocytes irradiated in vitro with gamma radiation. Mutat Res 393(3): 207-214.
8. Cobet GB (1978): The mammals of the palaeartic region: a taxonomic review. British Museum (Natural History), Cornell University Press. pp130-137.
9. Murphy RW, Site JW, Buth DG, Haufler CH (1990) Molecular systemics: protein I: Isoenzyme electrophoresis. Sinauer Associate, Inc. USA. 19: 45-126.
10. Hayashi M, Sofuni T, Ishidate Jr M (1983): An application of acridine orange fluorescent staining to the micronucleus test. Mutat Res 120: 241-247.
11. Fujita S, Kato H, Schull WJ (1981) The LD50 associated with exposure to the atomic bombings in Hiroshima and Nakasaki. J Rad Res (Tokyo) 30: 359-381.

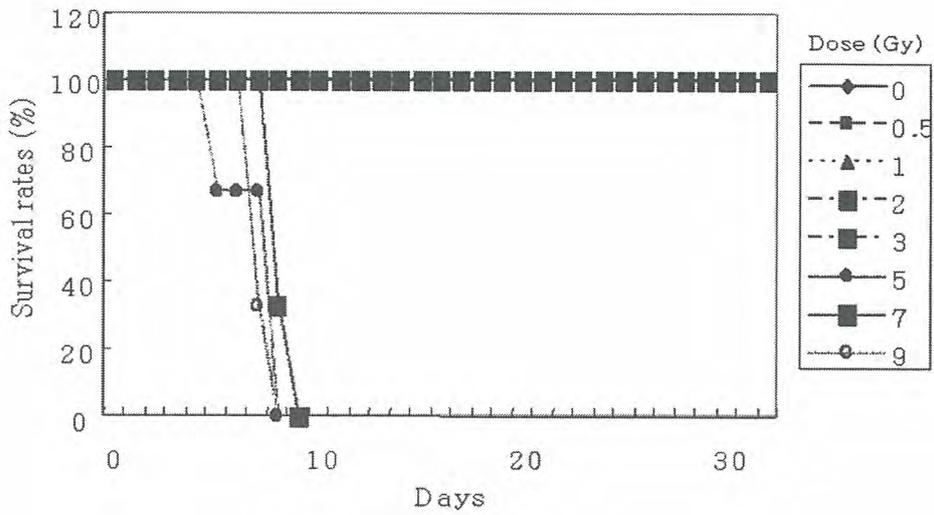


Fig. 1. Survival rates of *Apodemus agrarius* after gamma irradiation (n=15/dose).

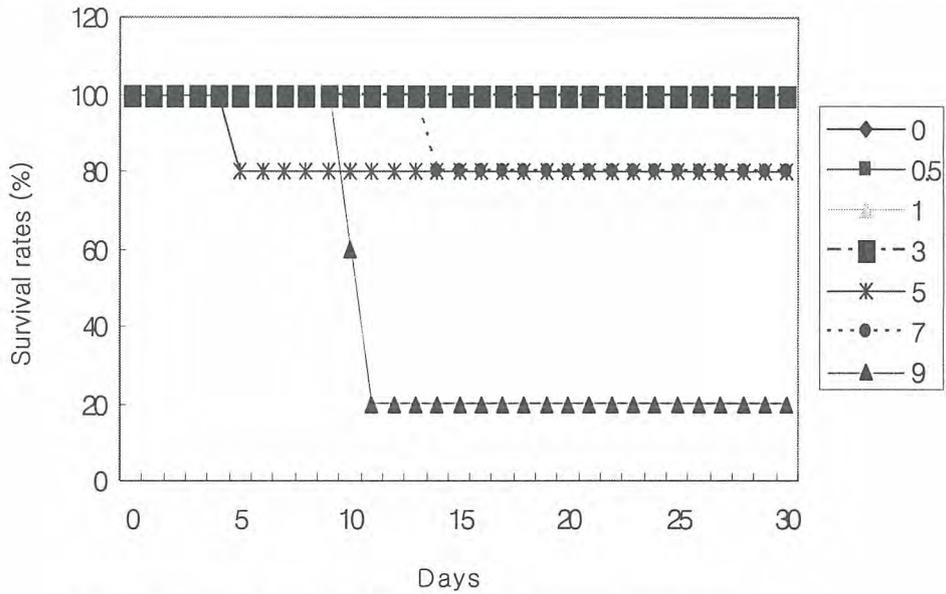


Fig. 2. Survival rates of ICR mice after gamma irradiation.

# 빈 면

제4분과  
방사선 안전 및 환경  
(Poster)

# 빈 면

## Ir-192 Bulk 및 밀봉선원 운반용기 차폐 평가

조일제, 방경식, 이주찬, 서기석

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

전량 수입에 의존하고 있는 방사성동위원소의 운반용기를 국산화하기 위하여 의료용 및 산업용 동위원소에 대한 운반효율 및 경제성을 가지는 운반용기를 개발 중이다. 방사선 동위원소 운반용기는 국제원자력기구의 규정 및 국내법규의 기술기준에 적합하게 설계 및 제작되어야 한다. 본 논문에서는 방사성 물질 운반용기의 차폐 안전성 부분의 기술기준에 적합하도록 용기를 설계하기 위하여 산업용 운반용기의 방사선 차폐 평가를 수행하였다.

산업용 Bulk 선원 B 형 운반용기 및 산업용 밀봉선원 운반용기에 대하여 차폐 안전성 분석을 하였다. 산업용 Bulk 선원 B 형 운반용기는 Ir-192 10,000 Ci 선원에 대한 상부, 하부, 및 측면의 표면 선량율은 각각 78.7, 92.8, 98.2 mrem/h 를 나타나 산업용 Bulk B 형 용기의 차폐 안전성을 확인하였다. 산업용 밀봉선원 B 형 운반용기는 납 및 텅스텐 조합 차폐체에 대한 해석을 수행하여, 용기 설계를 위한 기본 자료를 생산하였다.

또한 본 차폐계산의 신뢰성을 평가하기 위하여 I-131 액체 선원 및 Ir-192 고체 선원을 사용하여 검증 실험도 병행하여, 실험치와 계산치를 비교 분석하였다. 현재 I-131 액체 운반용기에 대하여 선량측정 실험을 수행한 후 계산치와 비교 분석하였다. I-131 2.26 Ci 에 대하여 검증시험을 한 결과, 실험치와 계산 결과치가 잘 일치하는 것을 확인할 수 있었다. 또한 산업용 B 형 Bulk 선원용기의 일부 차폐체로 쓰이는 텅스텐 재료에 대하여 Ir-192 선원을 이용한 검증 실험결과, 실험치와 계산치의 오차가 발생하였으나, 이는 설계 요건인 Ir-192 10,000 Ci 이 아니라 이보다 적은 선원량을 사용함에 따라 발생한 오차로서, 선원의 기하학적인 배치에 의한 영향임을 알 수 있었다. Ir-192 10,000 Ci 선원을 사용 시 선원의 기하학적인 오차 감소가 예상되므로 이를 통하여 본 차폐계산의 신뢰성을 확인할 수 있었다.

표 1 산업용 Bulk 선원 B 형 운반용기 선량 계산결과

Source (Strength)	상 부, mrem/h			하 부, mrem/h			측 면, mrem/h		
	표 면	1m	2m	표 면	1m	2m	표 면	1m	2m
Ir-192 (10,000Ci)	78.7	1.61	0.47	92.8	0.65	0.18	98.2	0.70	0.19
Mo-99 (800Ci)	28.0	0.57	0.17	15.6	0.11	0.03	85.2	0.55	0.15
I-131 (1,000Ci)	3.49	0.07	0.02	0.96	0.007	0.002	0.96	0.007	0.0002

표 2 산업용 밀봉선원 B형 운반용기에 대한 결과(차폐체반경 = W(텡스톤) + L(납) + 23 mm)

Shielding Material	Surface Dose Rate (mrem/h)								
	W Lead	0 mm	5 mm	10 mm	15 mm	20 mm	25 mm	30 mm	35 mm
20 mm	1.52E+06	4.60E+05	1.47E+05	5.04E+04	1.82E+04	6.90E+03	2.72E+03	1.09E+03	
25 mm	6.22E+05	1.98E+05	6.63E+04	2.35E+04	8.85E+03	3.48E+03	1.41E+03	5.86E+02	
30 mm	2.68E+05	8.94E+04	3.09E+04	1.13E+04	4.43E+03	1.80E+03	7.55E+02	3.22E+02	
35 mm	1.20E+05	4.15E+04	1.49E+04	5.65E+03	2.29E+03	9.64E+02	4.16E+02	1.82E+02	
40 mm	5.53E+04	2.00E+04	7.38E+03	2.89E+03	1.21E+03	5.27E+02	2.34E+02	1.05E+02	
45 mm	2.65E+04	9.87E+03	3.77E+03	1.52E+03	6.62E+02	2.95E+02	1.35E+02	6.19E+01	
50 mm	1.31E+04	5.04E+03	1.97E+03	8.22E+02	3.70E+02	1.69E+02	7.93E+01	3.72E+01	
55 mm	6.62E+03	2.64E+03	1.06E+03	4.55E+02	2.11E+02	9.91E+01	4.73E+01	2.26E+01	
60 mm	3.45E+03	1.41E+03	5.81E+02	2.58E+02	1.23E+02	5.92E+01	2.88E+01	1.39E+01	
65 mm	1.84E+03	7.78E+02	3.27E+02	1.50E+02	7.32E+01	3.58E+01	1.77E+01	8.65E+00	
70 mm	1.00E+03	4.38E+02	1.88E+02	8.84E+01	4.41E+01	2.20E+01	1.11E+01	5.35E+00	
75 mm	5.61E+02	2.52E+02	1.10E+02	5.31E+01	2.71E+01	1.37E+01	6.90E+00		
80 mm	3.21E+02	1.48E+02	6.59E+01	3.25E+01	1.68E+01	8.48E+00			
85 mm	1.87E+02	8.82E+01	4.00E+01	2.01E+01	1.04E+01				
90 mm	1.11E+02	5.35E+01	2.46E+01	1.24E+01					
95 mm	6.71E+01	3.30E+01	1.51E+01						
100mm	4.12E+01	2.02E+01							
105mm	2.51E+01								

## Shielding Analysis for Industrial Package: Focusing on Dry Active Waste

IP형 운반용기 차폐해석-잡고체폐기물을 중심으로

Kang-Wook Lee, Chun-Hyung Cho, Hyun-Kie Jang, Byung-Il Choi and Heung-Young Lee  
Nuclear Environment Technology Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

이강욱, 조천형, 장현기, 최병일, 이흥영  
원자력환경기술원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

### Abstract

In this study, maximum exposure rate at DAW(Dry Active Waste) drum surface which is satisfying regulation limit was calculated for conceptual design of IP(Industrial Package). DAW can be classified as combustible and non-combustible waste and the calculation was conducted for single and mixed radionuclide for each type of waste. In case of combustible waste that mixed radionuclide is uniformly distributed, the maximum exposure rates at drum surface were  $3.60E-01$ ,  $8.85E-01$  and  $1.27E+01$  mSv/hr for IP Type 1, 2-a and 2-b, respectively. and  $3.60E-01$ ,  $8.85E-01$ ,  $1.27E+01$  mSv/hr for single radionuclide(Co-60). In case of non-combustible waste that mixed radionuclide is uniformly distributed, the maximum exposure rates at drum surface were  $7.14E-01$ ,  $1.83E+00$ ,  $2.69E+01$  mSv/hr for IP Type 1, 2-a and 2-b, respectively. and  $7.13E-01$ ,  $1.81E-01$ ,  $2.62E+01$  mSv/hr for single radionuclide(Co-60). Through this study, the maximum amount of DAW can be transported by IP was suggested as maximum exposure rate at drum surface and the calculation for the other types of waste will be conducted.

**Key word** : Industrial package(Type IP package), Dry Active Waste(DAW), Micro Shield

### 요약

본 연구에서는 IP형 운반용기의 개념설계를 위하여 소내 임시저장중인 방사성폐기물중 200 ℓ 잡고체 드럼을 대상으로 운반용기에 적재 가능한 드럼의 최대표면선량률을 제시하고자 하였다. 이를 위해 잡고체 폐기물을 가연성과 비가연성으로 구분하였으며, 각각 혼합핵종이 균일 분포되어 있는 경우와 단일핵종(Co-60)이 균일 분포되어 있는 경우를 나누어 계산하였다. 연구결과, 가연성 잡고체 드럼에 혼합핵종이 분포되어 있는 경우, IP-1, IP-2-a, IP-2-b형 운반용기에 적재 가능한 최대표면선량률은 각각  $3.60E-01$ ,  $8.85E-01$ ,  $1.27E+01$  mSv/hr 이었으며, Co-60이 분포되어 있는 가연성 잡고체 드럼의 최대표면선량률은 각각  $3.59E-01$ ,  $8.83E-01$ ,  $1.25E+01$  mSv/hr 이었다. 비가연성 잡고체 드럼에 혼합핵종이 분포되어 있는 경우, IP-1, IP-2-a, IP-2-b형 운반용기에 적재 가능한 최대표면선량률은 각각  $7.14E-01$ ,  $1.83E+00$ ,  $2.69E+01$  mSv/hr이었으며, Co-60이 분포되어 있는 비가연성 잡고체 드럼의 최대표면선량률은 각각  $7.13E-01$ ,  $1.81E-01$ ,  $2.62E+01$  mSv/hr 으로 계산되었다. 이를 통해 운반가능 방사성내용물의 최대수량을 실측이 용이한 표면선량률 만으로 제시할 수 있었으며, 향후 다른 종류의 폐기물에 대해서도 차폐해석을 수행할 예정이다.

중심단어 : IP형 운반용기, 잡고체, 표면선량률, 차폐해석

## 1. 서 론

방사성폐기물 운반과 관련하여 원자력법에 명시된 운반용기의 종류는 L형, A형, IP형, B형, C형 운반용기가 있다. L형, A형, B형, C형 운반용기는 방사성폐기물의 밀도와 체적에 무관하게 총 방사능량에 따라 적재수량이 제한되고 있다. 그러나 방사성폐기물의 대량운반을 위해 도입된 IP형 운반용기의 경우, 비방사능 및 3 m 이격선량률에 따라 적재수량이 제한되며, 방사성폐기물의 밀도와 체적이 클수록 L형, A형, B형, C형 운반용기에 비해 다량의 방사성물질을 단일용기에 적재할 수 있다[1,2]. 향후 임시 저장고에 저장되어 있는 방사성폐기물의 소내 운반이 시행될 경우, L형, A형, B형, C형 운반용기 보다 IP형 운반용기가 가장 많이 소요될 것으로 예상된다.

과학기술부고시 제 2001-23호에서는 IP형 운반용기에 적재 가능한 운반내용물의 최대수량을 비차폐된 상태에서 3 m 이격지점의 선량률이 10 mSv/hr를 초과하지 않으며, 평균 비방사능이 A형 운반용기에 허용되는 최대방사능인 A<sub>2</sub>값의 2,000분의 1배를 초과하지 않는 방사성폐기물로 규정하고 있다[2-4]. 그러나 현실적으로 법에서 요구하는 3 m 이격선량률(mSv/hr) 및 비방사능에 대한 자료를 원전 현장에서 획득하기는 어려운 실정이다.

본 연구에서는 현실적으로 측정 가능한 방사성 폐기물의 표면선량률(mSv/hr)을 이용하여 IP형 운반용기에 적재 가능한 방사성폐기물 드럼의 제한값을 제시하고자 하였다. 이를 위해 전체 방사성폐기물 저장량 중 62.23%를 차지하고 있으며[5], 다른 방사성폐기물과 달리 표면선량률이 대부분 0.2 mSv/hr이하로 작업자의 근접 작업이 가능한 200 ℓ 잡고체 드럼을 운반대상물로 선정하였다. 또한, 방사성폐기물 발생 직후 핵종분석장치에 의해 측정된 혼합핵종과 보수적으로 외부 피폭선량에 영향이 큰 감마선 방출 핵종 중 에너지가 큰 Co-60을 각각 잡고체의 선원항으로 가정하여 IP형 운반용기 차폐해석을 수행하였다.

## 2. IP형 운반용기 기술기준 및 차폐 해석

### 2.1 운반대상폐기물의 발생특성 및 저장현황

국내 원전 운영으로 발생되는 중·저준위방사성폐기물은 발생원 및 내용물에 따라 잡고체, 농축폐액, 폐수지 및 폐필터로 구분된다. 원전의 보수, 개조 및 제염작업등으로 발생된 잡고체는 방호복, PVC 제품, 제염용지, 목재등의 가연성물질과 금속, 유리, HEPA필터, 오염된 콘크리트 등의 비가연성물질로 구성되어 있으며, 내용물의 구성물질에 따라 200 ℓ 드럼 및 320 ℓ 재포장 드럼에 각각 분리되어 원전 소내 임시저장고에 저장되고 있다[1,6-7]. 그리고 봉산폐액 및 각종 배수의 고화처리로 발생된 농축폐액은 고화처리 방법에 따라 내용물이 시멘트 및 파라핀으로 구성되어 있으며, 잡고체와 동일한 드럼에 포장되어 원전 소내 임시저장고에 저장되고 있다[1,6]. 또한 폐필터는 원전 1차 및 2차 냉각계통수의 여과에 사용되는 필터로부터 발생되며, 200 ℓ 콘크리트 차폐드럼 및 콘크리트 라이닝 용기에 포장되어 잡고체 및 농축폐액과 같이 원전 소내 임시저장고에 저장되고 있으며[1,6], 화학 및 체적제어계통(CVCS), 사용후 핵연료 저장조, 봉소 회수계통 등에서 발생되는 폐수지는 200 ℓ 콘크리트 차폐드럼 및 HIC(고건전성용기)에 포장되어 원전 소내 임시저장고에 저장되고 있다[1,7]. 이와 같은 각각의 방사성폐기물의 밀도 및 화학성분비를 표 2.1에 제시하였다[8].

