

Abstracts of Proceedings of the
Korean Radioactive Waste Society
Autumn 2007

한국방사성폐기물학회 학술논문요약집

— 2007년 가을 —

일시 : 2007. 11. 15~16(목~금)

장소 : 부산 노보텔 엠버서더 호텔

후원 : 삼성물산(주)



사단
법인 **한국방사성폐기물학회**

목 차

제1분과 : 방사성폐기물 정책 및 제염해체(Oral)

좌장 : 김경덕 · 정경환

09:00	금속 표면에 대한 광융발 제염 티당성 비교 연구	21
	원휘준 · 정철진 · 문제권 · 정중현 [한국원자력연구원]	
09:20	방사성으로 오염된 해체 콘크리트 폐기물의 입도별 분리 및 분배 특성	23
	민병연 · 박정우 · 최왕규 · 오원진 · 정중현 [한국원자력연구원]	
09:40	성광체와 광섬유를 이용한 오염도 원격측정용 phoswich 검출기 개발	25
	서범경 · 박찬희 · 이근우 · 이동규 · 정중현 [한국원자력연구원]	
10:00	유한요소법과 무요소법을 이용한 극저온 절단 시뮬레이션	27
	김성균 · 이동규 · 정중현 [한국원자력연구원]	
10:40	KRR-2 제염 · 해체에서 발생된 방사성 고체폐기물 분류에 따른 고찰	29
	정경환 · 홍상범 · 박승국 · 이기원 · 박진호 · 정운수 [한국원자력연구원]	
11:00	우리나라 사용후핵연료 공문화 현황 및 전망	31
	황용수 · 황주호 · 김연옥 [한국원자력연구원]	
11:20	2007 Status of Uranium Conversion Plant Decommissioning	33
	D. S Hwang, K. I. Lee, Y.D. Choi, S.T. Hwang, J. H. Park, U.S. Jung [KAERI]	
11:40	후행 핵연료주기 경제성 평가 사례 분석	35
	김형준 · 조천형 · 이경구 [한수원(주)원자력발전기술원]	

제1분과 : 방사성폐기물 정책 및 제염해체 (Poster)

P01A01	UV/TiO ₂ 계에 의한 난분해성 유기물의 분해 비교 연구	39
	정철진 · 원휘준 · 문제권 · 정중현 [한국원자력연구원]	
	김진원 [㈜전영 기술연구소]	
	김위수 [일진방사선엔지니어링]	
P01A02	반응성 플라스마를 이용한 금속코발트의 표면 식각 반응 연구	41
	전상환 · 박동민 · 진동식 · 김용수 [한양대학교]	
	원휘준 · 문제권 · 정중현 [한국원자력연구원]	

P01A03	용존산소 제거시 금속촉매 담지 탈기모듈의 최적 효율을 위한 촉매환원공정 연구	43
	김문수 · 조강욱 · 강상희 [한수원(주)자력발전기술원]	
P01A04	Agglomeration을 이용한 미세토양의 Co 및 Cs 용출제염에 관한 기초연구	44
	이정준 · 김계남 · 정윤희 · 문제권 · 정종현 [한국원자력연구원]	
P01A05	CO ₂ Pellet을 이용한 원자로 상부헤드 제염 방안 연구	46
	김병래 · 박근택 · 김병표 [고려점사(주)]	
P01A06	에폭시 수지를 이용한 방사선 측정 및 검출 신호 전송용 센서 제조에 대한 연구	48
	박찬희 · 서범경 · 이근우 · 이동규 · 정종현 [한국원자력연구원]	
P01A07	유화중합에 의한 알파 오염도 검출 소재 제조에 관한 연구	50
	황호상 · 최승락 · 이근우 · 서범경 · 정종현 [한국원자력연구원]	
P01A08	원자력시설 오염표면의 핵종제거용 고분자 에멀전의 제조 및 핵종 포집 특성	52
	최승락 · 황호상 · 이근우 · 서범경 · 정종현 [한국원자력연구원]	
P01A09	국내 D-UF6 재고 및 향후 처리 개념	53
	최윤동 · 이규일 · 황성태 · 황두성 · 정운수 [한국원자력연구원]	
P01A10	Chemical Decontamination with Ultrasonic of Dismantled Metal Waste.....	55
	D. S Hwang, K. I. Lee, Y. D. Choi, U. S. Jung [KAERI]	
	H. W. Seo [HPS]	
P01A11	연구로 2호기 차폐콘크리트의 방사능재고량 평가 및 상관관계 도출	57
	홍상범 · 정경환 · 강문자 · 이기원 · 박진호 · 정운수 [한국원자력연구원]	
P01A12	The status of decommissioning activities of the KRR-1 & 2	59
	Ki-Won Lee, Sang-Bum Hong, Jin-Ho Park, Gyeong-Hwan Jeong, Un-soo Chung [KAERI]	
P01A13	영국사례분석을 통한 사용후연료 공론화 방안을 위한 일반국민 및 이해당사자 참여 방안 모색	61
	진동식 · 박동민 · 김주성 · 김용수 [한양대학교]	
P01A14	Long-term Projection of Spent Fuel Arising in Korea.....	63
	Chun-Hyung Cho, Hyung Joon Kim, Kyung-Ku Lee [NETEC]	
P01A15	사용후핵연료의 경제적 가치분석	65
	고원일 · 권은하 · 송대용 · 장홍래 · 정창준 · 윤지섭 [한국원자력연구원]	

P01A16	Experiences on the Expansion of Spent Fuel Storage Capacity at PWR and CANDU plants in Korea.....	67
	Hyeong-Joon Yun, Byung-Sik Lee [KOPEC] Sang-Bok Kim [KHNP]	
P01A17	사용후핵연료 처리공정 기술대안 분석	69
	장홍래 · 서중석 · 고원일 [한국원자력연구원]	
P01A18	사용후핵연료 처리 기술의 종합 평가: 해석적 계층과정(AHP) 기법 활용	71
	김성호 [한국원자력연구원] 박원재 [한국원자력안전기술원]	
P01A19	Review of Optimization Strategies with respect to Technical Issues for a Long Term Spent Fuel Storage	73
	Seung Woo Lee and Jong Won Choi [KAERI]	
P01A20	후행 핵연료주기 시나리오 평가를 위한 AHP 적용 연구	75
	김형준 · 조천형 · 이경구 [한수원(주)원자력발전기술원]	
P01A21	The Prospects of N. Korean Nuclear Issues after 2.13 Agreement	77
	In Jin Song, Dong Keuk Park, Young Sung Choi [KINS] Seong Ho Kim [KAERI]	

제2-1분과 : 방사성폐기물 처리 (Oral)

좌장 : 한선호 · 김홍태

09:00	Study of tritium (^3H) speciation in a reactor bioshield concrete	81
	Dae Ji Kim, Phillip E Warwick, Ian W Croudace, Jung-Suk Oh [Univ. of Southampton]	
09:20	초임계 이산화탄소와 TBOD를 이용한 토양으로부터 우라늄 추출 분리	83
	성진현 · 김정수 · 박광현 · 김홍두 · 김학원 [경희대학교] 김계남 · 문제권 [한국원자력연구원]	
09:40	방사성 핵종(코발트, 스트론튬)의 경쟁 흡착 특성 평가	85
	강정찬 · 이영채 · 권미경 · 신원식 · 최상준 [경북대학교]	
10:00	산소분산법에 의한 공융염폐기물내 희토류염화물의 산화시 희토류산화생성물의 특성	87
	은희철 [과학기술연합대학원대학교] 양희철 · 조용준 · 김응호 · 김인태 [한국원자력연구원]	

10:40	액체성광계수장치를 이용한 RI폐기물 내 ^{32}P 분석	89
	강상훈 · 한선호 · 손세철 · 지광용 [한국원자력연구원]	
	최한보 [한수원(주)원자력발전기술원]	
11:00	저장중인 HEPA 필터 폐기물의 처리절차	91
	지영용 · 홍대석 · 강일식 · 손종식 [한국원자력연구원]	
11:20	동위원소생산시설 활성탄필터 하우징 교체 작업 관리와 방사성폐기물 처리	93
	김민진 · 윤동원 · 유권모 · 장경덕 · 김창경 · 임인철 [한국원자력연구원]	
11:40	연구로 차폐체 콘크리트 절단시 냉각수 재사용을 위한 슬러지 배출장치에 관한 연구	95
	이기원 · 박승국 · 홍상범 · 박진호 · 정운수 [한국원자력연구원]	

제2-1분과 : 방사성폐기물 처리 (Poster)

P02A01	폐유기물 중 TBP 및 우라늄 함량 분석을 위한 시료 전처리	99
	최광순 · 표형열 · 김시내 · 김현정 · 한선호 [한국원자력연구원]	
P02A02	플라스틱 시료 표면에 부착된 방사성물질 분석	101
	이승식 · 표형열 · 최광순 · 지광용 [한국원자력연구원]	
	배영빈 [㈜엑트]	
P02A03	RI 폐기물 핵종분석을 위한 최소검출방사능농도 산출	103
	송병철 · 김영복 · 안홍주 · 손세철 · 지광용 [한국원자력연구원]	
P02A04	LSC를 이용한 ^3H 방사능 측정 비교속련도 시험	105
	김영복 · 송병철 · 이홍래 · 한선호 · 손세철 [한국원자력연구원]	
P02A05	원자력발전소에서 발생한 농축폐액분말중 ^3H , ^{14}C 분석	107
	서승욱 · 이홍래 · 박순달 · 한선호 · 지광용 [한국원자력연구원]	
P02A06	진공조건하 요오드화세슘(CsI)의 포집특성	109
	김지현 · 신진명 · 박장진 · 송기찬 [한국원자력연구원]	
P02A07	진공조건하 탄산세슘의 포집특성	111
	신진명 · 박장진 · 김지현 · 송기찬 [한국원자력연구원]	
P02A08	열처리 분위기에 따른 귀금속계 핵분열생성물의 증기압 계산	113
	이재원 · 양문상 · 이영순 · 문제선 · 박장진 [한국원자력연구원]	
P02A09	휘발성 산화공정의 배기체 포집장치 설계개념	115
	신진명 · 박장진 · 송기찬 [한국원자력연구원]	

P02A10	질산 및 Ce(IV)에 의한 방사성 오염금속의 제염	117
	안선진 · 홍대석 · 지영용 · 배상민 · 손종식 [한국원자력연구원]	
P02A11	제염폐액 중 잔류 유기물질 분해 실증시험 수행	119
	김위수 · 최호균 · 이수홍 [일진방사선엔지니어링(주)]	
	정중현 · 원휘준 [한국원자력연구원]	
P02A12	염폐기물을 석회유리로 고화한 고화체의 침출특성	121
	김환영 · 박환서 · 김정국 · 김인태 [한국원자력연구원]	
P02A13	Removal of Eutectic Salt from Precipitate by Vacuum distillation	123
	Hee-Chul Yang, Yung-Zun Cho and In-Tae Kim [KAERI]	
	Hee-Chul Eun [Univ. of Science and Technology]	
P02A14	LiCl염폐기물내 존재하는 I / II 족 핵종분리 방법	125
	조용준 · 양희철 · 은희철 · 김용호 · 김인태 [한국원자력연구원]	
P02A15	SiO ₂ -Al ₂ O ₃ -P ₂ O ₅ (SAP)을 이용한 폐용융염의 안정화/고형화	127
	박환서 · 김인태 · 김환영 · 안병길 · 김준형 [한국원자력연구원]	
P02A16	희토류 산화물의 고화연구	129
	안병길 · 박환서 · 김환영 · 김인태 [한국원자력연구원]	
P02A17	LiCl 용융염계로부터 Cs 및 Sr 핵종제거	131
	손미숙 · 박환서 · 강소림 · 김인태 [한국원자력연구원]	
P02A18	LiCl-KCl 공용융염계에서 Cs 및 Sr 핵종제거	133
	강소림 · 박환서 · 손미숙 · 김인태 [한국원자력연구원]	
P02A19	브라운가스를 이용한 염폐기물의 탈염소화	135
	김준형 · 김인태 · 김환영 · 박환서 [한국원자력연구원]	
	현장수 [이앤이(주)]	
P02A20	중 · 저준위 방사성 폐기물 유리화설비의 배기체 처리계통 특성	137
	지평국 · 양경화 · 신상운 [한수원(주)원자력발전기술원]	
P02A21	유리화 실증시험을 통한 Pt, Ir 열전대보호관 내구성 평가	139
	신상운 · 양경화 · 박병철 [한수원(주)원자력발전기술원]	
P02A22	방사성 유리고화체의 pH 및 온도에 대한 침출특성	141
	김인태 · 박환서 · 조용준 [한국원자력연구원]	
	김천우 · 황태원 [한수원(주)원자력발전기술원]	
P02A23	금속재질 고온필터 여재의 표면층 생성 및 분진 여과특성 평가	143
	황태원 · 조강욱 · 박승철 [한수원(주)원자력발전기술원]	

P02A24	방사성 유기폐기물의 전기산화분해장치 성능평가	145
	곽경길 · 유영걸 · 김기홍 [한국원자력연구원]	
P02A25	방사성고체폐기물 압축감용처리기 개발	147
	강일식 · 지영용 · 김태국 · 홍대석 · 손종식 [한국원자력연구원]	
P02A26	조사재시험시설 Charcoal 필터뱅크 보완 및 누설시험	149
	백상열 · 김기하 · 송용섭 · 안상복 · 류우석 [한국원자력연구원]	
P02A27	활성탄필터의 누설시험 불확도 추정	151
	이형권 · 황용화 · 서항석 · 권형문 · 전용범 · 엄성호 [한국원자력연구원]	
P02A28	조사후시험시설의 환기계통 설계기준	153
	황용화 · 이형권 · 엄성호 · 김길수 · 서항석 · 전용범 [한국원자력연구원]	

제2-2분과 : 방사성폐기물 처분 (Oral)

좌장 : 이연명 · 정찬우

09:00	A Nuclide Release Behavior due to a Varying Thickness of an EDZ in the Near-field of an HLW Repository	157
	Youn-Myoung Lee, Yong-Soo Hwang [KAERI]	
09:20	방사성폐기물 드럼내 핵종재고량 분석을 위한 각국의 척도인자 적용현황 및 국내 규제방안	159
	전제근 · 송민철 · 정재학 · 최경우 · 김홍태 [한국원자력안전기술원]	
09:40	실리카 계면에 대한 플루토늄(VI) 흡착 측정	162
	박경균 · 조혜륜 · 정의창 · 김원호 · 지광용 [한국원자력연구원]	
10:00	위험도기반 처분안전성평가를 위한 복합피폭상황 통합해석 개념모델	164
	정찬우 · 서은진 · 안상면 · 박진용 [한국원자력안전기술원]	
10:40	UTEVA-KPA를 이용한 토양 및 유리시료 중 우라늄 분석	166
	박예은 · 표형열 · 김현정 · 손세철 [한국원자력연구원]	
11:00	침출지수를 이용한 안전성 평가	168
	이성호 · 황용수 · 한지웅 · 권선주 [한국원자력연구원]	
11:20	사용후핵연료 건식공정폐기물에 대한 처분 안전성평가	170
	황용수 · 정미선 · 이성호 · 이연명 · 권선주 [한국원자력연구원]	

11:40	중 · 저준위 방사성폐기물 처분시설 운영중 사고시 성능목표치 설정	171
	윤정현 · 주민수 · 박주완 · 김창락 [한수원(주)원자력발전기술원]	

제2-2분과 : 방사성폐기물처분 (Poster)

P02B01	Preliminary Investigation of Disposal Characteristics of DAW from NPPs	175
	S. J. Maeng, Y. E. Lee, T. W. Hwang, K. S. Choi [KHNP]	
P02B02	동굴처분시설 콘크리트 구조물의 열화인자 및 모델 평가	177
	박주완 · 정해룡 · 김창락 [한수원(주)원자력발전기술원]	
P02B03	Disposal of the Radioactive Waste in HANARO for 11 Years	179
	H. Y. Choi, M. Lee, S. J. Kim, H. C. shin, H. W. Kim, T. H. Kim [KAERI]	
P02B04	자연구배 추적자 시험에 의한 수리인자 해석	181
	이은용 · 조성일 [한수원(주)원자력발전기술원]	
	이영동 [지오텍컨설팅타트(주)]	
P02B05	고준위 방사성폐기물의 일반적인 지질학/수리지질학적 처분 개념	183
	박경우 · 이민수 · 최종원 · 배대석 · 고용권 · 김건영 · 김천수 [한국원자력연구원]	
P02B06	반응성용질이동 모델링을 통한 시멘트의 변질 과정과 우리농의 용해도 모사	185
	최병영 · 유시원 · 안상원 · 장광수 · 신선호 · 고용권 [한국원자력연구원]	
P02B07	방사성폐기물처분의 안전성 평가를 위한 수리지질 인자의 민감도 분석 연구	187
	박경우 · 김건영 · 지성훈 · 김경수 · 유시원 [한국원자력연구원]	
P02B08	정상상태에서 Sulfid 물질 이동에 의한 구리용기의 수명 예측	189
	권선주 · 황용수 [한국원자력연구원]	
P02B09	방사성폐기물 처분장에서 기체 발생과 이동 평가	191
	황용수 · 권선주 · 정미선 [한국원자력연구원]	
P02B10	Transient Diffusion of Tracers in Aqueous Phases through Crystalline Rocks : Derivation of an Analytical solution and its Application.....	192
	Chung-Kyun PARK, Min-Hoon Baik [KAERI]	
P02B11	심지층 처분환경에서의 CANDU 사용후핵연료 처분용기 열/구조 해석	194
	이종열 · 조동진 · 최희주 · 최종원 [한국원자력연구원]	
	이 양 [SK건설]	
P02B12	한국원자력연구원 지하처분연구시설(KURT)의 암석, 광물, 지하수 지화학 특성	196
	김건영 · 고용권 · 최종원 · 최병영 · 신선호 [한국원자력연구원]	

P02B13	화강암의 U(VI) 수착에 대한 열역학적 수착모델의 적용.....198 이재광 · 백민훈 · 이승엽 · 김승수 · 박정균 [한국원자력연구원]
P02B14	Application of comprehensive sensitivity analysis method to HLW disposal concept in South Korea 200 Takeshi Ebashi [JAEA] Yong-Soo Hwang [KAERI]
P02B15	PID 방식을 이용한 시나리오 구현방안에 대한 접근 202 이성호 · 황용수 [한국원자력연구원]
P02B16	지하처분연구시설 주변의 암반 손상대 발생 연구 204 권상기 · 박정화 · 조원진 [한국원자력연구원]
P02B17	"KENTEX" Operation and Experimental Results on the Thermal-Hydro- Mechanical Behaviors 206 Jae-Owan Lee, W. J. Cho [KAERI]
P02B18	가상 처분장 부지에서의 지하수 유동 해석 208 정미선 · 황용수 · 이연명 [한국원자력연구원]
P02B19	회수성을 고려한 CANDU 사용후핵연료 처분터널에 대한 열해석 210 차정훈 · 김상녕 [경희대학교] 이종열 · 최희주 [한국원자력연구원]
P02B20	지하처분 시스템의 장기적 변화 모델 고찰 212 이민수 · 최희주 · 이종열 · 정종태 · 김성기 · 조동건 · 최종원 [한국원자력연구원]
P02B21	A-CANDU 처분용기 제조원가 분석 214 김성기 · 이민수 · 최희주 · 최종원 [한국원자력연구원]
P02B22	Cyprus를 활용한 단일 정보 관리 시스템 개발 216 한지웅 · 황용수 · 이성호 [한국원자력연구원] 명노훈 · 김종현 · 김윤재 [고려대학교]
P02B23	고준위폐기물 처분장의 운영 안전성 평가 방법론 218 정종태 · 최희주 · 최종원 [한국원자력연구원]

제3분과 : 사용후핵연료 및 핵연료주기 (Oral)

좌장 : 고원일 · 김준형

09:00	우리나라 사용후핵연료 공문화 방법론 223 김연옥 · 황용수 [한국원자력연구원] 황주호 [경희대학교]

09:20	처분측면에서 본 순환형 핵연료주기의 유용성 분석	225
	고원일 · 권은하 · 송대용 · 정창준 · 장홍래 · 윤지섭 [한국원자력연구원]	
09:40	DANESS 코드를 이용한 직접처분 핵연료 주기 해석	227
	정창준 · 고원일 [한국원자력연구원]	
10:00	Pyroprocess를 위한 휘발성 산화공정 기술개발 현황	229
	박장진 · 이재원 · 신진명 · 박근일 · 송기찬 [한국원자력연구원]	
10:40	Optical Spectra of Several Lanthanide Ions in LiCl-KCl Eutectic Melt at 450°C.....	231
	Young Hwan Cho, Tack Jin Kim, Yong Jun Park, Kyu Seok Song, Kwang Yong Jee [KAERI]	
11:00	YSZ의 플라즈마 용사 기술을 이용한 흑연도가니와 우라늄과의 반응성	233
	조춘호 · 이윤상 · 김응수 · 이한수 [한국원자력연구원]	
11:20	탄산염용액에서 우라늄산화물 용해에 미치는 산화제 영향	235
	정동용 · 서희승 · 양한범 · 김광욱 [한국원자력연구원]	
11:40	사용후핵연료 건식재가공에 의한 표준물질 제조 절차 및 균질도 평가	237
	류호진 · 박근일 · 이정원 · 조광훈 · 이도연 · 이태훈 · 김호동 · 송기찬 [한국원자력연구원]	

제3분과 : 사용후핵연료 및 핵연료주기 (Poster)

P03A01	가압경수로 고연소도 사용후연료 피복관의 부식 측정	241
	오완호 · 이은표 · 서향석 · 김은가 · 민덕기 · 전용범 [한국원자력연구원]	
P03A02	핵연료봉내 방출 핵분열기체의 동위원소 분포 특성	243
	박순달 · 김정석 · 하영경 · 한선호 · 지광용 [한국원자력연구원]	
P03A03	DSC를 이용한 UO_2 핵연료의 산화유도시간 측정	245
	강권호 · 나상호 · 박창제 · 김영희 · 양명승 · 송기찬 [한국원자력연구원]	
P03A04	ACPF One Batch 사용후 핵연료 선원화 계산.....	247
	정창준 · 민덕기 · 박창제 · 서기석 [한국원자력연구원]	
P03A05	가압경수로형 사용후 핵연료봉 내압 및 핵분열 기체량 측정	249
	이형권 · 서향석 · 권형문 · 황용화 · 전용범 · 민덕기 [한국원자력연구원]	
P03A06	고연소 핵연료봉 밀도시편 채취장치 및 핵연료봉 Tube core drilling machine 개발	251
	서향석 · 이형권 · 전용범 · 황용화 [한국원자력연구원]	

P03A07	핫셀 운반용기 설계를 위한 단일재의 열전달 특성 평가	253
	이주찬 · 방경식 · 최우석 · 강희영 · 서기석 [한국원자력연구원]	
P03A08	고연소도 UO_2 사용후 핵연료의 Pellet-Clad Bonding Layer 미세조직 관찰 ...	255
	김대호 · 김선기 · 양용식 · 방제건 · 송근우 · 권형문 [한국원자력연구원]	
P03A09	고연소도 UO_2 사용후 핵연료의 고온(1700°C) 가열시험 특성	257
	김대호 · 김선기 · 양용식 · 방제건 · 송근우 · 권형문 [한국원자력연구원]	
P03A10	동위원소희석 질량분석법을 이용한 고연소 핵연료 중 지르코늄 동위원소 정량	259
	김정석 · 전영신 · 박순달 · 하영경 · 지광용 [한국원자력연구원]	
P03A11	건식 재가공 핵연료 제조를 위한 핫셀용 고온소결로 개발	261
	이정원 · 이도연 · 조광훈 · 이재원 · 류호진 · 박근일 [한국원자력연구원]	
P03A12	핵연료의 연소도에 따른 연료봉 및 소결체 길이 변화	263
	임성호 · 황용화 · 오완호 · 권형문 · 민덕기 · 전용범 · 류우석 [한국원자력연구원]	
P03A13	디스크형 시편 측정을 위한 감마 시준기	264
	박광준 · 주준식 · 신희성 · 강희영 · 김호동 [한국원자력연구원]	
P03A14	핵분열기체 Xe의 WDS 피크 보정	266
	권형문 · 서항석 · 이형권 · 양용식 · 장정남 · 주준식 · 전용범 [한국원자력연구원]	
P03A15	감마스캐닝에 의한 연소도 추정방법 검증 연구	269
	권형문 · 임성호 · 장정남 · 민덕기 · 전용범 [한국원자력연구원]	
P03A16	조사후 지르코늄 합금의 미세경도 측정	271
	장정남 · 권형문 · 서항석 · 전용범 [한국원자력연구원]	
P03A17	다목적 사용후핵연료집합체 해체장비 설계	273
	김길수 · 전용범 · 민덕기 · 이은표 · 서항석 · 권형문 · 이형권 황용화 · 양송열 · 손영준 · 오완호 [한국원자력연구원]	
P03A18	Designing Ni-base superalloys for an electrolytic reduction process of a spent nuclear fuel	275
	Jong-Hyeon Lee, Soo-Haeng Cho, Jeong-Gook Oh, Eung-Ho Kim [KAERI]	
P03A19	Development of a continuous high throughput electrorefiner for a spent metallic nuclear fuel	277
	J. H. Lee, K. H. Oh, Y. H. Kang, S. C. Hwang, H. S. Lee, E. H. Kim [KAERI]	
P03A20	전해환원기술의 응용: SiO_2 로부터 Si 금속 제조	279
	이수철 · 허진목 · 서중석 [한국원자력연구원]	

P03A21	Li ₂ O 및 산소가 미세 우라늄 금속분말의 용융에 미치는 영향 평가	280
	허진목 · 서중석 [한국원자력연구원]	
P03A22	고온 리튬용융염계에서 MCrAlY-ZrO ₂ -MgO 코팅층의 부식거동	281
	조수행 · 오정국 · 조해동 · 이종현 · 김응호 [한국원자력연구원]	
P03A23	전류밀도 및 교반에 따른 Zn 수지상의 전착거동 분석	283
	김시형 · 유영재 · 백승우 · 권상운 · 심준보 · 김광락 · 정홍석 · 안도희 [한국원자력연구원]	
P03A24	U ₃ O ₈ 분말의 고온 용융염 전해환원 반응에 관한 연구	285
	박병홍 · 이일우 · 서중석 [한국원자력연구원]	
P03A25	사용후핵연료 건식분말화 반응기 모사를 위한 모델 개발	286
	박병홍 · 서중석 [한국원자력연구원]	
P03A26	지르코늄 산화물의 고온 용융염 전해환원	287
	박병홍 · 이일우 · 서중석 [한국원자력연구원]	
P03A27	ACPF 금속전환공정 개선연구	288
	정원명 · 이호희 · 홍순석 · 서중석 · 김응호 [한국원자력연구원]	
P03A28	다성분 금속염의 용융염 전해분리 해석	289
	김광락 · 안도희 · 백승우 · 권상운 · 김시형 · 심준보 · 정홍석 · 김응호 [한국원자력연구원]	
P03A29	우라늄 용해용 다공질 세라믹도가니의 반응 특성 조사	291
	이윤상 · 이종현 · 조춘호 · 김응수 · 조동욱 · 박성빈 · 이한수 [한국원자력연구원]	
P03A30	U 전착물을 이용한 염증류 특성 시험	293
	조동욱 · 박성빈 · 조춘호 · 김응수 · 이윤상 · 이한수 · 김응호 [한국원자력연구원]	
P03A31	용융염이 포함된 우라늄 전착물의 염취발 및 염양곳 제조특성	295
	박성빈 · 조동욱 · 오규환 · 이종현 · 이윤상 · 황성찬 · 강영호 · 이한수 · 김응호 [한국원자력연구원]	
P03A32	UCl ₃ 제조장치 설계 제작 및 성능평가	297
	우문식 · 강희석 · 이한수 · 김응호 [한국원자력연구원]	
P03A33	Cd를 이용한 저비용의 우라늄염화물 제조특성 연구	298
	강희석 · 우문식 · 김응수 · 이윤상 · 이한수 [한국원자력연구원]	
P03A34	LiCl-KCl 공융염의 잔류 악티늄족 원소 회수방안 분석	300
	심준보 · 유영재 · 김시형 · 백승우 · 권상운 · 김광락 · 정홍석 · 김응호 · 안도희 [한국원자력연구원]	

P03A35	전해에 의한 LiCl-KCl 용융염중의 우라늄 회수	302
	권상운 · 유영재 · 김광락 · 심준보 · 백승우 · 김시형 · 정홍석 · 안도희 · 김응호 [한국원자력연구원]	
P03A36	공학규모 Pyroprocess 실증시설 예비 기본요건 분석	304
	유길성 · 정원명 · 구정희 · 조일제 · 국동학 · 권기찬 · 이원경 이은표 · 홍동희 · 윤지섭 · 박성원 [한국원자력연구원]	
P03A37	공기유량의 시간 변화에 따른 U_3O_8 타원임자에 대한 거동 특성 해석	305
	김영환 · 정재후 · 이효직 · 박병석 · 윤지섭 [한국원자력연구원]	
P03A38	모사 피복관을 이용한 탈피복 시험	307
	정재후 · 박병석 · 김영환 · 윤지섭 · 홍동희 · 황정식 [한국원자력연구원]	
P03A39	PYRO MOCK-UP 시설 구조적 안전성 해석.....	309
	권기찬 · 이은표 · 정원명 · 구정희 · 이원경 · 조일제 · 국동학 · 유길성 · 윤지섭 [한국원자력연구원]	
P03A40	그래픽 시뮬레이션을 통한 탈피복 장치의 유지 보수 검증	311
	김성현 · 박희성 · 최창환 · 이효직 · 정재후 · 박병석 · 윤지섭 [한국원자력연구원]	
P03A41	전산모사에 의한 중성자 카운터의 효율 평가	313
	주준식 · 박광준 · 신희성 · 강희영 · 김호동 [한국원자력연구원]	
P03A42	탄산용액 계를 사용하는 산화용해-침전 조합 기술에 의한 SF로부터 U의 분리공정 에서 탄산염의 전해적 회수/순환 기술 개발	315
	김광옥 · 김연화 · 김성민 · 임재관 · 이일희 [한국원자력연구원]	
P03A43	탄산염용액에서 우라늄산화물 용해	317
	서희승 · 정동용 · 김광옥 [한국원자력연구원]	
P03A44	탄산염 매질에서 Mo의 비산성 저온 용해특성 분석	320
	양한범 · 임재관 · 정동용 · 이일희 · 김광옥 [한국원자력연구원]	

제4분과 : 방사선 안전 및 환경 (Oral)

좌장 : 정근호 · 지함청

09:00	월성원전 삼중수소제거설비 운영후 기체 삼중수소 배출량 변화 분석	325
	신현근 · 서원선 · 지함청 [한수원(주)월성원자력본부]	
09:20	Optimization of auto-deposition for Po-210 in environmental sample	327
	Myung Ho Lee, Hye Ryun Cho, Kyoung Kyun Park, Kih Soo Joe, Won Ho Kim, Euo Chang Jung, Kwang Yong Jee [KAERI]	

09:40	액체섬광계수법을 이용한 지하수 중의 Tc-99 분석 방법	329
	정근호 · 조영현 · 강문자 · 이완로 · 김희령 · 최근식 · 이창우 [한국원자력연구원]	
10:00	Study on Guideline for Airborne Radioactive Effluents Monitoring-Centered Around ANSI N13.1-	331
	Wan-tae KIM, Seung-young JEONG, Je-keun CHON, Min-chul SONG [KINS]	
10:40	Structural Evaluation of IP-2 Packages for Low and Intermediate Level Radioactive Waste	334
	Sunghwan Chung, Seungho Lee [KHNP]	
	Kabsoon Kim [KNE&SC]	
	Kiseog Seo [KAERI]	
11:00	IP-2형 방사성폐기물 운반용기의 적충조건에서의 구조 안전성 평가	336
	남경오 · 정성환 · 최종락 · 이주찬 · 서기석 [한국원자력연구원]	
11:20	방사성폐기물 핵종분석 결과를 이용한 폐수지의 운반물등급 분류 방법	338
	김태욱 · 최기섭 · 강기두 [한수원(주)원자력발전기술원]	
11:40	연구원 내 토양 및 콘크리트 폐기물의 자체처분을 위한 선량평가	340
	홍대석 · 지영용 · 강일식 · 손종식 [한국원자력연구원]	

제4분과 : 방사선 안전 및 환경 (Poster)

P04A01	NPL 교차분석시료에서의 동시합성효율에 대한 평가	345
	이완로 · 박두원 · 정근호 · 김희령 · 조영현 · 강문자 · 최상도 · 박승임 · 박지연 최근식 · 이창우 [한국원자력연구원]	
P04A02	불활성기체 핵종분율측정 방법론	347
	김동균 · 김군열 · 장영대 · 신성규 [(주)한국원자력엔지니어링]	
P04A03	논토양에서 방사성 I와 Sr의 분배계수	349
	임광목 · 전 인 · 최용호 · 박두원 · 금동권 [한국원자력연구원]	
P04A04	영광원자력발전소 주변 해양시료에서 입도 및 우라늄 분포경향 평가	351
	염유선 · 김승평 · 한상준 [조선대학교]	
	홍성열 [한국수력원자력(주)]	
P04A05	인공신경망을 이용한 환경방사능자료의 결측값 처리	353
	정효준 · 한문희 · 황원태 · 김은한 [한국원자력연구원]	

P04A06	SMART 원자로 방사선비상기초구역 설정을 위한 소외선량 평가	355
	이재민 · 전종선 · 박상규 · 김태현 · 한병섭 [㈜에네시스]	
P04A07	국내 중 · 저준위방사성폐기물 관리현황에 대한 고찰	357
	우주희 [한국원자력안전기술원]	
P04A08	방사성폐기물 드럼 비파괴 검사를 위한 X-ray 장비 평가	359
	박종길 · 맹성준 · 황태원 [한수원(주)원자력발전기술원]	
P04A09	중 · 저준위 방사성폐기물 관리를 위한 검사시스템	361
	이창재 · 양민호 · 윤재웅 · 이상민 · 최영수 · 김준수 [테크윈네이버(주)]	
P04A10	처분우선순위 결정을 위한 DTC 방법을 사용한 중 · 저준위 드럼의 방사능 재고량 선행평가	363
	이상철 · 안민호 · 이윤희 · 이건재 [한국과학기술원]	
P04A11	방사성폐기물 소내 운송 및 선적시 작업자 피폭 평가	365
	이재민 · 전종선 · 김태현 · 한병섭 [㈜에네시스]	
P04A12	방사성폐기물 해상운송 경로별 위험도 평가	367
	이재민 · 전종선 · 김태현 · 박상규 · 한병섭 [㈜에네시스]	
P04A13	방사성폐기물 용기 낙하사고시 피폭 평가	369
	이재민 · 전종선 · 김태현 · 한병섭 [㈜에네시스]	
P04A14	길이와 폭의 비가 작고 중량이 큰 A형 운반용기 경사낙하해석	371
	김동학 · 이대기 · 이승호 [한수원(주)원자력발전기술원]	
P04A15	방사능 오염부지의 복원행위에 관한 조사연구	373
	황선태 · 신동관 [㈜텍시빌]	
P04A16	콘크리트 해체폐기물의 건축물 재활용에 따른 방사선영향 평가	375
	김계홍 · 오원진 · 정종현 · 최왕규 [한국원자력연구원]	
P04A17	Safeguards approach at HANARO	376
	Hyun-Sook Kim, Guk-Hoon Ahn [KAERI]	
P04A18	Safeguards approach for the nuclear waste at KAERI	378
	Hyun-Sook Kim [KAERI]	
P04A19	통합안전조치체제적응에 따른 핵물질계량관리에 대한 고찰	380
	김현숙 [한국원자력연구원]	
P04A20	방사성폐기물 처분전 관리 시나리오 개발 연구	382
	안민호 · 이건재 [한국과학기술원]	
	최경우 · 김성일 [한국원자력안전기술원]	

P04A21	방사성폐기물 운반용기 완충재의 재질 특성 평가	384
	남경오 · 이주찬 · 방경식 · 최우석 · 서기석 [한국원자력연구원]	
P04A22	사용후핵연료 수송비용 평가를 위한 선결 조건 결정	386
	최희주 · 차정훈 · 이종열 · 최종원 [한국원자력연구원]	
P04A23	ACPF 수송용기 임계계산 비교	388
	박창제 · 강희영 · 정창준 · 민덕기 · 이주찬 · 방경식 · 최우석 · 서기석 [한국원자력연구원]	
P04A24	최적의 물리적방호체제 구축을 위한 요건	390
	이성호 · 황용수 · 이병두 · 김현숙 [한국원자력연구원]	

제1분과

방사성폐기물 정책 및 제염해체 (Oral)

금속 표면에 대한 광용발 제염 타당성 비교 연구

원휘준, 정철진, 문제권, 정종현

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150-1)

nhiwon@kaeri.re.kr

1. 서론

방사능으로 오염된 금속표면으로부터 고착성 오염물질을 광용발 방법을 이용하여 제거하기 위한 연구가 수행되고 있다. 광용발 제염법은 레이저를 사용하는 방법으로 비교적 작업자가 접근하기 어려운 고 방사능 오염지점에 원격으로 적용할 수 있고, 제염효과가 우수할 뿐만 아니라, 2차 방사성 폐기물이 거의 발생하지 않는다는 장점이 있다. 방사능 오염 시설의 제염을 목표로 사용되고 있는 레이저로는 CO₂ 레이저, Eximer 레이저 및 Nd:YAG 레이저가 있다. 인도 등의 지역에서 CO₂ 레이저를 이용한 연구를 수행하고 있는 반면에 일본, 미국, 프랑스 등에서는 Eximer 레이저 혹은 Nd:YAG 레이저를 사용하여 오염된 금속이나 콘크리트 표면에 대한 제염 성능을 향상시키는 연구를 수행하고 있다. 본 연구에서는 모사 금속 시편에 광용발 제염공정을 적용시켜 표면 특성을 관찰함으로써 광 용발 제염공정의 타당성을 확인하고자 하였다.

2. 실험 및 결과

스테인레스강 및 스테인레스강 표면에 에폭시 페인트를 도포시켜 모사 시편을 제조하였으며 이를 시험에 사용하였다. 후보 광원으로서 continuous type Nd: YAG laser (100W), sealed type RF driven CO₂ laser (35W) 및 GT wave pulsed MOPA laser (20W)를 사용하였다. 조사되는 지점의 초점은 각각 150, 250 및 50 mm 이었다. 적용 시간은 9 ~ 20 초이었으며, 모사시편에 레이저를 적용시키기 전과 후의 표면사진을 촬영하였으며 전자 현미경을 사용하여 조직을 관찰하였다. 제염 적용 후 결과를 Fig.1. 에 나타내었다.

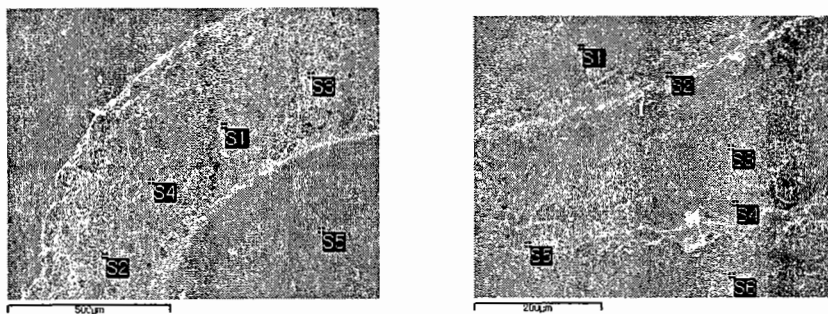


Fig.1. SEM photographs of stainless steel surface, (left) painted metal specimen after application of Nd:YAG, (right) bare metal specimen after application of MOPA Nd:YAG.

3. 결론

스테인레스강 표면은 continuous type Nd: YAG laser 및 sealed type RF driven CO₂ laser에 의해 용발되지 않았으며 GT wave pulsed MOPA laser만이 스테인레스강 표면을 깊게 용발시키는 것으로 나타났다. 레이저 광을 적용시키는 동안 금속 표면에 산화막이 형성되는 것을 확인하였다. 에폭시 페인트로 도포된 금속표면에 대해 세 종류 레이저 모두 페인트를 쉽게 용발시켰다. 용발 중 형성된 산화막에 대한 연구가 수행 중에 있으며 본 연구결과를 바탕으로 실험실 규모의 광 용 발 제염 장치를 설계 제작할 계획으로 있다.

방사성으로 오염된 해체 콘크리트 폐기물의 입도별 분리 및 분배 특성

민병연, 박정우, 최왕규, 오원진, 정중현

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕전동 150-1)

bymin@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설의 해체 시 전체 폐기물의 70% 이상을 차지하는 콘크리트 해체폐기물에 대해 독일, 미국, 벨기에, 영국, 일본 등의 선진국은 이에 대한 처리의 중요성을 인식하고 콘크리트 폐기물에 대한 처리기술과 재활용 방안의 수립, 이에 따른 경제성 및 재활용 콘크리트의 성능평가 시험을 수행해 왔으나 국내에서는 방사성 콘크리트 폐기물의 재활용을 포함한 관리 방안 및 관련 기술에 대한 연구가 전무하여 국내 기술기반이 매우 취약하다. 현재 국내에서 수행되고 있는 연구로의 해체 시 비방사성 콘크리트 해체폐기물이 약 1,700톤, 연구로 2호기에서 발생한 방사성 콘크리트 해체폐기물이 약 250톤 (160 m³, 4m³ 컨테이너 40개분) 발생되어 있다. 연구로 대상 콘크리트 해체폐기물의 양이 비교적 소규모라 할지라도 본 연구로 해체를 통해 발생한 콘크리트폐기물의 최종 처분부피를 더 감축하고, 향후 원전 해체에 대비한 공통기반기술 확보 차원에서 본 연구를 통해 관련 기술을 개발할 필요가 있다.

따라서 본 연구에서는 원자력 시설 해체 시 발생하는 대규모 구조재 콘크리트 해체폐기물로부터 방사성폐기물을 분리하여 해체폐기물을 감용하고 고품질 골재를 회수하여 재활용을 위한 고도 처리기술 확보를 위해 기계적, 열적 단위기술 실험을 수행하였다. 해체 콘크리트 폐기물은 경량 콘크리트와 중량 콘크리트로서 조크러서를 사용하여 1차 파쇄 후 Co-60을 오염시킨 후 300℃, 500℃, 700℃ 에서 고온 열처리 한 후 기계적 처리를 통해 골재와 미분말에 Co-60의 오염도를 분석하여 분배 특성을 살펴보았다.

2. 실험 및 결과

본 실험에 사용한 콘크리트 폐기물은 연구로 해체시 발생된 비방사성 콘크리트 해체 폐기물인 경량콘크리트와 중량콘크리트를 사용하였으며 콘크리트의 화학적 성분은 Table 1과 같다.

Table 1. Chemical properties of concrete

Composition	Heavy concrete(wt%)	light concrete(wt%)
Fe ₂ O ₃	39.6	3.6
CaO	14.9	18.5
Al ₂ O ₃	3.3	9.2
MgO	7.3	0.8
SiO ₂	29.3	60.4
Na ₂ O	0.4	1.3
K ₂	1.3	2.0
CO ₂	1.5	0.7
H ₂ O	2.3	3.1
Sum	99.9	99.7

비방사성 콘크리트 시편을 조크러서를 사용하여 1차 조분쇄 한 후 기지의 방사성 동위원소 Co-60에 24시간 침적시켜 오염시킨 후 자연 건조하여 300, 500, 700℃에서 1시간 동안 열처리를 수행하였다. 열처리 후 불밀을 사용하여 1시간동안 분쇄한 후 체 분리(mesh)를 통해 50mm이상의 굵은골재와 50~10mm의 잔골재, 10mm 미만의 미분말을 얻어 MCA 분석을 통해 Co-60의 분배 특성을 고찰하였다. 종합적인 실험방법은 Fig 1과 같으며, Table 2에 실험 결과를 나타내었다.

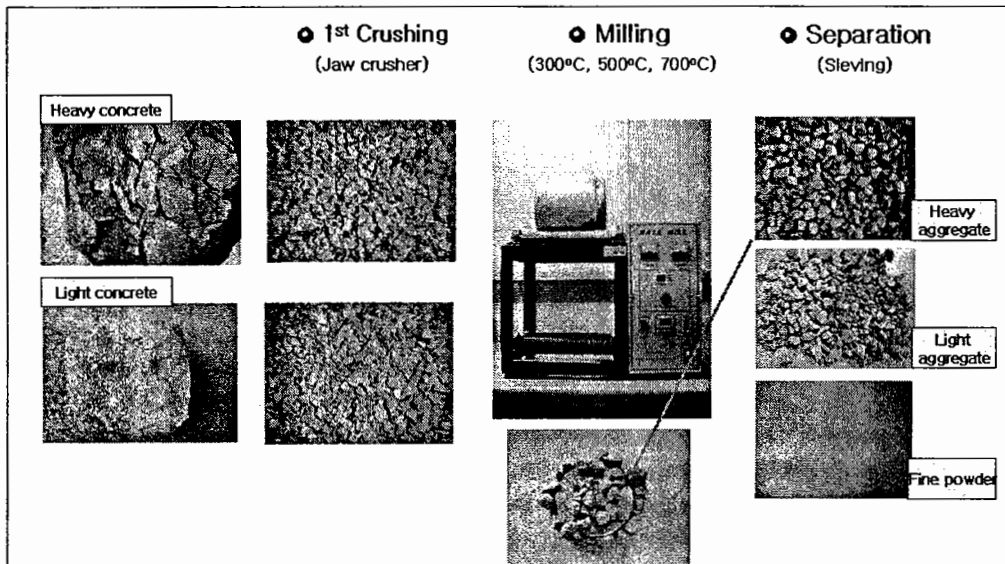


Figure 1. Experimental procedure

Table 2. Results of Separation of radioactive concrete waste from dismantling of nuclear facility

구분	가열온도 (°C)	계측된 시료량 (g)			비방사능 (Bq/g)		
		굵은골재	잔골재	미분말	굵은골재	잔골재	미분말
중량	300	27.12	15.78	18.63	2.95	3.45	80.55
	500	28.47	11.29	19.95	2.57	3.17	52.39
	700	20.11	30.98	20.00	2.12	4.44	59.21
경량	0	21.57	18.15	6.40	4.09	11.58	134.45
	300	20.34	23.18	21.15	4.93	9.92	82.64
	500	18.80	18.37	23.13	2.33	7.44	64.67
	700	20.95	15.61	21.10	2.44	3.80	63.20

3. 결론

시멘트에 대한 잔골재의 비가 작을수록, 가열온도가 높을 수로 미분말의 발생량이 크게 나타나며, 중량 및 경량 콘크리트 모두 1mm 미만의 페이스트 성분인 미분말에 대부분의 오염물질이 남아있었다. 경량콘크리트의 파쇄에 의한 페이스트 회수율을 높이기 위해서는 2.5mm 이하 형태의 입자로 파쇄할 수 있는 파쇄기 선정이 중요하며 경량콘크리트는 페이스트의 강도가 높아 골재의 마모로 인한 골재의 회수율을 저하시키므로 골재를 마모시키지 않고 페이스트 부분만을 제거하는 기계적 단위공정과 콘크리트로부터 시멘트 페이스트 효과적으로 분리하는 열적 단위 공정의 기술이 요구된다. 골재의 재사용을 위해서는 가열분쇄에 의한 안정된 재생골재와 페이스트의 효과적인 제거를 위해 점토광물의 탈수 및 석영의 결정전이가 일어나지 않은 500°C 이하에서 가열한 후 분쇄하여 분리하는 것이 효과적일 것으로 사료된다.

섬광체와 광섬유를 이용한 오염도 원격측정용 phoswich 검출기 개발

서범경, 박찬희, 이근우, 이동규, 정종현

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150-1)

bumia@kaeri.re.kr

원자력시설의 해체과정에서 발생하는 폐기물들은 안전한 관리를 위해서는 오염도 측정이 선행되어야 한다. 해체 폐기물의 오염도를 측정하기 위해서는 검출기를 이용하여 대상 표면을 직접 측정하는 방법과 여과지 등을 이용하여 오염물을 채취한 후에 검출기로 측정하는 간접적인 방법 등 여러 가지가 있다. 그러나, 배관 내부와 같이 대상 표면이 외부로 노출되지 않거나 협소한 경우에는 기존의 방법을 이용하여 오염도를 측정하기에는 어렵다. 이러한 협소한 지역의 오염도를 측정하기 위하여 세계적으로 다양한 측정기술들 개발하고 있으며, 국내에서도 배관 내부의 오염도를 직접 측정하기 위하여 원격 측정장비를 개발하여 해체 현장에서의 적용시험을 수행하였다[1].

그러나, 이전 연구에서 개발한 배관 내부에 방사성 오염도 측정 장치는 광전자증배관(photomultiplier tube, PMT)에 방사선 측정용 섬광체를 부착시킨 형태로 검출기를 제작하였다. 이러한 형태의 검출기는 신호 변환용 PMT의 크기에 의존하기 때문에 소형으로 제작할 수가 없는 단점이 있다. 또한, PMT에서 전환된 신호를 측정용 전자회로로 이송하기 위해서는 동축 케이블을 통하여 전송하게 되는데, PMT의 출력 신호가 너무 약하기 때문에 원거리 전송이 어려워 배관의 길이가 긴 경우에는 적용하기 어려운 단점이 있다.

최근에 섬광체와 PMT를 긴 광섬유를 이용하여 원거리 측정이 가능한 방사선 계측기를 개발하고자 하는 연구가 수행된 바 있다[2]. 광섬유를 활용한 방사선 계측방법은 센서부분을 매우 소형화할 수 있어서 연료봉집합체 사이와 같이 기존의 방사선 계측기로는 삽입이 곤란한 협소한 곳의 측정을 가능하게 할 수 있으며, 광섬유의 광전도성과 비교적 저렴한 장점을 활용하여 원자력발전소, 가속기, 방사성폐기물 처분장 등에 센서를 분산, 배치하여 여러 곳의 방사능을 한 곳에서 집중하여 감시하는데 유용하게 적용할 수 있다. 이미 광섬유는 방사선 계측방법으로 원자력분야에서 널리 활용되고 있다.

검출기 부분은 알파선과 베타선을 동시에 측정하기 위한 phoswich 검출기와 광섬유로 연결된 광전자증배관(photomultiplier tube, PMT)로 구성된다. Phoswich 검출기는 알파선 측정용 ZnS(Ag) 섬광체와 베타선 측정용 플라스틱 섬광체를 이중으로 배치하여 제작하였다. Phoswich 검출기는 하나의 광전자증배관에 2개 이상의 다른 섬광체를 광학적으로 결합시킨 검출 시스템이다. 섬광체 각각은 하나의 특정 형태의 방사선(즉, 알파, 베타, 감마 그리고/또는 중성자)에만 반응하도록 선택하며, 알파 및 베타선을 측정하기 위하여 이중섬광체를 하나의 광전자증배관에 적용하여 PSD(pulse shape discrimination) 방법으로 알파와 베타선을 분리하여 측정하였다.

섬광체에서 생성된 빛은 광섬유를 통하여 계측용 장치인 PMT로 입사되어 전기신호로 바뀌어 측정되는데, 섬광체와 PMT를 광섬유와 연결하기 위하여 FC connector를 이용하였다. 광섬유는 2와 5 m 길이의 유리 광섬유 BCF-37 (Saint-Gobain)를 이용하였다.

개발한 이중 섬광체 phoswich 검출기의 방사선 검출 성능을 평가하기 위하여 알파선 방출핵종인 ^{241}Am 과 베타선 방출핵종인 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 방사선원을 이용하여 측정하였으며, 그림 1은 2와 5 m 길이의 광섬유를 이용하여 측정한 베타선 스펙트럼이다. 길이에 따른 신호의 감쇄는 크게 일어나지 않는다는 것을 알 수 있다.

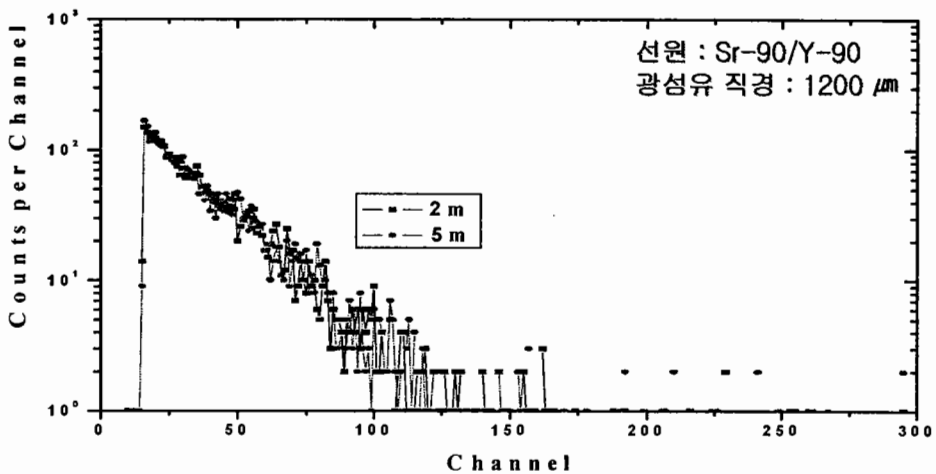


그림 1. 광섬유를 이용하여 측정된

섬광체와 결합된 선형의 광섬유 계측 장치는 작업 시에 신속하게 설치할 수 있고 철거할 수 있으며, 이러한 시스템은 작업자의 피폭 가능성을 감소시키고, 좁고 복잡한 배관에 대해서도 설치가 용이한 장점이 있다.

참고 문헌

1. 서범경, 김계홍, 박찬희, 이근우, 이동규, 정종현, "배관 내부 오염도 측정장비 개발 및 연구로 2 호기 액체폐기물 이송관 해체를 위한 내부 오염도 측정", 한국방사성폐기물학회 2007 춘계학술 발표회, 경주 위덕대학교, 5. 31 ~ 6. 1 (2007).
2. S. Yamanoto, Y. Yoshida, and T. Iida, "Development of an Underground Radon Detector Using on Optical Fiber", IEEE Transactions on Nuclear Science 50(4), pp. 987-990 (2003).

유한요소법과 무요소법을 이용한 극저온 절단 시뮬레이션

김성균, 이동규, 정종현

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150-1)

sungkyun@kaeri.re.kr

원자력 시설 해체에는 현재 상용화되고 있는 다양한 해체기술이 사용되고 있다. 그러나 일부 고방사능 시설의 해체에서의 상용 절단기술은 2차 폐기물 발생, 절단두께의 한계, 원격 제어 가능 여부 등의 문제로 적용하기가 매우 어렵다. 최근 이러한 문제점을 극복한 새로운 해체기술로 극저온 절단기술이 대두되고 있다. 극저온 절단기술은 액체질소와 같은 극저온 물질과 연마재를 혼합하여 초고압(400 MPa)으로 분사하여 대상물을 절단하는 기술을 말한다. 이 기술의 특징은 다른 해체절단 기술에 비해 2차 폐기물량이 거의 발생하지 않고 대상의 재질에 상관없이 절단이 가능하며 열이 발생되지 않아 화재에 민감한 재료의 절단에 적용이 가능하다.

본 연구에서는 극저온 절단 실험 이전에 극저온 절단 기술의 적용 가능성을 파악하고자 전산 시뮬레이션을 수행하였다. 극저온 절단 시뮬레이션과 같은 유체와 고체 해석이 연계된 문제를 효과적으로 풀기 위해 본 연구에서는 SPH(Smoothed Particle Hydrodynamics)와 FEA(Finite Element Analysis)를 연계한 Hybrid 코드를 이용하여 해석을 수행하였다.

- 대상물 및 유체 모델링

본 시뮬레이션에서는 절단 대상물로 40×30×10 mm의 크기를 갖는 저탄소강으로 선정하였으며 이에 대한 물성치는 표 1과 같다. 절단 대상물의 모델링은 8 절점 요소를 갖는 사각요소로 격자를 생성하였으며 총 27,511 절점을 갖고 24,000 요소를 갖도록 유한요소법으로 모델링 하였다. 액체질소는 절단 대상물과 달리 대변형을 일으키는 유체이므로 더 이상 유한요소법이 적용되지 못한다. 최근 유체의 모델링 기법으로 SPH 기법이 개발되었다. 이 기법은 무요소법 중에 하나로 연속체를 질량과 속도와 같은 물리량을 수반하는 입자들의 집합으로 표현하는 방법이다. 본 연구에서는 액체질소를 지름 1 mm 높이 40 mm의 원기둥으로 11,571 개의 입자로 갖도록 무요소법으로 모델링하였다. Fig. 1(a)는 유한요소법을 이용한 절단대상물의 모델링 결과를 나타내며 (b)는 무요소법을 이용한 액체질소의 모델링한 결과를 나타내고 있다.

Table 1. Material properties for target material

Properties	Material(low carbon steel)
ρ , Material density (kg/m^3)	7860
E, Elasticity modulus (GPa)	210
ν , Poisson's coefficient	0.284
σ_y , Yield stress (MPa)	260
ϵ , Failure strain	0.33
σ_b , Tensile strength (MPa)	350

- 시뮬레이션

본 시뮬레이션은 SPH 모델과 FEM 모델이 서로 커플링되어 연산이 이루어지며 두 모델은 접촉(Contact) 조건으로 연계되도록 정의하였다. 시뮬레이션 절차는 다음과 같다. 먼저 SPH 입자의 속도와 위치에 대한 입력정보로 입자들이 가하는 압력을 계산하고 이 값을 이용하여 입자가 외부

에 가하는 힘을 계산한다. 그리고 다시 갱신된 SPH 입자의 속도와 위치를 계산한다. 갱신된 SPH 입자의 속도와 위치 정보로 SPH 노드와 FEM 노드와의 접촉 여부를 판별하고 만약 접촉이 이루어지면 접촉력을 계산한다. 이 접촉력에 의한 FEM 노드의 변위를 계산하고 변위를 이용하여 재료의 변형률, 응력, 데미지 값을 계산하게 된다. 만약 요소의 응력 또는 변형률 값이 절단 대상물의 파괴 기준을 넘으면 그 요소는 절삭된 것으로 판단한다. 본 연구에서는 탄소강의 파괴 모델로 Johnson-Cook 모델을 사용하였다.

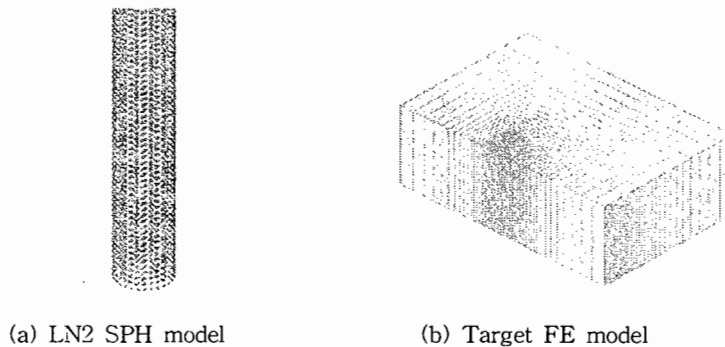


Fig 1. LN2 and Target modeling

Fig. 2는 SPH 입자가 600 m/s의 속도로 절단 대상물에 충격을 가했을 때 대상물이 절단되어 가는 모습을 나타내고 있으며 초기 설정한 600 m/s 유체속도로 10 mm 두께의 강판이 절단됨을 확인하였다. 유체속도 600 m/s를 베르누이정리를 이용하여 압력으로 환산하면 180 MPa이며 이 값을 통해 극저온 절단 실험 시 압력의 설정 값을 파악하였다.

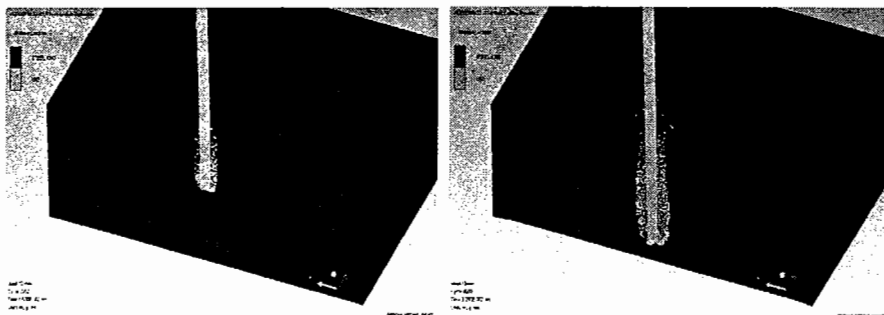


Fig 2. Results of cutting simulation for the steel 4340

- 결론 및 향후 계획

본 연구를 통해 극저온 절단 기술의 적용 가능성을 확인하였으며 또한 극저온 절단 실험에 필요한 실험변수들의 범위를 파악하였다. 본 연구는 구조물에 유체가 충돌하는 문제를 SPH와 FEM 기법을 적용하여 문제를 풀 수 있음을 보였으며 앞으로 이와 유사한 분야에 많은 응용이 가능할 것으로 판단된다. 향후계획으로 극저온 절단 장치를 제작하여 각종 변수의 변화에 따른 절단 성능 실험을 수행할 예정이다. 본 기술은 새로운 해체절단 기술로써 고방사능 시설과 같은 특수 시설의 해체에 매우 유용하게 사용될 것으로 판단된다.

KRR-2 제염·해체에서 발생된 방사성 고체폐기물 분류에 따른 고찰

정경환, 홍상범, 박승국, 이기원, 박진호, 정운수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150-1)

nghchung@kaeri.re.kr

방사성 폐기물은 수많은 종류의 설비에서 다양한 방사성 물질의 이용으로 발생되어, 방사능 농도가 천차만별일 뿐만 아니라 물리·화학적 형태 또한 여러 가지로 발생한다. 발생된 방사성 폐기물을 처분 이전에 처리와 안정화(conditioning)하는 다양한 방법이 있으며, 게다가 또 이들 폐기물의 안전한 처분방법 즉 지층(동굴)처분에서부터 표층(near surface)처분과 환경으로 매립까지 다양하다. 따라서 이들 방사성 폐기물의 물리적, 화학적 그리고 방사선학적 특성에 따라, 발생에서부터 처분에 이르기까지 방사성 폐기물의 관리를 체계적으로 수행하기 위한 적절한 분류체계 수립과 아울러 이를 바탕으로 최적의 관리체계가 요구된다.

이러한 분류체계를 수립하기 위한 고려사항을 살펴보면, 여러 가지 목적에 따른 폐기물의 분리이고, 분리된 폐기물은 우선적으로 폐기물의 특성 파악과 분류를 수행한다. 분류의 선정 지점에서의 판단기준은 제염의 경제성, 재사용이나 규제해체 폐기물로의 전환에 따른 규정에 적합한가, 감용 효과에 따른 경제성, 농축기술과 변환기술의 경제성, 그리고 고정화 여부 등이다.

연구용 원자로 2호기는 원자로 운영과 연구로를 이용한 응용연구 그리고 동위원소 생산을 비롯하여 연구로를 이용한 응용연구 관련한 각종 실험실 내에서의 실험활동 등을 수행하였다. 원자로 2호기의 수명이 다함과 동시에 제염 해체에서 발생되는 방사성 폐기물은 물리·화학적으로 서로 다른 다양한 특성을 갖는 폐기물이 발생하게 된다. 따라서 이들 폐기물의 발생으로부터 분류 인자에 따른 폐기물을 분석하고 이를 토대로 분류 체계를 확립하고자 한다.

1. 발생원(Origin) 분류

연구로 2호기 해체에서 발생된 방사성 폐기물의 발생원은 원자로, 동위원소 생산시설, 각종 Hot cell, 실험실, 원자로 주변 시설 등이다. 방사화된 폐기물의 발생원은 핵연료가 장착되었던 원자로 구조물이고 그 외의 시설에서 발생된 폐기물은 오염 폐기물로 분류할 수 있다. 이에 따른 방사화 폐기물과 오염 폐기물에 대한 발생 현황 및 방사능 농도가 표 2에 나타내었다.

Table 1. Radioactive material masses and activities from the decommissioning of KRR-2

Radioactive material generated	KRR-2 (2MW, Mg)					
	Total	0.4-10 Bq/g	10-50 Bq/g	50-100 Bq/g	100-10 ³ Bq/g	10 ³ Bq/g 이상
Activated steel	8				6.5	1.5
Activated graphite	3	2	1			
Activated concrete	250	76	41	131	2	
Contaminated ferritic steel	8	8				
Steel likely to be contaminated	2		2			
Contaminated concrete	11	11				
Contaminated lagging	9	5.5	2	0.5	1	
Contaminated technological wastes	2	2				

2. 물리적 상태(Physical state)

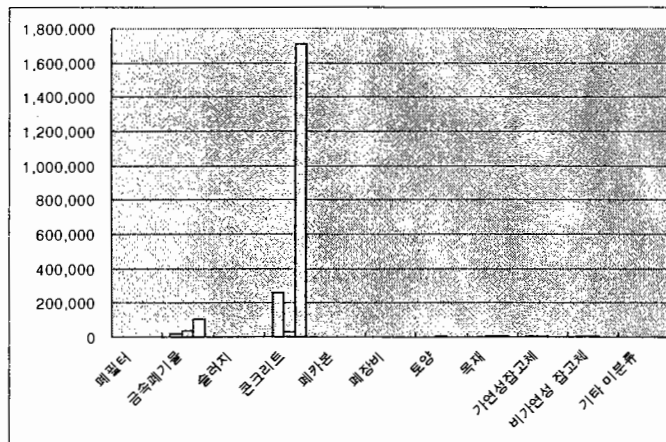
방사성 폐기물의 물리적 상태에 따른 분류는 액체, 기체 그리고 고체로 나뉜다. Table 2.는 연구로 2호기 해체에서 발생된 방사성 폐기물을 다른 시설해체 시 폐기물 발생량과 비교한 결과이다. Table 2. Radioactive material generation from the decommissioning of KRR-2 and selected nuclear facility.

Radioactive material generated	Facility (Mg)			
	KRR-2 (2MW)	GCR (250MW)	PWR (900-1300MW)	Reprocessing plant (Capacity:5Mg/d)
Irradiated carbon steel	8	3000	650	
Activated steel	3	2500		
Graphite	250	600	300	
Activated concrete	8	6000	2400	
Contaminated ferritic steel				
Steel likely to be contaminated	2		1100	3400
Contaminated concrete	11	150	600	1850
Contaminated lagging	9	150	150	400
Contaminated technological wastes	2	1000	1000	300

3. 폐기물의 형태(Type of waste)

폐기물의 형태는 물리적 폐기물의 형태 즉 폐 이온교환 수지, 필터, 슬러지 등과 같은 젖은 고체 폐기물, 종이 프라스틱, 금속, 콘크리트 등과 같은 마른 고체 폐기물 그리고 거대한 장비 같은 벌크 폐기물 등으로 분류되는 물리적 폐기물 형태와 가연성, 압축성, 금속 등으로 분류되는 처리 공정 폐기물 형태, 그리고 비 안정화 와 안정화 폐기물로 분류되는 저장/처분 폐기물 형태로 분류할 수 있다. 그림 1에 폐기물 형태에 따른 폐기물 발생 현황을 나타내었다.

Fig.1. Type of radioactive waste generation from the decommissioning of KRR-2.



결 론

연구용 원자로 2호기 제염 해체에서 발생한 폐기물의 분류를 발생원에 의한 방사화와 비방사화 방사성 폐기물로 구분하여 분류할 수 있었고 그 비율이 260 Mg 대 32 Mg으로 나타났다. 그리고 물리 화학적 그리고 방사능적으로 분석하였다, 현재 구축된 관리시스템에서 적용된 분류 및 제염을 중심으로 분석하였으며, 폐기물 형태에 따른 발생량을 분석하였으며, 대부분의 폐기물이 콘크리트 폐기물로 나타났다. 이에 따른 분류 시스템과 분석을 통하여 차후 제염·해체시 발생되는 폐기물을 안전하게 관리할 수 있는 기술적 처리방법을 확립하는데 커다란 도움을 줄 것이다.

우리나라 사용후 핵연료 공론화 현황 및 전망

황용수, 황주호, 김연옥

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150-1)

yshwang@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료에 대한 안전한 관리는 원자력계가 당면한 가장 큰 현안 중의 하나로 원자력위원회에서 의결한 바와 같이 사회적 공론화를 거쳐 결정될 것이다. 2007년 봄부터 추진되고 있는 사용후핵연료 공론화를 위한 TFT (이하 TFT) 활동은 단기적으로는 중간 저장과 관련된 옵션에 대한, 장기적으로는 최종 처분까지의 로드 맵에 대한 합의를 이끌어 내기 위한 작업을 수행 중이다. 이러한 노력은 2008년부터 본격적으로 추진될 사용후핵연료 공론화의 초석이 될 방법론 구축, 기술적 대안 목록 발굴 등을 목표로 하고 있다.

2. 공론화의 원칙과 방법론

사용후핵연료를 포함한 방사성폐기물에 대한 공론화는 이미 영국, 캐나다, 일본, 벨기에, 핀란드, 스웨덴, 독일 등의 세계 각국과 유럽 연합 및 OECD/NEA의 각종 프로그램들을 통해 추진되어 왔다. 이러한 공론화의 필요성은 과학적인 접근 방법만으로 방사성폐기물 관리에 대한 사회적인 지지를 이끌어 내기가 어렵다는 점에서 출발한다. 공론화 프로그램을 진행한 여러 나라들은 각자 실정에 맞는 원칙들을 설정하고 이에 의거해 공론화를 수행하였다. 우리나라에서도 향후 객관적이고 효율적인 공론화를 본격 추진하기 위해서는 무엇보다도 먼저 공론화의 원칙과 방법론을 설정하는 것이 중요해 TFT를 중심으로 의견을 수렴하였는데 그 중요한 내용은 아래와 같다.

- (1) 원자력 발전 점유율과 사용후핵연료 공론화 문제는 서로 분리해 논의한다.
- (2) 사용후핵연료 관리는 정부의 책임 하에 수행된다.
- (3) 사용후핵연료 관리를 위한 비용은 발생자 부담 원칙을 준수한다.
- (4) 사용후핵연료 관리 옵션 도출은 과학적인 객관적 사실을 근거로 한다.
- (5) 사용후핵연료 관리에 관한 공론화는 숙의적 방법에 의거해 수행한다.

사용후핵연료 공론화를 추진한 영국, 캐나다, 프랑스의 사례에 따르면 독립적인 공론화 추진 기관이 설정되고 이 기관이 중심이 되어 사용후핵연료 관리에 대한 모든 대안 옵션들을 목록(Long list)을 개발하고 이에 대한 기술적, 경제성, 사회적 수용성, 비용 및 공정성, 윤리성 등을 고려한 전체적 접근 방법과 다중평가방법을 적용해 평가 하였다. 우리나라에서도 이와 같은 해외 사례들을 충분히 검토하여 종합적 접근 방법과 다중평가방법을 함께 사용하는 방법론을 적용할 것으로 예상되며 향후 관련 연구를 통해 세부적인 평가 항목과 기준치를 제시할 예정이다.

3. TFT 운영 현황과 향후 전망

TFT는 2007년 상반기 창설된 이래 전반기는 국내 관련 산업 및 기술 동향을 조망하고 캐나다, 영국, 프랑스의 관련 해외 사례들을 집중 조명하였다. 또한 하반기부터는 2008년 본격적인 공론화 착수를 위한 원칙 정립 및 대정부 권고안을 준비 중이다.

감사의 글

이 연구는 산업자원부가 전력기반조성센터를 통해 주관하는 사용후핵연료 국가 관리 중장기 모델 개발 연구개발 사업의 일환으로 수행되었습니다.

2007 Status of Uranium Conversion Plant Decommissioning

D.S. Hwang, K.I. Lee, Y.D. Choi, S.T. Hwang, J.H. Park, U.S. Jung

Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeok-daero, Yuseong, Daejeon 305-353, Korea.

dshwang@kaeri.re.kr

KAERI (Korea Atomic Energy Research Institute) constructed a pilot plant for the uranium conversion process for the development of the technologies and the localization of nuclear fuels for HWR (heavy water reactor) in 1982. The final product of the plant was a UO_2 powder of ceramic grade for HWR and its capacity was 100 ton-U/year. After that, a part of the AUC (Ammonium Uranyl Carbonate) process was added and the process was improved for automatic operation. 320 tons of UO_2 powder was produced and supplied to the fabrication plant at KAERI for the fuel of the Wolsong-1 CANDU (Canadian deuterium uranium) reactor. The conversion plant has building area of 2916 m^2 and two main conversion processes. ADU (Ammonium Di-Uranate) and AUC process are installed in the backside and the front side of the building, respectively. Conversion plant has two lagoons, which is to store all wastes generated from the plant operation. Sludge wastes stored 150 m^3 and 100 m^3 in Lagoon 1 and 2, respectively. Main compounds of sludge are ammonium nitrate, sodium nitrate, calcium nitrate, and calcium carbonate. In early 1992, it was determined that the plant operation would be stopped due to a much higher production cost than that of the international market. The conversion plant has been shutdown and minimally maintained for the prevention of contamination by deterioration of the equipment and the lagoon. In 2000, the decommissioning of the plant was finally decided upon and a decommissioning program was launched to complete the following tasks by 2009: planning and assessment of the environmental impact; decontamination of the pipe, tanks, vessels and equipment for canning or reuse; decontamination of the building for unrestricted reuse, and the treatment of the sludge and the demolition of the lagoon. In the middle of 2004, decommissioning program obtained the approval of regulatory body and decommissioning activities started. In 2004, pre-work was performed as follows: repair of electrical power supply system, inspection and repair of fire alarm and fighting system, installation of ventilation system, radiation management and access control facility, inspection and load testing of crane, distribution and packaging of existing waste, and pre-decontamination of the equipment surface and interior. This paper introduced briefly decommissioning activities in the first half year of 2007.

Dismantling started first from the reuse area such as temporary waste storage and the decontamination and lagoon sludge treatment. And then, we dismantle in the order of the most remote room from the waste treatment area. Order of dismantling work is as follows: disconnecting of pipe and electric wire, separation of the equipment, cutting into small pieces, grouping of the dismantled pieces for decontamination or packing, decontamination of floor and wall, and measurement of remained contaminants. Now, dismantling was completed of 25 rooms in the 27 rooms. The rest 2 rooms are ventilation and spare parts storage rooms. Table 1 shows an amount of dismantled waste. Dismantled metal wastes are 179 ton in the dismantled waste. These are cut into small pieces by cutting equipment such as nibbler, band saw, wheel saw, and plasma cutter to decontaminate. It will be expected that most metal waste could be decontaminated less than conditional release criteria, 0.2 Bq/g.

Table 1. Amount of dismantled waste

Waste		Amount, ton	
Metal	Carbon steel	179	106
	Stainless steel		73
Concrete		11	
Cable		6	
Uranium		3	
Others		13	
Liquid Waste		14	
Total		226	

Dismantled metal waste is decontaminated with uranyl nitrate, ammonium uranyl carbonate, and uranium oxides. Chemical decontamination with ultrasonic was installed for stainless steel and steam cleaner was installed for carbon steel and washing after chemical decontamination. 10 wt % of nitric acid is used for chemical agent and decontamination is performed at 50°C for 1 hour. Dismantled stainless steel waste over 85% was decontaminated less than conditional release criteria with the first decontamination. However, dismantled carbon steel waste was not decontaminated well with steam cleaning because of corrosion and repainting during plant operation. This will be decontaminated by melting. Radioactive waste and conditional release waste produced until now are showed in table 2.

Table 2. Amount of radioactive and conditional release waste

Waste			Amount
Radioactive waste (51.7 ton)	200L drum	Combustibles	57 ea (4,350 kg)
		Incombustibles	36 ea (3,612 kg)
		Treated sludge waste	120ea (27,682 kg)
	4M3 container	Concrete	1ea (5,543 kg)
		Metal (pump)	2 ea (4,979 kg)
		Others	1 ea (4,678 kg)
Conditional release waste (48.4 ton)		Stainless steel	30,836 kg
		Carbon steel	14,928 kg
		Other metals	130 kg
		Concrete	2,474 kg

The lagoon sludge waste is treated by thermal dewatering and NOx gas evolved during thermal decomposition of nitrate salts is treated by ammonia SCR (selected catalytic reduction) reactor. Treatment facilities consist of furnace, sludge waste transportation equipments, NOx gas treatment equipment, treated solid waste crusher. Sludge waste is decomposed into 3 hours for increasing temperature to 900°C. The residual solid waste consists mainly of Na₂O-Al₂O₃, calcium oxide, and calcium hydroxide and these are stable compounds for storage. Off-gas could be treated less than 100 ppm by SCR system. Sludge waste can be treated by 750 kg/day. Most lagoon 2 sludge waste was treated now. Volume of lagoon 2 sludge waste could be decreased over 40 %.

후행 핵연료주기 경제성 평가 사례 분석

김형준, 조천형, 이경구

한수원(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1번지

khjoon@khnp.co.kr

1. 서 론

원자력 르네상스의 도래와 함께 한동안 위축되었던 후행핵연료주기 정책개발에 대한 각국의 관심도 다시 높아지고 있다. 후행핵연료주기 정책의 핵심은 원전에서 발생하는 사용후연료를 재처리하여 원전의 연료로 재활용할 것인지 아니면 영구 처분할 것인지를 결정하는 것이다. 특히 2006년 2월 미국이 그동안의 사용후연료 직접처분 정책에서 재처리/재활용 정책으로 전환하는 것을 골자로 하는 '국제원자력협력체제'(GNEP) 정책 구상을 발표함으로써 각국은 GNEP이 자국의 원자력 정책에 미치는 영향을 면밀히 분석하면서 후행핵연료주기의 기술성 및 경제성에 대한 검토에 나서고 있다. 이에 본 연구에서는 최근 국내외 학술지 등에 발표된 대표적인 후행 핵연료주기 경제성 평가 사례를 종합적으로 고찰 및 분석함으로써 최근 국내에서 추진되고 있는 사용후연료 공론화 및 후행 핵연료주기 정책연구에 일조를 하고자 한다.

2. 후행 핵연료주기 경제성 평가

(1) 경제성 평가 방법론

후행핵연료주기 경제성 평가 방법에는 여러 가지가 있지만 가장 많이 이용되는 방법은 평준화 비용법(Levelised Unit Cost)이다. 이 방법은 후행핵연료주기 관련시설 및 활동, 즉 사용후연료 중간저장·수송·재처리·재활용·방사성폐기물 처분 및 시설 폐지와 관련된 총 비용을 추정한 후 적절한 할인율(discount rate)을 이용하여 현재가치(present value)로 환산하고, 이 값을 동일 기간 동안 얻어지는 총 생산량 또는 총 수입을 역시 같은 할인율을 이용하여 현재가치로 환산한 값으로 나누어 나눈으로써 얻을 수 있다. 이러한 평준화 비용법에 의해 계산된 결과는 \$/kWh 또는 \$/kg의 형태로 나타난다.

(2) 평가 사례

경제성 평가는 후행핵연료주기 정책결정에 반드시 필요한 요소로서, 이에 대한 많은 연구가 이루어지고 있다. 대표적인 연구 사례 및 평가결과를 살펴보면 다음과 같다.

먼저, 1994년에 OECD/NEA가 수행한 "The Economics of the Nuclear Fuel Cycle"은 핵연료주기 경제성 평가를 위한 일종의 교본적 성격을 지니고 있다. 이 연구는 다른 연구들과는 달리 후행핵연료주기 부분만 따로 평가하지 않고 선행핵연료주기를 포함한 핵연료주기 전체를 평가하고 있다. 평가결과 순환주기 비용은 6.23mills/kWh, 비순환주기 비용은 5.46mills/kWh로, 비순환주기가 약간 유리하나 그 차이는 미미한 것으로 나타났다.

두 번째로, Harvard 대학의 연구팀이 2003년에 수행한 "The Economics of Reprocessing Versus Direct Disposal of Spent Nuclear Fuel"에서는 순환주기 비용이 \$0.022/kWh, 비순환주기 비용이 \$0.005/kWh로, 비순환주기 옵션이 순환주기 옵션에 비하여 4배 이상 유리한 것으로 나타났다. 연구팀은 순환주기 옵션이 유리하기 위해서는 우라늄 가격이 \$370/kgU 이상 되어야 한다고 말했다.

세 번째로, 프랑스의 AREVA社가 세계적 자문기관인 미국의 Boston Consulting Group에 의뢰

하여 수행한 “Economic Assessment of Used Nuclear Fuel Management in the United States”에서는 순환주기 비용이 \$520/kgHM, 비순환주기 비용이 \$500/kgHM로, 두 옵션 간 경제성이 거의 같은 것으로 나타났다.

네 번째로, 복잡한 과학기술 및 공공정책 의사결정 문제를 전문적으로 다루는 Keystone Center가 올 2007년에 수행한 “Nuclear Power Joint Fact - Finding”에서는 순환주기 비용이 \$0.034/kWh, 비순환주기 비용이 \$0.014/kWh로 나타났다. 이 연구는 바로 앞에서 언급한 Harvard 대학의 2003년 연구를 최근 상황에 맞게 데이터를 update하여 다시 평가한 것으로, 4년 전에 비해 두 옵션 간 경제성 차이의 폭이 상당히 좁혀진 것으로 나타났다.

<표> 후행연료주기 경제성 평가 주요 연구 결과

연구기관	평가년도	평가 결과		
		순환주기(A)	비순환주기(B)	비율(A/B)
OECD/NEA	1994	6.23mills/kWh	5.46mills/kWh	1.14
Harvard 大學	2003	\$0.022/kWh	\$0.005/kWh	4.40
Boston Consulting Group	2006	\$520/kgHM	\$500/kgHM	1.04
Keystone Center	2007	\$0.034/kWh	\$0.014/kWh	2.43

3. 결 론

후행연료주기 경제성 평가는 비용 추정의 불확실성, 평가대상기간의 장기성, 적용 할인율에 따른 계산결과의 변동성 등 많은 불확실성을 내포하고 있기 때문에 연구의 결과가 서로 상이하고, 이에 따라 연구 수행자들 간에 이에 대한 논란이 끊이지 않고 있다.

그러나 지금까지의 연구결과를 살펴볼 때, 아직까지는 비순환주기 옵션이 순환주기 옵션에 비해 경제성 면에서 좀 더 유리한 것으로 보인다. 그러나 일부 연구자들은 비순환주기 비용의 모델로 이용되고 있는 미국의 유카마운틴 처분장 건설비용이 당초 예상보다 높게 나타나고 있고, 또한 후행연료주기 경제성에 큰 영향을 미치는 우라늄 가격이 지금처럼 계속 상승할 경우 순환주기의 경제성이 유리해지게 될 것으로 예상하고 있다.

<참고문헌>

1. The Economics of the Nuclear Fuel Cycle, OECD/NEA, 1994.
2. The Economics of Reprocessing vs. Direct Disposal of Spent Nuclear Fuel, Harvard University, December 2003.
3. Economic Assessment of Used Nuclear Fuel Management in the United States, the Boston Consulting Group, July 2006.
4. Nuclear Power Joint Fact-Finding, the Keystone Center, June 2007.

제1분과

방사성폐기물 정책 및 제염해체 (Poster)

UV/TiO₂계에 의한 난분해성 유기물의 분해 비교 연구

정철진, 원휘준, 김진원*, 문제권, 정중현, 김위수*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150)

*(주)전영 기술연구소, 충남 당진군 합덕읍 도곡리 106-22

*일진방사선엔지니어링, 서울시 구로구 구로5동 일진빌딩 104-3

nhjwon@kaeri.re.kr

유해 유기물질을 분해 처리하는 공정으로 원자력시설의 부품 및 계통 해체에 사용되는 고농도 화학제염제의 주요 난분해성 유기물질인 EDTA, Oxalic acid 및 Ascorbic acid에 대하여 광분해 특성을 고찰하였다. 본 실험에서 사용한 광분해 장치의 광촉매 최적 사용량은 2-3g/L로 결정되었다. 이 광분해 장치를 이용한 유기물질의 광분해 결과는 Oxalic acid의 광분해가 가장 빠르고 EDTA, Ascorbic acid 순서로 분해되었으며 분해율은 모두 95% 이상이다. Ascorbic acid는 2단계 분해로 완전분해 되는데 오랜 시간이 소요된다. 2성분 혼합물에서 Ascorbic acid는 EDTA 보다 흡착력이 좋아 Ascorbic acid가 1차 분해되기까지 EDTA는 분해되지 않았으며, Oxalic acid는 Ascorbic acid와 같은 흡착력을 보이며 꾸준히 분해되었다. EDTA와 Oxalic acid의 혼합용액은 2성분 혼합용액의 분해 중 가장 빠르게 일어났다. 2성분 계의 분해 실험을 통해 Ascorbic acid의 농도가 분해속도에 큰 영향을 미친다는 것을 알았다. 3성분계 혼합용액의 광분해는 95% 이상 높은 분해율로 5시간에 모두 분해되었다. 고농도 화학제염제와 같은 조성의 모의 제염폐액 또한 16시간에 95%로 분해되었다.

Fenton 반응과 비교(그림 1)할 때, 고농도 유기물질의 분해에는 Fenton 반응이 유리하며, UV/TiO₂ 계에 의한 유기물질의 분해는 낮은 농도인 경우에 적합하다고 볼 수 있다. 반응이 느리다

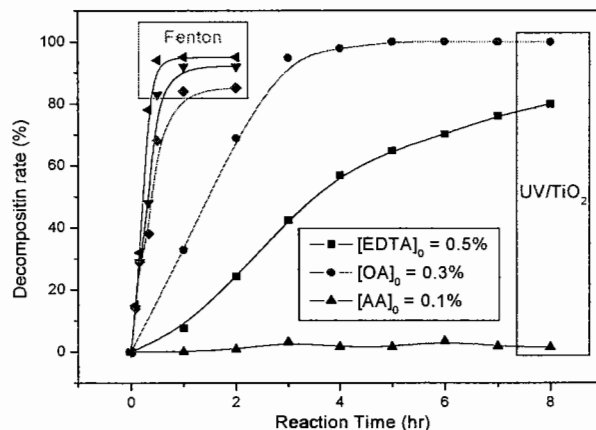


Figure 1. Comparison of decomposition performance between Fenton reaction and UV/TiO₂ system.

는 단점이 있어 저 농도의 유기물질 분해에 적합하고, Fenton 반응과 함께 응용하여 난분해성 유기물질의 분해에 마지막 처리 공정에 추가 되어 사용될 수 있을 것으로 기대된다. 그림 2에

Fenton 반응 후 UV/TiO₂계를 이용해 다시 분해시킨 결과를 UV/TiO₂계만을 이용하여 분해한 결과와 비교하였다.

제염제의 주요 난분해성 유기물질은 UV/TiO₂ 계에 의한 광반응으로 모두 완전 산화될 수 있으며, 첨가되는 시약이 없고, 2차 폐기물이 발생하지 않는 장점을 가지고 있다. 광촉매로 사용된 TiO₂는 원심분리하여 회수한 후 재사용이 가능하며 광반응장치는 UV광만 지속적으로 공급된다면 반영구적으로 사용할 수 있는 친환경적 폐수처리가 가능하다.

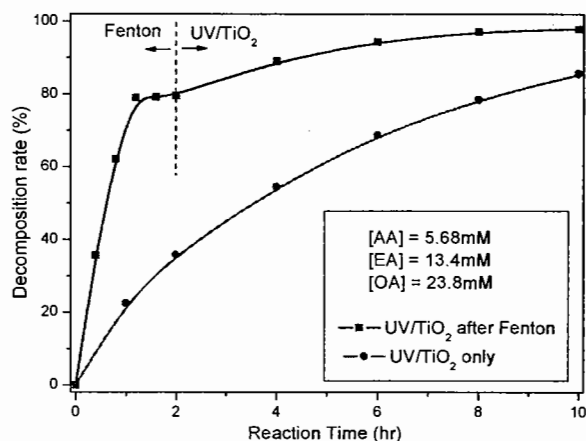


Figure 2. Decomposition of organic mixture by Fenton-UV/TiO₂ system and UV/TiO₂ system only.

반응성 플라즈마를 이용한 금속코발트의 표면 식각 반응 연구

전상환, 박동민, 진동식, 김용수, 원희준*, 문제권*, 정중현*

한양대학교, 서울시 성동구 행당동 17번지

*한국원자력연구원, 대전시 유성구 덕진동 150번지

shieon@hanyang.ac.kr

1. 서론

방사성 금속 표면의 표면 제염 공정으로 특히 표면 고착성 오염에 적용성이 뛰어난 것으로 알려져 있는 플라즈마 제염 기술의 제염 효율을 증진시키기 위한 실험을 수행하였다. 원자력 시설에서 발생하는 배관과 밸브 기기 등의 금속 폐기물의 주요 오염 핵종은 부식생성물인 코발트로 ^{60}Co 핵종은 반감기가 5.27년으로 길고 1.17 MeV 및 1.33 MeV의 고에너지 γ -ray를 방출한다. 따라서 플라즈마 제염 기술을 개발하기 위하여 여러 연구자들이 다양한 플라즈마 출력과 이온보조식각 등의 기법을 도입하여 코발트 금속 혹은 금속표면의 코발트 산화막의 제염 연구를 수행하여 왔다. 이 연구에서는 실용화를 위한 연구가 진행되고 있는 플라즈마 제염 기술의 보다 높은 제염율 달성을 위하여 기존 연구에서 사용되었던 CF_4/O_2 기체와 함께 SF_6/O_2 , NF_3 등의 기체 플라즈마를 이용하여 대표적인 오염 핵종인 코발트의 표면 식각율 측정 실험을 수행하였다. 종래의 플라즈마 제염 연구에서는 주로 기체 혼합비를 조절하고와 이온보조식각반응을 이용하여 반응율을 높이고자 하였으나 이 연구에서는 사용기체를 달리하여 반응율을 획기적으로 증가시켰다. 또한 표면 식각 반응에서 발생하는 반응 생성물의 성분을 분석하여 플라즈마와 코발트의 반응기구를 분석하고자 하였다.

2. 실험 및 결과

저진공 플라즈마 반응 장치를 이용하여 CF_4/O_2 , SF_6/O_2 , NF_3 기체의 r.f 플라즈마를 발생시키고 350°C에서 420°C까지 일정한 시편 온도에서 지름 10 mm 두께 1 mm 금속 코발트 디스크의 반응율을 반응 전후 중량으로 측정하였다. 이때 CF_4/O_2 및 SF_6/O_2 기체의 유량은 40 sccm:10 sccm을 유지하였고 NF_3 는 두 기체의 총유량과 동일한 50 sccm을 유지하였으며 r.f.출력은 220 W로 고정하였다. 또한 동일한 조건에서 코발트 분말 시료를 이용하여 플라즈마 반응 시킨 후 반응생성물을 쿨드트랩에 흡착시켜 구성 성분을 AES 분석하였다.

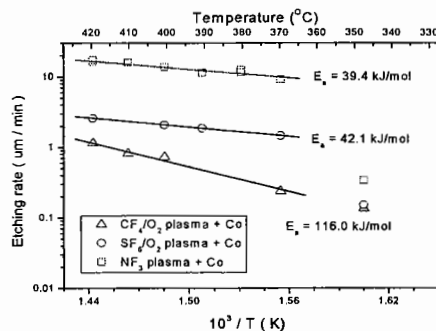


Fig. 1 Co etching rate vs. various substrate temperatures in CF_4/O_2 , SF_6/O_2 , and NF_3 Plasma.

Fig. 1은 반응 전후 무게감소를 두께 단위로 환산한 식각율 결과이다. 각각의 기체조건에서 모두 350°C부터 반응이 일어나기 시작하여 가장 활발한 반응이 일어나고 있는 420°C에서의 반응율은 NF_3 기체에서 17.12 $\mu\text{m}/\text{min}$., SF_6/O_2 와 CF_4/O_2 기체에서 각각 2.56 $\mu\text{m}/\text{min}$.과 1.14 $\mu\text{m}/\text{min}$.이다.

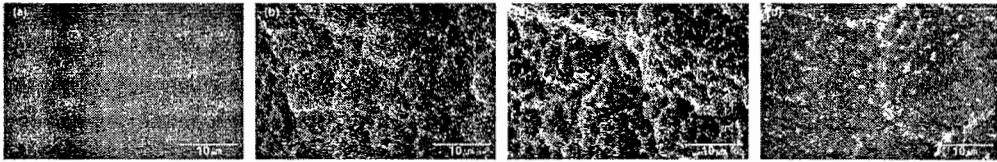


Fig. 2 SEM micrographs of surface morphology changes after surface reaction at 420°C.

(a) intact (b) 80%CF₄/20%O₂ (c) 80%SF₆/20%O₂ (d) 100%NF₃

Fig. 2는 반응면의 미세구조이다. CF₄/O₂에서는 코발트 표면에서 결합이 약한 부분을 중심으로 반응이 일어났으며 SF₆/O₂에서는 이러한 현상이 심화되었다. NF₃에서는 시편의 표면 전체로 확대되어 가장 활발한 반응의 일어나고 있음을 확인할 수 있었다.

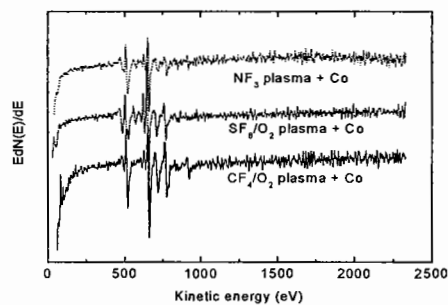


Fig. 3 Differentiated AES spectrum of reaction products of Co in reactive plasmas.

Fig. 3은 쿨트트랩에 흡착된 반응 생성물의 AES분석 결과이다. 모든 기체 플라즈마 조건에서 동일하게 510 eV의 산소, 613, 632, 659 eV의 불소와 658, 718, 777 eV의 코발트가 검출되었다. NF₃ 기체 조건에서도 산소가 검출되고 있는 것은 식각 반응 후 반응 용기 외부에서 산소가 시료와 반응한 결과로 금속 코발트의 플라즈마 반응 기구는 불화 반응으로 사료된다.

3. 결론

본 연구 결과에서 코발트가 CF₄/O₂, SF₆/O₂, NF₃ 반응성 플라즈마와 식각 반응을 할 때 NF₃의 효율이 가장 우수한 것으로 밝혀졌다. 420°C 조건에서 NF₃의 반응율이 17.12 μm/min.으로 SF₆/O₂의 2.56 μm/min.에 비해 약 7배 그리고 CF₄/O₂의 1.14 μm/min. 보다 15배 높은 결과이다. 불소 원자의 농도가 높은 조건에서 반응율이 높아진 것으로 반응기구가 코발트의 불화반응이라는 결과를 다시 한번 뒷받침하고 있다. 반응성 플라즈마 기체에 대한 코발트의 식각 반응의 활성화 에너지를 도출한 결과는 CF₄/O₂, SF₆/O₂ 및 NF₃ 기체에서 각각 116.0 kJ/mol, 42.1 kJ/mol, 39.4 kJ/mol의 결과를 얻었다. 일반적인 플라즈마 식각 조건 보다 상당히 고온인 420 °C에서도 CF₄/O₂ 기체의 코발트 식각 반응율은 약 1 μm/min.에 불과했으므로 금속코발트의 반응성 플라즈마와 식각반응에 대한 활성화 에너지는 상대적으로 원활한 반응이 일어났던 SF₆/O₂와 NF₃ 결과에서 도출된 39~42 kJ/mol이라 할 수 있다. 반응 생성물의 AES 성분 분석 결과 그 구성 원소는 산소와 불소 그리고 코발트임이 밝혀졌다. 이 결과로부터 식각 반응은 기본적으로 불화반응이라 할 수 있다. 코발트는 불소와 반응하여 CoF₂와 CoF₃를 형성하는데 CoF₂의 녹는점은 1127°C이며 CoF₃는 927로 매우 높아서 일반적인 환경에서 불소원자와 반응을 시킨다 하더라도 식각 반응이 일어나기는 어려운 물성을 지니고 있다. 하지만 불안정한 상태로 존재하는 플라즈마의 촉매 반응과 낮은 압력의 공정조건이 반응용기 내에서 플라즈마와 금속코발트의 식각 반응을 가능하게 한 것으로 사료된다. 이 연구를 통해서 플라즈마 제염 공정의 반응율이 월등히 향상된 조건을 찾아냈으며 그 반응기구는 기본적으로 불화반응이라는 사실이 밝혀졌다. 보다 명확한 반응기구를 찾아내기 위한 연구가 진행 중이다.

용존산소 제거시 금속촉매 담지 탈기모듈의 최적 효율을 위한 촉매환원공정 연구

김문수, 조강욱, 강상희

한수원(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1번지

nikollao@khnp.co.kr

1. 서론

원전 계통수 중 용존산소 존재는 재료의 부식 및 방사선 차폐 능력 저하를 초래한다. 기존의 촉매수지식 용존산소 제거장치는 장치의 대형화, 고가 및 기술료 지불로 인한 전력생산 원가에 부담되어져오고 있던 현실이다. 선진국의 경우, 계통 공급수 생산을 위해 경량 단박한 고효율의 멤브레인 또는 촉매수지를 이용한 탈기 기술로 바뀌어 가는 추세이며, 현재 까지 개발된 탈기용 멤브레인은 once-through 통과 시 80% 정도 DO 제거하는 성능을 보여왔다. 이에 따라, 경량, 단박하고 운전의 편의성과 화학약품을 사용하지 않는 신개념의 용존산소 제거기술의 개발 필요성 대두되어 왔으며, 탈기효율의 극대화를 위해 탈기모듈에 백금이나 팔라듐 등의 금속촉매 담지효과에 대한 조사가 수행되어져왔다. 본 논문에서는 촉매 환원반응을 이용하는 Lab 규모 시험장치 구성하여 촉매효과를 높이기 위한 수소의 적정주입량과 탈기막의 DO 제거 효율 및 조건변화에 대해 알아보았다.