방사성폐기물에 대해 200 ℓ 드럼을 기준으로 방사성폐기물의 저장현황을 표 2.2에 제시하였으며[8], 표면선량률 분포현황을 표 2.3에 제시하였다[1,9-10]. 표 2.2에서 보는 바와 같이 잡고체가 총 51,015드럼으로 전체 저장량의 63.23%로 가장 많이 저장되어 있으며, 전체 저장량에 잡고체와 농축폐액이 86.60%정도로 대부분을 차지하고 있다. 또한 표면선량률의 경우, 0.2 mSv/hr이하의 표면선량률을 갖는 방사성폐기물은 잡고체가 62.15%로 가장 많이 차지하고 있으며, 0.2~2

mSv/hr의 표면선량률을 갖는 방사성폐기물은 농축폐액이 55.52%로 대부분을 차지하며, 2 mSv/hr 이상의 표면선량률을 갖는 방사성폐기물은 폐필터가 60.37%로 대부분을 차지하고 있다.

표 2.1 방사성폐기물별 내용물 종류 및 구성성분

방사성폐기물종류		밀도(g/cm <sup>3</sup> )	내용물	구성 성분비(w/o)		
잡고체	가연성	0.2	비닐시트, 휴지, 방호복, 신발, 종이, 목재	C(57.48) Cl(20.43)	H(8.52) F(4.49)	O(7.58) N(1.52)
	비가연성	1.5	콘크리트, 석고, 공기 필터, 유리, 철재, 형광등, 모래	C(0.20) Si(11.80) Ca(1.51) K(0.64) Ni(0.04)	H(0.06) Al(2.01) Mg(0.87) Zn(0.20)	O(18.54) Fe(62.04) Na(2.01) Cr(0.09)
농축폐액	고화처리	1.2	파라핀, 붕소산화물	C(21.29) O(51.71)	H(3.72)	B(23.30)
폐수지	탈수처리	1.1	이온교환수지	C(95.91)	H(4.09)	
폐필터	-	2.3	폐필터	Si(35.06) Ca(4.29)	Na(10.39) O(47.25)	Mg(3.02)

표 2.2 방사성폐기물 저장 현황

(2004년말 기준, 200ℓ 드럼)

원전 종류 폐기물종류	고리 4기	월성 6기	영광 6기	울진 4기	폐기물별 총계
농축폐액	11,405	0	4,152	3,294	18,851(23.37%)
폐수지	3,298	1,697	1,942	2,308	9,245(11.46%)
폐필터	785	187	100	493	1,565(1.94%)
잡고체	27,195	5,093	10,509	8,218	51,015(63.23%)
원전별 총계	42,683	6,977	16,703	14,313	80,676(100%)

표 2.3 방사성폐기물 표면선량률에 따른 저장율

(2004년말 기준, 200ℓ 드럼)

폐기물종류	0.2 mSv/hr이하		0.2~2 mSv/hr		2 mSv/hr이상	
	드럼	분율(%)	드럼	분율(%)	드럼	분율(%)
잡고체	10,488	<b>62.15</b>	4,996	29.61	1,391	8.24
농축폐액	4,654	30.40	8,500	<b>55.52</b>	2,156	14.08
폐필터	117	13.48	227	26.15	524	<b>60.37</b>
폐수지	2,528	46.69	451	8.33	2,436	44.99

2.2. 운반용기의 적재 한도량 기준

원자력법에 명시된 운반용기의 종류는 L형, A형, IP형, B형, C형 운반용기가 있으며, 이중 IP형 운반용기는 적재되는 방사성폐기물의 비방사능에 따라 IP-1형, IP-2형, IP-3형 운반용기로 구분된다[5,6]. 이와 같은 운반용기는 기계적/ 방사선적 안정성을 확보하기 위해 과기부령 제30호 및 과학기술부고시 제 2001-23호에 제시되어 있는 기준치에 제한을 받는다.

과학기술부고시 제 2001-23호에 따라 방사선적 안정성 확보와 관련하여 운반용기별 적재 한도량을 표 2.4에 제시하였다[2-4]. 표 2.4에서 보는 바와 같이 L형, A형, B형, C형 운반용기의 경우, 적재 한도량은 적재대상물의 크기 및 무게에 상관없이 총 방사능량만으로 규제를 받고 있다. 그러나 IP형 운반용기의 적재 한도량은 3 m 이격 지점의 선량률이 10 mSv/hr을 초과하지 않으며, 평균 비방사능이 A형 운반용기에 허용되는 최대방사능인 A<sub>2</sub> 값의 2,000분의 1배를 초과하지 않도록 규제하고 있다. 그리고 적재 대상물의 비방사능에 따라 분류되는 IP-1형, IP-2형, IP-3형 운반용기의 적재 한도량은 표 2.5에 제시된 기준을 초과하지 못하도록 제한하고 있다[2-4]. 또한, 방사성폐기물 운반으로 인한 작업자 및 일반인의 방사선장해를 최소화하기 위해 과학기술부고시 제 2001-23호제 15조에 따라 전용운반의 경우, 운반용기 표면으로부터 10 cm 이격 지점의 선량률이 10 mSv/hr 초과하지 않으며, 2 m 떨어진 지점에서 0.1 mSv/hr미만이 되도록 규제하고 있다.

2.3. IP형 운반용기의 선원항

IP형 운반용기의 차폐해석을 위해서는 방사성폐기물내 핵종별 방사능 농도가 필요하다. 하지만, 현실적으로 방사성폐기물의 방사성 핵종은 다양한 발생 및 오염경로에 의해 단반기 방사성핵종부터 장반감기 방사성핵종에 이르기까지 수많은 종류의 방사성핵종이 분포하고 있으며, 핵종별 방사능 농도 또한 다양한 값을 가지고 있다.

본 연구에서는 잡고체의 다양한 선원항에 대해 다음과 같이 가정하였다. 표 2.6에서 보는 바와 같이 잡고체의 발생 직후 핵종분석장치에 의해 측정된 방사성핵종 중 저장기간을 고려하여 극히 짧은 단반기 핵종을 제외한 10개의 방사성핵종을 선원항으로 선택하여 IP형 운반용기 차폐해석을 수행하였다. 또한 보수적으로 외부 피폭선량에 영향이 큰 감마선 방출 핵종 중 에너지가 큰 Co-60을 선원항으로 선택하여 IP형 운반용기 차폐해석을 수행하였다.

표 2.4 운반용기 종류에 따른 고체 방사성폐기물의 적재 한도량

운반용기	방사성폐기물형태	분포핵종	적재한도량
L형 운반용기	특수형	단일/미지핵종	$A_T < 10^{-3}A_1$
		혼합핵종	$A_T < 10^{-3} \sum_i \frac{f(i)}{A_1(i)}$
IP형 운반용기	-	-	* 비차폐 상태의 3m 이격선량률이 10mSv/hr 미만 * $S \cdot A < A_2/2000$
A형 운반용기	특수형	단일/미지핵종	$A_T < A_1$
		혼합핵종	$A_T = \sum_i \frac{B(i)}{A_1(i)} < 1$
B형/C형 운반용기	특수형	단일/미지핵종	$A_T > A_1$
		혼합핵종	$A_T = \sum_i \frac{B(i)}{A_1(i)} > 1$

표 2.5 IP형 운반용기의 종류에 따른 적재 한도량

IP형 운반용기	적재 대상물	적재 한도량/ 분류기준	운반형태
IP-1형	LSA-1	$S \cdot A < \text{면제물질에 대한 방사능 농도 } (Bq/g) \times 30$	전용/비전용
IP-2형	LSA-2	$S \cdot A < \sum_i \frac{A_2(i)}{f(i)} \times \frac{0.01\%}{g}$	전용/비전용
	LSA-3	$S \cdot A < \sum_i \frac{A_2(i)}{f(i)} \times \frac{0.05\%}{g}$	전용
IP-3형	LSA-3	$S \cdot A < \sum_i \frac{A_2(i)}{f(i)} \times \frac{0.05\%}{g}$	비전용

표 2.6 잡고체 폐기물에 분포되어 있는 방사성핵종 및 평균 방사능농도

방사성 핵종	잡고체 드럼내 핵종별 방사능 (uCi/drum)		핵종별 방사능 분율
	일반 잡고체 드럼	표면선량률 0.2mSv/hr인 드럼	
C-14	1.43E+01	2.85E+01	9.63E-03
Co-60	8.92E+02	1.78E+03	6.00E-01
Ni-59	1.39E-01	2.77E-01	9.36E-05
Ni-63	4.28E+02	8.53E+02	2.88E-01
Sr-90	6.90E-01	1.38E+00	4.64E-04
Nb-94	2.80E-03	5.58E-03	1.88E-06
Tc-99	1.32E-01	2.63E-01	8.88E-05
I-129	3.90E-01	7.78E-01	2.63E-04
Cs-135	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
Cs-137	1.50E+02	2.99E+02	1.01E-01
총합	1.49E+03	2.96E+03	1.00E+00

## 2.4 IP형 운반용기 차폐 해석

### 2.4.1 잡고체 및 IP형 운반용기의 모델링

IP형 운반용기 및 잡고체 폐기물 드럼에 대해 모델링을 다음과 같이 수행해야 한다. 200 ℓ 잡고체 드럼은 여러 종류의 가연성/비가연성 잡고체를 분리하여 저장하였기 때문에 내용물의 형태 및 밀도가 일정하지 못하고, 방사성핵종이 균일하게 분포되어 있지 못하다. 또한 차폐해석 코드인 Micro Shield는 비균질한 내용물과 비 균일한 방사성핵종에 대한 모델링이 불가능하다. 본 연

구에서는 발전소 용기자료를 기준으로 잡고체의 내용물은 균질하며, 분포 핵종은 균일하다고 가정하여 가연성/ 비가연성물질별 직경이 57 cm이고 높이가 83 cm인 원통형 체적 선원으로 잡고체 드럼을 모델링 하였다.

표 2.8의 설계사양을 가지고 있는 IP-1형, IP-2-a형, IP-2-b형 운반용기의 경우, 가장 중점이 되는 부분은 코드 내에 선원항으로 작용하는 잡고체 드럼에 대한 모델링이다. 그러나 Micro Shield는 2개 이상의 구조물에 대한 모델링이 불가능하며, 코드 내에 미리 설정되어 있는 모델이외의 구조에 대한 모델링이 불가능하다. 이와 같은 Micro Shield의 단점을 보완하고 드럼으로부터 방출되는 방사선의 손실을 최소화하기 위해 본 연구에서는 적재된 잡고체 폐기물 드럼의 총 체적과 동일한 체적을 가지며, 내용물 및 분포 핵종은 균질하다고 가정하여 잡고체와 물리적/화학적 특성이 같은 Rectangular형태의 단일 선원항으로 모델링 하였다.

표 2.7 IP형 운반용기 기본사양 및 모델링사양

운반용기	운반용기 사양			적재 선원 사양
	내부크기(높이×가로×세로)	차폐체(cm)	적재 드럼수	선원 크기(높이×가로×세로)
IP-1	98×233×5867 cm <sup>3</sup>	0.2 (탄소강)	24 드럼	69.6050×165.4894×416.7067 cm <sup>3</sup>
IP-2-a	980×226×450 cm <sup>3</sup>	3 (탄소강)	18 드럼	70.0301×160.6782×319.9344 cm <sup>3</sup>
IP-2-b	900×196×196 cm <sup>3</sup>	10 (탄소강)	9 드럼	72.4014×157.6748×157.6748 cm <sup>3</sup>

#### 2.4.2 IP형 운반용기 차폐 해석 결과

차폐 해석 코드인 Micro Shield를 이용하여 선원항에 따라 IP형 운반용기내에 적재 가능한 잡고체의 총 방사능 및 과학기술부고시 제 2001-23호에서 요구한 IP형 운반용기의 법적선량률을 표 2.8에 제시하였다. 계산 결과, 표 2.8에서 보는 바와 같이 IP형 운반용기의 표면으로부터 2 m 떨어진 지점의 선량률이 법적기준치인 0.1 mSv/hr를 만족할 경우, 적재된 잡고체의 분포핵종 종류 및 물리적 특성과 무관하게 표면선량률(< 10 mSv/hr) 및 비차폐 상태의 3 m 이격선량률(< 10 mSv/hr)이 법적기준치를 만족하는 것으로 평가되었다. 적재 가능한 잡고체의 총 방사능량은 그림 2.1에서 보는 바와 같이 외부피폭선량률에 영향을 주는 감마선 방출 핵종의 방사능 농도가 큰 잡고체일수록 적재 가능한 총 방사능량이 작은 것으로 나타났으며, 내용물의 밀도가 작을수록 감마선 및 산란 x-선에 대한 차폐능력이 떨어져 적재 가능한 총 방사능량이 작은 것으로 평가되었다. 또한 IP형 운반용기의 차폐체가 두꺼울수록 적재 가능한 가연성/비가연성 잡고체의 총 방사능량은 증가하는 것으로 평가되었다.

IP형 운반용기내에 적재 가능한 단일 잡고체 드럼의 최대표면선량률을 그림 2.2에 제시하였다. 계산결과, 그림 2.2에서 보는 바와 같이 가연성 잡고체 드럼에 혼합핵종이 분포되어 있는 경우, IP-1, IP-2-a, IP-2-b형 운반용기에 적재 가능한 최대표면선량률은 각각 3.60E-01, 8.85E-01, 1.27E+01 mSv/hr으로 평가 되었으며, Co-60이 분포되어 있는 가연성 잡고체 드럼의 최대표면선량률은 각각 3.59E-01, 8.83E-01, 1.25E+01 mSv/hr으로 평가 되었다. 또한 혼합핵종이 분포되어 있는 비가연성 잡고체 드럼의 경우, IP-1, IP-2-a, IP-2-b형 운반용기에 적재 가능한 최대표면선량률은 각각 7.14E-01, 1.83E+00, 2.69E+01 mSv/hr으로 평가 되었으며, Co-60이 분포되어 있는 비가연성 잡고체 드럼의 최대표면선량률이 각각 7.13E-01, 1.81E-01, 2.62E+01 mSv/hr으로 평가 되었다.

표 2.8 선원항의 분포핵종에 따른 IP형 운반용기별 총 방사능 및 법적선량률

방사성핵종	운반용기	방사성폐기물		직사각형 체적선원의 총 방사능(Ci)	운반용기 선량률(mSv/hr)		비차폐 상태의 3m 이격 선량률 (mSv/hr)
					표면선량률	2m 이격 선량률	
Co-60	IP-1	잡고체	가연성	1.17E-01	5.31E-01	1.00E-01	7.80E-02
			혼합핵종	4.59E-01	6.08E-01	"	8.08E-02
	IP-2-a	잡고체	가연성	2.17E-01	5.06E-01	"	1.53E-01
			비가연성	8.46E-01	5.62E-01	"	1.69E-01
	IP-2-b	잡고체	가연성	1.54E+00	5.79E-01	"	1.16E+00
			비가연성	6.34E+00	6.25E-01	"	1.35E+00
혼합핵종	IP-1	잡고체	가연성	1.88E-01	5.32E-01	"	7.83E-02
			비가연성	7.40E-01	6.08E-01	"	8.12E-02
	IP-2-a	잡고체	가연성	3.50E-01	5.05E-01	"	1.55E-01
			비가연성	1.42E+00	5.61E-01	"	1.71E-01
	IP-2-b	잡고체	가연성	2.53E+00	5.78E-01	"	1.19E+00
			비가연성	1.04E+01	6.24E-01	"	1.38E+00