2. 실험 및 결과

① 용존산소의 촉매 환원제거 공정 시험조건

Fig 1.은 Lab 규모 시험용 촉매반응 장치의 구성도이다. 역삼투막과 이온교환수지 장치를 거쳐 제조한 고 순도($\approx 18\text{M}\Omega \cdot \text{cm}$)의 용수를 보급수로 사용하였으며, 외부 냉각기(chiller)를 이용하여 보급수 탱크내 용수 온도를 25°C 로 일정하게 유지하였다. 보급수 탱크에 불어 넣어주는 산소-알곤 가스의 혼합비율을 조절하여 보급수의 용존산소 농도를 7.0 ppm으로 유지하였다. 반응기내 압력보다 $1\text{ kg} \cdot \text{cm}^{-2}$ 더 높은 압력으로 수소흡수탑 하부에서 순수한 수소를 주입하여, 용존수소 농도를 0.6~1.2 ppm으로 조절하였다. 수소를 물과 충분히 접촉시키기 위해 기공 크기가 $0.5\text{ }\mu\text{m}$ 인 소결필터(sintered filter)를 수소 분사기(hydrogen sparger)로 사용하였다.

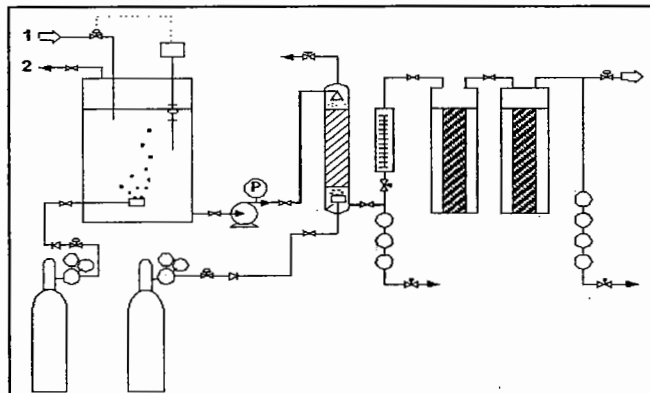


Fig 1. Schematic diagram of pilot catalyst-type degassing system.

Agglomeration을 이용한 미세토양의 Co 및 Cs 용출제염에 관한 기초연구

이정준, 김계남, 정윤희, 문제권, 정종현

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150)

jilee@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설에서 발생하는 오염토양의 제염을 경제적, 효과적으로 수행하기 위해, Heap leaching 기술의 이용을 검토하였다. Heap leaching은 중금속오염토양이나 우라늄 광미의 정화를 위해 이용되어져 왔고, 건조-체분리-응결-Heap leaching의 공정을 포함한다. 응결 공정은, 오염토양 퇴적더미에 용출제를 trickling 했을 때, 토양미립자에 의한 공극의 막힘현상의 발생으로 제염이 저해되기 때문에, 미세입자를 응결제와 혼합, 응결시켜 용출시키기 위해 필요하다. 한편, 기존의 오염토양의 제염을 위한 토양 세척기술에서도 미세토양의 제염이 어려운 것으로 보고되었다. 본 연구에서는, Heap leaching 기술의 이용을 검토하기 위한 기초적 단계로, 응결 조작이 필요한 토양입경, 응결을 위한 최적 응결제 및 그 함량 등을 결정하기 위해 Lab-scale test를 수행하였다. 또한, Column test를 통하여 응결된 오염토양의 Co 및 Cs 제염효율을 검토하였다.

2. 실험방법 및 결과

2.1 인공오염토양의 조제

토양으로부터 Co 및 Cs의 제염을 평가하기 위해, 원자력시설 주변부지에서 채취한 토양에 0.01M의 Co^{2+} 및 Cs^+ 혼합용액을 건조토양에 L/S=0.4의 비율로 혼합하여 주기적으로 교반하면서 건조시켰다. 이때, 조제된 인공오염토양의 Co 및 Cs 함유량은 235.7 mg-Co/kg-soil, 531.6 mg-Cs/kg-soil이었고, 이는 각각 4 mM/kg-soil에 해당한다.

2.2 체분리 및 입경별 투수계수 예측

Fig. 1은 TRIGA 주변 야산에서 채취한 토양의 입경누적분포곡선을 보이고 있다. 입경조사 결과, 이 토양은 sandy soil로 나타났으며, Heap leaching 기술에 적용할때 용출제의 투수성을 저해하지는 않을 것으로 판단되었다. 그러나, 방사능오염토양의 입경분포의 다양성 등을 고려하여, 투수성에 저해를 줄 수 있다고 판단되는 토양 미세입자(silt, clay)를 대상으로 Co 및 Cs의 제염을 평가할 필요가 있기 때문에, 위 토양의 입경범위에 따른 투수계수를 Hazen식을 이용하여 계산하였다. 그 결과, 입경이 0.425mm이하인 토양의 투수계수가 10^{-5} cm/sec 이하로 나타나, 응결을 통한 투수성의 증대가 요구되는 것으로 판단되었다. 여기서, 투수계수 10^{-5} cm/sec 이하인 입경을 응결대상으로 선정한 이유는, 기존의 문헌(오염토양중 중금속의 칼럼용출제거, Heap leaching에 의한 중금속 및 우라늄의 제거)에서 칼럼실험 및 heap leaching 공정에서 이용한 투수성 ($10^{-2} \sim 10^{-1}$ cm/sec)을 참고하였다. 본 연구에서는, 입경이 0.425mm이하인 토양을 대상으로 응결조작을 수행하여 Co 및 Cs의 용출현상을 파악하였다.

2.3 최적 응결제 및 함량 선정

기존의 연구에서 사용된 응결제인 Starch, Vinyl acetate, Vinyl amide, Acryl amide, Sodium carboxymethylcellulose, Sodium silicate를 이용하여 토양과의 혼합비율 0.5%, 1%, 2%, 5%, 10%, 20%로 하여 수분을 적당히 가해

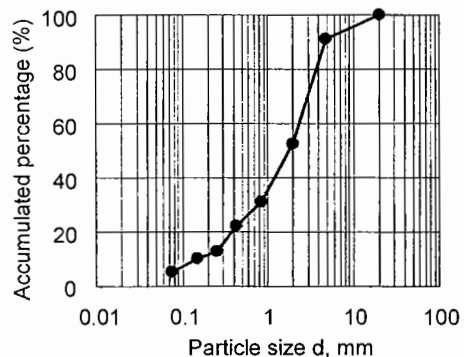


Fig. 1. Particle size distribution of the soil used in this study

주면서 응결시켰다. 응결된 토양을 건조시킨 후, 수용액에 침적시켜 응결입자의 용해(파괴) 정도를 평가하였다. 그 결과, Sodium silicate를 2% 비율로 혼합시켜 응결시켰을 때, 응결입자가 재용해 또는 파괴되지 않는 최소한의 혼합비로 조사되었다. Figure 2는 0.425mm이하의 토양을 2%의 Sodium silicate와 혼합, 응결시켜 건조한 후, 입경의 변화를 보여주고 있다. 응결에 의한 전체적인 입경의 증가가 확인되어, heap leaching 또는 칼럼실험시 투수성을 원활하게 할 것으로 여겨졌다.

2.4 응결시료의 soaking test

응결시료로부터 Co 및 Cs의 용출에 있어서, 입자의 조립화에 의한 용출액 체류시간의 증가가 요구될 것으로 판단된다. 따라서, 응결시료로부터 용출하는 Co 및 Cs에 대한 용출액의 체류시간을 평가하기 위해 Soaking test를 시행하였다. 응결 토양 70g을 0.1M의 옥살산 1,400ml에 침적시켜, 시간에 따라 10ml씩 용액을 채취하여 Co 및 Cs 농도를 측정하였다. 그 결과, 응결시료에서의 Co 및 Cs의 용출에는 1일 이상의 용출제 체류시간이 필요한 것으로 나타났고, 그때의 Co 및 Cs의 용출율은 각각 94%, 31%로 나타났다.

2.5 응결시료의 column leaching test

Heap leaching을 이용한 응결시료의 Co 및 Cs 제거를 평가하기 위해, 0.01M의 옥살산을 이용하여 칼럼용출실험을 수행하였다. 약 20여일간의 실험결과, Co는 99%이상, Cs는 44%가 용출/제거 되는 것으로 나타났다. 칼럼용출실험에서 용출액의 부피를 저감하는 것과 동시에 Co 및 Cs의 제염효율을 극대화시키는 운전조건(용출제유입/유출속도 등)의 결정이 필요할 것으로 여겨진다.

3. 결론

미세오염토양의 Co 및 Cs의 제염을 위해서는 0.425mm이하의 입경, 즉, 10^{-5} cm/sec 이하의 투수계수를 갖는 입경이 응결의 대상이 되는 것으로 조사되었다. 또한, Sodium silicate를 2% 비율로 혼합, 응결시켰을 때, 응결입자가 재용해 또는 파괴되지 않는 것으로 조사되었고, 응결에 의한 전체적인 입경의 증가가 확인되었다. 응결시료의 Soaking test를 시행한 결과, Co 및 Cs의 용출에는 1일 이상의 용출제 체류시간이 필요한 것으로 나타났고, 그때의 Co 및 Cs의 용출율은 각각 94%, 31%로 나타났다. 약 20여일간의 칼럼용출실험결과, Co는 99%이상, Cs는 44%가 용출/제거 되는 것으로 나타났다.

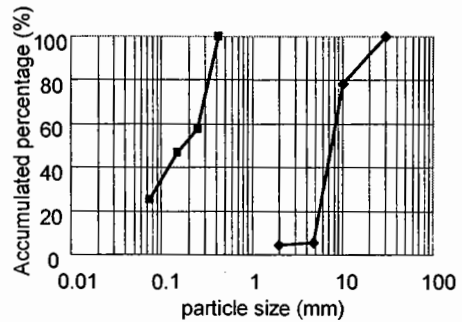


Fig. 2. Particle size distribution before and after agglomeration (less than 0.425mm)

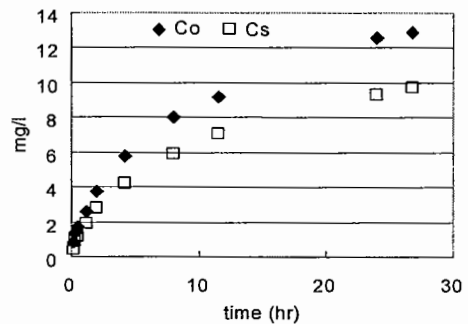


Fig. 3. Variation of Co and Cs leaching concentration from agglomerated soil by 0.1 M oxalic acid

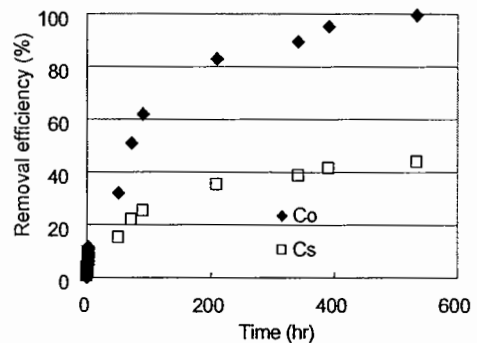


Fig. 4. Removal efficiency of Co and Cs from the column packed with agglomerated soil by 0.01 M oxalic acid

CO₂ Pellet을 이용한 원자로 상부헤드 제염 방안 연구

김병래, 박근택, 김병표

고려검사주식회사, 부산광역시 사상구 패법동 584-5

kic@koreandi.co.kr

1. 서론

경수로형 원자력발전소의 원자로 상부헤드는 수명기간동안 다양한 유지보수 및 검사작업이 필요하며, 이 유지보수 및 검사작업에 의한 방사선작업종사자의 신체오염 및 오염물질의 확산을 방지하고, 보수 및 검사 결과의 신뢰성 향상을 위해 원자로 상부헤드 표면의 제염 및 이물질제거작업은 필수적이다. 제염방법으로는 크게 습식제염과 건식제염이 있으며, 습식제염은 제염 후 액상의 부생성물을 생성하여 2차 폐기물을 발생시키고 제염시 사용한 액체를 완전히 제거하지 않으면 설비에 부식 등의 영향이 있을 가능성이 있으므로, 여기서는 최근에 주목받고 있는 건식제염방법 중 하나인 CO₂ Pellet 고압분사 방법을 이용하여 설비에 영향을 주지 않는 원자로 상부헤드 표면 제염 방안을 연구하고자 한다.

2. CO₂ Pellet을 이용한 제염원리

아래와 같이 CO₂ Pellet 분사장비(그림 1)에서 고압공기에 의하여 고속으로 분사된 CO₂ Pellet이 그림2와 같이 제염대상물의 표면에 충돌하면 CO₂ Pellet의 성질(비중: 1.529, 공기보다 약 1.5배 무겁기 때문에 밑으로 가라 앉는다. 경도 : 2mohs, 광물 10등급 중 2등급인 석고와 같다.)을 이용하여 표면의 오염물질을 초저온(-78.5℃)으로 급속 동결시키게 되고 오염물질의 주변온도 차이에 의해 수축되면서 수많은 균열을 일으킨다. CO₂ Pellet은 그 균열을 통하여 오염물질 사이로 침투됨과 동시에 승화하면서 부피가 800배 이상 팽창하여 오염물질만을 위로 들어올리며, 초저온으로 동결된 오염물질들은 CO₂ Pellet 분사장비의 풍압(허용공기 압력 : 0Kg/cm² ~ 9.8Kg/cm²)에 의해 표면에서 쉽게 분리되는 원리를 이용한다.

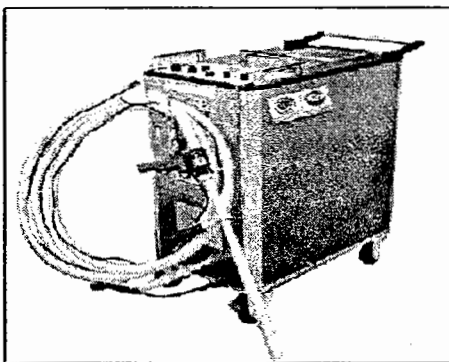


그림1. CO₂ 제염장비

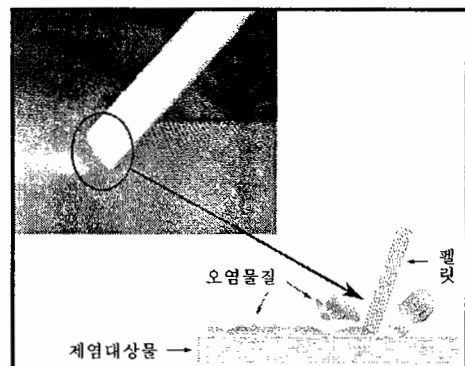


그림2. CO₂의 제염원리

3. 제염실험

CO₂ Pellet을 고압분사하는 제염장비를 이용하여 오염된 원자로 상부헤드 표면을 대상으로 실험하였다. 제염전 원자로 상부헤드 표면의 표면오염도는 최대 25.2 Bq/cm² 측정되었다. 제염 방법으로는 건식제염방법 중 하나인 CO₂ 제염장비를 이용 고압공기에 의하여 고속으로 분사된 CO₂ Pellet이 표면의 오염물질을 제거하는 방식으로 제염작업을 수행하였으며, 그 결과 표면오염도는

최대 1.86 Bq/cm^2 로 측정되어 오염은 제거된 것으로 나타났다.

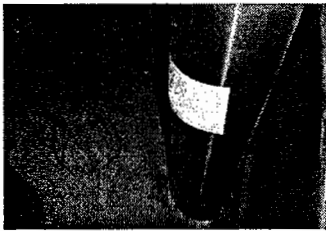


그림3. 제염 전

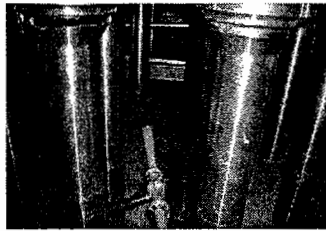


그림4. 제염 중

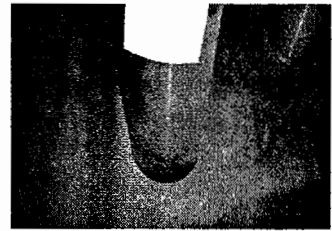


그림5. 제염 후

4. 결론

CO_2 Pellet을 이용하는 제염장비는 방사선작업종사자가 접근 불가능한 원자로 상부헤드 표면 중심부까지 제염하고 이물질 제거함으로써, 원자로 상부헤드 유지보수/검사작업으로 인한 방사선 작업종사자 신체오염 및 오염물질의 확산을 방지하는데 뛰어난 효과를 보는 것으로 나타났다. 향후 원전 및 원자력관련 시설 방사선관리구역내의 구조물 가운데 육안으로 확인 가능하나 접근이 불가능한 곳의 제염 및 이물질제거 작업에 사용되리라 기대되어 진다.

제염작업시 작업자가 접근 불가능한 곳의 오염물질 비산방지 대책은 계속 연구되어야할 과제이다.

에폭시 수지를 이용한 방사선 측정 및 검출 신호전송용 센서 제조에 대한 연구

박찬희, 서범경, 이근우, 이동규, 정종현

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150)

chpark80@kaeri.re.kr

연구용 원자로 1,2호기 및 우라늄변환시설의 해체 사업이 진행되고 있는 현재, 해체 작업 중 발생하는 폐기물의 오염도 측정과 안전성 관리를 위하여 보다 효과적인 방사선학적 측정 및 평가가 필요하다. 해체 폐기물의 오염도를 평가하기 위해 국내·외에선 이미 다양한 측정기술을 개발하고 있으며, 특히 국내에서는 협소하고 측정이 어려운 지역의 오염도를 직접 측정하기 위하여 원격 측정 기술을 개발하였고, 해체 현장에서 적용 시험을 수행하였다. 이는 각 오염도 특성에 맞게 적합한 섬광체를 적용하여 검출기를 제작 및 측정하는 기술이다. 이 기술은 섬광체와 광전자증배관 (photomultiplier tube, PMT)을 결합하여 측정하는 것인데, 현재까지는 소형으로 적용할 수 있는 PMT가 없기 때문에 국소지역의 오염도 측정용으로는 적합하지 않다.

현재 이런 문제를 보완하기 위하여 섬광체와 광섬유를 결합시켜 소형의 센서로 제조한 후, 센서 내에서 발생된 신호를 원격으로 전송하여 PMT로 측정하는 연구가 진행되고 있다. 생성된 신호를 원격으로 전송하기 위하여 광섬유를 이용하였는데, 이미 국내에서는 상용화된 플라스틱 섬광체와 유리광섬유를 이용한 오염도 측정 및 특성을 평가하여 원격 검출 장치로써의 가능성을 확인한 바 있다. 또한 에폭시 수지와 유기섬광체를 이용하여 검출소재를 직접 제조하고, 광섬유와 결합하여 신호를 전송하는 기술을 개발하였다. 제조된 섬광검출소재와 광섬유는 일반적인 FC connector를 이용하여 결합되었는데, 이 방법에서 검출소재와 광섬유사이의 접합면에서의 광 손실 및 접촉 불량 등으로 인한 문제점이 노출되었다.

본 연구에서는 에폭시 수지에 유기섬광체를 첨가하여 경화되기 전에 광섬유를 에폭시 수지 내부에 박아서 고정화하여, 검출소재와 광섬유를 일체형으로 제조하였다. 섬광체 재료로 쓰인 에폭시 수지(YD-128)는 국도화학제품으로 Bisphenol-A와 에피클로로하이드린을 알카리 존재 하에서 반응시킨 비교적 저분자량으로 상온에서 액상 상태이다. YD-128은 제조시 polyamide, aromatic polyamine, aliphatic polyamine, anhydride compound와 같은 다양한 경화제들과 함께 경화된 후, 희석액과 그 외의 첨가물질을 혼합하여 액체 상태의 에폭시 수지로 형성된다. 에폭시 수지는 점착력과 화학적 내구성, 열에 대한 저항성이 우수한 장점으로 여러 분야에서 응용되고 있다.

본 연구에서는 에폭시 수지(YD-128)에 에폭시 수지의 점도 감소 및 가소성을 부여하는 반응성 희석제인 PG-207(국도화학)과 도료 및 일반 몰딩용으로 쓰이는 경화촉진제 D-230(국도화학)를 일정 비율로 섞고, 유기섬광체를 혼합하여 제조하였다. 섬광체로는 베타선 측정이 가능한 2가지 용질을 첨가하였는데, 제1용질로는 2,5-diphenyloxazde(PPO)를 그리고 wave shifter인 제2용질로는 1,4-bis[5-phenyl-2-oxazol]benzene(POPOP)를 첨가하였다. 제조된 섬광검출소재의 투명도와 경도, 경화되는 속도, 지지체와의 분리 용이 등에 따른 에폭시 지지체를 선정하였는데, polyethylene 재질의 bottle을 이용하였다.

전송용 광섬유로는 플라스틱 광섬유를 선정하였는데, 이는 유리광섬유보다 광학적인 특성과 가공성이 우수하고, 단면적 대비 core의 비율이 매우 커서 빛 전달 효율이 매우 높은 장점을 가지고 있다. 본 연구에 사용된 전송용 광섬유는 Edmund optics사의 플라스틱 광섬유로써 고순도 아크릴 레진(PMMA:Polymethylmethacrylate)으로 된 core와 특수 불소 폴리머(F-PMMA:Florine Polymethyl methacrylate)로 만들어진 cladding으로 구성되어 있다. Table 1은 전송용 광섬유의 일반적인 특성을 나타내고 있다. 중심을 잡기 위해 직경 4mm인 소형 pipe에 광섬유를 고정시키고 삽입될 광섬유 단면을 polishing한 후, 제조물이 혼합된 직후 박아 넣고 상온에 24시간 보관하여 고정화시켰다. Fig. 1은 섬광검출소재의 제조과정을 나타내고 있다. 광섬유의 끝단과 함께 고정화

된 검출소재로부터 발생된 광신호는 광섬유를 통하여 PMT(Hamamatsu, head-on type : R1924A)로 전송되고, 전기적신호로 변환된 광신호는 MCA(Multi Channel Analyzer)에 의해 측정, 분석된다.

Table 1. Physical properties of the optical fibers

Core Refractive Index(n_1)	1.490
Clad Refractive Inde(n_2)	1.402
Numerical Aperture($(n_1^2 - n_2^2)^{1/2}$)	0.50
Max. Attenuation(dB/m)	0.20
Acceptance Angle($2\sin^{-1}[\text{N.A.}]$)	60°
Operating Temperature	-55℃ to +70℃
Minimum Radius of Bend	75

전송용 광섬유와 일체형으로 제조된 섬광체는 ^{137}Cs 감마선원과 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 베타선원에 적용하여 출력되는 펄스 파고 스펙트럼을 분석하였고, 고정화된 검출소재와 광섬유간의 신호전송량을 측정하기 위하여 예폭시 검출소재 밑단으로부터 5, 15, 25mm씩 차이를 두고 광섬유를 고정시켜 차이를 분석, 평가하였다.

본 연구에서는 소형의 섬광검출소재와 광섬유를 일체형으로 제작하여 협소하고 측정이 까다로운 지역의 방사선 오염도를 원격으로 측정할 수 있는 검출기를 개발하였고, 이에 적합한 검출 성능을 확인하였다. 또한 작업자의 안전성 확보 및 작업 시간을 단축할 수 있는 원격장치개발의 가능성도 확인하였다.

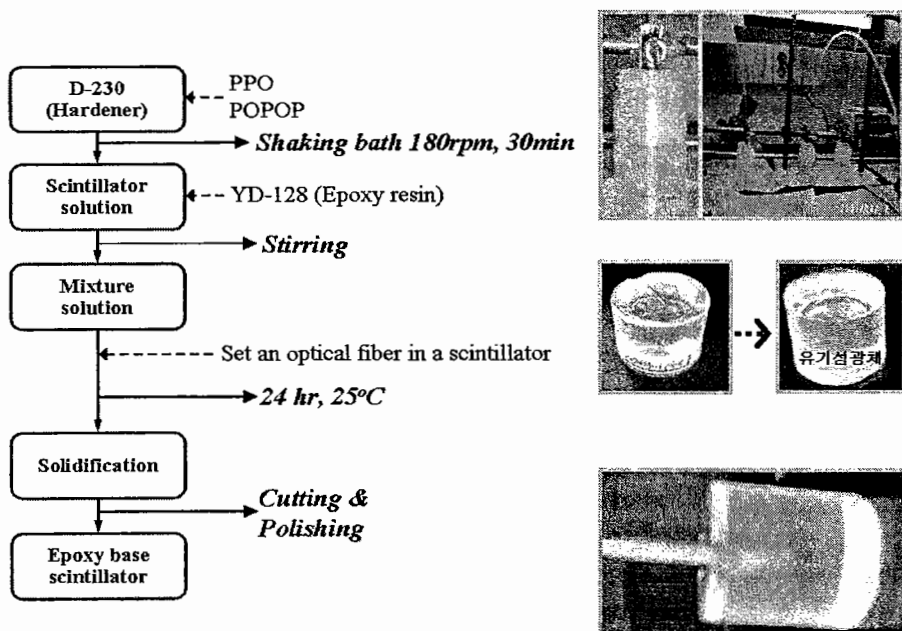


Fig. 1. Preparation procedure of plastic scintillator sensor.

유화중합에 의한 알파 오염도 검출 소재 제조에 관한 연구

황호상, 최승락, 이근우, 서범경, 정중헌

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150)

hshwang@kaeri.re.kr

고방사성으로 오염된 시설 표면의 핵종 제거는 안전과 환경적인 영향을 고려하여 오염도의 검출, 제거 및 방지에 대한 새로운 접근방법이 필요하다. 이런 처리방법은 오염물의 농도와 존재를 검출하고 보다 안전한 방사선학적인 오염 특성을 평가하기 위해 개발되어야 한다. 일부 적용사례가 있지만 방사능으로 오염된 표면에 부착성을 갖는 고분자를 분사시켜 핵종을 포집, 제거하고 검출할 수 있는 소재 개발은 아직 미흡한 상태이다. 이를 위해 고분자 에멀전에 섬광 (scintillation)을 일으킬 수 있는 성분을 첨가함으로써 그 각각의 물성을 동시에 나타낼 수 있는 복합 소재 제조 기술은 여러 응용이 가능할 것으로 본다. 물을 분산매로 고분자 에멀전을 제조하는 유화중합은 물을 용매로 사용하기 때문에 환경문제가 없으며 화재와 폭발의 위험성이 없고 높은 분자량과 빠른 중합속도와 반응물의 점도가 낮아 혼합이 용이하고 반응물을 균일하게 분포시킬 수 있기 때문에 그 수요가 매년 증가하고 있는 실정이다.

본 연구는 섬광체와 결합된 고분자 에멀전을 중합하고 알파 핵종과의 반응으로 오염도를 측정하기 위한 검출소재 제조에 관한 것으로, 고분자 에멀전의 응용 시 기계적 안정성이 우수하고 중합 중 새로운 입자의 생성이 적은 polymethyl methacrylate (PMMA)와 플라스틱섬광체의 용매로 널리 이용되는 polystyrene (PSt) 고분자를 유화중합으로 제조하고 여기에 유기섬광체 (organic scintillation)을 함침시켜 알파선 검출 성능을 확인하였다. 중합에 사용된 단량체인 methyl methacrylate (MMA)와 styrene (St)를 10 wt% NaOH에 3번, DI water에 3번 세척하고 감압증류하여 사용하였으며 개시제로는 ammonium persulfate (APS)를 정제없이 사용하였고, 중합 시에 사용된 물은 탈이온수 (deionized water)를 사용하였다. 유기섬광체는 입사방사선의 에너지를 흡수 및 발광, 짧은 광 파장으로 용매 내에서 흡수하는 특성을 가진 2,5-diphenyloxazde (PPO)를 제 1 용질로 그리고 파장 이동체인 제 2용질은 1,4-bis[5-phenyl-2-oxazol]benzene (POPOP)를 사용하였다.

Fig. 1은 실험에 사용한 실험장치를 나타낸 것으로, 4구 유리 반응기 및 온도 조절기, 모노머 에멀전을 연속적으로 적하하기 위해 사용한 적하 용기 (dropping funnel), 증발되는 물을 환류시킬 수 있는 응축관 (condenser)으로 구성되었다. 탈이온수에 모노머를 소량씩 첨가하여 pre-emulsion을 제조하고, 그 pre-emulsion의 일부를 이용하여 seed를 만든 다음 나머지 모노머를 주입하여 core polymer를 제조하였다. 그 다음에 core polymer를 2.0 wt%로 희석하여 질소 가스로 30 분간 purging하여 반응기내의 용존산소를 제거하고 85 °C로 승온시킨 후 styrene과 유기섬광체 PPO, POPOP 그리고 개시제 0.5 wt% 수용액을 5시간에 걸쳐 주입하여 중합반응을 진행시켰으며 주입이 끝난 후 1 시간 가량 잔류 단량체를 제거하기 위해 숙성 반응 시켰으며 실험절차는 Fig. 2와 같다.

방사선 검출 특성을 평가하기 위하여 알파선 핵종으로 오염된 표면에 유기섬광체와 결합된 에멀전을 도포하여 건조시킨 후에 표면으로부터 고형화된 에멀전을 제거하여 시편을 제조하였다. 제조한 시편은 방사선과 에멀전에 함침된 섬광체의 상호작용에 의하여 생성된 섬광을 광전자증배관으로 측정하여 검출 특성을 평가하였다.

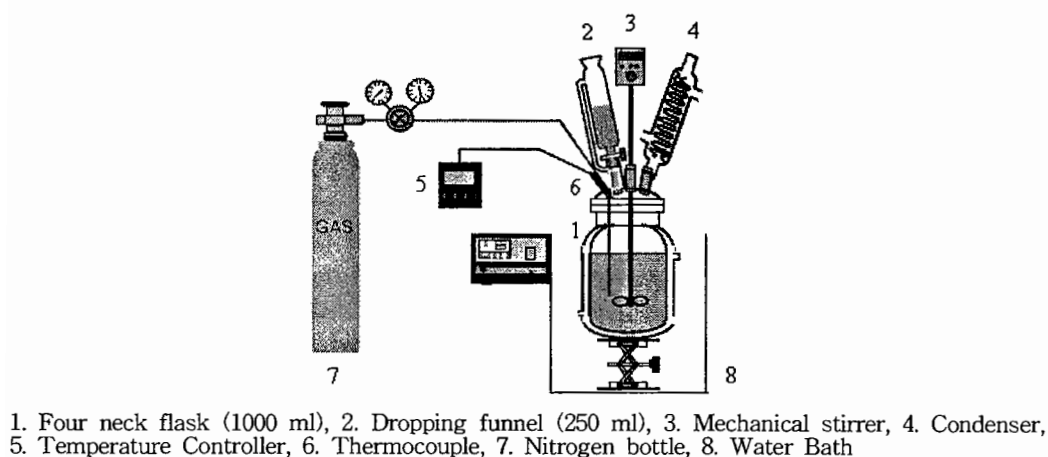


Fig. 1 Schematic diagram of experimental apparatus for emulsion polymerization

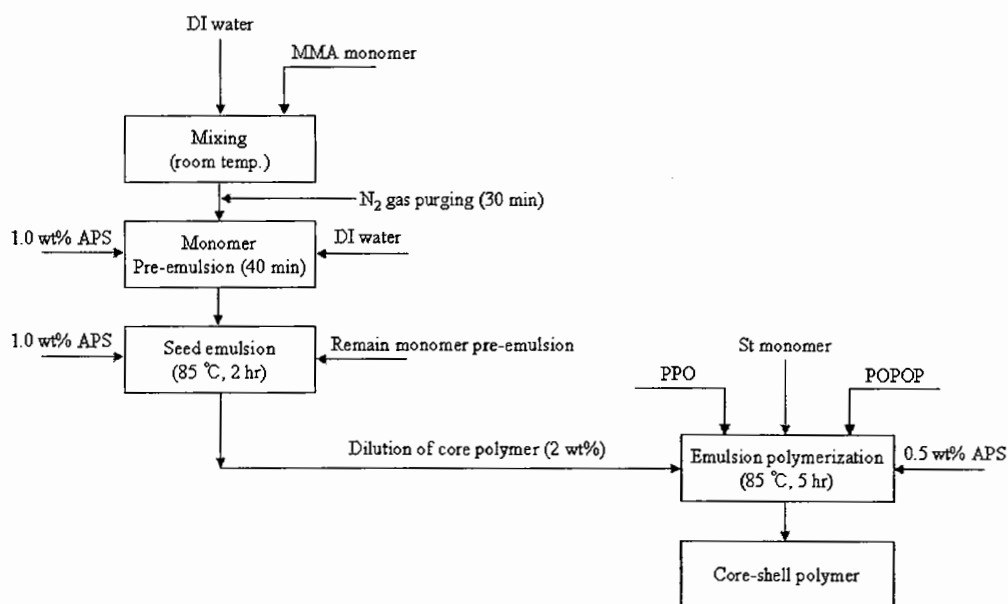


Fig. 2 Block diagram on the experimental method of emulsion polymerization

원자력시설 오염표면의 핵종제거용 고분자 에멀전의 제조 및 핵종 포집 특성

최승락, 황호상, 이근우, 서범경, 정중현

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

srchoi@kaeri.re.kr

원자력시설의 해체 시에는 오염 특성 평가와 더불어 시설이나 장비 표면의 오염 핵종 제거가 주된 일이다. 일반적인 제염은 물리/화학적인 방법을 이용하게 되나, 이들 방법은 복잡한 장치와 작업자의 노력이 요구되며, 제염 시에 작업자의 피폭 또한 피하기 어렵다. 때문에 좀 더 편리하고 작업자의 피폭을 예방할 수 있는 새로운 제염 방법이 필요하다. 이러한 관점에서 최근에 고분자 소재를 이용하여 시설의 표면에 도포한 후에 고형화 하여 제거함으로써 흡착된 오염물을 제거하기 위한 방법이 연구되고 있다. 특히 이러한 방법은 저비용으로 오염된 시설 및 장비에 비교적 쉽게 적용이 가능하고, 오염된 장비나 시설에 적용 후 2차 폐기물의 발생이 적다는 이점이 있다.

이 기술을 제염해체 분야에서 사용하기 위해서는 마찰마모에 대한 표면 저항력이나 금속성 기질에 점착하기 위한 코팅의 점착성, 환경적인 요소에 따른 인장강도 등 일정 요구조건을 충족시켜야 하는데, 이에 따른 평가를 위해 FIU-HCET에서는 상업적으로 이용 가능한 8개의 코팅을 선정하여 ASTM의 기준에 따라 그 적용성을 시험하였다.

제염해체를 위해 요구되는 조건 중 가장 중요시 되는 것은 오염된 지역의 핵종 포집과 오염된 장비 및 시설에 점착 또는 탈착이 용이해야 한다는 것인데 이는 코팅 용액의 농도에 의존하는 경향이 있다. 낮은 농도로 제조된 코팅은 핵종 포집력을 어렵게 할 뿐만 아니라 표면에 대한 점착력을 저하시켜 오염지역에 대한 제염효과를 떨어뜨리게 하고, 높은 농도로 제조될 시 코팅의 핵종 포집력은 향상될지 모르나 표면에 적용 후 건조과정에서 시간을 늦추게 하게 하여 탈착을 어렵게 할지도 모른다. 때문에 코팅은 그 제조과정에서 제조 소재별에 따른 적절한 농도 배합이 중요시 되어야 할 것이다. 이에 따라 본 연구에서는 오염 지역에 적용이 쉬운 water-based 형태의 고분자 소재를 선정하고 농도변화를 주어 에멀전 형태의 코팅 용액과 monomer 중합반응을 통한 에멀전 형태의 코팅 용액을 제조하여 핵종 포집 특성을 평가하였다.

실험에 사용된 고분자 소재로는 poly(vinyl alcohol) (PVA)와 poly(vinyl pyrrolidone) (PVP)로, PVA는 물에 잘 녹고 수분 증발에 의해 간단히 coating이 형성되며 여기에 PVP를 혼합하게 되면 표면에 대한 점착성이 향상되고 오염된 장비 및 시설에 적용 후 제거 시에는 coating의 찢어짐이 감소하게 된다. monomer 중합반응을 통한 에멀전 제조에 따른 소재로는 methyl methacrylate (MMA)와 에멀전 표면에 작용기를 형성하기 위해 sodium dodecyl-benzenesulfonate (SDBS)를 사용하였다. 에멀전의 크기와 표면 전하밀도에 따른 핵종 포집 및 제거 특성을 비교평가하기 위해 각 소재별로 농도 변화를 주어 에멀전을 제조하였다. 제조된 에멀전 용액에 코발트 핵종을 넣어 반응시킨 후 0.2 μ m 필터를 이용하여 코발트 핵종을 여과한 후 원자흡광광도계 분석을 통해 여과 전/후의 코발트 핵종 농도를 측정하였다.

측정결과, 다소 미흡하지만 농도 변화가 있다는 것을 알 수 있었고, 이것은 고분자 소재별 코팅 용액이 핵종을 포집한다는 것을 의미한다. 하지만 CoCl_2 농도의 변화가 낮다는 것은 고분자 소재의 농도가 낮았다는 것을 나타내므로 향후 각 고분자 소재에 대한 다양한 농도변화를 주어 에멀전을 제조하는 실험을 수행하여 코발트 핵종 포집 특성을 향상시켜야 할 것으로 보인다.

국내 D-UF₆ 재고 및 향후 처리 개념

최윤동, 이규일, 황성태, 황두성, 정운수
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지
vdchoil@kaeri.re.kr

1. 서론

D-UF₆는 핵연료를 제조하는 과정에서 부수적으로 생산되는 물질로서, 후행핵연료물질로서 이용 가치가 있는 물질이다. 그러나 후행 핵연료주기를 고려하고 있지 않는 우리로서는 언제까지나 D-UF₆를 보관해둘 수는 없는 실정이다. 더욱이 D-UF₆는 부식성이 매우 강하고 승화성이 큰 물질로서 장기저장을 위해서는 안정한 화합물 형태로 변환시켜서 저장되어야 한다. U-금속, UF₄, UO₂, 또는 U₃O₈형태가 공기 중에서 안정한 화합물이나 UF₄는 불소화합물이라는 점에서 장기저장을 위해서는 바람직하지 못하다. 현재 미국에서는 1950년대 이후부터 생산되어 저장하고 있는 D-UF₆는 매우 방대한 양으로 약 70만 톤에 이르고 있으며, 2000년 이후부터 이를 처리하여 유용하게 이용하기 위한 대책과제가 수행되어 왔다. 또한 기획에 따른 환경영향현황을 분석한 결과를 바탕으로 미국 내 모든 D-UF₆는 U₃O₈로 변환시킨 후 처분시킨다는 계획을 수립하고[1] 이를 위한 변환공장을 새로이 건설 중에 있다. 우리나라에는 1983년에 자원 확보 일환으로 우리나라 소유분 D-UF₆ 약 185톤이 미국으로부터 도입된 바 있으며, 이 중 일부는 연구용으로 이용되었으며 현재 약 183톤이 남아있다. 남아 있는 D-UF₆는 모두 15톤 크기 용기(48Y 실린더) 14개에 담겨져 옥외에 보관 중이며, 가까운 시일 안에 옥내 보관을 계획하고 있다. 그러나 궁극적으로 D-UF₆는 안정한 화학종으로 변환시켜서 저장 또는 처분하여야 하며, 이를 위한 충분한 논의와 향후 처리 방안에 대한 대비가 필요하다. 따라서 D-UF₆ 처리에 대한 미국에서의 경우를 분석하고, 이를 토대로 국내 D-UF₆에 대한 적절한 처리방안을 수립하는데 기여하고자 한다.

2. D-UF₆ 및 감손우라늄 화합물 특성

국내 보관 중인 D-UF₆는 약 183톤이며, 현재 옥외에 저장하고 있다(Fig 1.참조). D-UF₆는 화학 반응성이 매우 크고 공기 중에서는 수분과 반응하여 UO₂F₂와 HF를 생성한다. 또한 D-UF₆는 승화성 물질로서 쉽게 공기 중으로 확산된다. 따라서 D-UF₆는 그림에서 보듯이 일정 규격의 표준화된 저장 용기에 보관하며, 용기 재질인 탄소강 외부 부식을 막기 위한 주기적인 도색 등과 같이 지속적 관리가 필요하다.

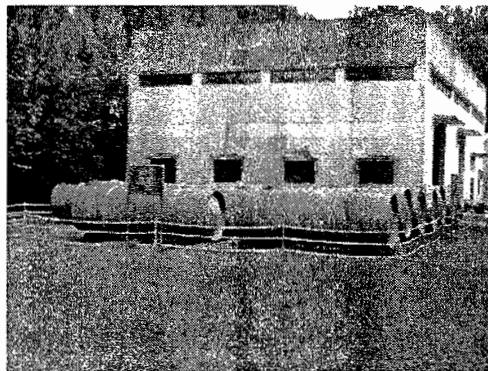


Fig 1. D-UF₆ stored in the field

전 세계적으로 감손우라늄(DU) 대부분은 미국, 러시아, 프랑스 순으로 많은 양을 가지고 있으며, 이중 프랑스는 U_3O_8 형태로 저장하고 있다. 지금까지 이용되어온 감손우라늄(DU)에 대한 용도로는 미래-농축원료, 핵연료(예, 6%Pu 와 94%DU), 고농축우라늄 회석제, 군수품(DU 금속 관통자), 차폐체, 그리고 평형-중량체 등이 있으며, 다량의 감손우라늄(DU)이 요구되는 방사성물질저장을 위한 고밀도 콘크리트 제조에 사용, 그리고 사용-후 핵연료에 대한 핵-임계 가능성을 줄이고 아울러 방사선 차폐를 위한 DU 산화물의 이용 등이 있다[2]. DU 이용성에 대한 많은 연구가 있었으며, 그 중 몇 가지는 산업적으로 이용된 바 있다. 그러나 DU가 비록 저준위라 할지라도 방사성물질이기 때문에 이용성에 한계가 있다.

한편, DU 변환생성물을 포장하거나 운송, 저장, 또는 처분하는 데는 이들의 물리화학적 특성에 따라 그 취급 및 처리방법이 결정된다. DU 변환생성물에 대한 물리화학적 특성을 표1에 요약하였다[3]. 안정한 DU 화합물로는 표1에서 보듯이 산화물 형태로서 장기 저장을 위해서는 산화물형태가 가장 유리하다.

Table 1. Physicochemical properties of depleted uranium compounds

	Bulk density ^a (g/cc)	Solubility in water	Chemical reactions ^b
DU metal	19	Insoluble	Reacts slowly with moisture to form oxides in the presence of oxygen; condensed moisture promotes generation of H_2
DUF_4	2.0-4.5	Very slightly soluble	Reacts slowly with moisture to form DUO_2 and HF and eventually other oxides and minerals
DUO_2	2.0-5.9	Insoluble	Powder only can be pyrophoric in air Reacts very slowly with oxygenated water to yield more stable oxides and minerals
DU_3O_8	1.5-4.0	Insoluble	Reacts very slowly with oxygenated water to yield more stable uranium minerals Product tend to be a fine particulate or powder

^aBased on data obtained from Duerksen et al.(2000) and Dubrin et al.(1997)

^bBased on data obtained from Biwer et al.(2000) and DOE 1999a

3. 결론

현재, 국내 D- UF_6 에 대한 뚜렷한 이용계획이 없으며 언제까지나 D- UF_6 형태로 보관 관리 할 수는 없다. 따라서 새로운 사용처를 찾기 전까지는 보다 안정한 형태로 변환시켜서 보관되어야 한다. 미국에서는 D- UF_6 를 가능한 빠른 시일 내에 안정한 U_3O_8 로 변환시킨 후 처분하는 방안을 추진 중에 있으나, 우리나라의 경우 D- UF_6 의 양이 한정된 적은 양이기 때문에 처분에 대한 고려가 그다지 중요하지 않으며 안정한 U_3O_8 로의 변환 또는 이의 장기 저장에 대한 환경영향에 대한 분석이 필요하다.

참고문헌

- [1] DOE/XIS-0359-SA1 and DOE/EIS-0360-SA1, March 2007, "Daft Supplement Analysis for Location(S) to Dispose of Depleted Uranium Oxide Conversion Product generated from DOE's Inventory of Depleted Uranium Hexafluoride"
- [2] R. R. Price, M. J. Haire, and A. G. Croff, "Depleted-Uranium Uses R&D Program" Waste Management 2001 Symposium Tucson, Arizona February 25 - March 1, 2001
- [3] A. G. Croff, J. R. Hightower, D. W. Lee, G. E. Michaels, N. L. Ranek, and J. R. Trabalka, "Assessment of Preferred Depleted Uranium Disposal Forms" ORNL/TM-2000/161

Chemical Decontamination with Ultrasonic of Dismantled Metal Waste

D.S. Hwang ^a, H.W. Seo ^b, K.I. Lee ^a, Y.D. Choi ^a, U.S. Jung ^a

^a Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeok-daero, Yuseong, Daejeon 305-353, Korea.

^b HPS,202-4, Anyang-7dong, Manan-gu, Anyang, Kyonggi-do

Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI) started a decommissioning program of the uranium conversion plant. In 2004, pre-work was performed as follows: repair of electrical power supply system, inspection and repair of fire alarm and fighting system, installation of ventilation system, radiation management and access control facility, inspection and load testing of crane, distribution and packaging of existing waste, and pre-decontamination of the equipment surface and interior. Dismantling started first from the reuse area such as temporary waste storage and the decontamination and lagoon sludge treatment. And then, we dismantle in the order of the most remote room from the waste treatment area. Order of dismantling work is as follows: disconnecting of pipe and electric wire, separation of the equipment, cutting into small pieces, grouping of the dismantled pieces for decontamination or packing, decontamination of floor and wall, and measurement of remained contaminants. Now, dismantling was completed of 25 rooms in the 27 rooms. The rest 2 rooms are ventilation and spare parts storage rooms. Dismantled metal wastes are 179 ton and stainless steel wastes are 73 ton. These are cut into small pieces by cutting equipment such as nibbler, band saw, wheel saw, and plasma cutter to decontaminate. This paper introduced chemical decontamination with ultrasonic of stainless steel waste.

Samples were taken from tanks and pipes as a property of uranium conversion process. The chemical composition of uranium was uranium dioxide, ammonium uranyl carbonate (AUC), and uranyl nitrate hexahydrate (UNH) as the process. The plate samples were cut by using a nibbler as a size of 20 by 20 cm and the pipes were cut by a pipe cutter as a size of 20 cm. Experimental equipment consists of decontamination tanks and ultrasonic generator. The tank size is 500 L. 10 wt% of nitric acid was used as a decontamination chemical and was circulated in the tank through a filtration system. Decontamination was performed at 50 °C with time and samples were rinsed out with steam after chemical decontamination. Contamination was analyzed by a MCA with HPGe detector (Canberra).

Dismantled metal waste is contaminated with uranyl nitrate, ammonium uranyl carbonate, and uranium oxides. The plates contaminated with UNH or AUC can be decontaminated less than conditional release criteria, 0.2 Bq/g of alpha in 10 minutes. It is estimated that the plate contaminated with UNH or AUC can be decontaminated easily. The plate contaminated with uranium dioxide can be decontaminated less than 0.2 Bq/g of alpha in 60 minutes. Uranium dioxide doesn't dissolve easily in a low concentration nitric acid. So, it is estimated that the decontamination of plate contaminated with uranium dioxide need a time over 60 minutes. Pipe was decontaminated as plate and it will be expected that decontamination agent didn't circulate inside the pipe. So, contamination after decontamination was measured after cutting in half the pipe. The pipe contaminated with AUC can be decontaminated less than 0.2 Bq/g of alpha in 30 minutes. It is confirmed that the pipe also can be easily decontaminated as the plate.

However, most dismantled stainless steel waste was not decontaminated in short time of 10 minute or 30 minute. Some dismantled waste such as waste storage tank took 1 hour to decontaminate less

than 0.2 Bq/g. Figure 1 shows SEM picture of metal surface before and after decontamination. Radioactivity of metal waste after decontamination in 10 minute and 30 minute (total 40 minute) is 1.59 Bq/g and 0.21 Bq/g, respectively. It could be confirmed that contaminant exist on the metal surface as shown figure (b) and (c). Radioactivity of third decontamination (total 70 minute) is 0.12 Bq/g.

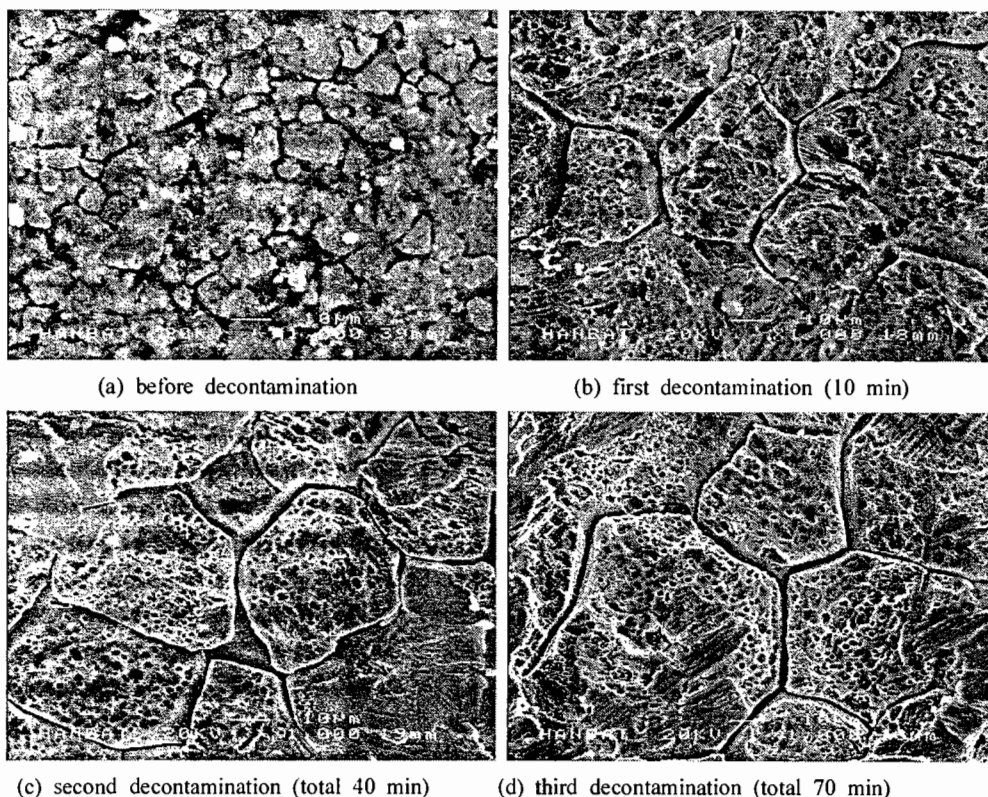


Figure 1. SEM picture of metal surface before and after decontamination

Table 1 is a result of the first decontamination for 1 week (5 batch/day) regardless of contamination characteristics as decontamination time. Therefore, stainless steel wastes can be decontaminate over 85 % with first decontamination in 1 hour and these are being decontaminated in this condition now.

Table 1. Pass-rate with first decontamination as decontamination time

Decontamination time	Pass-rate with 1st decontamination
10 minute	66 %
30 minute	68 %
60 minute	85 %

연구로 2호기 차폐콘크리트의 방사능재고량 평가 및 상관관계 도출

홍상범, 정경환, 강문자, 이기원, 박진호, 정운수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150-1)

sbhong@kaeri.re.kr

수명을 다한 원자력시설의 제염·해체의 단계를 맞이하여 시설의 해체과정에서 다양하고, 많은 양의 해체폐기물이 발생된다. 원자력시설의 해체를 준비하거나, 해체된 폐기물의 관리 및 처분을 준비하는 단계에서 핵종별 재고량을 평가를 반드시 수행하여야 한다. 연구로 2호기 차폐콘크리트의 경우 중성자에 의해서 방사화되어 다양한 핵종이 생성된다. 연구로 2호기는 2005년 말에 해체가 완료되었다. 이 과정에서 방사성폐기물이 상당량 발생하였으며, 폐기물을 최종 처분하기 위해서는 인도규정에서 정하고 있는 다양한 핵종에 대한 분석이 수행되어야 한다. 감마방출핵종의 경우 측정이 용이하지만, 베타 및 알파방출핵종의 경우 분석에는 많은 시간과 비용이 소요되어 국내 외에서 폐기물 별로 핵종간의 상관관계를 이용하여 척도인자를 적용을 위한 연구가 활발하게 진행되고 있다[1]. 본 연구에서는 연구로 차폐콘크리트의 시료를 깊이별로 채취하여 감마선방출핵종에 대한 분석을 수행하고, 순베타방출 핵종인 H-3, C-14, Fe-55 및 Ni-63에 대한 농도를 측정하여 상관관계를 도출하고, 그 결과를 바탕으로 향후 폐기물 처분을 위한 기초자료로 활용하고자 한다.

방사화 콘크리트 시료내의 Total H-3 및 C-14의 분석을 위하여 산화연소법을 적용하였다. 분석을 위해 Tube Furnace (Pyrolyser 6TM)를 이용하였으며, 연소과정동안 Bubbler를 이용하여 H-3는 HNO₃(0.1M)에 포집하며, C-14는 Carbosorb에 포집하여 섬광액(Gold star)과 일정비율로 혼합하여 액체섬광계수기(Liquid Scintillator Counter(Wallac 1220 Quantulus))를 이용하여 분석하였다. Fe-55와 Ni-63의 분석을 위해 추출크로마토그래피법과 액체섬광계수법을 이용하여 연구용 원자로 해체시 얻어지는 콘크리트 시료중의 Fe-55와 Ni-63의 방사능을 분석하였다. 콘크리트 시료는 우선 산용액으로 용해 후 Fe는 일련의 분리 및 정제 과정을 거쳐 DIBK (Diisobutylketone) 수지를 채운 추출 크로마토그래피법으로 분리하고, Ni는 DMG(Dimethylgly oxime) 수지의 추출 크로마토그래피법으로 분리, 정제하였다. 분리된 Fe-55 및 Ni-63은 계측을 위해 섬광액과 일정비율로 혼합하여 액체섬광계수기를 이용하여 방사능을 측정하게 된다.

시료는 연구로 2호기 전단부 차폐 콘크리트 내에 Thermal Column 주변이 가장 방사화가 많이 되었을 것으로 예상되어 그 주변의 높이 90cm (핵연료와 동일한 높이)에서 내부표면에서부터 1m 까지 10cm 단위로 시료를 채취하였다. 채취된 시료는 우선 감마선방출핵종에 대한 분석을 수행한 결과 Co-60, Eu-152가 주로 검출되었고, 방사능 준위가 상대적으로 높은 차폐콘크리트 내부에서 Cs-134, Eu-154가 검출되었다. 깊이별 방사능 분포는 지수 적으로 감소하는 형태를 보여주었다. H-3의 경우 내부표면에서 최대 1690 Bq/g이 검출되었으며, C-14의 경우 매우 미량이 검출되었다. Fe-55의 경우도 최대 362Bq/g까지 검출되었다. 그러나 Ni-63은 모든 시료에 대하여 MDA이하의 결과를 보여주었다.

상관관계도출을 위하여 감마선방출핵종 중에서 Co-60의 경우 깊이별 방사능 감쇄형태가 비슷하며, 전 영역에 걸쳐 검출되었기 때문에 주핵종(Key Nuclide)로 선정하여 H-3, C-14 및 Fe-55의 상관관계를 그림 1에 제시하였다.

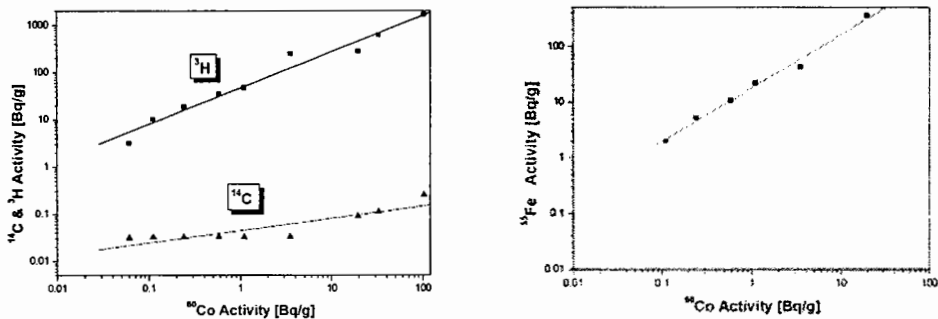


그림 1. 연구로 2호기 차폐콘크리트의 깊이에 따른 핵종별 상관관계

위에서 도출된 상관관계를 바탕으로 척도인자를 도출하였다. 일반적으로 척도인자 적용을 위해 다양한 방법이 적용되나, 일반적으로 기하평균(Geometric Mean)을 적용하고 있어 본 연구에서도 기하평균의 방법을 적용하여 척도인자를 도출하였다.

표 1. 핵종별 상관계수 및 척도인자 도출

Key nuclide	DTM nuclide	Correlation Coefficient	Range of DTM/KEY nuclides	Scaling Factor (Geometric Mean)
Co-60	H-3	0.983	1.4E+01 ~ 9.4E+01	2.4E-02
	C-14	0.884	2.0E-3 ~ 5.0E-01	3.5E+01
	Fe-55	0.985	1.2E+01 ~ 2.1E+01	5.5E-02

연구로 2호기 해체과정에서 발생된 다양한 차폐콘크리트에 대해 감마/베타선 방출핵종에 대하여 핵종별 측정방법을 정립하고, 측정된 결과를 바탕으로 상관관계를 도출하였다. ISO 기준에 의하면 척도인자적용을 위한 시료의 수는 상관계수에 따라 달라지게 달라진다[2]. 그 내용을 보면 상관계수가 0.8인 경우 30개, 0.95인 경우 20개 이상을 분석하도록 권고하고 있다. 이를 바탕으로 향후 충분한 시료에 대하여 핵종별 방사능분석을 수행하고, 척도인자에 대한 다양한 방법을 비교 평가하고, 방사화된 콘크리트에서 발생될 수 있는 기타 핵종에 대한 분석기술을 적용하여 척도인자를 도출하는 연구가 지속적으로 수행될 것이다. 본 연구를 바탕으로 연구로 해체폐기물 중 방사화된 콘크리트폐기물에 대한 척도인자의 적용 가능성을 분석하였고, 향후 해체폐기물에 대한 척도인자 수립의 기초자료로 활용될 것으로 기대된다.

참고문헌

- [1] 이건재 외, “방사성폐기물 처분을 위한 핵종 재고량 평가방법에 관한 연구”. 한국과학기술원, 2004.
- [2] ISO TC 85/SC5/WG5, “Scaling Factor Method to Determine the Radioactivity of Low and Intermediate Level Radioactive Waste Package Generated at Nuclear Power Plant”, 2003.

The status of decommissioning activities of the KRR-1 & 2

Ki-Won Lee, Sang-Bum Hong, Jin-Ho park, Gyeong-Hwan Jeong, Un-Soo Chung

Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeok-daero, Yuseong, Daejeon 305-353, Korea.

ngwlee@kaeri.re.kr

1. Introduction

In 1996, it was decided that the KRR-1 and 2 would be shutdown and dismantled. A project was launched for the decommissioning of the research reactors January 1997 with the goal of a completion by 2008. The total budget of the project is 20.0 million US dollars, including the cost for final waste disposal and for the technology development. The work scopes during the reactor decommissioning project are dismantling all facilities and removing all radioactive materials. After confirming the removal of the entire radioactivity, the site and the buildings will be released from the regulation to reuse for the non-nuclear purposes. At 2007, we are decommissioning the main five auxiliary facilities; liquid radioactive waste treatment facilities, old solid radioactive waste storage room, dilution discharge storehouse, nature evaporation facilities and KRR-1 & 2 stack. And we will decommission the residential radioactivity evaluation and site reconstruction.

2. Decommissioning activities till 2006

From 12 hot laboratories, 10 lead hot cells and 2 concrete hot cells, which were used for the experiments and the development of isotopes and related products, all the apparatus and the furniture were dismantled and the all radioactive materials were removed. A remotely operated video camera, joint with gamma camera, was fabricated and utilized for the removal of the unidentified radioactive objects from the concrete hot cells. The pool internals, including the core structure of the KRR-2 was dismantled, cut into small pieces and packed in a shielded cask under water of the pool. The highly radioactive beam port tubes, imbedded in shielding concrete, were removed with a boring machine together with concrete around the tubes. Metrics sampling and evaluation of the radioactivity of the shielding concrete was carried out and 3 dimensional mapping of the radioactivity was performed for the assessment of activated part and the design of cutting lines. The shielding concrete was cut with a diamond wire saw and the concrete pieces were taken down and discharged after measurement of the radioactivity.

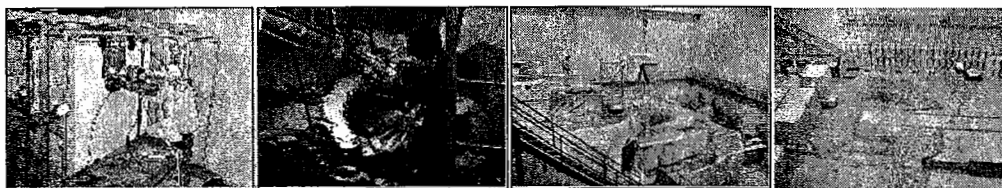


Fig. 1. Dismantling of lead hot cells, core structure, shielding concrete and rad-waste in KRR-2 hall.

All solid wastes were classified to radioactive and releasable waste according to the radioactivity. The radioactive waste was packed into 4 m³ containers designed by the KAERI and well known 200 liter drums, stored in the KRR-2 building until they are transferred to the national repository facility. The releasable waste was stored in the separate ware houses and their final treatment and reuse was studied. For example, the not-contaminated concrete was released and reused for the filling agent of road bed. The dismantled pieces were decontaminated according to the radioactivity and physical, chemical properties. According to the repeated decontamination, only 17 % of all the dismantled waste could be classified into radioactive waste. The decontamination devices were a steam jet cleaner, an ultrasonic cleaner and a chemical decontaminator, designed by the Decommissioning Technology Development Center in the KAERI. And we decommissioned yard facilities;

underground LW storage facilities and independent small facilities. In order to decommissioning underground LW storage facilities, tanks for liquid waste storage and structural tanks for liquid waste storage, we installed the green houses and remove all waste and evaluate the contamination. And we performed the surface decontamination and pulling out from underground structures and move to KRR-2 waste treatment room, cutting and decontamination. We also decommission the resin regeneration facilities and LW storage building.



Fig. 2. The underground LW storage facilities and independent small facilities.

3. Decommissioning activities in 2007 and future works

We are decommissioning the main 5 object facilities; dilution discharge storehouse, old solid waste storage room, liquid waste treatment facilities, nature evaporation facilities and KRR-1 & 2 stack. The dilution discharge storehouse and old solid waste storage room are decommissioned and others facilities are decommissioning or going to decommissioning by year's end.



Fig. 3. The main five decommissioning object facilities.

We decommissioned the manipulator and lead glass in the concrete hot-cell at KRR-2. And we are going to perform the remaining radioactivity evaluation and the site restoration in 2008.



Fig. 4. The decommissioning process of the manipulator in the hot-cell.

As shown in the table 1, the decommissioning radioactive wastes are generated the total 295 ton and non-radioactivity wastes 1,944 ton(200L drum : 132, 4m³ container : 49, shielding cask : 6).

As of 2007/06/30, unit : ton

	radioactive	for release	total
metal	18	163	181
concrete	260	1,746	2,006
others	17	35	52
total	295	1,944	2,239

Table 1. The amount of the generation solid wastes(KRR-1 & 2).

영국사례분석을 통한 사용후연료 공론화 방안을 위한 일반국민 및 이해당사자 참여방안 모색

진동식, 박동민, 김주성, 김용수

한양대학교, 서울특별시 성동구 행당동 17번지

iamesiin@hanyang.ac.kr

1. 서론

방사성폐기물, 특히 사용후연료는 원자력에너지 그리고 방사성물질의 위협과 관련되어 우리사회의 논쟁과 대립의 현안 중 하나가 되고 있다. 영국의 경우 이러한 고준위 방사성폐기물관리 문제점의 해결방안을 찾기 위한 지난 30년간의 노력은 실패로 돌아갔다. 이에 영국정부는 정책의 근본적인 면을 검토하기 시작하였고, CoRWM(Committee on Radioactive Management)으로 하여금 새로운 업무를 진행하도록 지명하였다. CoRWM은 프로그램에 일반국민 및 이해당사자를 참여시키는 한편, 전문지식 및 윤리적인 문제에 대한 혁신적인 접근방법을 채택하였다. 이에 따라 CoRWM은 지역사회의 자발적인 참여, 동반관계 그리고 복지향상을 기준으로 하여 (1) 최종단계로서 지층처분 (2) 중간저장의 중요한 역할 (3) 실행을 위한 새로운 접근방안을 권고하게 되었다. 또한, 최종적인 권고사항에 대한 일반국민의 신뢰성 고취를 위하여 일반국민 및 이해당사자의 참여에 매우 높은 가치를 부여하였으며 중요한 의사결정에 계속적인 참여를 위해 네 단계로 구성된 일반국민과 이해당사자(PSE, Public and Stakeholder Engagement) 참여활동을 보장하였다. 이 연구에서는 이러한 영국의 방사성폐기물관리에 대한 최종적인 권고사항을 도출하는 과정에서 일반국민 및 이해당사자 참여과정을 분석함으로써 현재 국내 현안 과제인 사용후연료 공론화 방안을 위한 활용방안을 모색하고자 한다.

2. 연구사례 분석 및 결과

CoRWM은 윤리의 편재와 국민신뢰도 고취의 필요성을 인식하였기 때문에 방사성폐기물 현안에 관한 제한적 사전지식을 가진 사람들의 중요한 역할을 강조하였으며 참여자들 사이의 폭넓고 공개적인 대화의 조성을 보장하였다. 모든 노력은 단순 자문이 아닌 논쟁과 의견교환을 권장하였으며 CoRWM의 평가 및 의사결정과정의 주요단계에 일반국민과 이해당사자들((PSE, Public and Stakeholder Engagement))이 참여토록 하기위해 표 1과 같은 4단계로 구성된 PSE프로세스 활동을 보장하였다.

표 1. PSE 프로세스 4단계

단계	기간	내용
PSE 1	2004.11-2005.01	처리방안을 선별하기위한 기준 및 장기 방사성폐기물관리 방안의 전체목록, 방사성폐기물과 물질의 재고량에 대한 견해 조사.
PSE 2	2005.04-2005.06	폐기물관리옵션의 최종제안목록에 관한 견해, 그 방안을 평가하기 위한 적용 기준, 방안평가 참여과정 및 이행현안과제 조사.
PSE 3	2005.10-2006.02	상이한 기준의 중요성 및 선택 결과('점수')에 대한 전문가 판단에 대한 견해 및 선호한 장기관리옵션을 포함한 선택옵션목록의 평가.
PSE 4	2006.05	이행해야 할 제안과 국민의 신뢰도를 증가시키는 방법을 포함하여 CoRWM의 권고초안에 대한 의견 조사.

여기에는 표 2와 같이 이해당사자의 원탁 토론, 시민토론자, 전국 이해당사자 포럼 그리고 공개회의 등을 포함한 여러 가지 기법이 사용되었다. Bedfordshire의 15개 학교 및 1,305명의 학생이 포함한 학교 프로젝트, 광범위한 토론 안내서의 배부와 700개 정도의 웹사이트 및 서신교환을 통한 젊은 층을 포함한 다수의 청중들이 참여하였다. 제의된 모든 내용은 기록되었으며 이를 CoRWM의 의사결정에 중요한 내용으로 반영하였다. 일반 국민은 공개적인 질문과 답변 기회를 제공하는 CoRWM의 전체회의에 참석하거나 서면 또는 웹사이트의 서신교환을 통해서 참여할 수 있었다.

또한 방사성폐기물의 장기적 특성과 미래세대에 대한 잠재적 영향을 고려하여 보다 젊은 세대의 견해에 관심을 가졌으며, 특히 그들의 가치와 윤리입장이 그들 부모 및 조부들과의 차이에 대해서도 관심을 가졌다.

표 2. 일반국민 및 이해당사자 참여 활동

활 동	참 여 자	주 요 목 표
토론그룹	다른 지역에서 선출된 8명의 시민들로 구성된 8개 그룹	방사성폐기물에 대한 기본견해와 관심도출(PSE1).
시민토론자	12-16명의 시민으로 구성된 4개 패널. 패널은 스코트랜드, 웨일즈, 남북잉글랜드를 대표. 시민들은 성, 연령 및 사회적 지위를 보장하도록 선출(원자력산업체에서 일하거나, 반핵그룹은 제외).	선택방안목록의 평가와 권고초안의 검토 참여(PSE2, 3, 4).
토론지침	지자체, 환경단체, 노인층 및 학교를 포함한 568 자체선발그룹	선택된 방안의 평가와 관련한 문제를 토의하고 피드백을 제공(PSE3).
학교 프로젝트	15개 학교의 1,305명 학생(나이 11-18세)	방안 평가에 중요한 문제를 파악하고 토의하여 피드백을 제공(PSE3).
국가 이해당사자 포럼	정부부처, 비정부주민단체, 원자력사업체, 규제자, 지방정부, 캠페인단체를 포함한 국가 기구에서 20-25명 참여	선택된 방안의 평가와 권고초안의 검토 참여(PSE2, 3, 4).
원자력부지 이해당사자 원탁회의	총 14개 원자력사이트의 지방조직에서 온 이해당사자 모임(시민, 군인, 일반국민 및 개인 부분과 다른 형태의 시설을 대표)	선택된 방안의 평가와 권고초안의 검토 참여(PSE2, 3, 4).
공개회의	원자력사이트 인근 8개지역에서의 2회 순회 공개회의	선택방안목록을 포함한 폐기물관리에 관한 견해와 관심사항 파악(PSE1, 2).
쌍방회의	CoRWM 위원들과 이해당사자 조직의 대표자들 사이의 회의	PSE 각 기간의 목표에 대한 적절한 정보를 얻고 문제를 토론하는 것
자문서류	다양한 이해당사자와 일반국민 회원	3개월 기간에 걸쳐 공식적인 자문서류를 검토(PSE1, 2).
웹정보	다양한 이해당사자와 일반국민 회원	선택이행과 권고초안에 관한 자문보고서와 전문가 판단에 대한 의견을 제기할 기회 제공(PSE1, 2, 3, 4).

네 단계의 PSE활동에서 일반국민과 이해당사자들의 기본역할은 CoRWM의 프로그램 및 평가 과정에 영향을 주어 CoRWM의 권고사항을 공식화하는데 도움을 주는 것이었다. 그 핵심 특성은 전문가 지식을 가진 사람들의 입장에서 국민의 견해를 통합하도록 시도하는 것이었다. 이러한 활동을 결과적으로 CoRWM의 권고사항에 대한 국민적 신뢰도 구축에 큰 역할을 하였다.

3. 결론

영국 및 국제적 경험에서 얻은 중요한 교훈은 방사성폐기물 정책이 과거와 같은 ‘결정-발표-방어’ 방식이 아닌 정책결정에 일반국민 및 이해당사자의 조기 참여를 통한 실행이 국민적 신뢰를 고양할 수 있다는 것이다. 제253차 원자력위원회(‘04.12.17)에 따라 사용후연료는 2016년까지 원전 부지에 자체적으로 저장하고 중간저장시설 건설 등을 포함한 종합적인 관리방침은 사회적 공론화를 통해 국민적 공감대하에 추진하기로 의결된 바 있다. 이 같은 정책적 배경에는 여러 기술적인 문제점도 있지만, 사용후연료 정책에 대한 확고한 국민의 이해를 확보할 필요가 있었기 때문이다. 따라서, 영국의 사례에서 살펴본 바와 같이 현재 당면하고 있는 사용후연료 처리방안 정책결정시 일반국민 및 이해당사자의 다양한 참여 기회 제공을 통한 국민적 신뢰감 및 공감대형성이 요구된다고 할 수 있다.

Long-term Projection of Spent Fuel Arising in Korea

Chun-Hyung Cho, Hyung Joon Kim, and Kyung-Ku Lee

Nuclear Engineering and Technology Institute, 25-1 Jang-Dong, Yuseong, Daejeon 305-343, Korea,
skycho@khnp.co.kr

1. Introduction

Projection of spent fuel arising from nuclear power plant is crucial to set up spent fuel management plan and to evaluate the economics depending on management strategies. However, the prediction process is not only closely related to technical variables, such as plant capacity, average burn-up, initial enrichment, thermal efficiency, but also economical factors including economic growth rate, electricity requirements, fraction of nuclear power capacity and so on. Therefore, clear and careful assumptions should be made to give a better understanding on the forecasting results. In this study, based on "The 3rd Basic Plan of Long Term Electricity Supply and Demand"[1] and the proper assumptions, the amount of the spent nuclear fuel generated from NPPs until 2050 is predicted.

2. Basic Assumptions

Projection of the spent fuel arising can be carried out based on the fraction of nuclear power capacity which has a close relation to economic growth rate, electricity requirements and power plant capacity margin and so on. All data used to evaluate the accumulated amount of spent fuel between 2006 and 2020 referred from "The 3rd Basic Plan of Long Term Electricity Supply and Demand." The basic assumptions to prospect the spent fuel arising from 2021 to 2050 are as follows

- i) Operation period of existing NPPs is determined by the sum of design life and licence renewal period.
 - Kori #1 and Wolsung #1 : 50 years (Design life : 30 years, Licence renewal : 20 years)
 - Other units : 60 years (Design life : 40 years, Licence renewal : 20 years)
- ii) NPPs which will be decommissioned after 2020 is replaced by APR+ (1600 MWe).
- iii) Construction and decommissioning are occurred at the same year.
- iv) The spent fuel from newly constructed NPP is generated after one year of operation.

3. Projection of Spent Fuel Arising

3.2 Description of Projection Process

Although the exact amount of spent fuel after a given period of operation can be evaluated using a fuel depletion calculation code like Origen-S, it is time consuming process to prospect the long-term spent fuel arising for overall NPPs in Korea. Therefore, we used the simplified equation to calculate the annual amount of discharged spent fuel as follow[2]

$$AFD[tHM/yr] = \frac{(Capacity/Efficiency) \times 365 \times Availability}{Average Burnup}$$

where AFD = Annual amount of spent fuel discharged in a year[tHM]

Capacity = Nuclear power plant capacity in MWe,

Efficiency = Thermal efficiency of NPP (0.35 for PWR and 0.33 for PHWR)

Availability =0.9 for PWR and PHWR

Average Burnup= NPP's annual average burnup in MWD/MTU

The introduction plan of high burnup fuel for existing NPPs was considered for more realistic prediction. As for newly constructed NPPs after 2010, it is assumed that high burnup fuel will be loaded from the start-up. For the comparison of projection results, two cases of spent fuel arising scenarios were established as follows(see Figure 1).

Case 1: 0.7% annual growth of nuclear power capacity from 2020 to 2050

Case 2: Saturation after an uncertain period of years (Curve fitting of growth rates until 2020)

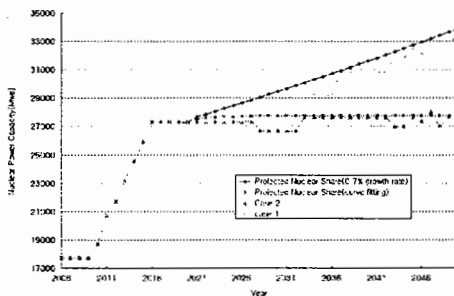


Figure 1. Nuclear power pool growth scenarios.

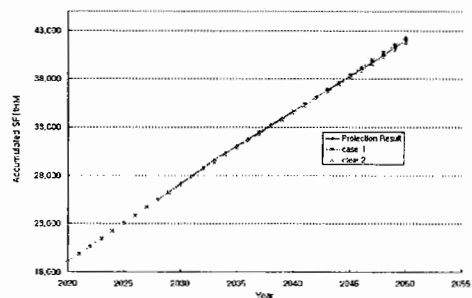


Figure 2. Projection of spent fuel arising.

3.2 Results

As shown in Figure 2, the amount of PWR spent fuel in 2050 was calculated as 22,037 tHM and 19,995 tHM for PHWR. In case of PHWR spent fuel, because there is no construction plan for the new type of PHWR, the spent fuel arising is same for the rest of cases. If the nuclear power capacity is saturated, the accumulated amount of PWR spent fuel is 22,296 tHM and it becomes 22,037 tHM for the continuous growth case.

4. Conclusions

By using "The 3rd Basic Plan of Long Term Electricity Supply and Demand," and assuming APR+(1600MWe) replaces the decommissioned NPPs, the spent fuel arising until 2050 was predicted. Two types of nuclear power pool growth scenarios, 0.7% continuous growth and saturation after several years, were compared with the above projection and it showed that there is no big difference between the calculation results(refer Fig. 2). Therefore, the prediction result showed the feasibility that it could be used as the raw data for the back-end fuel cycle related studies.

REFERENCES

- [1] Ministry of Commerce, Industry and Energy, "The 3rd Basic Plan of Long Term Electricity Supply and Demand," Dec. 12, 2006
- [2] IAEA, International Symposium on Nuclear Fuel Cycle and Reactor Strategy: Adjusting to New Reality, Key Issue Papers, Vienna, 1997.

사용후핵연료의 경제적 가치분석

고원일, 권은하, 송대용, 장홍래, 정창준, 윤지섭

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150번지)

nwiko@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력발전 후 발생하는 경수로(PWR) 사용후핵연료(SF)에는 96%의 우라늄과 약 1%의 플루토늄(Pu), 그리고 3%의 핵분열생성물이 포함되어 있다. 이러한 사용후핵연료는 국가의 원자력정책에 따라 폐기대상으로서 처분되기도 하고, 혹은 미래의 기술에너지 자원으로 재사용되기도 한다. 사용후핵연료 국가정책을 수립하기 위해서는 사용후핵연료를 폐기물로 볼 것인가 혹은 자원으로 볼 것인가 그 성격을 규명하는 작업이 우선되어야 하며, 이를 위하여 사용후핵연료의 실제 가치가 어느 정도인지 분석해 볼 필요가 있다. 사용후핵연료의 가치는 경제적·정치적·사회적 측면을 종합적으로 고려하여 판명해야 하나, 여기서는 경제적 가치에 대하여만 살펴보았다.

2. 계산 방법

경제적 측면에서의 사용후핵연료의 가치는 그 속에 포함되어 있는 플루토늄과 우라늄의 경제적 가치와 동일한 의미로 해석될 수 있다. 사용후핵연료를 재사용하는 경우, 사용후핵연료 처리비용·MOX 핵연료 제조비용·HLW 처분비용·고방열핵종(Cs&Sr) 장기보관비용이 지불되며, 동시에 사용후핵연료 처분비용 절감에 따른 이득·제조된 MOX 핵연료의 가치·회수된 우라늄의 가치에 대한 이득이 발생한다.

$$\begin{array}{|c|} \hline \text{사용후} \\ \text{핵연료} \\ \hline \text{가치} \\ \hline \end{array} = \begin{array}{|c|} \hline \text{Pu} \\ \text{핵연료} \\ \hline \text{가치} \\ \hline \end{array} + \begin{array}{|c|} \hline \text{회수} \\ \text{우라늄} \\ \hline \text{가치} \\ \hline \end{array} - \begin{array}{|c|} \hline \text{SF} \\ \text{처리} \\ \text{비용} \\ \hline \end{array} - \begin{array}{|c|} \hline \text{MOX*} \\ \text{핵연료} \\ \text{제조} \\ \text{비용} \\ \hline \end{array} - \begin{array}{|c|} \hline \text{HLW} \\ \text{처분} \\ \text{비용} \\ \hline \end{array} - \begin{array}{|c|} \hline \text{고방열} \\ \text{핵종} \\ \text{보관} \\ \text{비용} \\ \hline \end{array} + \begin{array}{|c|} \hline \text{SF 처분} \\ \text{Credit} \\ \hline \end{array}$$

반면, 사용후핵연료를 재사용하지 않고 직접처분하는 경우에는 사용후핵연료의 처분비용이 지불된다. 한편, MOX 핵연료의 가치는 같은 양의 전력을 생산하는 우라늄핵연료의 가치(우라늄구입비 + 변환비 + 농축비 + 제조비)와 동일하다. 따라서, 우라늄 가격이 상승하면 MOX 핵연료의 가치도 상승하게 된다.

3. 사용후핵연료의 경제적 가치 계산

2100년까지 발생하는 사용후핵연료 7만톤(직접처분주기일 때 국내에서 발생하는 경수로 사용후핵연료의 총량)의 경제적 가치를 계산하였다. 연소도 50,000 MWd/tU, 초기농축도 4.3%의 핵연료를 사용했을 때 발생하는 경수로 사용후핵연료에는 약 1.15%의 플루토늄이 함유되어 있는데, 이는 약 16,240톤의 MOX 핵연료를 만들 수 있는 양이다. 이러한 MOX 핵연료의 가치는 같은 양의 전력을 생산하는 우라늄핵연료의 가치와 동일하다. 천연우라늄의 가격 195\$/kgU (2007년 10월 2일 현재 현물시장가격[1]), 변환단가 7\$/kg, 농축단가 112\$/SWU, 제조단가 250\$/kg을 가정하여 계산할 경우, 우라늄핵연료의 가치는 약 468 억 달러로 추산된다. 또한, 우라늄의 가격이 상승하면 회수우라늄의 가치도 상승하는데, 사용후핵연료에서 회수되는 우라늄은 66,583톤으로서 이

중 15,428톤을 MOX 핵연료 제조에 사용한다. 나머지 우라늄의 가치는 우라늄 구입비용·변환 및 농축비용(1.03%로 농축)을 반영하여 계산할 경우에 약 137 억 달러이다.

위의 MOX 핵연료와 회수우라늄의 가치에서 사용후핵연료 처리비용·MOX 핵연료 제조비용·HLW 처분비용·고방열핵종(Cs&Sr)의 장기보관비용을 빼고, 사용후핵연료를 직접처분할 경우 지불하는 처분비용을 더하면 사용후핵연료의 실제 경제적 가치가 된다. 이러한 방법을 사용하여 계산한 결과, 2100년까지 우리나라에서 발생하는 경수로 사용후핵연료 7만톤의 경제적 가치는 약 7.6 조원으로 계산되었다.

표 1. 사용후핵연료의 경제적 가치에 대한 민감도

우라늄 가격 (\$/kgU)	사용후핵연료 가치(조원)
50	-21.4
100	-11.4
150	-1.4
200	8.6
250	18.6
300	28.5
350	38.5

이러한 사용후핵연료의 가치는 우라늄 가격에 의하여 크게 좌우된다. 즉, 우라늄 가격이 160\$/kgU 이상일 경우에 사용후핵연료의 경제적 가치가 발생하고 있는데, 우라늄 가격이 300\$/kgU에 이르면 사용후핵연료 7만톤의 가치는 약 29 조원까지 상승한다.

한편, 사용후핵연료 7만톤을 처리하여 플루토늄을 추출하고 이를 핵연료로 만드는 경우에 약 16,000톤의 MOX 핵연료를 생산할 수 있다. 이는 현재 우리나라에서 운영하고 있는 16기의 경수로에서의 연간 필요량이 280톤임을 감안할 때, 약 57년간 사용할 수 있는 양으로 분석되었다.

4. 결론

최근 들어, 우라늄 가격이 꾸준히 상승하고 있다. 더구나, 전 세계적으로 고유가 행진이 계속 되고, 중국·인도를 중심으로 한 세계 여러 나라가 원자력 확대정책을 펼치고 있음을 고려해 볼 때, 과거 1990년대의 낮은 우라늄 가격이 유지되기는 어려울 것으로 보인다. 이러한 상황에서, 사용후핵연료는 천연자원이 부족한 우리나라에서 자원으로서의 경제적 가치를 충분히 지닌다 할 것이다. 향후 좀 더 정확한 경제적 가치평가를 위해서는 MOX 핵연료 제조비용·HLW 처분비용·고방열핵종(Cs&Sr) 장기보관비용 등 불확실성이 많은 분야에 대한 엔지니어링 자료 생산이 필요할 것으로 보인다.

참고자료

[1] Ux Consulting Company, <http://www.uxc.com/>

Experiences on the Expansion of Spent Fuel Storage Capacity at PWR and CANDU plants in Korea

Hyeon-Joon Yun, Byung-Sik Lee, Sang-Bok Kim*

Korea Power Engineering Company, Inc.,

360-9 Mabuk-ri, Guseong-eup, Yongin-si, Gyeonggi-do 449-713, KOREA

* Korea Hydro & Nuclear Power Co. Ltd. (KHNP), 167 Samseong-dong, Gangnam-gu, Seoul 135-791, KOREA
ading@kopec.co.kr

1. Introduction

At present, Korea has twenty nuclear power plants (16 PWRs and 4 CANDUs) under operation. The cumulative amount of spent fuel discharged from PWR plants by 2006 is 3,973 ton on the Uranium basis and CANDU plants is about 4,697 ton. The current storage capacities at reactors are insufficient to store the spent fuels generated until the year 2016. According to the decisions made by Korean Atomic Energy Commission, which is the nation's highest decision maker on nuclear policy, the spent fuel shall be stored within nuclear power plants until 2016 by the expansion of its on-site storage capacity. KHNP(Korea Hydro & Nuclear Power Co., Ltd.), who owns and operates all nuclear power plants in Korea, is performing the expansion project of spent fuel storage capacity in a reactor site by application of high density storage rack, concrete silo-type and consolidated dry storage facility, and transshipment to neighboring reactor. Among these options, high density storage rack(HDSR), which increases the storage capacity by using various neutron absorbers such as Boral or Borated Stainless Steel, is adopted as a measure to easily expand the storage capacity of spent fuel in PWR plant, and, the dry storage facility is being constructed at the CANDU plant.

2. The Status of PWR plants

KHNP/KOPEC has started re-racking projects to replace the existing racks with HDSR from mid-1990's. Currently, re-racking project of Ulchin units 3&4 are in progress, Yonggwang units 3&4 re-racking projects was completed in 2006 and Kori unit 4 and Yonggwang unit 1 have been completed very recently. After the re-racking projects, transshipments of spent fuel from the pools with existing racks to the pools with HDSR within the same site is on going. The HDSRs have been installed at Kori units 3&4 and the 928 spent fuel assemblies have been transshipped from 1990 to 2004 at the Kori site.

2.1 Re-racking Project

In case of Kori unit 3 and 4, the first projects to install HDSR in the empty space were carried out by SIMENS and HOLTEC in 1994 and 1996, respectively. The second project to replace existing standard racks by the HDSR except already installed HDSR has been completed in 2005. Total capacity of Kori site is enough to store the spent fuel generated from all 4 units until 2016. Full re-racking projects at Ulchin units 1&2 have been completed in 1995 and the second re-racking projects at Ulchin units 3&4 are on going. The HDSR installed at Ulchin units 5&6 was supplied by UST&D. The total storage capacity of Ulchin site will be saturated by 2017. At Yonggwang units 1 and 2 the HDSR was supplied by SIMENS and HOLTEC, respectively, in the empty space in 1996. Recently, the existing standard racks except already installed HDSR at Yonggwang unit 1 was replaced with the new HDSR supplied by DOOJUNG-HOLTEC, and the HDSR supplied by ENSA was installed at Yonggwang units 3&4 last year. Yonggwang units 5&6 was equipped with the HDSR supplied by DOOJUNG-HOLTEC. The total storage capacity of Yonggwang site will be saturated by 2016. Table 1 shows the overall status of re-racking at the nuclear power plants as of 2007.

2.2 Transshipment

After completion of replacing the existing standard racks with HDSR at PWR plants, transshipments of spent fuels between neighboring reactors in the same site from the storage pools with existing standard racks to the storage pools with HDSR has been carried out. The total 928 spent fuel assemblies have been transshipped from Kori units 1&2 to Kori units 3&4 by 2004 as shown in the Table 2.

Table 1. Re-racking status

Plant	Re-racking	Neutron Absorber (Supplier)	Pool Capacity		Installation (Year)	Expected Saturation Data(Year)
			Region 1	Region 2		
Kori 3	Yes	BSS(SIEMENS)	251	2,009	2002	2016
Kori 4	Yes	BORAL(HOLTEC)	456	1,800	2006	
Ulchin 1	Yes	BORAL(HOLTEC)	264	850	1995	2017
Ulchin 2	Yes	BORAL(UST&D)	261	801	2005	
Ulchin 3	Yes	BORAL(HOLTEC)	266	1,232	2008	
Ulchin 4	Yes	BORAL(HOLTEC)	266	1,232	2008	
YGN 1	Yes	BORAL(HOLTEC)	456	1800	2006	2016
YGN 2	Yes	BORAL(HOLTEC)	406	746	1997	
YGN 3	Yes	BSS(ENSA)	300	1,002	2006	
YGN 4	Yes	BSS(ENSA)	300	1,002	2006	

Table 2. Transshipment Status

Transshipment	Year	No. of Spent Fuels	Transfer Cask
Kori#1→Kori#3	1990-2004	424	KSC-4
Kori#1→Kori#4	1994-2004	188	KSC-4, KN-12
Kori#2→Kori#4	2000	12	KN-12
Kori#2→Kori#3	2001-2004	244	KSC-4, KN-12
Kori#4→Kori#3	2004	60	KN-12
Total		928	

3. The Status of CANDU plants

For the spent fuel management of Wolsong, a series of expansion of storage capacity have been pursued since 1990. It started with construction of concrete silos followed by three times extension and implementation of a very highly compact storage system is being undertaken. Wolsong site has four(4) CANDU units and each unit discharges 5,163 spent fuel bundles annually. The dry storage facility of concrete-silo type at Wolsong site was first constructed in 1990 and additional concrete-silos were recently installed to have 300 silos in total. New type of the dry storage system named as MACSTOR/KN-400 is scheduled to be put into operation from middle of 2009, and it is expected to be able to store the spent fuel bundles generated from Wolsong's four(4) units until 2016. The spent fuel dry storage system for Wolsong site consists of spent fuel handling system, service building extension and dry storage site with concrete silos and MACSTOR/KN-400 modules.

3.1 Spent Fuel Handling System

The spent fuel dry storage system for Wolsong site is designed to store the intact fuel bundles with minimum six years of cooling time. The spent fuel handling system is composed of spent fuel storage basket (fuel basket) holding 60 bundles, in-bay tooling and equipment, a Shielded Work Station (SWS) including drying system, a transfer flask and a transporter.

3.2 Dry Storage Site

Concrete silos have been installed in Wolsong site and construction of MACSTOR/KN-400 modules are scheduled to be completed by middle of 2009.

4. Conclusion

In accordance with the decisions by AEC, the spent fuel shall be stored on-site until 2016 through the expansion of on-site storage capacity. For the PWR spent fuel, re-racking and transshipment are judged to be the good option among various alternatives to easily increase the spent fuel storage capacity. In case of CANDU spent fuel, adoption of dry storage system such as concrete silos or consolidated storage module is estimated to be preferable solution for capacity expansion.

To cope with the current shortage of storage capacity for spent fuel in Korea, re-racking with high density storage rack, transshipment between adjacent units, and installation of dry storage system have been carried out and are on going now. By execution of such a capacity expansion method, it is expected that the spent fuel generated from all nuclear power plants can be stored on-site by 2016.

사용후핵연료 처리공정 기술대안 분석

장홍래, 서중석, 고원일

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

hlchang@kaeri.re.kr

1. 서론

우리나라의 사용후핵연료 관리대안 분석을 위해 선진국에서 현재 전략적으로 개발 중인 순환 핵연료주기를 대상으로 기술적 장·단점을 비교·분석하여 정량화하였다. 분석대상 처리공정으로 는 프랑스가 개발하고 있는 선진습식재처리방법인 COEX(COMBINED EXtraction for Plutonium and Uranium) 및 GANEX공정, 일본에서 개발 중인 선진습식재처리기술인 NEXT(New EXtraction System for TRU Recovery)공정, 미국 Argonne National Laboratory(ANL)에서 개발 중인 습식처리기술인 UREX+1a(URanium EXtraction)공정, 우리나라에서 개발 중인 파이로 건식 처리공정과 유사하지만 초기단계 우라늄을 회수하는 단계에서 UREX공정을 이용하는 미국의 PYROX공정, 러시아에서 개발 중인 파이로공정의 일종인 DDP(Dimitrovgrad Dry Process)공정을 선정하였다. 각각의 공정에 대한 핵심기술의 특성분석을 통하여 기술성, 핵확산저항성, 그리고 GEN-IV 원자로와의 연계성을 비교하였다.

2. 기술성 분석

○ 처리용량: 선진습식재처리기술인 NEXT, COEX, UREX+1a 공정은 대규모 처리용량의 공정개발에서 상대적으로 용이하다는 이점이 있다. 파이로 건식처리기술의 대표적인 공정인 PYROX와 DDP공정은 약 20여개의 장치로 구성되며, 공정장치의 단순화 및 모듈화에 의하여 시설공간은 선진습식처리시설의 약 1/12 수준일 것으로 예측된다.

○ 폐기물발생량: 현재 개발단계인 선진습식재처리 및 파이로 건식처리기술의 폐기물발생량 추정 은 매우 어렵다. 그러나 선진습식재처리기술은 고준위폐기물 발생량 최소화가 기술개발 목표임에 도 불구하고, 공정관점에서 파이로 건식처리공정보다는 폐기물발생량이 많다는 것은 분명하다.

○ 공정의 안전성: 선진습식재처리공정은 대체로 상온 및 상압조건에서 운전되기 때문에 파이로 건식처리기술과 비교하여 안전성 측면에서 유리하다고 할 수 있다. 그러나 선진습식재처리공정은 유독성 및 인화성의 유기용매를 사용한다는 점에서 불리하다고 할 수 있다.

○ 처리비용: 비용평가는 신뢰성 있는 자료 확보의 한계로 인하여 정확한 평가가 가장 어려운 항목이다. 선진습식재처리 비용은 대체로 플렉스 재처리공정보다 약 20~30 % 낮을 것으로 추정된다. 연간 100 tHM 규모 이상의 처리용량에서 파이로 건식처리기술은 선진습식재처리 기술보다 비용이 불리한 것으로 평가된다. 그러나 향후 5년 이내에 신개념의 혁신기술 도입 및 공학규모의 공정개발이 성공적으로 추진된다면, 파이로 건식처리기술의 경제성은 적어도 선진 습식재처리기술과 대등하거나 우세할 것으로 예측된다.

○ 기술성숙도: 현재는 미국 ANL연구소 중심으로 실험실규모의 UREX+1a 공정에 대한 실증을 완료한 단계로, 앞으로도 상용화규모 공정개발을 위해서는 적어도 10년 이상의 연구개발 기간이 소요될 것으로 예측된다. 그 외, 프랑스와 일본의 COEX·GANEX 및 NEXT 공정도 UREX+1a 공정과 거의 대등한 기술수준이라고 판단된다. PYROX공정은 세부공정 항목에 따라 기술개발 수준은 크게 다르나, 기술개발 수준이 가장 앞선 PEER형의 고용량 전해정련장치는 공학규모(200~300kgHM/batch)의 장치를 개발하고, 우라늄을 이용한 실증실험을 수행하는 단계이다.

3. 핵확산저항성

○ 플루토늄 분리가능성: 파이로 건식처리기술은 전해분리반응만을 이용하기 때문에 일정 플루토늄 환원전위 조건에서조차 용융염의 저항으로 인한 전위구배 존재, 그리고 근접 환원전위를 갖는 원소의 동반회수로 인하여 고순도 플루토늄을 회수할 수 없다는 자체가 핵확산저항성 관점에서

장점이라고 할 수 있다. 선진습식재처리기술은 공정관점에서 플루토늄의 단독분리를 원천적으로 차단하고, 잉여 우라늄을 재활용 혹은 저준위폐기물로 회수하여 처분하고, Transuranics(TRU)를 비롯한 Minor Actinide(MA) 원소는 대체로 공분리하는 전략을 채택하고 있다.

○ 제염계수: 선진습식재처리기술은 TRU 공회수에도 불구하고, 플렉스공정에 버금가는 제염계수를 갖는 사실만으로도 핵확산저항성이 낮게 평가될 수밖에 없다. 그러나 파이로 건식처리의 대표적인 기술인 PYROX와 DDP공정의 제염계수는 약 10 정도로, 회수된 핵연료물질은 “Dirty Fuel and Clean Waste” 개념과 자체방호요건(Self Protection Criteria)을 만족한다고 할 수 있다. 이러한 관점에서 파이로 건식처리기술은 UREX+1a, NEXT 및 COEX 공정보다 핵확산저항성이 훨씬 유리하다고 할 수 있다.

○ 안전조치성: 연속공정이 가능한 습식공정이 실시간 제량관리에 더 유리하기 때문에 안전조치성 측면에서 우수하다고 할 수 있다. 또한, 건식공정인 경우 핵물질 측정에서 요구되는 핵물질 균질성을 확보하는 데 어려움이 예상된다.

4. GEN-IV 원자로와의 연계성

파이로 건식처리기술은 전해환원(Electrolytic Reduction)과 전해정련(Electrorefining)기술을 이용하여 경수로 사용후핵연료를 금속으로 전환한 후, 95% 이상을 차지하고 있는 우라늄금속을 중·저준위폐기물로 회수함으로써 처분대상 고준위폐기물의 부피를 획기적으로 감축할 수 있으며, 전해정련(Electrowinning)단계에서 우라늄과 TRU원소를 공회수하여 고속로에 핵연료로 공급할 수 있다. 특히, 우리나라가 개발하고 있는 KALIMER-600의 핵연료는 U-TRU-Zr 금속핵연료를 이용하는 설계개념을 갖고 있기 때문에, 현시점에서 파이로건식처리공정이 KALIMER-600 개발을 위한 금속핵연료 재순환기술로서 유일한 대안이다.

5. 종합평가

표 1은 전술한 5개 공정에 대한 정성적 분석결과를 바탕으로 정량화한 결과를 나타내고 있다. 우선 평가항목에 대한 가중치를 부여하였는데, 가중치는 정성적 분석에 참여하지 않은 연구원으로부터 자문그룹을 구성하여 자문위원들로 하여금 도출하도록 하였다.

정량적 비교·분석결과, 파이로 건식처리 공정이 기술성, 핵확산저항성, GEN-IV 원자로와의 연계성 측면에서 모두 우수한 것으로 나타났다.

표 1. 사용후핵연료 선진처리공정에 대한 정량적 평가 결과

평가 항목		파이로		선진습식		
		PYROX	DDP	COEX, GANEX	NEXT	UREX+1a
기술성 평가 (30)	처리용량(6)	4	5	6	6	6
	폐기물발생량(7)	7	6	4	4	4
	공정의 안전성(5)	4	4	5	5	5
	처리비용(7)	7	5	4	4	4
	기술성숙도(5)	3	5	5	5	5
	소계	25	25	24	24	24
핵확산 저항성 평가 (45)	플루토늄 분리가능성(15)	15	13	10	10	12
	제염계수(15)	15	14	10	10	12
	안전조치성(15)	10	10	13	13	11
	소계	40	37	33	33	35
GEN-IV 원자로와의 연계성(25)		25	23	15	15	25
합 계		90	85	72	72	84

사용후핵연료 처리 기술의 종합 평가: 해석적 계층과정(AHP) 기법 활용

Seong Ho KIM, 박원재*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150번지)

*한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 구성동 19번지

well48@hanmir.com

서론

이 연구의 주된 목적은 가압경수형 원자로(Pressurized Water Reactor, PWR)에서 발생하는 사용후핵연료(SF)를 다각적인 측면에서 처리하는 기술들의 선호도를 정량적으로 평가하기 위해 해석적 계층과정(AHP) 기법-기반 의사결정 방법론을 적용하려는 것이다.

여기서는 우리나라에 적용 가능한 네 가지 사용후핵연료 처리 기술이 선정되었다[1]: 1) 직접처분; 2) DUPIC(경수로의 사용후핵연료를 중수로의 핵연료로 재사용, Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactor) 기술; 3) 열중성자로 재활용; 4) SFR(소듐 냉각 고속원자로, Sodium Fast Reactor)와 연계된 GEN IV(제 4세대 원자력 시스템, Generation IV Nuclear Energy System) 기술. Table 1에는 이러한 각 기술의 정성적 특성이 정리되어 있다. Fig.1에는 기존 연구[1]에서 고려된 평가기준 및 하부 평가기준이 계층 구조에 나타나고 있다.

Table 1: 사용후핵연료 처리 기술의 특성

대안기술	특성
직접처분	PWR 사용후핵연료를 중간 저장한 후 재활용하지 않고 영구 처분하는 기술
	장점: 비교적 낮은 핵물질 확산 위험도
	단점: 재활용하지 않아 유한한 핵연료 자원(예: 천연우라늄)의 고갈 위험도
DUPIC	PWR 사용후핵연료를 DUPIC 핵연료로 가공한 다음, CANDU에 재이용하고, DUPIC 사용후핵연료를 영구 처분하는 기술
	장점: 비교적 높은 핵확산저항성
	단점: 재처리를 거치지 않아 높은 방사성 물질의 취급 위험도
열중성자로 재활용	PWR 사용후핵연료를 PUREX로 처리한 후 분리된 플루토늄을 MOX 핵연료로 가공하여 PWR에 재이용하고, MOX 사용후 핵연료를 영구 처분하는 기술
	장점: 핵연료의 재활용에 따른 비교적 높은 자원 보존성
	단점: 재활용 단계에서 발생한 플루토늄으로 인해 높은 핵확산 위험도
GEN-IV	PWR 사용후핵연료를 고온전해분리(pyroprocessing)를 통해 금속핵연료를 만들어 SFR(고속로)에 재이용하여 고-독성 핵종을 소멸시키는 기술
	장점: 플루토늄의 재활용을 통한 낮은 방사성 폐기물 양
	단점: 상대적으로 낮은 기술성

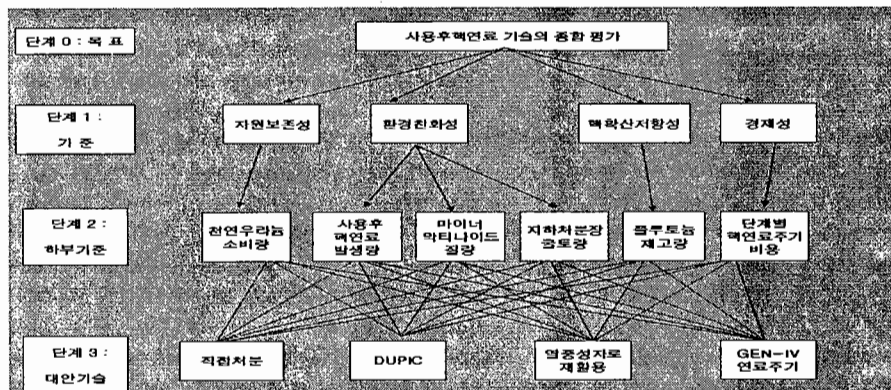


Fig. 1: 사용후핵연료 기술의 계층 구조

해석적 계층과정 기법

여기서 적용된 AHP 기법은 다음과 같은 4-단계의 절차[2]에 따라 구현된다. (1) 단계 1 : 문제의 구조화 단계, (2) 단계 2 : 중요도 측정의 단계, (3) 단계 3 : 가중치와 평가치 설정 단계, (4) 단계 4 : 대안 우선순위의 결정 단계.

각 기술의 평가치를 무차원에서 비교하기 위해 문헌[1]에서 얻어진 자원보존성, 환경친화성, 핵확산저항성, 경제성 측면에서의 평가치가 각각 정규화된다. 이렇게 얻어진 수치는 정규화 평가치라고 불린다. 다양한 단위를 가지고 있는 평가치는 정규화를 통해 서로 비교될 수 있으며, 합을 1로 만들어 정규화 수치가 높을수록 선호도가 높은 것으로 볼 수 있다. 여기서는, 평가 기준인 천연우라늄 소비량, 사용후핵연료 발생량, 마이너 악티나이드 질량, 지하 처분장 굴도량, 플루토늄 재고량, 핵연료주기 비용 등은 수치(x_i)가 낮을수록 선호도가 높은 것으로 볼 수 있다. 이 때문에 역변환 평가치에 해당하므로 역변환 정규화[2]가 사용되었다. 이러한 역변환 정규화 경우에는, 정규화 평가치(N_i)는 식 (1)에 따라 구해진다. 이러한 정규화 이후에는, 모든 세부기준에 대한 정규화 평가치는 수치가 클수록 선호도가 높다는 것을 의미한다.

$$N_i = \frac{1/x_i}{\sum_i 1/x_i} \quad (1)$$

대안기술의 종합 점수는 6가지 하부 평가기준의 가중치와 정규화 평가치의 결합과정을 통해 매겨진다. 이 점수에 따라 각 대안의 우선순위가 매겨지거나, 의사결정의 최우선 대안이 결정된다. 결합과정에서는 각 대안기술 k 에 대한 정규화 평가치(N_{ik})와 기준 i 에 대한 가중치(W_i)에서부터 가중 산술평균을 통해 종합 점수(Overall Score; OS_k)가 식 (2)에 따라 얻어진다.

$$OS_k = \sum_{i=1}^6 W_i N_{ik} \quad (2)$$

사용후핵연료 처리 기술의 종합 평가

종합 점수에 따른 대안기술의 우선순위가 구해졌다. Table 2에 보이는 바와 같이, Case 1에서는 2명의 전문가로부터 추출된 가중치. Case 2에서는 다속성 효용함수 기법-기반[3] 기존 연구[1]에 주어진 상대적인 기준 가중치 및 각 기준의 하부기준 가중치는 동일하다는 가정이, Case 3에서는 기준별 가중치 및 각 기준별 하부기준 가중치도 동일하다는 가정이 사용됐다. Table 2에는 각 사례에 사용된 가중치로 구해진 각 대안기술의 종합 선호도 점수 및 우선순위가 정리되어 있다. 그 결과, GEN-IV 기술이 가장 선호적인 기술로 나타났다.

Table 2: 기준 가중치 및 대안기술의 종합 선호도

	자원보존성	환경친화성			확산저항	경제성	종합 선호도 점수 (우선순위)			
	천연U 소비량	SF발생량	MA질량	굴도량	Pu재고량	비용	직접처분	DUPIC	열중성자로	GEN-IV
Case 1	0.38	0.36			0.21	0.05	8.5 (4)	13.4 (2)	9.4 (3)	68.7 (1)
		0.62	0.27	0.11						
Case 2	0.44	0.17			0.28	0.11	11.1 (4)	16.9 (2)	11.9 (3)	60.1 (1)
		1/3	1/3	1/3						
Case 3	1/4	1/4			1/4	1/4	11.2 (4)	14.7 (2)	11.3 (3)	62.8 (1)
		1/3	1/3	1/3						

결론

사용후핵연료 처리 기술의 다차원적인 종합 평가를 위해, 평가기준간의 상호독립성을 가정하는 해석적 계층과정 기법이 적용되었으며, 기준 가중치에 대한 민감도 분석이 수행됐다. 앞으로는 사용후핵연료 처리 기술의 보다 더 현실적인 종합 평가를 위해, 평가기준간의 상호의존성을 고려할 수 있는 다속성 의사결정(Multi-attribute Decision-making, MADM) 기법, 예를 들면, 해석적 망형과정 (ANP) 기법이 적용될 필요가 있다.

참고문헌

- 권은하, 고원일 (2007), 다요소 효용함수 이론과 계층화 분석법을 이용한 핵연료주기 시스템 분석, 2007년도 한국방사성폐기물학회 추계학술발표회 포스터 자료, May 31-June 1, 2007, 경주.
- 김성호 외 (2005), 해석적 계층과정 기법의 적용: 종합적인 국가 에너지시스템의 평가, 2005년도 한국에너지공학회 추계학술발표회 초록집, 2005 5월 13일, 서울.
- 이창효 (1998), 집단 의사결정을 위한 다속성 의사결정법, 신라대학교 논문집 46, 81-111.

Review of the Optimization Strategies with respect to the Technical Issues for a Long Term Spent Fuel Storage

Seung Woo Lee, Jong Won Choi

Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeok-daero, Yuseong, Daejeon 305-353, Korea.

lsw@kaeri.re.kr

1. Introduction

Cask design for a long term storage needs continuous improvements until the closure of a final repository system since the durations, burnup and storage quantities are not defined as yet. Optimization which considers various technical issues for a cask design is expected to provide a better cask design. Also an optimization is needed because the cask designed for a disposal will include assumptions of an excess conservatism that result in the cask designs having reduced capabilities and cask performances such as assembly performance capacity. By implementing an optimization, a burnup capability can be improved in spite of fixed cask safety limits such as external dose rates and fuel temperature limits. In this sense overall procedures of an optimization and specific optimization issues under various technical areas with respect to the circumstances of Korea are reviewed for beneficial results.

2. Optimization Process

2.1 Conceptual Optimization of a long term dry storage system

Optimization is a part of a design process in which a combination of application objectives, safety limits, design, regulatory practices, and costs is evaluated. And each of these several technical disciplines should be innovatively addressed and judiciously balanced in the final design.

As shown in fig 2.1, an optimization is divided into two parallel stages, each with design, fabrication and operation phases. Practice stage proceeds with a prototype design using the existing tools in four principal technical areas, an optimization within each area, and then proceeding to prototype fabrication using the established methods to test the ease of fabricating the design, and then to the test for a

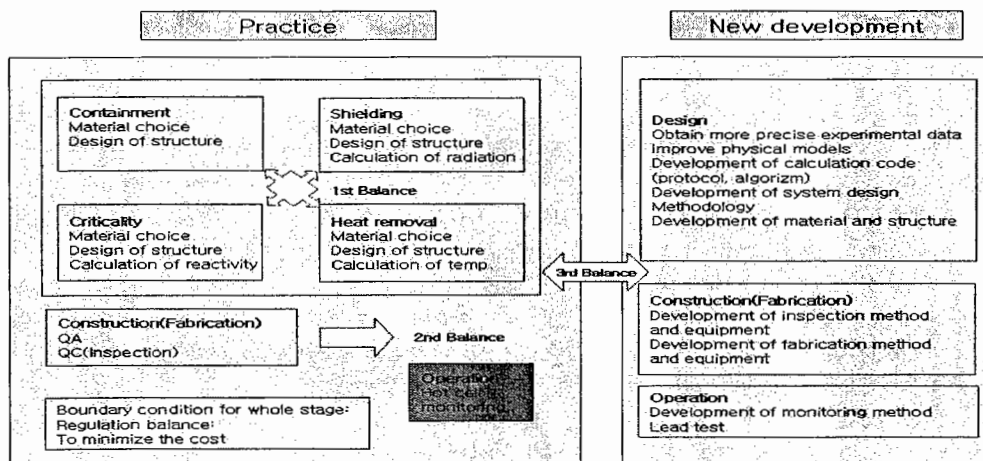


Fig 2.1 Optimization stages for a long term dry storage design operability and a ease of monitoring. Then the new development stage proceeds in parallel

without interfering in the parallel prototype design activity, but it develops improved fabrication approaches and a new test and monitoring approaches.

3. Optimization Issues

3.1 Cask type selection

The continuing trend of increasing fuel element burnups and specific powers leads to an increase of the decay thermal power and source term, especially the additional decay heat and neutron production in MOX elements. At the same time, cladding temperature criteria and limits for fuel elements become more and more stringent.

Optimization consists of a selection of materials with appropriate combinations of a high performance in multiple technical areas, such as their shielding, thermal conductivity, and strength attributes, so as to be more efficient for an overall safety function. This may require an aggressive development and demonstration of new materials. An additional goal of an optimization of a material performance is an identification of the material performance margins that lead to the simplification of a safety analysis and to the related simplification of a license.

3.2 Thermal performance

There are two aspects to be considered when dealing with an optimization of the thermal performance of casks: optimization of the loading itself and an optimization of the cask design to accommodate a higher thermal load. The zoning approach which is the simplest method of a non-homogeneous cask loading is a clear example of the first consideration. The use of better shielding materials with higher allowable temperature limits and the employment of more accurate or less conservative computational models and tools are examples of the second optimization route of accommodating higher thermal loads.

3.3 Radiation source terms, shielding, and dose limits

The overall optimization challenge is to undertake realistic reductions in the conservatism in the shielding regulatory practices, to make improvements in the current shielding safety analysis methods and in their supporting data, and to achieve the best among and within the alternative potential shielding design performance tradeoffs. Another principal optimization challenge is to best balance in the tradeoff between the largest practicable assembly capacity of a cask and a cask's burnup/age radiological capability relative to the spectrum of fuel types and characteristics in an intended application.

4. Conclusion

Overall procedures of an optimization for a long term spent fuel storage and optimization issues under a few technical areas are reviewed for a better cask design of a conceptual disposal system in Korea. A primary result of a successful design optimization is expected to be a licensed cask of a superior assembly and burnup/age capacity that minimizes the total number of cask loadings required to manage a given SNF inventory over a long term. An equally important and parallel benefit is that an optimization also results in a reduced overall radiation exposure, thereby contributing to the ALARA objectives for reducing all radiation exposures. More issues under technical areas need to be studied for a more detailed optimization until the final closure of a repository system.

REFERENCES

- [1] IAEA, Optimization Strategies for Cask Design and Container Loading in Long Term Spent Fuel Storage(2006)

후행 핵연료주기 시나리오 평가를 위한 AHP 적용 연구

김형준, 조천형, 이경구

한수원(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1번지

khjoon@khnp.co.kr

1. 서 론

후행 핵연료주기 시나리오 평가는 기술성과 경제성을 포함한 여러 가지 평가 인자가 복잡하게 혼재되어 있는 대표적인 다기준 의사결정(multi-criteria decision making) 문제에 속한다. 따라서 적정 후행 핵연료주기 시나리오 선정을 위해서는 특별한 의사결정기법의 적용이 필요하다. 본 연구에서는 기술성과 경제성, 에너지안보, 국내외 수용성 등 여러 가지 평가기준에 비추어 볼 때 어떤 시나리오가 어느 정도의 우선순위를 갖고 있는지를 평가하기 위한 여러 가지 방법 중 대표적인 다기준 의사결정기법의 하나인 AHP(Analytic Hierarchy Process) 기법을 적용해 보고자 한다.

2. AHP 적용 절차

AHP를 이용하여 문제를 해결하고자 하는 경우에는 보통 다음과 같은 4단계의 과정을 거친다.

[단계 1] 의사결정문제를 계층구조로 변환 : 이 단계는 주어진 의사결정문제를 상호 관련된 의사결정요소들로 분해하여 계층구조로 만드는 과정이다. 최상위 계층에는 가장 포괄적인 의사결정의 목표가 놓여지고, 최하위 계층에는 선택의 대상인 대안들로 구성된다.

[단계 2] 쌍별 비교 수행 : 이 단계에서는 상위의 평가기준 관점에서 하위의 평가기준의 상대적 중요도를 비교한다. AHP에서는 평가기준들을 2개씩 쌍별로 비교하는 방식을 취한다. 쌍별 비교는 9점 척도가 사용된다.

[단계 3] 평가기준의 가중치 계산 : 쌍별 비교를 통해 평가한 점수를 이용하여 n개의 평가기준에 대한 중요도 $w(1)$, $w(2)$, ..., $w(n)$ 을 다음과 같이 고유치 방식(eigenvalue method)을 이용하여 계산하는 단계이다.

$$A \times W = \lambda(\max) \times W$$

여기서 A는 쌍별 비교의 결과로 얻어진 값을 정방행렬로 나타낸 것이며, $\lambda(\max)$ 는 행렬 A의 최대 고유치(maximum eigenvalue), W는 고유벡터(eigenvector)이다.

[단계 4] 대안의 우선순위 계산 : 이 단계에서는 아래와 같은 방법으로 대안들의 종합 가중치를 구하는 단계이다.

$$W(i) = \sum w(j) \times u(i,j)$$

여기서 $W(i)$ 는 i 번째 대안의 종합가중치이고, $w(j)$ 는 평가 기준 j의 상대적 가중치, 그리고 $u(i,j)$ 는 평가 기준 j에 대한 i 번째 평가 대안의 가중치를 말한다.

3. 적용 사례

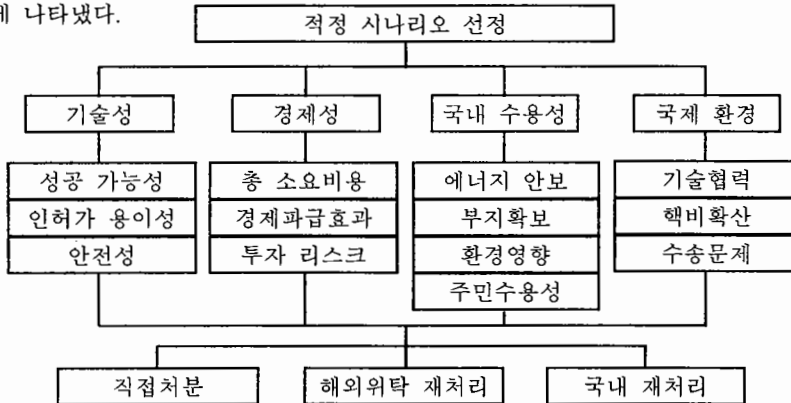
(1) 평가 기준 및 시나리오 작성

국내 실정에 적합한 후행 핵연료주기 시나리오 선정이라는 의사결정을 위해 본 연구에서는 기술성, 경제성, 국내 수용성, 국제 환경 등 4가지 평가 기준을 설정하였다. 그리고 기술성의 하위 평가 기준으로는 기술적 성공 가능성, 인허가 용이성, 안전성 등 3가지를 설정하였다. 경제성의 하위 평가 기준으로는 총 소요비용, 경제파급효과, 투자 risk 등 3가지를 설정하였다. 국내 수용성의 하위 기준으로는 에너지 안보, 부지확보, 환경영향, 주민 수용성 등 4가지를 설정하였다. 국제 환경의 하위 평가 기준으로는 기술협력, 핵비확산, 수송문제 등 3가지를 설정하였다.

평가대안으로는 사용후연료 직접처분 시나리오, 해외위탁 재처리, 국내 재처리 등 3가지를 설정하였다.

(2) 의사결정 계층도 작성

도출된 평가기준 및 평가대안을 기초로 하여 AHP의 의사결정 계층도를 작성하였으며, 이를 <그림 1>에 나타냈다.



<그림 1> 적정 시나리오 선정을 위한 계층구조

(3) 평가 및 결과

평가 기준 및 대안의 상대적 중요도를 측정하기 위하여 후행 핵연료주기 분야 전문가 7인에게 의뢰하여 쌍별 비교를 수행하고, 그 값을 AHP 계산과정에 의해 가중치로 환산하였다.(표 1 참조)

<표 1> AHP에 의한 종합평가 결과

평가 기준(C _i)과 평가 대안(A _i)의 가중치 계산 결과														W _i	P _i
	C ₁ =0.223			C ₂ =0.083			C ₃ =0.273				C ₄ =0.420				
	0.213	0.04	0.713	0.117	0.317	0.263	0.093	0.423	0.180	0.297	0.177	0.610	0.217		
A ₁	0.367	0.183	0.153	0.520	0.363	0.567	0.090	0.130	0.127	0.277	0.497	0.793	0.593	0/387	2
A ₂	0.587	0.710	0.713	0.347	0.240	0.370	0.110	0.817	0.767	0.627	0.557	0.173	0.313	0.441	1
A ₃	0.050	0.103	0.103	0.130	0.397	0.067	0.500	0.053	0.107	0.097	0.047	0.037	0.090	0.172	3

여기서 C₁=기술성, C₁₁=기술적 성공 가능성, C₁₂=인허가 용이성, C₁₃=기술적 안전성, C₂=경제성, C₂₁=총 소요비용, C₂₂=경제파급효과, C₂₃=투자 risk, C₃=국내 수용성, C₃₁=에너지 안보, C₃₂=부지확보, C₃₃=환경영향, C₃₄=주민 수용성, C₄=국제 환경, C₄₁=기술협력, C₄₂=핵비확산, C₄₃=수송문제, A₁=직접처분, A₂=해외위탁 재처리(프랑스 UP3 기준), A₃=국내 재처리(Pyro 기술), W_i=대안 i의 종합 가중치, P_i=대안 i의 우선순위를 의미한다.

4. 결 론

국내 상황에 적합한 후행 핵연료주기 시나리오를 선정하기 위한 여러 가지 방법 중 대표적 다기준 의사결정 기법의 하나인 AHP를 적용하는 방법과 절차에 대하여 알아보았다.

한편 AHP 적용 방법 및 절차의 사례로서, 후행 핵연료주기 분야 전문가 7인에게 평가 기준 및 평가 대안에 대해 쌍별 비교를 행하게 한 후, 가중치를 산정 및 종합한 결과 직접처분이 0.387, 해외위탁 재처리 0.441, 국내 재처리 0.172으로 계산되어 현재 국내의 상황에서는 해외위탁 재처리 시나리오가 적절한 것으로 평가되었다.

The Prospects of N. Korean Nuclear Issues after 2.13 Agreement

In Jin Song, Dong Keuk Park, Young Sung Choi, and Seong Ho Kim*

Korea Institute of Nuclear Safety, Korea

*Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeok-daero, Yuseong, Daejeon 305-353, Korea

K239sij@kins.re.kr

1. Introduction

A series of US NK Talks (June, 1993), 3 Party Talks among NK US China (April 2003), and 6 Party Talks among US, China, Japan, Russia, NK, and SK (August, 2003) has been held in order to promote Nuclear non Proliferation in North Korea.

As a result of the fifth 6 Party Talks on Feb. 13, 2007 at the 3rd level meetings, the Agreement has been reached, and multi party Talks have turned out to be the key to a successful solution of the problem. The official title of the Agreement reached on Feb 13, 2007, is "Initial Actions for the Implementation of the September 19th Joint Statement."

Therefore, it is imperative that we scrutinize the content of the September 19th statement. The Joint Statement of September 19th, 2005, contains the following 6 items [1]:

- 1) The six parties unanimously reaffirmed that the goal of the six party talks is the verifiable denuclearization of the Korean Peninsula in a peaceful manner.
- 2) The six parties undertook, in their relations, to abide by the purposes and principles of the Charter of the United Nations and recognized norms of international relations.
- 3) The six parties undertook to promote economic cooperation in the fields of energy, trade and investment, bilaterally and/or multilaterally.
- 4) Committed to joint efforts for lasting peace and stability in northeast Asia.
- 5) The six parties agreed to take coordinated steps to implement the aforementioned consensus in a phased manner in line with the principle of "commitment for commitment, action for action."
- 6) The six parties agreed to hold the fifth round of the six party talks in Beijing in early November 2005 at a date to be determined through consultations.

Concerning actions, it is the Agreement of Feb 13th, 2007 that includes the initial Actions to implement the 9.19 Joint Statement. The major part of the Agreement is schematically shown in Fig. 1.

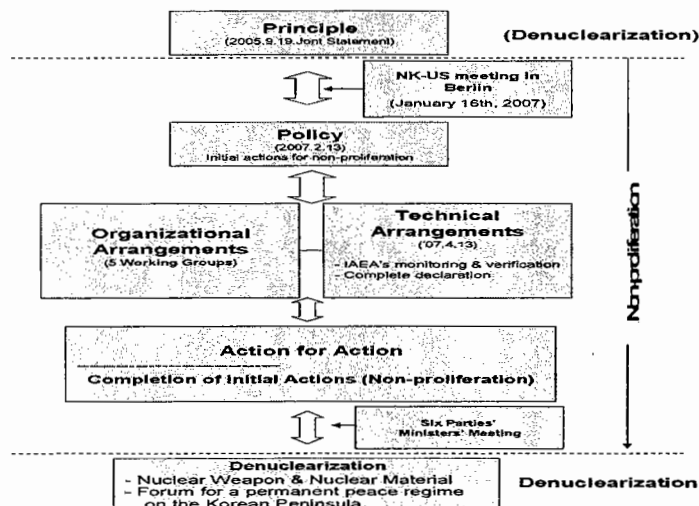


Fig. 1. Initial Actions for the Implementation of the Joint Statement

2. The Prospects of North Korean Nuclear Issues

As the above schematized chart indicates, the Agreement of Feb. 13, 2007 seems far less sufficient than what has been pursued in the Joint Statement of September 19, 2007 [2]. For that reason, there have been much debate and heated controversy on the issue.

Nonetheless, the Agreement itself should be considered a positive signal, even if it is not completely satisfactory, given that the present world is nothing but anarchic.

Nuclear issues go well beyond any particular country or state, which means that it is important to approach the nuclear issues from a more realistic and practical perspectives. In that sense, it is worth noting that the US. has recently changed its attitude towards North Korea so that the US. would prefer to halt the non proliferation of nuclear program at any cost.

The contradicting evaluations about the Feb. 13th Agreement originate from the lack of unanimous consent on how to handle nuclear weapons and materials. In other words, even though the Feb. 13th Agreement is the initial implementation of the principle of non proliferation of Korea suggested in September 19th Joint Statement, it is still highly arguable that there is no comment about the disposal of nuclear materials and weapons.

3. Conclusion

Consequently, it is of our greatest concern over how the denuclearization of the Korean peninsular would take its course at the meeting of Ministers of Foreign Affairs of those six countries after the 2.13 Agreement. Furthermore, it would be extremely intriguing to find out how the working groups on Korea Denuclearization and on the normalization of the US NK diplomatic relation take their stands.

Once such issues are resolved, the actual action plans are expected to get activated at the next stage. In such a case, the following two scenarios in the matter of NK's disposal of nuclear programs can be anticipated: ① If and When NK accedes to NTP agreed on the September 19th Joint Statement. ② The US recognizes NK as a Nuclear Weapon State, although the U.S. normalizes its diplomatic relationship with NK to curb the nuclear transfer to other countries.

The first scenario follows a realistic approach that emphasizes national security which considers that nuclear proliferation should be controlled from the supply side.

In the near future, the following points will be examined: whether NK will actually agree on the denuclearization, i.e. the disposal of nuclear program or maintenance of such program. If they decide to quit nuclear weapons development, we will examine which model/procedure of nuclear disposal previously discussed will be more appropriate.

Following the second scenario, if North Korea insists on the status of Nuclear Weapon State, could the realization of their insistence be possible? This paper, on the basis of the above mentioned factors, discusses the policy implication about how to establish South Korean government's nuclear programs and their implementation.

REFERENCES

- [1] Joint Statement of September 19, 2005
- [2] Initial Actions for the Implementation of the September 19th Joint Statement, 2007

제2-1분과

방사성폐기물 처리 (Oral)

Study of tritium (^3H) speciation in a reactor bioshield concrete

Dae Ji Kim, Phillip E Warwick, Ian W Croudace, Jung-Suk Oh

GAU-Radioanalytical, National Oceanography Centre, University of Southampton, European Way, Southampton SO14 3ZH, UK
dxk@noc.soton.ac.uk

1. Introduction

A significant number of first and second generation nuclear research sites and nuclear power plants in the UK are being decommissioned and many others are due to begin decommissioning within the next decade. The nature of decommissioning works will vary from site to site but, in most cases, will involve either the extensive clean out, refurbishment or demolition of buildings and other facilities, and remediation of the land. With this process, large volumes of waste materials will be generated. Some of these materials will be contaminated with radioactivity therefore they must be treated as radioactive waste and carefully disposed of in accordance of the requirements of national radioactivity regulations. Concrete, cements and rubble consist of 22% of total weight of low level waste (LLW) and 12% of total weight of intermediate level waste (ILW) in the UK [1]. The radioactivity in the reactor bioshield concrete is derived from the integrated effects of neutron irradiation of many nuclides and includes ^3H , ^{14}C , ^{63}Ni , ^{60}Co , ^{36}Cl , ^{55}Fe , ^{41}Ca , ^{152}Eu , ^{90}Sr , ^{133}Ba , ^{137}Cs and some transuranics [2]. However, tritium is considered to be the critical radionuclide [3-5]. Detecting tritium is potentially difficult in many materials because of its weak beta energy and absence of gamma rays and is consequently rather expensive. There are several reported methods in use for tritium determination, which are partly dependent on sample type and activity but combustion is particularly successful as it can physically extract and separate ^3H and ^{14}C from other radionuclides. In this study, the tritium distribution across a concrete bioshield core was analysed and compared with tritium from structural concrete.

2. Methodology

A concrete core, traversing the bioshield, was taken from of a UK reactor being decommissioned. Sub-samples of the core were crushed and measured. Tritium thermal evolution profiles for a sequential series of these sub-samples were determined along with the total tritium concentration profile. Tritium extraction was achieved using a Radtec Pyrolyser TrioTM System (Figure 1) which provides simultaneous extraction/oxidation of six samples at a time. The methods used were developed and validated by GAU-Radioanalytical at the University of Southampton (www.gau.org.uk) a group specialising in radionuclide R&D and analysis. All final tritium measurements were performed using a 1220 liquid scintillation counter (Wallac QuantulusTM). Samples were run in a manner where sub-samples of the tritium vapour were taken at selected times so the evolution profile with temperature and time could be evaluated.

3. Results and discussion

There were two distinct styles of tritium loss from the concrete sub-sample as they were progressively heated. In concrete sampled further away from the reactor (outer bioshield) tritium was lost more rapidly and at lower temperature. The evolution profile was similar to that seen for tritium loss from structural concrete (non-bioshield concrete). However, for the concrete sub-samples closer to the reactor (inner bioshield concrete) the evolution of tritium was quite different (Figure 2). For these samples the following were noted.

- Loss of tritium in sub-samples occurred episodically and over a broad range of temperatures.
- The overall ^3H concentration in bioshield concrete near the reactor decreases exponentially with distance from the reactor.

These different rates of loss were interpreted as being caused by the speciation of tritium in the concrete caused by the origin of the tritium.

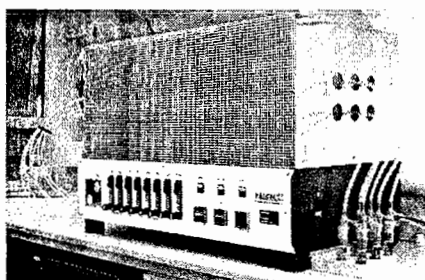


Figure 1: Raddec Pyrolyser™ System

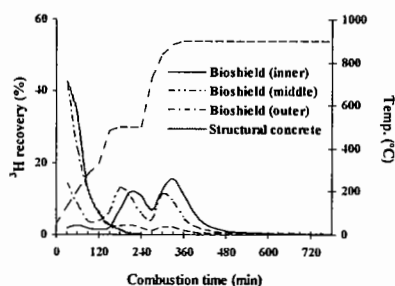


Figure 2: Evolution profile of structural and bioshield concrete

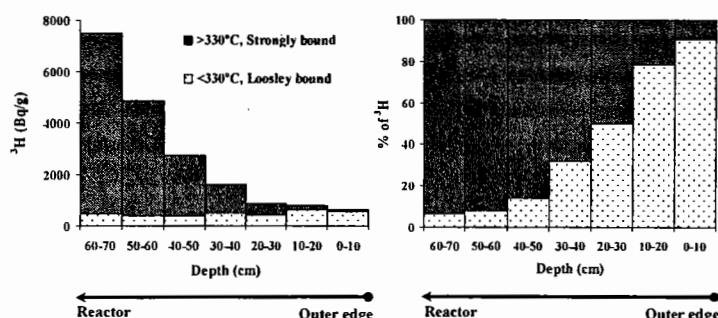


Figure 3: Tritium form in bioshield concrete

4. Conclusions

Bioshield concrete can contain tritium in several forms with possible production routes being by one or more processes. These are neutron capture by deuterium, an (n, α) reaction on lithium-6 and ternary fission (fission yield $<0.01\%$). Systematic analysis of a sequence of sub-samples taken from the examined core showed different tritium-loss profiles that depended on their position in the core. Tritium lost at low temperatures (100°C) was as HTO and associated with water loss from hydrated mineral components. Tritium lost at higher temperatures (350°C) was held more strongly in mineral structures and required a temperature of $>860^\circ\text{C}$ was required to lead to total liberation. The more-strongly retained tritium originates from tritium generated by neutron capture of trace lithium (lithium-6) distributed throughout minerals in the concrete. The higher concentrations seen in concrete sub-samples near the reactor are due to the greater neutron flux seen by those samples. On the other hand tritium from the outer edge samples of the bioshield concrete (and non-bioshield structural concrete) are related to the absorption of tritiated water (HTO) from the reactor hall atmosphere. The results of this study have important implications for the disposal options for bioshield concrete.

5. References

- [1] DEFRA and NIREX, Radioactive waste in the UK: A summary of the 2001 inventory. 2002.
- [2] Hou, X., Rapid analysis of ^{14}C and ^3H in graphite and concrete for decommissioning of nuclear reactor. Applied Radiation and Isotopes, 2005. 62(6): p. 871-882.
- [3] Bushuev, A.V., et al., Quantitative-Determination of the Amount of H-3 and C-14 in Reactor Graphite. Atomic Energy, 1992. 73(6): p. 959-962.
- [4] Bisplinghoff, B., et al., Radiochemical characterization of graphite from Jülich experimental reactor (AVR). Nuclear Energy-Journal of the British Nuclear Energy Society, 2000. 39(5): p. 311-315.
- [5] Kinno, M., et al., Correlation between tritium and ^{152}Eu induced in various types of concrete by thermal neutron irradiation. Journal of nuclear science and technology, 2002. 39(3): p. 215-225.

초임계 이산화탄소와 TBOD를 이용한 토양으로부터 우라늄 추출 분리

성진현, 김정수, 박광현, 김홍두, 김학원, 김계남*, 문재권*

경희대학교, 경기도 용인시 기흥구 서천동 1

*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

sungjh@khu.ac.kr

1. 서론

원자력 분야의 주요 현안 중의 하나인 방사성 오염물의 제염(Decontamination)은 이차 폐기물의 발생이 적은 보다 환경친화적인 기술의 개발을 필요로 하고 있다. 현재 제염 분야에서 사용되고 있는 방법은 산과 알칼리 용액에 의한 표면용해 등의 화학적 제염과 고압의 물이나 증기의 분사에 의한 표면세척 등의 물리적 제염 등이 실행되고 있으나, 이러한 습식제염 기술들은 제염시 이차 폐기물을 다량으로 발생시키는 단점을 가지고 있다. 미래에는 원자력 시설들의 노후화로 인하여 이들 시설물의 폐기 또는 해체에 대한 수요가 증가할 것이므로 노후화된 원자력 관련 시설의 유지 보수와 수명 연장 또는 폐기와 해체로 발생하게 될 방사성 오염 물질의 제염에 대하여 이차폐기물의 발생을 근본적으로 억제하는 혁신적인 기술이 필요하다. 초임계 이산화탄소를 이용한 건식 제염 기술은 이차폐기물의 발생이 적은 기술적 특징을 가지고 있다. 그러나 비극성 물질인 이산화탄소는 이온성 물질에 대하여 낮은 용해도를 나타내므로, 금속이온을 이산화탄소로 직접 추출하여 제염효율을 향상시킬 수 있는 킬레이트 리간드를 필요로 한다. 본 연구에서는 자체적으로 개발하여, 우라늄 수용액으로부터 우라늄 이온을 90%까지 추출할 수 있는 효율을 보여준 *N,N,N',N'*-Tetrabutyl-3-oxapentanediamide(TBOD) 킬레이트 리간드를 이용하여 초임계 이산화탄소 하에서 토양으로부터 우라늄의 추출 분리효율을 평가하고, 원자력산업에서 이미 많이 사용되고 있는 Tri-*n*-butyl phosphate(TBP)를 이용한 초임계 이산화탄소 하에서 토양으로부터 우라늄의 추출 분리효율과도 비교하여 적용 가능성을 모색하여 보았다.

2. 실험 및 결과

토양으로부터 우라늄의 추출분리효율을 평가하기 위하여 비방사성 모의시료를 제조하였다. 토양을 75 μ m-2mm의 크기로 분리하고 과산화수소수와 질산수용액으로 토양 내의 유기물과 금속성분들을 제거하였다. 전처리된 토양 250g에 비방사성 우라늄이온(Atomic Absorption Spectroscopy 표준용액, Aldrich, 973 μ g/ml) 50ml와 증류수 200ml를 혼합한 후 상온에서 방치하였다. 진공회전증발 농축기로 물을 제거하면서 비방사성 우라늄을 토양에 흡착시킨 후 토양을 자연 건조시켜 비방사성 모의토양시료를 제조하였다. 그림 1에 나타난 화학적 구조를 갖는 TBOD는 Diglycolyl chloride와 Dibutylamine을 반응하여 직접 합성하였다. 비방사성 우라늄이 흡착된 토양 약 10g을 초임계유체 추출용 컬럼에 넣은 후 온도와 압력을 상승시켜 토양으로부터 우라늄을 추출 분리하였다. TBOD와 TBP는 리간드 용해용기에 질산과 함께 각각 넣은 후 20분간 교반하면서 질산-리간드 착물을 먼저 형성시켰다. 형성된 착물을 초임계 유체에 용해시키면서 우라늄 추출용기에 40분간 연속적으로 주입하여 배출하면서 토양에 흡착된 비방사성 우라늄을 추출하여 분리하였다. 초임계 이산화탄소하에서 우라늄 추출실험을 위한 초임계 유체 추출장치를 그림 2에 나타내었다. 추출전후 토양에 흡착되어 있는 비방사성 우라늄 농도를 ICP-MS로 분석하여 각각의 추출효율을 평가하였다. 서로 다른 질산농도에서의 우라늄 추출효율과 우라늄에

대한 질산과 TBOD 각각의 몰비율에 대한 추출효율을 표 1에 정리하였으며, TBOD와 TBP에 의한 우라늄의 추출효율도 표 2에 비교하였다.

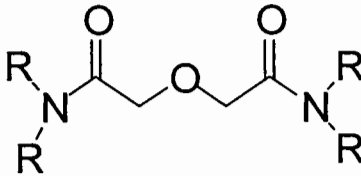


그림 1. 길레이트 리간드로 합성된 TBOD 화합물 ($R=(CH_2)_3CH_3$)

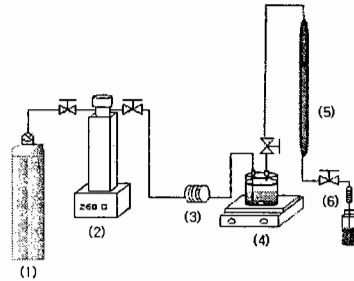


그림 2. 초임계 이산화탄소와 리간드를 이용한 우라늄 추출장치 (1)이산화탄소 공급용기 (2)이산화탄소 정량가압 펌프 (3)이산화탄소 예열기 (4)리간드 용해용기 (5)초임계 유체 우라늄 추출컬럼 (6)분리용기

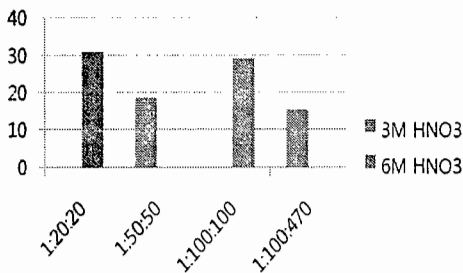


표 1. 3M과 6M 질산농도에서의 TBOD와 질산의 몰비에 의한 비방사성 우라늄의 추출 효율 (실험조건 : 40℃, 200bar)

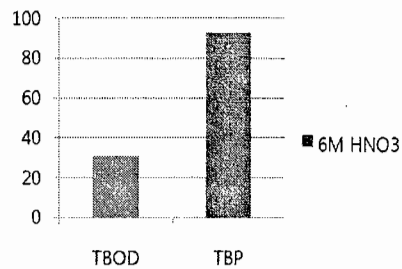


표 2. TBOD와 TBP에 의한 비방사성 우라늄의 추출효율 (실험조건 : 40℃, 200bar)

3. 결론

초임계 이산화탄소하에서 TBOD를 이용하여 토양으로부터 우라늄을 초기농도의 약 30%정도까지 추출 분리할 수 있었다. 표 1에서 TBOD를 이용하여 추출할 경우 3M 질산 수용액에서 보다는 6M 질산 수용액에서 추출 효율이 약 1.5배 증가함을 확인할 수 있었다. 또한 표 2에서 길레이트 리간드로 TBOD보다는 TBP를 사용할 경우 추출효율이 약 3배 정도 높음을 확인할 수 있었다. TBOD에 의한 우라늄의 추출분리효율을 증가시키기 위해서는 초임계 이산화탄소에 대한 TBOD-질산 착물의 용해도를 증가시켜 주어야 할 것이다.

방사성 핵종(코발트, 스트론튬)의 경쟁 흡착 특성 평가

강경관, 이영채, 권미경, 신원식, 최상준

경북대학교, 대구광역시 북구 산격동 1370번지

wshin@mail.knu.ac.kr

1. 서론

중·저준위 방사성 폐기물은 주로 동굴처분이나 천층처분 방식을 이용해 영구 처분한다. 그러나 방사성 폐기물 관리에 있어 여러 가지 요인에 의한 자연 재해나 부적절한 관리 등으로 주변 환경으로 유출되어 토양이나 지하수가 방사성 핵종으로 오염될 수 있다. 실제로 국외의 경우 2005년 3월 아르헨티나 에제이자(Ezeiza) 방사성폐기물 처분장의 방사능오염으로 주민 30만 명이 거주하는 지역 주변 토양의 약 2,500 ha가 방사성 핵종에 오염된 사건이 있었다. 또한, 국내에서도 인위적 또는 자연적인 이유로 토양과 지하수가 방사성 핵종으로 오염된 사례가 보고되고 있으므로 방사성 핵종으로 오염된 토양의 복원 기술에 대한 연구 개발의 필요성이 대두되고 있다. 이에 본 연구에서는 여러 흡착제에 대한 코발트와 스트론튬의 흡/탈착 실험을 통해 흡/탈착 특성을 규명하여 궁극적으로 방사성 핵종 오염 토양의 원위치 고정화(in situ immobilization) 복원기술 개발의 기초연구를 수행하였다.

2. 실험 및 결과

본 실험은 자연 토양의 pH인 5.5에서 흡착제에 대한 코발트와 스트론튬의 흡/탈착 특성을 평가하였다. 모든 흡착제는 buffer(0.05M MES buffer + 0.01M NaNO_3) 용액으로 2~5회에 걸쳐 세척하여 pH를 5.5로 조절한 후 사용하였다. 각 흡착제에 대한 단일 성분 등온흡착 실험은 일정한 pH를 유지하기 위해 0.05M MES(2-[N-Morpholino]ethanesulfonic acid) buffer와 0.01M NaNO_3 를 주입하고, 코발트와 스트론튬의 농도를 각각 1~20mmol/L과 1~15mmol/L로 증가시켜 가면서 수행했다. pH를 5.50으로 조정하기 위해 0.1N HNO_3 또는 0.1N NaOH 를 이용했고, 48시간 동안 흡착 실험(25°C, 200rpm)을 수행하였다. 이성분 등온흡착 실험은 단일 성분과 동일하게 수행하되 방사성 핵종의 농도는 1~15mmol/L로 증가시켜 가면서 수행했다. 연속 탈착 실험은 등온 흡착 실험과 동일한 조건에서 전해질 용액을 사용하여 24시간씩 반복 수행하였다. 모든 실험은 회분식 실험으로 진행되었고, 분석을 위해 시료는 3000rpm, 20분간 원심분리 한 후, 0.2 μm 의 Membrane Filter를 이용하여 여과한 후 ICP(PerkinElmer, Optima 2100 DV)로 분석하였다.

자연 토양과 생선뼈, 몬모릴로나이트, Mn-PILC, Fe-PILC에 대한 등온 흡착 실험 결과 코발트의 최대 흡착량이 생선뼈 > 자연토양 > Mn-PILC > Fe-PILC > 몬모릴로나이트의 순서로 나타났고, 코발트가 생선뼈에 가장 많이 흡착되었지만, 가장 많이 탈착되기도 했다. 스트론튬의 경우 흡착량에 대해 자연토양 > Mn-PILC > 생선뼈 > Fe-PILC > 몬모릴로나이트의 순서로 나타났고, 스트론튬은 코발트와 달리 자연 토양에 대해 가장 많이 흡착되고, 가장 적게 탈착되는 것으로 나타났다. 모델에 대한 fitting 결과 모든 모델에 대해 코발트와 스트론튬 모두 높은 R^2 값을 나타냈다. 이성분 흡착실험 결과, 단일 성분의 흡착과 비교하였을 때 이성분계에서의 경쟁 흡착 시 경쟁 성분의 존재로 인해 각 성분의 흡착량이 감소하는 것으로 나타났고, 단일 성분의 흡착 결과에서는 각 흡착제에 대해 코발트가 스트론튬보다 많은 양이 흡착되는 것으로 나타났지만, 경쟁 흡착 결과에서는 생선뼈를 제외한 모든 흡착제에서 스트론튬이 코발트 보다 더 많은 양이 흡착되는 것으로 나타났다.

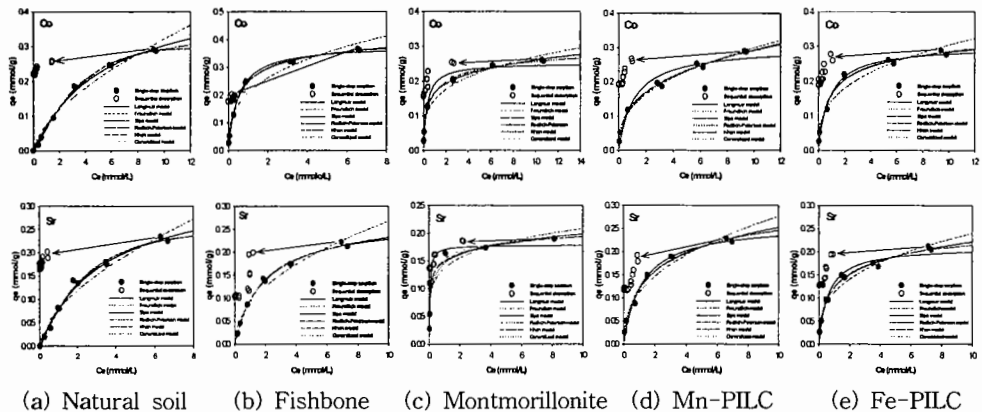


Fig. 1. Single-solute sorption and desorption isotherm of Co and Sr in adsorbents at pH 5.5.

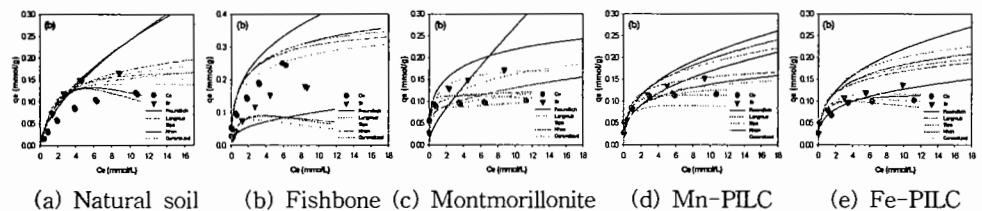


Fig. 2. Bislute competitive sorption isotherm of Co and Sr on natural soil at pH 5.5. Lines indicate IAST predictions coupled to single-solute sorption and desorption models, respectively.

3. 결론

단일성분 등온흡착 특성에 있어 코발트는 생선뼈에 가장 많이 흡착되고 가장 많이 탈착되었고, 스트론튬은 자연토양에 가장 많이 흡착되고 가장 적게 탈착 되는 것으로 나타났다. 또한, 몬모릴로나이트와 개질 점토에 대한 코발트와 스트론튬의 흡착량은 세 가지 흡착제에 대한 CEC값의 크기순서와 일치하는 것으로 나타나 코발트와 스트론튬의 흡착이 양이온 교환에 의해 상당 부분 일어난다는 것으로 사료된다. 이성분 흡착실험 결과, 생선뼈를 제외한 모든 흡착제에서 스트론튬이 코발트 보다 더 많은 양이 흡착되는 것으로 나타나 단일 성분의 흡착과 비교하였을 때 이성분계에서의 경쟁 흡착 시 경쟁 성분의 존재로 인해 각 성분의 흡착량이 감소하는 것으로 나타났다.

4. 참고문헌

- [1] A. M. L. Kraepiel, K. Keller, and F. M. M. Morel, A model for metal adsorption on montmorillonite, *J. Colloid and Interface Science*, 210, 43-54 (1999).
- [2] S. C. Tsai, S. Ouyang, and C. N. Hsu, Sorption and diffusion behavior of Cs and Sr on Jih-Hsing bentonite, *Applied Radiation and Isotopes*, 54, 209-215 (2001).
- [3] D. T. Karamanis, X. A. Aslanoglou, P. A. Assimakopoulos, N. H. Gangas, A. A. Pakou, and N. G. Papayannakos, An aluminum pillared montmorillonite with fast uptake of strontium and cesium from aqueous solutions, *Clays and Clay Minerals*, 45(5), 709-717 (1997).
- [4] W. Admassu and T. Breese, Feasibility of using natural fishbone apatite as a substitute for hydroxyapatite in remediating aqueous heavy metals, *J. Hazard. Mater.*, B69, 187-196 (1999).
- [5] I. Smiciklas, S. Dimovic, I. Plecas, and M. Mitric, Removal of Co^{2+} from aqueous solutions by hydroxyapatite, *Wat. Res.*, 40, 2267-2274 (2006).

산소분산법에 의한 공용염폐기물내 희토류염화물의 산화시 희토류산화생성물의 특성

은희철, 양희철*, 조용준*, 김용호*, 김인태*

과학기술연합대학원대학교, 대전광역시 유성구 어은동 52번지

*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

ehc2004@kaeri.re.kr

1. 서론

Pyrochemical process는 핵비확산적 측면과 환경 및 경제적 측면 등에서 기존의 사용후핵연료(spent nuclear fuel) 처리기술에 비해 많은 장점을 가지고 있어 사용후핵연료처리를 위한 대체기술로 많은 연구가 진행되고 있다. 전해정련공정(electro-refining process)은 이러한 pyrochemical process의 주요 공정중 하나로 방사성 희토류염화물을 함유한 공용염폐기물이 배출되는 문제점을 가지고 있다. 이를 해결하기 위해 희토류염화물을 염내에서 불용성으로 존재하는 산화물형태로 전환하여 분리하는 방법들이 많이 연구되고 있다. 그 중에서도 Li_2O 와 같은 산화제 주입법과 phosphate 주입에 의한 침전법이 비교적 효과적인 것으로 보고되고 있으나 첨가제 주입에 의해 불순물이 발생하는 문제점이 있다. 하지만 염내 산소분산에 의한 희토류염화물의 산화분리법은 희토류염화물의 산화효율이 높고 불순물이 발생되지 않아 염을 재활용할 수 있는 장점이 있으며 공용염폐기물을 안정적으로 처리할 수 있는 가장 적절한 방법으로 보고되고 있다. 본 연구에서는 산소분산에 의해 공용염폐기물내 희토류염화물을 산화할 때 온도에 따른 산화생성물의 형태와 그 생성물의 열적특성을 살펴보고 이들을 최종 처분하는데 있어 필요한 기초자료를 제시하고자 하였다.

2. 실험 및 결과

산소분산에 의한 공용염내 희토류염화물의 산화실험은 공용염(질량비 $\text{LiCl}:\text{KCl}=44.2:55.8$)과 희토류염화물($\text{Ce}/\text{Gd}/\text{La}/\text{Nd}/\text{PrCl}_3$)을 먼저 혼합하여 알루미늄 도가니에 넣은 후 Fig.1에 나타난 장치에 삽입하여 실시하였으며, 실험 후 발생한 공용염을 증류수에 용해하여 불용성의 희토류산화생성물을 얻었다. 희토류산화생성물의 형태를 살펴보기 위해 XRD를 이용하여 구조분석을 실시하였으며 그 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 운전 온도에 관계없이 $\text{Gd}/\text{La}/\text{NdCl}_3$ 은 $\text{Gd}/\text{La}/\text{NdOCl}$ ($\text{Gd}/\text{La}/\text{Nd}$ oxychloride) 형태로 CeCl_3 는 CeO_2 형태로 전환되었다. 이와 달리 PrCl_3 는 온도에 따라 생성물의 형태가 달라지는 것으로 확인되었다. 750°C 이전의 온도에서는 PrOCl 의 형태가 주로 발생되었고 750°C 이상의 온도에서는 PrO_2 형태 또한 많이 생성되는 것으로 나타났다.

산소분산법에 의해 발생한 희토류산화물의 열적특성을 살펴보기 위해 산소분위기에서 열중량분석실험을 실시하였으며, 그 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 승온속도는 분당 10°C 로 하여 1300°C 까지 노내 온도를 상승시켰으며, 최고온도에서 2시간 동안 유지하였다. Fig. 3에서 보는바와 같이, GdOCl 의 경우 약 850°C 에서 무게감량이 시작되어 1200°C 에 도달하였을 때 12% 정도의 무게감량을 끝으로 무게변화가 없었고, NdOCl 의 경우에는 약 1000°C 에서 무게감량이 시작되어 GdOCl 보다 높은 온도인 1300°C 에서 10분가량 지난 후 무게감량이 종료되었다. PrOCl 은 1100°C 부근에서

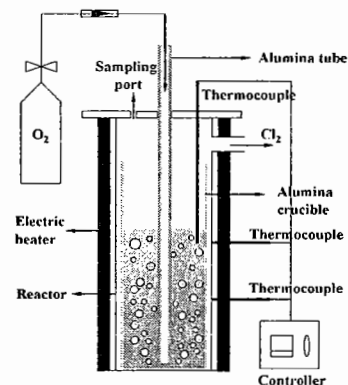


Fig. 1 산소분산에 의한 공용염내 희토류염화물 산화장치

무게감량이 시작되었으며, 1300℃에서 약 20분 지난 후에 무게감량이 종료되었다. LaOCl은 다른 희토류산화물에 비해 열적 안정성이 가장 큰 것으로 나타났다. LaOCl의 무게감량은 약 1200℃에서 시작되어 1300℃에서 90분가량 지난 후에 무게감량이 종료되었다. CeO₂의 경우는 1300이상의 온도에서도 무게감량이 없어 그 형태가 고온에서도 그대로 유지되는 즉, 열적안정성이 아주 큰 것으로 판단된다. XRD를 이용하여 열중량분석 후 잔류물의 형태를 살펴본 결과, Gd/La/NdOCl은 모두 RE₂O₃형태로 전환됨을 확인하였고 PrOCl은 PrO₂로 전환됨을 알 수 있었다.

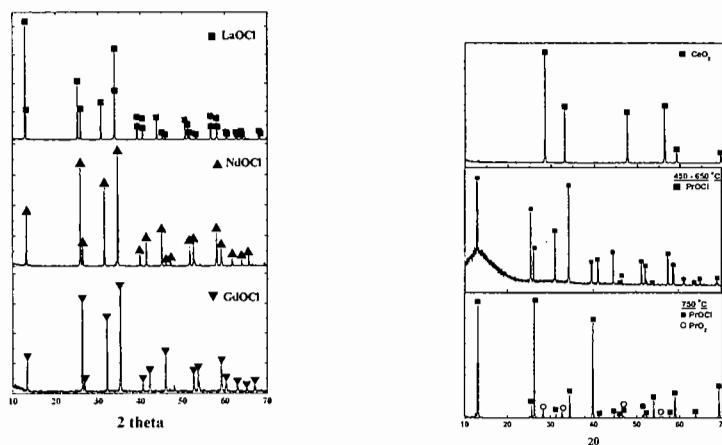


Fig. 2 산소분산에 의해 발생하는 희토류염화물의 산화생성물의 회절분석결과

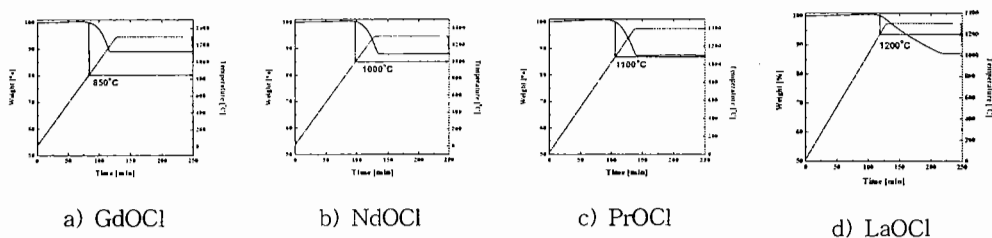


Fig. 3 REOCl의 열중량분석 결과

3. 결론

공용염폐기물내 희토류염화물을 산소분산법에 의해 산화할 때 온도에 관계없이 Gd/La/Nd는 REOCl 형태로 Ce는 CeO₂ 형태로 전환되었으며, Pr은 온도에 따라 PrOCl과 PrO₂가 함께 생성되었다. Gd/La/NdOCl은 1300℃에서 산화할 때 RE₂O₃로 전환되었고 PrOCl은 PrO₂로 산화되었으며, 특히 LaOCl은 모두가 산화되는데 가장 많은 시간이 소요되어 염산화물 중에서 열적 안정성이 가장 큰 것으로 사료된다.

참고문헌

- [1]. J. J. Laidler et al., "Development of Pyroprocessing Technology," Progress in Nuclear Energy, 31, 131-140 (1997).
- [2]. Y. Katayama, R. Hagiwara, Y. Ito, "Precipitation of rare earth compounds in LiCl-KCl eutectic," J. Electrochem. Soc, 142, 2174-2178 (1995).
- [3]. Y. J. Cho, H. C. Yang, H. C. Eun, E. H. Kim, I. T. Kim, "Characteristics of oxidation reaction of rare-earth chlorides for precipitation in LiCl-KCl molten salt by oxygen sparging," J. of Nucl. Sci. Tech., 43, 10, 1280-1286 (2006).

액체섬광계수장치를 이용한 RI폐기물 내 ^{32}P 분석

강상훈, 최한보*, 한선호, 손세철, 지광용

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045번지 (덕진동 150)

*한수원(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1번지

indoor@hanmail.net

1. 서론

최근 혈액(혈소판) 검사 및 치료, 의학적·생화학적 연구 및 교육 목적으로 방사성 인을 사용하는 RI 이용기관의 수가 늘어나면서 그에 따라 RI폐기물 내 ^{32}P 의 발생량도 꾸준히 증가하고 있다. 개봉 RI 중 방사성 인의 이용을 위한 ^{32}P 의 허가량은 판매기관, 의료기관, 연구기관의 순이며, RI폐기물의 형태는 가연성, 비가연성, 비압축성 폐기물과 폐 필터 등이 있다. ^{32}P 는 1710.7 keV의 매우 높은 에너지를 갖는 베타 방출 핵종이다. RI폐기물 내 ^{32}P 의 반감기는 14.3일로 짧고 단기간의 진단 및 치료 목적으로 사용되었기 때문에 발생기관별, 성상별, 연도별로 체계적이고 지속적인 관리를 하고 꾸준한 모니터링을 통해 방사능이 충분히 감쇄되어 기준치보다 훨씬 낮은 RI폐기물에 대해서는 안전을 확보한 상태에서 자체처분 등을 통해 경제적인 효과를 기대할 수 있다. 그러기 위해서는 RI폐기물 내에 존재하는 다양한 핵종들 중에서 ^{32}P 를 분리해 내는 기술과 신속·정확하게 분석하는 과정이 필수적이다. 따라서 본 연구에서는 ^{32}P 표준물질과 실제 시료에 대해 산침출을 통해 용액의 형태로 회수하고, 화학적 분리방법에 의해 유기층에서 추출한 후 적절한 각테일과 혼합하여 액체섬광계수기로 측정하는 방법을 적용하였다.

2. 실험 및 결과

전체적인 실험과정은 아래의 Fig. 1과 같이 산침출 및 여과과정, 용매추출과정, 액체섬광계수기(liquid scintillation counter, LSC) 측정과정의 3단계로 이루어지며 각 과정의 실험 내용 및 결과는 다음과 같다.

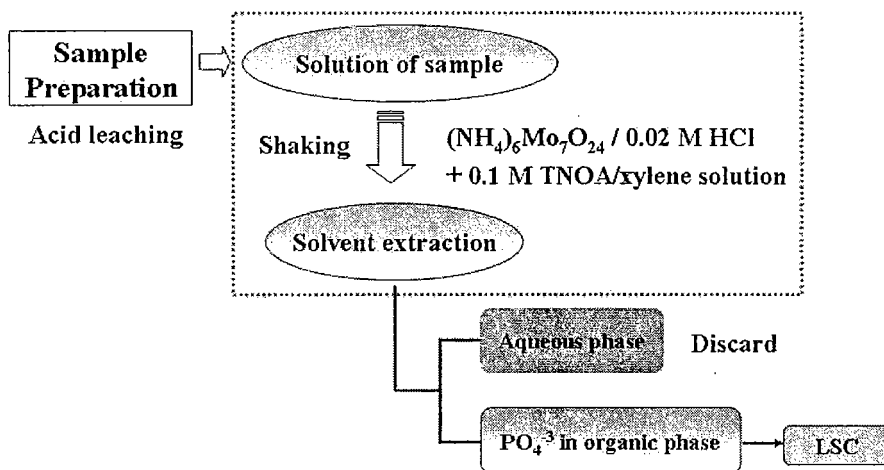


Fig. 1. Chemical separation and measurement of ^{32}P in RI wastes

방사화학실험실 후드 내에서 RI폐기물 시료를 각각 10 g씩 취하여 4 batch mantle의 200 mL 둥근 플라스크에 넣고 3 M HNO₃ 100 mL와 (NH₄)₂HPO₄ 0.1 mg/mL H₂O를 첨가한 후 150 °C의 온도로 3시간 동안 가열하였다. 침출시에는 150 °C의 온도에서 3 M HNO₃으로 3시간 동안 유지시켰으며, 플라스크 내에 시료와 용액이 충분히 섞이면서 침출이 이루어질 수 있도록 교반과정을 첨가하였다. 산침출 과정이 끝나면 실온까지 냉각한 후 suction bell 장치와 Whatman filter를 이용하여 여과하였다. 여과된 용액을 hot plate에서 증발건고하여 0.02 M HCl 매질 하에서 7 mL로 만들었다. 증발건고한 7 mL의 용액에 (NH₄)₆MO₇O₂₄ 0.1 mg/mL H₂O와 0.1 M TNOA/xylene 용액 8 mL를 첨가한 후 5분간 강력하게 교반하고 4시간 동안 방치하였다. 유기층과 수층으로 완전히 분리되면, 상부 유기층을 취하여 액체섬광계수기 측정용 소형용기에 옮기고, Aquasol-2나 Insta-flour 각테일을 8 mL 취하여 액체섬광계수기에서 에너지를 0~1710 keV의 범위로 놓고 30 분 동안 측정하였다.

모의 시료인 제염지를 이용한 3 M HNO₃의 침출과정을 ICP-MS로 측정한 결과 (85 ~ 90) %의 회수율을 보였으며, ³²P 표준용액을 이용하여 산침출 및 용매추출 과정을 거쳐 Aquasol-2를 혼합한 후 액체섬광계수기로 측정한 결과 평균 80.6 %의 회수율을 나타냈다. Xylene과 어울리는 각테일인 Aquasol-2와 Insta-flour는 모두 같은 비율의 높은 반응성을 보였으며, Aquasol-2는 수용액과도 잘 반응하였다. 실제 시료(팁, 제염지, 바이알, 비닐장갑 등)인 RI폐기물을 대상으로 측정한 결과, 모두 최소검출방사능(minimum detectable activity, MDA)인 0.01 Bq/g 이하의 값으로 나타났다.

Table 1. Recovery of ³²P standard solution by LSC

	Std.	# 1	# 2	# 3	# 4	Average(SD)
Counting time(min)	30	30	30	30	30	
Measured activity(Bq)	12.15	9.51	10.13	9.79	9.78	9.80(0.25)
Recovery(%)		78.3	83.3	80.5	80.4	80.6(2.1)

3. 결론

³²P 표준용액을 이용한 산침출 및 용매추출 과정의 회수율은 80.6 %로 나타났으며, 이때 각테일은 Aquasol-2와 Insta-flour를 사용하였다. 액체섬광계수기를 이용한 측정과정에서는 계측효율을 보정하기 위해 에너지의 소광효과를 관찰해야 하는데, 본 연구에서는 Aquasol-2를 이용하여 3.78×10^3 Bq의 ³²P 표준용액을 이용하여 소광보정곡선을 작성하였다. RI폐기물 내 ³²P 분석을 위해 위와 같은 실험 조건에 따라 전처리 과정 및 화학적 분리과정, 그리고 액체섬광계수기를 이용하여 적용할 수 있음을 확인하였으며, 실제 시료인 RI폐기물 중 단일핵종 시료와 혼합핵종 시료 내 ³²P 측정에 적용한 결과, 분석대상 시료의 경우에는 최소검출방사능인 0.01 Bq/g 이하의 분석결과를 나타내었다.

저장중인 HEPA 필터 폐기물의 처리절차

지영용, 홍대석, 강일식, 손중식

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

yvji@kaeri.re.kr

한국원자력연구원의 방사성폐기물 저장시설에는 200 리터 환산 기준으로 약 1,000 여개의 폐필터가 저장중이며, 거의 대부분을 HEPA 필터(95%)가 차지하고 있다. 이들의 주 발생시설은 하나로와 RI 생산시설 그리고 핵연료주기시설로서 대부분 이들 시설의 운영과정에서 발생한 HEPA 필터들로 구성된다. 저장시설의 운영을 시작한 이래로 각 시설의 방사선관리구역 내에서 발생하는 폐 HEPA 필터들을 압축처리 등의 과정 없이 원형 그대로 비닐 백에 넣어 저장하고 있으며 따라서 저장용량의 포화에 임박한 저장시설의 용량확보를 위하여서 뿐만 아니라 폐기물의 효율적인 관리 측면에서 폐필터들을 부피감용 등의 적절한 처리 과정을 거쳐 최종적으로 규격화된 드럼에 포장하는 것이 바람직하다.

폐 HEPA 필터들을 압축처리 등의 부피감용 과정을 거쳐 최종적으로 드럼 포장을 하기 위하여, 본 연구에서는 먼저 저장중인 폐 HEPA 필터들의 발생이력을 조사하여 발생시설 및 발생일에 따라 분류하였다. 그리고 모든 HEPA 필터들에 대한 핵종분석을 수행하여 그 결과를 바탕으로, 같은 발생시설, 같은 발생일 그리고 같은 핵종 농도 분포를 가지는 폐 HEPA 필터들로 압축 후 드럼 포장을 할 것이다.

- HEPA 필터에 대한 대표시료 채취 및 핵종분석

HEPA 필터의 경우에는 핵종분석을 위한 대표시료를 채취함에 있어서 철재 프레임을 제외한 여과재에서 그 일부분을 채취하는데, 오염 및 피폭 가능성 그리고 과도한 작업시간 등을 고려하여 필터의 분해 없이 대표시료를 채취하는 것이 바람직하다. 필터의 분해 없이 여과재에서 대표시료를 채취하기 위해서는 필터에 포집된 핵종들의 경향을 파악하는 것이 필요하며, 사전 연구에 의해서 HEPA 필터의 경우 공기 흡입구 또는 배출구에서 농도가 높게 나타났다.

따라서 HEPA 필터의 분해 없이 시료를 채취할 수 있는 장비를 개발하였으며, 이를 이용하여 공기 흡입구와 배출구에서 각각 대표시료를 채취하였다. 이때, 표면선량률을 측정하여 hot spot이 존재하는 부분에서 집중적으로 채취하였으며, hot spot이 존재하지 않는 경우에는 그림 1의 (b)에서와 같이 9개의 구획에서 각각 채취하였다.

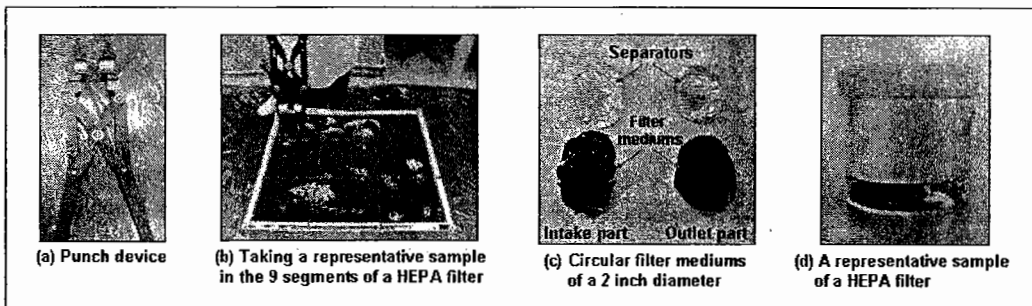


Fig. 1. The method for taking a representative sample using a punch device without a dismantlement of a HEPA filter

- HEPA 필터 압축처리 및 재포장

저장중인 폐 HEPA 필터를 발생시설별, 발생일별, 그리고 표면선량별로 가능한 균일하게 분류하여 그에 대한 핵종평가를 수행한 후, 가능한 같은 조건을 가지는 폐 HEPA 필터들로 규격드럼에 포장하는 것이 향후 이력관리 측면에서 바람직한 방법이다. 그러나 직육면체 형상의 폐필터 크기가 방사성폐기물 포장용 규격용기인 원주형 드럼(DOT-17H)의 직경 약 600 mm보다 크기 때문에 직접 넣어 포장할 수가 없고 적절한 방법으로 성형을 한 후, 드럼에 넣어 최종적으로 압축 처리를 해야 한다. 이를 위해 방사성폐기물 처리시설에서는 폐 HEPA 필터의 적절한 성형과 드럼 내에서의 압축 처리를 위한 장치를 개발하였으며, 그림 2에 장치의 개략도를 나타내었다. 이 장치는 HEPA 필터 폐기물을 적절한 크기 및 모양을 갖도록 유압식 성형실린더(3)에 의해 원주형상으로 변형시킴으로써, 포장용기 드럼 안에 HEPA 필터를 직접 넣을 수 있으며, 최종적으로 압축 실린더(4)를 이용하여 부피감용을 위한 압축 처리까지 마무리 할 수 있는 장치이다.

원주형으로 성형되기 전과 후의 HEPA 필터 모습을 그림 3에 나타냈으며, 이런 방법으로 성형된 HEPA 필터들은 직경이 약 500 mm 정도이므로 포장용기 드럼 안으로 자동적으로 투입된다. 포장용기 안으로 자동 투입된 HEPA 필터는 연이어 압축 실린더(4)에 의한 수직방향(z 축)의 압축을 받게 된다. 이렇게 HEPA 필터가 압축되어 부피가 최대한도까지 축소되면 압축 실린더는 복귀되고, 다시 같은 과정을 반복하면서 포장용기 드럼을 가득히 채우게 된다. 이 압축 실린더의 용량은 약 60 톤 정도로서 압축 처리를 통해 1/4 정도로 축소되는 부피 감용률을 예상하고 있다.

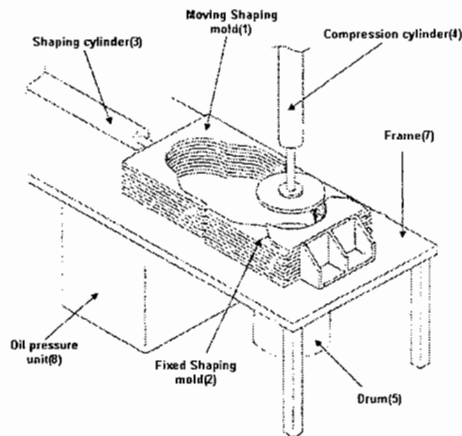


Fig. 1. The schematic diagram of the shaping and compacting equipment.

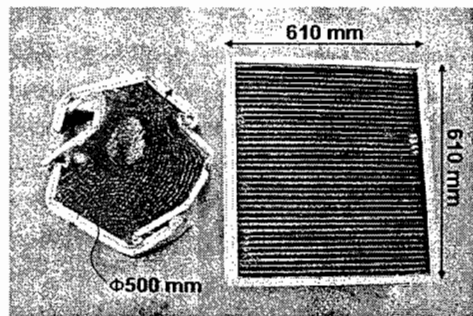


Fig. 2. A HEPA filter waste after and before a columnar shaping.

- 결론 및 향후 계획

방사성폐기물 저장시설의 운영을 시작한 이래로 장기 보관되어 오던 폐 HEPA 필터들의 발생 이력을 조사하여 발생시설별 및 발생일별로 그룹화를 하였다. 그리고 폐 HEPA 필터들을 압축 처리하여 드럼 포장을 하기 위해서는 핵종분석이 필요하며, 이를 위해 핵종분석용 대표시료를 채취할 수 있는 장비를 개발하였다. 이렇게 대표시료 채취 절차에 따라 얻어진 시료에 대하여 핵종분석을 수행할 것이며, 그 결과를 토대로 같은 발생시설, 같은 발생일 그리고 같은 핵종 농도 분포를 가지는 폐 HEPA 필터들로 압축 처리하여 규격드럼에 채울 것이다.

동위원소생산시설 활성탄필터 하우징 교체 작업 관리와 방사성폐기물 처리

김민진, 윤동원, 유권모, 장경덕, 김창경, 임인철

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

kimminjin@kaeri.re.kr

1. 서론

하나로의 부대시설인 동위원소생산시설의 핫셀 Bank-3에서는 갑상선암의 치료 및 진단제로 사용되는 I-131 캡슐 및 용액을 생산하고 있다. 이 과정에서 발생하는 기체방사성유출물은 핫셀의 배기계통을 통해 2단으로 설치된 활성탄필터에서 정화된 후 배기 계통을 통해 환경으로 배출된다. 기존의 활성탄필터 하우징은 '94년 7월에 설치되어 운영되어왔으나 필터 교체 작업의 편의성을 도모하고 활성탄필터 하우징의 성능을 향상시켜 안전한 시설운동을 하고자 '06년 11월부터 전문가의 의견 수렴을 거쳐 새로운 활성탄필터 하우징을 설계하여 '07년에 3월부터 6월까지 제작·설치하였다. 이 과정에서 기존의 활성탄필터 하우징의 해체 및 절단 작업을 통해 발생한 고체폐기물은 운반하기 쉬운 크기로 포장한 후 자체 처분을 하기위해 폐기물 저장고에 보관중이다. 해체 및 절단 작업 시에 작업자의 피폭 및 시설내의 오염을 최소화하기 위한 여러 가지의 준비 작업을 수행하였고 성공적으로 철거한 후 그 자리에 신형 활성탄필터 하우징을 설치하여 운영 중이다.

2. 신규 활성탄 필터 설치를 위한 기존 활성탄필터 하우징의 철거 작업

활성탄필터는 매 18개월마다 교체 후 성능시험을 통하여 활성탄필터의 성능이 99.95% 이상임을 확인함으로써 필터가 올바르게 장착되고 필터 하우징이 건전함을 입증하고 있다. 기존의 활성탄필터 하우징은 그림 1에서 보이는 바와 같이 활성탄필터실에 2대가 서로 마주보고 있는 상태로 설치되어 있었다. 활성탄필터 하우징은 내부에 약 80kg에 달하는 활성탄 필터를 삽입하여 상부에 설치된 마운팅 프레임에 밀착시켜 필터 누설을 방지하도록 되어 있다. 그러나 설계 제작 당시의 기술 수준으로는 고려하지 못한 아래와 같은 문제는 시급히 해결할 과제였다.

- STS 마운팅 프레임의 두께가 3t로 제작되어 오랜 세월이 흐른 후 절곡된 면이 상방으로 휘는 현상이 발생(활성탄 필터의 개스킷 밀착 불량 발생 가능성)
- 그림 1에서 보는 것처럼 활성탄필터 하우징 2개가 한 공간에 마주보고 설치되어 한쪽 하우징의 필터를 교체할 때 불필요하게 방사선 피폭 발생

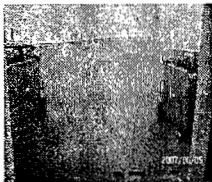


그림 1 RIPF 1차 활성탄 필터 하우징(2개)



그림 2 필터뱅크 표면 선량 측정

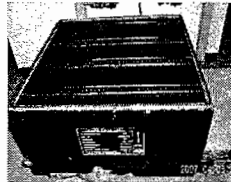


그림 3 필터 탈착후 표면선량 측정

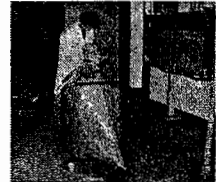


그림 4 폐기처리하기 위한 포장

신규 필터 하우징의 설치하기 위한 선행 작업으로 기존의 하우징을 철거하기 위해 작업공간의 공간선량을 낮추는 것이 필요하였다. 2대의 1차 활성탄필터 중 1 대는 약 9개월간 대기(standby) 상태에 두어 방사능 준위가 충분히 낮은 상태였기에 그동안 사용해 온 활성탄필터 탈착 작업을 다음과 같이 진행하였다.

- 1) 기존 활성탄필터 하우징에서 필터 탈착 전 하우징 커버 표면 선량 측정
- 2) 활성탄필터를 탈착하고 필터 표면에서 표면선량을 측정

3) 필터 전용 포장재로 포장한 후 폐기물저장고에 입고

이 작업에서 작업시의 피폭을 줄이기 위하여 단위 작업 당 방사선작업자를 교체 투입하였고 방사선관리요원을 포함한 9명의 평균 피폭선량은 보수적으로 정한 작업기준 보다 낮았다. 이와 같이 활성탄 필터를 제거하고 약 7주 후에 필터실의 공간선량이 백그라운드 수준(0.3 uSv/h)으로 떨어져 활성탄필터 하우징 및 연결 덕트 배관 철거 작업을 하였다. 기존 배관을 끊는 과정에서 덕트 배관 내부에 쌓여있던 방사성옥소 분진이 작업장 공기 중에 퍼지는 것을 방지하기 위해 그림 5와 같이 필터실 입구에 비닐막을 설치하고 내부에는 이동형 활성탄필터 덕트를 설치하여 배출되는 공기를 정화하였고 배기 덕트에 설치된 공기감시기를 관찰하며 작업을 수행하였다. 플렌지로 연결된 덕트 배관을 해체할 때 개구부에서 분진이 퍼지지 않도록 해체 즉시 입구를 비닐 시트로 밀폐한 후 각 단관을 비닐 포장하였고 최종적으로 하우징을 고정한 앵커볼트를 풀고 하우징을 들어내어 비닐 포장하였다.

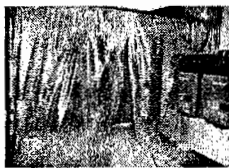


그림 5 필터실 앞에 설치된 비닐 차단막



그림 6 필터뱅크 분해 작업

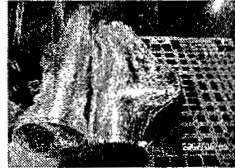


그림 7 하우징 배관 분리후 1차 포장



그림 8 철거후 최종처분을 위해 보관중인 하우징 및 배관

그 후 필터실의 내부 제염 작업 후 벽체 등의 표면 선량 등을 측정하여 백그라운드 수준 ($<0.11 \text{ kBq/m}^2$)임을 확인한 후 새로 제작한 활성탄필터 하우징 및 배관을 설치하였다.

또한 작업시간 동안 배기 덕트에서 측정된 I-131의 농도는 3 Bq/m^3 이하로 매우 낮게 유지되었다.

4. 결론 및 향후 과제

새로 설치한 활성탄필터 하우징은 빈 공간에 새로 설치하는 공사가 아니므로 발생할 폐기물 처리에 난관이 예상되었다. 방사성옥소의 생산으로 항상 공간선량이 높은 지역에서 기존의 활성탄 필터 하우징을 철거하고 새로 설치하는 과정에서 작업자의 피폭을 허용 범위 이하로 유지하고 액체, 고체 및 기체방사성폐기물의 발생을 최소화하며 안전하게 작업을 하고자 상세 작업절차를 작성하고 관련자 회의를 거쳐 철거 및 설치 작업을 수행하였다. 이 작업에서 발생한 폐기물 중 벽체를 관통하는 배관을 설치하기 위한 코어드릴 작업에서 생긴 수분이 섞인 콘크리트 폐기물은 잘 말려 고체폐기물로 처리하였고 기존 하우징과 배관의 제거로 생긴 고체폐기물은 분진이 발생하지 않도록 잘 포장하여 보관중이다. 배관 및 하우징의 형상이 제염하기에는 간단하지 않지만 주로 I-131에 의한 오염이므로 충분히 오랜 기간 감쇠를 시킨 후 제염을 한다면 추후 자체처분이 가능할 것으로 여겨진다. 앞으로 저준위 방사성고체폐기물에 대한 자체처분 계획 및 절차를 확립하여 감독기관의 검토를 받아 처리할 예정이다.

연구로 차폐체 콘크리트 절단시 냉각수 재사용을 위한 슬러지 배출장치에 관한 연구

이기원, 박승국, 홍상범, 박진호, 정운수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

ngwlee@kaeri.re.kr

1. 서론

수명이 다하거나 노후한 원자력시설을 해체하기위해서 우선 고려해야 할 사항은 작업자와 주변 주민의 안전과 더불어 방사성폐기물 발생량을 줄이는 것이다. 또한 각종 환경 관련법에 근거하여 일반 산업폐기물로 처리가 가능한 자체처분 대상 폐기물의 양도 가급적 줄이는 것이 중요하다. 본 연구에서는 실제 연구로 2호기 해체 작업 과정에 적용하지는 않았지만 원자력관련 시설의 구조물 중 다수를 차지하는 콘크리트를 해체할 시 수력사이클론의 적용 가능성을 각종 실험을 통하여 분석하였다. 당초 연구로 2호기 차폐체 콘크리트 해체에는 건식 절단기구인 휠쏘를 사용하여 절단할 계획이었으나 절단 깊이에 맞는 장비 개발이 국내외를 막론하고 이뤄지지 않아 습식 절단공구인 다이아몬드 와이어 쏘를 사용하였으며, 이로 인해 다량의 물을 포함한 콘크리트 슬러지가 발생하였다. 따라서 이후 원자력관련시설의 콘크리트 구조물 해체에는 수력사이클론이 포함된 장치를 사용하여 냉각수를 재사용함으로써 슬러지 양을 줄이는 것이 필요할 것으로 보인다. 수력사이클론은 대표적인 습식 분리 장치로서 고형물 분리, 분급, 분류, 농축, 탈수 및 수처리, 정제용으로 이용되고 있으며, 연속상의 유체로부터 분상상의 고체를 원심력을 이용하여 분리하는 장치이다.

2. 실험 및 결과

원자력 관련 시설의 콘크리트 구조물 등 해체 시 발생하는 다량의 물(부피기준 50% 이상)을 포함한 슬러지는 수분의 함도가 부피기준 0.5% 이하가 되어야만 일반 쓰레기 매립장에 처분 또는 매립 할 수 있기 때문에 이러한 조건을 만족하기 위해 이를 건조하여야 하나 이를 위해서는 많은 시간과 경비가 소요된다. 실제 연구로 2호기 해체 시에 200L드럼으로 290개의 슬러지가 발생하였다. 또한 콘크리트 슬러지의 특성으로 인해 자연건조가 거의 되지 않는 특성을 가지고 있다. 해체 중 발생한 슬러지에 포함된 냉각수를 재사용하는 것은 폐기물량을 줄이는 것과 더불어 해체 비용을 절감시키는 요인이 된다. 따라서 슬러지에 포함된 냉각수의 재사용 가능성을 확인하기 위하여 아래의 실험 장치를 제작하여 실험하였다. 이번 논문에서는 전체 계통을 제작 완료하여 실험하지 않고, 수력 사이클론의 적용 가능성을 보기 위해 침강농축 장치인 시크너는 결합하지 않고, 수력사이클론의 포집효율만을 측정하기 위한 실험을 수행하였다(Fig 1.참조). 수력사이클론의 설계는 사이클론 설계에 일반적으로 적용하는 Krebs의 수력사이클론 식을 따라 설계하였으며, 이에 대한 값을 Table 1.에 나타냈다.

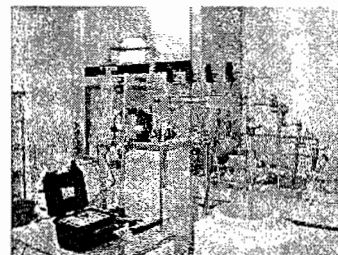
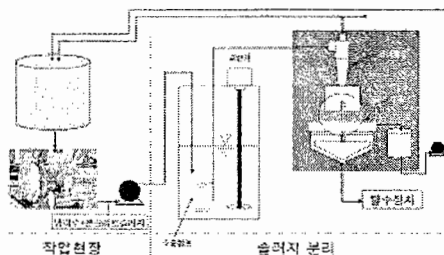


Fig 1. Schematic diagram of the hydro-cyclone test rig

실험은 비중이 3.15인 포틀랜드시멘트와 모래의 함량이 무게기준으로 0.15mm 체잔분 72 % 인 몰타르를 사용하였다.

Table 1. 수력사이클론의 사양

단위 : mm

Cyclone Dia.(D)	Inlet dia.(Di)	Appex dia.(Du)	Vortex dia.(Do)	Body length(H)
80	20	12	24	240

슬러지 분리장치인 수력사이클론의 분리효율을 측정하기 위해 냉각수와 콘크리트 슬러지가 포함된 200L 용기 속에 이를 순환시킬 수 있는 오수펌프를 설치하여 수력사이클론에 유입토록 하였으며, 속도의 변화는 밸브를 통해서 조절하였다. 수력사이클론에 유입되는 유체의 속도는 배관 외부에 장착함으로써 유속에 대한 저항이 없는 Controlotron사의 System 1010 초음파 유량계를 설치하여 측정하였으며, 수력사이클론을 통해서 분리·포집된 슬러지와 배출구를 통해서 배출된 슬러지를 포함한 물은 20L 용기에 회수하여 충분히 침전·강하시킨 후 상부의 물은 버리고, 침전된 슬러지를 스테인레스 트레이에 담아 건조기를 사용하여 24시간 이상 충분히 건조하여 슬러지만의 무게를 측정하였다. 이의 방법으로 실시한 포틀랜드 시멘트와 몰타르의 속도변화에 대한 포집효율을 Fig 2.에 나타냈다.

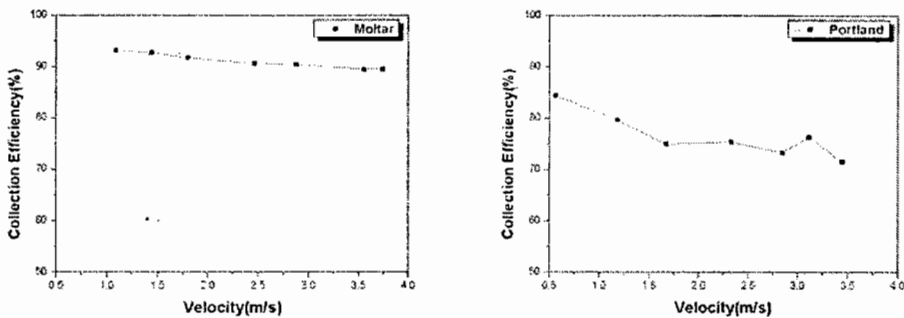


Fig 2. 몰타르와 포틀랜드시멘트의 속도 변화에 따른 포집효율

이 그림에서 보는바와 같이 수력사이클론에 유입되는 속도가 0.5 m/s 이상이 되면 몰타르 및 포틀랜드 시멘트 모두 속도가 증가함에 따라 포집효율은 떨어지는 경향을 보이며, 이는 수력사이클론 유입속도의 증가에 따른 유선 상에서의 입자 상호간의 충돌로 인한 효율 감소와 분진 퇴적함에서의 재 분출 현상에 기인하는 것으로 보인다. 입자의 크기와 무게가 큰 몰타르의 경우 90% 정도의 포집효율을 보이고 있으며, 비중이 3.15인 미세분말인 포틀랜드 시멘트의 경우에도 70% 이상의 포집효율을 나타내고 있음을 알 수 있다. 따라서 건식 사이클론의 일반적인 현상인 분진의 크기가 클 경우와 무게가 상대적으로 무거울 경우 포집효율이 높게 나타나는 현상이 수력사이클론에서도 동일하게 나타나고 있음을 알 수 있다. 이후 실험에서는 수력사이클론과 시크너를 결합하여 포집효율뿐만 아니라 수분 함유에 관한 실험을 할 예정이다.

3. 결론

Fig 2.에서 보는 바와 같이 입자의 크기가 비교적 미세하고, 부유물이 존재하는 포틀랜드 시멘트의 속도 변화에 따른 포집효율은 수력사이클론 유입속도 0.5 m/s 이상에서 70% 이상의 포집효율을 나타내고 있기 때문에 원자력시설의 콘크리트 구조물을 습식방식으로 해체할 경우 절단시 발생하는 열을 냉각하고, 윤활의 역할을 하는 냉각수를 수력사이클론이 포함된 장치를 이용하여 순환시키면 슬러지의 양을 대폭 줄임은 있음을 알 수 있을 뿐만 아니라 건조로 인한 시간과 경비를 줄일 수 있을 것으로 판단된다.

제2-1분과

방사성폐기물 처리 (Poster)

폐유기물 중 TBP 및 우라늄 함량 분석을 위한 시료 전처리

최광순, 표형열, 김시내, 김현정, 한선호
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150
nkschoi@kaeri.re.kr

1. 서론

TBP (tri-n-butyl phosphate)는 사용후핵연료에 존재하는 우라늄이나 플루토늄을 재사용할 목적으로 PUREX 공정에서 사용하는 추출제이다. 또한 TBP는 우라늄 화합물에 불순물로 존재하는 금속원소들을 우라늄으로부터 분리하기 위하여 용매추출법이나 추출크로마토그래피에서 많이 쓰이고 있다. TBP는 질산매질에서 우라늄과 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot (\text{TBP})_2$ 형태의 착물을 형성하며, 질산농도가 6 M일 때 TBP와 우라닐 이온의 분배계수가 최대값을 갖는다. TBP는 분해하여 DBP (dibutyl phosphate)나 MBP (monobutyl phosphate)가 생성되며 suppressed 전도도 검출기를 사용하여 IC (ion chromatography)로 이들의 함량을 측정할 수 있다. 한편 phosphonic acid $\{\text{R}^I\text{RO}^II\text{PO}(\text{OH})\}$ 는 evaporative light scattering 방법과 IC를 이용하여 측정할 수 있다. 본 연구는 ICP-AES로 TBP를 함유한 폐유기물 중 TBP 함량을 측정하기 위하여 유기물을 완전히 분해하지 않은 상태에서 TBP 함량 측정방법을 확립하고자 하였다. 또한 TBP 폐액에 존재하는 우라늄 함량을 측정하기 위한 시료전처리 방법도 검토하였다.

2. 실험 및 결과

ICP-AES로 도테칸과 같은 유기용매에 존재하는 TBP 함량을 측정하기 위하여 황산과 과산화수소를 이용한 습식방법으로 유기물 시료를 완전히 분해하여 수용액으로 전환하여야 한다. 그러나 시료를 완전히 분해할 때 시간이 많이 소요되므로 시료 모두를 완전히 파괴하지 않고 일부분만 수층으로 역추출하여 수층에 존재하는 인을 측정함으로써 TBP 함량을 측정할 수 있는 방법을 검토하였다. 먼저 유기용액과 증류수를 일정비율로 혼합한 다음 추출시간에 따라 수층에 존재하는 TBP

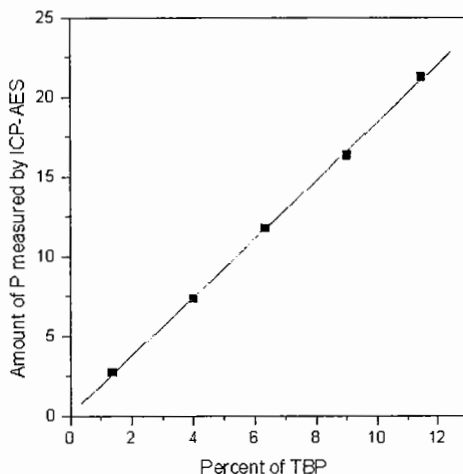


Fig. 1. Correlation between amount of P measured by ICP-AES and percent of TBP

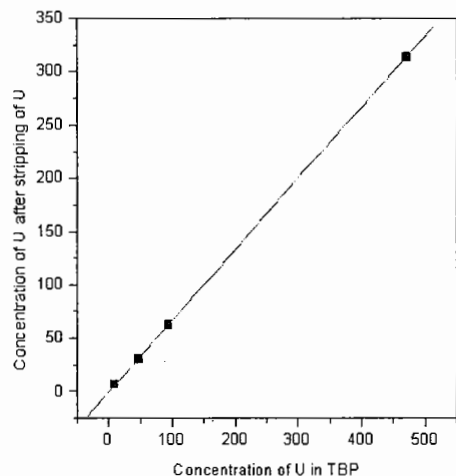


Fig. 2. Correlation between concentration of U after stripping of U and concentration of U in TBP

의 양을 알아보기 위하여 추출시간을 5, 10, 30 및 60분으로 변화시키면서 P를 측정하여 추출시간에 따라 TBP가 수층으로 이동되는 정도를 조사하였다. 그 결과 5, 10, 30 및 60분일 때 수층에서

인의 농도는 3.3, 3.5, 3.1, 및 3.1 $\mu\text{g/mL}$ 로 추출시간이 10배 이상 증가하여도 추출시간은 크게 영향을 미치지 않았다. TBP 1 mL는 물 165 mL에 녹으므로 함량을 알고 있는 TBP양과 증류수를 일정 비율로 혼합한 다음 수층에 존재하는 인의 양을 ICP-AES로 측정하여 함량을 알고 있는 TBP 양과 ICP-AES로 측정한 인의 양과의 사이에 상관관계가 있는지 조사하였다. 그 결과 그림 1에 나타내었듯이 도데칸 매질에서 TBP 양이 1~10% 범위일 때 ICP-AES로 인을 측정한 결과, 상관계수가 0.9997로 직선성이 양호하였다. 즉 습식방법으로 유기용액 시료를 분해하지 않고 증류수와 유기용액 시료를 혼합한 다음 수층에 존재하는 인을 측정함으로써 TBP 함량을 알 수 있었다.