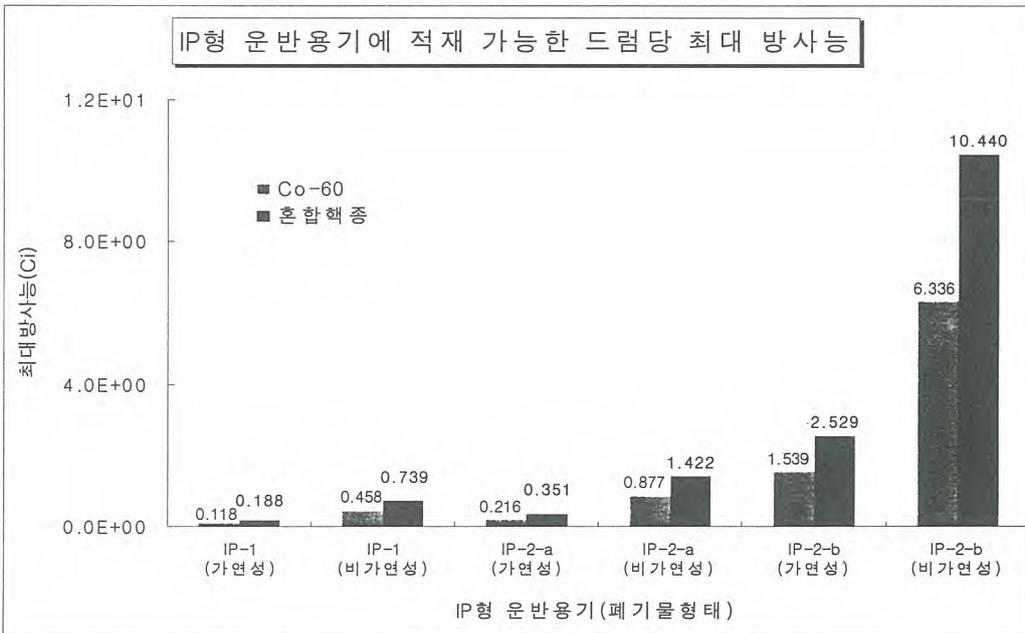


그림 2.1 분포핵종에 따라 IP형 운반용기에 적재 가능한 총 방사능

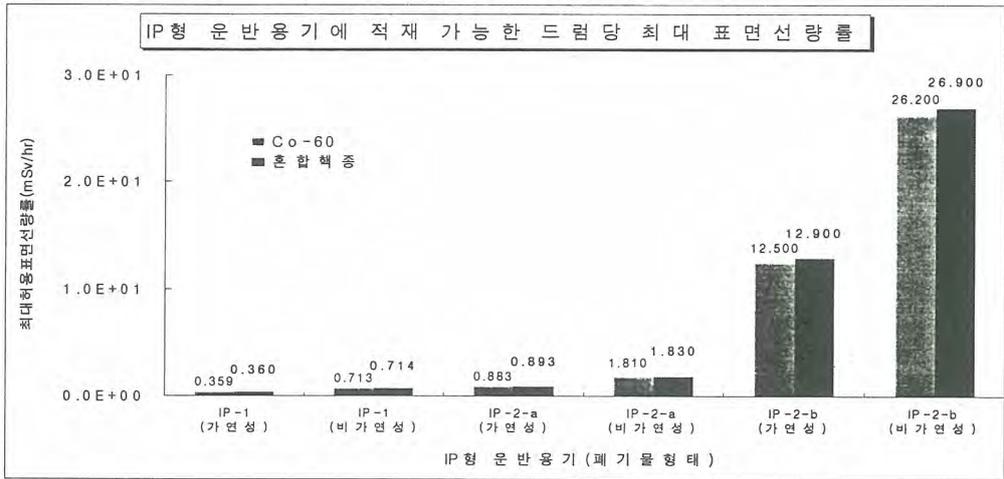


그림 2.2 분포핵종에 따라 IP형 운반용기에 적재 가능한 잡고체 단일드럼의 최대표면선량률

### 3. 결론 및 향후계획

Micro Shield 코드를 이용하여 적재 가능한 가연성/비가연성 잡고체 드럼의 최대표면선량률을 평가한 결과, 동일 내용물내에 대해 분포핵종이  $\gamma$ -ray,  $\beta$ -ray 및  $\alpha$ -ray 방출핵종으로 구성된 잡고체일수록  $\beta$ -ray 및  $\alpha$ -ray의 상호작용으로 발생하는 산란 엑스선에 의해 감마선 방출핵종으로 구성된 잡고체 드럼보다 적재 가능한 최대표면선량률이 0.14%~3.2% 큰 것으로 나타났다. 그리고 가연성 잡고체 드럼에 비해 상대적으로 내용물의 밀도가 큰 비가연성 잡고체 드럼의 경우, 적재 가능한 최대표면선량률이 가연성 잡고체 드럼에 비해 평균 104% 정도 큰 값을 갖는 것으로 나타났다. 이와 같이 내용물의 밀도가 높고, 분포핵종이 다양할수록 IP형 운반용기에 적재 가능한 잡고체 드럼의 최대표면선량률이 큰 것으로 나타났으며, 최대표면선량률의 제한값은 분포핵종의 종류보다 내용물의 밀도에 영향을 많이 받는 것으로 나타났다.

향후 잡고체뿐만 아니라, IP형 운반용기의 적재 대상인 농축폐액, 폐필터 및 폐수지에 대해 적재 가능한 최대표면선량률의 평가가 이루어져야 하며, 좀더 정확한 표면선량률 기준값을 제시하기 위해서는 방사성폐기물의 분포핵종 및 내용물의 밀도, 화학적 구성성분에 관한 연구가 병행되어야 하는 것으로 판단되었다.

### 4. 참고문헌

- [1] 한국수력원자력(주), 방사성폐기물 운반용기(IP/A/B형) 개발, R-2004-A-058, pp7-97, 2005
- [2] International Atomic Energy Agency, Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material, TS-G-1.1 2002
- [3] 과학기술부령 제 30호, 방사선안전관리등의 기술기준에 관한 규칙, 2001
- [4] 과학기술부고시 제 2001-23호, 방사성물질등의 포장 및 운반에 관한 규정, 2001
- [5] 한국수력원자력(주), 방사선관리연보, 2004
- [6] 한국원자력안전기술원 연세대학교 보건과학연구소, 방사성폐기물 소각시설의 안전성에 관한 연구, KINS/HR-113, pp23-43, 1994
- [7] 한국수력원자력(주), 중·저준위 방사성 폐기물 유리화 기술, TM.96NJ17, pp5-6, 1998
- [8] 한국전력공사 전력연구원, 방사성폐기물 핵종분석장치 개발, KERPRI-92N-J03, pp397-409, 1996
- [9] 한국수력원자력(주), 방사선관리연보, 2004

## 방사성물질 드럼 적재를 위한 IP형 운반용기의 예비구조평가

서기석\*, 김동학\*, 정기정\*, 이경호\*\*, 윤정현\*\*, 정성환\*\*, 김성환\*\*

\*한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

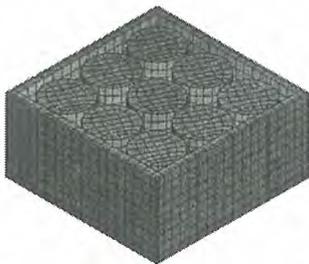
\*\*원자력환경기술원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

본 연구에서는 방사성폐기물 드럼운반에 따른 안전성을 확보하기 위하여 운반법규에 정한 기술 기준 및 요건을 만족하는 방사성폐기물 운반용기 개념을 설정하고 IP형 운반용기 구조 설계 및 해석의 예비평가를 통하여 국내 고유의 방사성폐기물 운반용기 개발을 위한 토대 마련하고자 한다.

국내 IP형 운반용기의 구조설계요건은 IAEA 및 국내 과기부 법규에서 규정된 기술기준에 따라 설정하였다. IP형 운반용기는 적재하는 운반물에 따라 저준위비방사능물질 및 표면오염물체에 대한 기준을 토대로 하여 IP-1형, IP-2형 및 IP-3형으로 구분하고 있다. 방사능물질 운반물은 과학기술부 방사선안전관리 등의 기술기준에 관한 규칙(과학기술부령 제30호)에 따라 방사능 제한 값을 갖고 있다. 또한 IP형 운반용기의 기술기준은 방사성물질 포장 및 운반에 관한 규정(과학기술부고시 제 2001-23호)에 운반용기의 일반기준 및 IP형 운반용기의 기술기준을 각각 따라야 한다.

운반용기 일반기준은 구조설계 및 해석 측면에서 중요한 항목은 밀봉에 대한 가속도 및 진동 문제, 주변온도 및 압력, 인양장치와 결속장치 설계에 대한 것이다. IP-1형 운반용기의 기술기준은 외부의 최소 길이는 10 cm 이상이어야 하며 방사성내용물의 최대수량에 대한 제한치(3 m 지점에서 시간당 10 mSv)를 만족하여야 한다. IP-2형 운반용기의 기술기준은 IP-1형 운반용기의 기준에 적합하며, 정상운반조건에서의 낙하시험 및 적층시험요건을 만족하여야 한다. IP-3형 운반용기의 기술기준은 IP-1형 운반용기의 기준에 적합하고 A형 운반용기의 기술기준 및 시험요건을 만족하여야 한다. IP-2 및 3형 운반용기의 시험요건에 따른 평가기준은 방사성내용물의 유실 또는 분산이 없으며 외부표면에서 방사선량률이 20% 이상 증가할 수 있는 차폐손실이 없어야 한다. IP형 운반용기의 구조평가 측면에서 최대 하중을 가하는 낙하시험요건에 대해 기술하였다. 방사성물질 드럼을 적재하는 그림 1은 IP형 운반용기의 낙하해석 모델과 설계요건을 나타내고 있다.

ABAQUS 전산해석의 모델은 육면체 요소인 C3D8R을 적용하였고, 요소 6,327개와 절점 9,671개로 분할시켰다. IP-2-b형 운반용기의 설계중량이 17,313 kg 이므로 기술기준에 따라 낙하 높이 0.3 m이므로 하중은 속도 2,425 mm/sec를 적용하였고, 중력가속도 9,810 mm/sec<sup>2</sup>을 고려하였다.



IP형 운반용기 설계요건	
1. 드럼적재량	9
2. 운반용기 외부 크기	
-길이 [mm]	2,160
-높이 [mm]	1,160
-폭 [mm]	2,160
3. 운반용기차폐두께 [mm]	100
4. 드럼	
-직경 [mm]	720
-높이 [mm]	900
-중량 [kg]	450

Fig. 1 IP형 운반용기 낙하해석 모델 및 설계요건

육면체의 전산해석 모델은 크게 세 부분으로 나누었으며, 운반용기 본체에 해당하는 상자 형태부분과 뚜껑 부분, 그리고 드럼 부분으로 구분된다. 각 세부분은 서로 접촉면을 갖도록 하였다. 특히 운반용기 본체의 상단 부분과 뚜껑 부분은 상호 접촉면과 함께 변위결속(tied-constrain)을 적용하

였다. 향후 상세설계 부분에서 뚜껑 부분을 체결하는 볼트 혹은 그 밖의 고정 장치의 체결강도는 변위결속 부분의 응력으로 평가할 예정이다. 변위결속 부분은 뚜껑의 각 코너들로 모델링 하였다. 본래 볼트 체결 위치 혹은 뚜껑 체결 위치에서 변위 결속을 하도록 각 변에 다섯 개씩 4개 부분에 총 16개를 고려하였다.

수직낙하의 최대 응력을 가진 요소는 그림 2(a)와 같이 상부면의 모서리 부분이며 최대응력 239 MPa으로 계산되었다. 차폐철판의 두께변화는 그림 2(b)와 같이 표면과 내부에서의 변형량의 차이로 계산하여 최대 0.13mm의 두께변화를 보여준다. 구조적 밀봉상태를 확인하기 위해 뚜껑과 용기 본체 사이 간격차이를 평가하였다. 뚜껑부위 최대변형량과 본체상부의 뚜껑접촉면 변형량의 차이가 그림 2(c)와 같이 0.6 mm가 발생함을 알 수 있다.

수평낙하의 최대 응력을 가진 요소는 그림 3(a)와 같이 뚜껑 상부면이며 최대응력 259 MPa으로 계산되었다. 차폐철판의 두께변화는 그림 3(b)와 같이 최대 0.19mm의 두께변화를 보여준다. 뚜껑과 용기본체 사이 최대 간격차이를 평가하였다. 뚜껑면 최대변형량은 그림 3(c)와 같이 0.67 mm가 발생함을 알 수 있다.

수직과 수평낙하에서 계산응력은 파단응력 525.1 MPa보다 작아서 볼트의 파단이 일어나지 않고 방사성폐기물의 유실 가능성이 없으며, 차폐 두께도 2%이하의 변형만 발생하였고 뚜껑의 변형간격도 1 mm이하 이므로 차폐손실은 구조적 관점에서 없다고 판단된다.

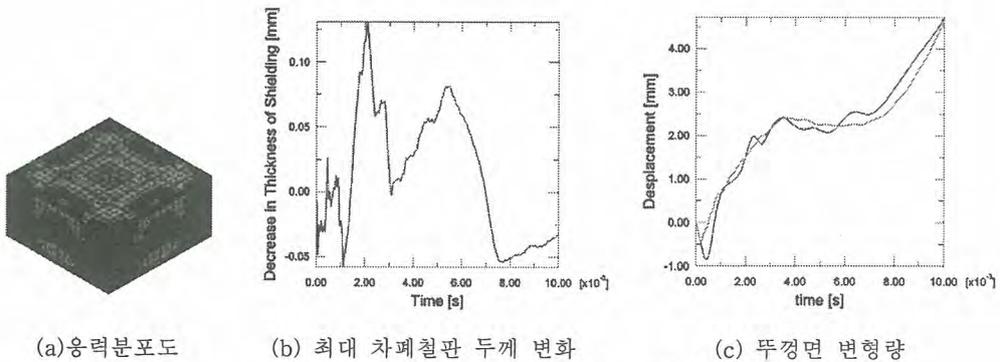


Fig 2. IP형 운반용기의 수직낙하 해석평가

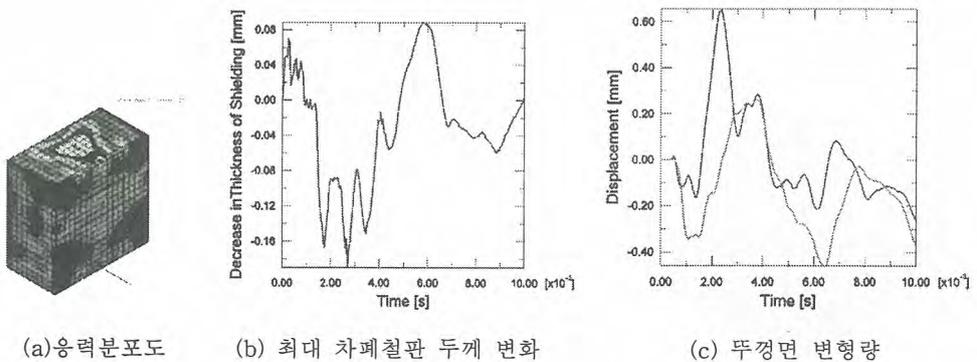


Fig 3. IP형 운반용기의 수평낙하 해석평가

## 상온반도체를 이용한 민감 핵물질 알파선 측정 장치 연구

강상목, 하장호, 김용균, 박세환, 김한수, 정종은, 김정복

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

사용후 핵연료를 다루는 시설에서는 Pu, U, U-235 등의 민감 핵물질 감시가 매우 중요하다. 이러한 민감 핵물질은 높은 에너지의 알파선을 방출하고 있으며, 알파선의 직접적인 측정을 통한 핵물질 조성 분석이 가능하다. 본 연구에서는 감마선에 대한 반응도가 낮고 알파선을 직접 검출할 수 있는 방안으로 CdZnTe(CZT) 반도체를 이용한 검출기를 제작하여 알파반응 실험을 수행하였다.

반도체 검출기 소재로 널리 사용되고 있는 Si, Ge과 달리 CZT검출기는 넓은 밴드갭(band gap, 1.47 eV)으로 상온에서도 사용이 가능한 반도체이다. 일반적으로 CZT검출기는 뛰어난 분해능으로 엑스선과 감마선 검출기 응용 분야에서 많은 연구가 이루어지고 있다. 본 연구에서는 엑스선과 감마선 검출이 아닌 알파선 측정에 CZT 반도체 검출기를 사용하였다. 또한 알파선 검출은 진공환경에서 사용하는 것이 일반적이거나 본 연구에서는 공기 중에서 측정 가능한 방안을 연구하였다.

사용된 CZT검출기의 유효검출면적은  $5 \times 5 \text{ mm}^2$ 이며 두께는 2mm이다. CZT검출기의 양쪽 표면은 금을 코팅하여 옴믹접합(Ohmic contact)을 형성하였다. CZT검출기는 방사선 실험에 흔히 사용되는 BNC 단자를 이용하여 preamplifier 입력단자에 연결이 용이하도록 일체형으로 제작하였다. CZT검출기 한쪽 표면을 BNC단자의 anode에 전도성 에폭시를 사용하여 직접 고정하였고 방사선이 입사하는 표면은 금으로 코팅된 전선을 이용하여 BNC단자의 표면에 연결하여 전압 인가시에 전기장이 형성되도록 하였다.

알파응답측정에는 5.5-MeV의 Pu-238 방사성 동위원소가 사용되었고 일반 대기 1기압 중에서 실험이 이루어졌다. 스펙트럼 측정을 위하여 eV-Products의 preamplifier와 ORTEC의 shaping amplifier를 사용하였고 multichannel analyser를 이용하여 스펙트럼을 획득하고 분석하였다. 실험 과정에서 노이즈로 작용할 수 있는 자연방사선 및 빛을 차단하기 위하여 차폐된 실험 상자를 구성하고 상자 내부의 CZT검출기가 노출되지 않은 상태에서 preamplifier의 입력신호 단자와 연결될 수 있도록 양방향 BNC연결단자를 사용하여 실험 장치를 구성하였다.

일반적으로 CZT검출기의 동작전압은 양전압(positive voltage)을 사용하며 cathode 방향으로 방사선을 입사시킨다. 입사방사선에 의해 발생하는 전자는 anode를 통해 preamplifier에 전달되어 amplifier와 MCA를 거쳐 스펙트럼 형태로 측정이 된다. 그림1은 CZT검출기 동작전압이 50V와 150V 일 때 측정된 스펙트럼이다. 인가전압이 50V 일 때 보다는 150V에서 분해능이 뛰어났으나 두 경우 모두 스펙트럼의 왼쪽 부분에서 에너지 분해능이 저하되어 있었다. 이러한 스펙트럼 형성의 원인은 세 가지 경우로 정리할 수 있다. 첫째는 스펙트럼을 얻기 위한 실험이 진공상태가 아닌 일반 대기 상태에서 이루어졌기 때문에 알파선이 공기입자에 방해받았기 때문이다. 동일한 실험을 진공 챔버 내에서 실시하면 스펙트럼 좌측에서 관찰되는 노이즈 현상은 최소화 할 수 있지만 본 연구에서 제작하고자 하는 알파선 검출기는 진공이 아닌 일반 대기 환경에서도 알파선을 측정하는 것이 목적이므로 추후 연구 과정에서 보다 정확한 스펙트럼이 요구될 때 진공 챔버를 사용할 예정이다. 두 번째는 방사선 입사 방향에 증착되어 있는 Au 코팅 두께가 알파선의 에너지를 감소시켰기 때문이다. 이러한 두께의 영향은 향후 증착 과정에서 다양한 두께의 검출기 제작을 통해 최적의 조건을 찾을 예정이다. 마지막 요인으로는 사용한 Pu-238 방사성 동위원소의 지름이 CZT검출기의 단면적보다 크기 때문에 입사 방사선이 균일하지 않기 때문이다. 이러한 문제는 동위원소와 검출기 사이에 collimator를 사용하여 보완할 수 있다. 본 실험에서는 엑스선과 감마선 측정 분야에서 많은 연구가 이루어지고 있는 CZT 반도체를 알파선 검출기로서 사용하였

고 스펙트럼 측정 결과 Pu-238에서 발생하는 알파선에 대한 반응성이 높았다. 연구 결과 CZT검출기는 엑스선, 감마선 검출뿐만 아니라 알파선 검출에도 유용할 것으로 판단된다.

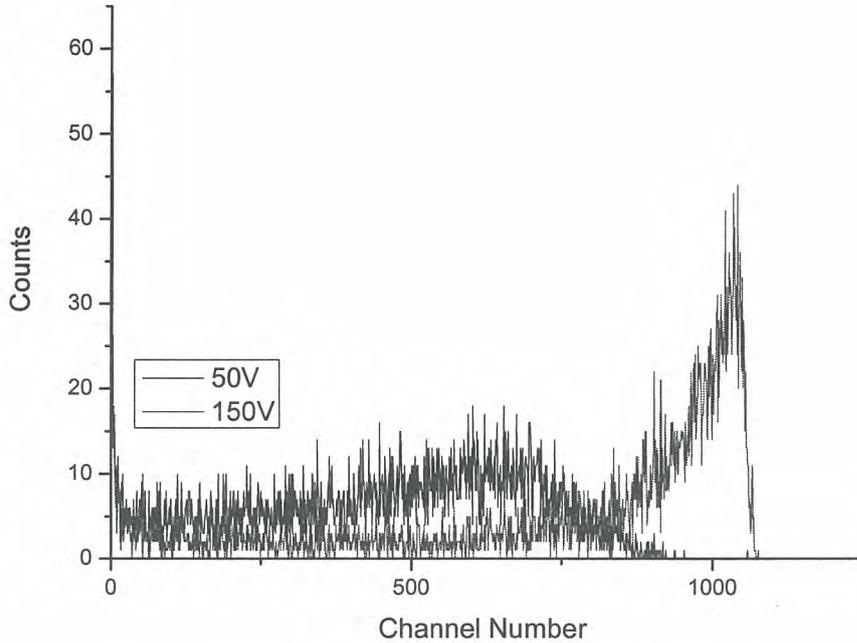


그림 1 동작전압 50V, 150V 조건에서 측정된 알파 스펙트럼

\*본 연구는 과학기술부 원자력증장기 과제의 지원으로 수행되었음.

## 플라스틱 섬광체와 무기 섬광체를 이용한 Phoswich 검출기의 설계와 제작

이우교, 김용균, 김정복, 정중은, 하장호, 박세환, 홍석봉, 김종경\*

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

한양대학교\*, 서울시 성동구 행당동 17번지

[wglog@bclinc.com](mailto:wglog@bclinc.com)

방사성 측정하는 검출기의 종류는 다양하다. 그러나 두 가지 이상의 방사선을 측정하여 방사선을 구별하는 검출기는 상용화 되지 않았다. 베타 입자와 감마선을 측정하는 방법은 각각의 방사선에 대한 검출기를 사용하여 구별하고 있다. 그러나 하나의 검출기로 방사선 입자를 구별하는 검출기가 phoswich 검출기이다. Phoswich 검출기는 두 개의 섬광체를 sandwich로 접합하여 만든 검출기를 총괄하는 명칭이다. Phoswich 검출기는 사용하는 섬광체의 종류에 따라 달라질 수 있다. 알파와 감마를 구별하기 위하여 사용하는 phoswich 검출기는 대부분 ZnS(Ag) 섬광체와 무기 섬광체를 주로 사용하고 베타와 감마 방사선을 구별하기 위하여 사용하는 phoswich는 대부분 유기 섬광체와 무기 섬광체를 주로 사용한다.

본 연구에서는 베타와 감마 방사선을 측정하기 위하여 플라스틱 섬광체와 CsI(Tl) 섬광체, BaF<sub>2</sub> 섬광체를 사용하였다. 베타와 감마 방사선을 측정하기 위한 phoswich 검출기를 제작하기 위하여 플라스틱 섬광체에서의 베타 입자의 비정을 계산하였고, 그리고 플라스틱 섬광체에서의 감마 방사선의 흡수를 계산하여 플라스틱 섬광체의 두께를 설계하였다.

그림 1은 플라스틱 섬광체와 CsI(Tl) 섬광체를 이용한 phoswich 검출기의 설계도이다. 설계된 phoswich 검출기는 외부로부터 물리적인 충격이나, 습기 및 빛 등을 차단하기 위하여 mylar 필름으로만 감쌌고 PMT housing과 접하는 부분에는 O-ring을 사용하여 빛을 차단하였다.

베타선 측정용 플라스틱 섬광체를 지름 2인치 원통으로 성형하여 cold mounting 하여 다양한 두께로 절단하여 사용하였고 CsI(Tl) 섬광체는 지름 2인치 길이 2인치를 사용하였다. 절단된 플라스틱 섬광체는 연마하여 다양한 두께(두께 = 1, 1.5, 2.2, 5, 10 mm)의 플라스틱 디스크로 polishing 하였으며 window 앞에 alpha 입자의 투과를 막기 위하여 17  $\mu$ m의 알루미늄 호일 사용하였고 외부의 습기 및 빛을 차단하기 위하여 알루미늄이 코팅된 mylar 필름(mmy3=0.067 mm) 사용하였다. 그리고 CsI(Tl) 섬광체의 평면은 polishing 하였고 원통 면은 테프론 테이프로 감싸 빛의 손실을 최소화 하였다. 플라스틱 섬광체에 감마선은 반응 없이 투과하고 beta 입자가 최적으로 반응하는 플라스틱 섬광체의 두께에 따른 beta 입자에 스펙트럼을 측정하여 플라스틱 섬광체의 최적두께 결정하였으며 베타 입자에 대한 플라스틱 섬광체의 최적 두께인 2.2 mm로 하여 플라스틱 + CsI(Tl) 섬광체 phoswich 검출기를 제작하였고, 플라스틱 섬광체와 BaF<sub>2</sub> 섬광체를 사용하여 또 하나의 phoswich 검출기를 제작하였다.

베타선과 감마선을 동시측정하기 위하여 timing filter amplifier, constant fraction discriminator, time to pulse height converter 등을 사용하여 PSD(pulse shape discrimination) 방법으로 측정하였다.

그림 2는 PSD 측정 회로도도를 나타낸 것이다. 검출기에서 나온 신호는 다시 두 개로 분리되어 TFA에 각각 입력되어 출력이 CFD에 입력된다. CFD의 미적분 시정수가 적은 것의 출력은 TAC의 start에 입력되고, 미적분 시정수가 큰 것의 출력은 TAC의 stop에 입력된다. TAC의 출력은 두 개로 분할되어 각각 TSCA와 LGS의 linear에 입력된다. TSCA의 출력은 LGS의 gate에 입력되고 LGS의 출력은 MCA에 입력되어 시간 스펙트럼을 측정하여 베타와 감마선을 구별하고, 시간 스

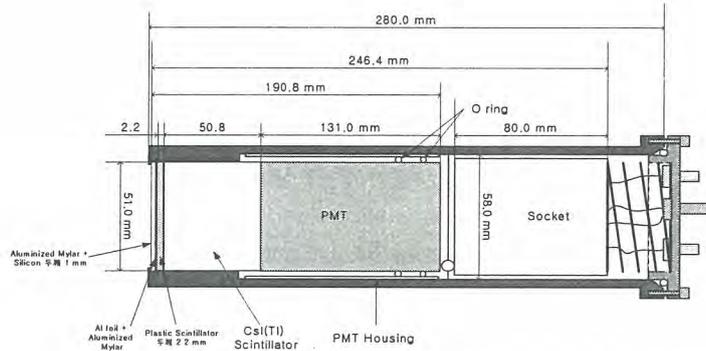


그림 1. CsI(Tl) 섬광체를 이용한 phoswich 검출기의 상세 설계도

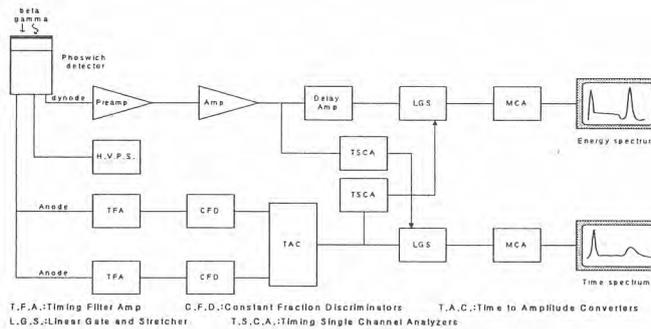


그림 2. Phoswich 검출기용 PSD 회로도.

펙트럼을 관찰하면서 TSCA를 조정할 수 있도록 하였다. TAC에서 나온 신호를 각각 TSCA의 입력과 LGS의 linear에 입력하면 검출기에서 측정된 베타와 감마선의 시간 스펙트럼을 computer의 monitor에서 구할 수 있다. monitor의 시간 스펙트럼을 보고 TSCA의 lower level, upper level을 조정하면 베타 혹은 감마 방사선에 대한 시간 peak만 선택되어지고, TAC의 신호 대신에 amp의 신호를 입력하면 시간 스펙트럼에서 조정된 구간에 대한 베타나 감마의 에너지 스펙트럼을 알 수 있다.

그리고 amp에서 나온 신호가 각각 TSCA의 입력과 LGS의 linear에 입력되면 phoswich에서 측정된 베타와 감마의 에너지 스펙트럼을 computer의 monitor에서 구할 수 있다. monitor의 에너지 스펙트럼을 보고 TSCA의 lower level, upper level을 조정하면 에너지 스펙트럼의 일정 부분만 선택되어지고, amp의 신호대신에 TAC의 신호를 입력하면 에너지 스펙트럼에서 조정된 구간에 대한 베타와 감마의 측정비를 알 수 있다.

베타와 감마선에 대한 에너지 스펙트럼을 구하기 위하여 시간 스펙트럼에서 조정된 TSCA와 amp의 출력을 LGS에 입력하면 시간 스펙트럼에서 조정된 하나의 입자에 대한 에너지 스펙트럼을 구할 수 있다.

제작된 베타 감마 동시측정용 플라스틱 섬광체와 CsI(Tl) 섬광체, 플라스틱 섬광체와 BaF<sub>2</sub> 섬광체 조합으로 이루어진 phoswich 검출기를 이용하여 베타선과 감마선에 대한 시간 스펙트럼을 측정하여 beta 선에 의한 peak와 gamma 선에 의한 peak를 각각 분리하였고, 시간 스펙트럼에서 나온 각각의 peak를 파고 스펙트럼의 gate 신호로 입력하여 beta와 gamma 선에 대한 파고 스펙트럼으로 분리하였다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부 원자력연구개발사업과 한양대학교 iTRS의 지원에 의해 수행되었습니다.

## 중성자 피폭 방향에 따른 인체 뼈 조직의 Ca 방사화율 평가

김정인, 이병일, 임영기, 김종순

한국수력원자력(주) 방사선보건연구원, 서울 도봉구 쌍문3동 388-1

핵 임계사고 또는 이와 유사한 중성자 과 피폭사고의 발생 가능성이 있는 원자력 및 방사선 관계 종사자는 작업에 앞서 정확한 피폭선량을 산출하기 위한 목적으로 다양한 형태의 선량계 착용을 권고하고 있다. 그러나 예기치 못한 중성자 피폭사고의 발생에 따른 피폭자의 선량평가를 위해서는 일반적으로 체내 안정원소의 방사화를 평가하는 방법이 다른 중성자 선량평가 방법들과 더불어 널리 사용되고 있다. 이러한 인체 방사화를 이용한 중성자 선량평가의 대표적인 핵종으로는 전신에 고루 분포하고 상대적으로 측정이 용이한  $^{24}\text{Na}$ 나 피폭 중성자장 특성 분석 목적의  $^{32}\text{P}$  등을 들 수 있다. 그러나 전신에 고르게 분포하는 Na의 측정만으로는 중성자 피폭의 방향성 평가에 한계를 갖는다. 따라서 이러한 방향성 평가를 위해서는 상대적으로 99%이상이 인체 내 뼈 부분에만 존재하는 Ca 원소의 방사화 분석과 같은 다른 형태의 평가 절차가 요구된다.

1970년대 이후 Brookhaven National Laboratory(BNL)에서는 인체 내 존재하는 다양한 핵종의 분석 및 계측관련 연구를 수행하고 있다. 전신에 분포하는 핵종의 경우 REMCAL 피폭체 내부에 인체등가 용액을 채워서 방사화율 및 계측기 교정상수 등을 구하게 되는데 Ca의 경우는 대부분이 뼈에 존재하기 때문에 Yasumura 등(1997)은 효율적인 계측을 목적으로 BOMAB 피폭체 내부에 인체의 뼈에 해당하는 구조물을 추가적으로 배치한 변형된 BOMAB 피폭체를 새롭게 구성하였다. 표 1은 변형된 BOMAB 피폭체의 외형 및 주요골격의 크기를 나타낸다.

본 연구에서는 중성자 피폭에 따른 방향별 방사화율 평가를 목적으로 몬테카를로 시뮬레이션을 이용하여 앞서 언급된 변형된 형태의 BOMAB 피폭체내 뼈 구조물의 Ca의 방사화율을 피폭 방향별(AP, PA, LAT)로 평가하였다.

피폭체내 뼈 구조물질은 실제 방사화 실험에서는 조직등가물질을 사용하게 되나 기하학적 특성만을 고려하기 위하여 ICRP23에서 제공하는 조직데이터의 인체의 뼈와 동일한 물질로 평가하였으며 BOMAB 피폭체 내부는 순수한 물로 채웠고 Polyethylene에 해당하는 외벽 역시 물로 가정하여 생각하였다. 시뮬레이션 코드는 MCNPX 2.5를 사용하였으며 중성자 반응단면적은 LLNL의 ACTL을 사용하였다. 방사화율은 MCNPX 코드 내 FM 카드를 이용하여 기 산출된 특정 cell 내의 중성자 flux와 반응단면적을 연계하여 평가하였다. 중성자 에너지는  $10^{-8}\sim 1.5\times 10^1$  MeV 영역에

Table 1. Dimensions of the male modified BOMAB phantom, 170cm(height).

Section	a (cm)	b (cm)	c (cm)	Skeletal parts	
				Dimension(cm) thickness ×width or a×length or b of ellipse	Length (cm)
Head	14	19	20	-	-
Face	-	-	-	0.635×49.5×18.4	-
Cap	-	-	-	0.635×6.5a×9.3b	-
Neck	13	13	10	-	9.29
Chest	20	30	40	-	39.85
Full rib	-	-	-	0.476×74.0×1.91	-
Half rib	-	-	-	0.476×37.0×1.91	-
Sternum	-	-	-	0.476×3.18×23.7	-
Pelvis	20	36	20	0.635×57.2×18.0	-
Arm	10	10	60	-	57.15
Thigh	15	15	40	-	39.85
Leg	12	12	40	-	38.74

대하여 11개 구간으로, 방향은 AP, PA, LAT의 세 방향에 대하여 시뮬레이션을 실시하고 그 결과를 그림 1에 나타내었다.

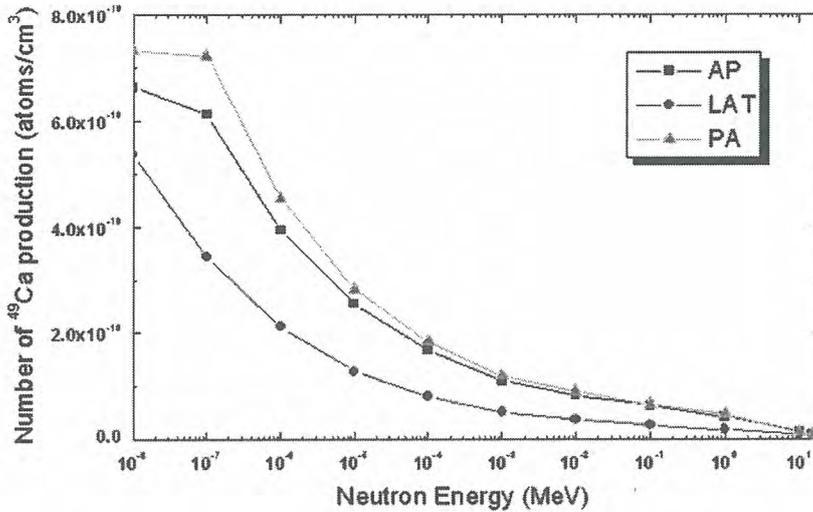


Fig 1. Number of <sup>49</sup>Ca produced as a result of (n,γ) capture with <sup>48</sup>Ca in skeletal parts of the modified BOMAB phantom by Monte Carlo simulation.

평가결과 PA방향에서 가장 높은 방사화율을 나타내는 것으로 평가되었고 가장 적은 방사화율을 갖는 LAT의 경우 최대 값에 비하여 약 40% 정도 저 평가됨을 확인할 수 있다. 이는 실제 사고 시 선량평가에 있어 인체 방사화를 이용하여 평가하는 경우 피폭방향이 피폭선량을 산출하는데 중요한 요인임을 알 수 있다.

향후 추가적인 연구를 통하여 voxel 피폭체와의 비교 및 피폭 방향에 따른 인체 부위별 방사화율 평가 등을 수행할 예정이며 실제 다양한 중성자 조사실험을 통한 평가결과의 활용가능성에 대한 검토가 요구된다.