한편 TBP와 같은 폐유기 용액에 존재하는 우라늄 함량을 측정하기 위하여 역시 황산과 과산화수소를 이용한 습식방법으로 유기물을 완전히 분해하고 측정하여야 한다. 그러나 시료를 완전히 분해하려면 시간이 많이 소요되므로 시료를 완전히 파괴하지 않고, 일부분만 수층으로 역추출한 다음 ICP-AES로 측정함으로써 이 처리 방법의 신뢰성을 검토하였다. 먼저 유기용액과 증류수 (1:10, v/v)를 1회 역추출할 때 수층용액으로 0.1 M 질산보다 증류수를 사용할 경우 우라늄 탈착 효율이 2.6배 좋았다. 100% TBP만 사용하여 우라늄을 추출한 TBP 용액을 증류수로 역추출한 다음 우라늄을 측정하였다. 그 결과 그림 2에 나타내었듯이 100% TBP에 존재하는 우라늄 양이 10 ~ 500 $\mu\text{g/mL}$ 범위일 때 수층에 존재하는 우라늄 양과 TBP에 존재하는 양의 상관관계는 0.9999로 직선성이 매우 양호하였다. 따라서 TBP 폐액에 용매가 없다면 시료를 완전히 분해하지 않고 증류수로 탈착하여 우라늄 함량을 측정할 수 있었다. 추후에 유기용매 종류에 따라 그리고 유기용매 함량에 따라 증류수로 역추출한 다음 우라늄을 측정한 결과와 완전히 용해하고 측정한 결과 사이에 상관관계가 있는지 실험할 계획이다.

3. 결론

유기용액에 존재하는 TBP 함량은 시료를 완전히 분해하지 않고 ICP-AES로 인을 측정함으로써 TBP로 환산하여 그 양을 알 수 있었다. 또한 100% TBP 폐액인 경우에도 시료를 완전히 분해하지 않고 증류수로 역추출하여 우라늄 함량을 측정할 수 있었다.

플라스틱 시료 표면에 부착된 방사성물질 분석

이승식, 표형열, 배영빈*, 최광순, 지광용

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

*(주)엑트, 대전광역시 대덕구 신일동1588-5번지

dl95082041@empal.com

1. 서론

국내·외적으로 사회적인 관심이 되고 있는 환경오염 및 인체 위해성과 관련하여 국제적으로 방사성물질에 대한 엄격한 규제 요구가 점차 확대되고 있다. 특히, 인체에 직접적인 영향을 미치는 방사성핵종들에 대해서는 이와 같은 규제가 더욱 강화되고 있는 추세이다. 따라서 이와 같은 국제적 상황에 대비하기 위해서 환경오염 및 방사성물질에 대한 시험방법의 적용 및 신뢰성 있는 시험결과를 산출하기 위해서 체계적으로 검증된 분석방법을 미리 확보하는 것이 필요하다. 방사성핵종을 분석하기 위해서는 우선 시료에 함유된 분석대상 핵종들을 선택해서 회수하는 것이 중요하다. 이 과정을 일반적으로 시료전처리 과정이라고 하며, 모든 화학분석에 있어서 필수적이고 최우선적인 과정이라고 할 수 있다. 분석대상이 되는 방사성핵종을 시료로부터 분리 회수하는 방법에는 여러 가지가 있을 수 있으나, 그 중에서 비가연성의 플라스틱 재질 시료의 표면에 흡착된 방사성핵종의 분리 회수의 경우에는 초음파 세척기법을 활용하는 것이 좋은 방법이라고 할 수 있다. 초음파 세척기법은 초음파의 에너지를 이용하는 것으로 초음파를 수중에 사용할 경우 공동화현상(cavitation)이 발생한다. 이러한 공동화현상은 기포(bubble)를 발생하여 플라스틱 표면에 부착된 방사성핵종들을 탈착시키는 역할을 하게 된다.

본 연구에서는 초음파 세척기법의 특성을 이용하여 방사성핵종을 흡착하고 있는 플라스틱 재질의 시료로부터 방사성핵종을 탈착 회수하기 위한 최적의 실험조건들에 대해 조사하였다. 또한 최적의 실험조건을 표준물질이 부착된 모의 시료에 적용하여 실험방법에 대한 신뢰도를 확인하였으며, 실제 방사성물질이 포함된 시료에도 적용하여 분석한 결과에 대해 검토하였다.

2. 실험 및 결과

실험은 시험방법의 신뢰도를 확인하기 위한 예비실험과 예비실험의 결과를 토대로 한 방사성물질이 포함된 실제 시료에 대한 적용으로 나누어 수행하였다. 예비실험의 시료는 Cr, Co, Nd, Fe 표준용액(ICP-AES 표준용액 1000 mg/L)을 사용하여 syringe에 점착시켜 사용하였다. 실험에 사용한 초음파 세척기는 성동 초음파사의 SD-D300H 기기를 사용하였으며, 초음파 세척기의 초음파 주파수는 40 KHz, 초음파 출력은 200 W, 세척기 내부 용량은 10 L, 내부 크기는 290 × 240 × 150 mm이었다. 시료에 부착된 핵종 원소들의 회수율 평가 예비실험방법은 탈착용액 조성에 따른 비교 실험, 초음파 세척기 내의 온도에 따른 실험, 초음파 세척기 반응 시간에 따른 실험 세 가지 조건으로 나누어 실시하였다. 실제 시료에 대한 실험은 예비실험의 결과를 바탕으로 방사성물질을 함유하고 있는 4개의 시료에 적용하여 실험을 수행하였다. 실험 결과를 측정하기 위한 원소 또는 핵종 분석에는 ICP-AES(Jobin YVON Model Ultima 2C) 기기를 사용하였다.

예비실험 결과 탈착용액 조성에 따른 회수율은 증류수를 제외한 모든 탈착용액의 회수율이 높게 나타났다. 그 이유는 증류수보다 산에 의한 화학적 반응으로 인한 용출임을 알 수 있다. 또한, 시료전처리시 혼합산을 이용하는 것을 고려하여 초음파세척 실험은 증류수보다 산과 병행하여 실험하는 것이 높은 회수율을 얻을 수 있음을 알 수 있다. 이후 실험 조건에 6 M HCl + 7.5 M HNO₃를 적용하였다. 초음파 세척기 내의 온도에 따른 회수율 실험 결과는 어느 정도의 편차가

생기는 것을 알 수 있었으나, 30 ℃ 이상에서는 회수율이 90 % 이상으로 일정해지는 것을 알 수 있다. 하지만, 초음파 세척기 내의 온도 변화에서 볼 수 있듯이 온도와 밀접한 실험을 수행할 경우 초음파 세척기 내에 일정한 온도를 유지할 수 있는 냉각기를 설치하여야 함을 알 수 있다. 초음파 세척기 반응 시간에 따른 회수율 실험 결과는 상당히 좋은 결과를 얻었으며, 40 분 정도 이후에는 회수율이 어느 정도 평형에 가까워지는 것을 알 수 있었다.(Fig. 1. 참조)

예비실험 결과에서 얻은 초음파 세척 실험 조건을 바탕으로 방사성물질이 포함된 실제시료에 적용하여 실험한 결과 회수율이 (90.0 ~ 101.5) %로 상당히 높은 값을 얻었으며, 초음파 세척기 법이 방사성물질이 포함된 실제시료에도 적용 가능함을 알 수 있었다.

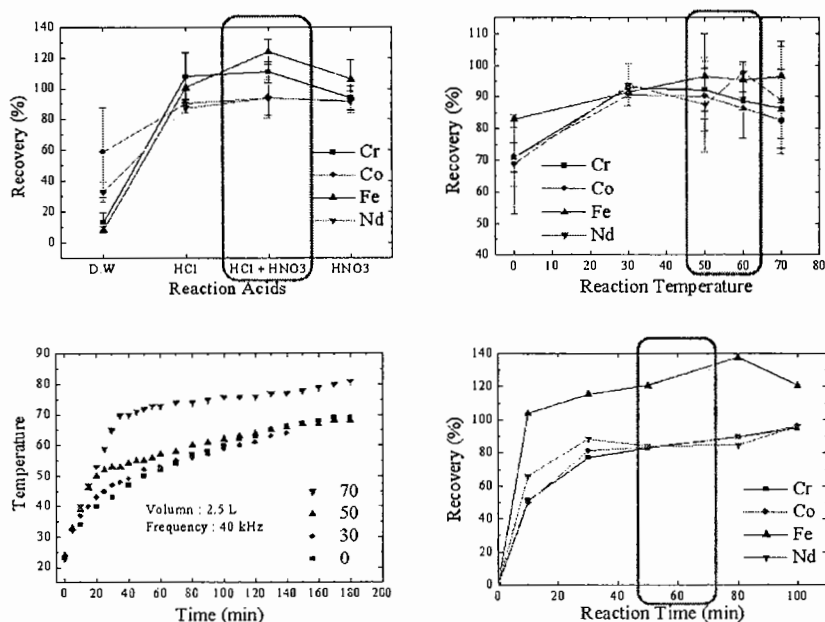


Fig. 1. 초음파 세척기(ultrasonic)를 이용한 회수율 실험 결과

3. 결론

본 실험을 통해 방사성핵종 원소의 탈착용액 조성으로는 6 M HCl과 7.5 M HNO₃을 1 : 1 비율로 혼합한 혼합산을 사용하여 실험하는 것이 가장 좋은 결과를 얻을 수 있었으며, 초음파 세척기 내의 온도는 (50 ~ 60) ℃로 조절하고 실험을 수행하는 것이 전반적으로 좋은 결과를 얻을 수 있었다. 반응 시간에 따른 회수율 실험에서는 60 분을 전후로 해서 회수율이 평형에 가까워지는 것으로부터 반응 시간은 60 분 정도로 하는 것이 최적의 조건임을 알 수 있었다. 이와 같은 실험 조건은 방사성물질이 포함된 실제시료에도 적용하였으며, 이로부터 산출된 실험결과에 대해서도 비교 검토하였다.

RI폐기물 핵종분석을 위한 최소검출방사능농도 산출

송병철, 김영복, 안홍주, 손세철, 지광용
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nbcsong@kaeri.re.kr

1. 서론

RI폐기물 시료는 산분해에 의한 전처리 과정을 통해서 용해되고, 분석대상 핵종에 따라 별도의 복잡한 화학적 분리 과정을 거치고 나서 최종적으로 방사선 계측기에 의해 방사능이 측정된다. RI폐기물의 방사능 농도가 낮을 경우 실제로 방사능이 존재하지 않는 시료의 계수치가 백그라운드보다 높은 경우가 있을 수 있으며 낮은 방사능을 함유하는 시료의 방사능 존재 여부를 판단하는 근거로 검출 한계치를 설정한다. 방사능 계측기의 최소검출방사능은 주어진 신뢰도에서 검출될 수 있는 최소 방사능을 말하며 이는 기기의 백그라운드, 계측효율, 계측시간 및 시료 양 등에 의해 결정된다. 최소검출방사능을 낮출 수 있는 가장 효과적인 방법은 시료 양을 크게 하거나 계측시간을 길게 하는 방법이 있으나 실험조건에 따라서 상호보완적이어야 한다. 본 연구에서는 RI폐기물에 존재하는 방사성핵종 분석과 관련하여 존재 가능한 핵종을 대상으로 한 최소검출방사능 농도를 산출하고 그 결과 및 경향성을 검토하고자 하였다.

2. 실험 및 결과

RI폐기물 시료 중 ^{51}Cr , ^{60}Co , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{131}I , ^{137}Cs 등의 방사능을 측정하기 위해 감마선 분광분석기를 이용하였으며, ^3H , ^{14}C , ^{32}P 등의 방사능을 측정하기 위해 액체섬광계수기를 이용하였다. 또한 ^{35}S , ^{147}Pm 등의 방사능은 알파/베타 측정 시스템을 이용하여 측정하였으며, 저에너지 X-ray를 방출하는 ^{125}I 의 방사능을 측정하기 위해서 저에너지 분광분석기를 이용하였다.

시료 중의 방사능 존재 여부를 결정하는데 사용하는 결정 한계와 시료에서 오는 신호가 검출된다고 확신할 수 있는 사전 검출 준위를 나타내는 검출 한계는 다음과 같은 식으로부터 산출하였다.

$$\text{결정 한계, } L_c = k_\alpha \sigma_0 = k_\alpha (\mu_B + \sigma_B^2)^{1/2} \quad (1)$$

$$L_c = 1.645 (2\sigma_B^2)^{1/2} = 2.33\sigma_B$$

$$\text{검출 한계, } L_D = k^2 + 2L_c \quad (2)$$

$$L_D = 2.71 + 4.66\sigma_B \quad (K = 1.645, 95\% \text{ 신뢰도})$$

또한 최소검출방사능농도는 다음과 같은 식으로부터 산출하였다.

$$MDA = \frac{2.71 + 4.66(B)^{1/2}}{EVTY} \quad (3)$$

여기서, B는 바탕 값의 총 계수, E는 계측효율이며 V는 시료 양(mL) 이다. 또한 T는 계측시간(min)이고 Y는 화학적 수율이다.

각 방사선 계측기의 백그라운드 및 계측효율은 주기적으로 측정하였다. 계측효율을 측정하기 위한 표준물질로서 감마선 분광분석기는 실린더형 20 mL 감마선 표준물질을 사용하였고, 액체섬

광계수기는 비소광 ^3H 및 ^{14}C 표준물질을 사용하였으며, 전알파/베타 계측기는 ^{210}Po 과 ^{90}Sr 표준물질을 사용하였다. 방사능 측정 장비의 특성에 따라서 계측효율은 에너지 세기, 소광 효과 및 염의 무게에 따라서 달라지게 되므로 감마선 분광분석기의 경우는 에너지에 따른 계측효율 보정곡선을 구하였고, 액체섬광계수기의 경우는 소광효과에 따른 계측효율을 구하였으며, 알파/베타 측정 시스템의 계측 효율은 각 핵종의 염의 무게에 따른 계측효율을 각각 구하였다.

감마선분광분석기의 백그라운드 및 표준시료에 대한 방사능을 측정하였을 때 백그라운드는 1.61 cps이었으며, 표준시료에 대한 방사능은 45168 cps로 거의 2σ이내에서 크게 벗어나지 않았다. 액체섬광계수기에 대한 ^3H 및 ^{14}C 영역에서의 백그라운드와 계측효율을 측정하였을 때 ^3H 영역에서의 백그라운드 및 계측효율은 각각 14.1 cpm과 62.99 %이었으며, ^{14}C 영역에서의 백그라운드와 계측효율은 각각 22.90 cpm과 96.30 %이었다. 전알파/베타 계측기를 동시모드에서 동작전압을 1500 V로 설정하고 백그라운드를 50 분씩 15회 측정한 결과 알파 백그라운드는 0.244 cpm 이고 계측효율 34.34 %이었으며 베타 백그라운드는 1.29 cpm이고 베타 계측효율 46.01 %이었다. 방사선 계측기의 백그라운드 및 계측효율은 주기적으로 측정하였으며 계측장비 품질관리를 위하여 관리도를 작성하였다. 감마선분광분석기의 경우에 ^{137}Cs 영역에서 백그라운드는 35,105 카운트이었으며, 계측효율은 0.224 %이었다. 식 (2) 및 (3)에 의하여 ^{137}Cs 의 최소검출방사능농도를 산출하였으며 이외에 ^{58}Co , ^{60}Co , ^{134}Cs 등에 대하여도 같은 방법으로 시료의 유형에 따라서 최소검출 방사능 농도를 산출하였다.

실제 시료에 있어서는 시료를 산에 용해한 후 용해용액 20 mL를 감마선 분광분석기를 이용하여 10,000초 동안 감마선 방출핵종을 측정하였으며, 베타방출 핵종의 경우는 5 g의 시료를 추출한 후 ^3H , ^{14}C , ^{32}P 를 개별 분리한 후 각테일과 섞어 액체섬광계수기로 50 분간 측정하였다. 또한 베타 방출 핵종인 ^{35}S , ^{147}Pm 등은 산처리한 용해용액을 핵종별로 분리한 후 알파/베타 계측시스템을 이용하여 50 분간 측정하였다.

3. 결론

본 연구에서는 RI폐기물의 유형 및 방사성 핵종에 따라서 백그라운드 및 계측효율로부터 최소검출방사능농도를 설정함으로써 낮은 준위의 RI폐기물 시료의 측정 가능한 범위의 방사능 농도를 구하였다. 감마선 분광분석기에 의한 ^{51}Cr , ^{60}Co , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{131}I 및 ^{137}Cs 의 최소검출방사능 농도는 각각 0.08, 0.18, 0.01, 0.09 및 0.34 Bq/g이었으며, 액체섬광계수기에 의한 핵종별 최소검출방사능 농도는 ^3H , ^{14}C 및 ^{32}P 에서 각각 0.02, 0.01, 0.01 Bq/g이고, 기체비례계수기를 이용한 ^{35}S 및 ^{147}Pm 에 대한 최소검출방사능 농도는 0.01 Bq/g이었다. 이러한 최소검출 방사능 농도는 계측효율, 시료량 및 계측시간에 따라서 변동되므로 실제 시료에 대하여는 상호 보완적으로 적용되어야 할 것이다.

참고 문헌

1. Michael F. L'Annunziata, A Handbook of Radioactivity Analysis, pp. 316-318, Academic press, San Diego (1998).
2. J. E. Noakes, Franz Schonhofer, H. A. Polach, "Liquid Scintillation Spectrometry 1992", pp. 37-50, Radiocarbon Department of Geosciences, The university of Arizona.
3. J. A. Cooper, Factors Determining the Ultimate Detection Sensitivity of Ge(Li) Gamma-Ray Spectrometers, pp. 273-277, North Holland Publishing Co. (1970).

LSC를 이용한 ^3H 방사능측정 비교속련도 시험

김영복, 송병철, 이흥래, 한선호, 손세철

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

nybkim@kaeri.re.kr

1. 서론

액체섬광계수기는 1950년대 Ageno, Kallman, Reymold 등이 유기물질로부터 β 선을 측정하는 우수한 계측효율을 내세워 다양한 종류의 베타 방출핵종 및 알파 방출핵종들에 대한 방사능 측정에 이용되고 있다. 삼중수소(^3H)를 측정하는 방법은 다양하지만 분석하고자 하는 시료의 유형에 따라서 시료 전처리 방법이 달라질 수 있으며, 수질시료 중에 포함된 낮은 농도의 삼중수소를 분석하는 경우에는 시료를 전해조에서 전기 분해시켜서 증발 농축한 후 농축도를 보정해 주는 방법 등이 적용되고 있다. 증류된 수질시료는 다이옥산이나 나프탈렌 등을 포함하는 섬광체에 합체되어 액체섬광계수기를 이용하여 삼중수소의 방사능을 측정한다. 본 연구에서는 ^3H 를 함유한 시료를 직접적으로 섬광체에 혼합하여 측정하는 직접법과 시료를 증류장치를 통하여 증류한 후 냉각탑에서 ^3H 를 포집한 후 측정하는 증류법을 적용하여 수질시료에 함유된 삼중수소의 방사능을 측정된 결과에 대해 비교 검토하였다. 실제 수질시료에 대하여 ^3H 의 방사능을 측정 후 측정값을 한국표준과학원에서 측정한 기준 값과 비교 검토하였으며, 이러한 비교시험을 통하여 방사능 측정 장비 및 시험자의 분석 능력을 평가하였다. 또한 액체섬광계수기의 바탕값 및 계측효율을 주기적으로 측정하여 품질관리를 위한 관리도를 작성 평가하였으며, 이로부터 최소검출방사능 농도를 산출하였다.

2. 실험 및 결과

방사능측정 비교시험을 위해 사용한 선원의 형태는 ^3H 이 포함된 수질시료였으며, 방사능 측정 시스템은 Liquid Scintillation Counter (Model 2560 TR/XL, Packard)를 이용하였다. 측정시스템은 ^3H , ^{14}C 및 백그라운드 비스광 표준물에 의해 자체 보정하였다. 소광 정도에 따른 ^3H 의 계측효율을 구하기 위해 ^3H 소광 표준물을 이용하여 QIP(Quenching Indicator Parameter)에 따른 계측효율을 구하였으며, 비교시험을 위한 시료에 대하여 소광에 따른 계측효율을 적용하였다.

직접법은 3개의 계측용 바이알에 시료 1 mL를 마이크로 피펫으로 각각 분취한 후 섬광체(Ultima Gold XR, Packard) 14 mL를 넣어 혼합하고 10시간 후 30분씩 5회 계측하였다. 또한 여러 종류의 시료에 대하여 적용 가능한 증류법에서는 ^3H 시료를 1 mL 취하여 증류장치(Fig. 1 참조)에 넣고 산화제 20 mL를 첨가하여 96 °C에서 2시간 반응시킨 후 방출되는 CO_2 가스를 흡수제(Carbosorb)에 포집되도록 하였다. 포집이 끝나고 남은 잔류액을 증류하여 냉각탑으로 ^3H 포집한 후 냉각액 중 5 mL를 취하여 섬광체(Ultima Gold) 10 mL와 혼합한 후 ^3H 의 방사능을 측정하였다. 방사능 측정값에 대한 측정불확도를 산출하기 위해서 시료채취 무게, 회석 및 분취 부피, 방사능 계측, 계측효율 및 회수율 등에 따른 각각의 불확도 요소를 산출하고, 이를 합성하여 합성표준 불확도 및 확장불확도를 추정하였다.

액체섬광계수기의 안정적인 운영을 위해 Unquenched 표준물질 (^3H , ^{14}C 및 백그라운드, PACKARD)를 이용하여 ^3H 및 ^{14}C 영역에서의 바탕 값, 계측효율, Figure of merit 및 Chi-Square 값을 구하여 품질 관리도를 작성하였다. 작성결과 ^3H 영역에서의 바탕 값은 3.2 cpm 이고 계측효율은 58.4 %이었으며 ^{14}C 영역에서의 바탕 값 및 계측효율은 각각 4.0 cpm과 95.5 % 이었다. 이 측정시스템을 이용하여 수질시료 1 g을 30분 동안 계측할 경우 ^3H 의 최소검출방사능

농도는 0.06 Bq/g으로 계산되었다.

본 실험에서 직접법과 증류법을 적용하여 ^3H 방사능을 측정한 결과 직접법을 적용한 경우에는 ^3H 방사능을 측정한 결과가 (248.56 ± 4.56) Bq/mL 이었으며, 증류법을 적용한 경우에는 측정결과가 (244.29 ± 11.52) Bq/mL로 나타났다. 비교시험 시료에 대해서 한국표준과학원에서 측정하여 제시한 기준값은 (248.2 ± 1.5) Bq/mL 이었으며, 이와 같은 측정값의 비교결과로부터 본 실험에서 얻은 측정결과는 신뢰성이 있음을 알 수 있었다.

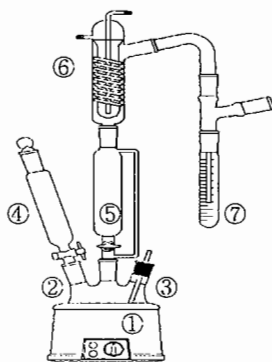


Figure 1. The equipment for separation of ^3H .

- ① Heating mantle, ② Reaction flask, ③ He gas inlet, ④ Dropping funnel, ⑤ HTO collector, ⑥ Condenser, and ⑦ CO_2 absorber

3. 결론

수질시료 중에 함유된 삼중수소의 방사능을 측정하기 위하여 직접법과 증류법을 적용하고 방법 간 측정결과를 비교하였으며, 측정 방법 간의 차이는 1.7 % 이내에서 잘 일치하였다. 또한 기준 값과 비교하였을 때 직접법은 거의 동일한 값을 나타냈으며, 증류법은 1.57 %의 양의 편차를 나타냈다. 이러한 양의 편차는 블랭크 시료로부터 오는 백그라운드의 증가로부터 기인된 것으로 사료된다. 각 측정방법에 대한 확장불확도는 95 % 신뢰구간에서 직접법 및 증류법에 대해 상대값으로 표현하였을 때 각각 1.8 %와 4.7 %이었으며, 이와 같은 측정결과로부터 삼중수소 측정 방법에 대한 유효성을 확인할 수 있었다.

원자력발전소에서 발생한 농축폐액분말중 ^3H , ^{14}C 분석

서승욱, 이홍래, 박순달, 한선호, 지광용
 한국원자력연구원 대전시 유성구 대덕대로 1045번지
kswsuh@hanmail.net

1. 서론

1982년에 미국 원자력규제위원회 (NRC)는 방사성폐기물 육지처분관련 인허가요건 (10CFR61)을 통하여 방사성폐기물을 규제하여왔다. 이 중에서 휘발성원소인 ^3H , ^{14}C , ^{99}Tc , 그리고 ^{129}I 는 측정하기 까다로운 핵종 (difficult-to-determine, DTM)으로 분류하였다. 이 원소들은 확립된 방법을 고안하여 측정해야 할 필요성이 있다. 방사성폐기물은 발생원에 따라서 잡고체, 농축폐액, 폐필터, 폐수지로 분류된다. 농축폐액 분말 폐기물은 농축폐액건조설비(CWDS)에서 발생되며 고농도의 붕산을 함유하고 있다. 붕산이 다량 함유된 폐기물 시료에 직접 산화제를 첨가한다면 ^{14}C 이 $^{14}\text{CO}_2$ 으로 휘발되어서 회수율이 낮아질 수 있다. 그래서 25 w/v%-KOH 3 mL를 첨가하여 붕산을 중화시킨 후에 산화제를 첨가한다. 본 연구에서는 방사성 폐기물 중 농축폐액 분말의 ^{14}C 와 ^3H 에 대한 방사능을 측정하였다.

2. 실험 및 결과

방사성 폐기물을 분석하기 전에 실험장치의 분리 능력을 검사하기 위해서 모의 농축폐액 분말 시료를 제조하여 ^{14}C 및 ^3H 의 회수율을 측정하였다. 모의 붕산분말 시료의 회수율 측정시 H_3BO_3 1.0 g, 산화제 $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_8$ 5 g 및 보조산화제 AgNO_3 0.5 g를 각각 가한 후 증류장치를 잘 결합하였다. 그리고 ^{14}C 및 ^3H 표준용액 각각 714 dpm, 631 dpm을 25 w/v%-KOH 3 mL와 혼합하여 가한 후 16w/v%- H_2SO_4 17 mL를 5초당 1 방울의 주입속도로 서서히 적가하였다. 가열과 교반을 하면서 ^{14}C 를 $^{14}\text{CO}_2$ 로 휘발시켜 포집하였다. ^{14}C 를 약 3시간 정도 포집한 후 ^{14}C 포집액을 제거하고 히팅맨들의 온도를 약 96°C 로 올려 ^3H 를 HTO로 증류, 수집하였다. ^{14}C 포집액은 20 mL 바이알에 옮긴 후 LSC로 측정하였다. ^3H 는 HTO 증류 수집액 5 mL를 Ultimagold 14 mL와 혼합한 후 20 mL 바이알에 옮겨 ^{14}C 와 마찬가지로 방법으로 LSC 측정하였다. ^{14}C 표준용액을 pH 조절 없이 H_3BO_3 분말에 적가하면 ^{14}C 이 $^{14}\text{CO}_2$ 으로 휘발될 수 있으므로 25 w/v%-KOH 3 mL로 알칼리성으로 한 후 가하였다. 모의 시료의 회수율 측정결과 표 1에서 보는 바와 같이 ^{14}C 및 ^3H 의 평균 회수율이 각각 $93\pm5\%$, $99\pm2\%$ 로 회수율이 높고 재현성이 좋았다.

농축폐액 분말시료는 주로 회색의 분말형태이다. 농축폐액 분말 시료 일정량을 취하여 모의 농축폐액 분말 시료와 동일한 방법으로 분리하여 ^{14}C 및 ^3H 를 측정하였다.

Table 1. Recovery test results of ^{14}C and ^3H for simulated boric acid powder samples

Nuclide	Added(dpm)	Found(dpm)	Recovery(%)	Mean of recovery(%)
^{14}C	714	674	94	93±5
		621	87	
		691	97	
		691	97	

		688	96	
		621	87	
^3H	631	618	98	99±2
		638	101	
		638	101	
		610	97	
		625	99	
		610	97	

3. 결론

모의 농축폐액 분말시료중 ^{14}C 및 ^3H 의 회수율 측정결과 각각 $93\pm5\%$, $99\pm2\%$ 로 회수율이 높고 재현성이 좋았다. 11개 농축폐액 분말 시료의 ^{14}C 및 ^3H 은 검출한계값(MDA) 이상의 값이 검출되었다. 본 연구에서 현재 까지 측정한 농축폐액 분말 시료의 ^{14}C 및 ^3H 의 방사능 농도는 각각 181 Bq/g - 4272 Bq/g 및 302 Bq/g- 2702 Bq/g의 분포를 갖는 것으로 나타났다.

진공조건하 요오드화세슘(CsI)의 포집특성

김지현, 신진명, 박장진, 송기찬

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150-1번지

jihyun9775@nate.com

1. 서론

최근 사용후핵연료를 재활용하기 위해서는 사용후핵연료 물질을 피복관으로부터 분리하는 탈피복 공정, 이를 pyroprocessing 공정에 사용하기 편리하도록 하고 여러 가지 핵분열생성물을 제거하는 휘발성산화공정이 요구된다. Pyroprocessing 공정에서도 장수명 핵종, 고방열핵종, 귀금속 등을 전처리 공정에서 사전 제거할 경우 후속공정의 방사능 감소, 공정효율 및 경제성 향상 등의 이점을 기대할 수 있다. 그러나 선진국에서도 최근에 활발하게 수행하고 있는 사용후핵연료 재활용을 위한 개량된 voloxidation 공정 개발 연구에서의 주요 핵심 사항은 공정에서 방출되는 핵종을 여러 휘발성 및 준휘발성 핵종 처리에 대한 연구로 기초 연구 단계에 머무르고 있는 실정이다. 또한 준휘발성 핵종의 처리방법은 냉각법등을 이용한 물리적 처리방법으로 처리효율이 최대 98.5%까지 밖에 제거할 수 없어 미제거된 핵종을 제거하기 위한 추가적인 고용량, 고효율의 필터시스템이 필요로 한다. 최근 KAERI에서는 DUPIC(Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors)공정 중 휘발성 산화공정에서 발생하는 배기체 처리기술에 대한 연구를 수행해 오고 있다. 본 연구에서는 실험실 규모의 필터를 이용하여 배기체 중 방사선적 위험도가 높고 처분시 타 핵종에 비하여 비교적 용출이 잘되는 ^{137}Cs 에 대한 포집효율 및 포집형태를 분석하기 위한 실험을 수행하였다.

2. 실험 및 결과

세슘의 고정화재료로서 석탄회(fly ash)필터 그리고 기체상 세슘의 공급원으로 1.0 g CsI(Aldrich사, 99.9%)을 사용하였다. CsI의 무게를 측정 한 후 alumina crucible(50 ml) 내에 넣었다. 그런 다음 배기체 처리장치의 voloxidizer 안에 시약을 넣은 alumina crucible을 넣은 후 이를 배기체 발생원으로 사용하였다. 배기체 처리시스템(Off-gas Trapping System, OTS)은 크게 voloxidizer 부분과 3 단계로 구성된 핵종 포집부분으로 나뉘어져 있다. 그러나 본 연구에서는 세슘 포집실험을 수행하기 때문에 voloxidizer의 가열영역에서 배기체 발생원을 기화시켜 석탄회필터를 충전한 필터바스켓을 장착한 세슘 포집로만을 이용하여 기화된 배기체를 포집하였다. 포집 온도조건은 승온 1 시간 후에 fly ash filter unit는 900 °C에 도달하도록 setting하였다. 이때 Cs filter의 단수는 9단이었고 석탄회필터의 포집온도를 증가시키기 위해 Fig. 1에 보여진 것처럼 crucible 상단면에 석탄회필터를 장착하였다. 세슘 포집부분이 정해진 온도에 도달한 것을 확인하고, 산소분위기하(유량 : 0.5 l/min)에서 voloxidizer의 온도를 1 시간 후에 500 °C에 도달하도록 한 후 3 시간 유지시켰다. 그 다음 산소공급을 차단시키고 1100 °C까지 100 mtorr로 진공을 유지하여 Cs 포집실험을 수행하였다. 세슘의 휘발량 및 포집효율은 실험 종료 후 남아있는 시약의 무게를 측정하여 계산하였으며 포집후 필터의 색깔변화를 관찰하였다. WD-XRF(Wavelength dispersive X-ray fluorescence)를 통하여 필터에 포집된 Cs intensity를 분석하였다. 또한 비방사성 핵종포집후의 결정 구조분석은 10~70° 주사범위에서 XRD(X-ray diffractometer, D-5000, siemens Co.)분석을 통하여 수행하였다.

진공조건하(100 mtorr) 산소분위기에서 CsI로부터 휘발되는 세슘을 토가니 상단 면에 장착된 석탄회필터 및 세슘포집장치 내 석탄회필터를 이용하여 포집 실험한 결과 도가니 장착 필터에 17% 세슘이 포집되었고 세슘포집장치 필터의 1~9단에 퍼져 29% 세슘 포집효율을 얻었다. Fig. 2에 100 mtorr 진공조건하 세슘포집 후 crucible에 장착한 석탄회필터와 Cs 포집로의 석탄회필터 9단의 모습을 나타내었다. 그림에 나타난 것처럼 석탄회필터 9단까지 필터표면의 색이 갈색에서 진갈

색으로 변한 것으로 보아 세슘이 석탄회필터 9단 전체에 퍼져 포집되었음을 확인할 수 있었다. 이는 100 mtorr의 진공조건하에서 포집실험을 수행하여 공간속도가 상압에 비해 매우 크기 때문에 발생된 결과로 판단된다. Fig. 3에 제시한 XRF 분석결과 crucible 필터 및 세슘단위공정 포집필터 1~9단까지 반응하였음을 확인하였다. 또한 세슘 포집 후에 나타나는 석탄회 필터의 결정구조를 분석하기 위해서 crucible 석탄회 필터를 XRD로 분석한 결과 Fig. 4에 제시된 것처럼 세슘이 pollucite 형태로 잘 포집되었음을 확인할 수 있었다.

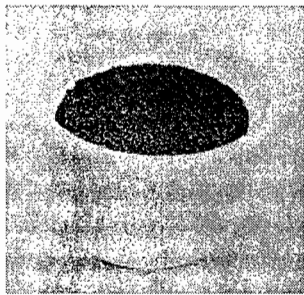


Fig. 1. Filter into crucible.

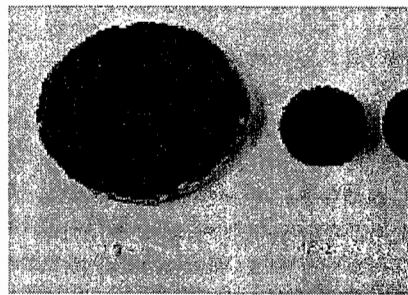


Fig. 2. Filters after trapping cesium.

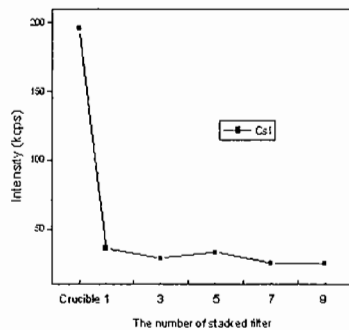


Fig. 3. Cs intensity as a function of the number of stacked filter.

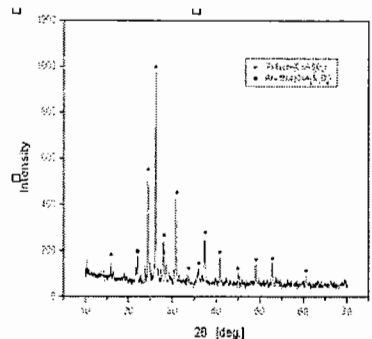


Fig. 4. XRD pattern of filter into crucible after trapping cesium in vacuum.

3. 결론

핵분열생성물 중 방사선적 위험도가 높고 처분시 타핵종에 비하여 비교적 용출이 잘되는 세슘의 고정화 재료로서 가장 주목받고 있는 것은 aluminosilicates인데 이의 대용매질로 사용한 석탄회필터는 세슘과 반응하여 pollucite($\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$)를 형성하였다. pollucite는 내침출성 및 열안정성을 갖기 때문에 폐기물처분에 용이할 것으로 판단되며 발전소폐기물인 석탄회의 포집원료매질로의 사용은 폐기물의 재활용측면에서도 큰 의미가 있다고 볼 수 있다.

4. 참고문헌

- 1) J. Mukerji and P. B. Kayal, Reaction of CsNO_3 and RbNO_3 with natural aluminosilicates, Materials Research Bulletin, Vol. 10(10), 1975.
- 2) S. A. Gallagher and G. J. McCarthy, High temperature thermal stability of CsAlSiO_4 and $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$, Materials Research Bulletin, Vol. 17(1), 1982.
- 3) 이후근 외, 핵연료주기 폐기물 재활용기술개발, KAERI/RR-1832/97, 원자력연구소(1998).
- 4) 박장진 외, 경수로 사용후핵연료 휘발성산화공정 기술개발, KAERI/RR-2840/2006, 원자력연구소(2007).

진공조건하 탄산세슘의 포집특성

신진병, 박장진, 김지현, 송기찬

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

jmshin@kaeri.re.kr

1. 서론

최근 제 4세대 (Gen-IV) 원자력 시스템 개발과 관련하여 수행 중에 있는 AFCI (Advanced Fuel Cycle Initiative) 프로그램에서는, 사용후핵연료 건식 재가공시 기존에 사용한 Voloxidation 공정을 적용할 경우 핵분열기체의 방출율이 낮기 때문에 이를 개선하기 위하여 개량된 휘발성 산화공정(Advanced Voloxidation Process)을 개발하기 위한 연구를 활발히 수행하고 있다. 최근 미국, 일본 등에서는 사용후핵연료 전처리 공정으로서 기존 Voloxidation 공정조건인 공기분위기하 500℃의 산화온도에서 핵종 제거율을 증가시키기 위해 산소 및 진공분위기에서 수행되는 개량 Voloxidation 공정이 시도되고 있다. 이 공정의 주요 제거 대상 핵종으로는 휘발성 핵분열기체로서 H-3, C-14, I-129, Kr-85 그리고 준휘발성 핵분열생성물인 Cs, Tc, Mo 등을 들 수 있다. 이 공정은 사용후핵연료 재활용을 위한 습식 및 건식 공정 모두 적용이 가능하도록 각 공정 특성에 맞추어 연구 방향을 설정하고 있다. 또한 핵분열가스를 휘발시켜 제거하는 것뿐만 아니라, 휘발된 핵종들을 환경으로 방출되지 않도록 안전하게 포집하는 연구도 활발하게 이루어지고 있다. 산소 및 진공분위기에서 수행되는 개량 Voloxidation 공정에 적용할 배기체포집기술의 일환으로서 방사선적 위험도, 화학적 반응성 및 열을 발생하는 방사성 세슘을 화학적으로 안정한 형태 및 내침출성이 큰 물질로 포집하는 기술이 요구되고 있다. 따라서 본 연구에서는 실험실 규모의 포집장치를 설계 및 제작하여 산소 및 진공조건하 석탄회필터를 이용하여 비방사성 물질인 Cs_2CO_3 의 포집특성을 분석하였다.

2. 실험 방법

기체상 세슘의 공급원으로 Cs_2CO_3 1.0g을 발생원으로 사용하였다. Cs_2CO_3 의 무게를 측정 한 후 alumina crucible(50 ml) 내에 넣었다. 그런 다음 OTS 장치의 voloxidizer 안에 시약을 넣은 alumina crucible을 넣은 후 이를 배기체 발생원으로 사용하였다. 석탄회필터의 포집온도를 증가시키기 위해 crucible 상단면에 석탄회필터를 장착하였다. 포집온도 조건은 Fig. 1에 나타난 바와

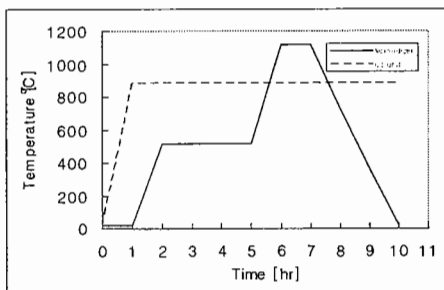


Fig. 1. Temperature profile for off-gas trapping experiment

같이 승온 1 시간 후에 Cs filter unit는 900℃에 도달하도록 setting하였다. Cs filter의 단수는 9 단이었다. Cs filter unit가 정해진 온도에 도달한 것을 확인하고, 산소분위기하(유량: 0.5L/min)에서 voloxidizer의 온도를 1 시간 후에 500℃에 도달하도록 한 후 3시간 유지시켰다. 그런 다음 Voloxidation 실험조건은 산소분위기하 500℃ 까지 승온시킨 후 500℃에서 3시간 유지한 다음 산소공급을 차단시키고 1100 ℃ 까지 1torr로 진공을 유지하였다. Fig. 2에 포집실험의 진공 profile을 제시하였다.

3. 결과 및 고찰

진공조건하(0.1 torr) 알루미나 crucible에 장착한 석탄회필터의 세습 포집효율을 무게분석으로 계산한 결과 약 99% 이었고 세습포집량은 0.18 g-Cs/ g-filter 이었다. 또한 세습포집필터는 1단 부터 3단 까지 약 1% 포집되었음을 무게분석으로 확인하였다. 진공조건하 석탄회필터에 포집된 세습화합물의 XRF 분석결과를 Fig. 3에 제시하였다. 그림에 나타난 것처럼 crucible 필터부터 세습단위공정 포집필터 9단까지의 필터 단수에 따른 Cs signal(kcps)의 변화를 살펴 본 결과 crucible 필터에서 세습이 상당량 포집되었고 세습단위공정 포집필터 1단부터 3단까지 세습이 점차 감소되는 경향을 보였고 4단 이후부터는 signal(kcps)이 측정되지 않았다. 진공조건하 약 1100℃ 정도의 높은 포집온도는 석탄회필터의 세습포집 효율을 증가시켰다. 또한 세습 포집 후에 나타나는 crucible 필터의 결정구조를 분석하기 위해서 crucible 필터를 XRD로 분석한 결과 Fig. 4에 제시된 것처럼 세습이 pollucite 형태로 포집되었음을 확인할 수 있었다.

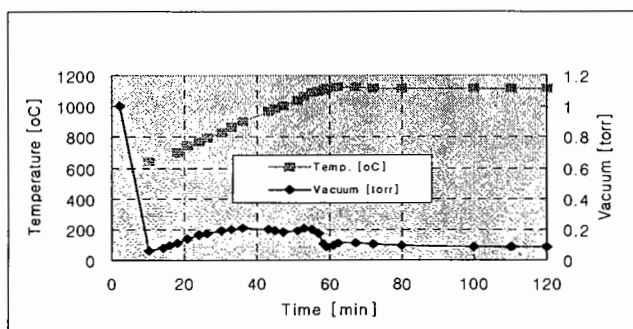


Fig. 2. Vacuum profile for off-gas trapping experiment

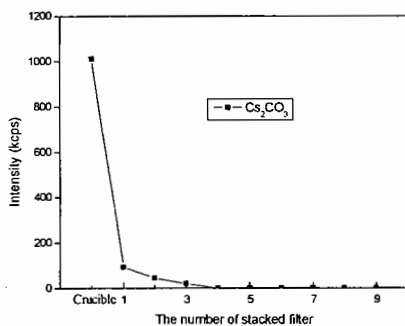


Fig. 3. Cs intensity as a function of the number of stacked filter

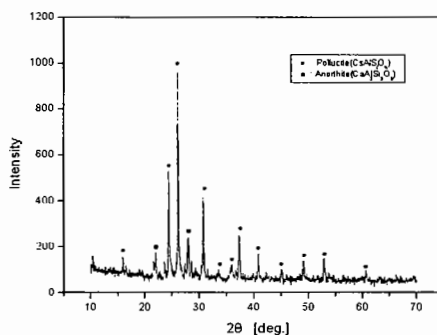


Fig. 4. XRD patterns of crucible fly ash filter after trapping gaseous cesium in vacuum condition

열처리 분위기에 따른 귀금속계 핵분열생성물의 증기압 계산

이재원, 양문상, 이영순, 문제선, 박장진

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

njwlee@kaeri.re.kr

사용후핵연료내에 귀금속 원소는 대부분 금속 및 금속 alloy 상태로 존재하며, 이들은 고용점 물질로 증기압이 매우 낮다. 반면에 이들의 산화물은 융점이 금속상태 보다 낮으며 증기압이 증가하므로 금속 및 금속 alloy를 고온 산화처리를 하여 휘발 제거하는 연구를 수행하고 있다. 핵분열생성물을 열처리하기 위한 분말을 담은 용기로써 내충격성이 양호한 Inconel 재질이 추천되고 있으나 산화온도에 제한을 받게 된다. 따라서 본 연구에서는 귀금속 핵분열생성물의 휘발공정조건을 설계하기 위해서 열처리분위기에 따른 상변화 및 이의 증기압을 열역학적으로 계산하였다. 열처리분위기는 산소, 공기 및 99.999% Ar(0.001% H₂O)로 하여 500~1400℃로 하였다. 귀금속 원소로는 Mo, Tc, Ru, Rh 및 Pd, 귀금속 alloy로는 Mo_{0.45}Ru_{0.45}Pd_{0.1}(A1), Mo_{0.45}Ru_{0.45}Rh_{0.1}(A2), Mo_{0.45}Tc_{0.45}Rh_{0.1}(A3)를 사용하였다. 금속석출물에서의 각 성분의 활동도는 규칙용액모델을 이용하여 계산하였으며 이 자료와 상변화에 따른 자유생성에너지 자료를 사용하여 상변화 및 증기압을 계산하였다. 그림 1은 열처리분위기에 따른 금속 및 금속 alloy의 안정상을 나타낸 것으로 열처리 분위기에 따라서 안정상에 큰 변화가 일어남을 알 수 있다.

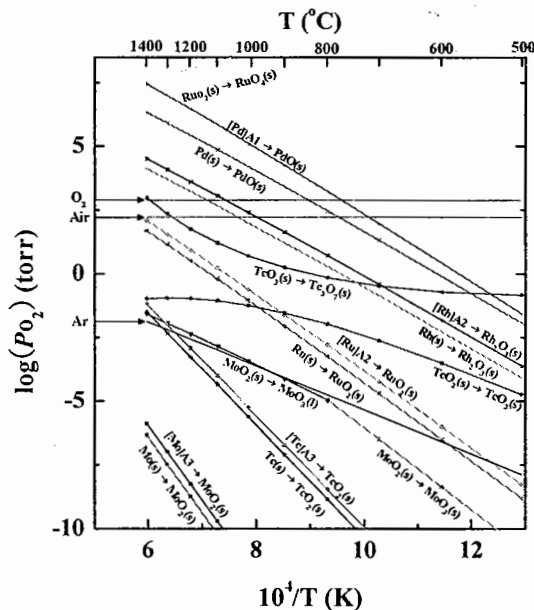


그림 1. 귀금속 및 귀금속 alloy의 산화에 필요한 산소분압 및 열처리분위기에 따른 평형상태 안정상

공기 및 산소분위기에서는 온도가 증가됨에 따라서 PdO(s) 및 Rh₂O₃(s)는 환원되어 Pd(s), [Pd]A1 그리고 Rh(s), [Rh]A2로 존재하며, 나머지 금속 및 금속 alloy는 산화물로 존재한다. Ar 분위기하에서는 MoO₂(s), MoO₃ 및 TcO₂만 산화물로 나머지 금속 및 금속 alloy는 금속상태로 존재

한다. 비점이 40℃인 $\text{RuO}_4(\text{g})$ 의 중간 상태인 $\text{RuO}_4(\text{s})$ 로 $\text{RuO}_2(\text{s})$ 가 산화되기 위해서는 높은 산소 분압이 요구됨을 알 수 있다.

증기압이 매우 낮은 Rh 및 Pd와 이의 산화물의 열처리분위기에 따른 증기압을 그림 2 및 3에 나타내었다. Rh의 경우에는 산소분위하에서 $\text{RhO}_2(\text{g})$ 로 휘발될 때에 가장 큰 증기압을 보였다. 반면에 Pd의 경우에는 산화분위기 보다는 Ar분위기에서 $\text{Pd}(\text{g})$ 로 휘발될 때에 가장 높은 증기압을 보였다.

따라서 산화휘발공정에서 특정 금속 및 금속 alloy의 휘발율을 높이기 위해서는 다양한 열처리 분위기를 도입할 필요가 있음을 알 수 있었다.

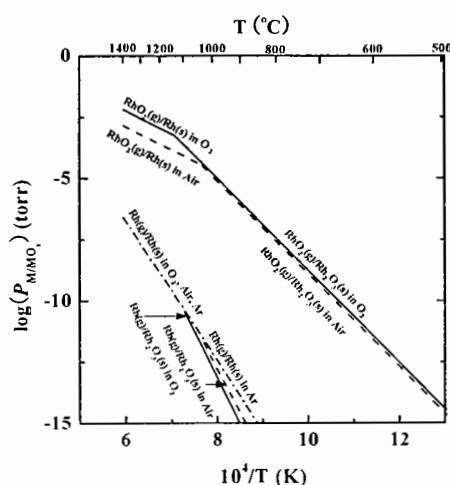


그림 2. 열처리분위기에 따른 Rh의 기체 및 기화성산화물의 증기압

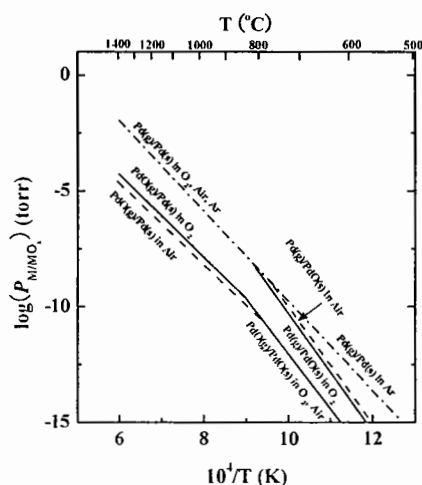


그림 3. 열처리분위기에 따른 Pd의 기체 및 기화성산화물의 증기압

휘발성 산화공정의 배기체 포집장치 설계개념

신진명, 박장진, 송기찬

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

jmshin@kaeri.re.kr

휘발성산화공정 기술개발에 대한 공동연구(KAERI, INL, ORNL)의 일환으로 미국 INL HFEF 핫셀에서 사용후핵연료를 이용하여 고도 휘발성산화공정(Advanced Voloxidation Process) 시험이 수행되었다. 이 시험 중에 휘발성 핵분열기체로서 H-3, C-14, I-129, Kr-85 그리고 준휘발성 핵분열생성물인 Cs, Tc, Mo 등이 발생된다. 따라서 휘발된 핵종들이 환경으로 방출되지 않도록 안전하게 포집할 배기체 처리기술이 절실히 요구된다. 이에 KAERI는 INL 핫셀에서 수행할 고도 Voloxidation 공정에 연결할 배기체 포집장치의 설계를 주도적 수행하였다. 기본 포집방법은 KAERI가 개발한 고온 화학반응법을 적용하였다.

처리대상 핵연료는 INL Voloxidation 공정 실험에서 사용할 Belgium reactor-3 사용후핵연료 100g 을 기준으로 하였다. ORIGEN-ARP(Automatic Rapid Processing) 코드를 이용하여 초기농도 8.26 wt.%, 연소도 42,000 MWd/tU, 출력율 37.5 MW/tHM, 연소주기 3주기, 냉각기간 25년 조건에서 계산한 포집대상핵종의 총량 및 방사선량이 Table 1에 제시되었다. Voloxidation 공정은 공기분위기에서 이루어지므로 휘발핵종의 화학적 형태는 산화물로 가정하였다.

Table 1. Generation mass and radioactivity of gaseous fission products in Belgium reactor-3 fuel

(Based on one batch of SF)

ISOTOPES		MASS		ACTIVITY	
		g	%	Ci	%
H-3	H ₂	2.00E-06	0.00	1.94E-02	0.25
Kr	Kr	5.29E-02	2.22	2.73E-01	3.59
Xe	Xe	6.32E-01	26.55	0.00E+00	0.00
C-14	CO ₂	7.00E-06	0.00	3.12E-05	0.00
I	I ₂	2.44E-02	1.02	3.41E-06	0.00
Mo	MoO ₃	4.82E-01	20.27	3.94E-08	0.00
Ru	RuO ₄	3.93E-01	16.53	9.47E-07	0.00
Cs	Cs ₂ O	3.23E-01	13.58	7.31E+00	96.11
Pd	PdO	1.06E-01	4.47	6.29E-06	0.00
Tc	Tc ₂ O ₇	1.62E-01	6.81	1.74E-03	0.02
Te	TeO ₂	6.63E-02	2.79	5.11E-04	0.01
Rh	Rh ₂ O ₃	6.51E-02	2.73	1.13E-06	0.00
Rb	Rb ₂ O	6.08E-02	2.56	3.31E-09	0.00
Cd	CdO	1.12E-02	0.47	1.13E-03	0.01
Total		2.38E+00	100.00	7.60E+00	100.00

배기체 포집장치의 단위포집 공정 주요 설계 원칙은 다음과 같았다. INL의 HFEF (Hot Fuel Examination Facility)에서 Voloxidation 공정 중에 발생이 예상되는 핵종 중 포집대상 핵종은 Cs, Rb, Cd, Ru, Tc, C-14 및 I의 7종을 포집대상 핵종으로 한다. 포집장치에 연결되는 모든 배기가스 이송용 배관은 각

각의 휘발핵종들이 배관 내부에 응축 및 침적되어 공정에 영향을 주지 않도록 끓는점 이상의 온도가 유지되도록 한다. Voloxidation 실험 한 batch 크기는 100g의 Belgium reactor-3 사용후핵연료로 하며, 포집제의 양도 한 batch 분량의 양으로 한다. 포집제의 양을 계산하기 위한 기준으로 포집대상핵종 전량(100%)이 공정 중 휘발되는 것으로 가정한다. Filter는 외경 1인치의 상용 튜브를 이용하며, 핫셀에서 용이하게 분리 및 제거 가능한 구조로 한다.

배기체 단위공정 포집장치에는 Fly ash filter, Calcium filter 및 Silver impregnated zeolite filter를 사용하였다. 배기체 처리실험 장치의 핵분열생성물 포집은, 첫째 단에는 Cs, Rb, Cd 를 포집하기위한 석탄회 필터를 둘째 단에는 Tc, C-14, Ru를 포집하기위한 칼슘 필터를 셋째단에는 요오드를 포집하기위한 Ag-X 필터를 설치하였다. 또한 휘발 핵종들이 포집제에 도달하기 전에 끓는점 이하로 냉각될 경우 배관내부에 응축되거나 누적되어 기체의 흐름을 방해할 우려가 있으므로, 포집대상 핵종들이 이송될 배관의 최소 유지온도는 Table 2에 제시된 온도 이상이 유지되도록 설계하였다.

배기체 단위공정 포집장치 제작에 반영한 단위공정 포집장치, 포집제, 포집대상 핵종, 단위공정 포집장치 온도 상승능력, 예상되는 최적 포집온도 및 단위 포집장치의 공정변수 등을 요약하면 Table 3과 같다.

Table 2. Minimum temperatures of the tubes during operation of the Off trapping units

Type of connection pipe	Pipe temp. (°C)
Connection pipe between DEOX outlet and Cs(Rb, Cd) trapping unit	over 650°C
Connection pipe between Cs(Rb, Cd) trapping unit and Ru(Tc, C-14) trapping unit	over 300°C
Connection pipe between Ru(Tc, C-14) trapping unit and Iodine trapping unit	over 200°C

Table 3. Specific design requirements of the off-gas trapping units

Trapping unit	Trapping media	FPs to be trapped	Design temp., °C	Operating temp., °C	Design spec.
Cs (Rb, Cd) trapping unit	Fly ash filter	Cs, Rb, Cd	~ 1,000	800	D = 2.0 cm BH = 3.6 cm SV = 10.0 cm/sec CT= 0.36 sec
Ru (Tc, C-14) trapping unit	Calcium filter	Ru, Tc, C-14	~1,000	600	D= 2.0 cm BH= 8.0 cm SV= 10.0 cm/sec CT= 0.80 sec
I trapping unit	AgX	I	~ 500	150	D = 2.0 cm BH = 5.0 cm SV = 3.8 cm/sec CT = 1.3 sec

* D: diameter, BH: bed height, SV: superficial gas velocity, CT: contact time

질산 및 Ce(IV)에 의한 방사성 오염금속의 제염

안섭진, 홍대석, 지영용, 배상민, 손종식

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

nsjahn@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성오염 금속 폐기물을 제염하는 방법에는 여러 가지 방법이 있는데 그 중에서 가장 많이 사용되는 방법이 주로 모래분사, 드라이아이스 분사, 고압수 분사, 초음파 제염과 같은 물리적 방법, 산/알칼리, 산화/환원제등을 이용하는 화학적 방법, 및 전기분해를 이용하는 전기화학적 방법 등이다. 물리적 방법에 의해서 금속 표면에 묻어있는 오염물질을 제거할 수가 있고, 산과 알칼리를 이용하여 표면의 오염을 화학적으로 용해시켜 제염을 할 수가 있다. 오염물질이 금속 내부까지 침투되었을 경우는 산화 환원제를 이용하여 금속표면을 일부 용해시켜서 제염을 할 수가 있으며 전기분해를 이용하여 전기화학적으로 금속표면을 용해시킴으로써 더 효과적으로 제염을 할 수가 있다.

금속표면이 약하게 오염되었을 경우 화학적인 제염방법에서 질산이나 황산 등의 무기산에 의해서 제염을 할 수가 있으며, 산에 의해서 효과적으로 제염이 되지 않을 경우 산화제로서 Cerium을 사용하기도 한다. Cerium은 Ce^{4+} (ceric)와 Ce^{3+} (cerous)의 2가지 안정한 원자가상태를 가지고 있다. Ceric ion은 강력한 산화제이며 금속 및 산화층을 다음과 같이 용해시킨다.



한국원자력연구원에서 발생된 방사성오염 금속폐기물을 제염하기 위한 목적으로 오염된 STS 304L 금속시료에 대한 제염실험을 하였다. STS 304L 시료를 방사성 농축액에 오염시키고 이 금속의 제염을 위하여 질산을 제염제로 하고 용액의 온도를 변화시켜서 금속제염에 대한 온도의 영향을 시험하였으며, 산화제로서 금속의 산화층과 금속 모재를 산화시킬 수 있는 Ce^{4+} 의 질산용액을 선택하여 그 영향을 시험하였다. 시험결과 예상과 같이 용액의 온도가 제염효과에 많은 영향을 주었으며, Ce^{4+} 에 의해서는 시간이 어느 정도 지난 후에 그 효과가 나타났다.

2. 실험 및 결과

제염제로는 질산과 $Ce(NO_3)_4$ 를 사용하였다. 질산에 의한 제염에서의 오염도는 Thermo Electron Corporation사의 Type 6-90 Portable Counter(back ground : 27cps)를 이용하여 cps(count per second)단위로 측정하였고, $Ce(NO_3)_4$ 산화제를 이용한 제염에서는 HPGe γ -Spectrometer를 이용하여 Bq/g 단위로 오염도를 측정하였다.

금속 시험시편은 넓이 $5 \times 5 \text{cm}^2$, 두께 1.5mm, 무게 30g의 STS 304L Plate를 방사능 농도가 8×10^3 Bq/ml 인 농축액에 6개월간 오염시켜서 만들었다. 온도에 따른 제염효과를 관찰하기 위하여 각각 0.02N HNO_3 300ml에 오염된 시편을 넣고 온도를 각각 상온, 40℃, 60℃, 80℃로 변화시켰다. 또 Ce^{4+} 의 제염효과를 관찰하기 위하여 각각 300ml의 0.02N HNO_3 용액과 0.02N HNO_3 용액에 0.02N $Ce(NO_3)_4$ 를 혼합시켜서 만든 용액에 오염시편을 넣어 각각 5시간 간격으로 오염도를 측정하였다.

방사성 오염금속의 제염은 금속의 표면오염과 내부오염 등 금속표면에서의 오염형태에 따라서 많은 영향을 받기 때문에 똑같은 조건에서 시편들을 오염시켰더라도 서로 다른 오염시편을 가지고 정확한 비교는 할 수가 없다. 그러나 대략적인 경향은 알 수가 있었다.

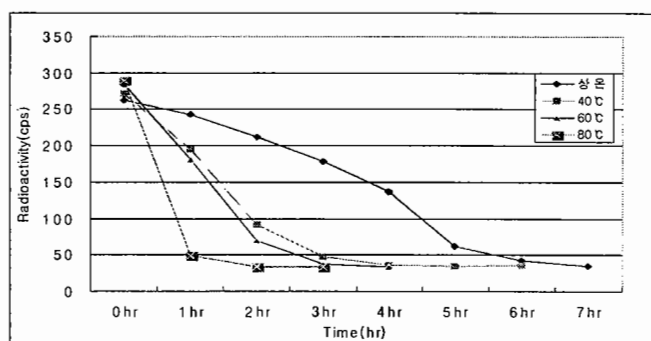


그림 1. 0.02N HNO₃ 용액에 의한 STS 304L의 제염에서 온도의 영향

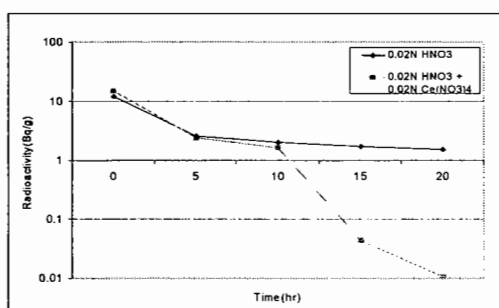


그림 2. 질산 및 Ce(IV)에 의한 Co-60의 제염

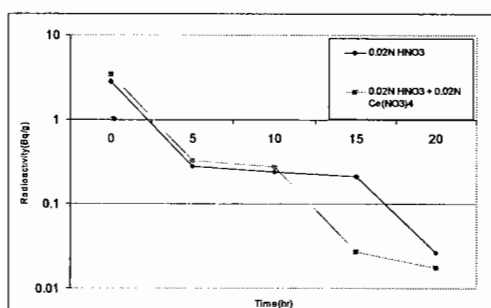


그림 3. 질산 및 Ce(IV)에 의한 Cs-137의 제염

그림 1에서와 같이 0.02N HNO₃ 용액의 온도를 변화시켰을 경우 온도 증가에 따라 표면오염이 급속히 제염됨을 알 수가 있으며 80°C에서는 1시간 내에 50cps 이하로 제염이 되었다. 40°C와 60°C에서는 3시간 후에 상온에서는 6시간 후에 50cps 이하로 제염이 됨을 알 수가 있었다. 그림 2 및 그림 3에서 보는 바와 같이 Ce^{IV}에 의한 제염의 경우 Co-60과 Cs-137 핵종 모두 15시간 이후에 0.1Bq/g 이하까지 제염이 되었으나 질산용액에 의한 제염의 경우는 15시간의 제염기간에도 Co-60과 Cs-137 핵종 모두 0.1Bq/g 이하로 제염이 되지를 않았다. 그래서 15시간의 제염 후에 질산의 농도를 0.1N로 증가시키고 Ce(NO₃)₄의 농도를 0.08N로 증가시켜서 5시간 동안(20시간째의 제염부분) 제염을 하였다. 그 결과 질산용액에 의한 제염에서 Co-60 핵종의 경우 용액의 농도를 증가시킨 제염 20시간째에서도 0.1Bq/g 이하로 제염이 되지를 않았으나 Cs-137핵종의 경우는 0.1Bq/g 이하로 제염이 되었다. Ce(NO₃)₄에 의한 제염에서는 Co-60과 Cs-137 핵종 모두 제염이 잘 되었다.

3. 결론

STS 304L Plate의 제염에서 제염온도의 제염효과에 미치는 효과가 매우 크게 나타났으며, 산화력이 강한 Ce^{IV}에 의한 제염효과에 있어서도 좋은 결과가 나타났다, 이와 같은 결과는 현재 연구원에 저장중인 금속폐기물의 제염 시 이용될 수 있을 것이다. 스테레스 금속폐기물의 제염 시 제염온도를 적어도 40°C 또는 60°C 이상 올리는 것이 좋을 것으로 본다. 질산에 의해서 제염이 어려울 경우 Cerium을 이용하면 더욱 효과적일 수가 있다.

제염폐액 중 잔류 유기물질 분해 실증시험 수행

김위수, 최호균, 이수홍, 정종현*, 원휘준*

일진방사선엔지니어링(주), 서울시 구로구 구로5동 104-3 일진빌딩

*한국원자력연구원, 대전시 유성구 덕진동 150번지

koonv@iljinrad.co.kr

1. 서론

난분해성유기물(Non-biodegradable Organic Compounds)은 발생원/대상폐액으로는 제지, 염색, 매립지 침출수, 제약, 도금, 발전소화학세정폐수, 방사성 제염 폐액 등이 있다. 특히 방사성 화학 제염 폐액의 경우 폐액 정화매체의 고체폐기물 중에 EDTA, 옥살산 등의 유기산 킬레이트제가 포함되면 방폐물 처분장에서 폐기물 인수가 어렵게 됨으로 유기물 분해공정이 반드시 필요하게 된다.

난분해성 유기물에 대한 분해개념은 유기물 중의 C-C, C-H bond를 절단하는 것이다. 폐액중의 난분해성 유기물분해기술로는 소각법, 습식산화법, 초임계 산화법, 증발농축법, 전기화학적 방법, AOP 법, 플라즈마 처리법, 전자빔 조사법, 등이 있으며, 금번에 개발한 기술은 OH라디칼을 생성시켜, 이를 주재로 유기물질을 산화분해하는 고도산화 공정법(AOP : Advanced Oxidation Process) 범주에 속하는 기술이다.

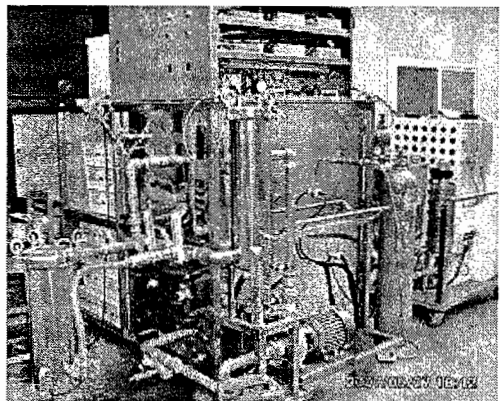
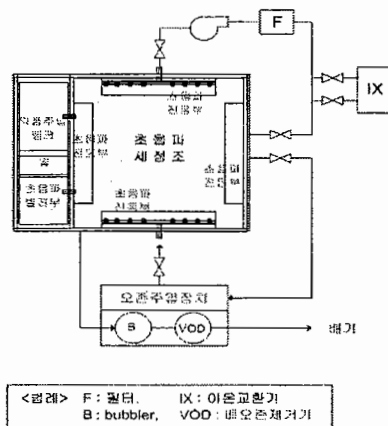


그림 1. 개발장치 개요도 및 사진 (왼쪽- 산세정조, 오른쪽- 유기물분해조)

본 연구과제를 통해 ①저농도 화학세정 및 유기물 분해 겸용 화학 세정조와, ②유기물분해 전용 분해조를 각각 원형설계로 제작하였으며 각분해조의 용액용량은 각각 500ℓ, 800ℓ에 달하는 상용 실증규모로 제작하였다. 개발장치의 개요도는 그림 1과 같으며 일반용수에 유기산을 첨가한 모의 세정폐액으로 성능시험을 수행하였다.

2. 실험 및 결과

가. 유기물분해조로 성능시험

0.5% 옥살산으로 조성한 모의 폐액으로 800 ℓ 용량의 유기물 분해조를 사용하여 10시간 성능시험을 수행 하였다. 이때 용액 내 다중복합 AOP 요소(즉, 과산화수소, 초음파, 자외선, 고정광촉매, 오존)를 동시 투입하였으며 그 결과 하기 그림2에 나타난 바와 같이 TOC 농도로 98% 이상의 분해율을 달성하였다.

본 성능시험에서는 다소간의 분해율 저하를 감수하더라도 “중요한 요소인 운전상 편의”를 기하기 위해 pH를 별도로 조절하지 않았다.

나. 화학제염 세정조로 성능시험

화학제염 세정조(500 ℓ 용량) 내에서 지농도 화학제염공정 후 잔존 제염폐액에 대하여 별도의 폐액 이송 없이 동일 세정조 내에서 그대로 잔존 유기물질 분해공정을 수행할 수 있도록 공정을 수립하였다. EDTA 0.5%, 옥살산 0.2 %, 구연산 0.15%, 아스코르빅산 0.15%, 도합 1% 킬레이트제 혼합유기산으로 모의 세정폐액을 조성하였다.

성능시험은 1,2 단계로 나누어 실시하였는데 1단계에서는 용액온도 80~90℃의 고온에서 펜톤($\text{Fe}^{++} + \text{H}_2\text{O}_2$) 액 첨가 및 초음파 조사를 적용하여 8시간 운전을 하였으며, 다소간의 분해율 저하를 감수하더라도 운전상 편의를 기하기 위해 pH를 별도로 조절하지 않았다.

2단계에서는 50℃ 이내의 용액온도와 pH는 4 ~4.5를 유지하였고 과산화수소, 초음파, 자외선, 오존의 AOP 요소를 복합적으로 동시 투입하여 4시간 운전을 하였으며 이때 자외선 적용을 위해 자외선 램프 군을 세정조 내로 수직으로 투입하였다. 도합 12시간 공정운전으로 하기 그림3 에 나타난 바와 같이 TOC 농도 분해율은 92.1% 를 달성하였다.

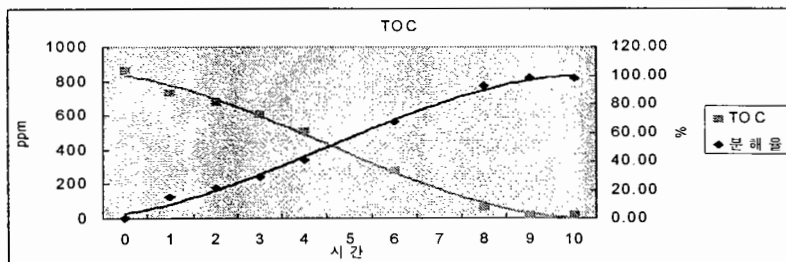


그림 2. 0.5% 옥살산 용액분해실험 결과

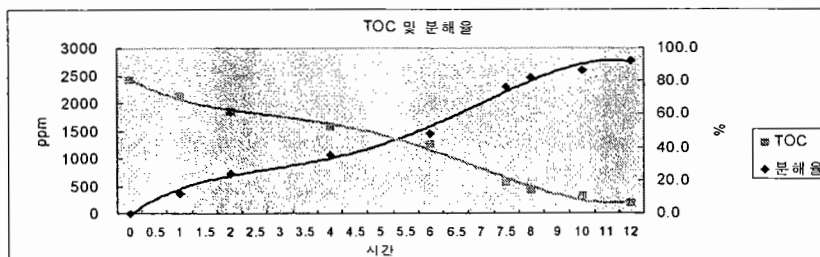


그림 3. 1% 혼합유기산 용액 분해실험 결과

염폐기물을 석회유리로 고화한 고화체의 침출특성

김환영, 박환서, 김정국, 김인태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

nhvkim@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료를 전해환원하는 공정에서 발생하는 LiCl함유 염폐기물을 처분하기 위해서는 물에 높은 용해도를 나타내는 핵종과 폐염을 그대로 고화하여 처분할 수가 없고, 반응을 수반하는 고화공정을 거쳐 내침출성을 가지는 고화체의 형태로 처분을 하게 된다. 이때 방사능을 띄는 방사성폐기물만을 물에 불용인 형태로 바꾸어 고화하는 것에 그치지 않고, 고화체내에 함께 고화되는 비방사성물질인 폐염(LiCl, KCl)까지도 물에 불용인 화학종으로 바꾸지 않으면 사고 시 스며든 물에 이들이 녹아나온 길을 따라 핵종도 누출되므로 높은 내침출성을 실현할 수가 없다. 그리하여 미국의 ANL에서는 신선한 제올라이트를 첨가하여 새로운 무기물인 소다라이트를 형성하여 유리염을 없애는 고화연구가 실시되었다. 그러나 이 경우 유리염 무게의 10배에 이르는 제올라이트와 반응시키지 않으면 아니 되어, 발생하는 고화체의 양이 크게 늘어나는 단점이 있다. 또한 한국원자력연구원에서는 염화물과 반응을 하는 실리카 함유 무기매질(SAP)로 반응시킬 때, 유리염 무게의 약 두 배인 SAP과 반응시켜도 높은 내침출성을 나타내 고화체의 발생량을 대폭 줄일 수 있음을 보였다. 한편으로 세슘과 스트론튬이 포함되어 있는 전해환원공정발생 폐기물에서 세슘과 스트론튬을 분리하기 위해 제올라이트를 사용하게 되면 기공 내에 핵종과 염을 함유하게 되어, 이 염이 고화 후에 유리염으로 활동하지 않도록 하기 위해서는 폐제올라이트를 처리할 때 앞에서 언급된 반응을 거치지 않으면 아니 된다. 따라서 본 연구는 폐제올라이트에 함유된 염과 반응할 신선한 제올라이트와 SAP를 각각 첨가하여 반응시키고, 염에서 발생한 Li⁺ 등이 유리와 반응할 확률이 높은 석회유리와 그렇지 않은 붕규산 유리로 고화한 고화체의 침출특성을 비교분석하였다.

2. 실험 및 결과

폐용융염에서 세슘과 스트론튬을 제거하기 위해 제올라이트를 염에 접촉시킨 후에 제올라이트의 외부의 염을 제거하여도 내부에 흡착된 염은 남게 되는데, 이 무게는 제올라이트의 무게와 비슷하다. 따라서 본 연구는 폐제올라이트가 제올라이트의 무게와 같은 염을 함유하도록 하였다. 이 염을 이론적으로 신선한 제올라이트에 의해 모두가 물에 불용인 새로운 무기물인 소다라이트로 변화시킬 혼합비인 0.1(LiCl/Ze)이 되도록 제올라이트를 추가로 넣어 650℃에서 반응을 시키고, 여기에 유리(SiO₂:알카리가 극히 적은 석회유리와 R7T7;고준위폐기물을 처리하기 위해 개발된 붕규산유리)를 넣어 920℃에서 72시간 가온하여 고화체를 얻었고, 이 고화체를 분쇄하여 PCT방법으로 침출특성을 살펴보았다.

표 I 유리조성과 양을 변화하여 고화한 제올라이트 반응 고화체의 침출율

시료	Cs의 침출율	Sr의 침출율	Ba의 침출율
SIN-25	3.892×10^{-1}	7.826×10^{-4}	$<4.540 \times 10^{-4}$
SIN-40	4.013×10^{-1}	1.445×10^{-3}	5.423×10^{-4}
R7T7-25	2.389×10^{-1}	2.555×10^{-3}	4.860×10^{-4}
R7T7-40	2.1722×10^{-3}	2.231×10^{-2}	$<5.899 \times 10^{-4}$

또한 고화체의 발생량을 줄이기 위해 폐제올라이트가 함유한 유리염(염의 1/10은 제올라이트와 반

응하여 소다라이트로 변할 것이므로 염의 9/10염)의 2배 이상의 SAP을 넣어 650℃로 반응하고, 앞의 방법으로 고화 및 침출실험을 하여 그 특성을 비교분석하였다.

신선한 제올라이트를 첨가하여 반응하고 고화한 고화체를 90℃에서 단기침출법인 PCT-A법에 의해 얻은 침출결과를 표 1에 나타내었다. Cs의 침출율은 R7T7을 많이 넣어 고화체 내에 결정물을 가지지 않고 모두가 유리로 변화한 것은 높은 내침출성을 가지나($2.172 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2 \cdot \text{d}$), 이를 제외하고는 $2.389 \times 10^{-1} \text{ g/m}^2 \cdot \text{d}$ 에서 $4.013 \times 10^{-1} \text{ g/m}^2 \cdot \text{d}$ 로 높은 내침출성을 나타내는 고화체가 만들어지지 않았다. Sr과 Ba의 침출속도는 $10^{-4} \sim 10^{-3} \text{ g/m}^2 \cdot \text{d}$ 범위로 높은 내침출성을 나타내어, Sr과 Ba가 고화체 내에 잘 고정되어 있음을 알 수 있다.

한편으로 폐제올라이트에 함유된 유리염 무게의 2.0에서 3.0배까지 SAP와 반응시키고 석회유리(SINIL유리)와 붕규산유리(R7T7유리)를 25, 30, 35wt% 씩 각각 넣고 고화한 고화체의 침출결과를 그림 1과 2에 나타내었다. 그림 1에 나타낸 Cs의 침출속도는 석회유리로 고화한 경우 유리의 함량을 25wt%로 하고, 유리염에 대하여 SAP의 반응비를 2.4배 이상으로 하거나 유리의 양을 30wt% 이상으로 하면 $10^{-2} \text{ g/m}^2 \cdot \text{d}$ 차원으로 대체적으로 높은 내침출성을 보인다. 그러나 붕규산유리로 고화한 경우에는 어느 조건에서도 $10^{-3} \text{ g/m}^2 \cdot \text{d} \sim 10^{-1} \text{ g/m}^2 \cdot \text{d}$ 의 침출속도를 보여 내침출성이 떨어짐을 알 수 있다. 이 같은 결과는 제올라이트 내에 함유된 염이 염의 용융온도 이상인 650℃에서 반응할 때 제올라이트의 미세한 기공에서 모두 빠져나와 SAP와의 반응이 완결되지 못하고, 920℃인 높은 온도에서의 고화 중에 제올라이트가 재결정을 하면서 나온 염이 SAP와 반응하면서 생긴 Li^+ , Na^+ 가 Na_2O 와 Li_2O 가 거의 없는 석회유리와 반응하여 유리의 한 성분으로 바뀌어, 용해가 될 수 있는 알카리의 양을 고화체 내에서 줄여주기 때문으로 생각된다. 그리고 그림 2에 보인 Sr의 침출속도는 유리의 종류에 관계없이 $10^{-4} \text{ g/m}^2 \cdot \text{d} \sim 10^{-3} \text{ g/m}^2 \cdot \text{d}$ 의 차원으로 높은 내침출성을 보인다.

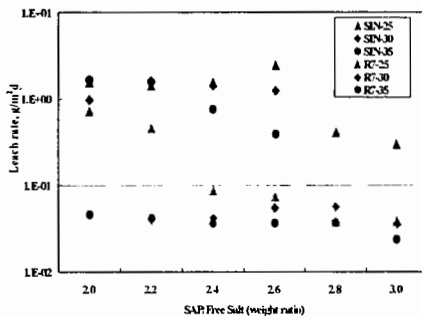


그림 1 세슘의 침출속도

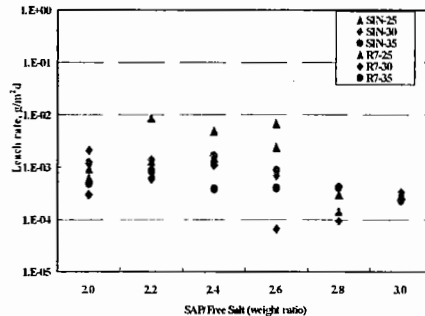


그림 2 스트론튬의 침출속도

3. 결론

신선한 제올라이트를 첨가하여 반응하고 고화한 고화체의 경우 어느 유리로 고화하여도 Sr과 Ba는 고화체 내에 잘 고정되어 있어 문제가 되지 않으나, Cs의 내침출성을 높이려면 신선한 제올라이트를 더 넣어주거나 다량의 붕규산유리를 넣어 고화체 내에 결정물이 없도록 고화하여야 하겠다. 그리고 유리염을 SAP로 반응하여 고화할 경우에는 고화 중에 제올라이트의 재결정으로 미세기공에 고정되었던 염이 SAP와 반응하여 생기는 Li^+ , Na^+ 가 Na_2O 와 Li_2O 가 거의 없는 석회유리와 반응하여 유리의 한 성분으로 바뀌어, 용해가 될 수 있는 알카리의 양을 고화체 내에서 줄여 주어 Cs의 높은 내침출성을 보인 것으로 생각된다.

Removal of Eutectic Salt from Precipitate by Vacuum distillation

Hee-Chul Yang, Hee-Chul Eun*, Yung-Zun Cho, In-Tae Kim

Korea Atomic Energy Research Institute 150 Deokjin-Dong, Yuseong, Daejeon 305-353,

*University of Science and Technology, 52, Eoeun-Dong, Yuseong, Daejeon, 305-333

nhcyang@kaeri.re.kr

1. Introduction

Distillation of eutectic salt from RE precipitates originating from the oxidative precipitation process was investigated. This work is divided into two parts. The distillation behavior pure eutectic salt under different vacuums at high temperatures was investigated by using thermo-gravimetric furnace system. The results were compared with the theoretical maximum distillation rate derived from the Hertz-Knudsen's classical kinetic theory of gas. In the second part, we tested the removal of eutectic salt from the RE precipitates by using the laboratory vacuum distillation furnace system. Investigated variables were the temperature, the degree of vacuum and the time.

2. Methods and Results

2.1 Distillation rate of pure eutectic salt

Distillation rates of pure eutectic salts as a function of temperature were determined from the weight loss obtained from non-isothermal TG analysis. In Fig. 1, obtained distillation rates of 0.5, 5 and 50 Torr were compared with the maximum distillation rate in absolute vacuum. Increasing effect of the temperature increase becomes greater as the vacuum increases. Vary fast distillation rate higher than 10^{-3} mole/cm².sec can be obtained at higher temperatures above 1300 K and vacuums less than 0.5 Torr. Salt distillation operation with a moderated distillation rate of 10^{-4} - 10^{-5} mole/cm².sec is possible at temperatures less than 1300 K and vacuums of 5-50 Torr.

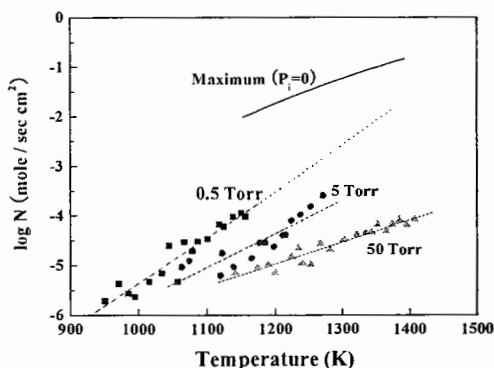
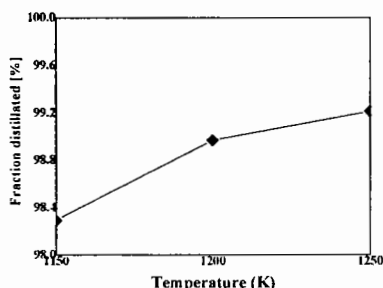


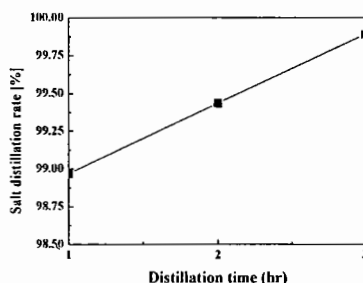
Fig. 1 Salt distillation rates under different vacuums.

2.2 Salt removal from precipitates

The precipitates obtained from the RE oxidative precipitation process, which simulated the compositions of REs in the spent LiCl-KCl salt from electro-refining process, was used in this second part study. The precipitate is composed of about 85-90% of salt and 10-15% REs. Investigating variables are the distillation temperature, time and vaporizing surface area of melted salt. Tested distillation temperatures were 1150, 1200 and 1250 K. The degree of vacuum wasn't varied and it was



(a) With furnace temperature



(b) With distillation time (temp.=1200K)

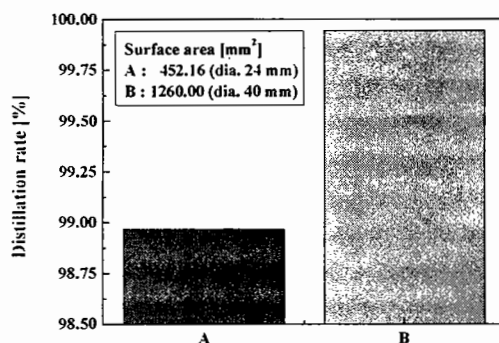


Fig. 2 Salt distillation efficiency (Pabs=50 Torr)

fixed at 50 Torr throughout all the tests. The test results of salt removal from precipitates are shown in Fig. 2. As shown in Fig. 2(a), 99% of salt distillation efficiency was obtained after an hour at the temperature above 1200 K. After two-hour additional distillation operation, 88% of remaining salts was distilled and a total 99.88% of distillation efficiency was obtained after 3 hours (see Fig. 2(b)). Over 99.9% of the total distillation efficiency was obtained for 1-h distillation operation at same temperatures by increasing the inner surface area from 4.52 cm² to 12.56 cm² (see Fig. 2(c)).

3. Conclusion

Salt distillation operation with a moderated distillation rate of 10⁻⁴-10⁻⁵ mole/cm².sec is possible at temperatures less than 1300 K and vacuums of 5-50 Torr, with minimizing the potentials of RE particle entrainment. An increase in vaporizing surface area is relatively effective for removing residual salt in the remaining particles, when compared to that in vaporizing time. Over 99.9% salt was removed by increasing vaporization surface area under 50 Torr at 1200 K.

REFERENCES

- [1] H. C. Yang, J. H. Kim, W. Z. Oh, H. S. Park, Y. C. Seo, "Behavior of hazardous and radioactive metals in a laboratory furnace and a demonstration-scale incinerator", Environ. Eng. Sci., Vol. 15, No. 4, 299-311 (1998).

LiCl염폐기물내 존재하는 I/II 족 핵종분리 방법

조용준, 양희철, 은희철, 김용호, 김인태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

chovi@kaeri.re.kr

1. 서론

사용 후 산화물핵연료의 전해환원 공정에서는 Cs 및 Sr과 같은 1/2족 핵종을 포함하고 있는 LiCl염폐기물이 발생하게 된다. 발생하는 LiCl 염폐기물을 Zeolite를 이용하여 blending 한 후 glass frit를 첨가하고 고화체를 처리하는 기술이 미국의 ANL에 의해 개발되었으나 이 방법은 초기 염폐기물 무게 대비 10배 이상의 무게증가가 발생하기 때문에 실제 공정에 적용할 경우에는 최종 발생하게 되는 폐기물에 의한 부담이 커지게 된다. 이러한 문제점을 해결하기 위해서는 LiCl 내에 존재하는 I/II 족 핵종을 분리하여 분리된 핵종만 고화처리하고 핵종이 제거된 LiCl염은 전해환원 공정에 재사용하는 기술이 사용될 수 있는데 본 연구에서는 LiCl 용융염내 존재하는 Cs 및 Sr의 제거를 위한 여러 가지의 침전제 첨가방법에 대한 분리가능성 검증에 대한 실험적 검증을 수행하였다.

2. 실험 및 결과

LiCl 염내 포함되어 있는 Cs 및 Sr의 제거를 위하여 carbonate, phosphate, sulfate 첨가방법 그리고 혼합가스($O_2(50\%)+CO_2(50\%)$) 분산법들에 대한 효율검증 실험을 수행하였다.

2.1. carbonate 첨가방법

Li_2CO_3 를 첨가하여 LiCl 염내 포함되어 있는 Sr에 대한 탄산화반응 특성을 파악하였다. 실험은 $650^\circ C$ 의 일정한 용융염온도에서 수행되었고 Li_2CO_3 의 첨가량은 포함되는 Sr에 대하여 1~5 몰비로 변화시켜가며 실험을 수행하였다. Li_2CO_3 와의 반응으로 Sr은 탄산화물 형태로 침전되었으며 (Fig. 1) 첨가 몰비가 3 이상의 조건에서 99% 이상의 탄산화효율을 나타내었다.

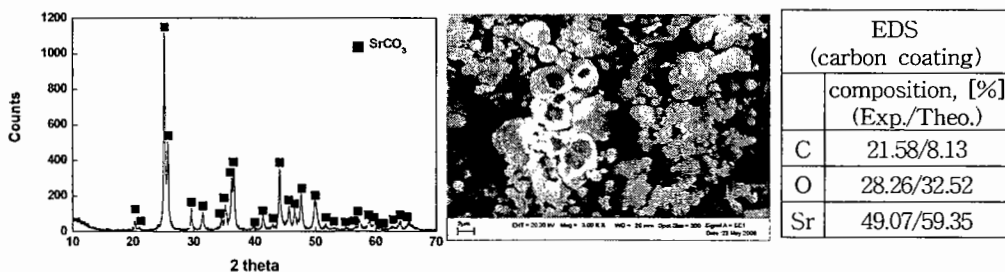


Fig 1. XRD pattern and SEM-EDS result of Sr carbonate by reaction with Li_2CO_3

2.2. phosphate 첨가방법

Li_3PO_4 첨가에 의한 LiCl 용융염내 존재하는 Cs 및 Sr의 인화반응 특성에 대한 실험은 $650^\circ C$ 및 $750^\circ C$ 의 온도에서 투입몰비를 0.5~2까지 변화시키면서 수행하였다. 반응효율은 온도에 따른 영향을 볼 수 없었으며 Cs의 경우에는 $750^\circ C$, 2 투입 몰비의 조건에서 최대 30.7%, Sr의 경우에는 41%의 반응효율을 나타내었다.

2.3. 혼합가스 분산방법

50%의 산소와 50%의 이산화탄소로 혼합되어 있는 혼합가스를 Sr을 포함하고 있는 LiCl 용융염

내로 분산시켜 Sr의 탄산화반응 특성을 파악하였다. 실험결과 생성되는 물질은 SrCO_3 이었으며 반응효율은 일정한 분산형태 및 시간조건에서 온도가 증가함에 따라서 증가하였으며 혼합가스의 분산 형태에 크게 영향을 받음을 알 수 있었다. 다공성의 helical 형태의 분산관을 사용하였을 경우 650°C , 2 L/min의 분산유속 및 7시간의 분산시간에서 73.2%의 Sr에 대한 탄산화 효율을 실험적으로 얻을 수 있었다.

2.4. sulfate 첨가방법

Li_2SO_4 첨가에 의한 Cs 및 Sr의 황화물화 반응 특성에 대한 실험을 $650^\circ\text{C} \sim 750^\circ\text{C}$ 의 온도범위와 1~2 첨가 물비의 조건에서 수행하였다. 황화물화 반응이 종결된 후 각각의 반응효율 측정을 위해서는 ICP 및 AA를 이용하여 분석하여야 하는데 반응 후 생성된 Cs 및 Sr 황화물은 모두 물에 대한 용해도가 크므로 전환율에 대한 분석이 불가능하다. 따라서 본 연구에서는 생성된 Cs 및 Sr 황화물의 농도를 측정하기 위하여 초기 시료를 알콜에 용해한 후 침전물과 분리하여 각각 효율을 측정하는 방법을 사용하였다. Fig. 2에 이러한 분석을 위한 공정을 순차적으로 나타내었다.

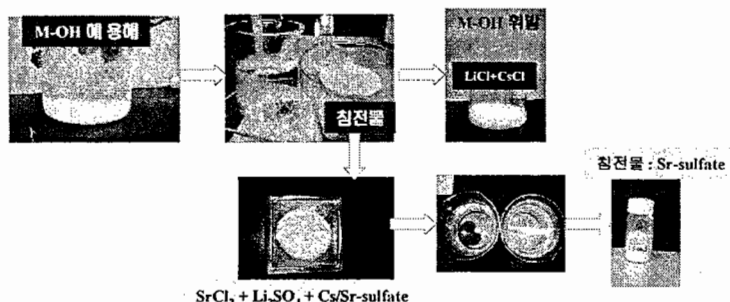


Fig. 2. Explain about Salt treatment for detection of conversion

실험결과 Li_2SO_4 와의 반응으로 Cs의 경우는 $\text{Cs}_2\text{S}_2\text{O}_6$ 의 형태로 Sr의 경우에는 SrSO_4 형태로 반응이 발생한다는 것을 알 수 있었으며 반응하지 않고 남아있는 과잉의 Li_2SO_4 로 염내 존재한다는 것을 알 수 있었다. Fig. 3에 Cs 및 Sr의 황화물에 대한 XRD 및 SEM 분석결과를 나타내었다. 최대 전환효율은 Cs의 경우는 78.9%, Sr의 경우는 97% 이상을 나타내었다.

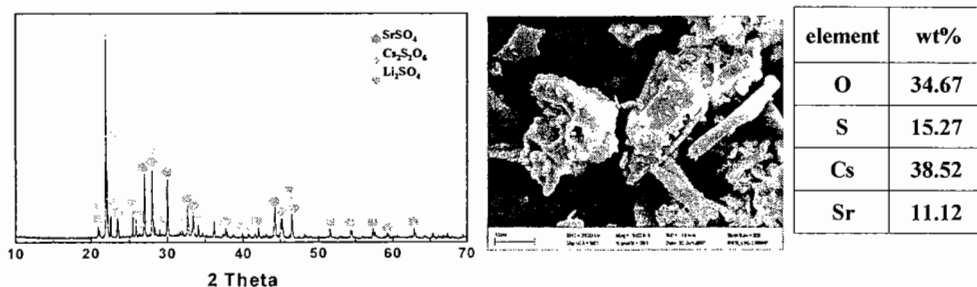


Fig 31. XRD pattern and SEM-EDS result of Cs/Sr sulfate by reaction with Li_2SO_4

3. 결론

LiCl 염내 존재하는 I/II족 핵종제거를 위해 여러 가지 침전제(carbonate, phosphate, sulfate) 첨가방법과 혼합가스 분산방법을 이용하여 실험을 수행한 결과 sulfate 첨가 방법이 가장 좋은 전환율을 나타내었다. 현재 이에 대한 연구가 계속적으로 이루어지고 있으며 앞으로 반응결과 생성된 Cs 및 Sr sulfate와 LiCl 염을 분리하기 위한 연구가 계속적으로 수행될 예정이다.

SiO₂-Al₂O₃-P₂O₅(SAP)을 이용한 폐용융염의 안정화/고형화

박환서, 김인태, 김환영, 안병길, 김준형
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150
hspark72@kaeri.re.kr

1. 서론

용후 핵연료내 우라늄 및 초우란 원소를 회수하는 pyroprocess공정에서 발생하는 폐용융염은 대부분이 금속염화물(LiCl 또는 LiCl-KCl)로 구성되어 있으며, 소량의 핵분열생성물이 염화물상태로 존재한다. 알칼리 금속염화물은 900℃이내에서 대부분이 휘발되며, 고화매질인 붕규산 유리매질과의 상용성(compatibility)이 낮아 고온공정에 직접적용하여 고화시키기 어려워 간접적인 화학적 경로를 이용하여 고화에 용이한 물질로 전환시키는 것이 바람직하다. 이러한 점에서, 미국의 ANL(Argonne National Laboratory)에서는 제올라이트를 이용하여 금속염화물을 sodalite(Na₈Al₆Si₆O₂₄Cl₂)로 전환하는 방법을 제안하였다¹. 수화학적 안정성이 우수한 반면에, 최종처분되어서는 부피가 10배이상 증가하는 단점을 가진다. 일본의 경우, 1000℃수준에서 붕산과 용융염을 고온반응시켜 붕산유리질로 변환시키는 방법을 고려하였다. 붕산을 이용한 방법도 전체적으로 유리질을 형성하는 장점을 가지나 Cs의 전환이 완전하지 않으며 Cs의 휘발에 대한 2차폐기물의 처리에 대한 고화법을 필요로 한다. 본 연구에서는 제올라이트를 대체할 수 있는 새로운 물질인 SiO₂-Al₂O₃-P₂O₅(SAP)을 이용하여 금속염화물을 열적으로 안정한 화합물로 전환함으로써, 고온고화공정에 적용할 수 있도록 하여 고화시키는 방법을 제안하고자 하였다.

2. 실험 및 결과

SAP으로 명명되는 물질은 TEOS(tetraethly orthosilicate, Aldrich, Germany), AlCl₃·6H₂O 및 H₃PO₄를 원료로 하여, Ethanol 및 H₂O에 상기의 원료를 Si/Al/P의 몰비를 변화시켜 sol-gel법을 이용하여 합성하였다. 용융염의 모의 폐기물은 LiCl, CsCl 및 SrCl₂ 시약을 각각 90wt%, 6.8wt%, 3.2wt%로 혼합하여 제조하였다. 제조된 SAP을 150μm이하로 분쇄하여 모의폐기물과 상온에서 혼합한 후, 650℃에서 16시간동안 반응시켜 XRD, TG/DTA 및 PCT 침출시험법(ASTM Standard C 1208-02)을 이용하여 반응특성, 열적, 수화학적 안정성을 조사하였다. 이때, SAP/salt의 비를 1~4로 변화시켜 적정반응비를 확인하고자 하였다.

기초실험을 통하여 LiCl, CsCl, SrCl₂ 및 CeCl₃의 반응특성을 조사하였다. 알칼리 원소의 경우, metal-aluminosilicate나 metal-phosphate로 얻어진 반면에, Sr 및 Ce는 phosphate화합물로 전환되는 것을 확인하였다. Fig 1은 SAP의 조성과 반응비에 따른 생성물의 XRD pattern을 나타낸 것으로 주 생성물은 Li-aluminosilicate와 Li₃PO₄였으며, 반응비가 커질수록 AlPO₄의 특성피크가 증가하는 것을 확인할 수 있었다. AlPO₄의 존재는 반응비의 적정성을 가늠할 수 있는 중요한 생성물이다. SAP은 용융염과 반응할 경우, 세개의 반응 active site(Si-O-Al 또는 P-O-Al또는 P-O-P)가 형성되는데, 금속염화물이 과잉으로 존재할 경우, AlPO₄의 특성피크가 없는 반면에, SAP이 과잉으로 존재할 경우에는 AlPO₄가 존재하는 것으로부터, 반응비의 적정성 여부를 판단할 수 있다. Fig 1에서 보는 것처럼, SAP/salt의 비가 2이상인 경우는 salt를 처리할 수 있는 반응site가 존재하고 있음으로 말해준다. 상기의 결과로부터, 최대 반응비는 1과 2사이일 것으로 판단된다. 방사성 폐기물의 안정적 처리관점에서는 AlPO₄가 일정부분 존재하고 있는 2가 최적 반응비가 될 수 있을 것이다.

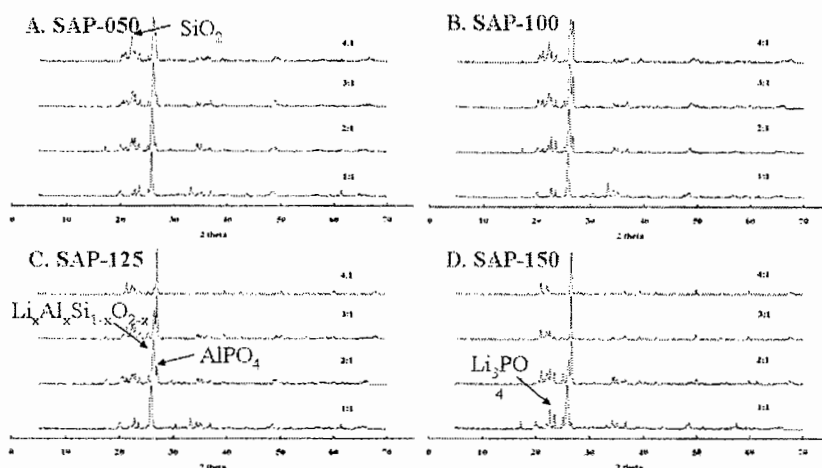


Fig 1. XRD patterns of reaction products with different reaction ratio and SAPs

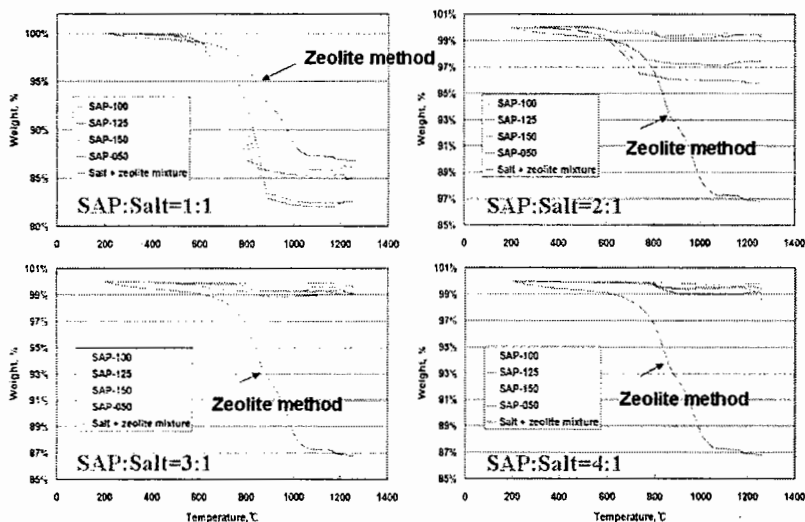


Fig 2. TGA result of reaction products with different reaction ratio and SAPs

이러한 적정반응비는 Fig 2에 나타난 것처럼, TGA의 결과에서도 확인할 수 있다. SAP 125 및 SAP150의 경우, 반응비가 2이상인 경우에는 1200℃까지 휘발감량은 1wt%이하로 나타났다, 이는 금속염화물의 전환율이 99%수준임을 말해주는 하나의 근거가 된다. CI의 잔존율을 확인한 결과 반응비가 2인 경우, 약 98~99%의 전환율을 보였다.

3. 결론

본 연구에서 제안된 SAP을 이용한 염화물계 폐용융염을 안정화 및 고형화시키는 방법은 기존의 방법에 비해 높은 처리효율을 나타내며, 열적으로 안정한 생성물을 얻을 수 있는 효과적인 고화방법으로서 현재 수화학적 안정성 평가가 진행중에 있다.

사 사

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

희토류 산화물의 고화 연구

안병길, 박환서, 김환영, 김인태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

bgan@kaeri.re.kr

1. 서론

건설 전해정련 공정에서 발생하는 폐 용융염에 존재하는 핵분열 물질들을 분리하여 안정된 고화체를 제조 및 처분함으로써 용융염의 재활용이 가능하고 폐기물 발생량을 크게 줄일 수 있다. 기존의 유리 고화체 제조 방법은 습식 공정에서 나오는 폐액을 대상으로 개발된 것으로, 전처리 공정을 거친 폐기물과 유리 frit을 유도가열로 혹은 직접 가열로(Joule-Heated Ceramic melter)에서 용융시킨 후 용융된 유리를 고화체 용기에 주입하여 유리 고화체를 제조한다. 이들 공정은 원적보수, 용융 유리와 접촉하는 내화벽들의 부식, 전극 재료 내식성, 구조의 복잡성 등 고려되어야 할 사항이 많다. 본 연구에서는 이러한 문제점들을 해결하기 위해서 저온($\sim 950^{\circ}\text{C}$) 소결에 의한 in-drum 고화체 제조를 위해서 희토류 산화물, 온도 및 조성에 따른 britholite계 세라믹 합성 특성, glass frit 에 따른 소결 특성 등을 분석하였다.

2. 실험 및 결과

프랑스에서 유리고화체 제조에 사용되는 R7T7 유리에 20 wt% Nd_2O_3 의를 첨가하여 950°C 에서 5시간 동안 소결 후 얻어진 고화체에 대한 SEM 분석 결과(Fig. 1 참조)를 보면 glass phase 와 britholite 계 세라믹인 $\text{Ca}_2\text{Nd}_3(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ 가 불균일하게 형성 되어 있음을 알 수 있다. 그리고 반응 생성물은 R7T7 glass의 Si 성분과 반응하여 형성된 것으로 glass matrix로 사용된 R7T7 유리 매질의 성능을 저하시킬 수 있다. 동일한 조건에서 sodium silicate에 의해 제조된 고화체의 SEM 분석 결과 R7T7 고화체와는 다르게 반응 생성물이 균일하게 형성되었다. 이러한 현상은 유리매질의 용융온도, 반응성 등에 의한 현상으로 판단된다. 이러한 결과로 부터 희토류 산화물을 안정한 세라믹 물질로 만드는 전처리 공정을 거친 후 유리 매질로 고화하는 glass powder 소결 방법을 도출하였다. 희토류 산화물의 세라믹 형성 특성을 보기 위하여 La_2O_3 55 wt%와 sodium silicate 45 wt% 혼합물에 대한 소결온도에 따른 반응 생성물의 특성을 XRD 로 분석하였다(Fig. 2).

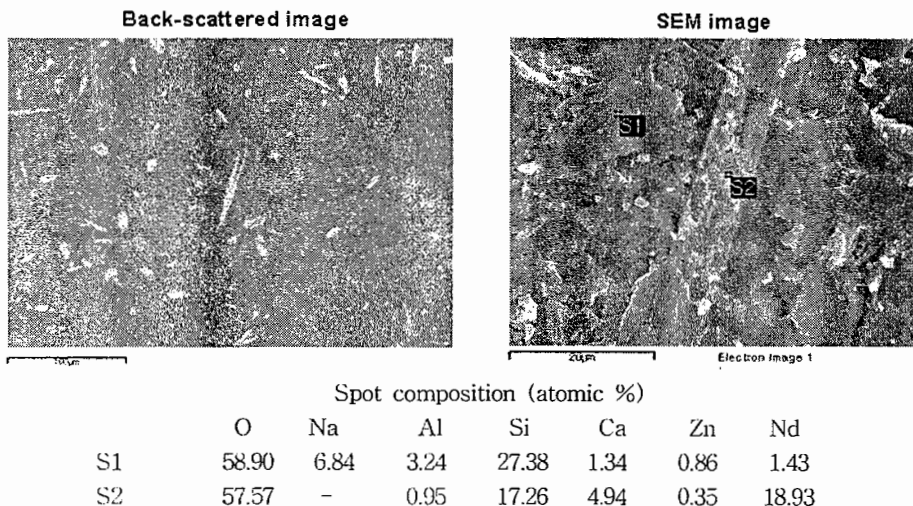


Fig. 1. SEM image of the fracture surface of a R7T7 glass- Nd_2O_3 (20wt%)-waste form.

XRD 분석 결과를 보면 600~700 °C 영역에서는 La_2O_3 형태로 존재하다가 800°C 이상의 소결온도에서는 안정한 britholite 계 세라믹인 $\text{NaLa}_3(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ 가 형성됨을 알 수 있다. 이러한 전처리 세라믹 소결체를 R7T7 glass로 900°C에서 2시간 소결한 고화체의 XRD 분석 결과를 La_2O_3 함량에 따라 그림 3에 나타내었다. 이 그림을 보면 La_2O_3 함량이 31 ~ 45.5 wt%로 증가하여도 La_2O_3 peak가 없는 britholite계 세라믹 고화체를 형성함을 알 수 있다.

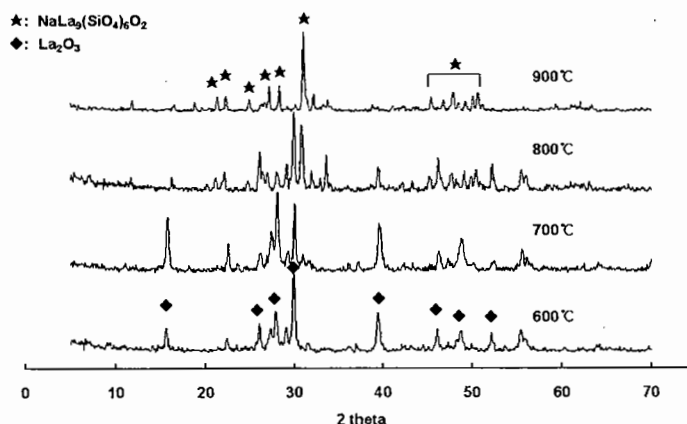


Fig. 2. XRD patterns of sodium silicate- La_2O_3 (550wt%)-waste form according to sintering temperature.

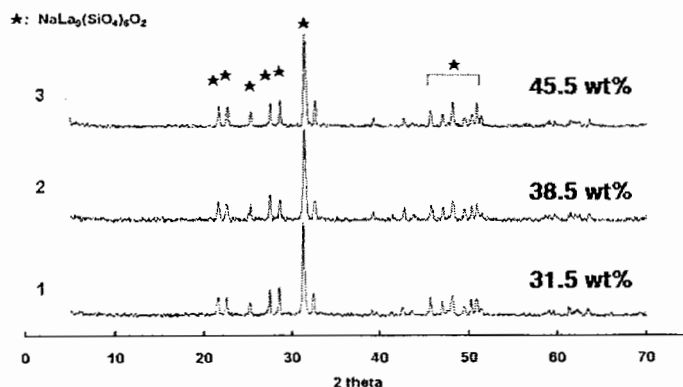


Fig. 3. XRD patterns of R7T7 glass-sintered product(sodium silicate- La_2O_3)-waste form according to La_2O_3 contents.

3. 결론

용융에 의한 고화체 제조에 따른 문제점을 해결하기 위하여 in-drum 고화체 제조에 적합한 저온 소결에 의한 glass powder sintering 방법을 도출하였다. 고화 대상 회토류 산화물을 ~ 800°C에서 sodium silicate와 반응시켜 세라믹을 분말을 제조하고, 이 분말을 유리 고화체 내에 균일하게 분산시켜 안정된 고화체를 제조할 수 있었다. La_2O_3 의 경우 45.5 wt%가 함유된 R7T7 고화체의 경우 La_2O_3 peak가 없는 britholite계 세라믹 고화체의 제조가 가능하였다.

LiCl 용융염계로부터 Cs 및 Sr 핵종제거 Part 1: 무기매질을 이용한 Cs의 핵종제거 기초특성평가

손미숙, 박환서, 강소림, 김인태
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150
shrick@lycos.co.kr

1. 서론

사용후 핵연료내 우라늄 및 초우란 원소의 회수공정으로 연구개발되고 있는 pyroprocess내 전해환원(electro-reduction)공정배출 염폐기물은 약 99wt%의 LiCl과 1wt%미만의 핵분열생성물인 Cs와 Sr이 금속염화물로 존재하고 있다. 따라서, Cs 및 Sr을 선택적으로 제거함으로써 최종처분 부피를 최소화하는 것이 바람직하다. LiCl염내에서 핵분열생성물을 제거하는 방법으로, selective reaction 또는 selective sorption과 같은 chemical agent를 이용하는 방법과 melt crystallization과 같은 물리적 조작에 의한 분리방법에 대한 연구들이 진행중이다. 기존에 zeolite-4A를 이용하는 방법은 LiCl용융염상에서 zeolite-4A가 구조적 변화가 발생하여 시간이 지남에 따라 제거특성을 잃어버리는 특성을 나타내므로, chemical agent를 이용한 방법은 새로운 분리매질 또는 무기매질의 개발을 필요로 한다. 본 연구는 이러한 단점을 극복하기 위해 새로운 무기매질을 합성하여 핵분열성 핵종을 제거하고자 하였다.

2. 실험 및 결과

핵종제거를 위해 무기매질은 TEOS(tetraethy orthosilicate, Aldrich, Germany), $AlCl_3 \cdot 6H_2O$ 및 H_3PO_4 를 원료로 하여, Ethanol 및 H_2O 에 상기의 원료를 Si/Al/P의 몰비 및 부가되는 산의 양을 변화시켜 sol-gel법을 이용하여 합성하였다. 얻어진 hydrogel은 110℃에서 2일간 건조후, 600℃에서 열처리하여 잔존유기물 및 수분을 제거하여 Cs의 제거실험을 위해 사용하였다. LiCl내 Cs의 농도는 약 0.36wt%로 하였으며, 650℃에서 모의 폐용융염을 녹여 약 2시간동안 제거실험을 수행하였다. 무기매질의 양은 200g salt에 대해 5g으로 하였다. 반응기 및 교반기는 알루미늄 재질로 하여 부식에 대한 영향을 최소화하고자 하였다. 시간에 따른 제거거동을 보기위해 알루미늄 봉을 이용하여 시료를 채취한 후, 탈이온수에 녹여 ICP-AES 및 AA를 이용하여 농도분석을 하였다.

Fig 1은 각 조건에 따라 반응 후, 얻어진 무기매질의 시료를 XRD 분석한 결과로서, 조건에 따라 얻어진 시료모두 Li-aluminosilicate화합물이 생성되는 것을 확인하였다. Fig 2는 제조조건에 따라 합성된 무기매질에 대한 시간에 따른 Cs의 제거특성을 나타낸 것이다. 동일한 조건에서 부가된 HCl의 양이 가장 낮은 무기매질이 약 35%의 제거율을 나타내었다. 산의 양이 적을 수록 보다 높은 제거효율을 나타내었으며, 제올라이트 4A에 비해 동일 조건에서 약 2배정도 높은 제거효율을 보여주었다(Fig 3).

3. 결론

LiCl염내 핵종을 제거하는 여러 가지의 기술로서, 본 연구에서는 Cs를 선택적으로 제거할 수 있는 방법으로 기존의 제올라이트 4A보다 높은 무기매질을 개발코자 하였다. 본 연구의 결과로 Si와 Al로 이루어진 무기매질을 이용하여 약 두배정도 높은 제거효율을 얻을 수 있었다.

사 사

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

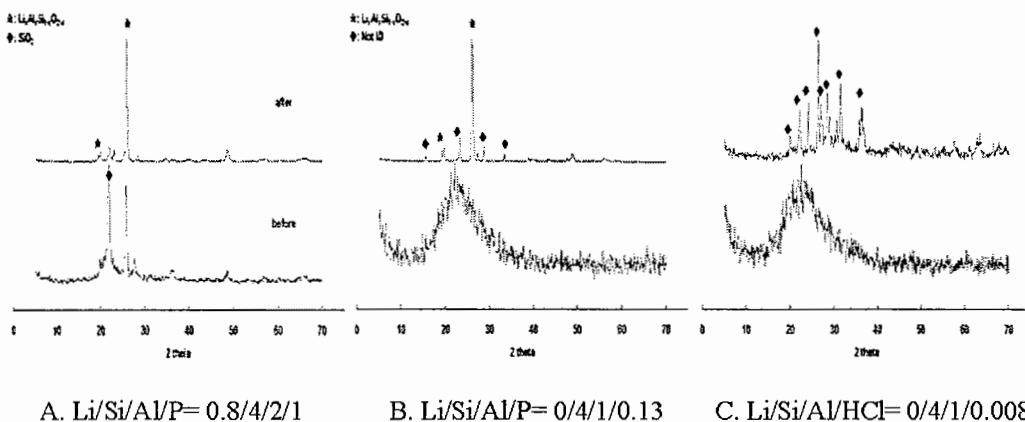


Fig 1. XRD patterns of each inorganic material before and after removal experiments

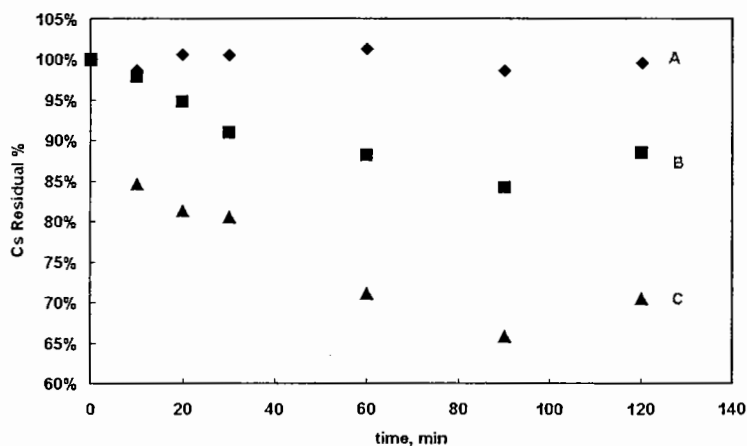


Fig 2. Removal removal of Cs by using inorganic material

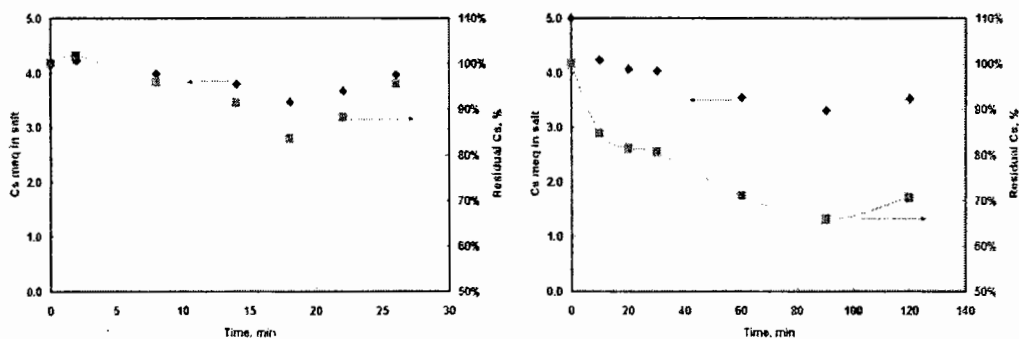


Fig 3. Comparison of removal efficiency between zeolite-4A and new inorganic material

LiCl-KCl 공용융염계에서 Cs 및 Sr 핵종제거 Part 1: 용융염의 화학적 특성 및 모델물질의 반응특성

강소림, 박환서, 손미숙, 김인태
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150
solim79@hanmail.net

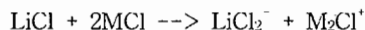
1. 서론

사용후 핵연료내 우라늄 및 초우란 원소의 회수공정으로 연구개발되고 있는 pyroprocess는 일련의 전기화학적 공정으로 이루어져 있으며, 각각의 공정에 따라, LiCl 또는 LiCl-KCl의 전해질을 사용한다. 전해환원공정에서 배출되는 LiCl 염내에는 Cs 및 Sr이 주요 핵종으로 존재하며, 전해정련공정에서 배출되는 LiCl-KCl염내에는 희토류 핵종들이 주로 존재한다. 반면에, 금속핵연료인 EBR-II 핵연료는 전해환원공정이 없이 전해정련공정을 이용하므로, LiCl-KCl염내에는 Cs, Sr 및 희토류 핵종들이 공존하여 존재하게 된다. 최종처분부피를 최소화하기 위해, 미국의 INL에서는 제올라이트-4A로 핵종을 occlusion 또는 ion-exchange로 제거하는 방법을 제안하였다. LiCl-KCl내 존재하는 핵종의 양은 I/II측은 2wt%이고, 희토류핵종은 약 5wt%를 차지하고 있으므로, selective sorption을 통한 핵종제거는 주어진 mechanism이 가지는 제거용량의 한계가 존재한다. 제거대상의 핵종농도를 고려하여 KAERI에서는 selective reaction을 이용하여 공용융염내 핵종을 제거하는 방법과 물리적 조작(melt crystallization)과 같은 제거방법을 개발중에 있다. 희토류의 경우, 산화침전에 의한 방법을, Cs 및 Sr에 대해 melt crystallization등이 연구되고 있으며, 본 연구에서는 selective reaction을 할 수 있는 후보물질을 선정하여 그 반응특성을 보고자 하였다.

2. 실험 및 결과

공용융염계에 사용되는 제올라이트-4A의 반응특성을 평가하여 용융염내 화학적 상태를 묘사할 수 있는 모델을 이용하여 선택적 반응에 용이한 후보물질을 찾고자 하였다. INL에서 제시된 zeolite-4A에 대하여 여러 가지 용융염계에서 반응특성을 조사하기 위해, LiCl-KCl, NaCl-KCl 및 NaCl-KCl계를 물비를 3:7, 5:5, 7:3으로 하여 각각 650℃, 700℃ 및 750℃로 녹인후, zeolite 4A를 염의 무게에 10%로 넣은 후 30분간 반응시켜 XRD분석을 통하여 상변화를 확인하였다. 상기의 반응특성 평가를 통하여 반응모델물질로 analcime을 직접 합성하여 반응실험을 수행하였다. aluminum sulfate, sodium silicate와 tetraethanol amine을 원료물질로 하여 200℃에서 24시간동안 수열합성하여 반응특성을 평가하였다.

공용융염계에서 금속염화물의 물비를 변화시켜 zeolite-4A와 반응시켜 얻어진 생성물의 XRD pattern을 Fig. 1에 나타내었다. 그림에서 보는 것처럼, LiCl-NaCl계의 경우에는 zeolite-4A구조가 파괴되고 LiAlSiO₄화합물이 얻어지고, NaCl-KCl계의 경우에는 구조의 변화가 없는 것을 확인할 수 있다. 또한, LiCl-KCl계의 경우에는, KCl의 물비가 증가할수록, 구조의 변화가 낮아지는 것을 볼 수 있다. 이러한 반응특성을 설명할 수 있는 공용융염계의 화학적 모델로 다음과 같이 표현할 수 있다.



상기의 모델은 금속원소가 가지는 전자궤도에 의한 shielding effect로 나타나는 핵의 +charge의 크기차이로 인해, 상대적으로 금속염화물이 + 또는 -의 complex ion이 용융염내에 형성되는 것을 나타내는 것으로, 상기의 모델에 기초하면, LiCl-KCl염내에 존재하는 핵종은 분자상태의 LiCl 또는 complex ion 상태의 LiCl₂⁻가 경쟁이온이 되기 보다는 동일한 + charge 를 가질

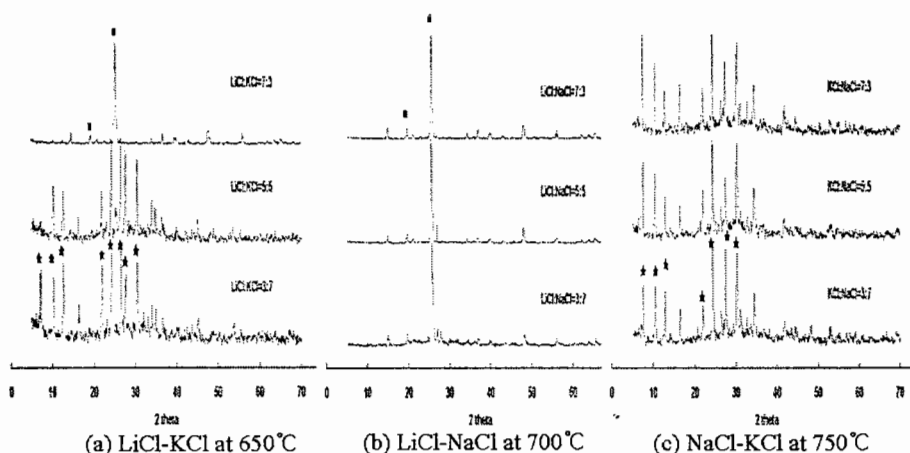


Fig 1. XRD patterns of zeolite-4A after contacting with different molten salt.

수 있는 K가 중요 경쟁이온이 될 수 있다. 분자상태의 LiCl은 zeolite-4A가 가지는 large pore에 의해 occlusion되며 pore내부의 LiCl은 제올라이트 구조내의 Na와 이온교환하여 구조의 안정성을 낮추어줌으로서, LiAlSiO₄의 화합물로 변화는 것으로 볼 수 있다. 따라서, occlusion이 상대적으로 낮은 물질계를 이용할 경우에는 이러한 효과를 명확히 볼 수 있을 것으로 판단된다. Fig 2는 large pore가 없는 analcime의 물질계를 이용하여 얻어진 반응특성을 나타낸 것이다.

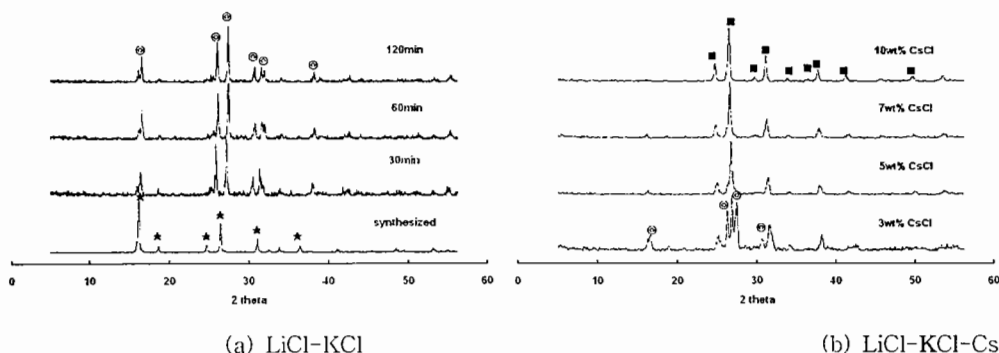


Fig 2. XRD patterns of reaction product in different molten salt system

그림에서 보는 것처럼, zeolite-4A와 달리, Cs가 없는 경우에 NaAlSi₂O₆는 KAlSi₂O₆ 화합물로 전환되며, CsCl이 존재할 경우에는 CsAlSi₂O₆로 전환되는 것을 확인할 수 있다. 본 논문에서 나타내지는 않았으나, Sr의 경우에는 Fig 2(a)와 같은 특성피크를 나타내었으며, Sr과 관련된 화합물은 확인되지 않았다.

3. 결론

상기의 결과에서처럼, 과잉의 경쟁이온이 존재하는 상황하에서도 Cs는 수화학적으로 안정한 pollucite로 전환되며, 이는 LiCl-KCl 공융용염내 Cs의 선택적 반응을 통한 제거가 가능함을 말해주는 근거가 되며, 현재 이와 관련된 연구가 진행중에 있다.

사 사

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

브라운가스를 이용한 염폐기물의 탈염소화

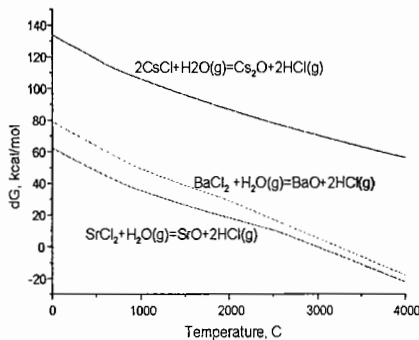
김준형, 김인태, 김환영, 박환서, 현장수*
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150
 *이앤이(주),
kimih1@kaeri.re.kr

1 서론

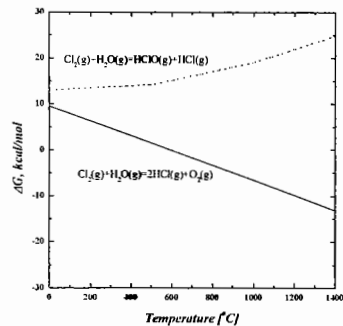
용융염 폐기물은 사용후 핵연료에서 우라늄 등을 건식으로 분리하는 과정에서 발생하며 금속 염화물이 주성분이기 때문에 처분 후에 이들이 녹아나오는 것을 방지하는 기술 개발이 필요하다. 미국 알콘 연구소에서는 탈염소 처리 없이 Glass-bonded sodalite ($\text{Na}_6\text{M}_2\text{Al}_6\text{Si}_6\text{O}_{24}\text{Cl}_2$)로 유리화하는 조건을 찾았다(1). 탈염소 방법으로서 봉산을 이용하여 산화시키는 방법이 있으나(2) 인산염을 이용한 침전법이 실용화 가능성이 큰 것으로 조사되고 있다(3). 본 연구는 용융염 폐기물을 유리화시 염폐기물내 함유되어 있는 세슘의 탈염소화와 유리화시에 발생하는 염소가스를 염화수소로 변환시켜 배기체의 처리를 용이하게 하며 유리화 고화체의 침출특성을 향상시키는 방법에 관한 것이다.

2. 실험 및 결과

브라운 가스발생기는 일반적인 물의 전기분해 장치에서 극간의 간격을 좁혀서 발생하는 기체를 혼합물의 형태로 발생시킨다. 이 혼합물은 음극에서 생성된 수소와 양극에서 생성된 비극성의 가스로 비교적 안정한 $\sigma(\text{OH})_2$ 가 주성분이라고 보았다. 브라운 가스의 연소 시에는 이 $\sigma(\text{OH})_2$ 가 분해되어 2개의 수산 라디칼이 생성 이는 수소분자와 반응하여 반응성이 매우 큰 수소 라디칼이 생성되어 알칼리 금속 염화물인 CsCl과 반응하여 염화수소 가스를 발생시키며 500°C 이하에서는 반응이 일어나지 않는 염소 가스와의 반응하여 염화수소를 생성시킨다(4).

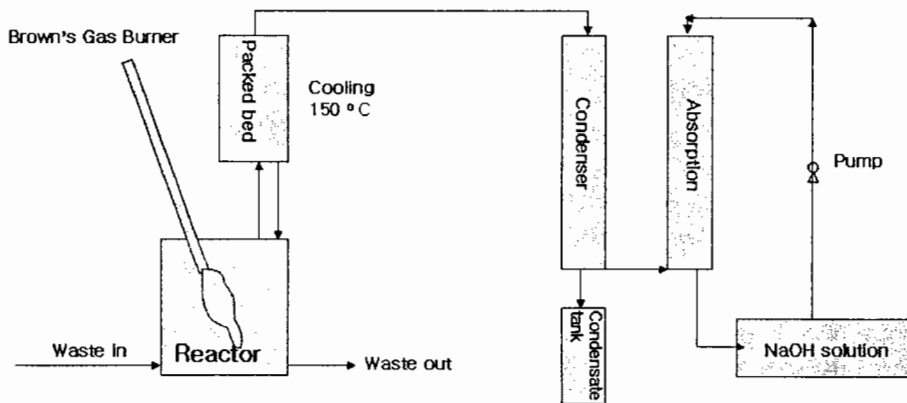


Gibb's Free Energy Change of the Reaction with H_2O



Gibb's Free Energy Change of the Chlorine and Steam Reaction

아래 그림은 간략한 장치도이다.



General Concept of a Chlorine Removal from Waste

브라운 가스로 반응기 내부온도가 630℃에 도달하였을 때에 염화세슘(CsCl)을 알루미늄 재질의 용기(직경 50mm, 높이 50mm)에 투입하고, 브라운 가스 버너로부터 발생하는 브라운 가스의 불꽃이 상기 용기 내부 상단에 흐르도록 하고, 발생한 가스를 냉각시켜 수분을 제거한 후 염화수소(HCl) 가스의 농도를 측정하였다. 측정결과 염화수소 가스는 160ppm으로 응축수의 pH는 1.6이다. 염화세슘은 고온의 수증기와 4000℃까지는 반응하지 아니하고 염화수소가 발생되지 않는다.

Si/Al/P의 몰비가 1/1/1이며 600℃에서 열처리하여 용매와 수분을 제거한 유리전구체와 LiCl을 섞은 모의 폐기물은 가열시 염소가스가 발생한다. 이 폐기물을 반응기내 알루미늄 재질의 용기(직경 50mm, 높이 50mm)속에 넣고 브라운 가스의 불꽃이 상기 용기 내부 상단에 흐르도록 배치하고 브라운 가스와 반응시킨 바 내부 공간온도가 140℃에 도달하였을 때에 염화수소의 발생이 30ppm 측정되었으며 공간온도가 221℃에서 최대 염화수소 농도 190ppm이 측정되었다. 공간온도 720℃에서 실험이 종료되었고 이 동안 염소는 측정되지 아니하였다. 응축수의 pH는 1.9였다.

3. 결론

염폐기물을 SAP를 경유한 유리화시 열원으로 브라운 가스를 사용하면 브라운 가스가 발생되는 염소와 반응하여 염화수소로 변환되므로 발생 가스의 처리가 용이해진다..

통상적으로 고온의 수증기와 반응이 불가능하며 방사성 동위원소인 CsCl이 분해되어 염소가 제거됨으로 이를 함유한 염폐기물의 유리화시 내침출특성의 향상을 기대할 수 있다.

참고문헌

1. D. Lexa, L. Leibowitz, J. Kropf, On the reactive occlusion of the (uranium trichloride + lithium chloride + potassium chloride) eutectic salt in zeolite 4A. J. Nucl. Mater. Vol. 279, pp. 57-64, 2000.
2. Y. Ikeda, Y. Takesima, Conversion reaction of metal chlorides into oxides with boric acid. J. Nucl. Sci. Tech., Vol. 32. pp. 1138-1145, 1995
3. V.A. Volkovich, T.T. Griffiths, R.C. Thied, Treatment of molten salt wastes by phosphate precipitation: removal of fission product elements after pyrochemical reprocessing of spent nuclear fuels in chloride melts. J. Nucl. Mater., Vol. 323, pp. 46-56, 2003
4. Kim, J.-H., et al, Vitrification of a waste molten salt by using a reactive heat source, 26th IT3 Conference, Phoenix, AZ, May 14-18, 2007

중·저준위 방사성 폐기물 유리화설비의 배기체 처리계통 특성

지평국, 양경화, 신상운

한국수력원자력(주), 대전광역시 유성구 장동 25-1번지

malon@khnp.co.kr

1. 서 론

울진 제3발전소에 건설중인 중·저준위 방사성폐기물 유리화설비(그림 1)의 배기체 처리계통은 저온용융로로부터 발생하는 배기체 내의 방사성 분진 및 환경유해물질 등을 처리하여 대기로 배출하는 계통이다. 배기체 처리계통은 저온용융로로부터 배출되는 입자상 방사성물질을 포함한 분진을 제거하는 1차 배기체 처리계통과 방사성옥소 및 환경유해물질을 제거하는 2차 배기체 처리계통으로 구성되어 있다. 본 논문에서는 1, 2차 배기체 처리계통을 구성하고 있는 각 기기들의 공정 및 제염 특성을 논하였다.

폐기물투입기

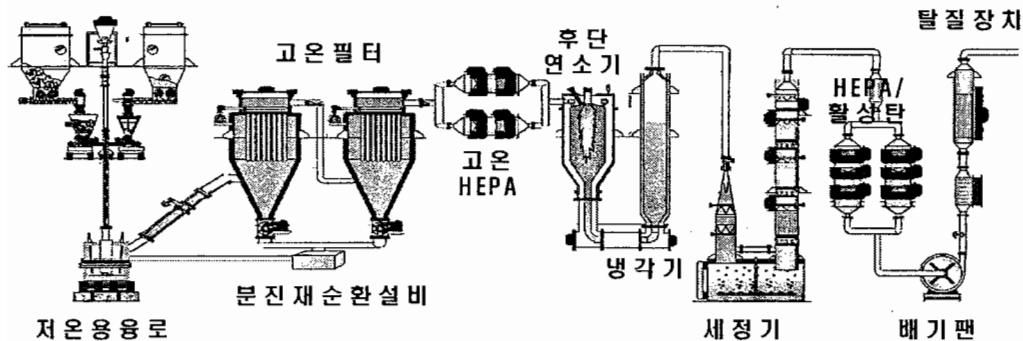


그림 1. 유리화설비 주요 공정도

2. 1차 배기체 처리계통

1차 배기체 처리계통은 그림 1의 유리화설비 공정도에서 배관냉각기, 고온필터 및 고온헤파필터까지를 나타낸다. 배관냉각기는 수냉식으로 저온용융로와 고온필터 사이에 설치되어 방사성핵종이 효과적으로 제거될 수 있도록 배기체를 냉각해주는 역할을 한다. 배관냉각기 후단에는 압력계와 온도계가 설치되어 배관냉각기 내부의 분진침적을 평가하며, 침적된 분진을 제거하기 위한 제진설비가 설치되어 있다. 고온필터는 세라믹 캔들형으로 배관냉각기 후단에 위치하며, 배기체에 포함된 분진 및 방사성물질을 1차로 포집하는 기능을 수행한다. 고온필터는 분진의 포집효율을 증가시키고 운전 중 발생할 수 있는 캔들의 손상에 대비하여 2대를 직렬로 설치하였다. 고온필터에 포집된 분진은 질소가스로 탈진되어 분진 재순환계통으로 배출된다. 고온필터를 통해 여과된 배기체의 미세분진 및 방사성물질은 고온헤파필터에서 제거된다. 고온헤파필터는 연속운전을 고려하여 2대를 병렬로 설치하였다. 1차 배기체 처리계통의 여과계통은 입자상 방사성물질의 배출을 최대한 억제함으로써 2차 배기체 처리계통의 방사성물질 오염 및 환경방출을 최대한 억제하고 있으며, 또한 각 여과 단계별로 차압을 감시하여 필터 파손을 조기에 감지함으로써 안전성에 대한 신뢰도를 확보하고 있다.

3. 2차 배기체 처리계통

2차 배기체 처리계통은 후단연소기, 배기체냉각기, 세정기 및 선택적촉매환원반응기 등으로 구

성되어 미연소 유기물, SO_x, NO_x 및 방사성옥소 등을 제거하여 대기로 방출하는 기능을 수행한다. 1차 배기체 처리계통에서 배출된 배기체는 후단연소기로 유입되어 미연소 유기물이 완전 연소된다. 후단연소기는 원통형으로 등유를 연료로 사용하며, 냉각자켓에 의해 냉각된다. 후단연소기에서 배출된 고온(1100℃)의 배기체는 배기체냉각기에서 400~500℃로 냉각되어 세정기로 유입된다. 세정기는 분사형 세정기와 충전형 세정기로 구분되어 있다. 분사형 세정기는 다이옥신의 재생성을 방지하고, 충전형 세정기 내에서의 산성가스 제거효율을 높이기 위하여 배기체의 온도를 급속히 떨어뜨리는 기능을 수행한다. 충전형 세정기는 HCl 및 SO_x 등을 제거하는 장치로서 배기체와 가성소다의 원활한 화학반응을 위하여 2단의 충전단으로 구성되어 있다. 고효율습분제거기는 후단의 활성탄필터를 보호하기 위하여 세정기로부터 배출되는 배기체에 포함된 미세액적을 제거하는 역할을 한다. 고효율습분제거기에서 배출된 배기체는 재열기에서 가열되어 활성탄/해파필터로 유입되며, 배기체에 포함된 분진, 다이옥신, 입자상 방사성물질 및 방사성옥소 등이 최종적으로 제거된다. 활성탄/해파필터 후단에 위치한 배기팬은 저온용융로에서 발생된 배기체를 대기로 배출하고 저온용융로 및 배기체 처리계통의 부압을 유지해준다. 배기팬으로부터 배출된 배기체는 2차 재열기에서 탈질온도인 270~400℃로 가열되어 선택적촉매환원반응기로 유입되며 그곳에서 질소산화물이 제거된다. 배기체 처리계통을 통해 처리된 배기체는 대기로 배출되기 전에 유리화구역 배기계통과 병합되어 방사성폐기물건물의 배기구를 통하여 배출된다. 배기체는 대기로 방출되기 전에 환경유해물질 및 방사능 감시설비에 의해 연속 감시되며, 설정치 이상의 농도 감지시 경보와 함께 저온용융로의 폐기물공급이 중단되도록 설계되어 있다.

4. 기기별 제염 특성

표 1에는 유리화 공정의 제염특성을 나타내었다. 표 1에 나타난 것처럼 고온필터는 1μm 분진 입자에 대한 집진효율 99.9%를 고려하여 제염계수 1000을 적용하였다. 고온해파필터는 0.3μm 분진입자의 제거효율이 99.97%이나, 고온필터 후단에 위치하는 것을 고려하여 제염계수는 100을 적용하였다. 계통 후단에 위치한 저온해파필터는 안전상의 보완 기능만을 고려하여 보수적으로 제염효율을 고려하지 않았다. 휘발성인 Ru 핵종에 대해서는 저온에서의 기화 특성을 고려하여 모든 기기에 대해 제염효율을 고려하지 않았으며, 방사성옥소의 경우 세정기 및 세정기 후단의 활성탄필터에 대해 Nuclear Air Cleaning Handbook에 따라 각각 10의 제염계수를 적용하였다. 따라서 Ru 및 방사성옥소를 제외한 배기체 처리계통만의 제염효율은 10⁶이었으며, 실험적으로 결정된 저온용융로에서의 제염효율을 추가로 고려할 경우 유리화 공정의 총 제염계수는 핵종별로 휘발성핵종인 Tc의 1×10⁶부터 W1폐기물 비휘발성 핵종의 3.3×10⁷까지로 나타났다. 유리화 공정의 제염계수는 방사성 성능시험시 동위원소를 사용하여 검증할 계획이다.

표 1. 저온용융로 및 배기체 처리계통의 제염계수

기기구분	휘발성 핵종					비휘발성 핵종		방사성요 오드
	가연성잡고체		W1 폐기물			가연성 잡고체	W1 폐기물	
	Cs	Tc	Te, Cs	Tc	Ru			
저온용융로	2.86	1	1.54	1	1	6.67	32.99	1
고온필터	1000				1	1000		1
고온해파필터	100				1	100		1
세정기	10				1	10		10
활성탄/해파필터	1				1	1		10
총제염계수	2.9E+06	1.0E+06	1.5E+06	1.0E+06	1	6.7E+06	3.3E+07	100

유리화 실증시험을 통한 Pt · Ir 열전대보호관 내구성 평가

신상운, 양경화, 박병철

한수원(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1 번지

swshin@khnp.co.kr

울진 유리화설비에서 생산될 유리고화체 품질은 중·저준위 방사성폐기물을 연소시켜 수용하는 유리용탕의 점도에 영향을 받기 때문에 유리용탕의 온도 측정 및 제어는 설비 운전에서 핵심적인 요소이며, 그로 인해 부식성이 강한 고온(1,100℃ 이상)의 유리용탕에서 장시간 견딜 수 있는 재질의 열전대보호관을 설계·제작하는 문제는 유리화설비 이용율과도 직결된다고 할 수 있다.

이에 따라 원자력발전기술원에서는 고온의 산화 분위기에서도 내식성이 매우 뛰어난 것으로 알려진 백금과 이리듐 시편을 저온용융로(CCM : Cold Crucible Melter) 바닥에 설치하여 유리용탕에 노출시키는 실증시험을 통하여 백금과 이리듐 열전대보호관의 내구성을 평가하였다.

시험 방법 및 시험 결과

유리화 실증시험을 통해 백금과 이리듐 열전대보호관의 내구성을 평가하기 위해 130mm×15mm×1.6mm의 백금과 이리듐 시편 각 1개와 이를 CCM 바닥에 고정할 수 있는 지지대 2개를 제작하였다. 제작된 백금과 이리듐 시편은 CCM 중심으로부터 150mm 이격된 위치에 시편의 상부 110mm가 고온의 부식성이 강한 유리용탕에 직접 노출될 수 있도록 설치하였다.

백금과 이리듐 시편 부근에 설치된 버블러(Bubbler)의 산소 분사방향을 각 시편들과 직각이 되도록 조정하고, 외경이 380mm인 티타늄(Ti) 고리를 사용함으로써 초기 유리용탕 형성 단계에서 각 시편들이 티타늄 고리에서 발생하는 아크(Arc)열에 의해 직접 산화되는 것을 최대한 방지될 수 있도록 하였다. 또한, 유리용탕의 온도를 실시간으로 측정할 수 있도록 인코넬 601 열전대보호관의 끝단이 CCM 바닥으로부터 각각 80mm(TC-1, TC-3), 45mm(TC-2)가 되도록 설치하였다(그림 1. 참조).

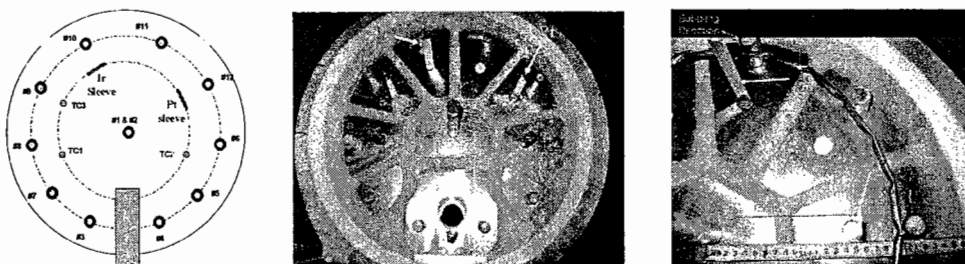


그림 1. 백금 · 이리듐 시편 설치 위치 및 사진

본 실증시험은 초기 유리용탕 형성, W1 폐기물 및 분진슬러리 혼합 투입, 용융유리 배출 및 재용융을 통한 유리용탕 형성 등 유리화설비의 모든 운전모드에서 유리용탕에 노출되는 열전대보호관과 동일한 조건하에서 백금과 이리듐 시편의 내구성이 평가될 수 있도록 1단계와 2단계로 나누어 실시하였다.

폐기물(W1 폐기물: 18kg/h + 분진슬러리 : 6ℓ/h) 투입 및 유리 배출은 각 시험 단계별로 7 싸이클(Cycle) 씩 총 14싸이클(Cycle)을 수행하였으며, 그 과정에서 고주파발생기의 출력을 조정하여 폐기물 투입 및 유리 배출 조건에 적합하도록 유리용탕의 온도를 조절하였다. 매 싸이클마다 6시

간 동안의 폐기물 연속 투입, 1시간 동안의 잔여물 연소(EOC : End of Combustion) 및 유리용탕 혼합 과정을 거쳐 12kg의 용융유리를 배출하였는데, 폐기물 연속 투입 중에는 60%(40.3Nm³/h)의 과잉 산소를 12개의 버블러와 6개의 산소공급관(Injector)을 통해 CCM 내부로 공급함으로써 폐기물의 완전 연소 및 잔류 금속의 산화를 촉진하였다. 1단계와 2단계 실증시험 동안에 실시간 측정된 유리용탕의 온도 변화는 그림 2.와 같다.

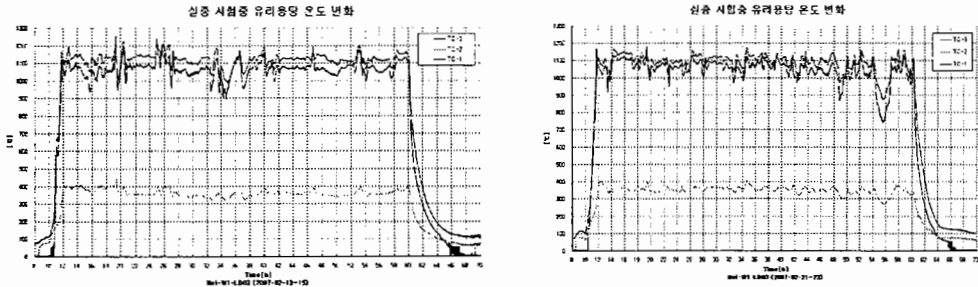


그림 2. 실증 시험중 유리용탕 온도 변화

CCM을 분해한 다음 설치된 시편들을 육안 관찰한 결과, 백금 시편은 유리용탕에 노출된 110mm 가운데 20mm 정도를 남기고 모두 소실되었다. 이리듐 시편은 거의 소실되지 않고 원상태를 유지한 것처럼 관찰되었으나(그림 3. 참조), 이리듐 시편과 접촉 상태로 냉각된 유리고화체를 채취하여 분석한 결과, 제한적으로 이리듐 시편이 AG8W1 용융유리와 산화반응을 일으킨 것으로 나타났다.

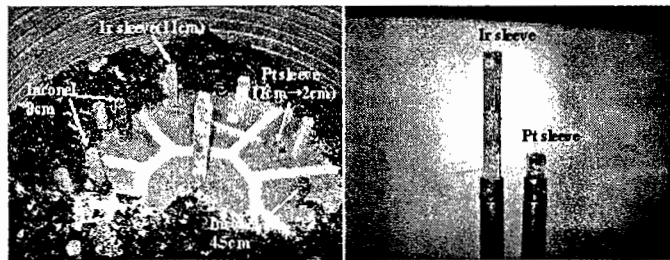


그림 3. 실증시험 종료 후 백금 및 이리듐 시편 사진

결론 및 향후 계획

비록 백금 열전대보호관은 고준위 방사성폐기물 유리화 용융로내에서는 그 내구성이 뛰어난 것으로 알려져 있으나, 본 실증시험을 통하여 W1 폐기물 유리화 용융로의 열전대보호관으로는 부적합한 것으로 판명되었다. 또한 이리듐 열전대보호관은 본 실증시험을 통하여 그 내구성이 어느 정도 입증되었다고는 할 수 있으나, 그 가격이 매우 고가(高價)인 점을 고려할 때 그 수명을 정확하게 예측해야 할 필요성이 있다. 따라서 올진 유리화설비 시운전 과정에서 이리듐 열전대보호관과 인코넬 690 열전대보호관에 대한 추가적인 내구성 평가를 수행한 다음, 올진 유리화설비 CCM의 상업운전에 적용할 열전대보호관 재질을 최종 선정할 예정이다.

방사성 유리고화체의 pH 및 온도에 대한 침출특성

김인태, 박한서, 조용준, 김천우*, 황태원*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

*한국수력원자력(주), 대전광역시 유성구 장동 25-1

nitkim@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력 발전시설로부터 배출되는 여러 가지 방사성 폐기물들은 자연환경에 위해성을 차단하기 위해 고립처분되어야 한다. 이러한 점에서, 방사성 핵종을 물리화학적으로 안정한 매질내에 고정화시키는 유리고화기술은 부피감용 및 높은 내구성을 가진다는 측면에서 널리 응용 연구되고 있다. 여러 가지 방사성 폐기물에 대해 유리고화공정등을 통하여 얻어지는 고화체는 최종처분장에서 일어날 수 있는 예측 또는 비예측 환경에 따른 물리화학적 특성평가가 이루어져야 한다. 본 연구는 원자력 발전소에서 발생하는 저방사성 폐수지, 무기이온교환수지 가연성 잡고체등에 대한 유리고화기술을 적용하기 위해 원자력발전연구원에서 개발된 Base glass인 AG8과 DG2B와 이 유리를 이용하여 대상 폐기물을 유리화시켜 얻은 유리고화체인 AG8W1과 DG2유리에 대한 특성평가 방법의 하나로써, MCC-1P침출시험법을 수행하여 침출온도 및 침출용액의 pH변화에 따른 고화체의 내구성을 평가하고자 하였다.

2. 실험 및 결과

침출시험에 사용되는 유리고화체는 화학시약을 사용하여 개발된 각 종류의 설정된 조성에 맞게 제조하였다. 진기로를 이용하여 고온용융시킨 후 mold에 부은 후 냉각하여 얻어진 유리성형체를 크기 약 1x1x1mm의 크기로 자른후, polishing과정을 통하여 침출표면을 처리하였다. 얻어진 유리고화체 침출시험은 PFA(perfluoroalkoxy) Teflon 용기에 넣고 설정된 pH 5~11의 범위의 완충용액을 이용하여 MCC-1침출시험법에 따라 침출시험을 수행하였다. 침출시험온도는 40℃, 70℃, 및 90℃에서 수행하였으며, 온도에 따라 침출시간은 1일에서 91일로 하였다. 시험종료후 얻어진 침출용액은 ICP-MS 및 ICP-AES를 이용하여 각 성분의 농도를 분석하였다.

얻어진 침출결과는 침출속도에 대한 pH 및 온도의존성을 나타내는 다음식을 이용하여 각 유리고화체의 특성을 평가하고자 하였다.

$$\text{Rate } f = k_0 \cdot 10^{(n \cdot \text{pH})} \cdot \exp(-E_a/RT) \text{-----}(1)$$

n은 pH 의존성에 대한 값을 나타내며, E_a 는 activation에너지로 온도의존성을 의미하는 값이다. 이식에 적용하기 위해서는 시간에 따른 normalized mass loss로부터, 선형회귀분석을 통하여 침출속도를 구하여야 한다. Table 1과 2는 Si 및 Cs에 대하여 90℃ 및 70℃에 대한 결과를 나타낸 것으로 침출속도는 약 0.01~4g/m²d로 나타났다. 특히 Cs는 pH 및 온도에 따른 침출거동이 Si와 유사한 특성을 나타내었다. 각각의 유리고화체는 pH에 따라 최소값을 가지는 구간이 존재하며, DG2B 및 DG2는 pH가 약 7~10범위에서 최소값을 가지는 반면에, AG8 및 AG8W1은 pH5~7의 범위에서 최소값을 가지는 것으로 나타났다. 현재 40℃에 대한 침출시험이 진행중에 있으며, 얻어지는 침출결과로부터, 식(1)의 값을 결정하여 pH 및 온도에 따른 고화체의 내구성에 대한 diagram을 완성할 수 있을 것이다.

Table 1. Forward rates of Si for each pH and temperature obtained by linear regression

DG2B-90℃		DG2-90℃		AG8-90℃		AG8W1-90℃	
pH	rate(g/m ² d)	pH	rate(g/m ² d)	pH	rate(g/m ² d)	pH	rate(g/m ² d)
5.3	0.2828	6.1	0.9046	5.5	0.0960	5.7	0.1748
7.2	0.0811	7.6	0.4771	6.6	0.0470	7.5	0.3072
8.4	0.4052	8.5	0.4569	8.4	0.6907	8.5	0.4148
9.7	0.7686	9.7	0.3258	9.7	1.0070	9.6	2.0174
10.9	1.7783	11.1	1.0926	11.1	2.6666	10.9	3.5720
DG2B-70℃		DG2-70℃		AG8-70℃		AG8W1-70℃	
pH	rate(g/m ² d)	pH	rate(g/m ² d)	pH	rate(g/m ² d)	pH	rate(g/m ² d)
4.6	0.1195	5.9	0.5376	4.9	0.0363	4.8	0.1748
6.4	0.0613	7.8	0.4208	6.2	0.0126	5.9	0.0320
8.4	0.0267	8.6	0.3350	8.3	0.0648	8.3	0.1443
10.3	0.5017	9.2	0.2732	10.0	0.7157	9.0	0.3852
11.0	1.4782	11.2	0.6997	10.7	1.3189	10.9	0.8121

Table 2. Forward rates of Cs for each pH and temperature obtained by linear regression

DG2B-90℃		DG2-90℃		AG8-90℃		AG8W1-90℃	
pH	rate(g/m ² d)	pH	rate(g/m ² d)	pH	rate(g/m ² d)	pH	rate(g/m ² d)
5.3	0.6066	6.1	2.4657	5.5	3.7175	5.7	1.6633
7.2	0.4732	7.6	1.6648	6.6	0.2918	7.5	0.2530
8.4	0.7180	8.5	0.6128	8.4	0.3895	8.5	0.7421
9.7	0.7816	9.7	0.4034	9.7	0.9014	9.6	1.2436
10.9	1.3843	11.1	2.0381	11.1	3.0652	10.9	1.5435
DG2B-70℃		DG2-70℃		AG8-70℃		AG8W1-70℃	
pH	rate(g/m ² d)	pH	rate(g/m ² d)	pH	rate(g/m ² d)	pH	rate(g/m ² d)
4.6	1.8060	5.9	1.6868	4.9	1.5844	4.8	0.7167
6.4	0.4914	7.8	1.1390	6.2	0.6596	5.9	0.4639
8.4	0.0734	8.6	0.9171	8.3	0.0707	8.3	0.1819
10.3	0.4204	9.2	0.6097	10.0	0.9254	9.0	0.6393
11.0	1.0761	11.2	1.4651	10.7	1.6735	10.9	1.5635

3. 결론

원자력 발전소에서 발생하는 여러 가지 중저준위 방사성 폐기물의 유리고화처리를 위해 개발된 각 유리에 대한 내구성 평가를 위해 수행된 본 연구는 pH 및 온도에 대한 고화체의 내구성을 예측 또는 평가해 볼 수 있는 결과로서, 추가적인 실험 및 결과들을 통하여 본 유리고화체의 신뢰성을 얻을 수 있을 것으로 기대된다.

금속재질 고온필터 여재의 표면층 생성 및 분진여과특성 평가

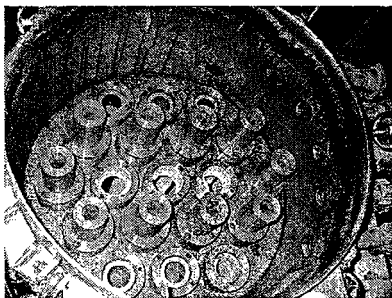
황태원, 조강욱, 박승철

한국수력원자력(주), 대전광역시 유성구 장동 25-1번지

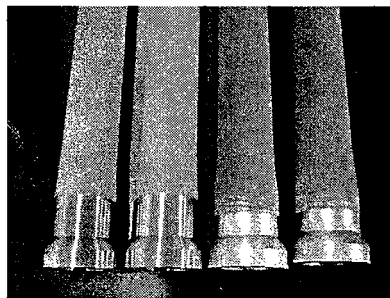
twhwang@khnp.co.kr

중·저준위 방사성폐기물 유리화 공정 고온필터시스템에서 적용한 필터여재(filter element)는 금속 재질로서 약 2mm 두께의 지지층 외부에 약 200 μ 두께의 표면층(skin layer)이 코팅되어 있는 캔들형(candle type) 구조로 되어있다. 이 금속필터 여재는 mulite 및, SiC 재질에 비해 두께가 현저히 얇기 때문에 필터시스템의 배기체 유량에 의한 압력손실(pressure loss)이 상대적으로 작고, 열충격 및 기계적 충격에도 안정성이 높다. 고온필터시스템 운영에 있어서 특히 중요한 것은 필터 표면에 누적되는 분진층을 주기적으로 제거하여 필터시스템의 차압을 전체 유리화시스템이 허용하는 수준 이내로 관리하는 것이다. 이를 위해서는 실질적 여과성능을 지배하는 필터 표면층의 기공에 고착성 침적물이 누적되지 않도록 필터를 운영하는 것이 필요하다. 특히 방사성폐기물을 투입하기 전에 유리용탕 형성시 휘발되는 유리가 필터 기공에 침적되어 필터 수명이 단축되는 영향을 최소화 하는 것이 중요하다. 유리화실증시설에서는 유리용융로에서 휘발되는 유리가 금속필터 표면층의 기공에 미치는 영향을 평가하기 위해 기존의 표면층이 있는 필터여재의 일부를 표면층이 없는 금속필터 여재로 교체하여 시험을 수행하고 있으며, 본 논문에서는 시험의 중간 결과를 체크하기 위해 표면층 유무별로 대표가 되는 필터여재를 꺼내어 필터 표면층의 기공에 대한 미세분석을 통해 특히 필터시스템의 압력손실에 미치는 영향을 평가하고자 하였다.

중·저준위 방사성폐기물 유리화실증시설의 고온필터시스템은 총 19개의 필터여재를 장착할 수 있다. 시험 중 개별 필터여재는 주기적으로 약 6bar 이내의 압축공기로 역세정을 수행하였다. 그동안 시험한 금속 필터여재는 총 3종류로 SUS 304, SUS 316L, INCONEL 600 등이었으며, 이들은 모두 캔들형으로 직경이 부위에 따라서 50/54/60.5mm이고 길이는 1,183mm, 그리고 무게는 각각 약 3.5kg이었다. 이번 시험에서는 금속재질별로 필터에 표면층이 있는 그룹인 SIKA-R AS 모델의 여재 및 표면코팅이 없는 여재인 SIKA-R IS모델을 각각 시험에 사용하였다. Fig. 1(a)는 유리화실증시설 고온필터시스템의 하우징 내부에 금속필터 여재가 장착되어 있는 모습이다. Fig. 1(b)는 캔들형 금속필터 여재의 모습으로 4개 중 왼쪽 2개(밝은 색)는 표면층이 없고, 오른쪽 2개(어두운 색)는 표면층이 있는 것이다.



(a) Tube Sheet 필터여재가 장착된 모습



(b) 캔들형 금속필터 여재

Fig. 1. 유리화실증시설 고온필터 시스템 및 금속필터 여재의 모습

유리화시험시 고온필터 시스템의 특성시험을 위해서 원전에서 발생되는 여러 종류의 잡고체 및 폐수지를 실제 원전에서의 발생비로 혼합한 모의폐기물을 유리용탕 상부에 약 20kg/h 속도로 투입하여 배기체를 발생시켰다. 이 경우 배기체 유량은 약 $130\text{Nm}^3/\text{h}$, 필터하우징에서의 배기체 온도는 약 300°C , 배기체 여과속도는 $0.5\sim 1\text{m}/\text{min}$, 분진부하(dust load)는 약 $1\text{g}/\text{Nm}^3$ 정도였다. 기존의 표면층이 있는 필터여재와 별도로 표면코팅이 없는 새 필터여재를 사용하여 지금까지 총 2회의 시험을 수행하였으며, 순수하게 필터여재가 배기체에 노출된 시간을 기준으로 할 경우 총 54시간 동안 수행하였다. 시험 중 필터의 역세정은 펄스 압력은 6bar, 펄스 간격은 약 5sec로 설정하였다. 시험 중에는 배기체 노출시간이 누적됨에 따라 배기체유량과 차압간의 변화를 주로 관찰하였으며, Fig.2에 수행한 2건의 시험 중 1건에 대한 [배기체노출시간 vs 차압] 데이터이다.

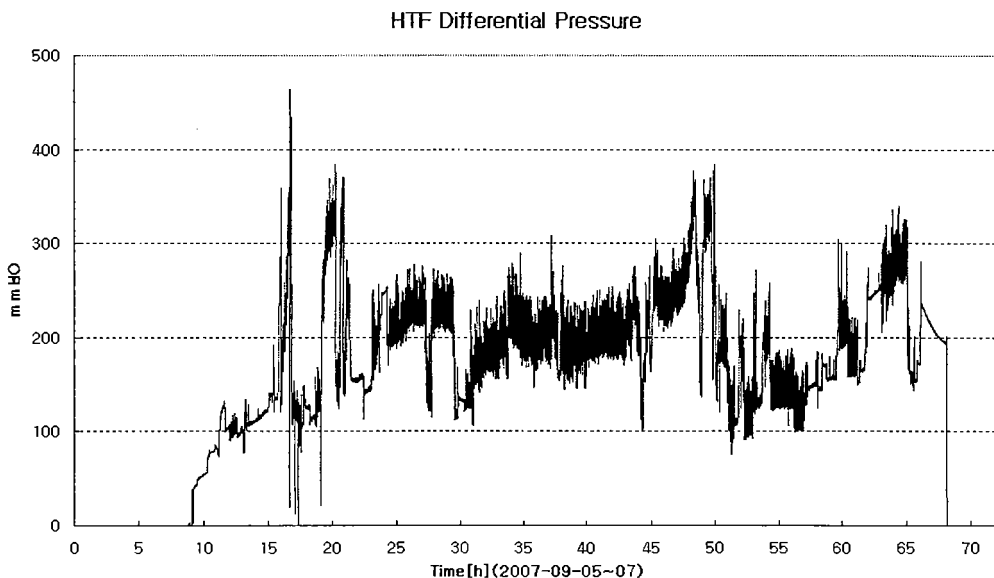


Fig 2. 금속 고온필터 시스템의 누적사용시간에 따른 압력손실

위 시험결과 금속필터 시스템의 차압은 시스템이 정상적인 경우 대체적으로 약 $150\sim 300\text{ mmH}_2\text{O}$ 범위로서 유리화시스템 전체에서 허용될 수 있는 차압에서 잘 운영되었으며, 주기적인 역세정에 의한 분진제거도 효율적으로 이루어 졌다. 표면층이 없는 금속필터를 적용하여 시험한 결과 필터 시스템 운영에는 특별한 문제점이 발견되지 않았다.

금속필터 여재의 표면층 유무에 따른 여과특성 시험은 계속 수행 예정이다. 향후 시험이 종료되면 표면층이 있는 SIKAR AS 모델 필터여재의 경우 휘발유리가 표면층의 기공에 주는 영향에 대해 분석을 수행하고, 표면층이 없는 SIKAR IS 모델 필터여재의 경우 휘발유리에 의한 표면층 형성 여부를 분석할 예정이다. 그리고 종합적으로 표면층이 없는 금속 필터여재의 사용가능성이 평가될 수 있을 것으로 판단되며, 현재 2회의 시험이 수행된 상태에서 중간 시험결과를 평가하기 위해 인출한 SIKAR AS 모델 및 SIKAR IS 모델에 대해 각각 미세조직의 분석을 수행 중이다. 상세 내용은 학회 발표시에 보고할 수 있을 것으로 판단된다.

방사성 유기폐기물의 전기산화분해장치의 성능평가

곽경길, 유영걸, 김기홍

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150

nkkkwak@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설에서 발생되는 EDTA 등의 킬레이트 착화합물은 처리되지 않은 상태로 직접 시멘트 등의 고형물질로 고형화하기가 어렵고, 또한 처분시 지하수내에서 방사성 핵종의 이동 가능성을 증진시키게 된다. 따라서 방사성 유기폐기물을 처리하고자하는 처리기술들은 반드시 유기물을 완전히 분해하여야하고, 배기체량이 적어야하며, 플루이나 다이옥신 등이 발생시키지 않아야 하며, 가급적 저온에서 운전 등이 가능하여야 한다. 이에 본 연구에서는 소각기술을 대체하면서 이러한 선택옵션들을 준수할 수 있는 전기산화법을 이용하여 처리하고자 하였으며, 실험실적으로 MEO(Mediated Electrochemical Oxidation)의 촉매로 Ce과 Ag를 이용하여 반응온도, 전류밀도, 전해질의 농도 등의 영향 등을 살펴보았으며, 현장에서 유기폐기물을 전기산화분해할 수 있는 장치를 제작하여 그의 성능평가를 수행하였다.

2. 실험재료 및 방법

본 연구에서 처리코자한 유기폐기물은 원자력시설의 제염과정에서 발생된 EDTA 용액이며, 그의 농도는 16 wt.%(ASTM 3113-80)이고, TOC에 의한 분석 결과는 254,000ppm이었다. EDTA 농도를 고려할 경우 약 94,000ppm의 미지의 유기물이 함유되어 있음을 알 수 있다. 그리고 그의 방사능 농도는 매우 낮았으며(Co; 1.24×10^{-1} , Cs; 1.14×10^{-3} Bq/ml), Fe, Cu, Mn, Ni 등을 함유하고 있었다. Ce에 의한 전기산화분해에서는 0.1M-Ce(NO₃)₃과 양전해질로 3M-HNO₃, 음전해질로 5M-HNO₃를 사용하면서 반응 온도와 전류의 밀도변화에 따른 유기물의 산화율을 측정하였고, Ag에 의한 전기산화분해에서는 0.5M-AgNO₃와 양전해질로 5M-HNO₃, 음전해질로 8M-HNO₃를 사용하면서 상온에서 전류의 밀도변화와 전해질 농도 변화에 따른 유기물의 산화율을 측정하였다. 이어서 파이롯 규모의 전기산화 분해장치를 제작하여 Ag를 촉매로 산화처리하면서 그의 성능을 평가하였다. Fig.1은 파이롯 규모의 장치로서, 유기폐액의 주입은 매개산화액이 충분히 생성된 후 수행하였으며, 유기물의 분해 진행정도와 매개산화액의 산화-환원 상태를 일정한 시간간격으로 시료를 채취하여 ORP(Oxidation-Reduction Potential)로 측정하였다. 산화율은 반응액중의 EDTA를 분석하는 대신에 반응액내의 잔류 유기탄소량을 TOC 분석기(LACHAT IL500 TOC-TN)로 분석하여 계산하였다.

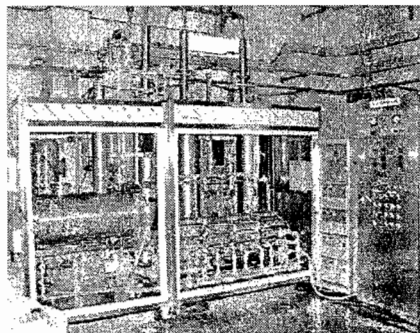


Fig. 1. Schematic diagram of MEO where using a catalyst Ce(IV), Ag(III)

3. 결과 및 고찰

Ce과 Ag에 의한 전기산화분해 결과는 각각 Fig. 2 ~ 3에 나타났다.

Fig. 2 ~ 3에서 일정한 반응온도에서의 전류의 밀도가 클수록 유기물의 산화율은 높았으며, 무기물로의 유기물의 산화율은 3A와 80 °C에서 85.6 %, 80 °C와 10A에서는 90.2 %이었다. 반면에 Ag에 의한 전기산화는 상온에서 시작하였는데 Fig. 3에서 보듯이 10A에서의 산화율은 3A에서의 산화율과 89.6%로 비슷하였지만 Ce-mediated oxidation에 비해 처리시간은 약 2.5배 정도 단축되었다. 또한 Ag의 농도는 크게 산화율에 영향을 미치지 않았다. 이 실험실적 결과에서 Ag가 Ce에 비해 산화력이 매우 높음을 알 수 있었으며, 전기산화분해법이 EDTA분해에 매우 효과적이었음을 알 수 있었다. Fig. 4는 파이롯 규모 장치의 성능평가 결과를 보여주고 있는데, Fig에서 보듯이 폐액공급량을 2L/hr의 속도로 주입하였으며, 반응초기에 산화율은 낮았으나, 일정 시간 이후부터는 용액내의 TOC를 분석하여 공급 폐액의 TOC와 비교하여 계산한 결과 지속적으로 산화율이 90%이상이었음을 보여주고 있다. 결과적으로 본 전기산화분해법은 소각 기술을 완전히 대체할 수 있는 기술임을 알 수 있었다.

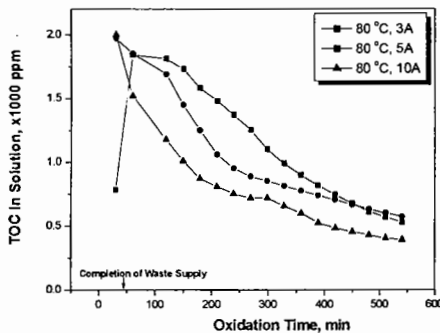


Fig. 2. Change of the TOC in the anolyte as a function of the oxidation time according to a change of the current density(Ce-mediated oxidation)

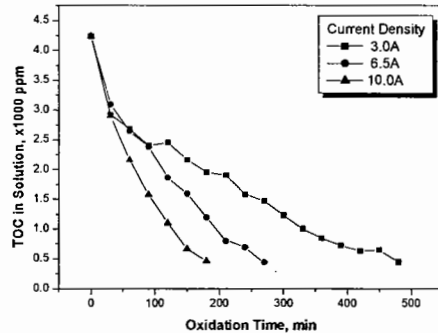


Fig. 3. Change of the TOC in the anolyte as a function of the oxidation time according to a change of the temperature (Ag-mediated oxidation)

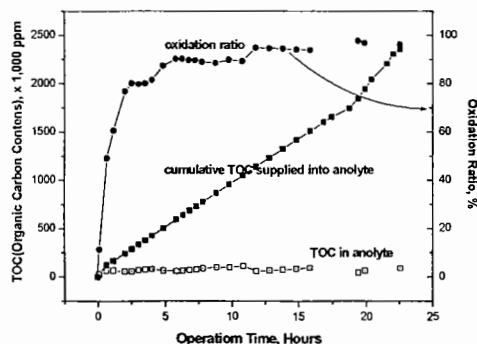


Fig. 4. Change of the TOC in the anolyte with a cumulative TOC and an oxidation ratio as a function of the operation time in a pilot-scale MEO system (Ag-mediated process)

방사성고체폐기물 압축감용처리기 개발

강일식, 지영용, 김태국, 홍대석, 손종식

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045번지

niskang@kaeri.re.kr

1. 서론

하나로와 핵연료주기시험시설에서의 운영과정에서 발생하는 기체폐기물을 여과하고 폐기된 고성능필터는 연간 200개가 발생되고 있으며 기타 잡고체폐기물은 200리터 드럼 기준으로 연간 300개가 발생되고 있다. 이들 폐기물은 압축, 절단, 소각 등의 적절한 처리를 통하여 부피를 감용한 후 월성원자력환경관리센터로 운반하여 최종처분될 예정이다. 중저준위방사성폐기물처분장은 1단계로 10만드럼을 동굴방식으로 2009년 말까지 건설하기로 결정하였다. 방사성폐기물의 안전한 저장 처분도 중요하지만 발생량을 줄여 한정된 처분용량을 확보할 필요가 있다. 본 논문에서는 폐필터 전처리장치와 다용도의 드럼압축기를 개발하여 폐기물의 부피를 감용함으로써 발생량을 현저히 감소하는데 기여하고자 한다.

2. 폐기물 압축기

가. 폐필터 전처리장치

방사선관리구역의 기체폐기물을 여과하고 폐기된 고성능필터는 필터프레임과 내지를 분리하여 처리하려 하였으나 분리과정에서 여과분진의 비산에 따른 체내외 피폭이 우려되어 압축하여 드럼에 수집하기로 하였다. 따라서 직육면체 형상의 폐HEPA 필터(L610mm x W610mm x H292mm)에 대하여 전처리장치를 개발하였다. 전처리장치의 성형부는 프레임 상으로 측부 유압실린더에 의해 좌우로 슬라이딩 가능하게 구비되는 포크형상의 가동성형틀과, 상기 가동성형틀에 맞물리도록 엇갈리게 포크형상으로 구비되고 프레임의 상면으로 고정되는 고정성형틀로 구성되어있다. 가동 성형틀과 고정 성형틀은, 내측으로 제1반원 절개면이 형성되고 상기 제1반원 절개면의 양단에 대칭으로 그 전방에 제1 경사절개면과 제1수평 절개면이 순차적으로 형성되는 압형성형판과, 상기 제1반원 절개면과 제1수평 절개면에 맞닿도록 외측으로 대칭되게 제2 경사절개면과 제2수평 절개면이 형성되는 수형성형판이 다수개로 부착되어있다. 전처리 결과, Ø500mm x H300mm의 원주형상으로 양호하게 성형 압축되었다. 폐필터 전처리장치에서 원형으로 1차 축소된 필터는 200ℓ 드럼내에 수집이 가능하게 되었다. 드럼내에 수집된 폐필터는 다시 60톤 압축기로 보내져 감용처리한다. 이와 같이 폐필터를 1차 전처리한 후 2차 압축감용 하였을 때 폐필터는 200ℓ 드럼내에 모두 6개를 수집할 수 있었다. 따라서 폐필터를 처리하기 전에 1개를 넣을 수 있는 것과 비교하였을 때 감용비는 1/6이었다.

나. 다용도 압축기

원자력 시설에서 발생하는 방사성폐기물은 일정 규격의 수용드럼 내에 수집하며, 방사성폐기물이 수집된 수용드럼은 드럼 압축기에 의해 압축하여 부피를 줄인 상태로 처리하게 된다. 국내 원전의 초고압압축기는 원전의 운전 및 보수과정에서 발생하는 각종 잡고체폐기물을 기존의 10톤 압축기로 1차 압축하여 생성된 200ℓ 드럼을 약 1,000톤의 초고압으로 재압축하여 320ℓ 재포장용기에 포장한다. 연구원의 압축기는 당초 100ℓ 드럼내에 잡고체폐기물을 수집하여 200ℓ 드럼내에서 압축감용후 주위 공간을 시멘트로 채워 고정화하기 위하여 제작되었다. 이와 같이 수용드럼을 압축하는 종래 드럼 압축기는 수용드럼의 크기에 따라 100ℓ 또는 200ℓ 전용으로 구성되어있다. 여기서, 100ℓ 전용 드럼 압축기는 200ℓ 용량의 포장드럼에 압축하여 포장되고, 200ℓ 전용 드럼

압축기는 압축하여 320ℓ 용량의 포장드럼에 포장한다. 따라서, 100ℓ 전용 드럼 압축기에서 100ℓ 가 아닌 200ℓ의 수용드럼을 압축하고자 할 때에는, 작업자가 별도의 보조 압축판을 직접 수용드럼 위에 얹어놓고 압축을 행한 후, 압축이 끝나면 다시 보조 압축판을 제거하고 새로운 수용드럼의 압축을 위해 다시 보조 압축판을 얹어놓아야 하는 일련의 과정을 반복해야 한다. 이에 따라, 작업자는 방사선 피폭의 우려가 있으며, 수용드럼의 압축에 많은 인력과 시간이 소요되는 문제점이 있었다. 한편, 200ℓ 전용 드럼 압축기에서는 100ℓ 전용 드럼 압축기에 비해 압축판이 커서 100ℓ의 수용드럼이 압축되는 200ℓ의 포장드럼이 적용될 수 없는 상태이다. 본 드럼 압축기는 방사성폐기물이 담긴 수용드럼을 수용하는 수용공간을 가지는 본체유닛과 수용드럼을 올려놓고 압축위치를 이동할 수 있는 드럼대차, 수용드럼을 유출입하기 위한 도어유닛, 본체유닛 내에서 상하 방향으로 이동하는 피스톤부를 가지는 구동유닛과 구동유닛의 구동에 따라 수용드럼을 압축하는 압축유닛을 포함하여 구성된다. 보호 슬리브는 수용드럼의 압축과정에서 포장드럼이 압축력에 의해 변형되거나 압축유닛의 상하 방향 운동에 의해 포장드럼의 내주면이 손상되는 것을 방지할 수 있게 된다. 일반적으로, 압축하려고 하는 수용드럼이 100ℓ인 경우 이를 포장하는 포장드럼은 200ℓ 용량이고, 수용드럼이 200ℓ인 경우 이를 포장하는 포장드럼은 320ℓ로 구성된다. 따라서, 압축 대상인 수용드럼이 100ℓ에서 200ℓ로 변경되는 경우, 이에 맞추어 포장드럼도 200ℓ에서 320ℓ로 변경된다. 이에 따라, 수용드럼이 100ℓ에서 200ℓ로 변경되는 경우에는 상기 포장드럼의 내주면에 대응되는 보호 슬리브도 이에 맞추어 변경되어야 한다. 압축에 사용된 드럼은 높이 884mm, 직경 597mm 및 두께 1.2mm인 200ℓ 용량으로 슬리브내에서 압축한 결과 높이 100mm로 축소되었다.

4. 결론 및 고찰

폐필터를 처리할 수 있는 전용처리장치가 없기 때문에, 그동안 원내에서 발생되었던 폐필터 전량을 방사성폐기물저장고에 그대로 임시 보관하고 있는 실정이었는데, 전처리장치를 활용함으로써 이를 모두 처리할 수 있게 되었으며 이로 인한 폐기물 부피 감용으로 방사성폐기물저장고의 저장공간을 확보할 수 있을 것이다. 또한 다용도 드럼압축기의 개발로 인하여 압축유닛을 구동유닛에서 착탈 가능하도록 구성함으로써, 압축 대상이 되는 수용드럼의 크기가 변경되더라도 이에 대응하는 압축유닛으로 쉽게 교체하여 압축을 행할 수 있는 이점이 있다. 특히, 압축유닛을 결합홀이 구비된 상부파트와 결합돌기가 구비된 하부파트로 구성하여, 회전에 의해 쉽게 장착 및 분리를 할 수 있어, 압축유닛의 교체가 보다 용이한 이점이 있다. 따라서, 수용드럼의 변경에 따라 소요되는 인력과 시간을 획기적으로 줄일 수 있게 된다. 또한 포장드럼의 내주면에 선택적으로 끼워지는 보호 슬리브를 구성함으로써, 수용드럼의 압축과정 중 포장드럼의 변형이나 손상을 효과적으로 방지할 수 있다.

조사재시험시설 Charcoal 필터뱅크 보완 및 누설시험

백상열, 김기하, 송용섭, 안상복, 류우석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

svbaek1@kaeri.re.kr

조사 핵연료 및 구조재료의 핫셀시험을 위한 조사재시험시설은 고방사능물질의 시험 및 취급과정에서 발생한 각종 방사성 물질에 오염된 핫셀공기를 정화하기 위한 특수 공기조화설비를 운영한다. 현재 조사재시험시설의 핫셀 내에서 오염된 공기는 1차적으로 HEPA필터로 여과한 후에, 전·후 2단의 HEPA 필터와 중간단의 활성탄 필터로 구성된 AFU(Air Filtering Unit)로 최종 정화하여 외부에 방출하는 DUP(Deep Under Pressure) 시스템을 채용하고 있다. 따라서 외부에 방출하는 공기의 오염을 최소화하기 위하여 기존에 설치된 AFU의 활성탄 필터의 장착부위의 구조를 개선하여 여과성능을 대폭 향상시켰다. 본 논문에서는 AFU 내에 별도로 설치된 활성탄 필터상자의 밀폐도를 향상시키기 위한 기존의 챔프지그 및 프레임 지지용 지그의 형상 개선 현황, 그리고 개선 후에 실시된 현장 누설시험의 결과에 대하여 고찰하였다.

조사재시험시설의 예비용 DUP 배기계통 필터뱅크는 4대로 구성되어 있으며, 기술적인 주요 사항은 다음과 같다.

- 공기정화량: AFU 1대당 5,600 CMH으로 총 22,400 CMH
- DUP계통 AFU의주요사항
 - Filter housing size : 3092(L) × 750(W) × 2058(H) mm
 - Filter Bank 1단 : 크기 610 × 610 × 292 mm의 수평배열 장착 Pre-HEPA 필터 2개
최소 정화효율 99.97% at 0.3 μ m DOP
 - Filter Bank 2단 : 크기 610 × 610 × 292 mm의 수평장착 활성탄 필터(타입 IV), canister 4개설치
최소 정화효율 99.95%(Halide)
 - Filter Bank 3단 : 크기 610 × 610 × 292 mm의 수평배열 장착 Pre-HEPA 필터 2개
최소 정화효율 99.97% at 0.3 μ m DOP

AFU 내에 별도로 장착되는 활성탄 필터상자의 접촉밀폐도를 향상시키기 위한 주요 구조개선 사항은 다음과 같다

- 활성탄 필터상자의 지지용 지그의 챔프 형상 개선
활성탄 필터 장착용 지그의 노후화와 형상으로 인하여 활성탄 필터상자와 AFU 프레임 사이에 위치한 가스켓의 밀착 불량에 따라 기존 챔프의 크기와 형상을 개선하여 가스켓에 균일한 압축력이 가하여 밀착이 향상되도록 개선함.
- AFU 필터뱅크 접촉부의 구조강성 향상을 위한 압축지그의 설치
필터뱅크의 노후화로 인한 필터박스에 설치된 가스켓과 접촉하는 뱅크의 프레임 강성이 저하되어 접촉 불균일이 발생하여 정화효율이 감소함. 따라서 프레임 중간 부위의 휨 발생을 억제하기 위한 다음과 같이 4종류의 압축력 보강지그를 설계하여 이를 보강하였음.
 - . 1단 HEPA필터 장착용 프레임의 상부휨 방지 보강지그 (Fig. 1 참고)
 - . 좌우 및 전후면의 중간 휨방지 보강지그 (Fig. 2 참고)
 - . 중간부위 조정용 지그 (Fig. 3 참고)
 - . 양단 부위 조정용 지그(Fig. 4참고)

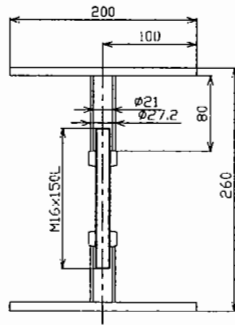


Fig. 1 Top bowing protection jig.

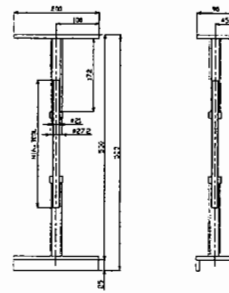


Fig. 2 Middle bowing protection jig.

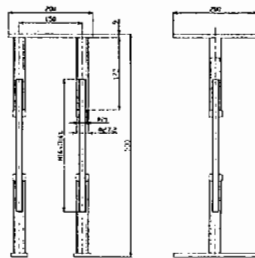


Fig. 3 Middle position adjusting jig.

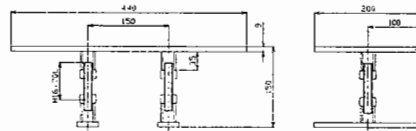


Fig. 4 Both end position adjusting jig.

- 구조 개선에 따른 AFU 현장누설시험 결과 고찰

AFU의 구조를 개선한 후에 현장누설시험을 실시하여 여과성능을 확인하였다. 시험은 “ASME N509-89: Nuclear Power Plant Air-cleaning Unit and Components,” 및 “ASME N510-89: Testing of Nuclear Air-Cleaning System,”에 제시된 기술기준을 준수하였으며, NUCON(Nuclear Consulting Service, INC.)의 F-1000-HD(Up, Down Stream) 계측기 2대 와 F-1000-HG 발생기를 사용하여 누설율을 5분간 연속적으로 측정하였다. 시험결과는 표 1에 나타낸 바와 같이 얻어졌으며, 시험결과로부터 계산한 누설율은 0.01%로 법령에서 제시한 누설율 0.05%이내의 기준을 만족하였다.

본 논문에서 제시한 필터뱅크의 누설성능을 향상시키기 위한 보완기술은 국내의 원자력시설에서 운전 중인 노후 필터뱅크의 성능 향상에 널리 적용할 수 있을 것으로 기대된다.

표 1 AFU 필터뱅크의 현장누설시험 결과

시험경과시간 (sec)	상류측 측정값 (ppm)	하류측 측정값 (ppb)	시험경과시간 (sec)	상류측 측정값 (ppm)	하류측 측정값 (ppb)
0	7.6	0	180	11.9	2
30	15.6	0	210	7.7	1
60	43	0	240	6.1	1
90	39	0	270	10	0
120	42.2	1	300	24.7	0
150	25.2	1			

활성탄필터의 누설시험 불확도 추정

이형권, 황용화, 서항석, 권형문, 전용범, 엄성호
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지
nhkleel@kaeri.re.kr

I. 서론

원자력시설에서 배출되는 방사성기체 I^{131} 을 흡착하기 위해서는 활성탄필터를 사용하며, Regulatory guide 1.14, 1.52 규정에 따라 현장누설시험을 수행하여야 한다.^[1] 누설시험은 필터의 자체에 대한 시험이 아니라 필터의 흡착능력, 필터뱅크 결함, 설치상태, 개스킷 손상 등을 고려한 종합적인 건전성시험이다. 그러므로 누설시험은 원자력시설의 안전성과 직결되는 중요한 시험이며, 그 중요성만큼 시험에 대한 신뢰성은 반드시 확보하여야 한다. 시험의 신뢰성을 확보하기 위해서는 시험장비의 소급성, 시험조건 및 환경 등이 시험선행조건으로 유지되어야 한다. 그러나 현재까지 시험의 중요도나 판정기준에 비해 교정용 표준가스, 시험장비, 시험조건 및 시험기술 등이 미비하거나 부족하다. 그렇지만 원자력시설의 안정성을 확보하는 중요성만큼 시험에 대한 신뢰성을 확인하기 위하여 활성탄필터의 누설시험에 대한 불확도를 추정할 필요가 있다.^[2]

II. 누설시험의 불확도 추정

1. 시험장비

활성탄필터 현장누설시험에 사용한 장비는 국내 • 외 원자력시설에서 누설검출기(Leak detector)로 가장 많이 사용하고 ANSI/ASME N510 시험요건에 적합한 NUCON사의 Halide detector(FD-1000)와 Halide generator(HG-1000)가 사용되었다. 그리고 검출기는 장비의 소급성을 유지하기 위하여 NUCON사의 교정절차서(NUCON 12-40, Rev. 8)에 의하여 교정을 수행하고 교정에 대한 신뢰성을 확보하기 위하여 불확도를 추정하였다.

2. 시험방법 및 불확도 요인

현장누설시험은 ANSI/ASME N510의 규격에 따라서 수행하였다. 불확도 요인으로서는 각각 상류측과 하류측 검출기의 불확도, Halide generator 성능, 시험조건, 시료균질도, 환경 및 시험자 등이 있지만 주로 장비와 시료균질도에 대한 요인만을 고려하였다.

3. 수학적 모델

$$Y = f(C_u, C_d, G_u, G_D)$$

$$M_e(\%) = 100 - \frac{C_d}{C_u \times 1000} \times 100$$

M_e : 활성탄필터시스템의 기계효율(%)

C_d : 하류측 농도(PPB)

C_u : 상류측 농도(PPM)

C_{dc} : 하류측 검출기 지시값의 교정오차(%)

C_{uc} : 상류측 검출기 지시값의 교정오차(%)

G_u : 상류측 시료채취평균 균질도(%)

G_D : 상류측과 하류측 검출기에 의한 오차(%)

3. 불확도 추정

가. 표준불확도

(1) 반복시험

활성탄필터 누설시험은 반복시험이 곤란하므로 반복시험에 대한 불확도는 추정하지 않았다.

(2) 지시값 변화

측정된 변화폭의 1/2 또는 검출기의 1/2 눈금중에서 큰값을 적용하여 불확도를 추정하나 검출기 교정에서 이미 반영하였으므로 제외하였다.

나. 검출기 교정불확도

누설시험 검출기의 교정불확도는 상류측 및 하류측검출기에서 각각 9.7 ± 0.5 PPM, 200.6 ± 4 PPB이다.

(3) Halide generator 및 상류측 시료채취 균질도

Halide generator에서 시료 발생능력이 ± 20 %를 유지하고, 상류측 시료채취점에서도 시료의 농도가 ± 20 %를 유지하여야 한다는 최대 허용오차만 있고 다른 정보는 없기 때문에 사각분포 처리하여 불확도를 추정하였다.

(4) 각 검출기의 상대불확도

각각 검출기의 정밀도는 ± 10 % 이므로 상대 검출기의 최대 정밀도는 ± 20 %를 산정하여 불확도를 추정하였다

다. 합성불확도

$$u_c = \sqrt{(2.630)^2 + (1.000)^2 + (11.547)^2 + (11.547)^2} \approx 16.571 \%$$

라. 유효자유도

포함인자 k 값을 구하기 위하여 합성불확도에 대하여 각 불확도 구성요소와 자유도를 결합시킨 유효자유도를 구한다.

$$\nu_{eff} = \frac{(16.571)^4}{\frac{(1 \times 2.630)^4}{112} + \frac{(1 \times 1)^4}{57} + \frac{(1 \times 11.547)^4}{\infty} + \frac{(1 \times 11.547)^4}{\infty}} = 169,536$$

마. 확장불확도

t-분포표로부터 신뢰 수준 95 %와 유효자유도가 169,536일 때 포함인자값은 2이므로 확장불확도는 ± 33.142 % 이다.

III. 결론

원자력시설의 배기여과시스템에 사용되는 활성탄필터뱅크 누설시험에서 대하여 불확도를 추정하였으며, 그 값은 신뢰수준 약 95 %($k=2$)에서 99.96 ± 33.142 %이다. 불확도 추정값이 누설시험의 판정기준(99.95 %)을 고려할 때 매우 큰 것으로 나타났다. 그 이유는 현재 국내 또는 국제적으로 사용 중인 검출기 및 발생기의 정밀도, 표준가스 생산 능력, 시험조건 등이 원자력시설의 안전도를 뒷받침해주지 못하고 있기 때문이다. 그렇지만 누설시험에 대한 불확도를 추정해봄으로써 시험의 미비한 부분에 대하여 보완 및 발전할 수 있는 계기를 마련할 수 있을 것이다..

IV. 참고문헌

- 1) David Anglen, et al., "Nuclear Air Cleaning Hand Book", DOE Technical Standard, 2003.
- 2) "측정결과와 불확도추정 및 표현을위한지침" KOLAS, 2007.

조사후시험시설의 환기계통 설계기준

황용화, 이형권, 엄성호, 김길수, 서항석, 전용범

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)

hvh@kaeri.re.kr

1. 환기계통 설계기준

시설 내에 안전한 작업조건과 공정상에 요구되는 실내조건을 유지함과 동시에 방사성 물질에 의한 대기 및 주위환경의 오염을 방지하는 데 목적이 있다. 건물 내 각 지역의 방사선량을, 오염도 및 작업조건에 따라 표 1과 같이 4가지 AIR CONDITIONING ZONE으로 구분하여 부압 및 환기회수를 유지하고 있다[1]. 시설 내부는 방사성 물질의 외부로의 확산을 방지하기 위하여 부압을 유지하도록 하며 방사선 준위가 낮은 구역에서 높은 구역으로 공기가 흐르도록 한다. 건물 내 환기를 위한 외부 공기 흡입은 신선한 공기만 흡입하도록 하며 공기의 재순환은 하지 않는다. 그러나 공기의 유량을 줄이기 위하여 공기의 방사성 오염도가 낮은 지역에서 배출된 공기를 오염도가 높은 지역으로 이송하여 사용할 수도 있게 하였다. 이와 같은 공기의 이동은 두 지역의 압력차이 때문에 쉽게 이루어진다. 흡입된 공기는 표 2의 온·습도 조건을 유지하며[2], 각 지역의 오염도에 따라 GREEN 및 YELLOW ZONE으로부터 배출되는 공기는 한 개의 고성능 필터를 통하여 배출되고 RED ZONE으로부터 배출되는 공기는 두 개의 고성능 필터를 통과한 다음 굴뚝을 통하여 외기로 배출되게 하였다.

표1. 부압 및 환기회수

FUNCTION	ZONE	PRESSURE	RENEWAL/H
INACTIVE ZONE	WHITE (6000)	SLIGHT OVER PRESSURE	3
WORKING ZONE	GREEN (7000)	-3 to -5 mmWG	≥4
INTERVENTION ZONE	YELLOW (8000)	-6 to -8 mmWG	≥5
IN-CELL ZONE	RED (9000)	-15 to -20 mmWG	≥10

표2. 온·습도 조건

SECTION	SEASON	TEMPERATURE	HYGROMETRY
• AIR CONDITIONED ROOM	SUMMER	25 ± 2℃	57%+8% -6%
	WINTER	20 ± 2℃	50%+7% -6%
• ROOM NOT AIR CONDITIONED BUT LIMITATION ON TEMP. AND HYGROMETRY	SUMMER	30℃ MAX	70% MAX
	WINTER	15℃ MIN	70% MAX
• ROOMS NOT AIR CONDITIONED	SUMMER	35℃ MAX	70% MAX
	WINTER	10℃ MIN	70% MAX
• ROOMS WITH SPECIAL CONDITIONS	SUMMER	NO LIMIT	≥70%
	WINTER	10℃ MIN	≥70%

2. VENTILATION AIR FLOWRATE.

모든 공기의 유동은 COLLECTOR에서 분배되며 유량조절은 댐퍼에 의해서 조정되게 하였다. HOT CELL의 VENTILATION은 방사선 투과방지를 위하여 300mm 직경의 CAST IRON으로 된 SHIELDING SCREW를 통하여 이루어지도록 하였다.

3. 공기공급 및 배출용 FAN.

외부의 공기를 흡입 및 건물 내 각 방으로 공기 공급을 위하여 3대의 AXIAL FAN이 설치되어 있으며, MUP(MEDIUM UNDER PRESSURE SYSTEM), DUP(DEEP UNDER PRESSURE SYSTEM), OFF-GAS SYSTEM, FUME-HOOD 등으로부터 나오는 EXHAUST AIR를 배출하기 위하여 7대의 CENTRIFUGAL TYPE의 FAN이 설치되었다[3].

4. DUCT FITTING

RED ZONE 내에서의 모든 공기의 이동 및 배출을 위한 DUCT 및 HOT CELL 외부에서의 "OFF-GAS" EXHAUST, SHIELD-ED LINE 및 BOX, GLOVE BOX 등으로부터 공기 배출을 위한 DUCT 등이 있다. 유량조절(ADJUSTMENT OF AIR FLOW RATE) 및 에어 밸런싱(BALANCING)에는 공기흐름의 차단이 최대한 요구되는 부분에 BLADE DAMPER를 사용하여 조절하였으며, 높이가 250mm 이하는 SINGLE BLADE를, 250mm 이상일 경우 MULTI-BLADE를 사용하였다.