## 사용후 핵연료의 민감 핵물질 공간 분포 측정을 위한 중성자 스캐너 원리 실증 연구

하장호, 조윤희, 이태훈, 고원일, 정정환, 송대용, 김호동, 양명승

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

사용후 핵연료를 다루는 핫셀내의 Pu, U, U-235 등의 핵물질 감시를 위해서는 핵물질의 공간 분포를 측정하는 중요하다. 건식공정 핵연료 기술인 DUPIC 공정에서 민감핵물질의 공간 분포는 Cm-244의 질량을 중성자 측정법으로 측정하여 U, U-235, Pu의 양을 추정하는 방법을 사용한다. 핫셀에서 직접적으로 민감 핵물질의 공간분포를 측정하는 장치개발에 있어 기술적 문제점은 공정을 위한 복잡한 장비와 구조물에서 핵물질의 분포에 대한 시스템의 접근이 제한되고, 사용후 핵연료를 다루는 핫셀은 고방사선 공간이므로 일반적인 검출기의 경우 성능의 저하가 심각하여, 실시간 측정이 불가능하다. 정확한 성분을 측정해 내는 기존방식은 시료의 샘플을 채취하여 실험실에서 오프라인으로 분석하는 방식을 사용하고 있다. 기존의 동위원소 분석을 위한 감마선 분석을 핫셀내에 적용할 경우 감마선 검출기는 고방사선으로 방사선에 의한 피로도 증가로 성능을 발휘할 수 없는 한계가 있다. 이러한 이유로 핫셀 내의 민감 핵물질을 포함한 방사성 동위원소의 실시간 측정은 어려움이 많다. 고방사선의 핫셀 환경에서 적용 가능한 검출기는 감마선에 민감도가 상대적으로 적은 기체형 중성자 검출기가 기술적으로 유일한 방안이다.

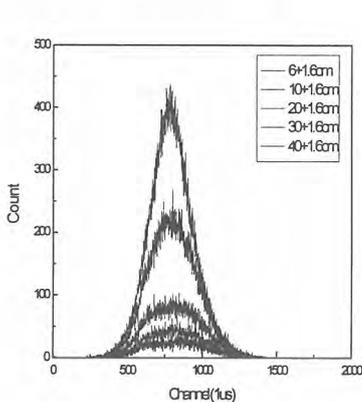


그림 1 중성자원 거리에 따른 위치분포

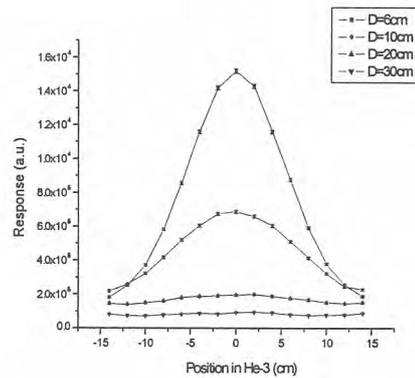


그림 2 거리에 따른 중성자 위치분포 이론치

핵물질의 공간 분포 측정 장치는 중성자의 손실공정 핵물질 공간구조를 알기위하여 위치 민감형 He-3 중성자 검출기를 이용하여 측정 원리를 실증과 대형 중성자 스캐너 시작품이 제작하여 성능과 특성을 평가하였다. LND사의 위치민감형 He-3 tube를 이용하여 핫셀용 2차원 중성자 스캐너를 제작하였다. 중성자 검출기 제원으로는 유효 지름 1 inch, 유효 길이 10 inch, 압력 4기압이며, 중성자 검출기는 고순도 폴리에틸렌으로 차폐하여 중성자의 감도를 증가시켰다. 스캐너의 검출기 부분은 스텝모터로 구동되며, 2차원 스캔을 통하여 중성자 분포를 얻도록 제작되었다. 중성자원으로는 Cf-252 중성자원을 사용하였다. 그림 1은 중성자의 거리에 따라 측정된 중성자원의 분포에 대한 실험 결과이며, 그림 2는 MCNP로 계산된 중성

자 분포이다. 그림 3은 중성자원을 스캔하여 얻은 공간 분포 영상이다.

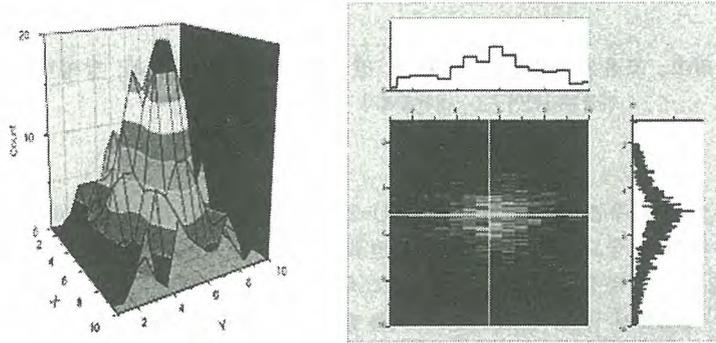


그림 3 중성자원 Cf-252를 측정된 자료와 방사선 영상

He-3 중성자 검출원리로 부터 양성자와 삼중수소의 분리과정이 고유한 위치분해능을 발생시키는 것으로 나타났다. 검출기의 위치 분해능은 검출기 표면인 1.27cm에서 FWHM이 10.2cm로 측정되었으며, MCNP 코드 계산 결과와 일치하였다. 또한 중성자의 효율을 증가시키기 위한 HDPE 두께에 따른 위치분해능효과를 측정된 결과 위치분해능은 두께에 따라 차이가 없었다. 이러한 결과는 중성자원에서 발생한 중성자가 HDPE를 통과하여도 초기 방향으로 중성자가 진행하는 것으로 이해되며, 장치 구성 시 중성자 효율을 극대화하기 위한 HDPE 삽입하여도 영상의 분해능에는 영향이 없으면서도 중성자 측정효율을 높이는 것이 가능한 것으로 밝혀졌다.

\*본 연구는 과학기술부 원자력증장기 과제외 지원으로 수행되었음.

## 동위원소 희석질량분석법에 의한 플루토늄 정량에서 시료와 스파이크 혼합비에 따른 선형성 및 측정한계 검토

전영신, 김태현\*, 조기수, 한선호, 지광용, 박용준

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

\* 주식회사 액트, 대전광역시 대덕구 신일동 1688-5

[vsieon@kaeri.re.kr](mailto:vsieon@kaeri.re.kr)

열 이온화 질량분석기를 이용한 동위원소희석 질량분석법(IDMS)으로 미량 플루토늄을 정량하는데 있어서 시료와 스파이크를 섞는 비율에 따라 얻어지는 정량 값의 선형성을 알아보았다. 또한 얻어진 결과에 대한 정확도, 정밀도 그리고 결과에 대한 불확도를 산출하기위해 고려되어야 할 인자들을 살펴보았다. 스파이크로 Pu-242(IRMM-044)를 사용하였으며 본 실험에 사용한 플루토늄 스파이크 량은 3.2 ng이었다. 정량분석 검정에 사용된 시료는 실험실 자체검정 플루토늄 표준물을 사용하였으며, 0.034 ng, 0.171 ng, 0.34 ng, 1.71 ng, 및 3.42 ng을 각각 시료로 사용하였다. 본 실험결과 희석배수에 상관없이 넣어준 량을 100으로 했을 때 정량된 플루토늄의량은 평균  $103.55 \pm 4.9$  값을 얻었다. 또한 얻어진 correlation coefficient는 0.99956으로 좋은 직선성을 보였으며 regression coefficient는 1.0175를 보였다.

Table 1. Results of determination for plutonium by TIMS-IDMS

Blending (sample + spike)	239/242	Input, Pu(ng)	Measured, Pu(ng)	Meas./Input 100(%)
1 + 300	0.009377	0.035	$0.038 \pm 0.0023$	108.57
5 + 300	0.041336	0.175	$0.182 \pm 0.0029$	104
10 + 300	0.075771	0.35	$0.337 \pm 0.0014$	96.3
50 + 300	0.365678	1.75	$1.69 \pm 0.007$	96.6
100 + 300	0.729422	3.42	$3.50 \pm 0.011$	102.3

Table 1과 Fig. 1에 이들 결과를 나타내었으며, 이들 결과로부터 스파이크와 시료를 섞는 과정에서 오는 오차가 극미량 시료임에도 불구하고 10 % 범위 내에 있음을 보였고, 또한 스파이크와 시료를 섞는 비(ratio)에 따라 결과에 미치는 영향이 그다지 크지 않음을 보였다. 시료를 넣지 않고 시료처리와 똑같은 과정을 거친 바탕시료에 스파이크로 IRMM-044, Pu 1 ng을 넣어 239/242를 측정 한 결과 스파이크 값과의 미세한 차이를 보이기는 하였으나 시료처리 등의 전 과정에서 별 다른 오염(cross-contamination)이 없음을 확인하였다. 본 실험에 사용한 시료의 동위원소 비 측정에서 239/242의 비는 10.5074 값을 얻었고, 0.034 ng 시료에 스파이크 3.2 ng을 넣어 측정된 239/242의 비가 0.009377 이었다. 측정비로 계산되는 동위원소희석질량분석법을 이용한 플루토늄의 정량한계는 측정에 사용한 질량분석기의 Abundance sensitivity( $2 \times 10^{-6}$ )을 감안한 값이 될 수 있으나 바탕 값 측정으로부터 얻어진 1 pg 정도를 측정한계로 볼 수 있음을 본 실험을 통하여 알 수 있었다. 핵 물질 실험에 사용한 고무장갑 등의 보호구 중 극미량의 플루토늄을 정량하는데 따른 고려해 주어야 할 불확도 요소들을 Fig. 2에 보였으며 불확도에 영향을 미치는 요소 중 Pu-239/Pu-242 측정에서 오는 불확도가 제일 크게 나타났으며 전체 불확도의 60 % 정도를 차지하는 것으로 나타났다.

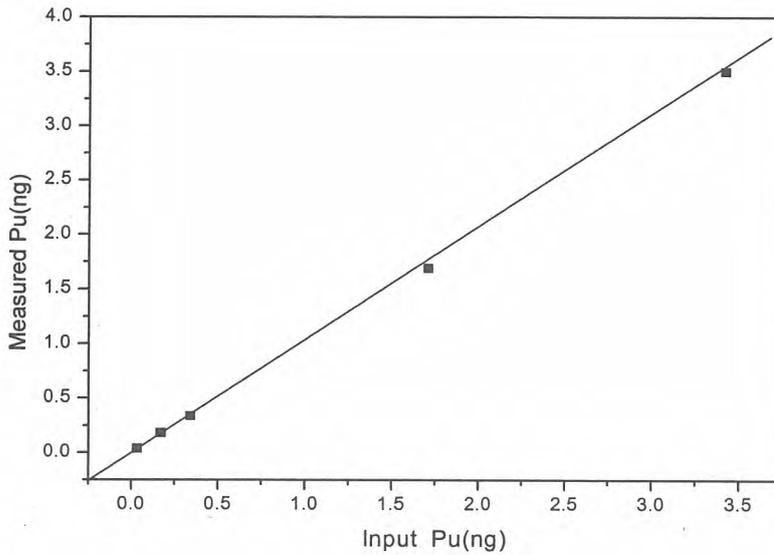


Fig. 1. Linearity in determination of plutonium according to blending ratio between sample and spike.

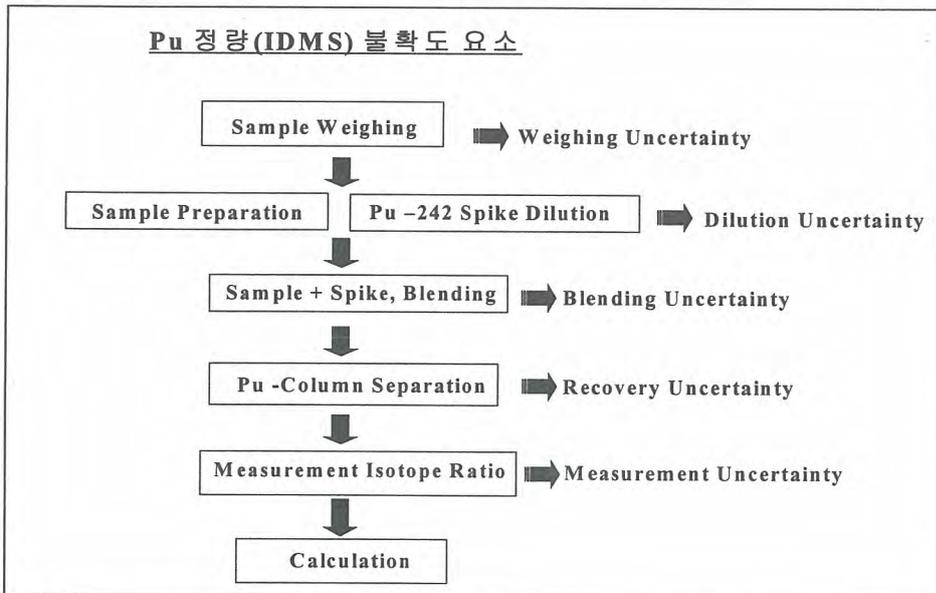


Fig. 2. Sources of uncertainty components for the determination of Pu in radwastes by IDMS.

## 중수로원전 기체방사성유출물 DRL 설정

박규준 · 김희근 · 강덕원

한전 전력연구원, 대전광역시 유성구 문지동 103-16

방사선방호 신개념(ICRP-60)의 범제화에 따라 주민선량한도가 연간 5 mSv에서 1 mSv로 낮아져 중수로원전에서 방출되는 방사성폐기물의 양도 새로운 선량한도에 맞추어 재설정할 필요가 있다. 중수로원전의 방사성유출물에 대한 방출제한치는 주민선량한도에 근거하여 유도하며 이를 유도방출기준(Derived Release Limits; DRL)이라 한다. 한편 캐나다에서도 ICRP-60이 범제화됨에 따라 원전에서 방출하는 방사성폐기물 양을 새로이 설정하고자 유도방출기준을 개발 중에 있다. 본 논문에서는 주민선량한도 1 mSv에 근거하여 설정된 DRL을 기술하고 있다. 그 내용으로 배출관리기준(Effluent Concentration Limit; ECL)을 적용한 핵종농도법과 주민선량계산코드와 같은 DRL 계산 코드 등을 이용한 시스템분석법에 근거하여 중수로원전의 기체방사성유출물 DRL을 계산하고 그 결과를 비교·분석하였다.

현재 월성원전에서 사용하고 있는 DRL은 최대허용농도(Maximum Permissible Concentration; MPC)에 근거를 두고 있는 핵종농도법으로서 ICRP-60의 주민선량한도나 배출관리기준에 근거하여 개정할 필요가 있다. 일반적으로 배기/배수 중 최대허용농도 값에 근거한 유도방출기준은 특정 환경조건을 세밀히 고찰한 것이 아닌 광범위한 피폭경로를 일반화하여 도출한 것이다. 따라서 핵종농도법은 식수나 공기와 같이 비교적 단순한 성질과 단일한 유형의 피폭경로에 대해서는 적절한 방법이지만 먹이사슬(Food chain)이나 복잡한 피폭 경로에 대해 유효하게 고려하기에는 부적절한 측면이 있어 DRL을 설정할 때 여유도를 크게 잡는 것이 일반적이다. 입력 자료에 대해 본 논문에서는 과학기술부 고시 제2002-23호의 ECL과 현재 월성의 최종안전성분석보고서(FSAR)에 제시된 대기학산인자 최대치를 적용하여 DRL을 계산하였다.

또한 중수로원전의 DRL 설정법의 하나인 시스템분석법을 사용하여 월성원전의 DRL을 계산하였다. 시스템분석법은 주민선량한도를 근거로 하며 방사성물질이 발전소로부터 방출되어 인체에 피폭을 주는 모든 경로를 고려하는 방법으로서 방출된 방사성핵종의 공기 중 호흡에 의한 내부피폭, 토양침적에 의한 외부피폭, 동식물들에 전이 농축되어 최종 섭취까지의 복잡한 경로(Pathway)를 고려하는 것이 특징이다. 본 논문에서는 다양한 방법을 통해 DRL을 계산하고 비교하였다. 자체개발 코드인 Wolsong-DRL과 캐나다 OPG (Ontario Power Generation)의 IMPACT (Integrated Model for the Probabilistic Assessment of Contaminant Transport) -DRL 등이 이용되었다. 이를 비교하면 Fig. 1과 같다. 특히 Wolsong-DRL과 IMPACT-DRL을 이용하여 계산한 결과에 대해 캐나다 원전의 DRL 값과 비교하였다. 이들 값이 국내 중수로원전에 적용될 경우 발전소 운전 등에 미치는 영향도 아울러 분석하고 평가하였다.

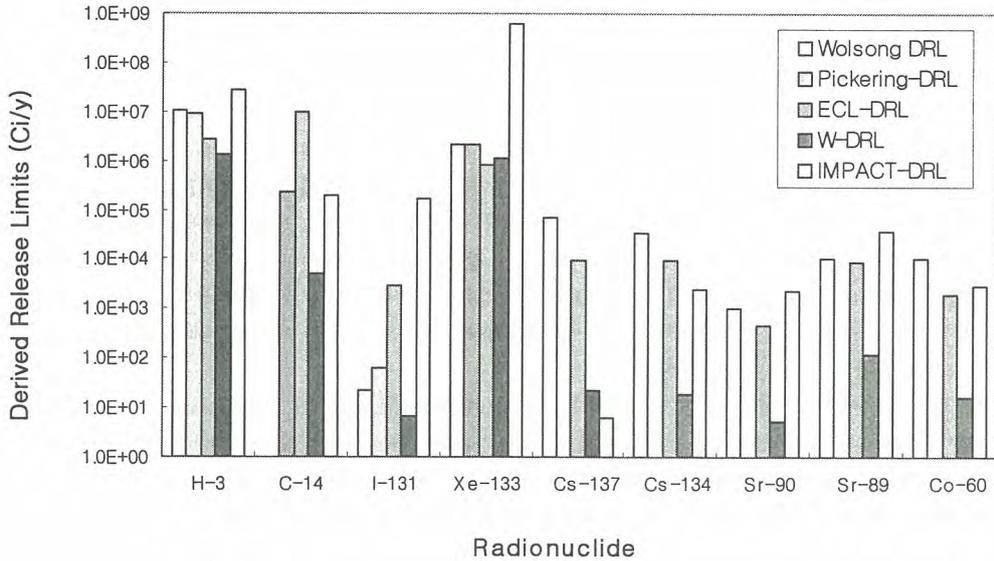


Fig. 1. Annual Derived Release Limits for Radionuclides in Airborne Effluents (Ci/y);

□ Wolsong-DRL: 전력연구원에서 ICRP-60을 반영하여 자체개발 전산코드를 이용한 계산값, ▨ Pickering-DRL: 캐나다 Pickering 원전의 DRL값, ▩ ECL-DRL: 현재 월성원전 DRL에 대해 MPC 대신 ECL을 적용한 계산값, ▨ W-DRL: 현재 월성원전 DRL, □ IMPACT-DRL: 캐나다 OPG에서 ICRP-60 개념을 반영하여 개발한 전산코드를 이용한 계산값.

※ 본 연구는 과학기술부 및 한국과학재단의 지원을 받아 2004년도 원자력연구개발사업을 통해 수행되었음

## 고피폭 방사선작업 식별을 위한 DB 프로그램 개발 및 검증

손중권, 강기두, 김학수, 박경록, 김경덕, 김용민\*, 강창순\*, 조영호\*\*

원자력환경기술원, 대전 유성구 덕진동 150

\*서울대학교, 서울시 관악구 신림동 산 56-1

\*\* 포스데이타(주), 경기도 성남시 분당구 서현동 276-2

원전 작업종사자 방사선 피폭 저감을 위해서는 우선 고피폭을 유발하는 방사선작업들을 파악하여 적절한 설계개선, 피폭저감 기술들의 도입, 작업절차 개선 등이 필요하다. 본 연구에서는 작업종사자 피폭선량 평가를 위한 데이터베이스 프로그램을 개발하였으며, 이를 위해 원전 현장에서 수행되는 모든 방사선작업들의 피폭관련 자료를 토대로 피폭선량 데이터베이스를 구축하였다. 여기에는 원전 정기보수 기간 중 작업현장에서 수행되는 방사선작업에 대한 모든 상세한 피폭관련 데이터들을 포함하고 있다.

데이터베이스 프로그램을 이용하여 26개의 주요작업, 91개의 상세작업에 대해 작업자 집단선량을 평가하였다.

일반적으로, 각 작업별로 피폭자료들을 분석할 때 대부분 작업별 피폭자료의 평균값이나 중간값 또는 최대값 등의 특정한 대표값을 이용하며, 이러한 대표값을 이용하여 방사선작업들을 비교 분석하고, 피폭저감이 상대적으로 더 필요한 고피폭작업들을 파악하고 있다. 그러나 실제로 이러한 대표값들은 해당 방사선작업의 피폭자료들 전체를 대표하기에는 부족하며, 그 전체 분포를 고려하지 못한다는 단점을 내포하고 있다. 이에 따라, 본 논문에서는 피폭자료의 전체 분포를 고려하여 반복성 고피폭작업들을 파악해 내기 위한 방법론으로서 기존의 Point Dose Value Method를 보완할 수 있는 Percentile Rank Sum Method를 개발하였다. Percentile Rank Sum Method를 이용한 반복성 고피폭작업 도출은 3 단계로 구성되며, 추가로 결과 검증 단계를 거친다. 1 단계에서는 각 방사선작업별로 집단선량값 데이터를 토대로 백분위수값들을 도출하고 2 단계에서는 각 백분위수값별로 집단선량값의 크기에 따라 각 방사선작업들에 순위를 매긴다. 마지막으로 3 단계에서는 각 방사선작업별로 백분위수값들의 순위합을 구하고, 이를 이용하여 최종순위를 결정한다.

본 논문에서는 개발한 반복성고피폭작업 식별체계인 Percentile Rank Sum Method 및 그에 기초한 식별결과가 이론적으로 적절한 것인지의 여부를 검증하는 통계적 방법론에 대하여 검토하였다. 최종 결과인 작업별 순위합의 순위가 해당 작업을 대표할 수 있는지의 대표성 여부와 전체 도출 과정 및 결과가 타당한지의 여부를 검증할 필요가 있으므로 이에 초점을 맞추었으며, 이 두 가지 목적에 부합되는 방법으로 비모수적 방법에 속하는 윌콕슨 부호순위 검정과 프리드만 검정을 선정하여 적합성을 평가하였다.

우선 주요작업들에 대하여 최대방사선량률이 높은 작업, 작업인원이 많은 작업, 작업빈도가 높은 작업, 그리고 집단선량이 높은 작업 순위를 도출하였다. 이러한 방법으로 순위가 높은 10개 작업을 분석한 결과 모든 S/G 관련 작업들이 선량율이 높은 작업들의 최상위에 있으며 나머지는 Filter 관련작업, 격납건물 누설시험, 핵연료교체작업, 체열세탁 작업, RCP 점검보수 작업, 가동중 검사, In-core 작업 등이 다음 순서를 차지하고 있다. 작업인원 분석에 의하면 가장 많은 작업인원이 투입된 작업은 핵연료교체작업이며, 그 다음으로 RCP 점검보수 작업, Valve류 점검보수 작업, 가동중 검사, S/G ECT 작업, In-core 작업, S/G Lancing 작업, S/G Man-way 작업, 기타펌프 점검보수 작업, Snubber 점검보수 작업, Filter 관련 작업 순으로 이어진다. 작업빈도 분석에 의하면 Valve류 점검보수 작업, 핵연료교체작업, RCP 점검보수 작업, 가동중 검사, S/G ECT 작업, In-core 작업, Snubber 점검보수 작업, S/G Lancing 작업, 기타펌프 점검보수 작업, Filter 관련작업 순으로 작업이 수행되었음을 알 수 있다. 그리고 이 순위는 앞에서 작업인원을 기준으로 조사한 순서와도 대체로 일치하고 있다. 연간집단선량(Annual Collective Dose)은 개인피폭선량(Individual Dose)의 연간 총합으로

구할 수 있으며, 연간집단선량 값을 결정하는 주요 인자로는 작업구역에서의 방사선량을, 작업에 투입된 작업인원, 연간 수행된 작업횟수인 작업빈도, 작업 수행에 소요된 작업시간 등이 있다. 집단선량은 개인선량의 경우와는 달리 법적으로 제한된 규제치가 존재하는 것은 아니지만, ALARA 원칙에 준하여 원전 설계 단계에서 설계목표치를 설정하고 운전시 이 목표치를 준수하도록 하고 있다. 구축된 데이터베이스를 이용하여 26개의 주요작업에 대한 집단선량을 산출하였다. 집단선량 분석에 의하면 RCP 점검보수 작업, 핵연료교체 작업, S/G Nozzle Dam 작업, Valve류 점검보수 작업, S/G ECT 작업, S/G Manway 작업, 가동중검사, In-core 작업, S/G Lancing 작업, S/G Tube 관련 작업 등이 상위 10개 작업으로 평가되었다. 전체 집단선량 총합에서 이들 상위 10개 작업의 집단선량의 합이 차지하는 비중은 약 94%이며, 상위 5개 작업과 상위 3개 작업이 차지하는 비중은 각각 약 70%, 50%이다.

주요작업별 집단선량을 평가하여 상위 10 개의 고피폭작업을 도출하였다. RCP 점검보수 작업이 주요작업 중에서 집단선량이 가장 높은 것으로 나타났으며, 선량율면에서는 그 크기 및 순위가 증기발생기 작업들에 비해 상대적으로 높지 않으나 작업인원 및 작업횟수 면에서 각각 2 번째와 3 번째의 순위를 보이고 있어 그 고피폭의 원인이 작업에 투입된 인원이 많음과 다수의 작업빈도에 기인함을 알 수 있다. 핵연료교체 작업도 비슷한 양상을 보이는데 역시 선량율은 높지 않으나 투입된 작업인원과 작업횟수의 정도가 역시 고피폭의 원인이 됨을 알 수가 있다. 이들 두 주요작업에 대해서는 작업인원과 작업횟수를 줄이는 방향으로 피폭저감 노력이 이루어져야 함을 보여준다. 그리고 S/G Nozzle Dam 작업, S/G Manway 작업, S/G Tube 관련 작업 등은 전반적으로 선량율면에서 최상위로 랭크되어 있으나 상대적으로 작업인원이나 작업횟수의 수치 및 순위는 그에 미치지 못하는 것으로 나타났다. 다시 말하면, 증기발생기와 관련된 상기 작업들의 고피폭 원인은 작업 구역의 고선량에 전적으로 기인함을 알 수 있다. 그리고 S/G ECT 작업, S/G Lancing 작업 등은 선량율, 작업인원, 작업빈도 등이 모두 비교적 높은 순위를 나타낸다. 이에 따라 증기발생기 관련 작업으로 인한 고피폭을 저감하기 위해서는 선량을 저감이 반드시 필요하다는 결론을 내릴 수 있다. Valve류 점검보수 작업은 집단선량 순위에서 4위의 고피폭작업으로 작업인원과 작업횟수를 그 원인으로 파악할 수 있다. 그 외에 가동중검사, In-core 작업 등도 작업인원 및 작업횟수가 상대적으로 더 큰 요인임을 알 수 있다.

방사선작업구분에 따르면 방사선작업은 모두 74 개의 상세작업으로 나뉘어진다. 그러나 이 상세작업들 중에서 작업구분상으로는 존재하지만 실제로 작업은 이루어지지 않는 명목상의 작업들을 포함하여 집단선량 평가를 위한 충분한 데이터가 존재하지 않는 작업들이 12 개 있다. 이러한 작업들을 제외한 62 개의 상세작업에 대해 작업자 집단선량을 평가하였다. 그 결과 62 개의 상세작업에 대해 총 4334 개의 집단선량 데이터를 확보하였다. 이 데이터를 기초로 Percentile Rank Sum Method를 이용하여 62 개의 방사선작업에 대해 순위를 계산한 결과 Dam 설치, RCP 모터 작업, 원자로 결합, RCP TVCS 작업, 원자로 해체 등이 상위 5개였다. 상세작업중 고피폭 상위 20 개 작업이 전체 작업자 피폭선량에서 이들 상위 20 개의 작업이 차지하는 비중은 약 70 % 이상이다.

윌콕슨 부호순위 검정 결과에 따르면 74개의 상세작업중 4가지 작업의 순위합이 대표성을 갖지 못하는 것으로 나왔으며, 나머지 모든 작업들은 순위합이 대표성을 가질 수 있는 것으로 나타났다. 프리드만 검정에 의한 검정 결과 순위합의 크기 또는 순서로서 상세작업의 피폭저감 우선순위를 결정하여도 문제점이 없음을 보여주었다.

## 환경영향평가코드 인자값 설정 방안 연구

이수홍, 김위수, 황주호\*

일진방사선엔지니어링(주) 서울특별시 구로구 구로5동 104-3,

\*경희대학교 경기도 용인시 기흥읍 서천1리

[realsh@hanmail.net](mailto:realsh@hanmail.net)

방사성폐기물 처분장이나 원전 해체후 부지의 평가 등 방사성 물질에 의한 오염부지에 있어 가장 민감한 부분은 오염부지로부터 직/간접적인 피폭선량 평가이다. 이에 따라 많은 연구를 통하여 오염부지의 환경영향 예측 평가가 이루어지고 있고 관련된 많은 환경영향평가코드들이 개발되어 있다. 이러한 환경영향평가코드는 많은 인자값 설정을 통하여 계산되나 각 코드마다 인자값 계산 방식이 약간씩 다르게 구성되어 있어 같은 조건에서도 결과값의 차이가 있다. 물론 각 코드들은 다양한 검증을 통하여 결과에 대한 신뢰성을 확보하고 있으나, 각 코드의 성격에 따라 같은 조건에서 다양한 결과값이 나오게 되면 전반적인 평가의 설득력이 떨어지게 된다. 특히 민감도가 큰 인자값의 경우 미묘한 차이로 인하여 결과값에 큰 차이가 발생할 수 있다. 이는 코드 자체의 신뢰성의 문제가 아닌 코드 운영자의 초기값 설정의 문제이다. 이에 따라 환경영향평가 코드를 이용하여 예측 결과를 수행할 경우 사용자가 좀 더 정확한 인자값 설정이 필요한 부분에 대해 인식을 하고 그 부분에 대해서는 좀 더 세밀한 자료를 찾도록 유도할 수 있다면 더욱 좋은 결과값을 산출할 수 있을 것이다. 이에 본 연구에서는 다양한 환경영향평가 코드 중 국내의적으로 신뢰성이 충분히 입증되어 널리 사용되는 RESRAD 코드를 선정하여 각 인자값들의 민감도를 조사하여 코드계산에 있어 특별히 주의하여 설정하여야 할 인자값에 대한 정보를 제공하고자 한다.

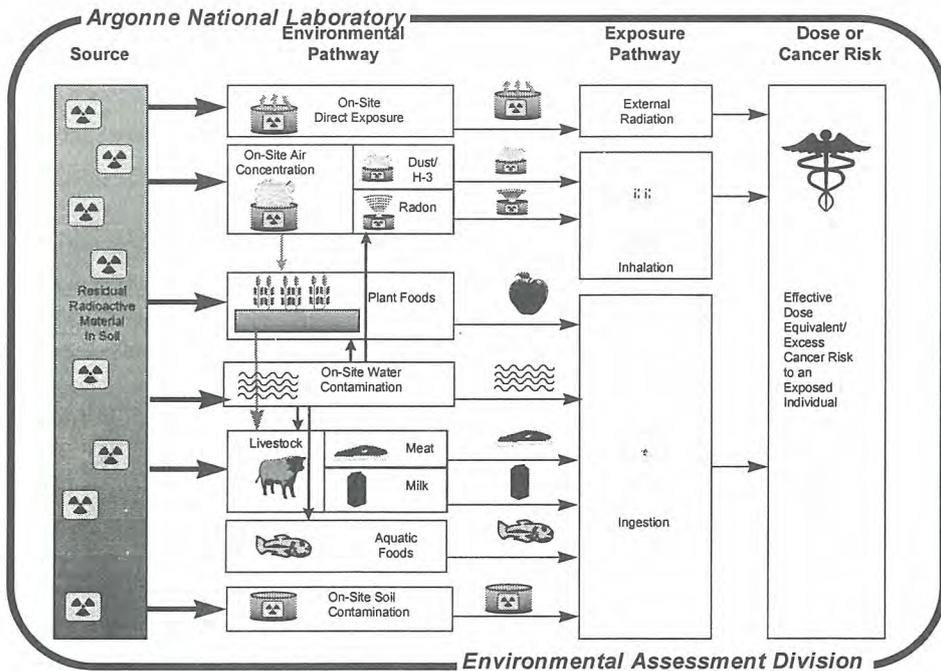


그림 1. RESRAD 전산코드에서 고려된 각종 피폭경로

본 연구에서는 주요 방사성핵종인 I-129와 Co-60 핵종에 대해 RESRAD 코드에서 요구하는 모든 인자값에 대하여 민감도 분석을 하였다. 수행 결과 I-129는 내부피폭에 영향을 많이 주고, Co-60은 외부피폭에 영향을 많이 주었다. I-129의 경우는 음식물의 섭취량이나 토양의 특성, 기후 등의 변화에 따라 결과값이 차이가 나타났다. 이는 I-129의 주 피폭경로가 오염 부지로부터 지하수를 통하여 생물에 영향을 주어 최종적으로 거주자의 내부피폭에 영향을 미치는 것으로 판단된다. 특히 음식물 중 우유의 섭취량에 대한 민감도가 크게 나타나는데 이는 우유의 직접적인 섭취 외에도 젖소의 오염수 및 오염 사료의 섭취량과도 영향이 있는 것으로 나타났다. 또한 토양의 밀도나 수리전도도 등에서도 민감한 결과를 나타내는데 이는 토양의 특성에 따라 핵종의 이동 특성이 변화하기 때문인 것으로 판단된다. 기후의 변화, 특히 강수량이나 증발산계수의 경우 토양으로 침투되는 물의 양에 변화가 생기게 할 수 있는 인자들로 토양의 특성과 같이 오염부지의 방사성핵종 이동 특성에 변화를 줄 수 있으므로 민감도가 크게 나타났다. 그러나 Co-60의 경우 내부피폭에 의한 영향은 거의 나타나지 않고 외부피폭에 대한 영향이 크게 나타남으로써 음식물 섭취량이나 토양, 기후의 특성 변화에 따른 결과값의 변화는 나타나지 않았다. 하지만 오염부지로부터 직접적인 피폭을 감소시킬 수 있는 복토층에 두께 변화를 주었을 때 결과값에 큰 차이가 있는 것으로 나타났다. 이는 복토층이 자연스럽게 차폐층의 역할을 함으로서 거주자의 피폭을 감소시키는 것에 기인한 것으로 판단된다.

본 연구에서는 I-129와 Co-60, 두가지 핵종에 대하여 인자값의 민감도를 조사하였다. 그러나 다른 핵종들의 경우 각각 사람에 미치는 영향이 틀리고 피폭경로 역시 상이하야 본 연구의 결과와는 또 다른 결과를 가질 것으로 판단된다. 이에 RESRAD 코드를 이용하여 환경영향 평가 수행시 평가 대상 핵종에 따라 민감도가 큰 인자값을 찾아내고 그 인자값에 대해서는 더욱 정확한 데이터를 수집하여 적용할 필요가 있다. 그렇지 않을 경우엔 결과값에 큰 차이가 있을 것으로 판단된다. 이에 따라 추후 Cs-137 등을 포함한 중요한 모든 핵종에 대한 민감도를 조사하여 각 핵종의 주요 인자값을 설정할 필요가 있다.