결론

흡입 및 배기팬의 유량을 오차범위 내로 조정하여 부압유지가 가능하였으며, 대부분 MULTI-BLADE를 사용하여 기밀성이 유지되었다. 온·습도 조건에서는 현재 시설 내로 공급되는 냉각수의 온도가 설계치보다 높아 범위 내로 유지하기에는 사실상 어려움이 있었다.

참고논문

- [1] C.A. Burchsted. Nuclear Air Cleaning Handbook (ERDA 76-21), pp12-17
- [2] 조사후시험시설 설계 및 공사방법 승인신청서 1983. 10. pp80-81
- [3] C.A. Burchsted. Nuclear Air Cleaning Handbook (ERDA 76-21), pp121-126

제2-2분과

방사성폐기물 처분 (Oral)

A Nuclide Release Behavior due to a Varying Thickness of an EDZ in the Near-field of an HLW Repository

Youn-Myoung Lee, Yong-Soo Hwang

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Deokjin, Yuseong, Daejeon 305-353, Korea,

ymlee@kaeri.kr

1. Introduction

In view of a safety and a performance assessment for a repository as well as its design feed back, it seems very important to quantify a nuclide release in and around the near-field a high-level radioactive waste repository (HLW) due to the varying physical and geochemical parameters associated with an HLW. During past years, by utilizing AMBER[1], some nuclide transport models for not only the near- field but also the far-field of a repository with detailed system features have been developed [2-3]. In the current study, for the thickness of an excavated damaged zone (EDZ) around a repository which is one of the principal parameters affecting the performance of a repository, a model has been devised for an HLW with the aid of a general purpose modeling tool, GoldSim[4]. GoldSim has been designed to facilitate the object-oriented modules by which any kind of specific models can be easily addressed in a straightforward manner, analogously like solving jig saw puzzles. Through this study, some probabilistic calculations according to a varying thickness of an EDZ for an assumed case, which are believed to be further extended and applied to other parametric studies, are made and briefly introduced.

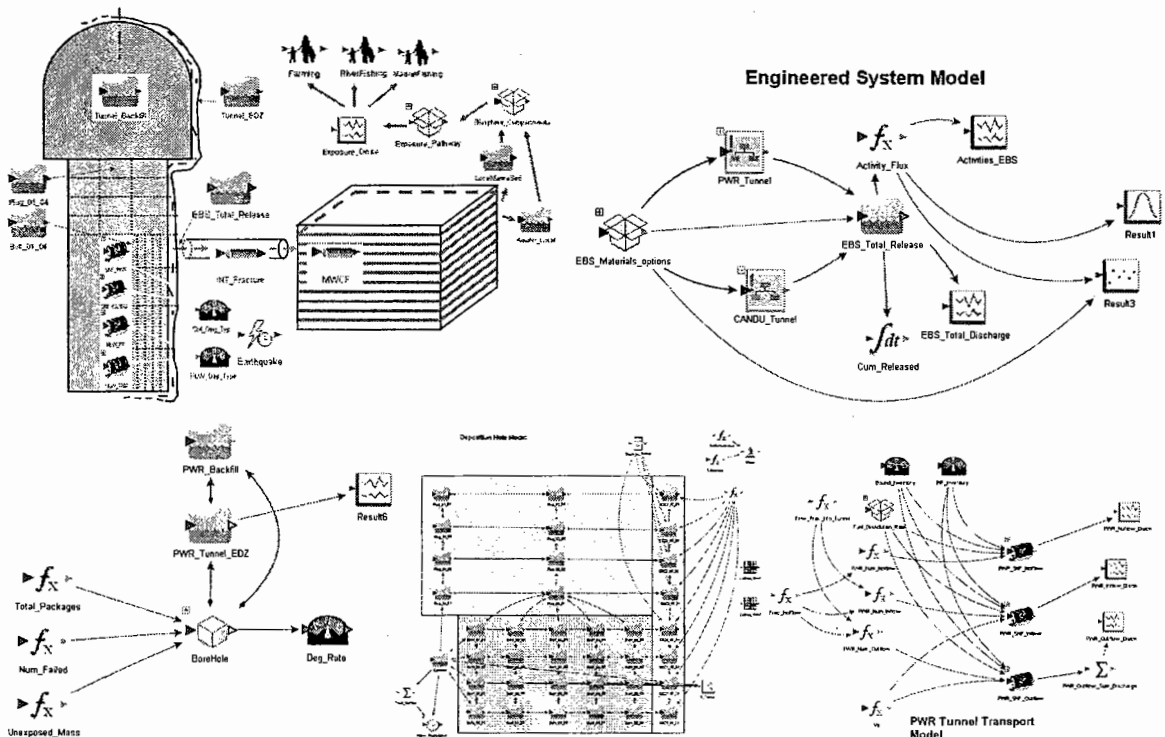


Fig. 1. Concept of a total release from the engineered near-field barrier in the frame of the total system performance assessment system

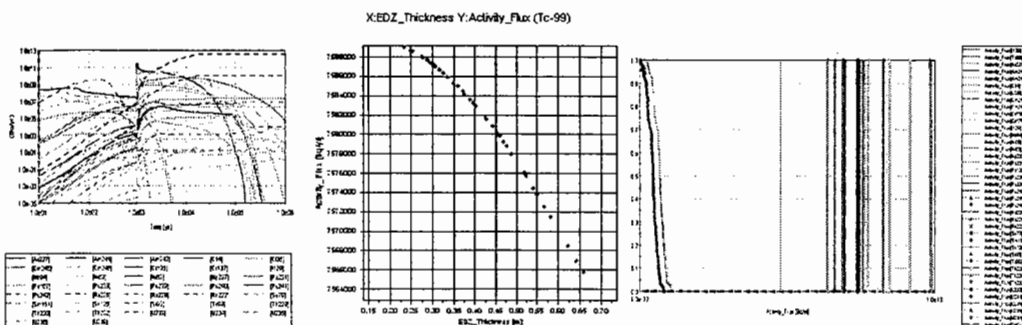


Fig. 2. Some calculated EDZ thickness sensitivity results: (left) nuclide fluxes with mean EDZ thickness value (0.3m), (middle) scatter plot for Tc-99, (right) CCDF for all nuclide fluxes.

2. Illustration and Discussion

For the total release from the near-field of the repository, such near-field barriers as a canister itself and a surrounding buffer and outer part of a tunnel, filled by a backfill material as well as an EDZ (modeled as a cell, *Tunnel_EDZ* as shown upper left in Fig. 1) formed both around the deposition holes and tunnel are modeled as the main components involved in a nuclide release into the far-field of a repository. This complex system can be implemented with GoldSim modules as conceptually depicted in Fig. 1. Breakthrough curves for a bunch of nuclides throughout the near-field pathway with a mean value of the EDZ thickness as well as a sensitivity for varying EDZ thicknesses, which seems somehow sensible for the release flux of ^{99}Tc as implicated by scatter scatter plot and CCDF for all the nuclide fluxes, are also shown in Fig. 2. Although only a simple illustrative case is represented here, GoldSim seems useful and necessary for a further in depth feedback to refined a repository design concept and it would also be helpful to build another appropriate safety assessment tool even though there might be many more things to be developed.

REFERENCES

- [1] AMBER 4.4 Reference Guide, Enviro Quantisci, Henley-on-Thames, U.K., 2002.
- [2] Youn-Myoung Lee et al., "Nuclide transport calculation in the near- and far-field of a reference HLW repository using AMBER," Proc. Waste Management 2005 (WM'05), Feb. 26~March 4, 2005, Tucson, AZ, U.S.A.
- [3] Youn-Myoung Lee et al., "Nuclide release from an HLW repository: development of a compartment model," Annals of Nuclear Energy, 34, 782-791, (2007).
- [4] GoldSim Contaminant Transport Module, User's Guide, Version 4, GoldSim Technology Group, 2006.

방사성폐기물 드럼내 핵종재고량 분석을 위한 각국의 척도인자 적용현황 및 국내 규제방안

전제근, 송민철, 정재학, 최경우, 김홍태

한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 구성동 19번지

k393cjk@kins.re.kr

1. 서론

국내 원전에서 발생하는 방사성폐기물의 처분과 관련하여 폐기물 드럼내 주요 규제대상 핵종의 농도를 평가하기 위하여 간접적 핵종농도 평가방식인 척도인자가 도입되고 있다. 척도인자는 파괴적인 방법인 방사화학적 방법을 이용하여 폐기물드럼내 ^{60}Co 또는 ^{137}Cs 와 같은 지표핵종을 이용하여 직접측정이 어려운 규제대상핵종과의 농도비를 간접적으로 산출하는 방식이다.

처분시설을 운영하고 있거나, 운영예정인 여러 국가에서는 직접 시료측정 또는 이론적 평가를 통한 평가 등 다양한 방법을 이용하여 척도인자를 도출하고 있으며, 이를 이용하여 폐기물드럼내 핵종 재고량을 평가하고 있다.

본 고찰에서는 각국의 척도인자 도출현황 및 도출방법을 살펴보았으며, 국내 규제방향을 살펴보았다.

2. 국외 척도인자 적용현황

가. 주요핵종 및 DTM 핵종간 관계핵종

척도인자를 도출하여 방사성폐기물의 재고량평가에 적용하고 있는 주요 국가들의 척도인자 도출시 $^{60}\text{Co}/^{137}\text{Cs}$ 의 주요 핵종과 폐기물드럼에 대한 비파괴방법으로 측정이 어려운(DTM) 알파 및 베타핵종간의 상관관계는 표1, 표2, 표3과 같다.

표1. 프랑스

	균질고화체 (active IX resins)		비균질고화체 (filter cartridges)		Type of Nuclide	DTM nuclide	Key nuclide
	DTM nuclide	키핵종	DTM nuclide	키핵종	Activated coolant products	^3H , ^{14}C	^{60}Co
CP 핵종	^{10}Be , ^{14}C , ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{56}Fe , ^{59}Ni , ^{63}Ni , ^{90}Mo , ^{93}Zr , ^{94}Nb , ^{108}mAg	^{60}Co	^{10}Be , ^{14}C , ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{56}Fe , ^{59}Ni , ^{63}Ni , ^{93}Mo , ^{93}Zr , ^{94}Nb , ^{108}mAg	^{60}Co	C radionuclide	^{59}Ni , ^{63}Ni , ^{94}Nb	^{60}Co
FP 핵종	^{78}Se , ^{90}Sr , ^{90}Tc , ^{107}Pd , $^{121\text{m}}\text{Sn}$, ^{126}Sn , ^{129}I , ^{135}Cs , ^{151}Sm , ^{241}Pu (β)	^{137}Cs	^{78}Se , ^{90}Tc , ^{107}Pd , $^{121\text{m}}\text{Sn}$, ^{126}Sn , ^{129}I , ^{135}Cs , ^{151}Sm , ^{241}Pu (β)	^{137}Cs	F radionuclide	^{90}Sr , ^{129}I	^{60}Co , ^{137}Cs
Alpha 핵종	Total alpha emitting nuclides and $^{238}\text{-}^{239}\text{-}^{240}\text{-}^{241}\text{Pu}$, ^{241}Am , $^{243}\text{-}^{244}\text{Cm}$	^{60}Co	Total alpha emitting nuclides and $^{238}\text{-}^{239}\text{-}^{240}\text{-}^{241}\text{Pu}$, ^{241}Am , $^{243}\text{-}^{244}\text{Cm}$	^{60}Co	Alpha emitting radionuclide	총알파	^{60}Co , ^{137}Cs

표2. 스페인

표3. 일본

Type of Nuclide	Homogenous solidified waste (concentrates and low activity spent resin)		DAW (include filter cartridge)	
	Evaluated DTM nuclide	Key nuclide	Evaluated DTM nuclide	Key nuclide
CP nuclides	^{14}C (PWR), ^{63}N , ^{94}Nb	^{60}Co	^{14}C , ^{63}N , ^{94}Nb , ^{90}Tc	^{60}Co
FP nuclides	^{90}Sr , ^{129}I	^{137}Cs	^{90}Sr , ^{129}I	^{137}Cs
Alpha emitting nuclides	Total alpha emitting radionuclides	^{137}Cs	Total alpha emitting radionuclides	^{137}Cs

나. 시료채취계획 및 시료수

척도인자를 도출을 위한 주요 국가들의 방사성폐기물 시료채취계획 및 채취수가 표4, 표5,

표6에 주어져 있다.

표4. 프랑스

	간질고화폐 (active IX resins)	비간질고화폐 (filter cartridges)
시료채취 계획	- 레진은 폐액처리기간중 채취 - 탱크 재순환후 각 계통별 로채취(CVCS, LWT, SFPC...)	- 각 계통별 로채취(CVCS, LWT, SFPC...) - 카트리지는 CEA로 보내 상, 중, 하 위치에 서 채취
시료채취수	몇그람 단위로 수십개 채취	몇그람 단위로 수십개 채취

표5. 일본

	간질고화폐 (concentrates and low activity spent resin)	DAW
시료채취 계획	- 각 원전, 고화계통별 채취 - 각 원전 운전이력 고 려하여 채취	- 원전별 채취 - 오염원 오염유형 별로 채취
시료채취수	수백개	수백개

표6. 스페인

^{14}C , ^3H	-원전 유형별 (PWR, BWR).
^{239}Pu , ^{63}Ni , ^{94}Nb	-원전 유형별 (BWR, PWR) -구성재질 개선시
FP & Alpha 핵종	-핵연료 손상이력 -폐기물 유형별 -키 핵종

라. IAEA

IAEA에서는 척도인자에 도출에 대한 다음과 같은 기술문서(TECDOC)를 개발중에 있으며, 당 문서는 2007년말경 또는 2008년 초에 발간될 예정이다.

° International Experience in the Determination and Use of Scaling Factors in Waste Characterization

3. 국내 척도인자 규제방향

가. 관련규제요건

척도인자 관련 규제요건은 과학기술부 고시 제2005-8호(중저준위방사성폐기물 인도규정)에 제시되어 있다.

° 처분농도제한치

핵 종	처분 농도제한치 (Bq/g)
H-3	1.11E+6
C-14	2.22E+5
Co-60	3.70E+7
Ni-59	7.40E+4
Ni-63	1.11E+7
Sr-90	7.40E+4
Nb-94	1.11E+2
Tc-99	1.11E+3
I-129	3.70E+1
Cs-137	1.11E+6
전알파	3.70E+3

° 핵종규명

- 폐기물에 포함되어 있는 전체 방사성핵종의 95% 이상을 규명(H-3, C-14, Fe-55, Co-58, Co-60, Ni-59, Ni-63, Sr-90, Nb-94, Tc-99, I-129, Cs-137, Ce-144, 전알파 고려)
- 방사선 계측 등에 의한 직접 측정방법의 경우 : 처분 농도제한치의 1% 수준을 평가할 수 있는 능력을 보유
- 척도인자 등 간접 평가방법의 경우

* 예측의 정확도 제시

- * 핵종 농도가 과소평가 되지 않도록 척도인자의 값을 보수적으로 설정
- * 척도인자의 확인주기 : 2년에 1회 이상 또는 폐기물 조성에 변화를 줄 수 있는 요인이 발생한 경우

나. 관련규제현황

2006년 원전본부별로 폐기물저장고내 폐기물드럼내 핵종분석을 위한 장치를 설치하기 위한 심사가 수행되었으며, 심사과정을 통하여 척도인자의 적절성도 같이 심사되었다. 척도인자와 관련하여 사업자는 원전유형별로(PWR, PHWR) 척도인자를 도출하였으나, 일부 국가의 사례에서와 같이 데이터의 축적에 따라 각 원전 설계별 또는 폐기물유형별 핵종간 의존도가 적어질 때 까지 최소한 원전설계별로 척도인자가 도출될 필요성이 요구되었다. 따라서 심사결과로서 척도인자의 적절성을 확인하기 위해서, 폐기물드럼을 처분장으로 이송하기 이전까지 추가 시료채취·분석을 통한 척도인자 개선안에 대한 추가 심사가 수행될 예정이다.

다. 규제방향

척도인자의 목적은 방사성핵종의 처분재고량의 부합여부 확인에 있다. 따라서 각국의 척도인자의 도출 및 관리는 자국이 운영하고 있거나, 운영예정인 시설의 설계 및 현황에 따라 달라질 수 있다. 처분장의 기후조건, 처분장의 지층상 위치(대수층 상부 또는 하부), 주변 주민이 거주지와 거리 등과 같은 조건들이 척도인자 도출시 고려되어야 한다.

나.항에 기술한 바와 같이 과학기술부 고시 제2005-8호에 따르면 척도인자는 보수적으로 평가되어야 한다. 그러나 척도인자가 지나치게 보수적일 경우 처분장에 처분될 수 있는 폐기물량에 제한이 가해질 수 밖에 없어, 경제성에 큰 제약을 가질 수 있다. 반면 척도인자가 비보수적으로 평가될 경우 처분시설의 안전성에 영향을 미칠 수 있다. 따라서 척도인자는 보수성을 유지하면서도, 지나치게 보수적인지 않도록 최적화가 요구된다.

이러한 측면에서, 척도인자는 처분장이 가질 수 있는 불확실성을 해소하면서, 경제성을 상실하지 않도록 다음과 같은 측면이 고려되어야 한다.

- 폐기물특성별 주요핵종과 DTM 핵종간 의존도
- 원전 설계에 따른 1차측 구조물 물질특성의 반영

따라서 이러한 사항을 고려하여 향후 척도인자는 폐기물 유형별로 그리고 원전별 또는 최소한 원전설계 유형별로 도출되어야 할 것이다.

라. 기타 고려사항

최근 들어 스웨덴, 영국 등의 국가들을 중심으로 중성자에 조사된 콘크리트 폐기물에 대한 새로운 방사성핵종의 분석이 실시되고 있다. 콘크리트의 성분으로 존재하는 Ca이 조사되어 생성되는 ^{41}Ca , ^{45}Ca 핵종은 각각 X 선과 베타선 방출체(반감기 각 103,000년, 164일)이며, 원자로를 약 20년정도 가동시 생체 차폐체내에 각각 약 35Bq/g 및 12,000Bq/g 정도로 존재하는 것으로 보고되고 있다. 따라서 TRIGA 연구로해체시 발생된 콘크리트 폐기물에 대해서는 향후 Ca 핵종에 대한 분석과 척도인자 도출이 실시되어야 할 것이다.

4. 결론

방사성폐기물 처분장을 운영하고 있으며, 방사성폐기물의 인도시 핵종재고량평가를 위하여 척도인자를 도출하여 현장에 적용하고 있는 주요 국가들의 현황을 살펴보았다. 또한 척도인자와 관련한 국내 규제사례 및 규제방향에 대해서도 검토하였다.

척도인자는 방사성폐기물이 처분되는 처분장의 처분환경과 밀접한 관계가 있으며, 당 처분환경에 따라 척도인자의 보수성에 대한 심도가 결정될 수 있을 것이다.

실리카 계면에 대한 플루토늄(VI) 흡착 측정

박경균, 조혜륜, 정의창, 김원호, 지광용

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

nkkpark@kaeri.re.kr

1. 개요

U(VI) 이온이 SiO_2 계면에 흡착할 때 유기 리간드로 작용하는 picolinate는 3성분 표면착물을 형성함으로써 흡착을 약간 증가시켰다[1]. U(VI)과 Pu(VI)은 악티나이드 원소들이며 산화수가 같으므로 서로 유사한 흡착거동을 보일 것으로 예상할 수 있다. 따라서 picolinate는 SiO_2 계면에 대한 Pu(VI) 이온의 흡착도 증가시킬 것이다. 그러나 U(VI)와 달리 Pu(VI)은 낮은 산도의 수용액에서 쉽게 Pu(V)로 환원될 수 있다. Pu(VI)과 U(VI)의 몇 가지 가수분해물의 안정도를 비교해보면 [2, 3] 전자가 후자보다 조금 낮다. 이것은 Pu(VI)과 U(VI)이 산화물 계면에 흡착할 때 전자가 후자보다 덜 안정한 표면착물을 형성할 수 있음을 암시한다. Pu(VI)- TiO_2 시스템에서의 흡착 화학종으로 PuO_2^{2+} (낮은 pH)와 $\text{PuO}_2(\text{OH})^+$ 이온(높은 pH)이 제시되었다[4]. 본 실험에서는 SiO_2 계면에 대한 Pu(VI) 이온의 흡착에 미치는 Pu(VI)의 환원, picolinate 리간드 존재 그리고 과량 U(VI) 존재의 영향을 측정하였다.

2. 실험

SiO_2 농도 = 20 g/L, ^{239}Pu 농도 = 1 μM , U(VI) 농도 = 0 또는 0.1 mM, picolinate 농도 = 0 또는 0.5 mM, 이온강도 = 0.01 M(NaClO_4), 평형온도 = 25 °C에서 용액의 pH를 변화시켰다. 모용액 중의 플루토늄 산화수는 Pu(VI)(1 M HClO_4) 또는 Pu(V)가 함유된 Pu(VI) (5 mM HClO_4)였다. 기체분위기는 Ar , O_2 또는 O_2+O_3 를 유지하였다. pH 평형이 이루어지고 30분이 경과한 후에 용액 중에 존재하는 ^{239}Pu 농도를 액체섬광계수법으로 측정하고 흡착률(= 흡착으로 제거된 농도/가해진 농도)을 계산하였다.

3. 결과 및 고찰

Pu(VI)는 보관 중에, 모용액의 매질에 따라, 산화수의 변화가 나타날 수 있고, 산화수 변화는 흡착거동에 큰 영향을 미쳤다. 모용액의 매질이 1 M HClO_4 이면 Pu(VI) 산화상태가 안정하였으나 5 mM에서는 Pu(V)가 생성되는 것을 흡광스펙트럼으로 확인할 수 있었다. U(VI)와 picolinate가 존재하는 조건에서 두 가지 플루토늄 모용액을 사용하여 pH에 따른 흡착률을 측정하였고, 그 결과를 그림 1에 나타내었다. 모용액의 Pu(V) 함유 여부와 실험분위기에 관계없이 흡착률은 pH 2.5 내지 4.5에서 증가하고, pH 4.5 내지 6에서 일정한 값을 보였다. Pu(V)를 함유하지 않은 모용액을 사용하여 pH를 9까지 증가시키면 pH 6 이상에서 흡착이 다시 증가하는 현상을 보였다(그림1의 원 부호). $\text{pH} < 4.5$ 와 $\text{pH} > 6$ 에서의 흡착은 각각 Pu(VI)과 Pu(V)의 흡착을 나타내며, 실험범위의 pH에서 Pu(VI)과 Pu(V) 사이의 산화-환원 평형이 빠르게 이루어지고 있음을 나타낸다. 이것은 Pu(VI)- TiO_2 시스템에서 Pu(VI) 흡착을 측정할 때 산화상태 변화가 나타나지 않은 현상[4]과 크게 다르다. TiO_2 가 SiO_2 보다는 Pu(VI)과의 상호작용이 더 강하여 환원반응을 억제할 수 있다. 또한 Pu(VI) 생성과정에서 사용한 오존이 흡착반응 중에도 용액 중에 잔류하여 Pu(VI)의 환원을 억제했을 가능성도 있다.

Pu(V)를 함유하지 않은 모용액을 사용하고, 용액에 O_2 - O_3 기체를 통과시켜서 Pu(VI)를 유지하는 조건에서 흡착률을 측정한 결과를 그림2에 나타내었다. Pu(VI), U(VI) 또는 picolinate를 혼합한 세 가지 경우 모두 Pu(VI)과 Pu(V)의 흡착으로 구분할 수 있는 흡착률의 pH 의존성을 볼 수 없다. 중성에 가까운 높은 pH에서 Pu(VI)의 화학거동을 측정하기 위해서는 O_3 와 같은 산화제를

가하여 Pu(V)로의 환원을 피해야 한다. 반응용액 중에 picolinate가 존재하지 않으면 흡착률이 증가가 상대적으로 더 높은 pH에서 나타남으로써 picolinate가 관여하는 3성분 표면착물 형성이 흡착을 증진시켰음을 보이고 있다. 그러나 pH가 증가하여 7에 접근하면 picolinate에 의한 흡착률 증가정도가 감소한다. 이것은 picolinate와 수산이온이 3성분 표면착물 형성에서 서로 경쟁하고 있음을 나타낸다. 우라늄이 존재하면 pH에 따른 흡착률 증가가 둔화되었으며, Pu(VI)와 U(VI)의 경쟁반응에 따른 결과로 설명할 수 있다. 과량의 U(VI)과 함께 존재하는 미량 Pu(VI)의 흡착을 U(VI)만의 흡착을 측정한 결과[1]와 비교하면 Pu(VI)의 흡착이 좀 더 높은 pH에서 나타나고 있다. Pu(VI)과 U(VI)이 생성하는 표면착물의 안정도가 서로 동일하다면 과량 U(VI)에 존재하는 미량 Pu(VI)의 흡착거동을 U(VI)의 것과 서로 구분할 수 없다. 따라서 미량 Pu(VI)의 흡착이 U(VI)보다 좀 더 높은 pH에서 나타난 것은 Pu(VI)보다는 U(VI)의 표면착물이 더 안정함을 나타낸다.

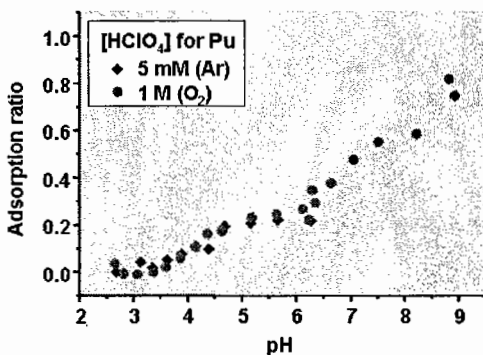


Fig. 1. Adsorption ratio of plutonium ion stored in 5 mM and 1 M HClO_4 solutions as Pu(VI).

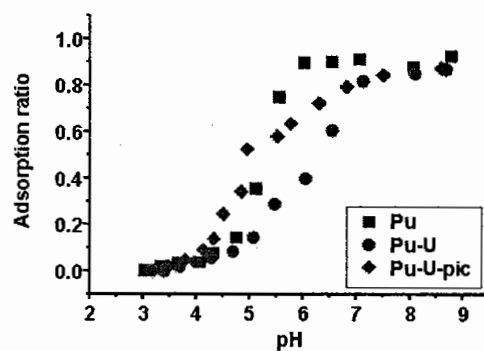


Fig. 2. Adsorption ratio of Pu(VI) ion of various systems under ozone gas flow.

4. 결론

SiO_2 에의 흡착을 측정할 때, 산화제가 존재하지 않는 조건에서는, 실험용액에 가해주는 모용액의 Pu(V) 함유 여부나 실험분위기에 관계없이 pH 2.5 내지 4.5 범위에서는 Pu(VI), 그리고 pH 6 이상에서는 Pu(V)의 흡착으로 설명할 수 있는 pH 의존성을 보였다. 이것은 실험조건과 같은 pH 범위에서는 Pu(VI)과 Pu(V) 사이의 산화-환원 평형이 빠르게 이루어지며 picolinate와 같은 리간드나 산화분위기를 조성하는 O_2 의 존재가 평형에 큰 영향을 미치지 못하는 것을 나타낸다. 반응용액에 O_2 - O_3 기체를 통과시키면 Pu(V) 생성을 억제하고 Pu(VI)의 흡착을 측정할 수 있었다. 반응용액 중에 picolinate가 존재하면, U(VI)의 경우와 마찬가지로, 3성분 표면착물 형성에 의하여 흡착이 증진되지만 pH가 증가하여 7 부근이 되면 picolinate와 수산이온이 3성분 표면착물 형성에서 서로 경쟁하였다. 과량 U(VI) 존재는 미량 Pu(VI) 흡착을 감소시켰으며, U(VI)보다는 Pu(VI) 표면착물의 안정도가 상대적으로 낮아서 Pu(VI)의 흡착이 더 높은 pH에서 나타난 것으로 보인다.

참고문헌

- [1] K.K. Park, et. al., 한국방사성폐기물학회 학술논문 요약집, 2007년 봄(89년).
- [2] R. Guillaumont, et al., "Chemical Thermodynamics of Neptunium and Plutonium," Elsevier (2001).
- [3] R. Guillaumont, et al., "Update on the Chemical Thermodynamics of Uranium, Neptunium, Plutonium, Americium and Technetium," Elsevier(2003).
- [4] M. Olsson, et. al., J. Colloid Interface Sci. 266, 269(2003).

위험도기반 처분안전성평가를 위한 복합피폭상황 통합해석 개념모델

정찬우, 서은진, 안상면, 박진용

한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 구성동 19번지

icw@kins.re.kr

방사성폐기물의 처분안전성을 객관화하기 위해서는 적절한 성능목표(선량/위험도 제약치)와 양식화된 부합성 입증방법이 조화를 이루어야 한다. 이 연구는 위험도제어체계의 처분시스템에 대해 불확실한 미래의 다양한 잠재피폭상황을 종합적으로 다루기 위한 하나의 개념모델을 제시한다.

개념모델

처분된 폐기물로부터 일반인에 이르기까지 피폭경로를 그림1과 같이 단순화할 수 있다. 전체피폭상황의 통합해석을 위해서는 위험도제약치의 부합성이라는 측면에서 피폭인 관점에서 접근할 필요가 있다. 주어진 피폭사례로 인한 한 개인의 총 위험도는 잠재피폭상황들의 중첩으로부터 가능한 선량(D)의 확률(P)분포에 걸친 기댓값 형식으로 나타낼 수 있다.

$$\gamma \int_D P(D) D dD \quad (< \text{risk constraint}) \quad (1)$$

여기서 γ 는 위험도계수로서 선량 당 위해 발생확률(예; 0.05/Sv)이다. 식(1)을 바로 계산할 수는 없으며 총위험도에 기여하는 주요 피폭상황에 대해 다음과 같이 어림할 수 있다.

$$\gamma \sum_{k=1}^n P_k D_k = \gamma \sum_{k=1}^n P_k C_k F_k \quad (2)$$

여기서, P_k 는 연간선량 D_k 로 이끄는 피폭상황 k 의 연간발생확률; C_k 는 피폭매체의 방사능준위(예; Bq/g); F_k 는 피폭매체와 피폭자간 상호작용(섭생특성)을 반영한 선량계수([Sv/y]/[Bq/g])이다. 처분사례에 대해 피폭상황과 P_k 를 유도하려면 누출에서 피폭매체까지 경로를 구성하는 주요 성분들을 분별하고 적절히 결합시켜야 한다. 일반화를 위해, 방사성물질이 다수의 선원/시나리오로부터 피폭사례영역의 매체에 이르는 다양한 잠재이동현상들이 하나의 위상공간에 누출(및 생태환경)의 경계조건과 이동경로로 구성된 다양한 틀에 중첩 형성되는 것으로 볼 수 있다. 즉, 전체 잠재이동현상들은 누출과 이동경로의 결합을 통해 매체 방사능 기대준위로 나타낼 수 있다.

$$\sum_{i=1}^s p(i) \left[\sum_{j=1}^m p(j|i) C_{ij} \right] = \sum_{i=1}^s \sum_{j=1}^m p_{ij} C_{ij} \quad (3)$$

여기서, $p(i)$ 는 누출시나리오 i 의 연간발생확률, $p(j|i)$ 는 시나리오 i 에 따라 누출된 방사능플럭스가 경로 j 를 경유하여 환경매체 방사능준위 C_{ij} 를 나타낼 조건부확률이다. γ 와 F 가 방사성물질의 이동현상과 무관한 계수이므로 식(3)은 (2)와 오염매체를 중심으로 다음과 같이 연결될 수 있다.

$$\gamma \sum_{i=1}^s \sum_{j=1}^m p_{ij} C_{ij} F_{ij} = \gamma \sum_{k=1}^n P_k C_k F_k \approx \gamma \int_D P(D) D dD \equiv \text{Risk} \quad (i, j = k; sw = n) \quad (4)$$

여기서 F_{ij} 는 C_{ij} 에 연계된 선량계수이다. 즉, 식(2)에서 피폭자에 기초한 피폭상황 k 는 선원항 관점에서 기본적으로 시나리오 i 와 이동경로 j 로 구성될 수 있다. 수학적 모델링을 위해서는 누출시나리오와 이동경로를 주어진 처분시스템 특성에 맞게 정의해야 한다. 그림1에 예시한 각각 5개의 항목들은 이런 작업의 양식화를 위한 토대를 제공할 수 있다.

적용방법

어느 시점/기간에 정상자연현상을 포함한 내외부 현상들이 처분시스템에 작용하면 그 개시현상의 발생가능성이 내포된 연간발생확률을 가지고 각 누출이 일어날 것이다. 이동경로도 유사한 방식으로 그 개시현상과 호응하여 연간발생확률을 가지고 각 누출을 맞이하며 자체 이동특성을 반영한 후 환경매체의 방사능준위로 나타낸다. 이동의 중점으로서 환경매체도 개시확률현상에 영향을 받으나 이 부분은 이동경로에 통합하는 것이 효과적이다. 또한, 환경매체와 피폭자의 상호작용(특히 피폭자의 섭생특성)도 개시현상에 직간접적으로 영향을 받을 수 있으나 자연현상과 연계하여 개별 인간거동에 확률값을 부여하기보다는 성능목표 부합성 결정의 관점에서 결정집단 또는 대표개인을 합리적으로 설정하여 F 의 값에 반영하는 대응방식이 보다 유효할 것이다[2]. 일단 시간에 따

른 위험도값을 산출하면 평가 목적에 적합한 위험도 프로파일을 구성하여 성능목표 부합성을 판단할 수 있다[1]. 이 전개에서 방사능과 매체는 단순화를 위해 각각 단일항으로 고려되었다. 실례에서 핵종과 매체를 종류별로 세분하여 적용할 때 이 모델은 일반성을 잃지 않는다. 또한 이 모델은 해당시스템의 특성과 가용정보에 따라 부분적으로 구체화할 수도 있다.

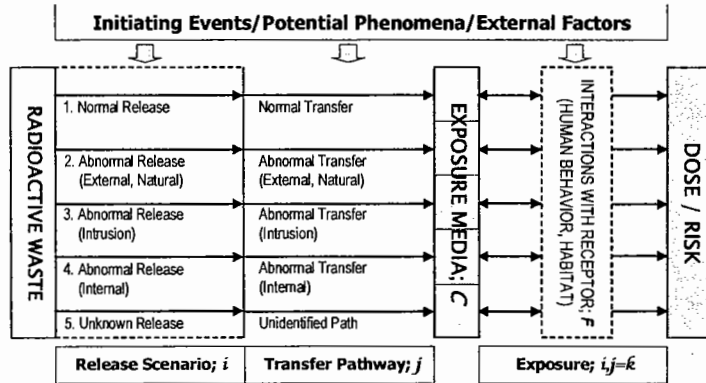


그림 1. 처분시스템 위험도해석을 위한 복합피폭상황의 추상화

예시

상기 모델을 그림1과 같이 각 5개의 시나리오와 경로로 구성된 처분피폭사례를 통해 예시한다. 시나리오별 연간발생확률 p_i 와 경로가중 오염도 즉 $C_i = \sum p_{ij} C_{ij}$ ($j=1 \sim 5$)가 개별 분석을 통해 그림2와 같이 나타난다고 가정하자. 피폭인의 섭식특성이 반영된 선량계수(F)를 편의상 시나리오별로 대표개인에 대해 각각 1이라 하면 시나리오별 선량기여분 즉 $p_i C_i F_i$ 와 대표개인 총위험도를 그림3과 같이 나타낼 수 있다. 이것은 시나리오 관점이고, 경로 관점에서도 같은 방식으로 전개할 수 있다.

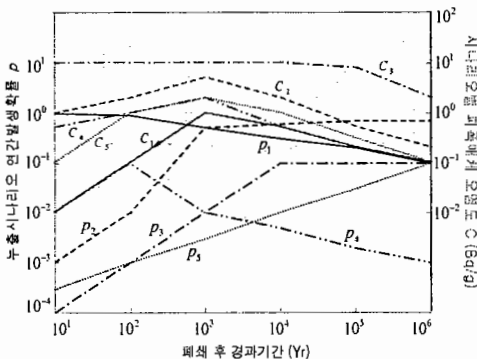


그림2. 시나리오별 발생확률과 경로가중 오염도

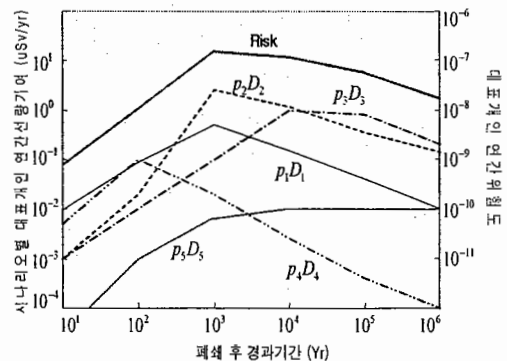


그림3. 시나리오별 선량기여와 대표개인 위험도

결론

위험도제어체계의 처분시스템에서 불확실한 미래의 다양한 잠재피폭상황을 종합적으로 다룰 수 있는 개념모델을 수립하였다. 이 모델의 장점은 통합성과 선형성으로서 선원/시나리오/경로를 종합하되 분별된 피폭경로의 독립적 취급과 선형대수로 개별 분석에서 전체로 바로 통합하고 역으로 전체에서 각 성분을 쉽게 추출한다. 이러한 특성은 위험도의 산출과 민감도/불확실성의 체계적 분석을 용이하게 함으로써 적합한 선량합산모델[2]과 연계하여 처분안전성평가의 robustness와 성능목표 부합성결정의 신뢰성을 높이는 방편으로 당해 모델의 활용을 기대할 수 있게 한다.

참고문헌

- [1] 정찬우 외, 중·저준위방사성폐기물처분시설에 대한 위험도평가방안, 한국방사성폐기물학회 2007 추계학술대회 논문요약집 (pp. 185-186).
- [2] 정찬우 외, 방사성폐기물 처분위험도 부합성평가를 위한 대표개인 설정 방안, 대한방사선방어학회 2007 추계학술발표회 논문집.

UTEVA-KPA를 이용한 토양 및 유리시료 중 우라늄 분석

박예은, 표형열, 김현정, 손세철

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

qpfxk08@hanmail.net

1. 서론

환경시료, 특히 토양시료에 함유된 미량의 우라늄을 분석하는 경우에는 다양한 형태의 유기물과 무기물들이 matrix 형태로 존재하기 때문에 분석대상 시료에서 우라늄만을 선택적으로 완벽하게 분리하는 것이 매우 중요하다. 토양시료에 포함된 미량의 우라늄을 분석하기 위해서는 산이나 용융제 등을 사용하여 우선 시료를 용해한 다음 화학적인 조작을 통해 우라늄만을 선택적으로 순수 분리한다. 분리된 우라늄은 질량분석 장비를 사용해서 정량하거나 또는 알파분광분석기를 이용해서 방출되는 우라늄의 에너지를 계측하여 정량하는 방법을 주로 사용한다. 질량분석 장비를 사용하는 경우에는 분석대상 핵종의 검출 한한치가 매우 낮고 고감도라는 장점을 가지고 있지만 장비가 매우 고가인 단점이 있어 일상적인 환경시료 분석에는 많이 이용되지 않는다. 알파분광분석기를 이용하는 경우에는 전기전착 등의 전통적인 방식을 사용하면 분석 감도가 좋아질 수 있으나 악티나이드 원소가 전착 도중에 중합과정을 통해 전기전착 판에 국부적으로 전착 될 우려가 있고 전착도중에 pH를 정확하게 조절하기가 어려우며 전기전착 판에 철 등의 방해 원소가 간혹 전착되어서 피크 분해능(FWHM)이 저하되어 알파방출 핵종을 정확하게 정량하기가 어렵다는 단점을 가지고 있다. Kinetic phosphorescence analyzer(KPA) 분석기기는 극미량의 우라늄을 높은 감도로 정밀하게, 경제적으로, 손쉽게, 신속하게 분석할 수 있는 장비로 알려져 있으며, 이 장비의 원리는 레이저 유도인광(phosphorescence)에 연계된 분석 농도를 시간의 함수로 측정하여 우라늄을 분석하는 것이다. KPA를 이용하면 0.01 $\mu\text{g/L}$ 농도의 우라늄 분석이 가능하며, 용액 상태에서 우라늄 이온(UO_2^{2+})의 형태로 존재하는 U^{6+} 으로부터의 emission을 검출한다. 따라서 KPA에서는 우라늄을 분석하기 전에 산성 조건하에서 H_2O_2 와 같은 과산화물을 이용하여 U^{4+} 를 U^{6+} 로 완전히 산화시켜야 한다. 본 연구에서는 KPA를 이용하여 토양시료 및 유리재질 시료에 함유된 미량의 우라늄을 분석하는 방법에 대해 검토하였으며, 최소한의 전처리와 분석에 소요되는 시간을 현저하게 줄일 수 있는 방법으로 시료용해는 closed microwave acid digestion system을, 주성분 중에서 미량의 우라늄을 분리하기 위하여 UTEVA를 사용하고, 우라늄 정량을 위해서는 KPA를 이용하여 토양과 유리매질 시료중의 우라늄을 정량하고 그 결과를 검토하였다.

2. 실험

우라늄 함유 시료로써 토양시료는 IAEA soil-7 인증표준물질을 사용하였으며, 표준시료 0.1 g을 정확히 칭량한 후 HNO_3 8 mL와 H_2O_2 1 mL를 첨가하고 20분 동안 microwave digestion을 시켜 용해하였다. NIST SRM-611 유리재질 시료는 0.03 g을 정확히 칭량하여 취하고, HNO_3 5 mL, HCl 5 mL, H_2O_2 0.5 mL 그리고 유리성분 용해를 위해 HF 0.5 mL를 넣고 IAEA soil-7의 경우와 같이 microwave digestion을 시켜 용해하였다. Microwave acid digestion system을 이용하여 용해한 토양 시료의 불용물질은 원심분리하여 상등액을 우라늄 분석에 이용하였으며, 유리재질 시료는 microwave acid digestion 후 완전히 용해된 것을 확인한 후 ICP-AES로 우라늄을 정량하였다. 0.02 M 질산 용액으로 UTEVA 분리관에서 용리된 용액을 증발 건조 한 후 0.8 M 질산 용액 10 mL를 사용하여 재용해 시켰다. 우라늄을 정량하기 위해서 플라스틱 셀에 용해된 시료 1.0 mL를 넣고 U-plex 1.5 mL 첨가한 후 잘 섞은 다음 KPA(Fig. 1 참조)를 이용하여 측정하였다.

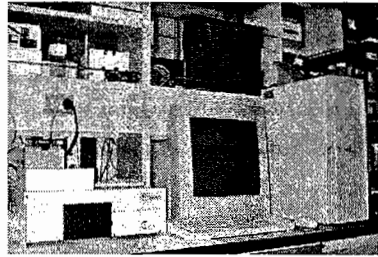
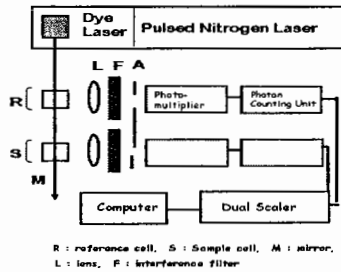


Fig. 1. Diagram of the kinetic phosphorescence analyzer.

3. 결과 및 고찰

토양과 유리재질의 시료들을 closed microwave acid digestion system을 이용하여 용해한 결과, 토양 시료의 경우는 불용물질이 관찰되어 원심 분리하여 상등 액만을 사용하였으며, 유리시료의 경우는 완전 용해한 것을 laser 불빛을 용해용액에 통과시켜 확인하였다. UTEVA 수지를 통한 토양시료(IAEA Reference Soil-7)와 유리재질 시료(NIST SRM 611)에 함유된 우라늄의 분리수율은 90 % 이상이었다. UTEVA 수지에서 우라늄은 3 M 질산 용액 하에서 분배계수가 10^2 이상으로 대부분 수지에 흡착이 되고 탈착 시에는 분배계수가 1인 0.02 M 질산 용액을 사용하였다. 본 연구에서 사용한 IAEA-Soil-7 토양시료와 NIST SRM 611 유리시료의 경우에는 복잡한 matrix가 존재하므로 matrix로부터 순수한 우라늄을 분리하기 위해 UTEVA 분리관을 사용하였다. UTEVA 분리관을 사용하여 matrix로부터 순수한 우라늄이 분리되었음을 확인 할 수 있다. Matrix 제거를 확인한 후 KPA를 이용하여 인증표준물질 토양시료 및 유리재질 시료에 함유된 우라늄을 측정된 결과를 요약하여 Table 1에 나타내었다. 재현성 확인을 위해 5회 반복 측정된 결과 각각 2.1 %, 0.3 %의 상대표준편차(RSD)를 얻을 수 있었다. 우라늄 분석결과는 인증표준 값과 신뢰 구간범위 내에서 일치하였으며, 이로부터 본 실험에서 적용한 시료전처리, 우라늄 분리 및 분석방법에 대한 신뢰도를 확인할 수 있었다.

Table 1. Analytical results of uranium in the reference materials

Reference	Ref. Value (mg/kg)	Conf. Int.(mg/kg)	This Method (mg/kg)
IAEA-Soil-7	2.60	2.20-3.30	2.36 ± 0.05
NIST SRM 611	461.5 ± 1.1	-	472.9 ± 1.4

4. 결론

우라늄 함유 시료에 존재하는 우라늄을 분석하는 경우에, matrix가 존재하지 않는 시료의 경우에는 용액화만으로 손쉽게 측정이 가능하며 측정결과와 적정결과와 비교했을 때 5 % 이내의 오차 범위를 나타내었다. 토양과 유리재질 시료와 같이 matrix가 존재하는 시료의 경우에는 UTEVA 수지를 통해서 matrix를 제거하였으며 측정 결과 각각 91.0 %와 102.5 %의 회수율을 얻을 수 있었다. 또한 phosphorescence decay의 curve를 통해 완벽하게 matrix가 제거되었음을 확인 할 수 있었다. 순수한 우라늄을 분리한 후 KPA로 측정된 결과 토양시료(IAEA Reference Soil-7)와 유리재질 시료(NIST SRM 611) 내 우라늄 함유 값과 허용오차 범위 내에서 일치하여 본 연구에서 설정된 분석법에 대한 신뢰성을 확인할 수 있었다.

침출지수를 이용한 안전성 평가

이성호, 황용수, 한지웅, 권선주

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

shlee10@kaeri.re.kr

1. 서론

경주 방사성폐기물처분장 건설이 완료되면, 국내 원자력시설에서 발생된 방사성 폐기물은 처분장으로 반입되어 최종 처분된다. 처분된 폐기물에 함유되어 있는 방사성 핵종들은 선원항-공학적방벽-천연방벽을 거쳐 최종적으로 생태계로 운반되므로, 인수된 방사성폐기물은 기본적인 건전성을 유지할 필요가 있다. 한수원-한국원자력연구원이 개발하고 있는 방사성폐기물인수기준에서는 방사성폐기물의 건전성을 유지할 수 있도록 여러 가지 정량적 수치를 제시할 예정이다. 그중에서 시멘트 고화체의 침출지수는 시멘트 고화체 건전성에 큰 영향을 미칠 것으로 판단되므로 그 결과 처분안전성에 미치는 영향을 파악하고자 하였다.

2. 안전성 평가 모델 개발

안전성 평가를 위하여, 다음과 같이 기본 모델을 설정하였으며 핵종들은 선원항에서 Barrier 1(콘크리트 용기), Barrier 2(분쇄석) 및 Barrier 3(사일로라이닝)를 의미하는 인공방벽을 경유하여 지하수 유동을 통하여 생태계로 유출되는 개념을 적용하고 있다.

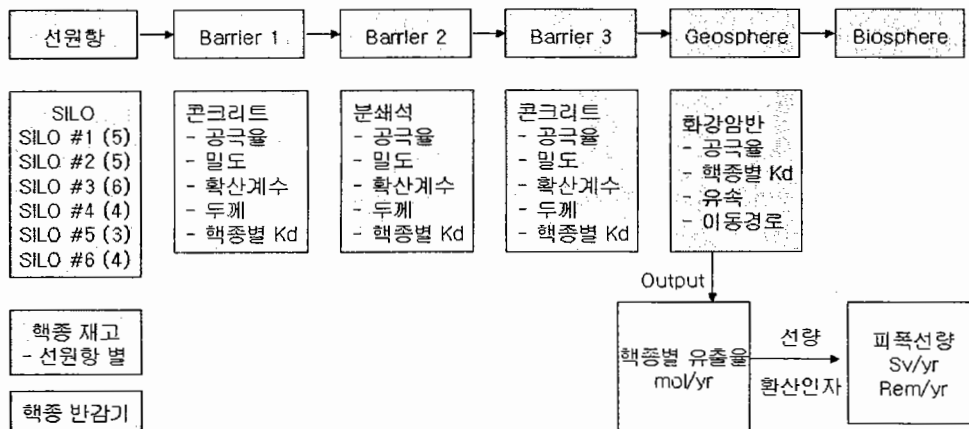


그림 1. 안전성 평가 모델

인수기준에서 제시하는 침출지수는 ANS 16.1에서 규정하고 있는 실험을 통하여 결정하게 되며, 개략적 개념으로는 90일 동안 10회(각 2, 7, 17, 24, 24, 24, 24, 336, 672, 1032 시간)의 실험을 통하여 유효확산계수 D 를 결정하게 된다. 침출지수(Li)는 10회의 평균 값인

$$Li = \frac{1}{10} \sum_{i=1}^{10} \left[\log \left(\frac{\beta}{D_i} \right) \right] \text{ 으로 결정된다.}$$

따라서 침출지수는 확산에 기반을 두고 있는 단기 침출을 의미하며, 안전성 평가에서 필요한 장기 침출 형태를 유도하기 위하여 측정 기간중 10번째 측정된 침출율을 남은 275일에 적용하여 연간

침출율을 구하였다. 이와 같은 방법으로 침출지수 6에 대한 연간 침출율을 계산한 결과 핵종제고량 기준으로 0.65/yr으로 결정되었다. 이는 ANS 16.1이 침출시험기간을 90일간으로 한정하고 있으므로 안전성 평가에서는 단기침출형태를 보수적인 값의 장기 침출형태로 전환한 값이라고 할 수 있다.

3. MASCOT를 사용한 안전성 평가

침출지수 6이 시멘트 고화체에 대한 값을 고려하여 안전성 평가에서는 시멘트 고화체에만 침출지수를 적용하였으며, 파라핀 고화체, 압고체 등에는 Simple leaching 및 solubility limited source term 개념을 적용하였으며, MASCOT 및 AMBER를 사용한 침출지수 6에 대한 안전성 평가결과는 그림 2와 같이 시간대별로 나타났다.

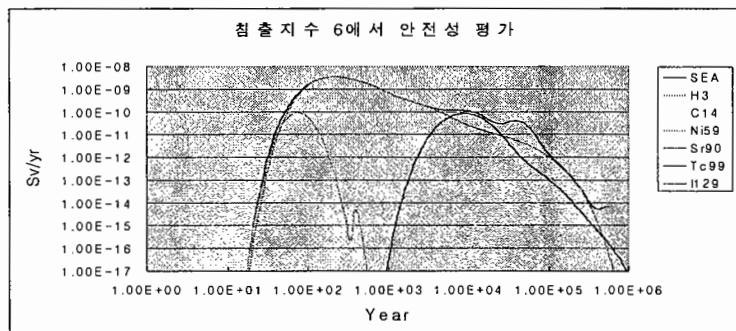


그림 2. 침출지수 6에서 안전성 평가 결과

4. 결론

방사성폐기물중 시멘트 고화체에 대한 침출지수 6을 적용한 결과, 최대 선량치는 처분장 성능목표치인 5mSv/yr에 비교하여도 충분히 안전한 수준임을 알 수 있다. 그러나 ANS 16.1의 고화체 침출시험법은 90일간의 단기 침출시험용으로 장기침출모델에 적용하였을 경우 2년 이내에 모든 핵종이 유출하는 것으로 나타나므로 적용에 무리가 있다. 이는 시편의 경우 확산모델로 단기 침출특성을 파악하는 것은 가능하나 장기간 실제 크기의 고화체의 침출은 확산 뿐만 아니라 용해도, 부식 등의 영향을 받을 수 있기 때문이다. 따라서, 장기침출모델로는 KAERI가 사용하는 조화유출모델이나 이에 상응하는 모델을 적용하는 것이 더 타당할 것으로 사료된다.

사용후핵연료 건식공정폐기물에 대한 처분 안전성평가

황용수, 정미선, 이성호, 이연명, 권선주

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045번지

yshwang@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료에 대한 관리 방안의 일환으로 최근 활발히 연구되고 있는 pyro-processing은 처분 대상 핵연료 부피를 획기적으로 저감시키는 효과 뿐 아니라 독성(toxicity)을 줄여 처분 안전성에도 기여하는 것으로 널리 알려져 있다. 본 연구에서는 이러한 관점에 대해 정량적인 종합 성능평가(Total System Performance Assessment) 방법론을 적용하여 환원 반응 및 정련 반응에 대한 처분장 장기 폐쇄후 방사선적 종합 성능 평가를 수행하였다.

2. 평가 방법론

본 평가는 한국원자력연구원 핵주기전략랩에서 수행 중인 TSPA 종합 안전성 평가 프로그램의 일환으로 추진되었다. 이러한 노력은 PWR, CANDU 사용후핵연료를 영구 처분할 경우와 pyro-processing을 통해 금속전환체와 핵분열생성물 고화체를 영구 처분할 경우를 정책적인 방향 설정에 따라 조합해 평가할 수 있는 방법론 개발을 가져 왔으며 다양한 고준위 방사성폐기물 유출 현상을 모델링하기 위해 아래와 같은 4 가지 유출 기구들을 선택적으로 평가할 수 있도록 하였다.

- (1) 순간 유출 모드(Instantaneous Release Mode)
- (2) 조화 유출 모드(Congruent Release Mode)
- (3) 일정 비율 유출 모드(Fixed Release Mode)
- (4) 면적 별 일정 비율 유출 모드(Area Specific Fixed Release Mode)

본 평가에서는 TRU 금속체와 핵분열생성물 고화체 모두 처분된다고 가정하였으며 처분 용기 등의 공학적 방벽의 규격은 현재 사용후핵연료 처분 개념인 KRS에서 사용하는 용기 및 공학적 방벽의 값들을 차용해 사용하였다. 또한 pyro-processing 대상체를 PWR 사용후핵연료만을 대상으로 하고 순수한 비교 연구를 통해서는 PWR과 CANDU 사용후핵연료를 모두 대상으로 하는 경우를 상정해 보았다.

3. 결론

PWR 사용후핵연료만을 pyro-processing의 대상으로 하는 경우에는 CANDU 사용후핵연료의 영향으로 실질적인 연간 개인 선량 감소가 크지 않았으나 CANDU까지 고려하는 경우 특히 환원 공정과 정련 공정을 동시에 적용할 경우에는 처분장 안전성에 미치는 영향이 매우 컸다.

감사의 글

이 연구는 과학기술부가 과학재단을 통해 주관하는 원자력중장기 연구개발 사업의 일환으로 지원 중인 처분안전해석 연구에서 수행되었습니다.

중·저준위 방사성폐기물 처분시설 운영중 사고시 성능목표치 설정

윤정현, 주민수, 박주완, 김창락

(주)한국수력원자력, 대전광역시 유성구 장동 25-1번지

ihvoon@khnp.co.kr

중·저준위 방사성폐기물 처분장 운영 중 정상은 물론 사고로 일반대중에게 방사선방호측면에서 심각한 장애를 준 경우는 국내외를 불문하고 이제까지 한건도 보고되지 않았다. 1mSv를 선량기준치로 정하고 있는 미국 천층 처분장 10CFR61“LICENSING REQUIREMENTS FOR LAND DISPOSAL OF RADIOACTIVE WASTE”에서도 사고시 성능목표라는 개념보다는 단순한 일반인에 대한 선량 기준치를 언급하고 있다. 이는 처분장을 일반 원자력발전소보다 보수적으로 운영하라는 것이 아니고 중·저준위 처분장에서는 실질적으로 사고라고 분류될 만한 사건이 일어나지 않는다는 사실을 경험적으로 반영한 것으로 판단된다. 실질적으로 처분장에서 성능목표를 정하여 설계하고 운영하고 있는 시설은 미국 DOE에서 운영하고 있는 WIPP처분장이 유일하다. 하지만 WIPP처분장은 국내 처분장과는 처분대상이 아주 다른 장반감기 TRU를 상당량 포함한 폐기물을 처분하는 시설이다. 따라서 국내 처분장에 WIPP과 같이 제한구역경계에서 일반인 250mSv와 같은 높은 성능목표치의 직접 적용은 어렵다. 국내 중·저준위폐기물 처분장의 운영 중 사고시 성능목표치 도입의 필요성에 대해서는 우선 현재 국내 방폐장에 대한 규제 요건상 제한구역을 정하고 그 경계에서의 선량평가 결과를 제시하도록 되어있다. 이 선량평가결과를 토대로 처분장에서 주요 계통이나 구조물, 기기의 등급을 분류하게 되므로 필요하다고 할 수 있다. 방폐장과 같이 국민의 관심이 집중되는 시설에서 위험도를 정량적으로 나타낼 필요가 있다.

특히 국내 규제 체계 내에서는 처분시설에서의 운영 중 사고시 선량기준은 물론 이에 따른 안전등급 설정이나 제한구역설정 등에 필요한 정량적인 기준은 제공하고 있지 않다. 단, 원자력법 시행령 제2조 제5호에 따르면 일반인의 유효선량한도는 1mSv/년이며 단서조항으로 일반인의 경우 5년간 평균하여 년 1mSv를 넘지 아니하는 범위에서 단일한 1년에 대하여 1mSv를 넘는 값이 인정될 수 있다고 규정되어 있다. 현 운영 중 사고시 성능목표치와 관련한 설계요건으로는 처분장 SSC 등급(설계등급), 내진등급 및 품질등급과 처분장 제한구역 경계 및 완충공간의 규모 등으로 모두 처분장의 운영은 물론 폐쇄 후 제도적 관리 기간까지 가장 주요한 설계 기준이 되고 있다. 처분장에서 사고시 성능목표치를 단순히 일반인의 유효선량한도(Dose Limit)인 1mSv/년을 정하는 것이 타당하다는 주장들도 있을 수 있으나 처분장과 같이 잘 관리되는 운영조직 하에서는 사고분석에서 가정한 사고들이 발생할 확률은 매우 적다. 발생확률이 아주 작은 사고에 대하여 낮은 성능목표를 설정하는 것은 결국 지나친 보수성으로 이어져 방사선방어의 가장 주요한 원칙인 ALARA개념과도 상충된다고 할 수 있다. 국내 규제체계는 주민의 거주 제한하는 제한구역을 정량적으로 설정하여야 하고 이에 따라 설계등급과 품질등급을 정하게 되어있다. 이러한 규제체계 하에서는 처분장의 운영중 사고 시 성능목표치는 일반인의 선량한도의 적용대상이 아니고 제한구역경계에서의 원자력 발전소의 사고 시 규제선량기준치 이내에서 결정하는 것이 타당하다고 판단한다. 이는 시설의 특성은 다르지만 제한구역을 설정하여야 하는 처분시설에 원자력발전소와 동일한 규제요건을 적용하면서 발생확률이 현저히 낮은 운영 중 사고에 대한 선량기준을 일반인의 연간 선량한도인 연간 유효선량 1mSv이내로 제한하는 것은 지나치게 보수적인 설계 기준이 될 수 있다.

처분장 건설운영 경험이 없는 국내에서는 처분장 정상운영 중 설계목표치(또는 성능목표치)는 원자력관계시설의 규제기준을 준용하고 있다.

방사성폐기물 처분시설 운영 중 사고 시 일반인에 적용 가능한 성능목표치의 해외사례는 처분 시설을 운영하는 국가 중 (미국, 영국, 핀란드)들의 사례조사 결과는 다음 표와 같다.

표 1. 국외처분장의 운영 중 사고 시 성능목표치

국가	운영 중 사고 시 일반인 성능목표치	규제적용범위	비고
핀란드	5mSv/년	원전부속시설	
영국	100mSv/년	제한구역경계	동굴처분(Nirex처분시설)
미국	250mSv/년	제한구역경계	DOE WIPP 처분시설 (중준위 TRU폐기물)
	1mSv/년	부지경계 (제한구역과는 다름)	일반인의 연간 선량한도

경주 처분시설과 제한구역경계의 가장 큰 특징은 신원성 1,2호기와 경계를 일부 공유하며 임해지역에 위치하고 있으며 동굴처분이라는 점이다. 인근 원자력발전소의 사고 시 일반인의 유효선량기준치는 250mSv이다.

위와 같은 원칙과 규제요건들을 종합하여 경주 중·저준위 처분장의 운영 중 사고 시 성능목표치를 5mSv로 제안하였다. 이 운영 중 사고 시 성능목표치 5mSv의 방사선방어적인 타당성은 5mSv 선량은 일시적이나 급성장애를 유발하는 발단선량보다 훨씬 낮은 값으로 ICRP에서는 개입이 정당화될 수 있는 선량인 100mSv의 1/20에 해당된다. 처분장 시설은 원전처럼 방사능 재고량이 막대하지도 않고 사고의 스펙트럼이 넓은 시설도 아니므로 사고의 영향이 주민에게 심각한 선량을 초래하는 일은 없다. 따라서 어떠한 경우에도 주민에게 수 mSv를 넘는 선량을 초래하지는 않을 것이기 때문에 처분장 운영과 관련해서는 단일한 1년에 대해 일반인에게 허용되는 최대 선량한도 5mSv를 성능목표 또는 설계목표로 선정하는 것은 이 가능하며 충분히 보수적인 수치라고 판단한다. 처분장에서의 사고가 낮은 선량 범위이므로 사고 유형별로 확률에 따라 차등화 할 당위성은 부족하다고 할 수가 있다.

사고시의 선량한도치에 대한 방어위원회의 입장을 정리하면 원칙적으로 규제당국의 보건물리 프로그램에 의하여 설정되어야 한다고 본다. ICRP-81에서는 인간침입 등 사고상황하에서 10mSv에서 100mSv사이를 권고하고 있다. 미국 방사선방어위원회 NCRP에서도 10mSv에서 100mSv/y를 적용을 권고하고 있다. 결과적으로 성능목표치의 설정의 기본 개념은 처분시설의 사고 시 일반인에 대한 성능목표치인 5mSv는 ICRP60에서 정의된 데로 설계자나 평가자가 ALARA 원칙 하에 설정하도록 하는 선량제한치(Dose Constraint)라는 의미로 해석할 수 있다.

제2-2분과

방사성폐기물 처분 (Poster)

Preliminary Investigation of Disposal Characteristics of DAW from NPPs

S. J. Maeng, Y. E. Lee, T. W. Hwang, K. S. Choi

Korea Hydro and Nuclear Power Co., Ltd(KHNP), 25-1 Jang-dong, Yusung-gu, Daejeon Korea

sjmaeng@khnp.co.kr

Introduction

Since Kyeongju was selected as the low-level radioactive waste disposal site in 2005, which had been long cherished wish for nuclear industries in Korea, KHNP has been making great efforts for the timely construction of the disposal facility to meet the goal of accepting wastes in 2009.

In parallel, KHNP has been preparing for characterization of the wastes stored on site, which should be in accordance with both MOST Notice 2005-18 and the Site Specific Waste Acceptance Criteria(WAC) which is under review by the regulatory organization so that wastes from nuclear power plants could be transferred to the disposal facility from 2009. However, there are some wastes produced and stored on site prior to the establishment of the regulations concerned in Korea although mostly they were generated in accordance with shallow land disposal criteria. In this regard, characterization of the wastes is one of the most important factors for evaluation and demonstration of their suitability to the WAC.

The aim of the paper is to preliminarily investigate basic physicochemical characteristics of wastes, especially DAW(dry active waste) stored on nuclear power plant sites for their comprehensive analysis.

Evaluation Methods

Firstly, radioactive waste treatment procedures for DAW were reviewed for their classification, water contents in the wastes, weight and radiation characteristics such as dose rate and contamination and etc. Secondly, statistical analysis on DAW was performed using REM(KHNP's data base management system for radioactive wastes) in order to evaluate its characteristics in comparison with the current draft WAC which will be hopefully approved soon by the regulatory body. Lastly, field investigation on the power plant sites and interview with personnel in charge of radioactive waste treatment were carried out for the study.

Results and discussion

Waste classification and treatment

According to the plant operation procedures DAWs were segregated depending on their physical and chemical forms before they were packaged in 200L or 320L drums. They were found to be classified as 22 groups of wastes which were also categorized as combustibles and noncombustibles. Among the former are plastics, cotton clothes, papers, low-active spent resin and charcoal whereas contaminated soil, sludge, metal scraps and gypsum are among the latter. Number of DAW drums stored on sites by contents is described as in Fig. 1.

Combustibles were compressed in drums after water contents in wastes, especially papers, were removed using high speed extractors and driers. Noncombustibles were mostly packaged in drums without further treatment though some wastes with high void space such as metal scraps were cut into small pieces and compressed. Homogeneous wet wastes such as sludge or low-active spent resin were found to be solidified or dewatered and dried naturally under the relatively dry condition in radiation controlled area before they were packaged in drums. Also most of DAW drums were recompressed for further volume reduction by a 2000t supercompactor.

Water contents

Plant DAW treatment procedures of dewatering and compression clearly indicated that there had been little possibility of exceeding 0.5w/o of free-standing water in DAW. This judgement was quantitatively supported by KHNP's analysis[1] performed on waste drums in 2005, which showed that no free standing water was found although no. of drums for the analysis was limited for comprehensive evaluation of all the wastes. Low-active spent resin among homogeneous DAW thanks to several months of drying process is expected to have water

contents less than the limit. However, nonsolidified sludge needs to be analyzed for their water contents.

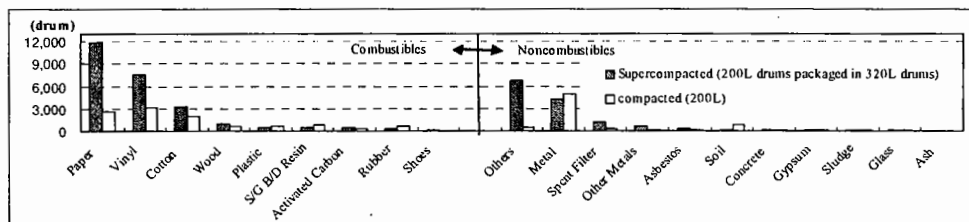


Figure 1. Classification of DAW drums stored on nuclear power plant sites as of December 2006

Radiation

Radiation level of DAW was mostly found to be quite low(fig. 2). No specific problems associated with transportation and handling would be expected. Its nuclide concentration is being measured on sites by drum nuclide assay systems with addition of difficult-to-measure elements by scaling factors whose effectiveness is under review by the regulatory body. However, preliminary evaluation showed that most of its concentration would be well within the WAC limit except few.

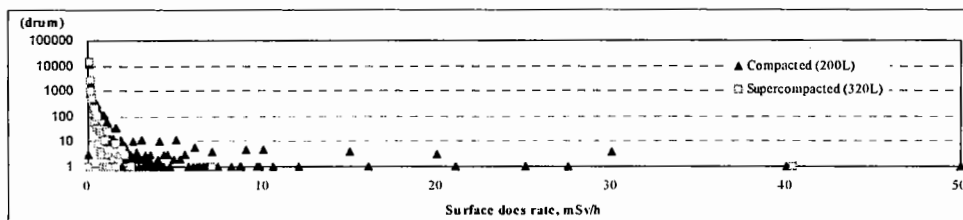


Figure 2. Average γ dose rate of DAW drums stored on sites as of December 2006

Chelating agents and hazardous chemicals

Decontamination agents used for floor and equipment such as RCP internals were investigated to contain very low concentration of EDTA of about 0.05w/o[2] and citric acid of about 2.0 w/o[3] respectively. In addition, as they were used for cleaning of the wet surface and also dewatered prior to packaging, it is reasonable that only small amount of them was absorbed by decontamination papers. KHNP's destructive analysis of drums containing papers showed that the concentration of EDTA was found to be less than 0.1 w/o with peak of 0.42w/o[1], which is well below the concentration limit specified in WAC and supportive of the evaluation above although the investigation was limited to several drums. Portable sprays used for cleaning small devices in a power plant were also investigated for their contents and amounts for a period of 10 months. There were no positive signs of specific chelating agents contained against general expectations.

Conclusion

Core characteristics of DAWs for disposal were reviewed. In terms of free standing water, concentration of chelating agents and radiation level, it is expected that they could meet the current draft waste acceptance criteria and could be transported to the disposal site without specific problems encountered except for highly active wastes and dispersive wastes, which may need further treatment. The investigation results will be used for optimum selection of waste drums for destructive analysis and thus, for giving representativeness for each waste group whose characteristics will be quantitatively compared with the WAC for final delivery to the disposal site.

References

1. "Physical/Chemical Characterization of Radioactive Waste Forms of NPPs," KHNP, Sep. 2005
2. "Telephone Call with Continental Trade Company" 2007
3. "Chemical Decontamination Procedure for RCP internals," KPS, 2003

동굴처분시설 콘크리트 구조물의 열화인자 및 모델 평가

박주완, 정해룡, 김창락

한국수력원자력(주), 대전광역시 유성구 장동 25-1번지

p5i9w@khnp.co.kr

1. 서론

방사성폐기물 동굴처분시설의 콘크리트 구조물은 구조물 내부로 지하수의 침투를 지연시키는 역할과 처분된 폐기물로부터 누출된 오염물질이 생태계(biosphere)로 유출되지 못하도록 제어하는 물리적/화학적 방벽 역할을 수행한다. 현대적인 의미의 콘크리트가 사용되기 시작한지 100여 년에 불과하기 때문에 수백년의 기간동안 서서히 발생하는 콘크리트 구조물의 열화과정을 정확히 예측 혹은 평가하기에는 무리가 따른다. 그러나 처분시설의 장기적인 안전성 관점에서 콘크리트 구조물의 열화평가는 방벽의 열화로 인해 구조물에 가해지는 예상하중에 의한 구조적 건전성의 상실측면보다는 노화된 방벽을 통한 지하수의 유동과 핵종이동에 의해 주위 환경으로 방사성물질의 누출가능성에 초점을 맞추어 실시하고 있다. 본 논문에서는 국내외적으로 발표된 대표적인 방사성폐기물 처분장 콘크리트 구조물의 열화인자 및 열화모델을 종합적으로 고찰 및 분석하였다.

2. 열화인자검토

방사성폐기물 동굴처분시설 콘크리트 구조물의 대표적인 열화인자로 1) 황산염 및 마그네슘 침입, 2) 콘크리트의 수산화알루미늄 침출, 3) 알칼리-혼합재 반응, 4) 콘크리트의 탄산화, 5) 산의 침입, 6) 보강철재 부식 등을 들 수 있다. 이들 인자중에서 동굴처분시설 콘크리트 구조물은 보강철재 부식에 의해 가장 큰 영향을 받는 것으로 알려져 있다. 보강철재에 부식이 발생할 경우 부식생성물은 초기 금속보다 약 3 배 이상 부피가 증가하게 된다. 따라서 팽창으로 인해 콘크리트에 균열이 생기거나 투수성이 증가하게 된다[1]. 그러나 공극수의 높은 pH로 인해 콘크리트내 보강철재 표면에는 보호피막이 형성되어 부식을 억제하는 경향이 있다. 따라서 보강철재에 부식이 일어나려면 먼저, 생성된 보호피막이 파괴되어야 한다. 콘크리트의 탄산화 혹은 염화물 침입에 의해 콘크리트의 pH가 낮아지고, 이로 인해 보강철재의 보호피막이 파괴되게 된다. 일반적인 지하수 환경하에서는 콘크리트의 탄산화는 거의 발생하지 않기 때문에, 염화물 침입을 대표적인 콘크리트 보강철재 부식유발인자로 설정할 수 있다.

3. 열화모델평가

콘크리트 구조물 열화를 평가하는 모델과 메커니즘에 대한 많은 문헌자료가 존재하고 있지만 [2], 이를 요약하면 크게 세가지로 구분할 수 있다. 첫 번째로는 콘크리트 구조물 주변 지하수내에 염화물 농도가 높을 경우에 적용하는 방법으로서, 콘크리트 열화가 염화물 이동(확산)에 의해 지배된다고 가정하여 설명하는 모델이다. 이 모델에서는 콘크리트 표면에서 보강철재까지 염화물의 이동을 Fick's second law로 설명하고 있다. 또한, Fick's second law가 가지는 기본적인 가정인 확산계수가 시간에 따라서 일정한 문제를 해결하기 위해, 확산계수를 식 (1)의 멱함수(power function)로 나타내었다.

$$D(t) = D_R \cdot \left(\frac{t_R}{t} \right)^a \quad (1)$$

여기서, $D(t)$ =확산계수(m^2/s), t_R =비교확산계수(reference diffusion coefficient)가 측정된 시간(s), $D_R=t_R$ 에서 측정된 비교확산계수(reference diffusion coefficient) (m^2/s). 그림 1에는 각기 다른 a 값에서, 보강철재표면(두께: 7 cm)에서 시간에 따른 염화물 농도(relative chloride concentration)를 나타내었다. 그림에 나타난 바와 같이 보강철재에서의 염화물 농도는 a 값에 의해 큰 영향을 받는다는 것을 알 수 있으며, a 값은 콘크리트 종류 및 특성에 따라 달라진다. 일반적으로 방폐장 콘크리트 구조물에 사용되는 콘크리트의 a 값은 0.3 내외인 것으로 알려져 있다[3]. 따라서 a 값이

3인 콘크리트를 사용하였을 경우에, 7 cm 깊이에 있는 보강철재에서 염화물 농도가 콘크리트 표면 염화물 농도의 20% 까지 도달하는데 약 500년의 시간이 소요된다는 것을 알 수 있다. 보강철재에서 염화물의 농도가 염화물 농도한계(Threshold chloride concentration) 이상이 되었을 경우에 부식이 발생하며, 염화물 농도한계는 환경조건에 따라서 달라지게 된다.

두 번째 모델은 지하수내에 포함되어 있는 화학종들이 콘크리트 표면에서 보강철재까지 이류 및 확산에 의해 이동하는 것으로 표현하는 것이다. 지하수내에 포함되어 있는 화학종들이 일정거리 이동한 후에는 콘크리트 내의 성분들과 화학적 평형상태에 도달하는 것으로 가정하고 있기 때문에 다른 모델들에 비해 상대적으로 복잡하게 이루어져 있다.

세 번째는 미국 아이다호 국립연구소(INEEL)내의 고준위 폐기물 탱크의 잔류 폐기물 안전성평가를 위해 미국 에너지성(US DOE)에서 제시한 모델을 들 수 있다[4]. 이 접근 방법에서는 개별 열화인자에 의한 콘크리트 구조물의 열화속도를 경험식을 이용하여 도출하였기 때문에 보다 단순하고 간단한 방법으로 인식되고 있지만, 이전에 설명된 모델들에 비해 보수적인 접근방법을 적용하는 모델로 알려져 있다.

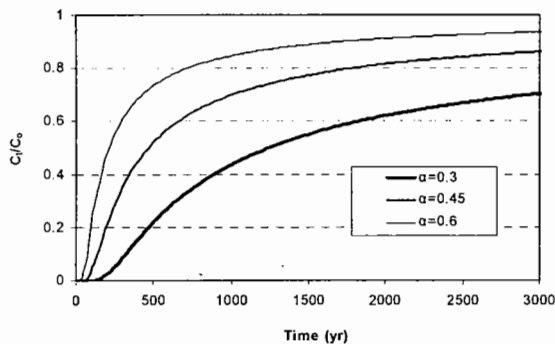


그림 1. 시간에 따른 보강철재 표면에서 염화물 농도.

참고 문헌

- [1] NCRP Report 152. Report of the National Council on Radiation Protection and Measurements (NCRP), "Performance Assessment of Low-Level Waste Disposal Facilities," Bethesda, 2005.
- [2] J.C. Walton, L. E. Plansky, and R. W. Smith, Models for Estimation of Service Life of Concrete Barriers in Low-level Radioactive Waste Disposal, NUREG/CR-5542, September 1990.
- [3] DuraCrete, Design Framework, Document BE95-1347/R1, The European Union-Brite EuRam III, Contract BRPR-CT95-0132, Project BE95-1347, CUR, Gouda, 1997.
- [4] US DOE, The U.S. Department Of Energy Idaho National Laboratory Site Draft Section 3116 Waste Determination For Idaho Nuclear Technology And Engineering Center Tank Farm Facility. U.S. Department of Energy, Idaho Operations Office. No report number. Appendix E. Degradation Analysis of the Grouted Tank/Vault and Piping System at the Idaho Nuclear Technology and Engineering Center Tank Farm Facility And Preliminary Results for the Detailed Analysis of Releases from the Grouted Pipe and Encasement System, 2006.

Disposal of the Radioactive Waste in HANARO for 11 Years

H.Y. Choi, M. Lee, S.J. Kim, H.C. shin, H.W. Kim, T.H. Kim

Korea Atomic Energy Research Institute 150 Deokjin-Dong, Yuseong, Daejeon 305-353, Korea

choihy@kaeri.re.kr

1. Introduction

HANARO has been operated for twelve years since 1995. During this period, the amount of the radioactive waste disposed in HANARO was 660 drums (200 liter per drum) of solid waste except for the ones related to the FTL construction in 2006, and the 365.4 m³ liquid ones. In the case of a gaseous radioactive waste, the activity of Ar-41 as a representative noble gas, and the tritium and I-131 released from the reactor building to the environment were 5.45E+13, 3.17E+13 and 9.86E+8 Bq, respectively.

This report describes how to deal with the radioactive waste depending on its type, how much there is, and how to reduce it in HANARO.

2. Classification of the Radioactive Waste and Methods of Disposal

Solid radioactive wastes in HANARO are categorized into flammable, nonflammable, used resins and used filters. These solid ones of a low and medium level are disposed according to IAEA criteria for a disposal when the heat generation rate is under 2 kw/m³, or the concentration of nuclides emitting alpha ray with a half life of more than 20 years are under 4 kBq/g[1]. Solid wastes are collected separately and packed into drums at the temporary waste storage in HANARO, and then they are moved to the temporary reservation facility in KAERI.

Liquid radioactive waste is collected in a hot shower sump or a reactor sump separately. The hot shower sump is a pit for gathering the water used for washing hands and the body after working. Whereas, the reactor sump is a pit for collecting the liquid waste produced by a leakage and maintenance work of pumps, resins and filters, and decontamination work. If the amount of liquid waste in the sumps reaches 80 % of its capacity, the radioactive concentration in the waste is measured [2]. And then if it satisfies the value of the disposal management criteria, 3.7 x 10⁹ Bq/m³(low level), 1.85 x 10⁵ Bq/m³(extremely low level), the waste is transferred to the liquid waste each storage tank in the RIPF(Radio-isotope Production Facility) and finally is vaporized in the natural vaporization facility in KAERI.

Gaseous radioactive wastes are produced by an activation of dissolved air in the coolant, and that escaping from gaseous fission products in the primary coolant. The air from the reactor hall or the RCI (Reactor Concrete Island) containing the gaseous radioactive materials is released into the environment through the stack via an air filtration system. The main radioactive materials released into the atmosphere are Ar-41, I-131 and H-3. The filtration system is composed of four types of filters, which are a charcoal filter to eliminate the radio-isotope iodine, a HEPA filter as a high effective particulate air filter via a pre-filter and a MOD filter. These gaseous wastes are managed and monitored by a stack monitoring system for detecting the activity of a particle, radio-isotope, noble gas and tritium.

3. The Status of Radioactive Waste Disposal in Accordance of Types

3.1 Solid-type radioactive waste

The total quantity of the solid wastes from 1996 to 2006 was 660 drums constituting of flammable ones of 338 drums, nonflammable ones of 101 drums, the used resin of 107 drums and 112 drums of the used filters. The solid wastes per year were 59 drums on average from 1996 to 2006, whereas, 155 drums only for 2005. That was over 3 times that of the average from 1996 to 2006. Especially, the flammable and nonflammable wastes were increased a lot. Increase of the nonflammable waste was originated from exchanging the doors connecting the reactor hall and the control room to security doors as a part of the physical protection activities in 2005. Crushed wall pieces of a large volume were produced from these works.

3.2 Liquid-type radioactive waste

The amount of liquid waste collected in the hot shower sump from 1996 to 2003 (the liquid waste in the hot shower sump after 2003 was transferred to the reactor sump) was 37 m³ and that for the reactor sump from 1996 to 2006 was 328 m³ which is 90 % of the total liquid waste originating from

HANARO. The most liquid waste of 61.58 m^3 was generated in 1997. It was caused by a decontamination of the heat exchanger in the primary cooling system. The liquid waste of 54.34 m^3 , generated in 2003, was caused by a decontamination of the irradiated silicon ingots for starting the commercial service of the NTD(Neutron Transmutation Doping) and many flow tests for EWS(Emergency Water Supply) systems to confirm its characteristics.

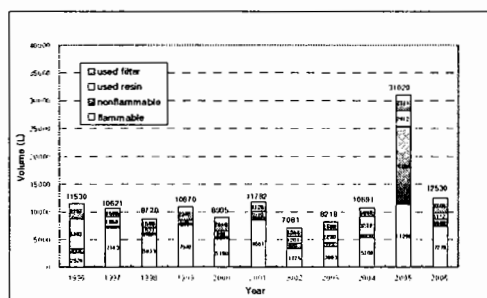


Figure 3.1 Status of the solid radioactive waste
radioactive wastes

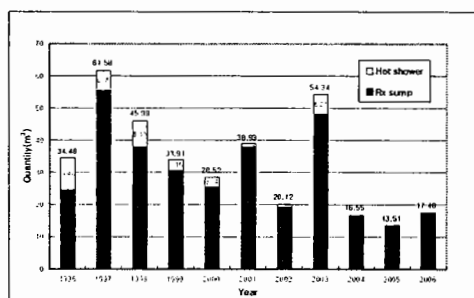


Figure 3.2 Status of the liquid
radioactive wastes

3.3 Gaseous-type Radioactive Waste

The total amount of Ar-41 released from the reactor building was $5.45\text{E}+13 \text{ Bq}$, since HANARO started its operation, and the annual average was $4.95\text{E}+12 \text{ Bq}$. To reduce the generation of Ar-41, a supply device for N_2 gas to the NAA(Neutron Activation Analysis) was installed in 2002 and thereafter the waste was decreased to $4.63\text{E}+10 \text{ Bq}$ in 2006.

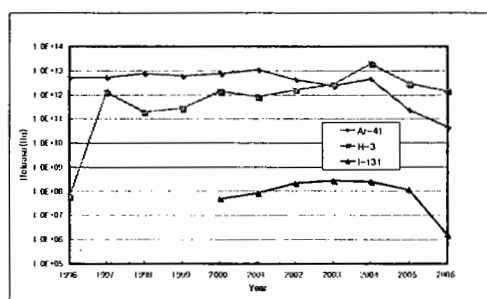


Figure 3.3 Status of the gaseous radioactive
wastes

The total released amount of H-3 was $3.17\text{E}+13 \text{ Bq}$, and the annual average was $2.88\text{E}+12 \text{ Bq}$. The tritium was increased gradually until 2004, but it started to decrease gradually after installing the shield room for keeping the H-3 in the reflector equipment room of the RCI in 2005 [3]. $1.43\text{E}+12 \text{ Bq}$ of tritium was released in 2006, which was decreased to one half of the annual amount of 2005. The total amount of released iodine I-131 was $9.86\text{E}+08 \text{ Bq}$, and the annual average was $1.40\text{E}+08 \text{ Bq}$. The measuring method for the released I-131 was changed, and now analyzes the charcoal filter as collected I-131 instead of a direct detection of air in the HANARO stack.

4. Remarks

The estimated cost to dispose of low and medium level solid waste at the disposal facility of KAERI was about 5,000 USD (a drum) in 2006. A permanent disposal site for low and medium level waste was selected in November, 2005 in Gyeongju, Gyeongsangbuk-do province. The solid waste stored in the KAERI site will be transferred to that site which will have a capacity of 400 drums annually after 3 years. In that case, the expense will be needed more than now. That's why we should reduce the solid waste in HANARO.

REFERENCES

- [1] I.S. Kim, Report on the Radiological Safety in HANARO, 2006.
- [2] B.J. Jun et al., Year-2006 HANARO Operation, KAERI/MR-465/2006, 2006.
- [3] M. Lee et al., The status of the radioactive waste in HANARO in 2005, Korean Nuclear Society, spring 2005.

자연구배 추적자 시험에 의한 수리인자 해석

이은용, 이영동*, 조성일

한수원(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1

*지오택션설탄트(주), 경기도 군포시 당정동 522번지 SK벤티움 102-804

evlee@khnp.co.kr

단열암반 내 지하수의 평균선형유속을 지배하는 유효공극률과 용질의 분산특성은 추적자 시험을 이용하여 정량적으로 해석할 수 있지만 암반 내 불규칙적으로 분포하는 단열의 특성 때문에 시험결과를 정확히 해석하기는 쉽지 않다. 이러한 불확실성이 큰 단열암반의 추적자 시험결과 신뢰도를 향상시키기 위한 연구가 국내외적으로 활발히 이루어지고 있다. 문상호 외(2001)에 의하면, 다양한 추적자시험법 중 자연구배 추적자시험(natural gradient tracer test)에 의한 분산지수의 신뢰성이 가장 높은 것으로 보고되었고, 단공주입양수 추적자시험(single well injection withdrawal tracer test)에 의한 단열암반 내 수리분산 연구와 분산지수 추정(강동환, 2006; 강동환외, 2005; 차장환 외 2003)과 2정주입 추적자시험에 의한 이송-확산 방정식과 모멘트 해석결과 비교연구(박경우, 2003)가 수행된 바 있다. 본 연구에서는 1개의 주입공(SS-6)과 2개의 관측공(SS-6-1, SS-6-2)을 이용하여 연속주입법과 순간주입법에 의한 자연구배 추적자시험 해석결과를 비교하였다. 연구지역의 지질은 중생대 백악기 화강섬록암으로, 추적자 시험 전 공내점층으로 단열분포 상태를 파악하였고 수압시험, 간섭시험, 유향측정을 통해 수리특성을 파악하였다. 시험구간의 수리전도도는 3.79×10^{-7} m/sec이고 주 유동방향은 $226.7 \sim 238.9^\circ$ 로 해석되었다. 추적자는 조사지역인 주입공과 관측공의 초기 전기전도도 값이 $150 \sim 158 \mu\text{S/cm}$ 로서 비교적 낮게 나타나고 수소이온농도(pH)는 6.5이상으로 Rhodamine WT의 농도에 영향을 미치지 않는 것으로 판단되어(김정우 외, 2004), NaCl과 Rhodamine WT를 사용하였다. 주입량은 주입구간에 가압이 걸리지 않는 최적의 양인 분당 4l를 유지하면서 연속주입하였고 관측공의 농도가 추적자의 초기농도(C_0)의 각각 73%(SS-6-1), 57%(SS-6-2)에 도달하였을 때 주입을 정지하고 관측공의 농도회복을 관찰하는 순간주입 상태로 유지하였다. 추적자 주입 후 관측공의 수직적 특성을 파악하고자 자동측정장치(CTD diver)를 이용하여 심도별 전기전도도 값을 측정하였고, 시험구간인 GL. 59m에 EC, 수온, 수위를 측정할 수 있는 CTD diver를 설치하여 1분간격으로 측정하였다. 또한 현장에서 측정된 전기전도도 값의 신뢰도를 확보하기 위하여 일정 간격 샘플러를 이용하여 지하수 시료를 채취한 후 휴대용 EC 측정기를 이용하여 전기전도도를 측정하였다. 추적자 시험결과 산출된 경과시간에 대한 추적자의 농도변화를 이용하여 Breakthrough Curve를 작성하고, CATTI(Computer Aided Tracer Test Interpretation) 프로그램을 이용하여 유효공극률과 분산지수를 해석하였다. 분석결과 연속주입 상에서 종분산지수(α_L)는 $1.0 \sim 1.25\text{m}$, 유효공극률(nf)은 $0.07 \sim 0.068$ 이고(Fig. 1), 순간주입 상에 의한 종분산지수(α_L)는 $1.8 \sim 15.0$, 유효공극률(nf)은 $0.065 \sim 0.0149$ 로 해석되었다. 이러한 시험방법에 따른 차이는 해석 시 표준곡선과 현장자료의 편차에 의한 것으로 사료되며 순간주입법 보다는 연속주입법에 의한 해석결과가 좀 더 표준곡선에 일치하므로 신뢰도가 높은 것으로 판단된다.

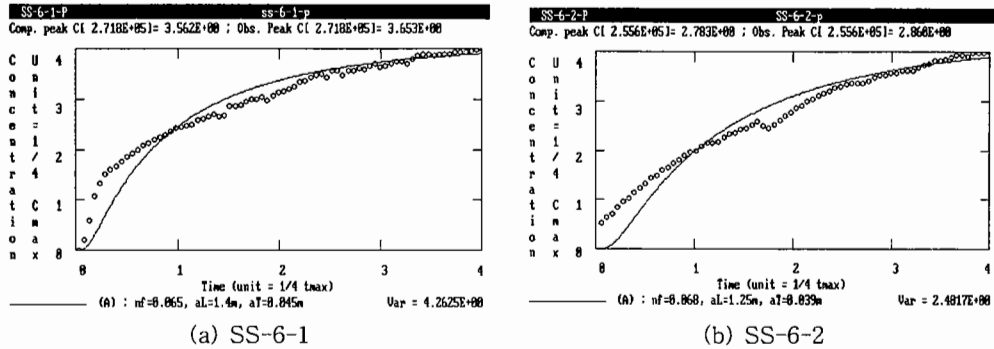


Fig. 1. The results obtained from continuous injection method.

참 고 문 헌

1. 강동환, 2006, 추적자시험을 이용한 단열암반층과 토양층에서 수리분산특성 연구, 박사학위논문, 부경대학교, 148p.
2. 강동환, 정상용, 김병우, 2005, 단공주입양수 추적자시험을 이용한 폐기물매립장 주변의 침출수 확산 연구, 한국지하수토양환경학회 춘계학술발표회, pp.105~109.
3. 김정우, 이진용, 천정용, 이명재, 김형수, 이강근, 2004, 형광추적자 Rhodamine WT의 측정농도에 영향을 주는 요인 고찰, 지질학회지 40권 4호 pp.331~340.
4. 박경우, 김경수, 배대석, 김천수, 조성일, 2003, 비흡착성 추적자시험에 의한 단열대의 수리파라미터 해석, 대한지질공학회 2003년 정기총회 및 학술발표회, pp.139~145.
5. 차장환, 배광옥, 이강근, 2003, 파쇄 암반대수층에서 Push-pull Tracer Test의 현장 적용사례, 한국지하수토양환경학회 춘계학술대회, pp.268~271.

고준위 방사성폐기물의 일반적인 지질학/수리지질학적 처분 개념

박경우, 이민수, 최종원, 배대석, 고용권, 김건영, 김천수
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)
woosbest@kaeri.re.kr

1. 서 론

고준위 방사성폐기물 처분과 관련하여 국제 공동 처분에 대한 논의는 남아 있지만, 일반적으로 고준위 방사성폐기물 처분은 자국 처분을 원칙으로 하고 있다. 자국 처분을 위해 자국내 고유의 지질학적 처분 개념에 대한 이해와 심부지질환경 특성에 대한 연구가 중요한데, 국내에서도 고준위 폐기물 처분을 위해 한국원자력연구원에서 1997년 이후로 심부지질환경 관련 연구를 수행 중에 있다. 본 논문은 2007년 6월 25일부터 28일까지 미국, 라스베이거스에서 ITC와 미에너지성 주관으로 개최된 교육 훈련 내용의 일부로 고준위 폐기물 처분의 기본적인 지질학적 처분 개념 관련 내용에 대해 요약하였다.

2. 본 론

일반적으로 고준위 폐기물의 심부지층처분의 목적은 처분장에서 유출된 핵종이 인류 및 환경에 노출되었을 때 어떠한 위험도 없는 농도로 붕괴 혹은 희석이라는 자연적인 과정을 거칠 때까지 격리시키기 위해서이다. 지질학적 처분의 대상이 되는 폐기물은 사용 후 연료, 유리화된 고준위 폐기물, 장반감기 중준위 폐기물, 원자로 운영 폐기물, 재처리 폐기물, 연료 생산 후 소모된 우라늄, 핵무기 해체 후 생성된 핵분열성 물질과 핵연료 재처리 후 남은 잉여 폐기물(플루토늄, 농축 우라늄)을 포함한다. 이러한 방사성 폐기물을 공학적 방벽 및 지질학적 방벽의 다중방벽 개념을 도입하여 심지층에 처분하게 된다. 심지층 처분모양은 다음의 특성을 갖는 암반으로 고려된다.

- 처분장을 건설할 정도로 단단한 암반
- 폐기물로 부터 생성되는 열을 감쇄시키는 열적 전도성이 좋은 암반
- 저투수성 암반
- 양호한 격리성을 갖는 암반 : 생태계로의 유동 경로가 없을 것
- 자원으로로서의 활용가치가 없는 암반
- 지질학적으로 안정한 암반

현재 국제적으로 화강암, 편마암 등의 결정질암, 화산암, 점토 등의 퇴적암, 암염 돔 등의 해수 기원 증발암 등 크게 세 가지 모양이 고려되고 있으나, 실제 주요한 인자는 모양이 아니라 모양을 둘러싸고 있는 종합적인 환경적 요인(수리지질, 지질, 지형, 지리적 요인)이다

일반적으로 심부 지역은 지하수에 대해 포화된 상태로 존재하는데(미국의 경우 불포화대 처분 고려), 국내의 경우에도 지하수로 포화된 지역에 처분을 고려하고 있다. 이 경우 고려해야할 수리적인 요건은 심부 지하수의 유동량이 극히 적어야 하며, 지하수의 상태가 안정적이고 심부지하수의 연령이 오래된 곳, 지표면 근처의 천부 지하수 유동과 연관이 없을 만큼 깊은 심부 지역, 잠재적인 주요 지하수 유동 경로 적은 지역, 확산 과정이 우세한 지역, 기체가 확산될 수 있는 지역, 폐기물 주변의 지하수 흐름이 허용되는 범위에 있는 지역 등 여러 가지 필수적인 요건을 갖춰야 한다. 위의 여러 가지 요소 중 가장 주요한 요소는 지하수의 유동량이 적은 지역으로 들 수 있는데, 이는 안정적인 상태 및 연력, 천부 지하수 유동과의 연관성, 잠재적인 지하수 유동 경로 및 확

산 등의 여러 가지 요소를 포함하는 요인이 될 수 있기 때문이다. 심부지역에서 지하수 유동량이 적게 하는 요인은 다음의 요건을 만족시켜야 한다.

- 수리전도도가 낮아 지하수의 유동량이 적은 지역이 선호
- 수두 경사가 낮아 지하수 유동역이 낮은, 즉 평탄한 지역이 선호
- 지하수의 열적, 밀도의존 흐름이 없는 지역이 선호되면, 지구조 활동이 있는 지역이나 해안 지역은 선호지역에서 배제되어야 한다.
- 우세 지하수 유동 경로가 없는 지역으로 고투수성 단열 혹은 렌즈형 투수성 퇴적층이 없어야 한다.
- 강수에 의한 지하수 함양이 적은 건조기후지역이 선호된다.

이외에도 지화학적으로 공학적 방벽의 부식 및 고준위 폐기물의 용해를 막기 위해 환원 환경으로 계속 유지될 수 있는 조건을 만족 시켜야 하며, 산화수의 침투 등의 외부 자극에 대해서도 완충 역할을 할 수 있는 지화학적 요건을 갖추는 것이 필요하다. 또한 처분장 부지는 활성 단층과 직접적으로 교차되지 않아야 하며, 활성 단층으로부터 수 백 미터 떨어진 50m~100m 반경의 작은 규모의 단열에서 지진에 의한 변형의 잠재성 및 영향을 인지해야 하는데 이는 현재 스웨덴에서 주요한 지질학적 테마로 대두되고 있다. 지진에 의해 흔들리는 현상은 처분장 깊이에서 주요 관심 거리는 아니나, 지진에 의한 변형 및 변위가 중요하다.

3. 결 론

위의 조건 모두를 동시에 만족하는 최적의 지역을 찾는 것은 매우 어렵다. 예를 들면, 수리전도도가 높은 지역이더라도, 수두 경사가 아주 낮아 지하수의 유동이 거의 일어나지 않는 지역이 있을 수 있으며, 폐기물의 수송 편이성 혹은 이송 사고에 대한 안전성을 고려하여 투수성이 낮으며, 해수의 밀도의존흐름이 크지 않은 해안 지역이 선호될 수도 있다. 즉, 국가 고유의 폐기물 처분 시스템에 따른 지질학적 처분 개념이 확립되어야 하는데, 이를 위해 자국 고유의 대표지질환경(type environments)을 규명하는 연구가 반드시 필요하다. 또한, 분류된 대표지질환경에 따라 처분부지 선정과 관련된 광역적 평가인자(nationwide evaluation factors, NEF)와 부지고유의 평가인자(site-specific evaluation factors, SSEF)를 결정하여야 하는 과정이 필수적이다.