추후 연구에서는 RESRAD 코드에 국한하지 않고 현재 국내외적으로 널리 사용되는 다양한 코드들에 대한 인자값 민감도 분석을 수행하며, 단순한 결과값의 비교를 통한 분석을 벗어나 근본적인 수식의 수학적 분석을 통하여 인자값 민감도 분석을 수행하여 사용자들이 정확한 결과값을 산출할 수 있는 기초 자료를 제공하고자 한다.

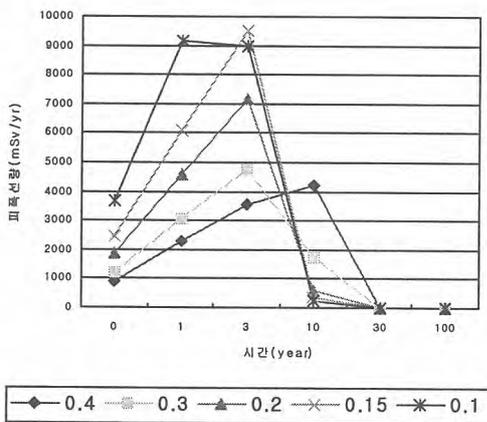


그림 2. I-129의 포화층 유효다공도 변화에 따른 피폭선량의 변화

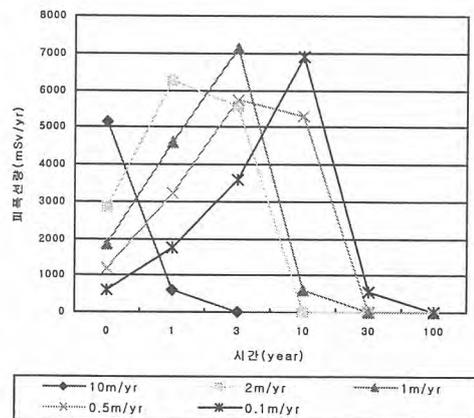


그림 3. I-129의 강수량 변화에 따른 피폭선량의 변화

## 국내 PWR 원전의 $^{14}\text{C}$ 방출 화학형에 따른 선량평가 방안 검토

박경록, 강기두, 김학수, 손중권, 김경덕, 하종현

한수원(주) 원자력환경기술원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

국내 원전의  $^{14}\text{C}$  방출감시는 현재 중수로(CANDU)인 월성원전에서 이뤄지고 있으며, 방출 화학형은  $^{14}\text{CO}_2$  형태만 고려하고 있다. 그러나 PWR의 경우는 방출되는  $^{14}\text{C}$ 의 화학형태가 중수로와 다른 것으로 보고 되고 있다. 즉 중수로의 경우 90%이상이  $^{14}\text{CO}_2$  형태로 방출되지만 PWR 원전에서는 약 60%~80% 이상이 메탄( $\text{CH}_4$ ) 등 Hydrocarbon형태로 방출되고 있다. 이와 같은 근본 원인은 PWR의 1차 냉각재에 계통의 부식방지를 위해 산소제거용 수소가 체적제어탱크(VCT)의 상층기체로 가압되어 있어 냉각재에 수소분위기가 형성되기 때문이다. 따라서 기체폐기물 방출시 수소와 결합된 Hydrocarbon이 중수로 보다 많이 함유되어 방출되는 것이다.

그런데 국내 PWR 원전건설 단계에서 수행되는 방사선환경영향평가에서는  $^{14}\text{C}$ 의 방출을 모두  $^{14}\text{CO}_2$ 로 가정하고 PWR GAIL코드에서 0.27 TBq/yr를 기본값(Default)으로 평가하고 있어 과대평가 가능성이 있다. 최근 원자력환경기술원에서는 국내 PWR에서 방출되는  $^{14}\text{C}$ 의 방출 화학형을 구분 포집하는 장치 및 측정기술이 개발하였으며, 방출화학형에 따른 최적 선량평가 방안을 수립한 바 있다. Fig. 1은 개발된 포집장치의 개략도를 보여주고 있다. 본 장치는  $^{14}\text{C}$ 를  $^{14}\text{CO}_2$ 와  $^{14}\text{C}$ -유기물인 Hydrocarbon으로 구분하여 포집할 수 있도록 구성하였으며, 포집용액은 2M NaOH 600ml를 사용하고, 첫 번째 컬럼(Column)에는 H-3의 영향 및 건조기체에 의한 포집용액의 후단 컬럼으로 증발을 최소화하기 위해 증류수 800ml를 사용토록 설계하였다. 유기물 형태의  $^{14}\text{C}$ 는 3번째 컬럼의 후단에 있는 Pt/Pd 촉매를 석영관에 넣어 사용할 수 있도록 전기로 장치를 장착하였고 C-유기물을 산화하여  $\text{CO}_2$ 로 변환시키기 위해 약  $500^\circ\text{C} \sim 700^\circ\text{C}$ 에서 사용 가능한 구조로 되어있다. 촉매의 사용기간별 성능확인 시험결과 4개월 이후에 서서히 변환효율이 저하되긴 하나 6개월까지는 C-유기물의 변환효율 변화가 크지 않으므로 6개월 동안 사용해도 문제가 없음을 확인하였다.

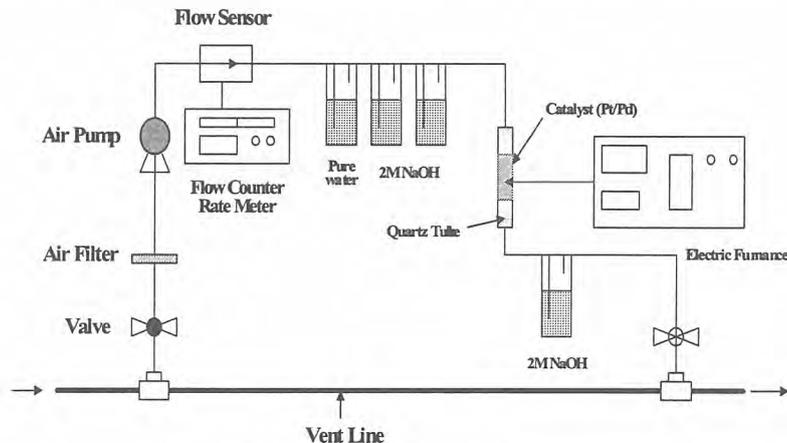


Fig. 1. Schematic diagram for  $^{14}\text{C}$  apparatus

주민선량평가를 위한 대상 화학형을 선정하기 위해  $^{14}\text{C}$  방출 화학형의 피폭경로별 민감도 분석을 하였다. 민감도 분석은 TRICA.FOR 전산코드를 사용하였으며, 각각의  $^{14}\text{C}$  화학형태별로 1TBq씩 방출된다는 가정하에 수행되었다. 그 결과는 Table 1과 같다. 피폭선량 측면에서 기여도가 가

장 큰 것은 CO<sub>2</sub>(섭취) 및 C-입자(호흡경로)로 각각 84.1%, 14.8%를 차지하고 있다. C-입자 형태는 발전소로부터 환경으로 배출되기 전에 대부분 필터에 의해 제거될 것이기 때문에 고려하지 않았다. C-유기물의 경우, 대기에서 확산이 잘 되고 CO<sub>2</sub> 광합성 작용을 하는 식물체의 섭취를 통해 체내에 유입될 확률은 적은 반면 호흡에 의해 유입되면 조직에 빠르게 흡수되고 선량환산인자가 매우 크므로 호흡에 의한 피폭선량에는 고려해야 할 것으로 판단된다. 따라서 본 연구에서는 평가대상 핵종으로 <sup>14</sup>CO<sub>2</sub>는 호흡 및 섭취경로, C-유기물은 호흡경로만을 고려하였다.

선량환산인자(Dose Conversion Factor, DCF)는 ICRP 67, 71에서 제시한 DCF 값을 사용하였고, 기타 환경인자는 KDOSE60 코드값을 사용하였다. KDOSE60 코드는 기본적으로 선량평가 모델을 비방사능 모델을 사용하고 있으나, 본 연구에서는 식물체는 비방사능 모델, 동물체는 하이브리드(Hybrid) 모델을 채택하였다. 하이브리드 모델은 동물이 섭취하는 식물체 먹이는 비방사능 모델로 계산하고 축산물은 동물의 전이계수(Transfer Factor)를 이용하는 방법이다. 전이계수는 Reg. 1.109에서 제시한 전이계수를 사용하였다.

화학형태 선량평가 결과를 비교하기 위하여 일반적인 방출형태인 CO<sub>2</sub> 20%, C-유기물 80% 형태로 방출된다고 가정하였다. 이에 따라 GAIL코드의 경수로 예상 방출량에 화학형태 방출 비율을 적용하여 CO<sub>2</sub> 5.4E-10 Bq/yr, C-유기물 2.16E-11 Bq/yr 로 방출된다고 가정하여 주민선량을 평가 하였으며 100% CO<sub>2</sub> 방출인 경우와 비교, 분석하였다. 분석결과는 Fig. 2에서 보는바와 같이 방출 화학형을 구분하여 평가할 경우 C-유기물에 의한 호흡선량은 증가하나 <sup>14</sup>CO<sub>2</sub>에 의한 섭취선량이 현저히 감소하므로 결과적으로 전체 주민선량은 감소된다. 따라서 PWR 원전에서 방출되는 <sup>14</sup>C의 방출 화학형을 분리 평가하는 것이 합리적인 것으로 판단하고 있다.

그러나 국내 경수로 원전의 <sup>14</sup>C 방출 화학형에 따른 보다 정확한 선량평가 방안은 향후 국내 PWR 원전의 발전소별 방출특성에 대한 상세한 조사가 이루어진 후에 최적 평가방안이 도출되어야 할 것으로 사료된다.

Table. 1 방출화학형에 따른 민감도 분석

C <sup>14</sup> 방출형태	경로	선량	비율	
CO <sub>2</sub> (G)	호흡	2.10E-5	0.011%	
	섭취	1.51E-1	84.10%	
CO (G)	호흡	2.70E-6	0.001%	
C-Organic	호흡	1.96E-3	1.09%	
C-Particulate	호흡	F	1.72E-4	0.096%
		M	6.73E-3	3.75%
		S	1.96E-2	10.91%

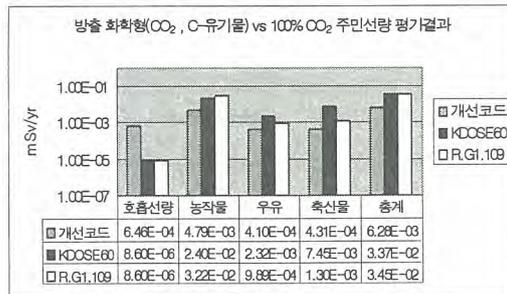


Fig. 2 방출화학형 구분 주민선량평가결과 비교

## 입자상 기체유출물 환경배출 방사능 평가결과에 대한 불확도 해석

### 정재학

한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 구성동 19번지

radwaste@kins.re.kr

환경으로 배출되는 방사능을 평가하는 목적은 관련 규제제한치 만족여부와 안전 여유도(Margin)를 확인하는데 있으며, 따라서 시설 운영자는 가능한 한 방사성물질의 환경배출량을 정확하게 평가할 필요가 있다. 방사성물질 환경배출량에 대한 정확한 평가를 위해서는 평가결과의 불확도(Uncertainty)에 대한 정량적인 평가를 통해 상대 불확도가 상대적으로 큰 부분을 개선하기 위한 노력이 필요하다.

미국 규제지침 Reg. Guide 1.21(1974), Reg. Guide 4.16(1985) 등에서는 원자력시설로부터 환경으로 배출된 방사성물질 수량을 보고할 때 계수 통계값(계수 오차의 표준편차)을 측정기록에 포함하고 총오차 또는 최대오차에 시료채취 및 측정작업 전반에 걸쳐 유발된 누적오차를 포함하도록 하고 있다. 한편 ANSI/HPS-N13.1(1999)에서는 기체유출물 시료채취 및 계측에 수반되는 계통오차 평가지침을 제시하고 있다.

이들 미국 규제지침과 산업기술기준에 제시된 관련 요건은 시료채취, 제조, 방사능 계측 등 환경배출 방사능 평가과정에 수반되는 전반적인 오차의 유발요인을 고려하여 평가결과에 내포된 총오차를 평가해야 한다는 것으로 정리할 수 있다. 그러나 실제 방사성물질의 환경배출량에 대한 참값을 알 수 없으므로 정확한 의미에서 “오차”를 평가하는 것은 불가능하며, 따라서 상기 문서에 제시된 요건은 평가결과에 대한 통계적인 “불확도”의 범위를 산출하라는 의미로 해석하는 것이 타당하다. 이에 따라 본 연구에서는 입자상 기체유출물 방사능 평가결과의 불확도를 평가하기 위한 일반화된 모델을 개발하여 가상적인 배출조건에 적용함으로써 단일 값으로 보고되고 있는 기체유출물 배출량의 불확도를 분석하고, 또한 개별 변수의 확률분포를 토대로 최종 배출방사능의 종합적인 확률분포를 시산하고자 한다. 이를 위하여 1995년 국제표준화기구(ISO: International Organization for Standardization)가 발간한 “측정에 수반되는 불확도 평가지침”에 따라 기체 방사성유출물에 함유된 입자상 핵종 방사능 평가결과의 불확도를 평가하였다.

국내 발전용원자로에서는 연속적으로 배출되는 기체폐기물에 대하여 입자시료를 연속적으로 채취하며, 1회/1주 주기로 포집매질을 수거하여 시료의 방사능을 분석하고 있다. 연속배출되는 기체폐기물에 함유된 입자상 핵종 방사능은 다음 수식을 통해 계산할 수 있다:

$$A_M = C_S \cdot V_M = A_S \cdot \frac{V_M}{V_S}$$

여기서,  $A_M$  = 환경으로 배출된 입자상 핵종의 방사능[Bq],  $C_S$  = 시료의 방사능 농도[Bq/m<sup>3</sup>],  $A_S$  = 시료의 방사능[Bq],  $V_S$  = 포집재를 통과한 시료의 체적[m<sup>3</sup>],  $V_M$  = 기체유출물의 배출체적[m<sup>3</sup>].

Table 1. 가상적인 기체유출물 배출조건

조건	변수	값(범위)	비고
시료의 총방사능 측정결과	$A_S$	$(1.0 \times 10^6) \pm (1.0 \times 10^5)$ Bq ( $\pm 2\sigma$ )	측정기록
시료채취장치 유량률	$f_S$	$(9.44 \times 10^{-4}) \pm (9.44 \times 10^{-5})$ m <sup>3</sup> /s	설계값
배기팬 유량률	$F_M$	$(1.84 \times 10^{11}) \pm (1.84 \times 10^{10})$ m <sup>3</sup> /s	설계값
기체폐기물 시료채취 기간	$T_S$	$(604,800) \pm (3,600)$ s	"
기체폐기물 배기 기간	$T_M$	"	"
시료채취장치 유량률의 불확도	-	$\pm 10\%$ (신뢰수준 : 95%)	교정기록
배기팬 유량률의 불확도	-	$\pm 10\%$	설계기준

위에서 언급한 불확도 평가방법론과 국내 발전용원자로의 일반적인 운영조건에 근거하여 Table 1과 같이 재구성한 가상적인 기체유출물 연속배출 조건을 기준으로 표준불확도와 합성표준불확도

를 평가하였다. Table 2는 수식 (2)에 포함된 개별 독립변수의 값, 불확도 및 상대표준불확도 평가결과를 보여주고 있으며, 이를 통해 가상적인 조건에서 전체 평가결과에 미치는 불확도 유발인자의 상대적인 영향은 포집된 기체시료 체적, 배출기체 체적, 시료 총방사능 순서임을 알 수 있다.

Table 2. 배출방사능 평가인자별 불확도 요소

변수	기호	값	불확도, $U(x_i)$	상대 표준불확도, $U(x_i)/x_i$
시료의 총방사능	$A_S$	$1.0 \times 10^{+6}$ Bq	$5.1 \times 10^{+4}$ Bq	$5.10 \times 10^{-2}$
포집된 기체시료 체적	$V_S$	$5.71 \times 10^{+2}$ m <sup>3</sup>	$3.52 \times 10^{+0}$ m <sup>3</sup>	$6.17 \times 10^{-2}$
배출기체 체적	$V_M$	$1.11 \times 10^{+7}$ m <sup>3</sup>	$6.45 \times 10^{+5}$ m <sup>3</sup>	$5.81 \times 10^{-2}$

가상적인 배출조건에서 입자상 핵종의 총배출방사능( $A_M$ )은 다음과 같다:

$$A_M = (1.0 \times 10^{+6} \text{ Bq}) \cdot \left( \frac{1.11 \times 10^{+7} \text{ m}^3}{5.71 \times 10^{+2} \text{ m}^3} \right) = 1.94 \times 10^{+10} \text{ Bq}$$

한편 Table 1에 제시된 가상적인 조건 하에서, 1주일 동안 연속배출된 기체유출물 시료채취 및 계측에 수반되는 합성표준불확도(Combined Standard Uncertainty)는 다음 수식으로 나타낼 수 있다:

$$\left( \frac{U_C(A_M)}{A_M} \right)^2 = \left( \frac{(1) \cdot U_C(A_S)}{A_S} \right)^2 + \left( \frac{(1) \cdot U_C(V_M)}{V_M} \right)^2 + \left( \frac{(-1) \cdot U_C(V_S)}{V_S} \right)^2$$

여기서,  $U_C(R)$  = 변수 R의 합성표준불확도.

따라서, 입자상 기체유출물 환경배출량의 합성표준불확도와 확장불확도는 각각 다음과 같다:

$$U_C(A_M) = (1.94 \times 10^{+10} \text{ Bq}) \cdot \sqrt{(5.1 \times 10^{-2})^2 + (6.17 \times 10^{-2})^2 + (5.81 \times 10^{-2})^2} = 1.92 \times 10^9 \text{ Bq}$$

$$U_E(A_M) = (2) \cdot (1.92 \times 10^9 \text{ Bq}) = 3.84 \times 10^9 \text{ Bq}$$

본 연구에서는 기체상 입자핵종 환경배출량 평가결과의 확률분포를 해석하기 위하여 상용 평가 도구 Crystal Ball™에 포함된 Monte Carlo 모사법을 적용하였다. Fig. 1은 동 확률분포 평가결과를 보여주고 있다.