반응성용질이동 모델링을 통한 시멘트의 변질과정과 우라늄의 용해도 모사

최병영, 유시원, 안상원, 장광수, 신선호, 고용권

한국원자력 연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

choiby@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물 매립장의 주요 역할은 핵종이 외부로 누출되는 것을 방지하는 것으로, 10만년 이상 장기간동안 환경적인 위해성이 없도록 완전히 고립화 시키는 것이다. 이러한 목적으로 중·저준위 매립장에서는 시멘트가 인공방벽으로 주로 사용되고 있다. 하지만 시멘트 물질은 매립되고 난 후에는 주변 지하수와의 반응에 의해 변질(alteration)되게 되며 핵종의 이동에 영향을 미치는 공극률, 내구성 등 물리적 특성뿐만 아니라 pH, Eh, 이온농도 등 지구화학적 특성이 변하게 된다. 따라서 시멘트의 변질 과정은 핵종의 거동에 영향을 미치는 중요한 요인이 되며 안정성 평가를 위해서는 이를 예측하는 것이 중요할 것으로 판단된다. 하지만 몇 만 년 이상의 시간 단위를 요구하는 안정성 평가에 있어서, 단 기간의 실험 결과를 통해서 시멘트 변질 과정을 예측하는 것은 한계가 있다. 따라서 본 연구에서는 반응성용질이동 모델링을 통해 10만년 동안 시멘트의 변질 과정을 모사하고자 하였다. 또한 이에 따른 우라늄의 용해도 변화를 살펴보고자 하였다.

2. 실험 및 결과

매립 후 주변 지하수에 의한 시멘트의 용해/침전 반응은 확산(Diffusion)에 의해 주로 일어나는 것으로 알려져 있으며 확산계수는 $10^{-11} \sim 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ 의 범위를 갖는 것으로 알려져 있다. 본 연구에서는 확산만을 고려하였으며 확산계수를 $10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 로 선정하였다. 모델링은 PHREEQC를 사용하였으며 모델의 개념은 Fig. 1과 같이 시멘트 방벽의 두께는 1m로 가정하였으며 길이가 10cm인 10개의 셀로 구분하였다. 전체 모델링 기간은 10만년으로 하였다.

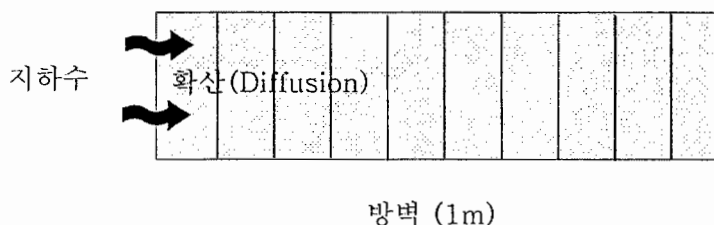


Fig. 1. The concept of transport modeling

시멘트 공극수의 pH 및 화학조성은 포틀랜드 시멘트의 성분과 평형을 가정하여 계산하였으며 주변 지하수는 화강암의 주요 구성 광물인 Albite, Anorthite, K-feldspar와 평형상태에서 구하였다. 그 결과 시멘트 공극수의 pH는 12.996, pe는 -3.353이었으며 지하수의 pH는 8.365, pe는 -4.203이었다.

우라늄의 이온 종은 pH와 Eh에 영향을 받으며 산화/환원 조건에 따라 3, 4, 5, 6가 형태로 존재하는 것으로 알려져 있다. 환원환경에서 U는 4가 형태가 우세하며 산화환경에서는 6가 형태가 우세한 것으로 알려져 있다. U의 고체상은 지하수 조성에 매우 의존적이며 환원환경에서는 UO_{2+x} (안정한 형태는 UO_2 , $X=0.33$ 에는 $\text{UO}_{2.33}$ 또는 U_3O_7)로 침전하는 것으로 알려져 있다. 본 연구에서는 우라늄의 용해도 제한 고체상으로 UO_2 로 하였다.

본 초록에서 연구결과는 10개의 셀중 지하수와 접하고 있는 1번 셀만의 변화를 시간에 따라 제시하였으며 결과는 다음 Fig.2와 Fig. 3과 같다. 모든 축은 변화를 쉽게 볼 수 있도록 log 축을 사용하였다.

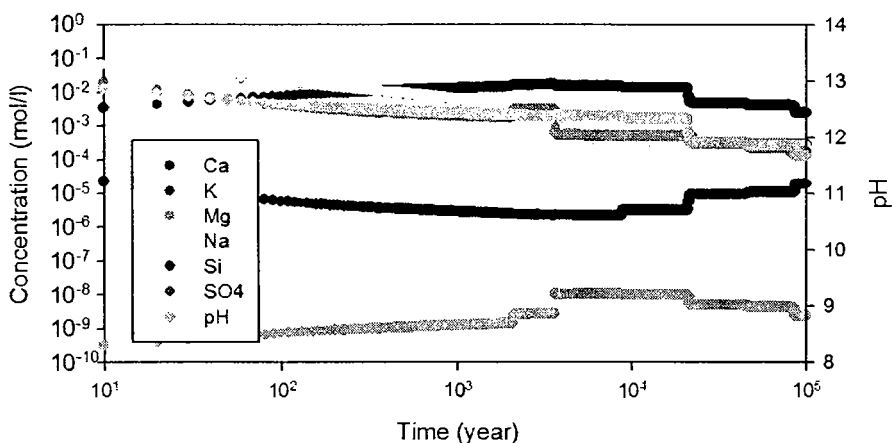


Fig.2. 1번 셀에서 시간에 따른 이온종 및 pH의 변화

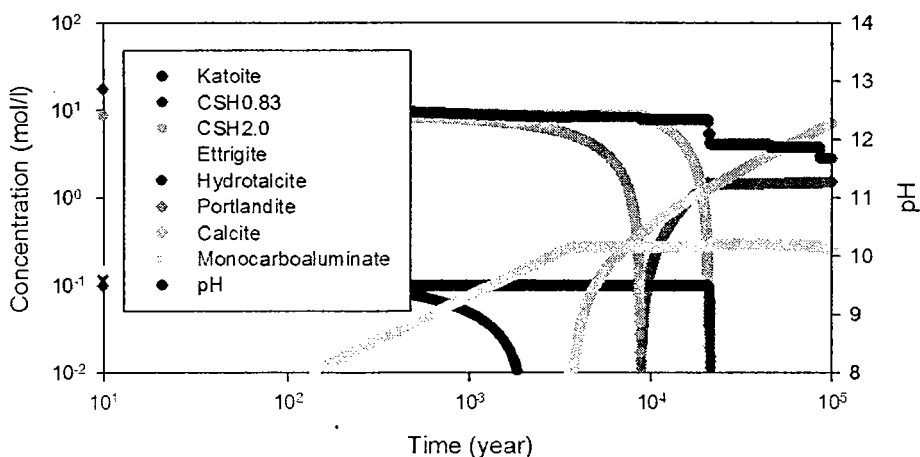


Fig.3. 1번 셀에서 시간에 따른 광물의 용해/침전

3. 결과

본 연구결과 시멘트 방벽은 10만년 후에도 약 50cm(5번 셀)까지는 변질을 받고 있으며 지하수와 접하고 있는 1번 셀의 변질이 가장 심하였다. 1번 셀의 경우 시간에 따라 portlandite>CSH>Calcite 순서에 따른 반응에 의해 pH가 조절되고 있었으며 이들 광물들의 용해/침전반응을 통해 화학조성 또한 결정되고 있었다. pH는 12.996에서 11.6679까지 감소하였으나 pe는 약 -8로 일정하여 우라늄의 용해도는 커다란 변화가 없었다. 본 결과는 장기간 동안 시멘트 변질과 화학 조성을 예측함으로써 처분장 안정성 평가 및 유지관리에도 유용하게 사용될 것으로 판단된다.

방사성폐기물처분의 안전성 평가를 위한 수리지질 인자의 민감도 분석 연구

박경우, 김건영, 지성훈, 김경수, 유시원

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

woosbest@kaeri.re.kr

1. 서 론

일반적으로 해안지역에서 지하수 유동 모델링을 수행할 경우 수두 구배는 해수의 밀도를 고려한 밀도의존 흐름으로 지하수 유동을 해석해야 한다. 이러한 밀도의존흐름과 관련한 지하수 유동에서 입력되는 매질의 주요 수리지질 인자는 지하수 유동 방정식을 풀기 위한 인자 외에 용질 이동과 관련된 이송 확산 방정식을 풀어야 할 인자 또한 제시되어야 하며, 이를 비선형 방정식으로 구성하여 지하수 유동을 해석하게 된다. 전체적인 지하수 유동 체계를 반영하는 각각의 인자에 대한 중요성은 수치모델링의 주요 해석 관점에 좌우된다.

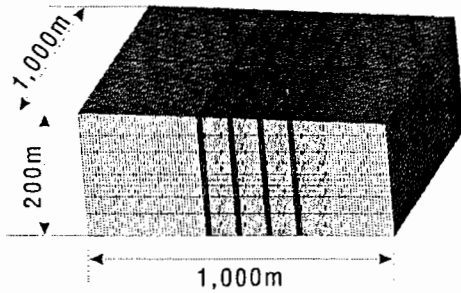
본 연구에서는 해안 지역에서 건설되는 지하공동의 기본적인 개념 모델을 이용하여 지하공동이 건설 후 폐쇄되고, 자연상태의 지하수위로 회복되었을 때의, 수리지질학적 인자에 대한 민감도 분석을 공동에서 노출되는 입자의 이동거리를 기준으로 실시하였고, 이를 통해 해안지역에서 방사성 폐기물의 안정성 평가에서 입력되는 주요인자인 입자의 이동거리를 결정하는 주요 수리인자를 정량적으로 평가하였다.

2. 본 론

지하수 유동 모델링의 수행 목적은 모의 영역내 현재 지하수 유동 양상에 대한 판단 및 향후 수리지질학적인 변수에 대한 지하수 유동 양상의 변화 예측으로 대별될 수 있는데, 현재 지하수 유동 양상에 대한 판단은 수치모의의 목적 및 개념모델에 따라 그 주요한 수리지질 인자가 달라질 수 있다. 즉, 불포화 대수층을 대상으로 하는지, 포화대수층에 대한 지하수 유동 양상을 고려하는지 혹은 지하수 유동에 따른 오염물질의 이송 및 확산을 고려하는지, 지하에 존재하는 공동에서의 수리적 안정성 분석을 목적으로 모델링을 수행하는지에 따라 주요한 수리지질학적 입력 변수가 달라진다.

일반적으로 해안지역에 대한 지하수 유동 모델링을 수행할 경우 해수 밀도에 대한 지하수의 밀도의존성 흐름을 고려해야 하는데, 여기에서 주요한 수리지질인자는 매질의 수리전도도, 함양률, 매질의 공극률, 분산계수 등을 예로 들 수 있다. 각각의 입력 인자의 변화에 대해 수치모델에서 도출되는 결과가 달라질 수 있는데, 어떠한 결과를 중점으로 고려하느냐에 따라 입력 변수의 중요도가 달라진다. 이는 주요 수리지질인자에 대한 모델의 민감도 분석을 통해 현장 수리시험 결과에서 도출될 수리지질 인자에 대한 중요성을 확인해 볼 수 있으며, 본 연구에서는 입자의 이동거리에 초점을 맞춰 민감도 분석을 실시하였다.

개념모델 및 경계조건



본 수치모사에 사용된 모델영역은 가로×세로×높이(1,000m×1,000m×200m)를 갖고 있으며, 우측 경계가 해수에 접해 있다. 지하수 유동관련 경계조건은 우측경계에 밀도영향비를 고려하여 일정수두 경계조건으로 구성되었고, 상부에 함양경계로서 설정하였다. 용질 이동관련 경계는 우측경계에 상대농도 1의 값을 갖는 것으로 두어 해수에 의한 밀도의존흐름 해석을 실시하였다.

민감도 분석 결과

본 민감도 분석에서 고려한 수리지질인자는 함양률, 공극률, 분산 계수, 수리전도도이다.

	Range
Hydraulic conductivity	1E-6 ~ 1E-4 (m/sec)
Recharge rate	1E-4 ~ 10E-4 (m/day)
Porosity	0.03 ~ 0.30 (unitless)
Longitudinal dispersivity	1~10 (m)

3. 결 론

입자 추적기법을 통해 예상 처분부지로부터 생태계로 노출되는 입자의 이동시간을 이용하여 민감도 분석을 한 결과 가장 영향을 주는 수리지질인자는 공극률과 수리전도도로 분석된다. 공극률이 커지면 입자의 이동시간이 길어지고, 공극률이 작아지면 입자의 이동시간이 짧아지는 선형의 비례관계를 보였으며, 수리전도도 또한 이동거리와 정비례관계를 보였다. 그러나, 지하수 유동 모델링에서 매질로 지하수의 input 역할을 하는 함양률은 공극률과 수리전도도에 비해 그 민감도가 떨어졌으며, 종분산계수에 대한 영향은 극히 적은 것으로 판단된다.

즉, 방사성폐기물 관련 지하수 유동 모델링에서 주요하게 고려되어야 할 인자는 함양률과 종분산계수보다는 지하수의 유동 공극률과 수리전도도이며, 입자의 이동시간과 관련하여 적절한 값을 도출하기 위해서 현장 시험시 다른 인자들에 비해 유의하여 그 값을 도출하여야 할 것으로 판단된다.

정상상태에서 Sulfid 물질 이동에 의한 구리용기의 수명 예측

권선주, 황용수

한국원자력연구소, 대전 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

sikw@kaeri.re.kr

지하 처분장에 사용 후 핵연료의 최종 저장에 관한 스웨덴 KBS-3 해석에서 구리용기 수명은 지하수에 있는 sulfide에 의한 균일부식과 점부식으로 추정된다[2, 3]. 본 연구에서는 물질이동 해석을 이용해 구리용기의 수명을 추정하였다. 이를 위해 전기회로의 저항개념으로 물질이동을 표현하였고 각 방벽들에서의 물질이동은 저항의 함수로 표시하였다([1]). 물질이동계수를 나타내는 Peclet number는 높을 때와 낮을 때의 두 가지로 구분하였다. Peclet number가 높을 때는 단열을 통한 물질이동이 지배적이며 Peclet number가 낮을 때는 암반을 통한 물질이동이 지배적이다. Peclet number가 높을 때 단열을 통한 물질이동은 boundary layer theory으로 분석되며 Peclet number가 낮을 때는 prolate spheroid analysis[5]로 분석될 수 있다. 수학적 해석의 방법론은 Chambré[4, 5, 6]가 개발한 정상상태에서의 물질이동계수를 사용하였다.

각 단열로부터 구리에 도달하는 sulfide의 비율은 물질이동계수와 지하수 안의 sulfide의 far-field 농도의 곱으로 나타낼 수 있다([3]). 점부식률은 균일부식의 약 5~25%임을 이용하면 점부식률을 추정할 수 있으므로 여기서는 sulfide가 구리용기를 일정하게 부식함을 가정하고 용기수명을 예측하였다.

단열폭에 영향을 받는 공극속도의 경우에 단열폭이 1mm 보다 작으면 Peclet number 가 작다. 따라서 유속이 느려 sulfide 물질이동률은 암반의 확산저항에 의해 주로 제어된다. Fig. 1에서 단열폭이 1mm 보다 크게 되면 유속은 증가하여 단열을 통한 물질이동에 제어되어 sulfide물질이동률은 증가함을 알 수 있다. Fig. 2는 단열폭의 변화에 따른 용기 수명을 측정을 나타낸 것으로 단열폭이 1cm 인 경우에서도 약 7×10^6 년 이상인 것으로 예측되었다. 따라서 알려진 자료에서의 구리용기는 충분한 안전성을 갖고 있음을 확인하였다. 계산에 필요한 데이터는 해외자료를 이용하였다([2, 3]). 그림에서 data1은 공극속도가 단열폭에 무관한 경우이고 data2는 단열폭에 영향을 받는 경우를 나타내었다.

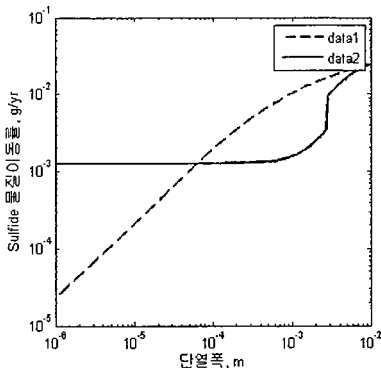


Fig. 1. 단열폭의 변화에 따른 Sulfide 물질이동

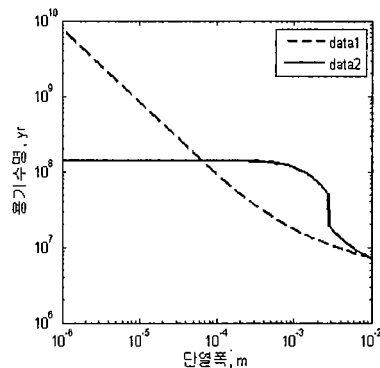


Fig. 2. 단열폭의 변화에 따른 용기수명

REFERENCES

- [1] Youngsoo Hwang, "Transport of contaminants in Geologic media: Radioactive waste in Salt, Corrosion of Copper and Colloid Migration", Ph. D. Dissertation. University of California, Berkeley, 1995.
- [2] Swedish Nuclear Fuel-Supply Co/Division KBS, "Final Storage of Spent Nuclear Fuel -KBS-3", Stockholm, 1985
- [3] G. Andersson, a. Rasmuson, and I. Neretnieks, "Migration Model for the Near Field, Final Report", KBS 82-24, Royal Institute of Technology, Stockholm, 1982.
- [4] P. L. Chambré, T. H. Pigford, Y. Sato, A. Fujita, H. Lung, S. Zavoshy, and R. Kobayashi, "Analytical Performance Models", Report LBL-14842, Vol. II, University of California, Berkeley, 1982.
- [5] P. L. Chambré et al, "Mass Transfer and Transport in a Geologic Environment", LBL-19430, University of California, Berkeley, 1985
- [6] P. L. Chambré, the work of P. L. Cahmbré is presented in the Chapter 4 of Ph. D. theses of C. Kang, University of California, Berkeley, 1989.
- [7] J. Andersson, Swedish Nuclear Inspectorate(SKI), private communication, 1989.

방사성폐기물 처분장에서 기체 발생과 이동 평가

황용수, 권선주, 정미선

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045번지 (덕진동 150)

yshwang@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 및 저준위 방사성폐기물 처분 사업에 있어 기체 발생 및 이동은 처분장 안전성에 영향을 주는 주요 요인들의 하나이다. 심지층에 위치하는 사용후핵연료 처분장의 경우 기체 발생은 처분 구조물의 부식과 C-14 라돈과 같은 일부 방사성 기체 발생을 의미하며 천부 환경에 입지하는 저준위 방사성폐기물 처분장의 경우 콘크리트나 철제 드럼 등의 부식에 따른 수소 및 메탄 기체 발생 문제와 방사성 열화(radiolysis)에 따른 방사 분해 기체 발생 그리고 방사성 기체 발생을 의미한다. 이렇게 발생하는 기체 발생 기구를 정확히 이해하고 이와 같은 이해를 바탕으로 발생률 및 발생량을 산정하고 이렇게 발생한 기체들이 어떤 경로로 외부로 이동하는가를 이해하는 것은 처분장 방사선적 종합 안전성 평가에서 중요하다.

2. 기체 발생 기구

부식 기체 발생은 처분장 지화학 조건에 좌우된다. 구체적인 지화학 조건들은 아래와 같다.

- (1) 호기성 혐기성 부식 기구의 존재 시간: 이를 위해서는 처분장 폐쇄 시 존재하는 산소의 양
- (2) 처분장 폐쇄후 처분장으로 침투하는 지하수의 양
- (3) 처분장 내 기생하는 미생물의 종과 량

이와 같은 지화학 조건의 변화는 궁극적으로 방사성 탄소-14가 이산화 탄소 혹은 메탄 기체로 존재하는가를 결정하게 된다. 기체 발생 기구는 대상 처분 물질에 따라 결정된다. 처분 대상체가 유류 성분을 함유하는지, 셀룰로오스를 함유하고 있는지, 시멘트 물질을 포함하고 있는지, 철 등 금속체를 함유하고 있는지에 따라 발생 기구가 달라지게 된다. 따라서 저준위 방사성폐기물을 처분하는 경우 이와 같은 폐기물 분류에 따라 각 처분 동굴이나 사일로별로 서로 다른 기체 종류에 대한 발생량을 평가해야 한다.

3. 기체 이동 및 평가 방법

이와 같은 기체 발생이 인간을 포함한 생태계에 도달하기 위해서는 공학적 방벽 및 천연 방벽층을 통과해야 한다. 이 경우 만일 공학적 방벽의 기체 투과율이 아주 낮고 기체 발생량이 많으면 기체들이 공학적 방벽 내에 누적되어 기체압을 증가시켜 최악의 경우에는 미세한 구조적 변형을 가져 올 수 있다. 그러나 사용후핵연료 처분과 저준위 방사성폐기물 처분의 경우 스웨덴에서 보고된 바와 같이 기체압 증가로 인한 구조적 변형 가능성을 실질적으로 없다고 알려져 있다. 심지층 처분의 경우 발생한 기체는 기체 상태로 외부로 유출되기는 매우 어렵고 기체가 지하수에 용해된 상태로 이동하게 될 것이다. 불포화매질대에 처분된 경우에는 발생한 기체는 기체 상태를 유지한 채 이동하게 될 수 있으나 불투수층의 존재 여부 등에 따라 유동 경로가 매우 달라질 수 있다. 최종 안전성 평가에서는 이러한 유동 경로를 고려하고 최종적으로 어떤 생태계로 발생한 기체들이 도달하는지에 대한 이해를 통해 정확한 기체 발생으로 인한 추가적인 연간 개인 선량이 예측 가능할 것이다.

감사의 글

이 연구는 과학기술부가 과학재단을 통해 주관하는 원자력중장기 연구개발 사업의 일환으로 지원 중인 처분안전해석 연구에서 수행되었습니다.

Transient Diffusion of Tracers in Aqueous Phases through Crystalline Rocks : Derivation of an Analytical solution and its Application

Chung-Kyun PARK and Min-Hoon Baik

Korea Atomic Energy Research Institute, Daedukdaero 1045, Yuseong-Ku, Daejeon

ckpark@kaeri.re.kr

1. Introduction

In order to evaluate matrix-diffusion effects of radionuclides into a rock-mass, most of researchers used through-diffusion cells assuming source concentrations in a source cell are kept constant with time[1,2]. To satisfy this assumption for highly sorbing tracers, a larger solution reservoir of the tracer is required. Diffusivities of nuclides can be determined from a curve fitting for the diffused concentrations as a function of time with a steady-state diffusion model. When it is allowed the change of the concentration of the nuclides in the source cell, an experimental setup can be established with a simple structure and maintained easily. However, there is not general analytical solutions for such transiently decreasing cases in the source concentration. This study intends to find an analytical solution for an unsteady-state diffusion system and apply it to experimental results of through-diffusion.

2. Unsteady-state diffusion model

When radionuclides move through rock pores in aqueous phase as well as in sorbed phases on a rock surface, the rate of concentration change in the rock can be described as

$$e \frac{\partial C_p}{\partial t} + (1-e)\rho \frac{\partial q}{\partial t} = eD_p \frac{\partial^2 C_p}{\partial x^2} + (1-e)\rho D_s \frac{\partial^2 q}{\partial x^2}$$

It can be reduced to

$$R \frac{\partial C_p}{\partial t} = D_a \frac{\partial^2 C_p}{\partial x^2}$$

Initial and boundary conditions are

$$\begin{aligned} C_1(t=0) &= C_0 & C_2(t=0) &= 0 \\ C_p(x,0) &= 0, \quad 0 < x < 1 & C_p(0,t) &= 0, \quad 0 < t < 1 & C_p(1,t) &= C_2, \\ V \frac{dC_2}{dt} &= -\epsilon A D_p - (1-\epsilon) A \rho D_s \left. \frac{\partial q}{\partial x} \right|_{x=1} \end{aligned}$$

The analytical solution can be obtained by Laplace transform as follows.

$$\frac{C_2}{C_0} = \frac{1}{2+\beta} + 2 \sum \frac{(\beta^2 + \phi^2) \exp[-\alpha \phi^2]}{\phi^4 / 4 + 2(1+\beta)\phi^2}$$

Where, $\beta = D_a t / l^2$; dimensionless time, $\alpha = RA / V$; ratio of sorption capacity of the rock to the solution.

3. Experimental

The experimental setups are separated a cylinder into two blocks by a rock slice as shown Fig.1. The rock disk was fixed in the middle of an acrylate column and sealed with a silicone or epoxy resin. Rock sample was immersed in the groundwater for a month prior to the diffusion experiment. The rock was sampled at the east coast of Korea, which has a porosity of 0.004, the specific surface of $1 \text{ m}^2/\text{g}$ by BET method, the density of 2.55 g/ml , and the cation exchange capacity of $6.8 \text{ meq}/100 \text{ g}$. Both sides of the column were filled with the groundwater and the radionuclides as diffusing species were added in the source side. Tritium and anions were used as nonsorbing tracers, while, strontium, cobalt, cesium, and uranium used as sorbing tracers. The 1 ml of solution was taken from the sampling hole at both sides to measure the concentration change at a certain time interval. When a rock coupon is kept in contact with the solution in the through-diffusion system, radionuclides sorb and diffuse through the rock.

Fig.2 shows the concentration change of a highly sorbing tracer as a function of time. After 10^4 hours, the

concentrations at both sides of the diffusion cell show a trend to approach toward one concentration point, that is, a diffusive equilibrium. The unsteady-state diffusion model is applied to analyze these diffusion curves. At the initial stage of the diffusion, diffusing species are contacted only at the surface of the rock. As diffusion time goes on, contacting surface area and sorbed solutes are increased. When sorption and diffusion occur in the whole rock body, the sorption phase is going to an equilibrium point. Thus a kinetic sorption parameter is required,

$$K_s(t) = \frac{K_d * t}{K_s + t}$$

Where K_s is a constant equal to the time when $K_t = K_d/2$. K_t describes that sorption of radionuclides on the whole rock body increases with diffusing time before the equilibrium state. Then the overall sorption and diffusion process coincides with the unsteady-state diffusion model. The simulated curve fitted well with the experimental data in Fig.2. The calculated D_a is $3.8 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$.

4. Conclusion

An analytical solution is derived and applied for an unsteady-state diffusion system successfully. That system has a simple setup and requires less time to fit the experimental data for sorbing nuclides comparing to the steady-state system. In the aspect of diffusion mechanism, pore diffusion was found dominant for the nonsorbing nuclides, while for the sorbing ones pore diffusion and surface diffusion occur simultaneously. And surface diffusion plays an important role in diffusive transport.

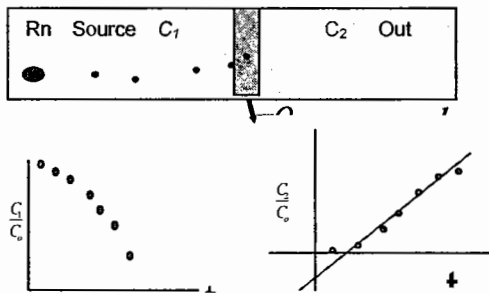


Fig.1 Conceptual diagram of an unsteady-state diffusion for the tracers

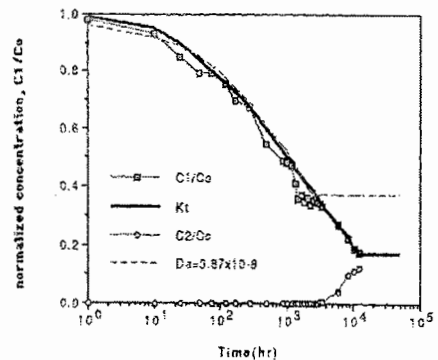


Fig.2 Through-diffusion curve fittings for the tracers

REFERENCES

- [1] Yamaguchi et al., Effective diffusivity of the uranyl ion in a granite, J.of Cont. Hydrol. 26,109, (1997)
- [2] P.S. Hahn et al., Radionuclide behavior at underground environment, KAERI/RR-2326 /2002
- [3] Sardine et al, Interpretation of out-diffusion experiments on crystalline rocks, J.of Cont. Hydrol. 61,339, (2003)
- [4] Y. Ohlsson and Neretnieks,I., Diffusion data in granite, SKB TR 97-20, 2000
- [5] Moreno, Literature survey of matrix diffusion theory and of experiments and data, SKB TR 95-12, 1995
- [6] Moreno, Porosity, sorption and diffusivity data compiled for SKB 91 study, SKB TR 91-16, 1991
- [7] C.K. Park, Park,H.H., and Woo,S.I., "Computer simulation study of transient diffusion of Cs through a granite with unsteady-state diffusion model", J. of Nuc. Sci. Tech., vol. 29(8) p.786, 1992

심지층 처분환경에서의 CANDU 사용후핵연료 처분용기 열/구조 해석

이중열, 이 양*, 조동건, 최희주, 최종원
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)
* SK 건설, 서울 중구 순화동 66번지
nivlee@kaeri.re.kr

1. 개 요

사용후핵연료는 원자력발전소에서 전기생산 후 필연적으로 발생하게 되며, 이러한 사용후핵연료를 안전하게 관리하기 위한 후행 핵연료주기의 완성은 에너지의 안전한 공급과 환경보존을 위하여 필수적이다. 우리나라에서도 중저준위 폐기물 처분부지로 경주가 선정됨에 따라 사용후핵연료에 대한 관심이 높아지고 있으며, 적합한 관리방안 도출을 위한 공론화가 활발하게 진행되고 있다.

고준위 방사성폐기물로서 사용후핵연료 처분의 목표는 일정 기간 동안 인간 생활권으로부터 고준위폐기물을 완전 격리하는 것이며, 이러한 목표를 달성하기 위하여 우리나라를 비롯한 세계 각국에서 심지층 처분시스템 개발 연구가 활발하게 진행되고 있다. 본 연구에서는 직접 처분대상으로 고려되고 있는 중수로 (CANDU)사용후핵연료에 대한 처분용기 개념을 설정하고, 심지층 처분환경에서의 열적 구조적 안정성을 분석하였다.

2. CANDU 사용후핵연료 처분용기 개념 및 열/구조 해석

가. 처분용기 개념

CANDU 사용후핵연료 처분용기는 현재 발전소에서 사용하고 있는 60 번들 용량의 바스켓을 그대로 수용할 수 있는 구조로 하고, 높이 방향으로 7단을 적재할 수 있도록 하여 처분용기의 용량을 420(60번들 x 7단) 번들로 하였다. CANDU 사용후핵연료 처분용기의 규모는 지름 1.22 m, 높이 3.66 m이며 제원 및 단면은 그림 1에 나타낸 바와 같다.

나. 열해석

사용후핵연료를 심지층 지하에 처분시 사용후핵연료의 붕괴열은 안전성 측면에서 처분터널 및 처분공 간격 설정 등 처분시스템을 구성하는데 중요한 인자이다. 열해석을 수행하는데 있어서 주요한 가정 및 열적기준은 다음에 기술한 바와 같고, 해석모델은 그림 2에 나타내었다. 해석 틀은 범용 해석코드인 NISA HEAT 모듈을 사용하였으며, 그 해석결과는 그림 3에 나타낸 바와 같다.

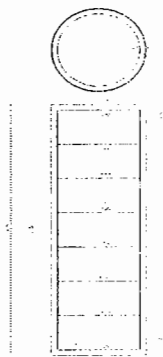


그림 1. 처분용기 제원

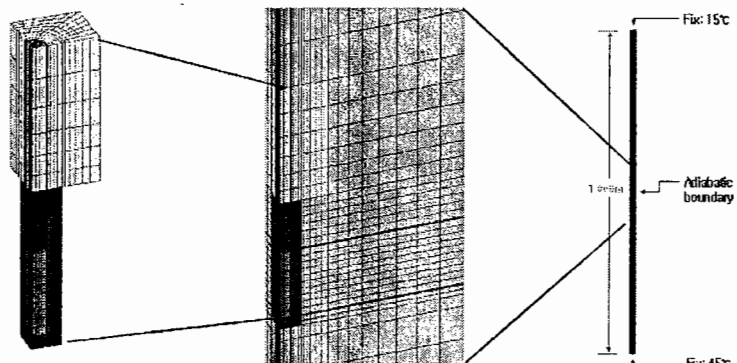


그림 2. 처분용기 열해석 모델

- 처분용기가 처분됨과 동시에 공학적 방벽이 설치되는 것으로 가정
- 방사성붕괴열에 의한 열전달 해석 수행
- 주요지점의 온도변화 예측 및 열적기준 만족여부 확인(열적기준: 완충재의 최대온도 100℃ 이내)

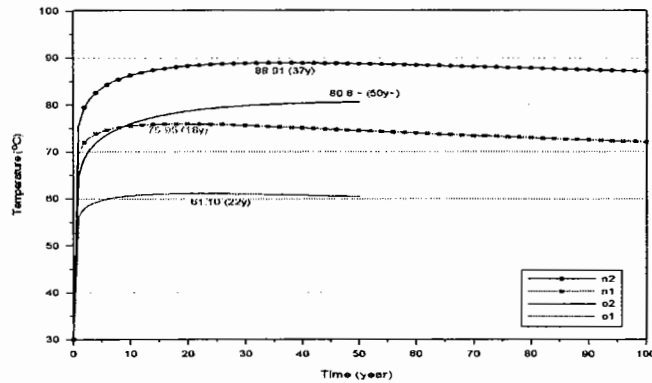


그림 3. 열해석 결과

다. 구조해석

처분용기에 지하 심지층 500 m의 처분환경에서 사용후핵연료에서 발생하는 열응력과 가해지는 외압(수압, 완충재 팽윤압)에 대해서 구조적으로 안정성을 유지할 수 있어야 한다. 본 연구에서 설정된 개념의 CANDU 사용후핵연료 처분용기에 대한 구조안전성 평가를 위한 해석개요는 아래와 같으며, 해석 모델 및 결과는 그림 4에 나타내었다.

- 처분용기의 온도가 최대일 때의 열전달 해석을 수행하여 열응력 입력자료
- 처분심도(500m)의 예상 수압 : 5 MPa
- 버퍼의 팽윤압 : 7 MPa

- Case 2 (normal case): 외벽 12MPa (열응력, 팽윤압, 수압 작용)		result	Max. value	safety factor
	von-Mises stress (for cast iron)		81.1 MPa	2.90 (235/81.1)
	deformation (3X) (for cast iron)		1.47 mm	

그림 4. 구조해석 모델 및 해석 결과

3. 결론 및 향후 계획

본 연구에서는 처분 대상으로 고려하고 있는 CANDU 사용후핵연료의 처분용기 개념을 설정하고 처분환경에서의 열 및 구조적 안정성 분석을 수행하였다. 분석결과 열적 측면에서는 처분용기 표면온도 기준인 100 ℃ 이하를 유지하였으며, 구조적 측면에서는 최대 응력에 따른 안전요소 2.9로 안정성을 유지하는 것으로 판단되었다. 향후 이를 바탕으로 처분효율 향상을 위한 심도있는 분석 및 연구 수행이 필요하다.

한국원자력연구원 지하처분연구시설(KURT)의 암석, 광물, 지하수 지화학 특성

김건영, 고용권, 최종원, 최병영, 신선호

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

kingv@kaeri.re.kr

1. 서론

국내의 고준위폐기물 처분을 위한 연구개발은 과학기술부가 주도하는 원자력중장기연구개발사업의 일환으로 1997년부터 추진되어, 국내 심부지질환경특성에 대한 연구결과와 한국형처분시스템이 제시된 바 있다. 제안된 한국형처분시스템이 사업화 단계에서 직접 설계에 이용되기 위해서는 처분심도와 유사한 환경에서 직접적인 현지 실증시험을 거쳐 전체적인 검증이 이루어져야 한다. 따라서 실제 처분환경에 접근한 현장 실험을 위하여 한국원자력연구소 부지내에 고준위폐기물처분기술개발을 위한 지하처분연구시설(KURT)이 2006년 11월에 완공되어(총연장 255m의 지하터널, 진입터널 180m, 연구모듈 75m, 지표로부터의 심도 90m) 현재 활발한 연구가 수행 중에 있다. 이번 연구는 앞으로 장기적으로 KURT에서 수행될 실증시험에 대한 모암, 광물 및 지하수에 대한 기초자료를 제공하기 위하여 수행된 연구결과이다.

2. 실험 및 결과

현재 KURT내에는 수리/지화학 연구를 위하여 총 11개(20~200m 심도)의 시추공이 설치되어 있으며 이들 중 일부 시추공에서는 지화학 장기모니터링이 수행되고 있다. 지하처분연구시설을 구성하고 있는 화강암과 그 구성광물에 대한 기초자료를 제공하기 위하여 시설내 시추공으로부터 얻어진 시추코아 시료를 대상으로 모암 및 단열충전광물의 암석/광물학적인 분석을 수행하였다. 또한 지하처분연구시설내 물-광물-암석의 지화학 상호반응을 규명하기 위하여 시추공 지하수의 지화학분석 및 열역학자료를 이용한 지화학조건을 비교평가하고 단열광물생성조건 해석을 위한 지화학 진화과정 모델링을 수행하였다.

지하처분연구시설의 모암은 복운모 화강암으로서 국지적으로 흑운모가 우세한 흑운모 화강암의 양상을 보이며, 시설의 일부 구간에서는 편리가 발달한 편상 흑운모 화강암의 양상을 보이기도 한다. 지하처분연구시설내 터널벽과 시추코아에서는 단열대와 관련되어 다양한 정도의 변질 양상을 보여준다. 특히 시추코아에서 관찰되는 일부구간에서는 세립의 황철석의 산출과 함께 열수변질 양상이 관찰되며 일부 단열대에서는 산화철광물이 세맥상으로 산출된다. 신선한 모암의 장석은 알바이트에서 올리고클레이스까지의 조성을 보이고 흑운모는 엔나이트와 흑운모사이의 좁은 범위의 조성을 보이면서 Al이 결핍된 조성을 보인다. 전체적인 연구지역 화강암의 SiO_2 의 함량은 66.4~75.0%로 산성암에 해당되며, 지화학적으로 칼크-알칼린계열 및 I-type에 속하면서 과알루미나 성질을 나타내고, 0.96~1.21범위의 알루미나 포화지수를 갖는다. 전체적으로 SiO_2 성분이 증가함에 따라, TiO_2 , Al_2O_3 , MgO , FeO^T , CaO , P_2O_5 는 감소하는 경향을 보이면서 K_2O 는 증가하는 일반적인 화강암의 분화경향을 나타낸다. 총 REE함량은 19.1~108.0ppm의 범위를 나타내며, 시추코아의 단열대 시료를 제외하고는 (La/Yb)N의 비율이 2.1~37.3으로써, LREE가 부화되고 HREE가 결핍된 양상을 보이면서, 낮은 Eu이상 ($\text{Eu}/\text{Eu}^*=0.38\sim0.88$)을 나타낸다. 시추코아의 단열대 및 변질대에서는 일라이트, 로먼타이트, 녹니석, 녹염석, 몬모릴로나이트, 카올리나이트 등의 단열충전광물들이 감정되었다(Fig. 1). 특히 기존의 KURT 주변 YS시추코아들에서는 지하수 화학분석결과와 열역학데이터를 이용한 계산에서만 추정되었던 몬모릴로나이트와 카올리나이트가 확인되었다. 로먼타이트와 방해석이 가장 광범위하게 산출되며, 일라이트는 산출량은 많지 않으나 산출빈도는 가장 높다. 녹니석은 일부 소규모의 단층대를 따라서 주로 산출된다. 주사전자현미경 관찰에서 로먼타이트는 진형적인 주상의 결정형을 보여주며, 일라이트와 카올리나이트는 판상의 결정형태로 산출

되기는 하지만 매우 낮은 결정도를 보인다. 반면에 녹니석은 전형적인 판상의 결정형의 집합체로 산출된다.

KURT내 지하수 화학조성은 대부분 Ca-HCO_3 유형에 속하며, 일부 아직 시추수에 의한 영향을 받고 있음을 보여주고 있다(Fig. 2). 또한 Ca-SO_4 유형의 지하수 시료들은 이들이 주변 벽의 숏크리트와의 반응영향을 지시하고 있다. 지하처분시험시설내의 시추공에서 현재까지 모니터링하고 있는 산화-환원전위 역시 터널의 굴착에 따른 대기환경과의 접촉으로 인한 산화환경으로의 변화특성을 반영하고 있으며, 시간의 경과에 따라 낮아지는 경향을 보이면서 천부지하수의 유입에 의한 변화특성도 함께 보여주고 있다. 이들 지하처분시험시설내 시추공 및 투수성단열대의 지하수 시료 화학분석결과와 열역학데이터를 이용하여 계산한 대표적인 광물의 포화지수를 살펴보면 로먼타이트, 녹니석, 일라이트, 몬모릴로나이트 등에 대하여 과포화 상태에 있으며 이는 시추코아에서 관찰된 단열충전광물과 일치하고 있다. 이러한 지화학 모델링 결과는 실제로 단열대에서 확인되는 단열광물의 광물조합과 잘 일치하고 있으며, 특히 연구지역내에 방해석보다도 광범위하게 분포하는 로먼타이트 및 심부시추코아보다 상대적으로 천부환경인 KURT내의 시추코아에서 주로 관찰되는 몬모릴로나이트의 분포 양상과 일치한다. 또한 KURT내 심부지하수(DB-01, 150m)가 처분장의 건설에 의해 대기와 접촉하는 환경으로 유입될 경우 심부지하수의 지화학적 특성의 변화를 살펴보기 위하여 지표환경($\text{Pco}_2=10^{-3.5}$ atm)과의 평형 모델링을 수행한 결과는 심부지하수가 지표환경과 접하게 되면, pH가 낮아지면서 방해석을 비롯한 탄산염광물들과 녹니석, 운모류 등은 상대적으로 침전조건으로 변하게 되며, 로먼타이트, 일라이트, 몬모릴로나이트 등은 상대적으로 용해조건으로 변하게 됨을 알 수 있다.

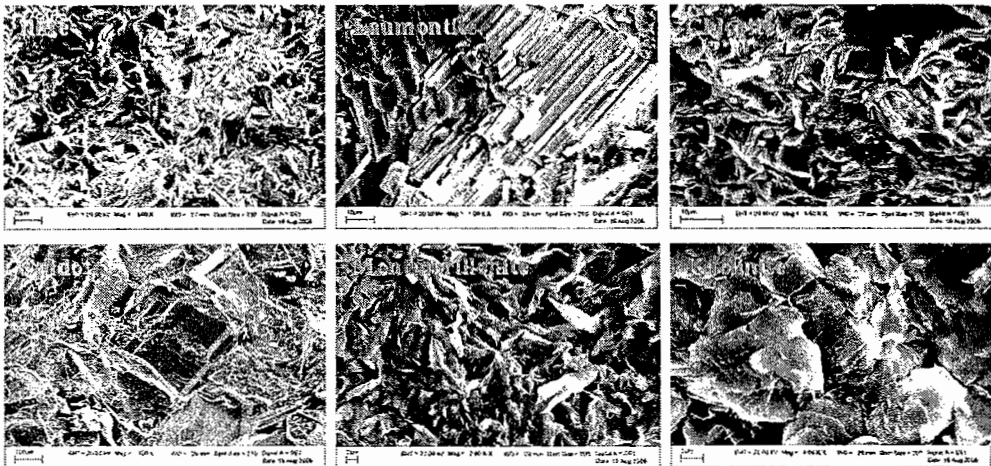


Fig 1. SEM images of fracture-filling minerals in KURT.

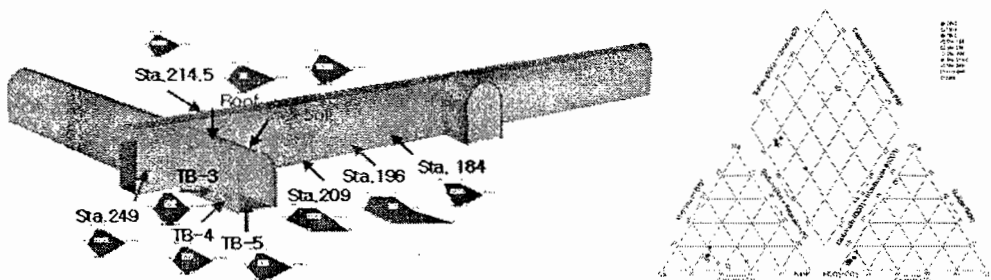


Fig 2. Stiff diagrams and Piper's dargram of water samples from boreholes in KURT.

화강암의 U(VI) 수착에 대한 열역학적 수착모델의 적용

이재광, 백민훈, 이승엽, 김승수, 박정균

한국원자력연구원, 대전 유성구 덕진동 150

iklee1@kaeri.re.kr

1. 서론

지하 환경에서 지하매질을 통한 핵종의 이동은 핵종과 이를 둘러싸고 있는 광물의 반응에 의해 많은 영향을 받는다. 특히 핵종의 광물 표면에 대한 수착은 광물-지하수 계에서 핵종의 이동을 지연시키는 역할을 담당한다. 본 연구에서는 광물과 핵종의 반응, 즉 화강암과 우라늄의 수착반응에 열역학적 수착 모델의 하나인 non-electrostatic surface complexation model (NЕСSCM)을 적용하여 실험결과를 해석하고자 한다.

2. 핵종 수착에 대한 열역학적 수착모델의 적용

화강암의 경우, 매질 표면의 특성이 매우 복잡하여 화강암 표면의 전기적 특성을 고려하는 것이 어렵다. 따라서, 화강암의 우라늄 수착특성을 이해하기 위하여 매질 표면의 정전기적 항을 배제한 NЕСSCM을 적용하였다. NESEM은 표면 특성이 잘 알려진 표면에 적합하지 않으나, 조성이 복잡하고 표면 특성 분석이 어려운 복합광물의 경우에 유용한 방법이다.

수착평가 모델을 단순화하기 위하여 적용한 NESEM에서는 다음과 같은 사항을 가정하였다. 첫째, 표면 수착점 농도는 Davis와 Kent가 제안한 $3.84 \mu\text{moles/m}^2$ 을 적용하였다. 둘째, 화강암의 우라늄 수착은 일부 구성광물의 수착기여도가 큰 점을 감안하여 표면 수착점은 강한 결합을 하는 수착점과 약한 결합을 하는 수착점의 두 가지로 가정하여 탄산이온의 영향을 평가하였다. 셋째로 모델 모사를 단순화하기 위하여 화강암 표면의 반응은 3개 또는 그 이하의 화학종이 반응하는 것으로 가정하였다. Bargar 등 및 Ulrich 등의 연구결과에 의하면 우라늄은 산화철광물과 강한 결합을 하며, 탄산이온이 있을 때 <표면 반응기-U(VI)-CO₃²⁻>의 ternary surface complex를 형성한다. 한편, 화강암의 제타전위는 전 pH 영역에서 (-)를 나타내므로, 양으로 하전된 화강암 표면 작용기(SOH₂⁺)와 우라늄과의 반응은 고려하지 않았다.

두 자리 수착점을 가정하여 NESEM을 적용하는 것은 계산해야 할 변수가 증가하여 불확실도가 증가하게 된다. 따라서, 한 자리 수착점을 가정하여 화강암에 대한 우라늄의 반응 중에서 최적의 조합을 구한 후, 두 자리 수착점 모델에 적용하였다. 한 자리 수착점 NESEM에서는 SOUO₂⁺와 SOUO₂CO₃⁻의 두가지 표면화학종을 가정하였을 때 실험결과 모델 모사결과가 가장 잘 일치하였다. 한 자리 수착점 모델을 통하여 얻은 표면화학종을 대상으로 하여 강한 수착점(SsOH)과 약한 수착점(SwOH)의 두가지 표면 수착점을 가정하여 모델 평가를 수행하였다. 녹니석은 화강암에 1% 미만으로 미량 포함되어 있으나 우라늄 수착기여도는 전체 화강암 구성광물 중 20% 정도로 높게 평가되었다. 따라서, 화강암의 강한 수착점을 녹니석으로 가정하였다. 한편, 전체 수착점 농도에 대한 강한 수착점 농도를 정하기 위하여 강한 수착점을 전체 수착점 농도의 0.1, 0.2, 0.5, 1, 10, 20%로 가정하여 모사결과의 양호도를 평가하였으며, 강한 수착점은 전체 수착점의 1%로 가정하였을 때 모사결과의 양호도가 가장 좋게 평가되었다.

Table 1에 U(VI) 농도가 10⁻⁶M, 탄산이온의 농도가 0.01M 일 때, 고려한 우라늄과 화강암의 표면 반응 및 모델을 적용하여 구한 surface complexes 형성상수를 나타내었다. Table 1에 고려한 반응 외에 SOUO₂OH, SOUO₂(CO₃)₂³⁻, SO(UO₂)₂CO₃(OH)₃ 등의 여러 가지 반응들도 모델에 고려하였으나, 더 좋은 결과를 얻을 수 없었다. Fig. 1에는 화강암에 대한 우라늄 수착실험결과와

NESCM 평가 결과를 나타내었으며, 실험결과와 모델 결과는 비교적 잘 일치하였다. 높은 pH 영역에서 모델 결과는 실험결과를 약간 낮게 평가하였는데, 이는 화강암의 구성광물 중 약 44%를 차지하고 있는 석영이나 장석류 등의 광물들이 알칼리 영역에서 일부 용해되었기 때문일 것으로 생각된다.

Table 1. Surface Reactions and their formation constants from 2-site, non-electrostatic surface complexation model

No.	Surface Reactions	LogK (I = 0.01M)
1	$\text{SsOH} + \text{UO}_2^{2+} = \text{SsOUO}_2^+ + \text{H}^+$	3.24
2	$\text{SwOH} + \text{UO}_2^{2+} = \text{SwOUO}_2^+ + \text{H}^+$	0.39
3	$\text{SsOH} + \text{UO}_2^{2+} + \text{CO}_3^{2-} = \text{SsOUO}_2\text{CO}_3^- + \text{H}^+$	12.32
4	$\text{SwOH} + \text{UO}_2^{2+} + \text{CO}_3^{2-} = \text{SwOUO}_2\text{CO}_3^- + \text{H}^+$	9.58

*SsOH and SwOH denotes strong and weak binding sites.

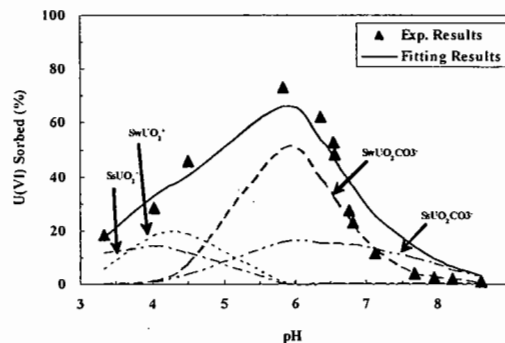


Fig. 1. Model prediction for U(VI) sorption onto crushed granite particles

3. 결론

현장에서 광물-지하수 계는 복잡한 화학적 조성을 가지므로 비정전기적 모델 현장에 직접적으로 적용하기는 어렵다. 그러나, 비정전기적 모델은 핵종의 화학종 분포 특성과 수착 실험결과를 연계하여 복잡한 수착 시스템을 단순화 하는 것이 그 특징이므로 수착에 주도적으로 영향을 주는 인자(예: pH, 탄산이온 농도, 핵종 농도 등)에 대한 모델 평가 자료를 활용하면 현장조건에 부합하도록 복합광물에 대한 우라늄 수착을 예측할 수 있을 것으로 기대한다.

참고문헌

- [1] Davis, J.A., Kent, D.B., "Mineral-Water Interface Geochemistry, Vol. 23, Mineralogical Society of America, 1990
- [2] Bargar, J.R., Reitmeyer, R., Lenhart, J.J., Davis, J.A., "Characterization of U(VI)-carbonato ternary complexes on hematite: EXAFS and electrophoretic mobility measurements", *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 63, 2737-2749, 2000
- [3] Ulrich, K-U., Rossberg, A., Foerstendorf, H., Zanker, H., and Scheinost, A.C., "Molecular characterization of uranium(VI) sorption complexes on iron(III)-rich acid mine water colloids", *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 70, 5469-5487, 2006

Application of comprehensive sensitivity analysis method to HLW disposal concept in South Korea

Takeshi Ebashi and Yong-Soo Hwang*

Japan Atomic Energy Agency, 4-33, Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, Japan

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

ebashi.takeshi@jaea.go.jp

It is necessary to treat diverse uncertainty due to variability and ignorance properly on performance assessment of geological disposal system. In order to enhance the confidence of performance assessment, based on information about influence of uncertainty, it is important to reduce the relevant uncertainty and show the robustness of the system.

In order to reduce the uncertainty effectively, it is essential to judge key factors and identify the high priority for R&D. Such quantitative information as an influence degree of each uncertainty and system performance required from R&D as a target value is effective. Meanwhile, in order to show the robustness of the system, it is necessary to construct the barrier with a sufficient margin. It is important to extract such quantitative information as a system condition which is insensitive to diverse uncertainty, and moreover, to select the high feasibility factor on siting and design provisions based on R&D knowledge.

One of the sensitivity analysis techniques to obtain quantitative information is a comprehensive sensitivity analysis method [1-2]. Information of great influence on a result and the combinations of parameter values that results in doses less than the target value (defined as "successful condition") is obtainable from using the comprehensive sensitivity analysis method(see Fig.1).

In this study, the comprehensive sensitivity analysis method was applied to the HLW disposal concept in South Korea [3-4]. The applicability of the comprehensive sensitivity analysis method was verified, and moreover, quantitative information to contribute to the construction of a robust barrier was extracted and was demonstrated.

This study on the applicability of the method will contribute to efficient R&D planning on the stepwise approach of geological disposal. Also, it will give confidence on the safety of a proposed repository system and direct the optimum way to improve the repository system based on the information extracted from this study. In the future, more detailed computational works will be done to assess the influence of diverse uncertainty quantitatively.

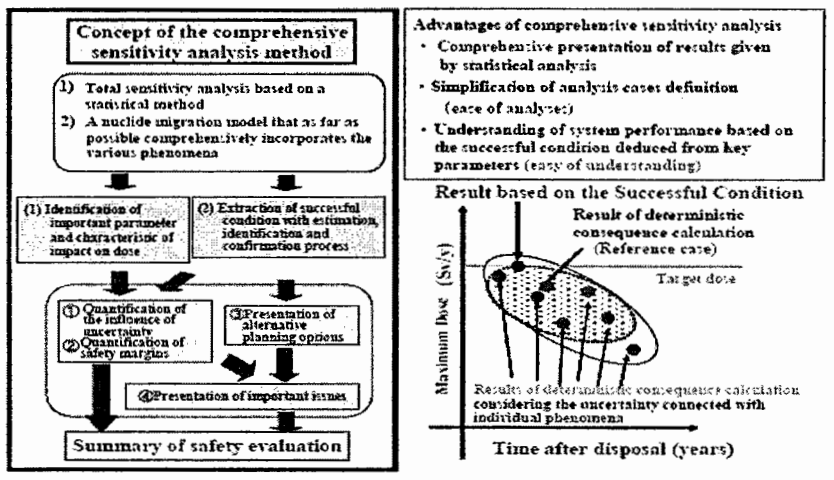


Fig. 1 Characteristics of the comprehensive sensitivity analysis method (refer to [2])

References

- [1] T. Ohi, et al., Application of a comprehensive sensitivity analysis method on the safety assessment of TRU waste disposal in JAPAN, 2006 MRS Fall Meeting, 2006.
- [2] Japan Atomic Energy Agency and The Federation of Electric Power Companies of Japan, "Second Progress Report on Research and Development for TRU Waste Disposal in Japan" @- Repository Design, Safety Assessment and Means of Implementation in the Generic Phase -, JAEA-Review 2007-010 FEPC TRU-TR2-2007-01, 2007.
- [3] Y. Hwang, M. S. Jeong, and C. S. Seo., Safety Assessment for a Potential SNF Repository and Its Implication to the Proliferation Resistance Nuclear Fuel Cycle, Global 2007, Boise Idaho, 2007.
- [4] Y. Hwang et al., Assessment of Post Closure Radioactive Safety for the Korean Reference Disposal System: Development of Scenarios and Quantitative Assessment, ISRSM 2005 Conference, Daejeon, 2005.

PID 방식을 이용한 시나리오 구현방안에 대한 접근

이성호, 황용수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

shlee10@kaeri.re.kr

1. 서론

고준위폐기물 영구처분을 위한 처분장 성능평가를 위해서는 처분장 성능 및 안전성에 미치는 영향들을 상호 독립적인 단위현상, 사건, 공정(FEP)으로 구분하여 수집하게 되며, 이러한 FEP들을 이용하여 발생가능성이 높은 단위 FEP들을 선별하여 처분장 방사성폐기물 종합성능평가에 필요한 시나리오를 개발하게 된다. 개발된 시나리오는 통상 RES(Rock Engineering System) 방식 혹은 PID(Process Influence Diagram) 방식으로 도식화되어, 전문가는 물론 일반인도 처분장에서 생태계까지 방사성핵종의 이동과정을 쉽게 이해할 수 있게 한다.

2. RES 및 PID 방식의 활용 현황

RES 방식은 top-down 방식으로 주요 FEP들을 RES 행렬 내에 인자들로 포함하고 있으므로 주요 Influence를 쉽게 확인할 수 있으나 Influence간의 자세한 상관관계를 도식하기에는 어려움이 있다. 반면, PID 방식은 Bottom-up 방식으로 각 Process간 Influence를 자세히 살펴볼 수 있으나 전체적인 연결방법을 파악하기에는 오히려 힘든 면도 있다. 스웨덴의 경우, SITE-94 Project를 통하여 SKI 주도로 PID를 추진하고 있으며 RES 방식과 병행하고 있다. 영국의 경우, NIREX가 셀라필드 처분사업에 FANFARE S/W를 개발하여 PID를 위한 Tool box를 개발하여 활용하고 있다.

우리나라의 경우에는 PID 전면도입 검토단계로서

- 기본적으로 전문가들이 중요하다고 지적한 주요 반응에 적용할 예정이며,
- 이러한 부분적인 R&D에 적용이 완료되면 전면적인 PID를 확대 적용이 가능하며,
- 이런 PID, RES 간 상호 비교검토를 통하여 보다 신뢰성 있는 안전성 평가의 기반을 조성할 수 있다.

3. RES 시나리오의 PID 방식으로 구현

KAERI가 수립한 시나리오는 기준 시나리오, 용기파손 시나리오, 기후변화 시나리오, 자연재해 시나리오 및 인간침입 시나리오의 5가지 시나리오군으로 구성되어 있으며, 각 시나리오군은 핵종이동, 용기부식, Radiolysis, 역학적 변화, 지하수 등 5가지 세부 시나리오로 구성되어 있다. 이러한 시나리오는 RES 방식으로 세부 시나리오를 각각 표현하고 있으며, 이들 세부시나리오 5개가 모여 각각의 주 시나리오를 구성하고 있다.

본문에서는 기준 시나리오군의 용기부식에 관한 세부시나리오를 파워포인트를 이용하여 PID 방식으로 그림 1과 같이 구현하였다. 그림 1의 PID는 기존 FEP에서 부여한 중요도를 적용하였으며, 3.5.1과 같은 숫자는 FEP No.를 의미한다.

같은 방식으로 나머지 4개 세부 시나리오(핵종이동, Radiolysis, 역학적 변화, 지하수)를 작성하여 그림 1과 병합하면 기준 시나리오에 대한 PID를 완료할 수 있을 것으로 판단된다. 다만, 세부 시나리오 병합과정에서 다른 세부 시나리오에 포함되어 있는 FEP들과의 Influence 관계는 반드시 재확인하여야 한다.

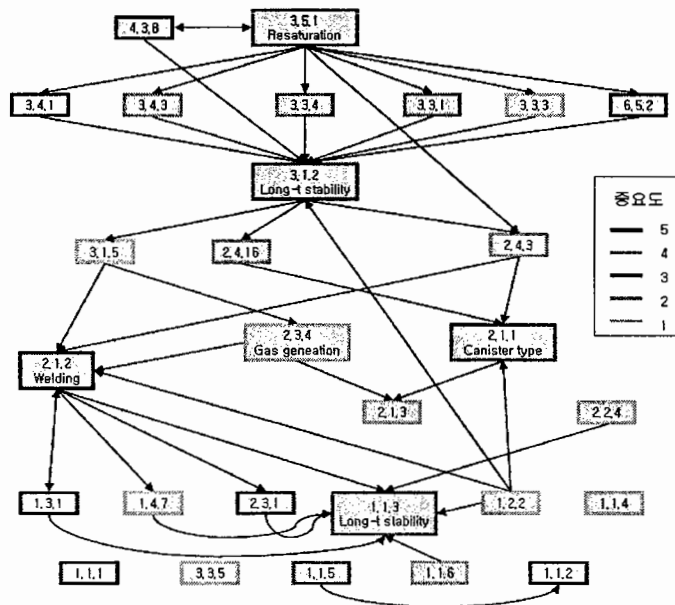


그림 1. 기준시나리오의 일부인 용기부식에 관한 PID

4. 결론

실제 Drawing 과정을 거치면서 RES 시나리오를 PID 방식으로 구현하기 위해서는,

먼저, 메인 시나리오 전체에 대한 PID를 구현하는 것 보다 메인 시나리오를 구성하고 있는 세부 시나리오를 각각 구현한 후, 이를 병합하는 것이 효과적일 것으로 판단된다. 이는 단순하게 표현되어 있는 RES 구성요소를 PID로 표현할 경우 연관 FEP 수와 연결선들이 기하급수적으로 늘어나기 때문이다.

둘째, 세부 시나리오끼리 병합과정에서도 FEP간의 중복 확인 및 Influence의 재확인 이 필요하다. 그리고 FEP간 Influence가 중복되면서 중요도가 다를 경우, 상황에 따라 적절한 표현방안을 마련하여야 한다.

셋째, PID로 구현이 완료된 시나리오에서 역으로 세부 시나리오 진행과정을 확인 할 수 있는 기능이 필요할 것이다. 이는 복잡한 PID에서 Influence간의 연결과정을 이해하는데 큰 도움이 될 수 있다.

마지막으로, PID를 FEP No.로만 표현하는 경우, 구축된 PID를 이해하기 힘들다. 따라서, 컴퓨터로 이를 구현할 경우 Link 기능 등으로 해당 FEP을 쉽게 확인할 수 있어야 한다.

지하처분연구시설 주변의 암반 손상대 발생 연구

권상기, 박정화, 조원진

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

kwonsk@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물 지하 처분장의 건설에 의해 발생하는 암반 손상대(EDZ)은 지하공간 주변의 열적, 수리적, 역학적, 화학적 거동에 영향을 미침으로써 지하 처분장의 성능 구현에 큰 영향을 미친다. 방사성폐기물 처분 연구를 위해 지하 심부 암반에 건설되는 세계 각국의 지하연구시설에서는 터널 주변에 발생하는 손상대 평가가 주요 연구 내용으로 반영되고 있으며 다양한 암반(결절질암, 암염, 점토암, 응회암)에 건설된 지하연구시설에서 터널 주변에 발생하는 손상대 평가를 위한 다양한 연구가 수행되고 있다. 본 연구에서는 한국원자력연구원 내 지하처분연구시설(KAERI Underground Research Tunnel, KURT)에서의 발파에 의한 암반 손상대의 발생 규모 및 특성을 측정, 분석하였다.

2. 실험 및 결과

진입터널 입구에서 60 m 지점에 설치된 길이 8m 의 회차구간에서 Fig.1과 같이 9개의 연구용 시추공을 총 100m 이상 천공하고 발파에 의한 암반 손상대의 특성을 파악하기 위한 현장시험 및 실험실 실험이 실시되었다. 높이 6m, 폭 6m 의 터널을 견고한 암반에 굴착하기 위해 한번에 100kg 내외의 폭약이 사용되었다. 폭발충격에 의한 손상대 발생을 파악하기 위해 실험실 실험에서는 터널 굴착전후의 단축압축강도, 전단강도, 인장강도, 밀도, 공극률, 탄성파 속도 등을 측정, 비교하였으며 현장에서는 Goodman jack 시험, borehole radar tomography, 암석코아 조사 등이 실시되었다. 암석코아 조사결과, 암반 절리 발생빈도에 반비례하는 RQD 값은 발파영향을 받은 0~2m 구간에서 17% 낮게 나타났다. Borehole radar 를 이용하여 발파진행에 따른 균열의 변화를 간접적으로 추정할 수 있었다. 암반의 변형계수 측정을 위한 Goodman jack 시험결과, 발파에 의한 암반 손상은 터널 벽면에서 1.5m 까지 나타났다. Fig.2 는 시추공 6번에서 측정된 수직, 수평 방향 변형계수의 심도에 따른 변화를 보여준다. 암석코아를 이용한 실험실 실험에서는 EDZ 의 크기가 1.1~1.5m 로 추정되었다. EDZ 에서의 암반 물성 변화는 Table 1과 같다.

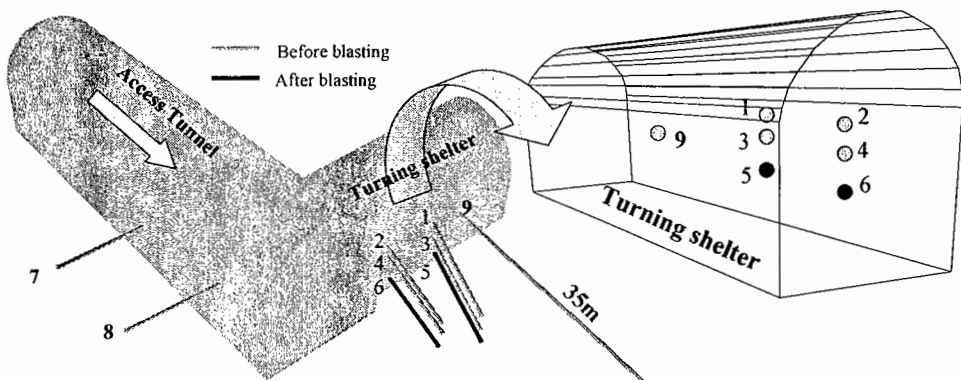


Fig. 1. Boreholes drilled for the in situ EDZ study at KURT

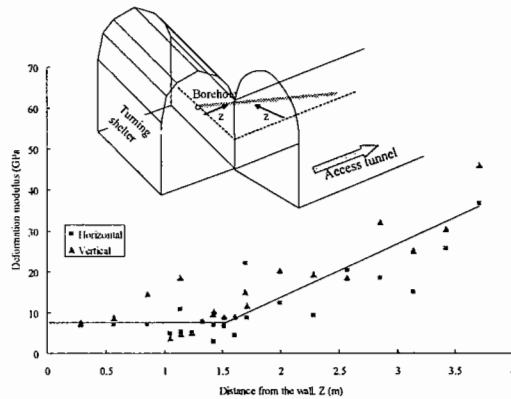


Fig. 2. Deformation modulus change with distance from the wall.

Table 1. Representative results of the laboratory tests.

	EDZ (m)	Property change in EDZ (%)
Uniaxial Compressive Strength	0.9	-14
P Wave Velocity	1.5	-17
S Wave Velocity	1.5	-12
Young's Modulus	1.5	-57
Triaxial Compressive Strength	1.1	-5~11
Brazilian Tensile Strength	1.1	-13
Porosity	> 1.5m	108

3. 결론

고준위폐기물 처분 시스템의 실증을 위해 2006년 완공된 지하처분연구시설에서의 손상대 발생 규모를 평가하기 위한 현장시험 및 실험실 실험이 실시되었다. Goodman jack 시험을 통해 심도에 따른 발파영향의 변화를 비교적 정밀하게 파악할 수 있었으며 이는 암석코아를 이용한 발파 전·후의 암석 물성 측정 결과와 유사한 결과를 보였다. 손상대 구간에서의 암석 강도는 10% 내외의 감소를 보였으며 탄성계수는 57% 감소하는 것으로 나타났다. 현장시험 및 실험실 실험 결과, 발파충격에 의한 손상대 규모는 터널 벽면에서 1.5m 정도로 추정되었다. 이러한 규모의 손상대 발생은 지하수의 유동, 암반의 열적, 역학적 거동, 터널의 안정성에도 영향을 미칠 것으로 예상된다. 따라서 향후 처분장 설계에서는 손상대의 영향을 고려하는 것이 요구되며 암종, 암질, 심도, 굴착방법, 터널 크기, 불연속면의 상태 등에 따른 손상대의 규모 및 손상대에서의 열, 수리, 역학적 특성 변화에 대한 연구가 필요할 것으로 사료된다.

"KENTEX" Operation and Experimental Results on the Thermal-Hydro-Mechanical Behaviors

Jae-Owan Lee and W.J. Cho

Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeok-daero Yuseong-gu, Daejeon 305-353, Korea

jolee@kaeri.re.kr

1. Introduction

The engineered barrier system of a high-level waste(HLW) repository involves complex disposal conditions due to the radioactive decay heat from spent fuels, the infiltration of ground water from the surrounding rock, the thermal loading and the swelling pressure of the buffer, and the stress generated by overburden pressures. These disposal conditions complicate the thermal-hydro-mechanical (T-H-M) behaviors in the engineered barriers because these processes are not independent but may be strongly influenced by and coupled with each other. Therefore, it is of importance to the prediction of a repository performance and eventually the evaluation of its long-term safety, to investigate the T-H-M behaviors of the engineered barriers under disposal conditions. The present paper will be aimed at introducing an engineering-scale test facility named "KENTEX" and dealing with the T-H-M behaviors in the engineered barrier system of the Korean Reference Disposal System(KRS).

2. "KENTEX" Facility and Experimental Results

2.1 "KENTEX" Facility

The KENTEX facility is a third scale of the KRS (Figure 1). It consists of five major components: a heating system, a confining cylinder, a hydration tank, bentonite blocks, and sensors and instruments. The heating system measures 0.41 m in diameter and 0.68 m in length, which includes three heating elements in its inside, capable of supplying a thermal power of 1 kW each. The confining cylinder, which plays a role of the wall of a borehole excavated in the host rock, is a steel body with a length of 1.36 m and an inner diameter of 0.75 m, the inside wall of which is lined with layers of geotextile and the outside wall of which is mounted with 24 nozzles with two metal filters inserted into the inside of each, to uniformly apply the groundwater to the outer surface of the bentonite blocks. The bentonite blocks are fabricated of "Kyungju" bentonite which is being considered as a candidate buffer of the KRS. Total of 176 blocks are emplaced in 16 sections of the confining cylinder. The bentonite blocks have an average value of 13 % of a water content and the average dry density of the bentonite blocks in the confining cylinder is 1500 kg/m³. Total of sixty eight sensors are installed to measure the temperature, humidity (eventually converted into water content), and total pressure. The heater control and data acquisition are operated automatically by means of a computer program.

2.2 Operation and Experimental Results

The KENTEX test which started on May 31, 2005 has been in a successful stage of operation (heating and hydration), except for an electric shutdown on 12 June, 2005 and repairs due to the malfunction of a heater-controlling system on 22 September, 2005 and on 15 April, 2006. When it comes to sensors, more than 99% of the temperature and total pressure sensors remained operative, while the humidity sensors, only one was operative and the rest were malfunctioning. The lack of

hydro data due to the failure of the humidity sensors was supported by using a core sampling (drilling) method.

The temperature reached a steady state in a short time after the test start. The temperature was higher as it became closer to the heater, while it became lower as it was farther away from the heater(Figure 2). The water content had a higher value in a part close to the hydration surface than that in a heater part. The relative humidity data(Figure 3) suggested that a hydration of the bentonite blocks might occur by different drying-wetting processes depending on their position. The total pressure was continuously increased by the evolution of the saturation front in the bentonite blocks and thereby the swelling pressure(Figure 4). There was also a contribution of the thermal expansion of bentonite and the vapor pressure in the pores of the bentonite blocks, near the heater region.

3. Conclusions

The KENTEX test has been under a successful operation. The experimental results obtained may allow us to draw preliminary and quantitative conclusions on the T-H-M behaviors in the bentonite blocks. This test will still continue for a couple of years ahead. Also, a coupled T-H-M modelling will be conducted to explain the observed T-H-M behaviour and to verify the hypothesis of the T-H-M processes in the bentonite blocks. Final conclusions will be drawn based upon the results of those further works.

REFERENCES

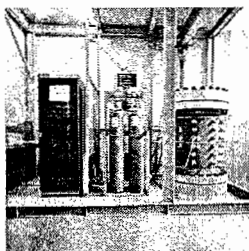


Figure 1. Picture and schematic diagram of the "KENTEX" facility.

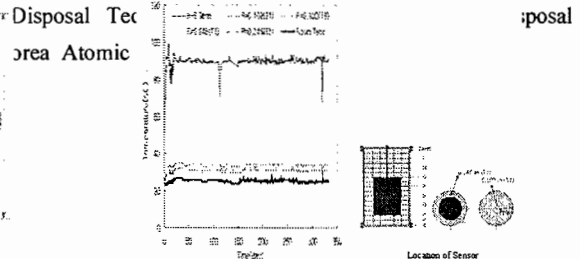


Figure 2. Temperature distribution as a function of height at $R=0.246$ m.

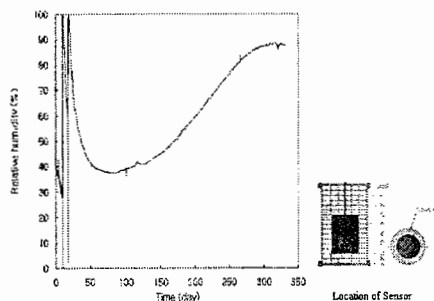


Figure 3. Evolution of the relative humidity at $H = 0.34$ m and $R = 0.246$ m.

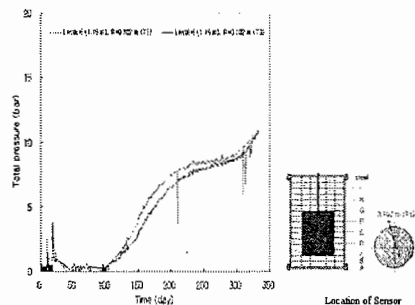


Figure 4. Evolution of the total pressure at a Level = I (1.19 m).

가상 처분장 부지에서의 지하수 유동 해석

정미선, 황용수, 이연명

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

jeongms@kaeri.re.kr

1. 서론

처분장 폐쇄후 방사성 핵종들이 지하수에 용해 및 유출되어 공학적, 천연 방벽을 통과하여 생태계로 유출되는 경로는 중요하다. 이와 같은 유출 경로의 정보는 매질별 이동 시간(traveling time)과 이동 거리(path length)로 대별되어 MASCOT 등 종합 안전성 평가의 입력 자료로 활용된다. 또한 지하수 유동 현상은 방사성 핵종 농도의 희석과도 밀접한 연관이 있다. 즉 처분장을 관통해 방사성 물질의 포화된 고화체를 용해시켜 외부로 유출시키는 지하수 유입량과 최종적으로 생태계에 유입되는 유입량을 비교하면 희석 효과를 산출할 수 있다. 본 연구에서는 이러한 관점에 주안점을 두고 우리나라 지형의 특성에 맞는 사일로형 동굴 처분에 대한 지하수 유동 평가 기법을 정립하고 이를 통한 정량적인 평가를 시도 하였다.

2. 지하수 유동 평가 방법 및 결과

평가 대상 지역은 왼쪽에 지하수 유동을 구획할 수 있는 고산지대가, 오른쪽에는 바다가 존재하므로 이를 고려한 평가가 필요하다. 특히, 해안지역에 처분 지하 동굴이 입지한다고 상정할 경우, 밀도가 담수보다 높은 해수 침투로 인해 지하수 유동이 변화하고 특히 처분장의 경우 해수가 처분 동굴로 침투할 경우 콘크리트 방벽의 열화를 촉진시키고 점부식을 통해 폐기물이 거치된 드럼통을 빨리 부식시킬 개연성이 있으므로 정확한 지하수 유동 평가를 위해서는 해수 존재를 고려한 경계 조건들을 설정해야 한다. 모델링 대상 지역 선정 시 왼쪽 경계 조건은 높은 산의 존재로 인해 불투수 경계 조건이 유효하며, 육지 상부 지역에서는 지하수위에 따라 경계 조건이 설정되었으며, 육지 상부지역에서는 지하 수위에 따라 경계 조건이 설정되어야 하며, 바다에서는 염수를 고려한 경계 조건이, 오른쪽에서는 지형 특성을 고려해 불투수 경계 조건이, 하부는 불투수층의 존재를 고려해 불투수 조건이 설정되었다.

지하수 유동 해석에는 NAMMU 코드를 사용하였다. 그림 1과 2는 수치해석을 위한 평가 지역의 2차원 그리드 구성도와 사일로의 위치를 나타내었다. 보다 정확한 지하수 유동 해석을 위해 실제 평가에서는 NAMMU의 기능을 사용하여 격자망을 세분화하였고, 정확한 수치해를 얻기 위해 격자망 세분화(grid refinement)에 따른 해의 수렴 현상을 면밀히 조사해 해의 정확성 판별을 위한 수단의 하나로 활용하였다.

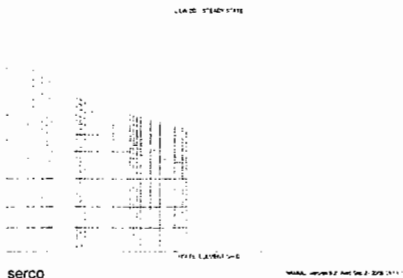


Fig. 1 Grid Structure

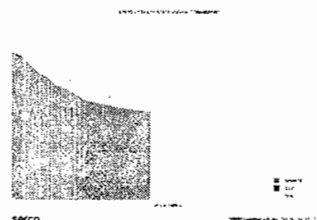


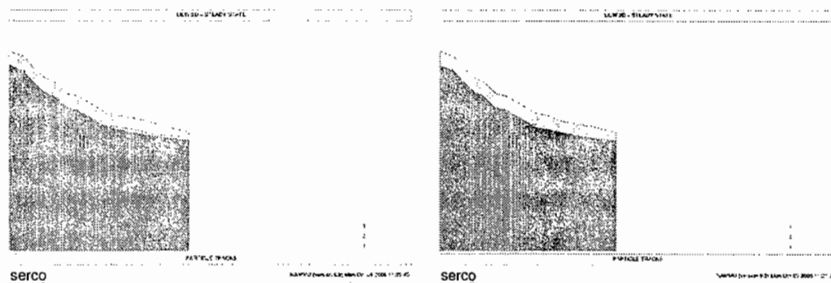
Fig. 2 Silo position

표 1은 NAMMU코드를 이용한 지하수 유동 평가 입력 자료인 투수계수와 공극률을 나타낸다.

표 1. 입력 자료 일람표

ITEM	Permeability(m ²)	Porosity
SOIL	6.0×10^{-14}	0.05
GRANITE	1.0×10^{-15}	0.0074
SILO	1.0×10^{-17}	0.15

그림 3은 해수의 영향을 고려하지 않은 경우와 고려한 경우에 대한 지하수 이동 경로를 각각 도시한 그림이다. 각 사일로로부터의 지하수는 암반층과 풍화암층의 접면을 따라 이동하고 있다.



(a) No effect of the salt

(b) Effect of the salt

Fig. 3 Groundwater pathway from silo

표 2는 해수가 각 사일로에 유입되는 유량들에 미치는 영향을 알아보기 위해 나타낸 것이다. 해안에 가까이 있는 사일로일수록 사일로에 유입되는 지하수의 양은 줄어들고 있으며, 해수의 영향을 고려한 경우가 해수의 영향을 고려하지 않은 경우보다 유입되는 유량도 많다.

표 2. 사일로로의 유입되는 지하수 유속량

Silo	유입되는 유량(m ³ /year)	
	해수의 영향 무시	해수의 영향 고려
1	5.39E+01	5.07E+02
2	4.84E+01	7.73E+01
3	3.41E+01	1.26E+01

3. 결론

방사성 폐기물 처분장에서의 지하수 유동은 해수의 영향을 받아, 지하수 이동 길어도 짧아지고, 사일로에 유입되는 유량 또한 감소한다. 따라서 해안에 처분장 건설시 이에 대한 충분한 고려가 요구된다.

감사의 글

이 연구는 과학기술부와 과학재단을 통해 주관하는 국가 원자력 중장기 연구개발 사업의 일환으로 수행되었습니다.

회수성을 고려한 CANDU 사용후핵연료 처분터널에 대한 열해석

차정훈, 이중열*, 최희주*, 김상녕

경희대학교, 경기도 용인시 기흥구 서천동 1번지

* 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

chamanse@nate.com

원자력발전으로 인하여 발생하고 있는 사용후핵연료의 안전한 관리는 현재와 미래의 인간과 자연을 보호하고, 지속적이고 안정적인 에너지 공급을 위한 필수 조건이다. 우리나라의 경우 사용후핵연료 관리에 관한 정책이 결정된 바가 아직 없으나, 한국원자력연구원에서는 위와 같은 사용후핵연료를 안전하게 심지층에 처분하고자 1997년부터 고준위폐기물 처분시스템을 개발해 왔다. 최근에는 기존 시스템에서 처분밀도를 향상시키고, 회수가 용이한 모델 개념이 도입된 새로운 시스템을 개발하고 있다. 이와 같은 새로운 시스템은 기존 시스템을 위해 수행된 열해석과 열원 및 열전달 현상에서 큰 차이가 있어 새로운 열해석이 필요하다.

본 연구에서는 새로운 시스템 조건을 적용시킨 열해석을 위하여, 우선 ANSYS CFX코드를 이용하여 처분터널 간격에 따른 터널의 외벽 온도를 계산하였다. 이 결과는 앞으로 수행될 터널내부의 실린더 및 각종 구조물의 열해석을 위한 기초자료로 사용될 것이다.

한국형처분시스템 기본설계에 따라 처분장 심도는 500m이고, 지표면 암반의 초기온도는 15℃로 가정하였다. 해석영역은 지표에서 지하 1000m까지로 설정하였으며, 100m당 3℃의 온도가 상승한다고 가정하여 지하 1000m의 암반은 45℃를 유지 하고 있다고 가정하였다. 처분될 CANDU 사용후핵연료는 30년간 중간저장 되었으며, 그림1과 같은 처분용기에 420다발(60다발×7바스켓)이 저장된다고 가정하였다.

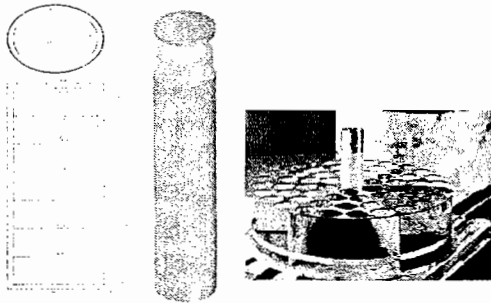


그림 1. CANDU 사용후핵연료 처분용기 및 바스켓

표 1. 계산시 사용된 주요사항

항 목	내 용
초기농축도	0.711 wt.%
방출연소도	7.5 GWD/MTU
우라늄량	19.1kg/bundle
30년 후 붕괴열	약 3W/bundle
터널내 처분용기 수	320 용기/터널
처분용기 용량(CANDU)	60bundle×7basket

CANDU 처분터널을 모사함에 있어서, 처분터널의 한쪽면에서는 30℃의 공기가 일정하게 존재하고, 내부열원은 각 터널당 320개의 CANDU 사용후핵연료 처분용기로 부터 약 403 kW가 발생한다고 가정하였다. 계산 모델은 다음 그림과 같이 한쪽 암반 방향으로만 단열되고 다른 쪽으로는 또 다른 터널이 존재하고 있다고 만들었다. 위와 같은 조건을 적용하여 정상상태에서 CANDU용 처분터널이 가지는 외벽의 온도를 터널간격 30m, 40m, 90m, 150m 마다 계산하였다.

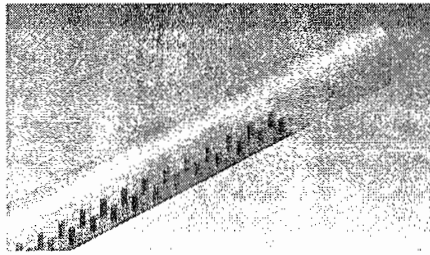


그림 2. 터널내부 이미지

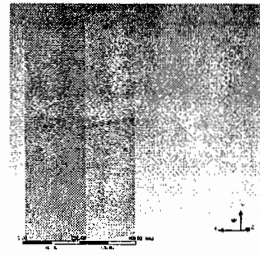


그림 3. 계산수행 모델

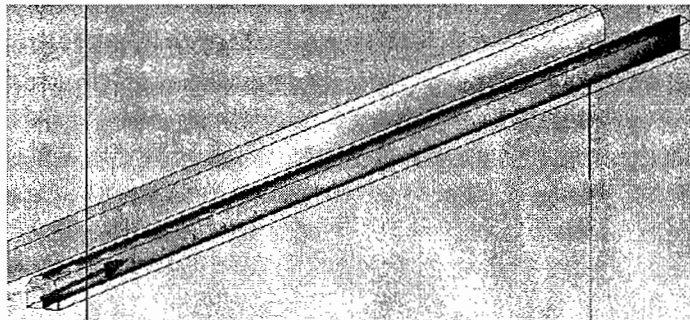


그림 4. 터널 내부의 공기흐름

위 그림과 같이 터널 내부에서는 부력이 작용하며 자연대류로 인하여 열전달이 이루어진다. 터널 외부와의 기압차에 의해 터널 입구로 부터 30℃로 유지되는 공기가 흡입되고, 터널 내부에서 가열된 고온의 공기는 배출된다. 터널의 지붕, 옆면, 바닥의 최대 온도 값을 표2와 그림5에 나타내었다.

표 2. 계산결과 값

간 격	평균벽면온도 [℃]	온도(지붕①, 옆면②, 바닥③)[℃]
30m	36	40.0, 38.8, 37.5
40m	36	40.4, 38.8, 37.6
90m	36	39.7, 38.8, 37.5
150m	35.9	39.6, 38.7, 37.3

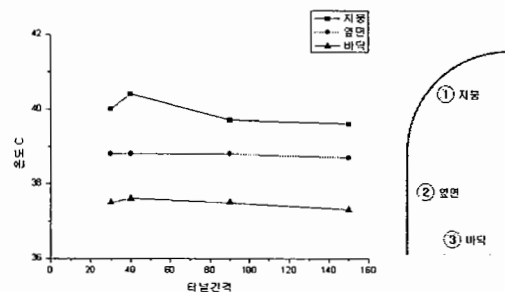


그림 5. 계산결과 그래프

계산결과 터널사이의 간격에 의한 외벽의 평균 온도는 거의 일정하고, 각 부분별 최대온도도 크게 차이가 없음을 그래프를 통해 알 수 있다. 향후 터널 내부의 실린더 및 내부시설의 온도 계산 시, 위에 계산된 각 터널 부위의 최대 온도를 터널 외벽에 적용하여 열해석을 수행할 것이다.

참고문헌

1. 한국원자력연구원, “고준위폐기물 처분기술개발”, KAERI/RR-2765/2006, 2006.
2. 조동건, “심지층 처분시스템 설계를 위한 기준 사용후핵연료 선정 및 선원항 평가”, KAERI/TR-3084/2005, 한국원자력연구원, 2005.

지하처분 시스템의 장기적 변화 모델 고찰

이민수, 최희주, 이종열, 정종태, 김성기, 조동건, 최종원

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

minm@khnp.co.kr

1. 서론

사용후 핵연료 혹은 고준위 폐기물에 대한 한국형 지하처분 시스템은 현재 개념 설계가 어느 정도 정리된 상태이다. 방사성 폐기물은 구상주철용기에 저장한 후, 구리로 된 Canister에 밀봉된다. 그리고 구리 Canister는 약 500 m 지하에 위치한 포화 결정질 암반에 위치한 처분공에 넣은 후, 완충재 및 채움재로 밀폐된다. 이상과 같이 언급된 지하처분 시스템은 핀란드나 스웨덴 등에서도 채택하고 있으며, 현재의 지하처분 개념은 향후에 있어서도 기본적인 틀은 크게 변하지 않을 것으로 보고 있다. 따라서 다음 단계로 고려되어야 할 사항은 일단 처분이 완료된 후, 수세기 혹은 그 이상의 세월이 흐르는 동안 지하처분 시스템에서 Canister, 완충재, 채움재 및 암반 등이 어떻게 변해가고 안정화 상태가 어떻게 될 것인지에 대한 다방면의 고찰이 된다. 종합적으로 처분장의 열적 변화, 성분 변화, 압력 변화를 장기적으로 추정할 수 있어야 하며, 이를 통해 처분장의 포괄적 안정성 평가를 할 수가 있게 된다(그림 1). 여기서 핵종의 유출에 따른 처분장의 안정성 평가는 별도의 연구 주제로 남기며, 본론에서는 처분장의 장기적 변화를 이해하는 데 필요한 여러 가지 모델들을 살펴보았다.

2. 본론

처분장의 장기적 변화는 여러 가지 물리적-화학적 과정들이 복잡하게 얽힌 문제로 볼 수 있다. 따라서 서로 다른 과정들에 대한 개개의 수학적 모델링을 도출하고 최종적으로 융합하여 하나로 연계된 포괄적인 모델을 창출하는 것이 최종 목표라고 할 수 있다. 기본적인 변화 모델로서는 Source-term Model, Thermal model, Rheology Model, Corrosion model, Chemistry Model 및 Canister interior model 등이 된다.

Source-term Model : 초기 사용후 핵연료의 조성이 확립되어 있다면, 붕괴 방정식과 Bateman's equation 을 통해 시간적 변화를 계산하는 것이 용이하다. 이를 통해 시간에 따른 발열량을 산출할 수 있어야 한다.

Thermal Model : 처분장의 사용후 핵연료에서 나오는 열로 인해 시간에 따라 처분장 온도가 증가하는 것을 계산할 수 있어야 하며, Canister 주변의 온도 분포도 알 수 있어야 한다.

Rheology Model : 처분 초기에는 완충재는 수력학적 평형상태에 있지 못하다. 암반은 포화 상태이지만, 완충재는 주위 여건에 따라 다르겠지만, 포화하는데 수십년의 시간이 소요될 것으로 예상된다. 포화된 이후에는 완충재에서는 팽윤압이 발생할 것이고, 이로 인해 뒤채움재를 압박하는 현상도 나타날 것이다. 수학적 모델링을 통해 이러한 과정동안 완충재의 밀도 및 압력분포를 알 수 있어야 한다.

Chemistry Model : 완충재 내의 공극수와 지하수는 구성 성분에 있어서 차이가 있으며, 점진적 확산에 의해 최종적으로 지하수로 대체될 것으로 보고 있다. 이러한 확산 거동은 온도 의존성이 높으며 평형에 이르는 시간 또한 상당히 긴 것으로 예측된다. 화학적 모델링을 통해 평형에 이르는 동안의 완충재 및 공극수의 성분변화를 파악할 수 있어야 한다. 특히 공극수의 pH 및 이온조성은 완충재의 안정성과 관련이 깊다.

Corrosion Model : 구리는 지하 500 m의 결정질 암반에서 상당히 안정한 금속으로 인정되고 있

다. 처분 초기에는 완충재 내의 불순물에 의한 부식이 있을 수 있다. 지하수에는 매우 낮은 농도의 산화제가 있으므로, 이들이 완충재 내로 확산하는 과정이 전체적인 부식을 좌우할 것으로 예상된다. 부식 모델을 통해 구리 안전한 Canister의 두께를 결정할 수 있어야 한다.

Canister interior model : 이 모델은 Canister 표면의 예상치 못한 결함으로 인해 그 내부로 물이 스며드는 것을 이해하기 위한 것이다. Canister 내부와 주위와의 압력 차, 그리고 이로 인한 물의 흡입량, 철의 혐기성 부식과 수소 발생과 이에 따르는 내압의 형성과정 등이 포함된다. 이 모델을 통해 내부 주철용기의 두께 및 물의 흡입량 등이 산출되어야 한다.

Integration : 실제 앞서 열거된 별개의 모델들은 상호 의존성을 갖고 있다. 하나의 모델에서 도출된 결과는 다른 모델에 입력 변수로 사용될 수도 있기 때문이다. 그러나 각 모델들 간의 상호 의존성은 경우에 따라서 달리 나타난다. 완충재의 화학적 모델은 그 평형에 이르는 기간이 수천년에서 수백만년에 이르게 되므로 열적 모델은 그다지 중요한 변수가 아닐 수도 있다. 모델링의 최종 목적이 처분장의 안정성 평가에 있는 만큼, 모델링을 통해 정확한 수치를 얻는 것 보다는 우리가 처분장이 우리가 원하는 성능을 보일 수 있는지 모델링을 통해 확인하는 것이 더 중요하다.

3. 결론

처분 시스템을 모델링 하는 첫째 목적은 여러 가지 하부 모델링을 통해 하나의 정형화된 표준 처분 시스템 모델을 개발하는 것이다. 이를 통해 처분장의 장기 안정성을 평가하는데 유용하게 활용될 수 있다. 처분장에 존재하는 여러 가지 유동적인 변수들이 장기 안정성에 미치는 영향을 우리는 개발된 모델을 통해 빠르게 제공할 수도 있다. 그리고 종합적인 모델링을 통해 여러 변수들에 있어서 처분장의 장기 안정성에 미치는 민감도를 파악할 수 있으며, 체계적인 접근도 가능하게 한다.

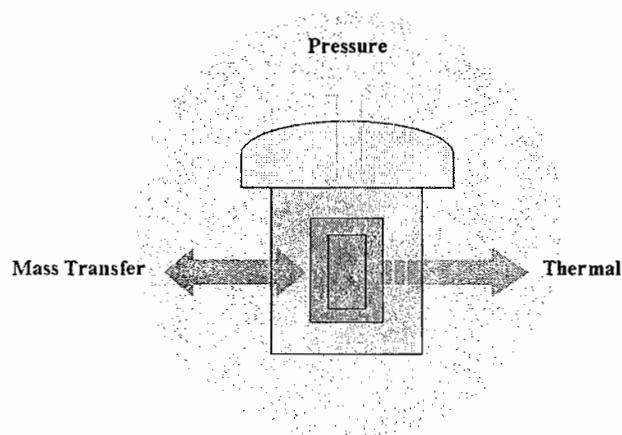


그림 1. 지하 처분시스템에서의 Canister 주변의 장기적 환경 변화

A-CANDU 처분용기 제조원가 분석

김성기, 이민수, 최희주, 최종원

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 대덕대로 1045 (덕진동 150)

sgkim1@kaeri.re.kr

1. 서론

현재 원자력연구원에서 기존의 개발된 CANDU 처분용기의 개념을 변경하여 처분용기내 사용후 핵연료를 좀더 많이 수용할 수 있는 경제적인 처분용기로 변경하기 위해 Advanced-CANDU 처분용기를 개발 중에 있다.

사용후핵연료를 인간생태계로부터 안전하게 장기간 격리하기 위해 처분용기는 공학적 방법으로 처분시스템의 중요한 구성요소로 인식되고 있다. 스웨덴[2,3], 캐나다 등은 이러한 처분용기에 대한 비용을 이미 평가한바 있으며, 한국에서는 2006년부터 여러 가지 비용평가방법에 의한 좀 더 정확한 원가추정을 추진하고 있다. 한국형처분시스템의 개념설계에 따르면 36,000톤의 우라늄을 심부암반에 처분하기 위하여 처분용기는 14,210개가 필요한 것으로 분석되었다.

본 논문에서는 기존의 CANDU 처분용기를 기준으로 A-CANDU 처분용기의 단위당원가와 총원가를 비교분석하여 개발된 A-CANDU 처분용기의 원가절감효과를 분석하였다.

2. 제조원가산정 조건

처분용기는 크게 내부용기와 외부용기로 구성된다. 한국형처분장의 개념설계에서 기존의 CANDU 처분용기[1]와 A-CANDU 처분용기를 비교하면 그림 1과 같다. 기존의 CANDU 처분용기에 비해 A-CANDU 처분용기의 주요 원가동인과 관련된 원가변경요인은 다음과 같다. 첫째, 처분용기의 외부용기 재질인 구리철의 두께가 5 cm에서 1 cm로 축소되었다. 그리고 외부용기 제조방법이 구리코팅으로 변경되었다. 둘째, 용기규모가 길이 4.83m와 직경 1.02m에서 길이 3.66m와 직경 1.22m로 변경되었다. 셋째, 처분용기당 수용변들은 297변들(33변들 x 9단)에서 420변들(60변들 x 7단)으로 증가하였다. 넷째, 이러한 처분용기의 제원이 변경됨에 따라 CANDU 사용후핵연료 16,000tU를 처분하는데 필요한 처분용기 개수가 2835개에서 2005개로 감소되었다. 처분용기 제조원가는 제품별로 PWR과 CANDU로 식 (1)과 같이 표현할 수 있으며, CANDU 처분용기의 제조원가는 원가함수를 선형으로 가정하면 식 (2)와 같이 크게 직접비와 간접비로 나눌 수 있다[4].

$$C = c_i(x_1, x_2), \quad x_1 : PWR \text{ canister}, \quad x_2 : CANDU \text{ canister} \dots\dots\dots(1)$$

$$C_i = r_1y_1 + r_2y_2 + \dots\dots\dots + r_ny_n$$

$$= \text{직접원가} + \text{간접원가}$$

$$= (\text{가격} \times \text{직접원가 투입물의 수량}) + (\text{간접원가배부율} \times \text{원가동인의 측정치}) \dots\dots\dots(2)$$

식 (2)에서 배부율은 금액의 단위로 계산하며, 원가동인의 측정치는 예를 들면 작업도 시간과 같은 것을 의미한다. A-CANDU 처분용기의 구리코팅 방법에 대한 원가산정조건은 표 1과 같다.