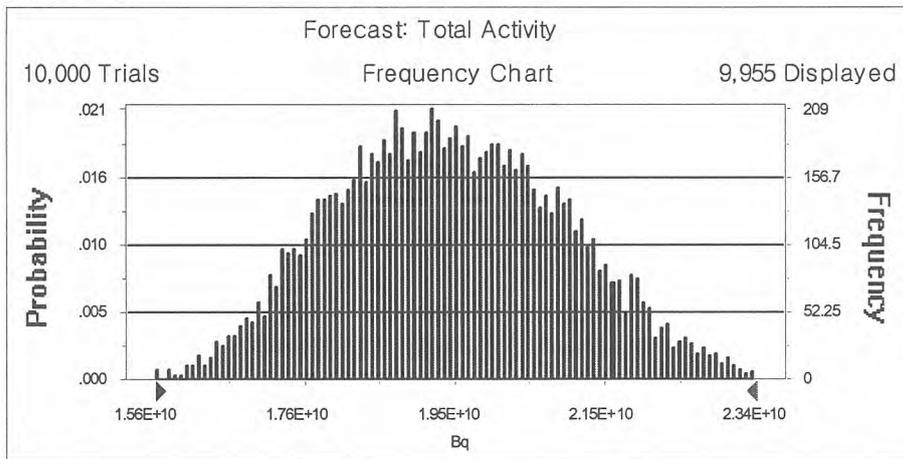


Fig. 1. 가상적인 조건에서 연속배출 기체유출물에 함유된 입자 방사능 평가결과의 확률분포

상기 평가결과는 환경배출 방사능을 단일 값으로만 고려해왔던 기존 관행에 개선의 필요성이 있음을 암시하고 있다. 또한 환경배출 방사능의 오차와 불확도에 대한 분석결과는 방사성유출물 관리의 품질제고 및 개별 원자력이용시설 환경배출 방사능의 제한치 대비 안전여유도에 대한 확률론적 평가 등 규제검증 목적으로도 활용될 수 있을 것이다.

## 부지환경종합관리시스템의 지리정보시스템 적용

김대중, 윤봉요, 박세문, 김창락

한국수력원자력(주) 원자력환경기술원, 대전시 유성구 덕진동 150번지

원자력 관계 시설의 환경정보와 부지정보의 종합적인 관리와 부지의 안전성평가 및 감시시스템을 통합적으로 관리하기 위하여 개발해 온 부지환경종합관리시스템 (SITES : Sites Information and Total Environmental Data Management System)을 지리정보와 연계하기 위하여 ESRI의 ArcGIS 8.3을 활용하였으며, 지리정보의 구현을 위하여 ArcSDE 8.3 엔진을 활용하여 SITES에 연계하였다.

GIS(Geography Information System)는 부지 및 환경정보에 대해 속성정보와 공간정보를 유기적으로 연계하고 타 단위시스템에 다양한 공간분석기법을 지원하는 시스템이다. GIS는 부지 및 환경 정보에 대해 속성정보와 공간정보를 유기적으로 연계하고 타 단위시스템에 다양한 공간분석기법을 지원하는 시스템이다. GIS를 연계한 SITES를 간단히 SITES Ver 1.5라 명명한다.

### 개발환경 및 GIS 연계방법

SITES Ver 1.5는 다중 사용자와 타 시스템과의 연계를 위해 3-tier 구조로 설계되었으며, 개발 환경은 표 1과 같다.

DBMS	Microsoft 사의 SQL Server 2000
프로그래밍 언어	Visual Studio.NET(C#), ESRI사의 MapObject 2.2
GIS 프로그램	ArcGIS 8.3
공간 엔진	ArcSDE 8.3

표 1. SITES Ver 1.5의 개발 환경

ArcSDE는 대용량의 공간데이터를 처리할 수 있는 엔진이며, 공간데이터에 대한 높은 성능, 트랜잭션 처리, 다른 사용자에 의한 동시성 제어 등을 고려할 때 SITES Ver 1.5에 적용하는 GIS 시스템 엔진으로서 적절한 기능을 가지고 있다.

공간데이터는 그림 1의 ①과 같이 클라이언트에서 MapObject API (Application Program Interface)를 사용하여 공간엔진인 ArcSDE를 통해 RDBMS인 MS-SQL Server에 저장되고 사용자 질의 결과를 DBMS (Database Management)에서 가져와 클라이언트에 반환한다. 그리고, 공간 데이터와 연관된 속성데이터는 DBMS에 직접 저장되거나 질의가 수행된다.(그림 1의 ②)

### GIS 구현

본 연구에서 지형도 연계를 위한 공간 데이터의 선정은 국가지리정보체계 (NGIS :National Geography Information System)의 기본지리정보를 근거로 하여 원시 데이터에서 ArcGIS를 이용하여 9개의 공통 공간 데이터 (행정경계, 등고선, 건물, 도로, 하천, 저수지, 행정구역, 지역명, 전국 지도)를 추출하였고 기능으로는 전체보기, 확대, 축소, 이동, 속성, Bmp 형식의 이미지를 제공하는 사진기능 등을 구현하였다.

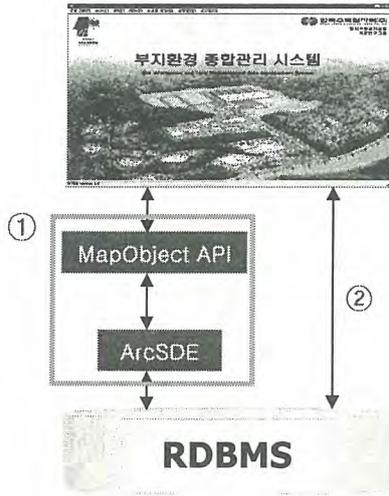


그림 1. SITES Ver 1.5의 GIS 시스템 구성도

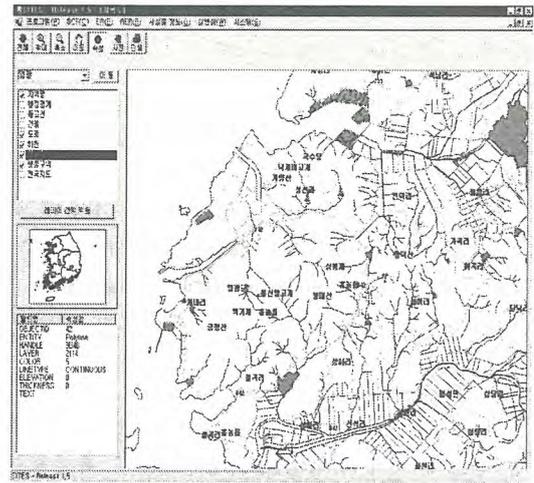


그림 2. SITES Ver 1.5의 지리정보 구현

또한, 지질도와 연계한 지질정보는 암상 분포에 따른 다양한 색상을 바탕으로 암상의 연대, 암석명 등의 속성정보를 포함하며, 지형도에서 지원되는 기능들을 구현하였다.

지리정보시스템 도입에 따른 기대효과로는 관련 환경정보 및 부지정보의 시각화 그리고 정보의 신속한 분석을 지원하여 SITES의 활용성을 높여줄 것이다. 향후 연구로는 SITES Ver 1.5에 추가 자료 입력 시 품질보증 확보와 다양한 주제도를 DB에 반영해야하고, 타 분석프로그램과의 연계를 위해 다양한 분석 결과가 공간정보와 연계하도록 설계가 진행될 예정이다.

**감사의글**

본 연구는 과학기술부에서 시행하는 국가지정연구실(National Research Laboratory) 사업의 일환으로 수행되었다.

**참고문헌**

1. 박세문, 이찬구, 김창락, 윤운상, 이창원, 문지용, '부지 및 환경정보관리를 위한 데이터베이스 관리자 모듈개발', 2004년도 대한지질공학회 학술발표회 논문집, pp. 45-50, 4월, 2004.

## Development of Metal Catalyst Impregnation Technology for Membrane-based Oxygen Removal System

Mun-Soo Kim, Doo-Ho Lee, Duk-Won Kang

Korea Electric Power Research Institute, 103-16 Munji-dong Yuseong-gu Daejeon, 305-380, Korea,

[nikollao@dgu.ac.kr](mailto:nikollao@dgu.ac.kr)

### 1. INTRODUCTION

Dissolved oxygen(DO) is a primary cause of PWSCC and its content in reactor coolant system in NPPs has been strictly controlled by various DO removal methods. There are several removal methods of DO, such as vacuum degasification, thermal deaeration, and reductive removal by oxygen scavengers. Although the operation principles of vacuum degasification and thermal deaeration are simple, these methods require a lot of energy for operation and show lower efficiency. And these methods have a few handicaps such as temperature, pH, toxicity, high cost of installation and so on. For the purpose of developing the best method for DO removal from make-up water storage tank, it is necessary to overcome the disadvantages of hydrazine treatment. From this point of view, membrane-based oxygen removal system (MORS) has many advantages than other methods for example, friendly environmental process, versatility of operation conditions with high temperature and low pressure, small space, low cost, etc. Recently de-gassing membrane is widely used in power plant's feed water system for DO removal. De-gassing membrane has some advantages; it removes other dissolved gases such as CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, as well as O<sub>2</sub>, and is more economical than Catalytic resin-based Oxygen Removal System. In this study, to obtain better efficiency of MORS, we modified the polypropylene (PP) hollow fiber membrane by plasma treatment and ion beam irradiation supported platinum(Pt), palladium(Pd) as metal catalyst on the surface of the membrane.

### 2. EXPERIMENTAL

#### *1) Metal Catalyst Impregnation through Ion Beam Treatment*

Ion Beam Treatment is a method where ion sources of inert gases such as Ar, Kr, Xe that are the source of Kaufman in reforming the object material's surface, and in this study, the hydrogen atoms that are present in the PP's surface were hit by ion source thereby activating the surface and later the Pt metal was sputtered onto the surface. Ar ion source was used in this process, and the size of the Pt target was 6 inches in diameter and 0.5mm in thickness. Fig. 1 illustrates the mechanism of the reaction.

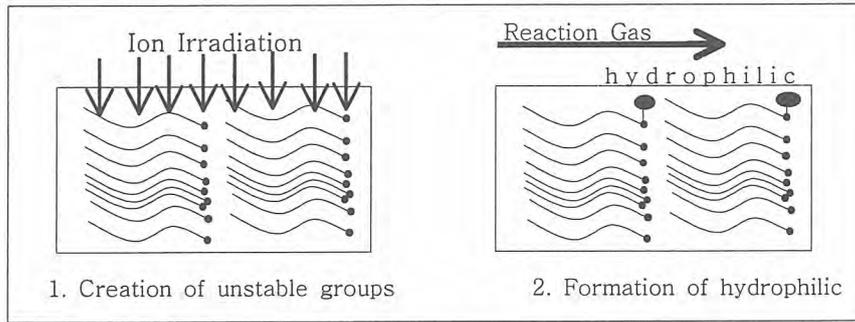


Fig. 1 Activation Mechanism by Ion Beam Treatment

### 2) Metal Catalyst Impregnation through Plasma Treatment

In the Impregnation method of metal catalyst through plasma treatment, the surface is activated by producing radicals on the plasma discharge and here the metal catalysts are impregnated. Plasma Treatment that are used In this study is dielectric barrier discharge (DBD) of the atmospheric pressure. Silicon, rubber, and glasses are used as a dielectric barriers. To increase the effect of surface treatment, air, argon and helium were used as ambient gas. Fig. 2 illustrates the outline schematics of the plasma treatment

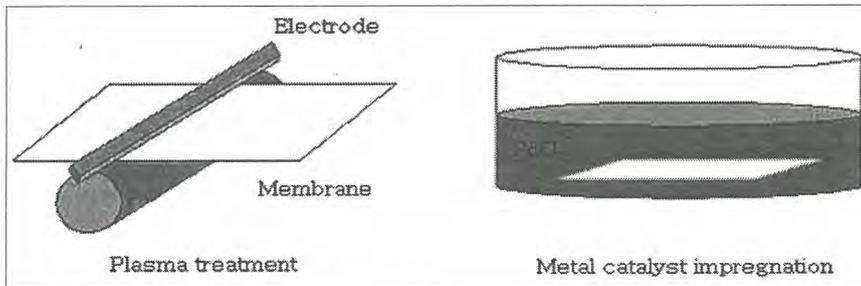


Fig. 2 Outline schematics of metal catalyst impregnation through plasma treatment

### 3. CONCLUSION

PP membrane's surface was treated with the Ion Beam and Plasma Treatment and then the metal catalyst was impregnated on the surface. Those that were not impregnated underwent thermo analysis and tensile strength test with the impregnated PP membrane. And to confirm the shape and result of the metal catalyst impregnation, SEM was used to investigate the surface and the section. By examining each results, in both treatments, there were no changes in the PP membrane's thermal characters, however, there were slight deteriorations in the mechanical characters. In both the treatment, metal catalysts were successfully impregnated from the surface of the PP membrane.

## 방사성폐기물 등의 방사능 측정시 불확도인자 적용방법에 따른 합성불확도 평가

김태욱, 김정덕, 윤철환, 이병두

한수원(주) 원자력환경기술원, 대전광역시 유성구 덕진동 150

방사성폐기물 등 방사성시료의 방사능을 측정하기 위해서는 동일한 형태의 표준선원을 이용하여 해당 검출기를 교정하고 이 교정 결과를 이용하여 시료의 방사능을 측정하여야 한다. 이때 측정결과의 불확도는 해당 검출기 교정 과정과 이를 이용한 방사능 측정 과정에 영향을 받게 된다. 검출기 교정의 불확도에 영향을 미치는 요인에는 표준선원, 스펙트럼 피크면적, 불감시간 보정, 표준선원과 검출기 사이의 기하학적 변화, 방사능 붕괴보정, 검출 효율, 감마선 방출확률 등의 불확도가 있으며, 방사능 측정의 불확도에 영향을 미치는 요인에는 교정 결과, 방사능붕괴 보정, 스펙트럼 피크면적, 감마선 방출확률, 불감시간 보정, 표준선원과 검출기 사이의 기하학적 변화, 방사능 환산에 의한 보정 등의 불확도가 있다. 그러나 교정기관이 아닌 곳에서는 시간과 비용이 많이 소모되어 방사성시료의 방사능 측정시 이러한 불확도를 모두 반영하기가 어려운 실정이다. 본 연구에서는 점 선원과 원통형 방사성시료의 방사능 측정시 불확도 인자 적용 방법에 따른 합성불확도를 계산하고 이를 주요 불확도 인자를 모두 적용한 결과와 비교하여 향후 방사성시료의 방사능 측정시 불확도 산정에 참고가 될 수 있도록 하였다.

표준선원을 이용한 검출기 교정시 불확도에 영향을 미치는 가장 큰 요인은 대부분 표준선원의 불확도이다. 점선원 형태의 표준선원을 검출기에서 25cm 이격시켜 순 피크면적이 1만 카운트 이상일 때 불확도를 계산해본 결과 표준선원의 불확도가 1.3~2.5로 변함에 따라 합성표준불확도는 1.8~2.8%로 변하는 것으로 나타났다. 감마선 표준물질의 최대불확도인 2.35%를 적용할 경우에는 합성표준불확도가 2.67%로 나타났으며, 방사선 붕괴보정 불확도를 제외할 경우 2.67%, 불감시간 불확도까지 제외할 경우 2.65%, 기하학적인 불확도까지 제외할 경우는 2.49%로 나타났다. 이는 모든 불확도를 고려했을 때의 93%에 해당되어, 이 경우 7%의 불확도가 증가되어야 함을 알 수 있었다.

방사성용액을 1리터 원통형 용기에 담아 10cm 떨어뜨려 1시간 측정했을 경우에 합성표준불확도는 1.6 kBq의 핵종의 경우가 3.16%, 3.7 kBq의 핵종의 경우가 2.98%, 4.0 kBq의 핵종의 경우가 3.06%, 5 kBq의 핵종의 경우가 2.99%이었다. 핵종의 방사능 및 측정시간에 따라 합성표준불확도가 변하기는 하지만, 표준선원의 불확도 다음으로 합성표준불확도에 크게 영향을 미치는 요인은 스펙트럼 피크면적의 불확도였다. 이 경우 피크면적의 불확도와 효율보정 불확도를 제외한 다른 요인의 불확도를 고려하지 않았을 경우 합성표준불확도는 2.81%로 이는 모든 불확도를 고려했을 때의 94%에 해당하는 수준이며, 이 경우 6%의 불확도가 증가되어야 함을 알 수 있었다.

다른 방사성폐기물 등의 경우에도 방사성시료의 방사능을 측정할 때 전체 불확도 요인을 고려한 합성불확도를 계산하여 현재 산정하고 있는 측정불확도 값과 비교하면 그 값의 용인 가능 여부를 판단할 수 있을 것으로 생각한다.



푸른 하늘을 지키는 에너지가 있습니다



## 친환경 에너지 브랜드

우리가 쓰는 전기의 40%를 만드는  
한국수력원자력 -

병원, 원자력발전소, 산업시설에서 발생하는  
원전수거물관리까지 책임지는  
환경을 먼저 생각하는 기업입니다

친환경 에너지 브랜드



**한국수력원자력주**

# Korean Radioactive Waste Society



대전서 우성구 덕진동 150번지 원자력 연구소 정보과학동 2층 205호  
TEL : ++82-42-861-585 FAX : ++82-42-861-5852  
E-mail : krs@kaeri.re.kr http://www.krws.or.kr