3. 결론

그림 2는 상기의 조건으로 기존의 구 CANDU와 A-CANDU 처분용기에 대한 단위당 제조원가와 처분용기의 총원가를 계산한 것이다. 그림 2에서와 같이 A-CANDU 외부용기 원가는 구 CANDU 용기에 비해 약 15% 감소하였다. 또한 용기 총원가는 32%가 감소되는 효과가 있는 것으로 분석되었다. 결국 처분용기의 제조원가에서 구 CANDU 처분용기의 총원가인 약 6,000억에서

A-CANDU 처분용기의 총원가가 약 3,997억으로 감소되어 약 2,003억의 원가절감효과가 있는 것으로 분석되었다.

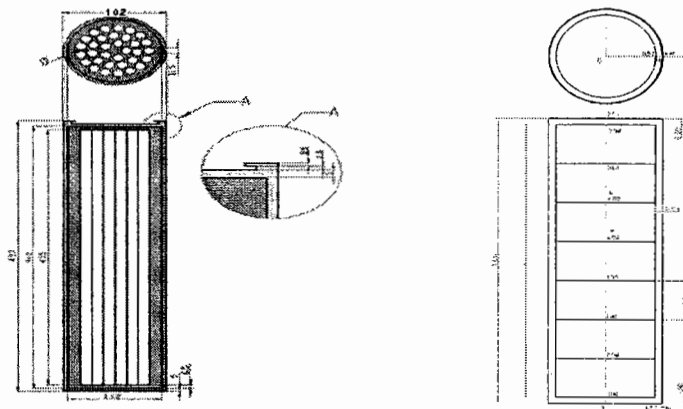


Fig. 1. Conceptual design of the KDC-CANDU(구 CANDU) and A-CANDU canister

Tab. 1. Assumption to calculate costs for the A-CANDU canister.

구리분말가격	5만원/kg	코팅무게	1,414,444g
적충률	80%	코팅시간	420분(7시간) * 10대(장비)
구리두께	1 cm	장비대수	저온분사장비 : 10대, 질소발생기(N100 용량 4대)

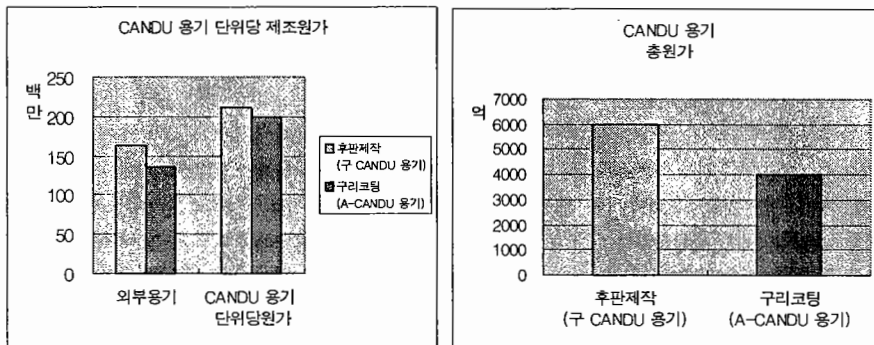


Fig. 2. Costs of the KDC-CANDU & A-CANDU canister

참고문헌

1. 최종원 등, 2005, 사용후핵연료 처분용기(KDC-1)의 예비개념설계연구, KAERI/TR-2936.
2. C.G. Anderson, 2002, Development of fabrication technology for copper canisters with cast insert - Status report in August 2001, SKB-TR-02-07.
3. C.G. Anderson, P. Eriksson and M. Westman, 2004, "Status report, canister fabrication", SKB-TR-04-23 .
4. Horngren, Charles T., et al, 1994. Cost Accounting a Managerial Emphasis, Version 8.0, Prentice-Hall Press, USA, pp 47~49.

Cyprus를 활용한 단일 정보 관리 시스템 개발

한지웅, 황용수, 이성호, 명노훈*, 김종현*, 김윤재*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

* 고려대학교, 서울 성북구 안암동

jwhan@kaeri.re.kr

방사성 폐기물 처분 관련 연구에서는 처분 기술 개발 이외에도 이해 당사자들의 처분 시스템 안전성에 대한 신뢰성을 구축하는 것이 매우 중요하다. 이러한 신뢰성을 구축하기 위하여 각종 기술 개발 및 안전성 평가들의 이력에 대한 투명성을 확보하기 위한 다양한 방법들이 활용되고 있다. 해외의 경우 방사성 핵종 관련 자료에 관한 수치 정보를 그래픽 인터페이스를 이용하여 접근할 수 있는 OECD Nuclear Energy Agency의 JANIS(Java-based nuclear information software)[1], 부지 관련 특성 자료 및 연구를 체계적으로 정리, 관리할 수 있는 SKB의 SICADA(Site Characterization Database), 처분기술과 관련된 다양한 정보의 등록, 변경 및 효율적인 관리를 위한 JAEA의 JGIS(JNC Geological Disposal Technical Information Integration System)[2] 등이 있다. 국내의 경우 한국수력원자력(주)에서 부지환경 종합관리 시스템[3]을 개발중이며, 한국원자력연구소에서도 중장기 원자력 연구 개발의 일환으로 방사성 폐기물 처분 연구 관련 정보를 투명하고 체계적으로 관리하기 위하여 사이버 연구개발 플랫폼인 CYPRUS(Cyber R&D platform for radwaste disposal in underground systems)[4]를 구축하여 현재 시범운영 중에 있다. CYPRUS는 방사성폐기물 처분 안전 해석에 필요한 입력 자료 분류 및 활용을 위한 PAID 시스템, 방사성폐기물 처분 관련 연구사업에서의 품질 보증 원칙인 T2R3에 입각한 웹 기반 QA 시스템, 방사성폐기물 처분과 관련된 단위 현상들을 기술한 FEP 목록 및 시나리오 개발을 위한 FEAS, 그리고 관련정보를 문서화하는 기능을 수행하기 위한 Documentation으로 구성되어 있다. 또한 CYPRUS는 전술한 기술 정보의 투명하고 체계적인 관리 이외에도 Web기반 기술을 바탕으로 개발되어 전문가뿐만 아니라 이해 당사자들도 다양한 방사성 폐기물 처분장 관련 안전성 평가 자료에 보다 쉽게 접근하고 이용할 수 있도록 하였으며, 이는 처분 안전성에 대한 이해당사자들의 신뢰도를 한층 증대시키는 데에도 기여할 것으로 기대된다. 그러나 이를 위해서는 CYPRUS에 기록된 입력 자료 및 평가 자료를 이해당사자에게 쉽게 전달할 수 있는 web based interface를 개발하는 것이 필수적이다.

현 CYPRUS는 각종 자료 관리를 위한 뛰어난 기능을 이미 갖추고 있으나 핵종이동의 주요한 이동 경로인 단일 정보에 대한 시각적 모사 기능을 갖추지 못하고 있다. 이러한 단일 정보 수치 값을 도시하는 방법으로는 스테레오넷이나 로즈 다이어그램과 같은 방식이 많이 사용된다. 따라서 본 연구에서는 CYPRUS내에서 단일 정보를 관리하고 web based interface를 통하여 그래프로 도시하는 기능을 개발하는 것을 최종 목표로 하여 PHP언어를 활용하여 개발이 진행되고 있는 스테레오넷과 로즈다이어그램의 개발 현황을 소개하였다.

이러한 interface는 추후 개발될 Process Influence Diagram 등과 함께 이해당사자들의 처분 안전성에 대한 신뢰도를 한층 증대시키고, 전문가들에겐 기존 자료들을 보다 쉽게 분석할 수 있도록 하는 데에 기여할 것으로 기대된다.

참고문헌

[1] <http://www.nea.fr/janis/>

[2] Katsushi Shibata, Hitoshi Makino, Keiichiro Wakasugi, Masairo Uchida, Development of the JNC Geological Disposal Technical Information Integration System, *サイクル機構技報*, NO.21, pp.79-88, 2003.

[3] http://www.khnp.co.kr/tech/add_nri2002/sub06.htm

[4] CYPRUS 종합처분안전해석 정보시스템 개발, 한국방사성폐기물학회 춘계학술대회, 2007

고준위폐기물 처분장의 운영 안전성 평가 방법론

정종대, 최희주, 최종원

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

jtjeong@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력발전으로 인하여 발생하는 사용후핵연료를 포함한 고준위폐기물의 영구처분은 인간과 자연을 보호하는 유일한 방법으로 간주되고 있다. 우리나라의 경우, 사용후핵연료의 관리정책이 아직 결정되지는 않았지만 한국원자력연구원에서는 원자력중장기연구개발을 통해 사용후핵연료를 포함한 고준위폐기물을 지층처분하기 위한 시스템을 개발하고 있다. 이에 의하면 국내의 처분개념은 지하 500미터 정도의 심지층 결정질 암반에 다중방벽 개념에 기초한 처분시스템을 건설하고 사용후핵연료를 처분하는 것이다. 이러한 처분연구에 있어서 중요한 부분 중의 하나는 안전성을 확보하여 국민의 신뢰를 얻는 것이다. 본 연구의 주된 목적은 처분장의 운영 안전성 평가 방법론을 제안하고자 하는 것이다.

2. 운영 안전성 평가 방법론

아래의 그림 1에 도시된 바와 같이 사용후핵연료를 포함한 고준위폐기물의 영구처분을 위한 처분시스템의 개발은 사회, 경제학적 요소를 반영하고 안전성을 확보할 수 있는 공학적 설계를 통하여 여러 가지 규제요건 및 지침을 준수하여 안전성을 확보하여야 한다. 처분장의 안전성은 처분장의 폐쇄 이후의 안전성을 확보하기 위한 장기안전성(Long-term Safety) 평가와 건설 및 운영 단계 동안에 행해지는 모든 행위에 대해 안전성을 확보하기 위한 운영안전성(Operational Safety) 평가로 구분할 수 있다. 또한, 처분장으로 인한 일반대중의 피폭선량 감소를 위한 시설 및 조치사항도 고려하여야 한다. 그동안 국내에서는 처분장의 폐쇄 이후의 안전성 평가에 관한 연구는 활발하게 진행되어 많은 방법론과 결과가 축적되어있지만 건설 및 운영 단계에서의 안전성 평가는 거의 수행된 적이 없다. 그러나, 건설 및 운영단계에서의 안전성 평가는 처분장의 안전성 확보를 위해서는 운영안전성의 평가 및 확보도 실질적인 의미에서 매우 중요하다.

운영 안전성 평가는 크게 정상운영과 비상운영 상태로 구분하여 평가한다. 정상운영 상황에서는 운영 중에 행해지는 모든 행위에 대한 작업자 및 일반대중의 방사선 방호를 위해 내부 및 외부피폭선량 평가가 선행되어야 하며 지상 및 지하시설의 환기 및 배기시설의 설치 및 운영에 관한 절차와 효율적인 시설물의 설계 및 배치가 이루어져야 한다. 비상운영 상황에서도 비상상황 즉, 사고가 발생할 경우에 대한 피폭선량 평가가 이루어져야 하며 이를 토대로 비상운영 절차가 수립되어야 한다. 또한, 지상 및 지하시설의 운영 중에 발생 가능한 운반, 낙하, 화재, 지진 등과 같은 외부사건 및 예측가능한 사고에 대한 안전성 평가가 수행되어야 한다. 이러한 운영 안전성 평가 결과는 지하시설물로의 공기 공급, 처분용기의 봉인, 방사선량 측정 위치선정, 차폐 등의 의사결정을 위한 자료로써 활용될 수 있다.

운영 안전성 평가를 위한 주요 절차는 그림 2에 도시된 바와 같다. 국내에서 처분장의 건설 및 운영단계에 관한 경험이 전혀 없기 때문에 유사한 다른 산업에서의 운영에 관한 활동목록을 참고하여 발생 가능한 사고를 조사하여 처분장에 적용가능할 경우에는 적용하고 그렇지 않은 경우에는 시스템 분석을 통하여 유추 과정을 통하여 활용할 수 있다. 그러나, 이들 과정을 통하여 필요정보를 얻기가 어려울 경우에는 전문가 의견수렴 과정을 통하여 잠재사고에 대해 목록화를 수행한다. 그러나, 모든 잠재사고에 대해 안전성 평가를 수행할 필요는 없으며 일정기준(Screening

Criteria)을 마련하여 안전성 평가가 필요한 사고를 추출하여야 한다. 평가가 필요한 사고에 대해서는 안전성 평가 및 예방조치에 대한 분석을 수행하게 된다.

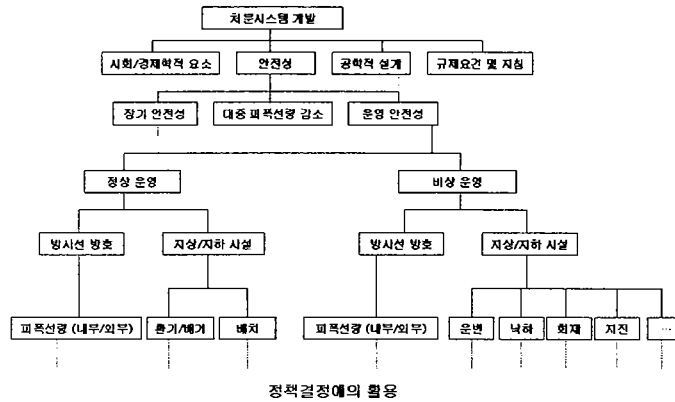


Fig 1. Schematic diagram of requirements of repository project

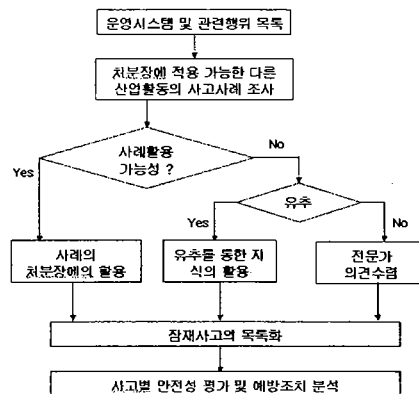


Fig 2. The procedure of operational safety assessment

3. 결론

사용후핵연료를 포함한 고준위폐기물 처분시스템의 운영 안전성 평가는 처분장의 안전성을 확보하고 국민의 신뢰를 얻기 위해 매우 중요한 분야이다. 이전까지 국내에서는 주로 폐쇄 이후의 장기안전성 평가에 주력해 왔지만 이 분야와 병행하여 향후 운영 안전성 평가에 관한 지속적인 연구가 필요하다. 또한, 운영안전성 평가는 처분장 설계의 한 분야로 인식할 필요가 있으며 평가 결과는 운영 및 설계를 위한 의사결정의 주요 도구로써 활용이 가능하다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부가 주관하는 원자력 중장기 연구의 일환으로 수행되었습니다.

제3분과

사용후핵연료 및 핵연료주기 (Oral)

우리나라 사용후핵연료 공론화 방법론

김연옥, 황용수, 황주호*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045번지

* 경희대학교, 서울광역시 동대문구 회기동 1번지

younok@kaeri.re.kr

1. 서론

우리나라에서 방폐물 처리에 관한 문제는 중·저준위 방폐물 처리장이 주민투표를 통해 경주에 폐기물 처분장을 유치하는 것으로 일단락되었지만 고준위 방폐물, 즉 사용후핵연료의 문제는 이제 그 시작점에 있다. 현재 발전소 내 임시 저장되어 있는 사용후핵연료 양이 2016년이면 저장용량을 넘어선다는 것을 감안할 때 사용후핵연료 관리에 관한 정책과 방향을 설정하고 실질적인 해결방안 노력이 필요한 시점이다. 우리나라와 비슷한 상황에 처해 있는 영국, 캐나다, 프랑스 등과 같은 국가에서는 사용후핵연료 관리 문제를 오랜 시간과 비용을 투자하여 공론화를 통하여 해결하고자 하였다. 우리나라 역시 사용후핵연료 처리 및 관리 방법에 대한 공식적인 정책 방향이 결정되어 있지 않지만 현재 사용후핵연료 공론화 TFT가 구성되어 공론화 추진을 위한 방법론에 대한 회의를 진행하고 있어 현 시점에서 공론화를 통한 사용후핵연료 관리 방법을 도출한다는 의견에 합의가 모아진 것으로 생각된다. 따라서 이 논문에서는 우리나라의 사용후핵연료 공론화 방법으로 가능한 하나의 모델을 제시하고 이를 자세하게 다루어보고자 한다.

2. 사용후핵연료 관리 공론화 방향

공론화의 목표는 한국에서 발생하는 사용후핵연료를 투명하고 환경 친화적인 방법에 의해 중간 저장부터 최종 처분하기 위한 사회적 합의를 도출하는 데 있다. 먼저 시급한 사용후핵연료 중간시설 입지의 당위성과 중간저장 방식 및 부지 확보를 위한 투명한 절차 및 사회적으로 수용 가능한 경제적 지원 방안 등에 대한 대정부 권고안을 제정하고, 사용후핵연료 처분 방안 등에 대한 장기적인 국가 관리 방안에 대한 사회적 도출을 한 후, 사용후핵연료 관리 방안에 대한 대정부 권고안을 제정한다.

이와 같은 목표를 달성하기 위해 시민사회 단체, 원자력 전문가 등으로 구성된 공론화 실무위원회를 가동하여 사용후핵연료 관리 옵션들에 대한 기술성, 경제성, 윤리성 및 사회적 수용성을 검토하고 공론화 관련 모두 자료들을 공개함으로써 기술적인 옵션에 대한 상세 제공은 물론 의사결정 과정을 투명성을 확보하는 것이 중요할 것이다.

3. 공론화 단계

먼저 첫 번째 단계에서는 공론화를 위한 기반을 마련한다. 이 단계에서는 사용후핵연료 문제에 대한 특별법을 제정하고 전담기구를 설립하는 것을 목표로 하고 있다. 그리고 이 기구를 중심으로 공론화의 기본 원칙을 설정하고 필요한 관련 정보를 수집, 정리한다. 또한 전문가 및 과학자들에게 의뢰하여 실행가능한 대안목록을 작성토록 한다. 대중 참여의 1 단계인 홍보는 원자력 에너지 및 사용후핵연료에 대한 일반 대중의 이해를 높일 수 있도록 제작되고 대중참여 1단계에서 시작하여 공론화 과정 내내 진행되도록 한다.

전문가의 대안 목록이 만들어지면 두 번의 대중 참여 단계를 거치게 된다. 대중 참여 2 단계에서는 정보 전달과 교육 그리고 피드백이 이루어진다. 이 과정은 공론 조사와 합의 회의의 장점을 병합하여 만든 숙의적 대중 참여 프로그램을 통해 이루어질 수 있다. 그 과정에서 과학적 방법을

통하여 대표성을 지닌 시민 패널을 선정하고 선정된 시민 패널은 필요한 정보와 지식을 충분히 얻은 후 전문가들과의 소통을 통해 의문점에 대한 피드백을 하게 된다.

대중 참여 3 단계에서는 대중 참여 2 단계의 시민 패널을 대상으로 가치 조사를 한다. 전담 기구는 시민 패널이 문제 해결에 있어 가장 중요하게 여기는 가치가 무엇인지에 대해 묻고, 가장 많은 사람들이 중요하게 생각하는 가치들을 정리해서 가치 목록을 작성한다. 전담기구는 전문가의 대안 목록을 축약하기 위한 평가 기준으로 가치 목록을 사용한다. 이 과정을 통해 대안을 축약하게 된다.

마지막으로 대중 참여 4 단계에서는 전담기구가 가치 목록을 시민 패널에게 배부하고 그들에게 각각의 가중치를 부여하도록 한다. 이 가중치를 바탕으로 대안을 다시한번 평가하고 최적의 대안을 선정하게 된다. 전담기구는 이 과정을 통해 선정된 대안을 바탕으로 대정부 권고를 하게 된다.

4. 결론

성공적인 공론화를 위해서 먼저 공론화 기반을 잘 만들어 놓는 것이 중요하다. 먼저 일반 대중으로 하여금 사용후핵연료 관리 문제와 핵 문제를 구별시키기 위한 노력이 필요할 것이다. 많은 사람들이 사용후핵연료 관리 문제를 핵문제와 동일시하여 사용후핵연료 자체에 대한 막연한 두려움을 가지고 주체적으로 이 문제에 참여하는 것을 꺼려하는 경향이 있다. 따라서 공론화 과정에 다양한 사람들의 숙의적이고 적극적인 참여를 유도하기 위해서 비전문가인 일반 대중에 대한 교육 프로그램이 있어야 할 것이다. 또한, 사용후핵연료 관리 방법을 찾기 위해 주어진 시간이 많지 않다는 점을 감안할 때 이런 공론화 과정을 끝까지 지켜나가기 위해서는 무엇보다 공론화 과정을 통한 사용후핵연료 관리 방안이 최선의 대안이 될 수 있다는 신뢰가 필요할 것이다.

처분측면에서 본 순환형 핵연료주기의 유용성 분석

고원일, 권은하, 송대용, 정창준, 장홍래, 윤지섭
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nwiko@kaeri.re.kr

1. 서론

일반적으로 사용후핵연료 관리정책의 큰 방향은 사용후핵연료를 폐기물로 간주하여 직접처분하는 방안과 사용후핵연료를 재처리하여 재활용하는 방안으로 나눌 수 있다. 이 둘 중 어느 관리방안을 채택할 것인가는 그 나라의 에너지정책·경제성·환경문제·국민의 수용 등의 제반사항은 물론, 핵확산문제와 관련된 정치·외교적 요소 등의 국제적 상황을 고려하여 의사결정을 해야 하는 매우 복잡한 문제이다.

본 연구에서는 발생하는 처분대상 사용후핵연료의 양·처분대상 고준위폐기물의 붕괴열량·처분장의 관리기간·방사성독성도의 수준 등 폐기물처분의 측면에서 사용후핵연료를 직접처분하는 방안과 사용후핵연료를 처리하여 재활용하는 소위 “순환형 핵연료주기” 방안을 비교·분석하였다. 순환형 핵연료주기에서는 건식처리방식으로 사용후핵연료에서 우라늄을 분리하여 사용후핵연료를 중·저준위화하고, 또한 고방열핵종인 세슘(Cs)과 스트론튬(Sr)을 분리하여 독립적으로 관리하며, 장반감기 고독성핵종은 금속핵연료로 제조하여 고속로에서 소멸하는 것으로 가정하였다.

2. 분석결과

-처분대상 사용후핵연료의 양

제 3차 전원수급계획상의 원전비율이 앞으로 계속 유지된다고 가정할 때, 2100년경에 이르면 우리나라에서 발생하는 사용후핵연료의 양은 약 9만여톤(경수로 7만여톤과 중수로 2만여톤)에 이를 것으로 전망된다. 반면, 경수로 사용후핵연료를 처리하여 고독성핵종을 고속로에서 소멸케 하는 경우에는 대부분의 경수로 사용후핵연료를 소모할 수 있다. 경수로 사용후핵연료 7만여톤을 직접처분하기 위해서는 약 14 km^2 (약 4백 20만평)의 안정된 지하암반이 필요한데, 국토가 협소한 우리나라의 지형을 감안한다면 이를 수용할 수 있는 단일처분장의 확보는 사실상 어려운 것으로 판단된다. 순환형 핵연료주기에서도 사용후핵연료 처리 시에 고준위폐기물이 발생한다. 그러나, 그 처리과정에서 처분장면적을 결정하는 주요요소인 발열량이 큰 핵종을 제거하기 때문에 순환형 핵연료주기에서 고준위폐기물이 차지하는 처분면적은 크게 감소한다.

-처분대상 고준위폐기물의 붕괴열량

심지층 처분에 있어서 붕괴열은 지하 처분면적을 결정하는 중요한 요소이다. 사용후핵연료를 처리하여 고방열핵종인 세슘(Cs)과 스트론튬(Sr)을 제거하고 장기 고방열핵종인 악티나이드를 제거하는 경우, 처분장의 효율을 배가시킬 수 있다. 본 연구에서는 Origen 코드[1]를 이용하여 연소도 50 GWd/tHM, 초기농축도 4.5%를 갖는 사용후핵연료의 조성과 붕괴열량을 분석하였다. 또한, 사용후핵연료를 처리하는 과정에서 악티나이드 99.9%를 회수하여 소멸시키고, 고방열핵종인 세슘(Cs)과 스트론튬(Sr) 99.9%를 회수하여 지상에서 장기보관하는 경우의 붕괴열량을 직접처분의 경우와 비교·분석하였다. 그 결과, 99.9%의 악티나이드와 99.9%의 세슘(Cs) 및 스트론튬(Sr)을 제거한 사용후핵연료의 붕괴열량은 제거하지 않은 사용후핵연료에 비하여 최소 1/60, 최대 1/600 정도 감소하는 것으로 나타났다. 이러한 분석결과는 지하처분장의 면적이 붕괴열량에 비례하고 지하암

반이 최대온도에 도달하는 시간이 1,000년 이내인 점을 감안했을 때 지하처분장의 변적을 최소 1/60까지 줄일 수 있다는 의미이다.

-독성도 감소

사용후핵연료에는 고독성이면서 반감기가 긴 악티나이드와 요드(I)·테크네튬(Tc)과 같은 핵분열생성물이 포함되어 있다. 처분장 관리기간의 평가를 위하여 위의 Origen 코드를 이용하여 분석한 처분대상 고준위폐기물의 장기독성도를 시간의 함수로 나타내고, 이를 같은 양의 전력발전에 필요한 천연우라늄의 독성도와 비교하였다. 이는 사용후핵연료의 독성도를 자연상태(채광 및 농축전의 상태)의 수준으로 감소시키는 데 몇 년이 걸리는가에 대한 지표라 할 수 있다. 우라늄광석의 독성도는 Ra-236과 U-238이 영년평형(secular equilibrium)을 이룬다는 가정하에 계산하였다. 한편, 사용후핵연료 독성도의 계산을 위하여 경수로핵연료의 연소도를 50 GWd/tHM, 초기농축도를 4.5%로 가정하여 Origen 코드를 이용하여 계산하였다. 분석결과, 사용후핵연료를 직접처분하는 경우에 사용후핵연료의 독성도가 자연상태의 수준으로 감소하는데 약 30만년이 소요되는 것으로 나타났다. 반면, 악티나이드를 제거하여 소멸시키는 경우에는 그 기간이 300년 이내로 줄어드는데, 이는 우리 인간이 충분히 제어 가능한 기간으로 판단된다.

3. 결론

순환형 핵연료주기는 사용후핵연료를 재활용함으로써 사용후핵연료의 누적문제를 해결할 수 있고, 처분장의 관리기간을 수 십만년에서 수 백년 이내로 줄일 수 있으며, 처분장 이용의 효율을 극대화할 수 있는 것으로 평가되었다. 따라서, 우리나라의 사용후핵연료 장기관리정책을 수립함에 있어서 순환형 핵연료주기의 도입을 고려해 볼 만한 것으로 판단된다.

참고문헌

[1] Croff, A. G., A User's Manual for the ORIGEN 2 Computer Code, ORNL/TM-7175, Oak Ridge National Laboratory, 1980.

DANESS 코드를 이용한 직접처분 핵연료 주기 해석

정창준, 고원일

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

cjiyeong@kaeri.re.kr

1. 서론

동적 핵연료주기 분석코드인 DANESS [1] 코드의 응용 가능성을 보기 위하여 국내 직접처분 핵연료 주기에 대한 해석을 수행하였다. DANESS 코드는 미국 ANL에서 개발한 핵연료 주기 동적 해석 코드로서 기존의 DYMOND [2] 코드를 크게 개선하여 핵연료 주기 변수 계산, 경제성 및 환경 영향 평가 등을 수행할 수 있도록 구성되었다.

본 연구에서 장기 원자력 발전량은 제3차 전력수급 기본 계획(2006 - 2020)을[3] 근거로 예측하였다. 이 계획에 의하면 2006 - 2020년 기간에 전력소비 증가율은 2010년에 2.54%, 2012년 이후에는 1%대, 그리고 2020년에 0.84%의 증가율을 보이는 것으로 전망된다. 이 기본 계획을 바탕으로 원자력 발전량을 예측하였다. 이를 위하여 2020년부터 2050년까지 평균 전력 소비증가율은 0.84%/yr로 유지되나, 그 이후는 점차 감소하여 2100년도에 증가율이 0%로 수렴하도록 가정하였다. 원자력 점유율은 2020년의 43.4%가 2100년까지 계속 유지되는 것으로 가정하였다.

예측한 원자력발전량에 실제 도입되는 원자로의 용량과 수명을 감안하여 적절하게 배치하였으며, 이를 이용하여 2100년까지의 실제 원자력발전량과 직접처분 주기에서 발생하는 사용후핵연료를 DANESS 코드를 이용하여 계산하였다. 핵연료 주기 계산은 2가지 경우에 대하여 수행하였다. 즉, 원전의 설계 수명을 유지하는 경우 (직접처분주기-1), 기존 원전의 수명을 각각 20년 연장 (직접처분주기-2)하는 경우이다. 기존 경우로는 건설 계획이 있을 때 까지만 건설하고, 2016년 이후에는 APR-1400 원전만 건설되는 것으로 가정하였다.

2. 비순환 주기 해석 결과

그림 1은 원자력 에너지 요구량 및 직접처분주기-1, -2에 대한 실제 발전량을 비교하여 나타내고 있다. 원자력 에너지 요구량은 2020년까지 실제 건설되는 원전의 용량을 모두 고려하고 있고, 2020년 이후 서서히 증가하여 2100년도에는 약 350 TWh/yr로서 이용률을 80%로 가정하면 원전 설비 용량은 약 51 GWe에 해당된다. 가동되는 원전의 발전량은 원자력 에너지 요구량을 비교적 잘 반영한 것으로 나타났다.

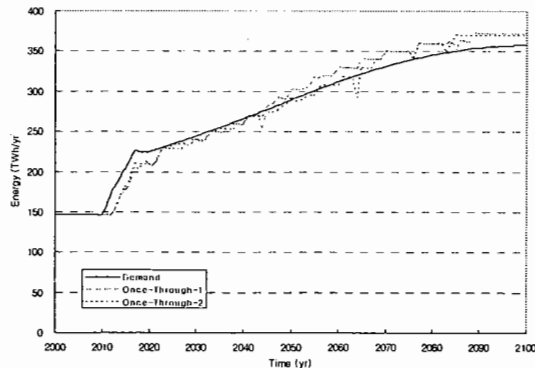


Fig. 1 Nuclear Energy Demand and Produced Energy

직접처분주기-1에 대한 원전별 운전 용량 변화는 그림 2에 나타내었다. CANDU 원자로 및 기존 경수로의 수명이 다한 후 용량이 0으로 되고 약 2045년 이후에는 APR-1400 원자로만 가동 되는 것을 알 수 있다. 원전의 수명이 연장되는 경우에는 기존 원전의 용량이 약간 크게 유지되는 것으로 나타났다.

그림 3은 2가지 직접처분 주기에 대하여 사용후 핵연료 발생량을 비교하여 나타낸 것이다. 수명 연장을 하는 경우 총 사용후 핵연료 발생량이 92,000 ton으로 직접처분 주기-1의 87,000 ton에 비해 약간 증가한다. 이는 CANDU 원자로의 사용후 핵연료 발생량이 크게 증가한 것에 기인되는 것으로 판단된다. 이 때 사용후 핵연료 내 TRU 양은 각각 1,100 및 1,170 ton이 될 것으로 예측된다.

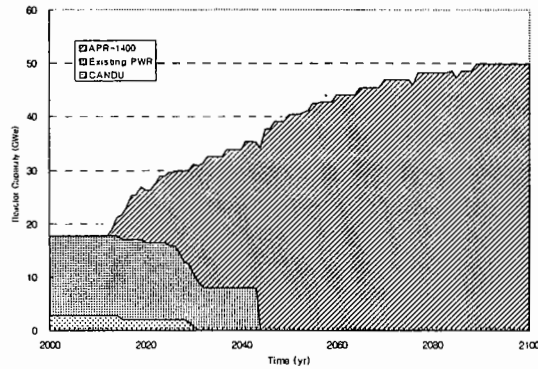


Fig.2 Reactor Capacity for Once-Through-1 Scenario

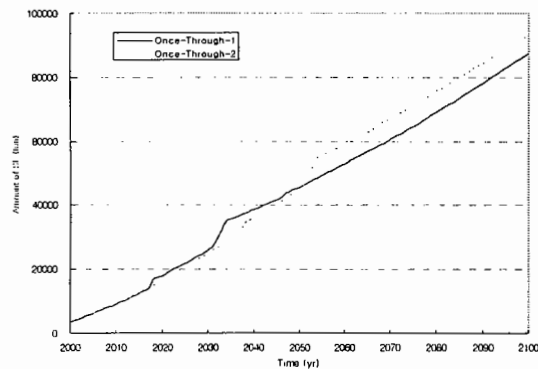


Fig.3 Comparison of Amount of Spent Fuel Accumulation

3. 결론

DANESS 코드를 사용하여 국내 직접처분 핵연료 주기를 모형화 하고, 원전 수명을 연장하지 않는 경우와 연장하는 경우에 대하여 비교 계산을 수행하였다. 계산 결과, DANESS 코드는 국내 핵연료 주기 모델링에 적용 가능한 것으로 나타났다. 또한, 직접처분 주기의 경우 수명연장을 하지 않는 경우와 수명연장 하는 경우 사용후 핵연료 발생량은 각각 87,000 및 92,000 ton이 될 것으로 예측되었다.

참고문헌

- [1] L. Van Den Duerpel, A. Yacout, D. Wade and H. Khalil, "DANESS-Dynamic Analysis of Nuclear Energy System Strategies", GLOBAL 2003, New Orleans, Nov. 16-20, 2003.
- [2] "Generation 4 Roadmap Fuel Cycle Crosscut Group Executive Summary," U.S. Department of Energy Nuclear Energy Research Advisory Committee and the Generation IV International Forum (2001).
- [3] "The Third Basic Plan of Electricity Demand and Supply in Korea", Ministry of Commerce, Industry and Energy, Dec. 2004.

Pyroprocess를 위한 휘발성 산화공정 기술개발 현황

박장진, 이재원, 신진명, 박근일, 송기찬
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진대로 1045
jjpark@kaeri.re.kr

최근, 경수로 사용후핵연료 재활용을 위한 pyroprocess에 대한 연구가 한국 KAERI, 미국 INL, 일본 CRIEPI 등에서 활발하다. Pyroprocess 공정은 산화물 경수로 사용후핵연료를 금속화하는 전해환원 공정, 잉여우라늄을 회수하고 TRU 물질을 회수하는 정해정련 공정, 염폐기물 처리 공정 등으로 구성된다. 그러나, 전해환원 공정에 사용후핵연료 물질을 사용하려면 사용후핵연료 봉으로부터 탈피복 공정을 거쳐 핵물질을 꺼내고, 이를 분말화하여 전해환원 공정에 사용하기 쉽도록 마그네시아 용기나 스테인레스 메쉬 용기에 핵물질을 장입하여야 한다.

한편, 핵물질을 산화분위기에서 열적으로 분말화하는 과정에서 자연스럽게 핵분열생성물이 휘발하게 되는데 이 공정을 휘발성산화 공정이라 한다. 초기의 휘발성산화 공정은 습식공정을 위해 개발한 것으로 사용후핵연료 중 삼중수소 제거와 용해 속도 증가를 위한 분말화가 주 목적이어서 대체로 500℃, 산화분위기에서 이루어졌다. 그러나, 초기의 기존 휘발성산화 공정은 표 1에 보는 바와 같이 삼중수소는 제거되나 Kr/Xe 핵종은 약 30% 미만 C-14, 요오드 등은 약 10% 미만 그리고 기타 Cs, Tc 등은 거의 제거 되지 않는다. 따라서, 기존 휘발성산화 공정을 pyroprocess에 적용할 경우 전해환원, 전해정련 공정의 배기체처리, 핵종분리, 공정효율 등에 부담이 된다.

이에 따라, 최근 한국의 KAERI, 미국의 INL에서는 상기의 문제를 해결하기 위하여 고온산화, 진공개념을 도입한 고도 휘발성산화공정을 개발하기로 하였다. 고도 휘발성 산화공정에서는 표1에서 보는 바와 같이 삼중수소 뿐만 아니라 고 방사능, 고방열 Cs, 장수명 I-129, Tc-99, C-14 핵종 등이 대부분 제거되며, 귀금속인 Ru, 불활성가스인 Kr/Xe도 대부분 제거 가능하다. 또한, 전처리 공정인 휘발성산화 공정에서 상기의 핵종들이 제거될 경우 방사선 준위 감소, 후속공정 필요 차폐두께 감소, 후속 공정 공정효율 향상 등 많은 잇점이 예상된다.

한편, 휘발성산화 공정에서 휘발한 핵분열 생성물을 안전하게 포집할 필요가 있다. 국내에서는 핵비확산성 건식공정 산화물 핵연료 제조를 위한 산화환원(OREOX)공정, 소결공정 중에 휘발하는 핵종을 포집하기위한 연구를 수행하였다[1]. 이 공정 중에서도 Cs, I, H-3 등이 휘발하며 이를 포집하기 위한 기술을 개발한 바 있다. 이와 같은 연구에 힘입어 미국 DOE(INL, ORNL)는 한국 KAERI에 경수로 사용후핵연료 휘발성산화공정 기술개발에 대한 공동연구를 제안하였다. 이에 따라, 2004년 6월부터 3년간 INERI 과제로 공동 연구를 수행하였으며 KAERI의 선도연구 분야는 배기체 처리 분야였다.

이 연구에서, 실제 사용후핵연료를 이용한 실험은 미국 INL HFEF 핫셀에서 수행하였다. 이 실험을 위해 배기체 처리실험 장치는 KAERI와 INL이 공동으로 설계하였으며 포집방법은 KAERI가 개발한 고온 화학반응법을 적용하였다. 그림 1에는 미국 INL과 공동으로 설계한 배기체 처리실험 장치의 핵분열생성물 포집 공정도를 나타냈다. 그림 1과 같이, 첫째 단에는 Cs, Rb, Cd 를 포집하기위한 석탄회 필터를 둘째 단에는 Tc, C-14, Ru를 포집하기위한 칼슘 필터를 셋째단에는 요오드를 포집하기위한 Ag-X 필터를 설치하였다. INL 핫셀 배기체 포집 실험결과 진공조건하에서는 상압조건과 다른 포집 특성을 보이고 있음을 확인 했으며 Cs, Rb, I 의 경우 95%이상의 우수한 포집효율을 보였다.[2]

참고문헌

1. 박장진 등, “경수로사용후핵연료 휘발성산화공정기술개발”, KAERI/RR-2840/2006, 한국원자력연구원 (2007).
2. 박장진 등, “건식공정 고방사성 핵물질 처리기술개발”, KAERI/RR-2760/2006, 한국원자력연구원 (2007).

표 1. 기존 휘발성산화공정과 고도 휘발성산화공정의 핵종 휘발율 비교

핵종	기존 휘발성 산화공정	고도 휘발성 산화공정	비고
Kr/Xe	<30%	~100%	
H-3	~100%	~100%	
I-129	<10%	~100%	장수명 핵종
Tc-99	<1%	~100%	장수명 핵종
C-14	<10%	~100%	장수명 핵종
Cs	<1%	~100%	고 방사성, 고 방열 핵종
Ru	<1%	~100%	Noble metal
Mo	<1%	~90%	Noble metal
Rh	<1%	~80%	Noble metal

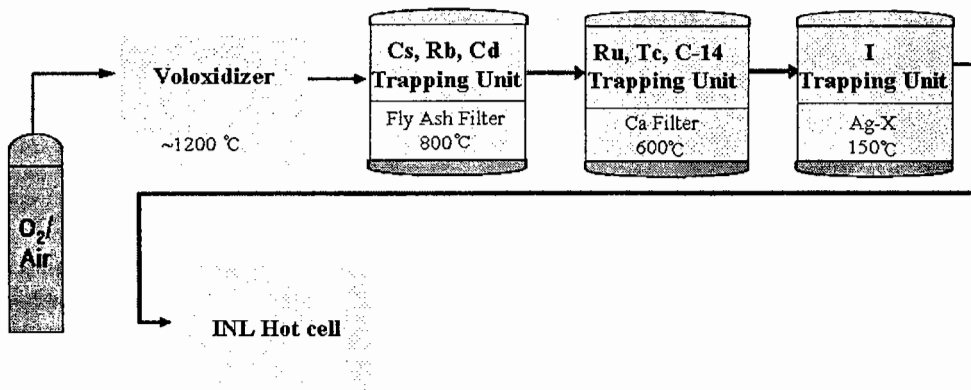


그림 1. INL 핫셀의 배기체처리 공정 흐름도.

Optical Spectra of Several Lanthanide Ions in LiCl-KCl Eutectic Melt at 450 °C

Young Hwan Cho, Tack Jin Kim, Yong Jun Park, Kyu Seok Song, Kwang Yong Jee

Korea Atomic Energy Research Institute 150 Deokjin-Dong, Yuseong, Daejeon 305-353, Korea,

yhcho@kaeri.re.kr

1. Introduction

The use of pyrochemical processing of spent nuclear fuel is emerging as a promising option in the near future. However, rare earth elements (REEs) contained in spent fuel may play a significant role in related pyrochemical processes. Therefore, it is necessary to understand the chemical behavior of the lanthanide elements in high-temperature molten salt media. A UV-VIS spectroscopic method may be used to investigate the chemical behavior of lanthanide ions in molten salt media. Here, we attempted to measure the UV-VIS spectra of several lanthanide ions (Nd, Eu, Ce) in LiCl-KCl eutectic melt at 450 °C.

2. Experimental and Results

2.1 Sample Preparation

All the experiments were carried out in a glove box system. The inert atmosphere was maintained by purging with purified Ar gas. The LiCl-KCl eutectic (mole ratio of lithium to potassium = 59/41) mixture (melting point 723K) was prepared from A.R. grade reagent. Spectra of Nd(III), Eu(III) and Ce(III) were obtained by dissolving NdCl_3 , EuCl_3 and CeCl_3 in LiCl-KCl containing quartz cell at 450 °C.

2.2 In-situ UV-VIS spectra measurement

The experiment apparatus is schematically shown in Figure 1. Spectrometric components are interfaced with glove box-furnace system. A rectangular quartz cell attached to a long quartz tube (see Figure 1) is placed at the center of the electric furnace. The light beam (Ocean Optics Inc) was guided into the sample chamber by using an optical fiber. Suitable quartz lens and iris were used to collimate the beam path and adjust the intensity.

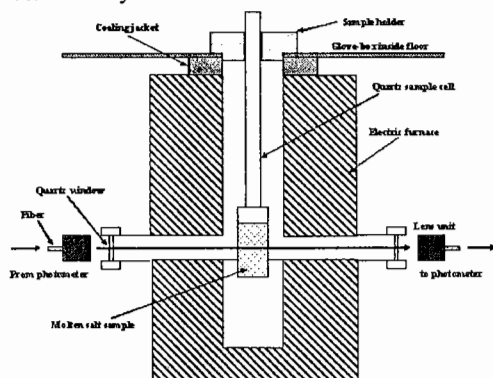


Figure 1. Schematic diagram for UV-VIS spectrum measurements

3. Results

The measured absorption spectra of NdCl_3 are shown in Figure 2. The strongest absorption band can be seen at 589 nm. These correspond to the transitions from the ground level $^4I_{9/2}$ and to excited level of $^2G_{7/2}$ and $^4G_{5/2}$. The $^4G_{5/2} \leftarrow ^4I_{9/2}$ transition is known as the hypersensitivity transition. [1]

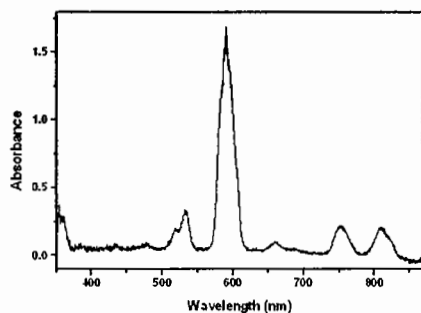


Figure 2. *In-situ* absorption spectra of Nd(III) ion in LiCl-KCl at 450°C.

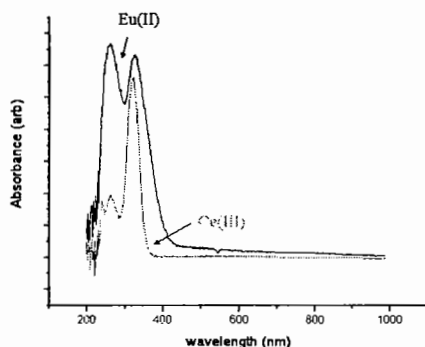


Figure 3. *In-situ* absorption spectra of Eu(II) and Ce(III) ion in LiCl-KCl at 450°C.

The absorption spectra of europium and cerium ion are shown in Figure 3. The origin of the spectral lines are different from those of Nd(III). It is known as interconfigurational $4f^7 \rightarrow 4f^6 5d^1$ and $4f^1 \rightarrow 4f^0 5d^1$ (f-d) transitions for Eu(II) and Ce(III), respectively.[2] It is not surprising that the absorption line at 263nm and 328 nm are from divalent-europium ion. This means that tri-valent EuCl_3 is converted spontaneously into divalent-europium ion. This confirms the results of our previous EPR study.[3] The strong absorption band at 320 nm in Figure 3 is from f-d transition in Ce(III). In general f-d transitions lie in the UV and more higher energy (vacuum UV) regions. It is expected that the f-d transition lines of the heavier trivalent lanthanide ion will appear at more higher vacuum UV range, making it difficult to measure.

3. Conclusions

In Eu(II) and Ce(III) ions, f-d transition lines were in-situ measured at high temperature molten salt medium. Trivalent europium ion is easily reduced to divalent ion.

REFERENCES

- [1] T. Fujii, H. Moriyama, H. Yamana, "Electronic absorption spectra of lanthanides in a molten chloride I. Molar absorptivity measurement of neodymium(III) in molten eutectic mixture of LiCl - KCl", J. Alloys and Compounds Vol.351, L6-L9 (2003)
- [2] J.C. Krupa "High-energy optical absorption in f-compounds", J. Solid State Chemistry 178, 483-488 (2005)
- [3] T. J. Kim, Y. H. Cho, I. K. Choi, J. K. Kang, K. Y. Jee, "EPR and luminescence studies of Eu(II) magnetically diluted in LiCl-KCl salt", J. Luminescence. 127, 731-734 (2007)

YSZ의 플라즈마 용사 기술을 이용한 흑연도가니와 우라늄과의 반응성

조춘호, 이윤상, 김응수, 이한수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

ex-kaeri@kaeri.re.kr

산화물 형태 사용후 핵연료의 약 95% 질량은 우라늄 이산화물 (UO_2)이므로, 현재까지 알려진 어떤 방법으로도 고방사성인 고체 우라늄 이산화물로부터 우라늄 금속 잉곳을 직접 만들지는 못한다. 따라서 건식처리 공정은 산화물 핵연료의 금속화 및 전해정련 공정을 거쳐 순수한 우라늄을 회수하며, 재활용 혹은 중간저장을 위한 우라늄 주조공정이 수반된다.

본 연구는 우라늄 잉곳 제조시 graphite도가니를 사용할 경우 우라늄과의 반응성을 가지므로 해서 순수한 우라늄 잉곳 제조가 어렵기에 graphite에 YSZ와 알루미나 분말을 사용한 플라즈마 용사 코팅을 하여 우라늄과의 반응성을 조사하였다.

반응성 실험에 앞서 30mmX70mmX5mm의 흑연 plate에 Metco사의 YSZ 분말과 Fujisi Surprex사의 AHP60 99.9% 알루미나 분말을 사용하여 1600℃의 열원을 갖고 650m/sec의 화염 속도에서 플라즈마에 의한 용사코팅 재료를 제작하였다. 그림1은 용사 코팅된 재료와 우라늄과의 반응성 실험을 위한 흑연도가니의 설계도로서 같은 조건에서 많은 샘플들을 테스트하기 위하여 10개의 hole이 장착될 수 있도록 설계되었다.

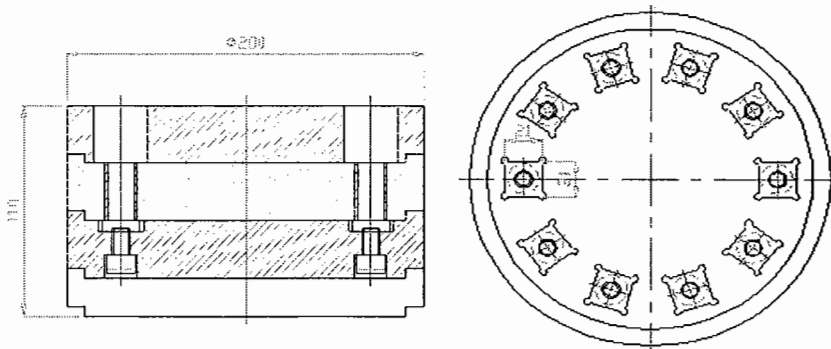


그림1. 우라늄과의 반응성 실험을 위한 흑연도가니 설계도

알루미나, YSZ, Ni-Al이 들어간 YSZ 중에서 두께가 다른 코팅층의 샘플들을 각각 2개씩 선택하여 1300℃에서 1시간 동안 실험을 수행하였다. 그림2는 반응성 실험 후 각 샘플들을 SEM/EDX를 사용하여 반응층들을 조사한 결과로서 (a)는 알루미나로 코팅된 재료의 우라늄과의 반응성 실험으로 코팅층에 우라늄과의 반응층은 형성하지 않았으나 코팅층이 흑연과 분리 되었음을 알 수 있었다. 또한, (b)는 YSZ와 우라늄과의 반응성 실험으로 (a)처럼 코팅층이 우라늄과의 반응성은 나타나지 않았지만 흑연재와도 분리되지 않고 1300℃의 고온에서도 흑연재와 접촉성을 그대로 유지하고 있음을 알 수 있다.

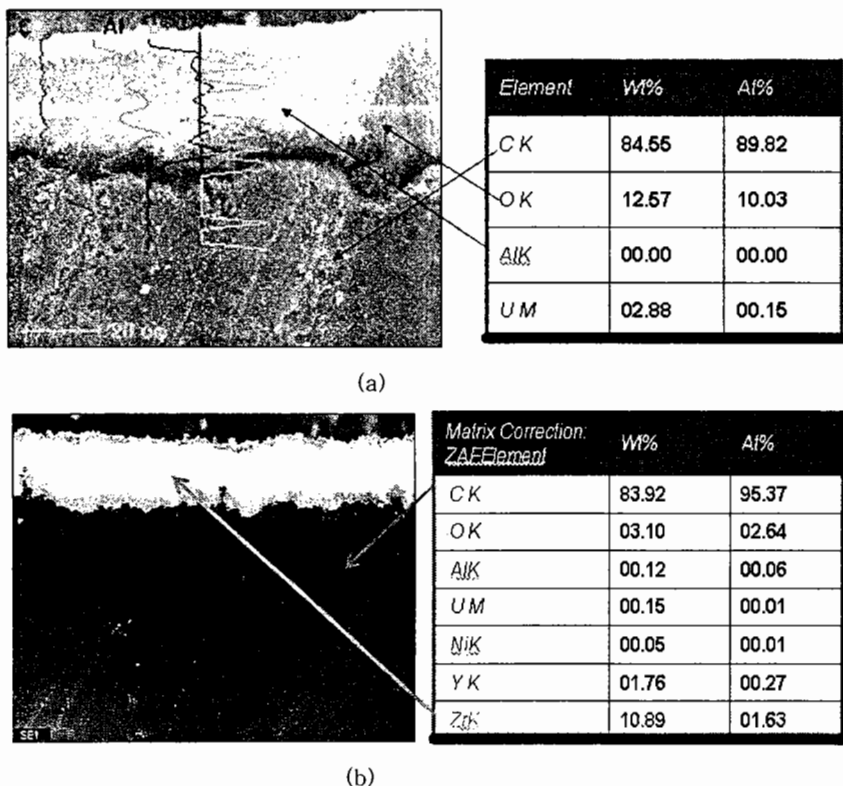


그림2. (a)알루미나, (b)YSZ의 우라늄과의 반응 후 SEM/EDX으로 분석된 코팅층

-결론 및 향후 계획

우라늄 잉곳 제조시 graphite 도가니를 사용할 경우 알루미나나 YSZ 모두 우라늄과의 반응성은 발견되지 않았지만 YSZ는 알루미나와는 달리 흑연제와 접착성을 그대로 유지하였다.

향후 흑연도가니 코팅에 알루미나 보다는 YSZ를 사용한 우라늄 잉곳 제조가 더 나을 것으로 판단되며 재료를 고온에서 모두 녹여서 플라즈마 코팅을 하게 되면 접차시 분말의 상변화로 코팅 재료의 성질이 바뀌게 되기 때문에 향후 코팅제의 m.p 보다 낮은 0~700℃ 범위의 Kinetic spray 와 같은 추가적인 용사 기술을 사용하여 우라늄과의 반응성 및 흑연과의 접착성도 테스트를 수행할 계획이다.

탄산염용액에서 우라늄산화물 용해에 미치는 산화제 영향

정동용, 서희승, 양한범, 김광욱

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)

ndychung@kaeri.re.kr

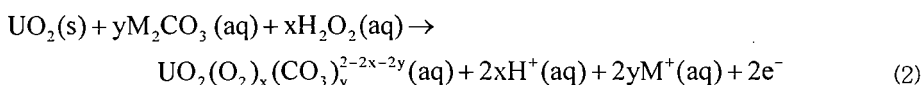
본 연구실에서는 탄산염 매질에서의 SF 용해 및 침전 기술만을 사용하여, SF의 대부분을 차지하는 U만을 선택적으로 분리하여 C-class화함으로써, 고준위 폐기물 처분장 능을 증대시킬 수 있고, 핵확산저항성과 친환경적성을 동시에 가지는 한국 실정에 적합한 습식공정 개발의 가능성을 연구하고 있다. SF의 처리를 위해 제시되는 이러한 기술은 최근에 태동되는 기술이어서[1] 자료도 많지 않은 상태이므로 학문적, 기술적 개발 가치를 갖고 있다. 이러한 공정이 핵확산 저항성을 갖게 하기 위해서는 SF의 용해 시 U만의 선택적 용해와 동시에 기타 핵종은 미용해 또는 침전 혼합상이 유지되어야하고, 처분 부지능 증대를 위해서는 U의 고순도 분리, 그리고 친환경성을 위해서는 폐기물 발생의 최소화라는 기술적 조건이 만족되어야 한다. 탄산염에서 우라늄산화물을 용해시키는 경우 용해도는 NaHCO_3 0.5M 용액에서 U 농도 10 g/l를 넘지 못하고 UO_{200} 의 경우 용해는 1 g/l 이하의 매우 낮은 용해도를 갖는 것으로 나타났다. 주로 산화물내의 U 산화상태가 4가로 낮은 경우 용해가 잘 되지 않고 산화수가 높은 상태인 경우 용해가 잘 일어나기 때문이다. 낮은 용해도는 SF 처리공정 개발에서 제한적인 측면이 될 수 있다. 이를 극복하기 위한 방법의 하나로 U의 산화가를 증가시킬 수 있는 산화제 첨가를 고려할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 여러 가지 산화제에 대하여 탄산염에서 우라늄산화물의 용해에 미치는 영향을 살펴보았다.

실험에 사용된 우라늄산화물은 분말을 사용하였고, 탄산염 용액은 시약급 Na_2CO_3 , NaHCO_3 를 물에 녹여 제조하였다. pH 조절을 위해 10M 짜리 NaOH와 HCl 용액을 사용하였다. 용액중 우라늄 농도는 Arsenazo III 시약을 사용하는 비색법을 사용하여 분석하였다. 선정된 산화제는 과산화수소와 sodium hypochlorite(NaOCl) 그리고 sodium persulfate($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_8$)의 3가지를 선정하였다.

탄산염용액에서 우라늄산화물을 용해시킬 때 농도에 상관없이 대략 pH 7에서 pH 10의 범위에서 용해도가 크게 변화하지 않았으나 pH가 더 증가하는 경우 용해도가 급격히 감소하는 경향을 나타냈다.[2] 우라늄산화물은 산화물 표면에서 우라늄이 산화수 4가에서 6가로 산화가 일어나면서 용액으로 확산되면서 탄산이온과 반응하여 uranyl carbonate 착물로 용해가 일어나는 것으로 알려져 있다.[3] 이때 용해액에서 uranyl carbonate 착물은 UV-스펙트럼을 통해 확인할 수 있었다.



한편 산화제 첨가는 산화물 표면에서 우라늄 4가를 6가로 산화를 촉진시키게 된다. 산화제 첨가시에도 pH 10 부근에서 용해도가 급격히 감소하는 경향을 나타냈다. NaOCl 과 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_8$ 을 산화제로 사용하는 경우 Fig.1에서 보는 바와 같이 uranyl carbonate로 용해가 일어남을 확인할 수 있었다. 그러나 과산화수소의 경우 용해시킨 용액의 UV-스펙트럼을 Fig. 2에 나타냈는데 이는 과산화수소의 경우 아래와 같은 반응에 의해 용해되기 때문이다.[4]



산화제 중 과산화수소에 의한 우라늄산화물의 용해가 가장 커 2M 과산화수소 농도에서 약 70 gU/l 까지 용해되었다. NaOCl 의 경우가 가장 적게 용해되었다.

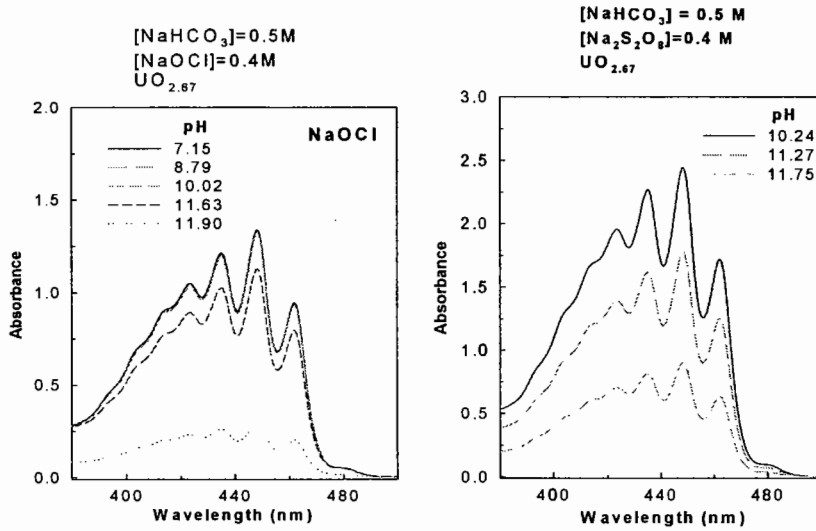


그림 1. 산화제 첨가(NaOCl, $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_8$) 우라늄산화물 용해액의 흡수 스펙트럼

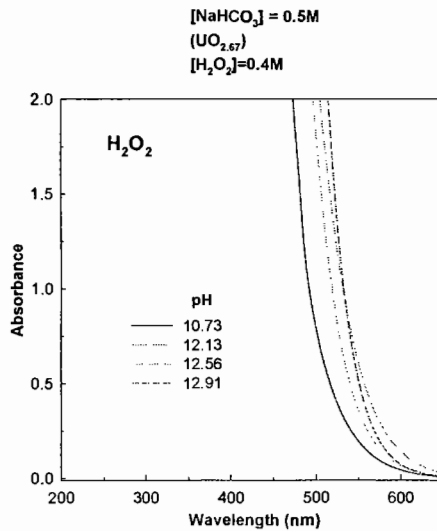


그림 2. 과산화수소 첨가 우라늄산화물 용해액의 흡수 스펙트럼

참고문헌

- [1] N. Asanuma, M. Harada, Y. Ikeda and H. Tomiyasu, *J. Nucl. Sci. Tech.*, 38, 866 (2001).
- [2] D.W. Shoesmith, *J. Nucl. Mater.*, 282, 1 (2000).
- [3] Grenthe, I., Fuger, J., Konings, R. J. M., Lemire, R. J., Muller, A. B., Nguyen-Trung, C., Wanner, H., Chemical Thermodynamics of Uranium, NEA-OECD, Eds., North Holland Elsevier Science Publishers B. V., Amsterdam, The Netherlands, (1992).
- [4] S.M. Peper, et al., *Ind. Eng. Chem. Res.*, 43, 8188 (2004).

사용후핵연료 건식재가공에 의한 표준물질 제조 절차 및 균질도 평가

류호진, 박근일, 이정원, 조광훈, 이도연, 이태훈, 김호동, 송기찬

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

hjryu@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 내에 존재하는 민감 핵물질의 계량을 위해 비파괴분석법(Non-Destructive Assay, NDA)이 사용되고 있다. 건식 재가공 산화물 핵연료의 핵물질 계측용으로는 DSNC(DUPIC Safeguards Neutron Counter)가 개발되어 IMEF에 위치한 DFDF(DUPIC Fuel Development Facility)에 설치되어 사용되고 있다. 사용후핵연료는 중성자속의 분포 차이에 의해 핵연료 표면의 연소도가 급격히 증가하는 특성을 가지고 있으며 이로 인하여 소결체 반경 방향의 핵물질 분포가 연소도에 따라 변화하게 된다. 따라서 DSNC와 같은 중성자 계측기를 보정하기 위하여 실제 사용후핵연료를 사용하는 것은 많은 불확도를 내포하게 될 것이다. 한편, DUPIC 핵연료 개발과정에서 확립된 사용후핵연료 건식재가공 기술은 사용후핵연료를 반복 산화-환원 공정에 의해 미세한 분말로 변환시킨 후 다시 재소결하는 공정을 거치므로 균질한 표준물질을 제조할 수 있는 기술로 기대되고 있다. 따라서 본 연구에서는 사용후핵연료 내의 핵물질 계량의 신뢰도를 향상시킬 수 있을 것으로 기대되는 사용후핵연료 표준물질 제조 절차 및 균질도를 평가하고자 한다.

2. 기술 현황 분석

사용후핵연료 내의 핵물질 계량은 Fig. 1 과 같이 중성자 계수를 통해 Cm-244의 질량을 측정하고 화학분석을 통해 얻어지는 Pu, U 조성과 코드 계산을 통해 얻어지는 Pu/Cm, U/Cm 질량비를 이용해 Pu, U의 질량을 계산하게 된다. 따라서 Pu 및 U의 측정 불확도에는 중성자 계측기의 측정 불확도 외에 화학 분석의 측정 불확도와 코드 계산의 측정 불확도가 합성되게 될 것이다. 따라서 측정 불확도를 감소시키기 위해서 다음과 같은 자격을 가진 사용후핵연료의 표준물질이 필요하다. 첫째, 화학분석을 위한 샘플링 오차를 최소화하기 위해서는 표준시료의 구성이 균질해야 한다. 둘째, 코드 계산을 위해서는 표준시료의 정확한 물리적(밀도, 무게), 화학적(분자식) 명세가 있어야 한다. 셋째, 표준시료에 포함되어 있는 Cm-244 및 주요 핵분열성 악티나이드 원소들의 정확한 함유량 정보가 있어야 한다. 넷째, 교정곡선 생산을 위해 다양한 질량의 표준시료가 준비되어야 한다.

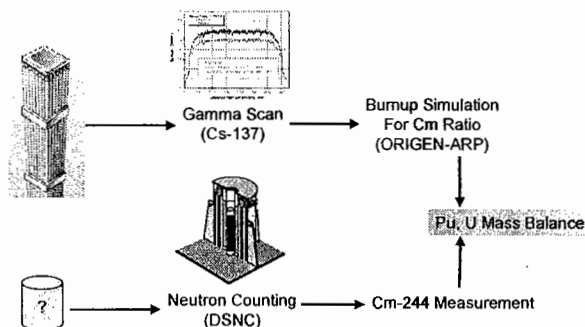


Fig. 1. Flow chart of NDA analysis of spent fuel

3. 사용후핵연료 표준물질 제조절차 및 균질도 평가

표준물질(Reference Material)은 의도된 목적에 맞추어 만들어진 특성치가 충분히 균질하고 안정적인 물질로서 측정 시스템 교정 및 품질 관리에 사용된다. 인증표준물질(Certified Reference Material)은 특성값과 관련된 불확도 및 소급성(traceability)이 언급된 인증서가 있는 표준물질이다. 품질관리물질 (Quality Control Materials, QCM)은 품질관리를 위해 사용되는 표준물질로서, 대개 내부 사용을 목적으로 시험실에서 생산되는 내부표준물질(In-house Reference Material)이며 경향분석, 결과값 비교, 기기성능체크, 반복성 검토, 샘플체크 용으로 사용될 수 있다. 연소도별로 조성이 다양한 사용후핵연료를 이용한 표준물질은 품질관리물질이 적합한 개념일 것으로 판단된다. 현재 한국원자력연구원에서는 27GWd/t에서 65GWd/t 연소도 범위의 사용후핵연료를 보유하고 있으므로 Fig. 2와 같이 건식 재가공된 표준물질의 균질도를 평가한 후 중성자 계측 결과와 화학분석 결과 간의 상호 비교를 통해 핵물질 측정에 사용될 수 있는 교정 관계식을 수립할 수 있을 것으로 판단된다. Table 1은 27,300MWd/MTU의 연소도를 가지는 G23 핵연료봉을 건식 재가공한 후 화학조성 분석을 반복 수행한 결과를 이용하여 측정 불확도를 평가한 결과이다. 미량 함유된 Pu-238을 제외한 나머지 핵종들은 4% 이내의 측정 불확도를 보이고 있음을 알 수 있었다. 이와 같은 측정 불확도 평가 방법은 사용후핵연료와 건식재가공 전환체의 화학조성의 균질도를 비교하는 데 사용될 수 있을 것이다.

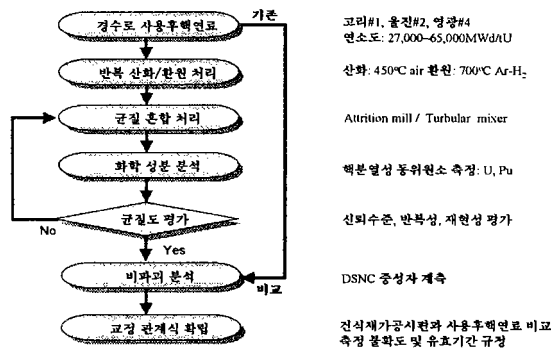


Fig. 2. Flow chart for fabrication of dry-processed spent fuel standard

Table 1. Uncertainty analysis of chemical composition of dry-processed pellet

Isotope	Average	Standard Deviation	standard uncertainty	Degree of freedom	Coverage Factor, k_{95}	expanded uncertainty	%
U	0.95165	0.01296	0.006482	3	3.18	0.020614	2.2
Pu	0.00833	0.00009	4.3E-05	3	3.18	0.000137	1.6
U-234	0.00018	0.00000	1.44E-06	3	3.18	4.59E-06	2.5
U-235	0.01030	0.00015	7.47E-05	3	3.18	0.000236	2.3
U-236	0.00353	0.00008	3.76E-05	3	3.18	0.00012	3.4
U-238	0.93764	0.01287	0.006434	3	3.18	0.020459	2.2
Pu-238	0.00016	0.00002	1.05E-05	3	3.18	3.35E-05	20.7
Pu-239	0.00523	0.00006	2.78E-05	3	3.18	8.83E-05	1.7
Pu-240	0.00200	0.00003	1.39E-05	3	3.18	4.42E-05	2.2
Pu-241	0.00055	0.00001	3.88E-06	3	3.18	1.24E-05	2.2
Pu-242	0.00039	0.00000	2.29E-06	3	3.18	7.27E-06	1.9

참고문헌

1. KS A ISO Guide 30, 2005
2. 측정불확도, 한국화학시험연구원
3. IAEA, Safeguards Techniques and Equipment, 2003

제3분과

사용후핵연료 및 핵연료주기 (Poster)

가압경수로 고연소도 사용후연료 피복관의 부식 측정

오완호, 이은표, 서항석, 김은가, 민덕기, 전용범
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
whoh@kaeri.kr

가압경수로 원자력발전소에서 핵연료의 경제성과 사용후연료의 발생량을 줄이기 위해서 운전주기를 늘리면서 연소도를 높이는 것이 현재 발전소의 운전추세이다. 따라서 원자로에서 핵연료의 연소주기를 연장하여 연소도를 높이려면 연소 중 핵연료의 건전성이 보증되는 것을 확인하여야 한다. 원자로 내에서 핵연료의 건전성은 사용후핵연료를 검사하여 그 거동을 평가함으로써 이루어진다. 핵연료의 연소거동에 대한 검사는 발전소 현장 수조에서 연료 재장전기간 동안에 수행하게 되며 보다 더 정밀한 검사는 사용후연료 중에서 특별히 선정된 연료를 조사후시험시설로 운반하여 핫셀에서 상세한 시험을 통해 이루어진다.

핫셀에서 사용후 연료봉에 대한 시험은 비파괴시험과 파괴시험으로 이루어지는데, 고연소도 핵연료에서 건전성에 영향을 주는 특별한 현상은 연료봉 피복관의 부식거동이다. 이것은 피복관의 산화현상으로 나타나게 되는데 본 연구에서는 고연소된 사용후연료봉의 피복관에 대한 산화특성을 검사하여 그 건전성을 확인하는 것이다.

1. 연료봉 피복관의 산화층 시험방법

사용후연료봉 피복관의 산화층시험은 핫셀내에 설치된 비파괴시험대에 연료봉을 장착한후 시험대에 부착된 와전류 산화층 측정장치를 이용하여 산화층의 두께를 측정한다. 연료봉에 대한 산화층의 두께는 연료봉을 상하로 이동시키면서 V홀에 접촉한 연료봉 표면에 와전류센서를 일정한 스프링 힘으로 밀착시켜 측정한다. 와전류시험장치의 측정주파수는 3 MHz이며 정확도는 $\pm 5 \mu\text{m}$ 이다. 측정전에 표준봉을 이용하여 시험장치를 교정한 후에 교정치와 비교하여 연료봉에 대한 산화층의 두께를 측정한다. 측정 후에는 측정시스템의 재현성을 보증하기 위해 표준시험봉으로 다시 확인한다. 이와 같이 비파괴시험법으로 연료봉의 전 길이에 대해서 산화층 분포를 측정하고 실제적인 산화층의 정밀측정은 연료봉을 절단한 후 지정한 부위에서 시편을 채취하여 금속조직시험으로 확인한다.

2. 사용후연료봉 산화층 두께 측정결과

산화층 측정시스템 교정용 표준시편은 미조사 연료봉 피복관 표면에 12 μm , 50 μm , 100 μm 두께의 마일러 필름을 부착하여 만들었다. 마일러 필름에 대한 산화층과의 유사성을 확인하기 위해 핫셀 밖에서 마일러 필름을 이용한 표준시편으로 측정장치를 교정한후 500 $^{\circ}\text{C}$ 공기 중에서 산화시킨 연료봉피복관의 산화층을 측정한다. 동일한 측정부위를 절단하여 금속조직시험 결과와 비교하였다. 산화시편에 대한 산화층두께는 비파괴 와전류시험 측정에서 $53 \pm 2 \mu\text{m}$ 이었으며, 금속조직시험에서는 $54 \pm 3 \mu\text{m}$ 로서 $\pm 3 \mu\text{m}$ 오차 이내에서 잘 일치하였다. 따라서 마일러 필름을 이용한 표준시험봉으로 핫셀 와전류 측정시스템을 교정한 후 연료봉을 원주방향으로 돌려가면서 연료봉 전길이에 대해서 표면산화층의 두께를 측정하였다. 사용후연료봉에 대한 와전류 시험을 마친 후 산화층의 정밀한 두께 확인을 위해서 연료봉을 절단하여 원주방향과 길이방향 위치에서 시편을 채취하여 금속조직시험으로 산화층을 측정하였다. 그림 1은 사용후연료봉의 전 길이에서 산화층 두께측정의 와전류 비파괴시험 결과를 보여주고 있으며, 그림 2는 와전류 시험과 금속조직시험의 산화층 두께측정에 대한 비교측정치를 보여주고 있다.

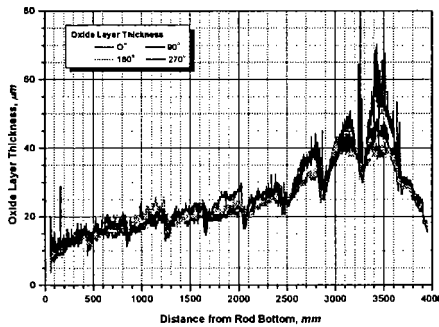


그림 1. 사용후연료봉 피복관의 산화층 두께 분포

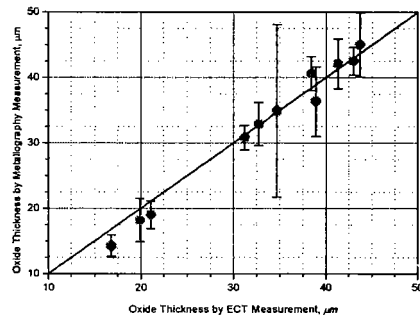


그림 2. 와전류시험과 금속조시험 산화층 측정결과 비교

그림 1에서 고연소 사용후연료봉의 피복관 표면산화층의 두께 분포를 0도, 90도, 180도와 270도 등 4방향에서 보여주고 있다. 측정결과에서 연료봉의 하부(2500 mm 이하)는 산화층의 두께가 $30\mu\text{m}$ 미만으로 비교적 적게 형성되었으며 산화층이 가장 두껍게 형성된 지점은 연료봉의 상부인 3000 ~ 3500 mm 위치로 약 $40\sim 70\mu\text{m}$ 두께의 산화층이 형성되었다. 또 이곳의 산화층 두께가 측정 방향에 따라 차이가 많았는데 이것은 외관검사에서 나타난 것과 같이 산화층이 부분적으로 떨어져 나간 곳이 많을 뿐만 아니라 측정 중 와전류 센서에 이물질이 묻어나기 때문이다. 그림 2에서 연료봉의 와전류 산화층 측정치와 각 위치의 조직시험에서의 측정치를 비교하면 와전류 측정치의 기저값과 조직시험의 최대값에서는 서로 일치하고 있으나 측정지점에서의 평균값에서는 최대 10 % 정도의 차이가 나고 있다. 이것은 사용후연료봉의 산화현상이 40~45 GWd/tU의 연소도에서는 안정적이고 일정한 현상을 보여주지만 연소도가 50 GWd/tU 이상으로 가면 상부쪽에서 산화층이 심해지며 산화층 표면에 크리드 부착현상을 보여주고 있다. 이뿐만 아니라 산화층이 두꺼운 상부에서는 표면산화층이 부분적으로 떨어져 나가는 현상도 보여준다. 따라서 이와같은 산화층 표면조건은 와전류 시험시 측정치를 불안정하게 하고 실제 산화층두께 보다는 큰 값을 보여주게 한다(1).

3. 결론

고연소도 사용후연료봉의 경우, 연료봉 피복관 표면에 산화층이 두껍게 형성되고 부분적으로 떨어져 나간 곳이 있기 때문에 편차가 많이 있지만, 전체적으로 비파괴 와전류 측정법으로 측정된 산화층 두께와 금속 조직시험으로 측정된 산화층 두께 값이 비교적 잘 일치하고 있어 고연소도 연료봉의 건전성 평가에 비파괴 와전류측정법을 유용하게 활용할 수 있다는 것을 확인하였다.

참고문헌

1. S. K. Yagnik, D. P. Johnson and J. A. Kervinen, "Eddy Current Measurements of Corrosion and Metal Loss in Zircaloy Cladding with Ferromagnetic Crud," Nucl. Tech. Vol. 147, 2004.

핵연료봉내 방출 핵분열기체의 동위원소 분포 특성

박순달, 김정석, 하영경, 한선호, 지광용

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045번지

nsdpark@kaeri.re.kr

핵연료의 중성자 조사시 발생되는 Kr, Xe 등 핵분열기체의 양은 전체 핵분열생성물 발생량의 약 30%에 달하는 주요 핵분열생성물이다. 이렇게 발생된 핵분열기체의 일부는 어떤 요인에 의해 핵연료봉내의 자유공간으로 방출된다. 핵연료봉내 자유공간으로 방출된 핵분열기체는 피복관과 핵연료 소결체 표면간의 thermal gap conductance를 떨어뜨린다. 이와 같은 gap conductance의 저하는 핵연료소결체의 온도를 증가시키고 그에 따라 핵분열기체의 방출을 더욱 가속시킨다. 이러한 현상을 thermal feedback이라 하며 He의 압력이 낮은 핵연료에서 현저하게 나타난다. 이와 같이 핵연료봉내 자유공간으로 방출된 핵분열기체는 핵연료봉의 내압을 상승시키고, thermal feed back 현상을 야기하여 핵연료봉의 안전성을 저하 시킬 수 있다.

핵연료봉내 방출 핵분열기체의 양 및 Kr, Xe의 조성비 등은 핵연료의 연소도, 농축도, 화학적 형태 및 기타 원자로의 운전조건 등에 영향을 받는다. 따라서 사용후핵연료의 조사평가시 핵연료봉내 방출핵분열기체의 조성 및 방출량 측정은 중요 측정항목이다. 그러나 핵연료봉내 방출 핵분열기체의 동위원소 조성비로부터 핵연료의 건전성 및 고연소시 rim 영역에서 방출된 핵분열기체의 영향을 고찰한 연구에는 많지 않은 것 같다.

T. Jonson등¹⁾은 사용후핵연료의 핵분열기체평가에서 $(^{83}\text{Kr}+^{84}\text{Kr})/^{86}\text{Kr}$ 및 $(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})/^{134}\text{Xe}$ 와 $^{86}\text{Kr}/^{134}\text{Xe}$ 의 상관성 및 $^{86}\text{Kr}/^{134}\text{Xe}$ 와 연소도의 상관성으로부터 핵연료 조사특성을 규명하고자 하였다. 연구결과 측정된 핵분열기체의 동위원소조성비는 측정 불확도 이상의 어떤 경향성을 갖는 것으로 나타났다. J. Noirot등²⁾은 핵연료소결체 반경방향에 따른 연소도 차이 특히 핵연료의 rim에서의 높은 Pu 함량이 핵분열기체의 동위원소 조성비에 미치는 영향을 조사하였다. $(^{83}\text{Kr}+^{84}\text{Kr})/^{86}\text{Kr}$ 및 $(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})/^{134}\text{Xe}$ 의 비와 연소도와의 상관성 및 모델계산에 의한 핵연료소결체의 rim에서 방출된 핵분열기체의 조성이 전체 핵분열기체 조성에 대해 미치는 영향을 검토하였다. M. Mogensen³⁾은 Xe의 이론적인 발생량 추정에 중요한 ^{135}Xe 의 ^{136}Xe 으로 전환율을 구하는데 $^{136}\text{Xe}/(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})$ 와 연소도의 상관관계를 이용하였다. ^{135}Xe 의 반감기는 9.17 시간으로 매우 짧지만 ^{135}Xe 의 중성자 포획단면적이 2.65×10^6 b으로 높기 때문에 ^{135}Xe 의 상당한 분율이 ^{136}Xe 으로 전환된다. Xe 발생량의 약 20%가 ^{135}Xe 에 기인하므로 이 현상은 Xe 발생량 계산에 중요한 의미를 갖는다.

본 연구에서는 가압경수로형 핵연료봉내 방출핵분열기체인 Kr, Xe의 동위원소 조성비와 연소도 등을 조합하여 그 상관성을 검토 하였다. 핵분열기체의 조성 및 동위원소 분포 측정에는 영국 ess사의 지름 6.3 mm, 길이 125 mm인 사중극자질량분석기를 사용하였다. 질량분석기의 표준검증에는 He 바탕기체에 Xe, Kr, N₂, O₂, Ar, CO₂를 0.05 v%-5 v% 범위로 충전한 일련의 혼합표준기체를 사용하였다. 사중극자질량분석기와 시료 주입 chamber를 충분히 배기시켜 각각의 진공도를 10^{-7} Torr, 10^{-5} Torr대로 유지시킨 상태에서 혼합표준기체를 시료 주입 chamber에 주입시켜 표준검정곡선을 작성하였다. 조사후시험시설에서 친공 포집한 핵분열기체 포집병을 사중극자질량분석기의 시료 주입부에 연결한 후 표준검증과 같은 방법으로 각 기체의 질량에 따른 피크세기를 측정하여 핵분열기체의 조성과 동위원소분포를 측정하였다.

연소도 약 30 GWd/mtU~55 GWd/mtU의 가압경수로형핵연료봉내 방출된 핵분열기체의 $(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})/^{134}\text{Xe}$ 비 및 $(^{83}\text{Kr}+^{84}\text{Kr})/^{86}\text{Kr}$ 비를 그림 1 및 그림 2에 나타내었다. 그림 1 및 그림 2에

서 보는 바와 같이 방출핵분열기체의 $(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})/^{134}\text{Xe}$ 비 및 $(^{83}\text{Kr}+^{84}\text{Kr})/^{86}\text{Kr}$ 비는 연소도가 증가함에 따라 증가함을 알 수 있다. 이와 같은 현상은 연소도가 증가함에 따라 ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu 의 열중성자 및 고속중성자 조사에 의한 ^{131}Xe , ^{132}Xe 및 ^{83}Kr , ^{84}Kr 의 생성수율이 ^{134}Xe 및 ^{86}Kr 에 비해 상대적으로 높기 때문이며 핵연료의 정상적인 연소를 나타낸다. T. Jonson등¹⁾은 $(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})/^{134}\text{Xe}$ 비 및 $(^{83}\text{Kr}+^{84}\text{Kr})/^{86}\text{Kr}$ 비를 $^{86}\text{Kr}/^{134}\text{Xe}$ 비와 상관시킨 결과 수분을 함유한 결합핵연료를 가진 핵연료봉에서 방출된 핵분열기체의 $(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})/^{134}\text{Xe}$ 비 및 $(^{83}\text{Kr}+^{84}\text{Kr})/^{86}\text{Kr}$ 비가 정상핵연료봉에 비해 매우 높음을 확인하였다. 이와 같은 동위원소비의 특성은 결합핵연료의 hyperstoichiometric fuel(UO_{2+x})에서 ^{131}Xe , ^{132}Xe 및 ^{83}Kr , ^{84}Kr 의 전구물질인 ^{131}I , ^{132}Te 및 ^{83}Se , ^{84}Se 의 빠른 확산에 기인하는 것으로 해석하였다. 향후 핵연료봉의 연소이력 등에 대한 정확한 정보와 보다 많은 핵분열기체 동위원소분포에 대한 데이터 축적으로 핵분열기체의 동위원소 조성비를 고찰함으로써 유용한 연소 정보를 얻을 수 있을 것으로 기대된다.

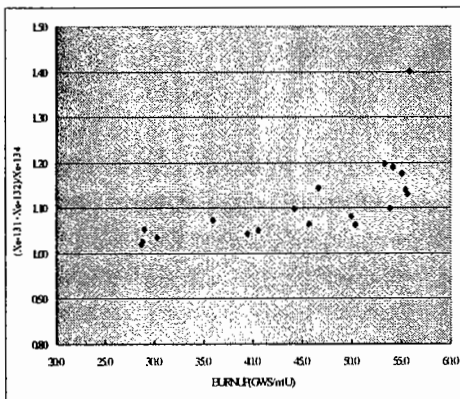


Fig. 1. The ratio of $(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})/^{134}\text{Xe}$ as a function of rod burnup.

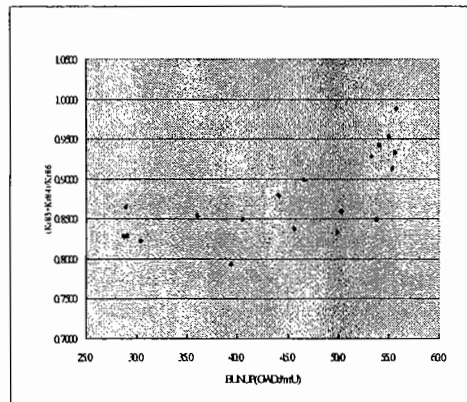


Fig. 2. The ratio of $(^{83}\text{Kr}+^{84}\text{Kr})/^{86}\text{Kr}$ as a function of rod burnup.

1. T. Jonson, "Fuel chemistry and pellet-clad interaction related to high burnup fuel," Proceedings of the technical committee IAEA(Vienna) TECDOC-1179, 11-16, October, 2000.
2. J. Noirot, L. Desgranges, P. Marimbeau, "Contribution of the rim to the overall fission gas release: What do isotopic analysis reveal, OECD/NEA International Seminar on Fission Gas Behaviour in Water Reactor Fuels," Cadarache(France) 26-29 September, 2000.
3. M. Mogensen, RISO-M-2352, Aug. 1982.

DSC를 이용한 UO_2 핵연료의 산화유도시간 측정

강권호, 나상호, 박창제, 김영희, 양명승, 송기찬
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 nghkang@Kaeri.re.kr

1. 서론

핵연료의 산화는 재료의 구조변화와 물성의 변화를 초래한다. 초기산화로 UO_2 가 U_3O_8 의 형태로 변할 경우 핵연료의 부피가 줄어들고, 산화가 더 진행되어 U_3O_8 의 형태로 변하면, 부피가 늘어나 응력을 견디지 못하고 깨어져 분말형태로 변하게 된다. 이는 핵연료의 노내 거동 시 핵연료-피복관 상호작용(Pellet-Cladding Mechanical Interaction, PCMI)을 일으켜 노내 건전성과 결합연료봉의 주원인이 되며, 사용후핵연료의 장기저장 및 처분 등의 안전한 관리에도 영향을 미치게 된다. 또한 산화로 인해 열전도도의 감소, 열팽창의 증가, 용해도 증가 등 물성 변화가 수반되며, 이 역시 핵연료의 노내 건전성이나 사용후핵연료의 안전한 관리에 큰 영향을 미치게 된다. 따라서 핵연료의 노내 건전성 평가나 사용후핵연료의 건식저장시 열화에 따른 장기 건전성 유지 여부를 평가하기 위해서는 핵연료의 산화거동 분석이 필수적이라 할 수 있다. 본 연구에서는 핵연료의 초기 산화 거동을 평가하는 산화유도시간(Oxidative Induction Time, OIT)을 시차주사열량계(Differential Scanning Calorimeter, DSC)를 이용하여 측정하였으며 산화에 필요한 활성화에너지를 구하였다.

2. 실험 및 결과

산화유도시간을 측정하기 위해서 폴리에틸렌의 열적 안전성 평가를 위한 KS 규격 “플라스틱-시차주사열량계-제6부 : 산화유도시간측정”을 따랐다. 시간에 따라 산화에 의한 시료의 열유속의 변화를 측정하는 것으로 산화가 발생하지 않을 경우는 열유속 변화가 없을 것이며, 산화에 의한 반응열이 발생할 경우는 열유속의 변화가 생길 것이다. 열유속의 변화가 일어나는 시점을 측정하여 산화유도시간으로 정하는 방법이다. 재료는 약 40 mg의 UO_2 핵연료 소결체를 이용하였으며, 300~600 °C의 온도범위에서 실험을 수행하였다. 실험온도까지 온도상승 중에 산화되는 것을 방지하기 위해 Ar 가스를 공급하였으며, 실험 온도의 동온 조건에서 산화제로 공기를 분당 20 l 공급하였다. 그림 1의 A는 450 °C에서 산화유도시간 실험 결과를 나타낸 것으로 공기가 공급되고 난 이후 시간에 따른 열 발생 부분을 확대한 것이며, B는 1차 열발생 시점의 시간을 구한 것이다.

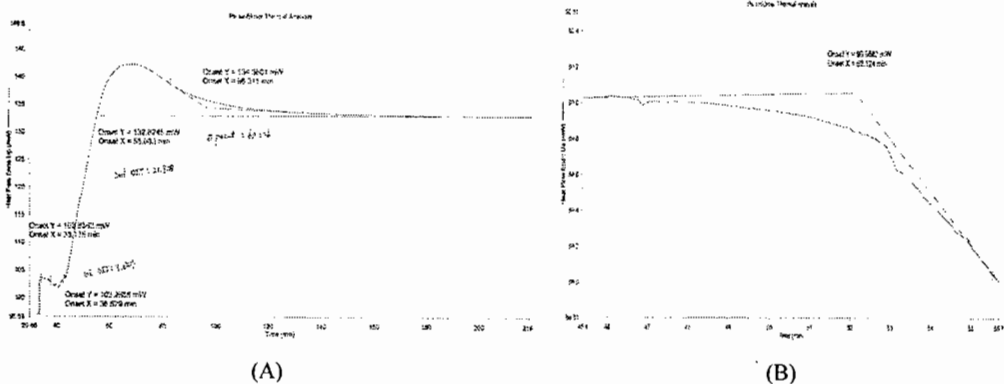


Fig 1. The experimental results of oxidative induction time of UO_2 .

그림에서는 1차 산화에 의해 시간에 따른 열유속 곡선의 변화가 생겼으며, 그 후 다시 2차 산화에 의한 열유속 곡선의 변화가 발생하였다. 이는 UO_2 가 U_3O_8 또는 U_4O_9 의 형태로 1차 산화가 진행된 후 U_3O_8 의 형태로 2차 진행되는 것으로 생각된다.

그림 2의 A는 1차 산화유도시간(1st OIT)과 2차 산화유도시간(2nd OIT) 및 산화가 끝나는 시간(END point)을 온도별로 나타낸 것과 B는 산화유도시간을 모델링하기 위해 온도의 역수에 따라 산화유도시간을 나타낸 것이다.

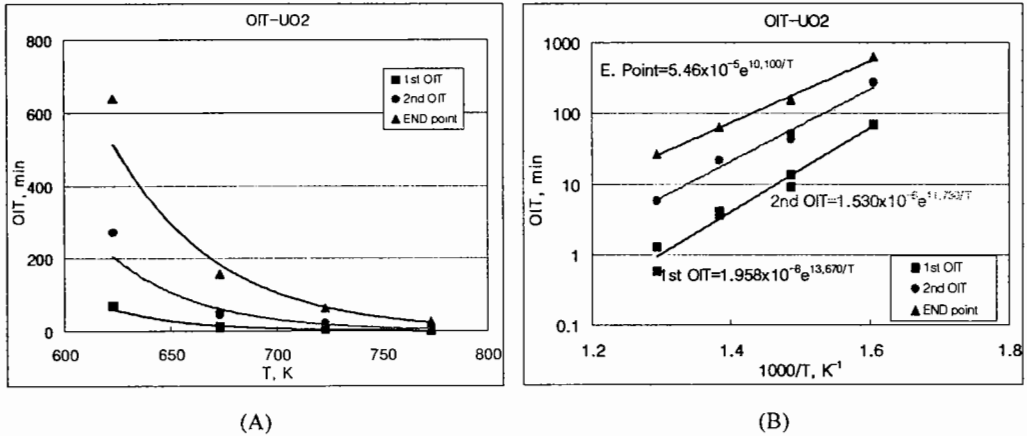


Fig 2. Oxidative induction time of UO_2 with temperature and reverse temperature.

산화유도시간은 1차 및 2차 산화유도시간과 산화가 끝나는 시간은 온도가 증가할수록 지수 함수적으로 감소하는 것으로 나타났다. 온도의 역수에 따른 OIT를 지수 함수로 fitting하여 다음과 같은 모델을 도출하였다.

$$\begin{aligned}
 \text{1st OIT} &= 1.958 \times 10^{-8} e^{-113,653/RT} \text{ for } U_3O_7 \text{ or } U_4O_9 \\
 \text{2nd OIT} &= 1.530 \times 10^{-6} e^{-97,523/RT} \text{ for } U_3O_8 \\
 \text{3rd COT} &= 5.460 \times 10^{-5} e^{-85,218/RT} \text{ for complete oxidation}
 \end{aligned}$$

여기서 1st OIT는 U_3O_7 또는 U_4O_9 의 형태로 1차 산화에 필요한 시간, 2nd OIT는 U_3O_8 의 형태로 2차 산화에 필요한 시간 그리고 3rd COT는 완전산화에 필요한 시간을 나타낸다.

표 1은 본 연구에서 구한 1, 2차 OIT와 TGA를 통해서 구한 OIT 및 U_3O_8 분말의 기준인 0.6 wt% 무게증가가 일어나는데 걸리는 시간을 나타낸 것이다.

Table 1. The oxidative induction time of UO_2 measured by using DSC and the activation energy

Temp. K	1st OIT (DSC), min	Activation Energy, kJ/mol	2nd OIT (DSC), min	Activation Energy, kJ/mol	OIT (TGA), min	Activation Energy, kJ/mol	OIT (0.6 wt%), min	Activation Energy, kJ/mol	Activation Energy, published
300		113.65		97.523	834	86.050	941	85.218	90.8~120 for U_3O_7/U_4O_9 , 48~109 for U_3O_8
350	70		271		117		128		
400	13		47		58.5		68		
450	3.8		22		22.7		17.2		
500	0.9		5.8		18.7		20.5		
600					14.5		17.7		

3. 결론

DSC를 이용한 산화유도시간 측정은 국내에서 처음 시도되었으며, 좀 더 정확한 산화유도시간 및 활성화에너지를 구하였다. 이는 핵연료 성능평가 또는 사용후핵연료 관리에 유익한 자료로 활용될 수 있을 것으로 생각된다.

ACPF One Batch 사용후 핵연료 선원항 계산

정창준, 민덕기, 박창제, 서기석
 한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
cjieong@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서 개발중인 차세대 핵주기 공정 실증시설에 사용될 운반 용기 차폐해석 및 열 해석을 위한 선원항을 계산하였다. 계산은 3가지 핵연료 종류, 즉, 14x14, 16x16 및 17x17 핵연료 집합체를 대상으로 각각 우라늄 20kg one batch에 수행하였다. 다음은 본 계산에 사용된 초기 농축도 및 연소도를 나타낸다.

- 1) 14x14: 3.5wt% U-235, 50000 MWd/tU
- 2) 16x16: 4.5wt% U-235, 55000 MWd/tU
- 3) 17x17: 5.0wt% U-235, 60000 MWd/tU

본 계산에서는 SCALE 5.0 시스템의 ORIGEN-S [1] 코드를 이용하고, 감마 에너지는 18군, 중성자 에너지는 44군을 사용한다. 사용후 핵연료를 2개의 구성 성분으로 나누어 선원항을 계산한다. 즉, 핵연료에 대해서는 power irradiation을 사용하고, 구조재에 대해서는 핵연료 계산시 얻은 flux 값을 사용하여 flux irradiation을 수행한다.

2. 계산방법 및 결과 고찰

본 연구에서 계산되는 선원항의 분류는 다음과 같다.

- 1) 구성 재료 원소별 질량
- 2) 구성 재료 원소별 방사능
- 3) 구성 재료 원소별 thermal power
 - 방사성물질에서 나오는 열(heat)
- 4) 감마선원
 - 방사성 핵분열물질의 붕괴시 방출되는 감마선
 - 중성자 포획으로 나오는 2차 감마선
 - 원자로 운전중에 방사화된 연료집합체의 구조재료에서 나오는 감마선
- 5) 중성자 선원
 - 자발핵분열에서 나오는 중성자
 - (알파,중성자) 반응에서 나오는 중성자

대상 연료에 대한 핵연료봉의 핵연료 및 구조재 무게는 표 1과 같다. 이는 참고문헌 [2]의 KN-12 용기 차폐해석 자료를 참고하였다.

Table 1 Weight of Element (kg)

	14x14	16x16	17x17
UO ₂	21.666	21.556	21.456
Clad	4.204	4.488	4.828
Total	25.870	26.044	26.284

계산 결과를 표 2 - 4에 요약하여 나타내었다. 17x17 핵연료 대한 결과를 살펴보면, 냉각 기간 5년이 지난 후 붕괴열 7.073×10^1 W, 방사능 1.971×10^4 Ci, 감마 선원 3.712×10^{14} photons/s, 중성자 선원 2.913×10^7 neutrons/s 등을 알 수 있다. 한편, 계산된 모든 선원항은 냉각 기간이 경과함에 따라 감소되는 것을 알 수 있다. 14x14 및 16x16 핵연료에 대한 결과를 살펴보면 모든 선원항이 17x17 핵연료에 비해 작게 나타났다. 이는 이들 핵연료의 초기 농축도와 연소도가 17x17 핵연료에 비해 낮기 때문인 것으로 판단된다. 따라서, 운반 용기 평가 시 적절한 핵연료를 선택하여 사용하는 것이 중요할 것으로 판단된다.

Table 2 Results of Source Term (14x14)

	Elements	Cooling Time					
		Discharge	1.0 y	3.0 y	5.0 y	7.0 y	10.0 y
Total Power (W)	LE	7.511E-01	4.648E-02	1.771E-02	1.035E-02	7.308E-03	4.792E-03
	AC	2.756E+03	2.424E+01	1.250E+01	1.171E+01	1.141E+01	1.101E+01
	FP	4.182E+04	2.478E+02	8.550E+01	4.638E+01	3.368E+01	2.654E+01
	totals	4.458E+04	2.721E+02	9.802E+01	5.810E+01	4.510E+01	3.756E+01
Radioactivity (Ci)	LE	1.398E+02	1.253E+01	4.072E+00	2.101E+00	1.275E+00	6.783E-01
	AC	1.021E+06	3.820E+03	3.212E+03	2.928E+03	2.682E+03	2.354E+03
	FP	3.448E+06	5.786E+04	2.180E+04	1.341E+04	1.068E+04	8.990E+03
	totals	4.470E+06	6.169E+04	2.502E+04	1.634E+04	1.336E+04	1.134E+04
Total Gamma source (Photons/s)	totals	-	1.552E+15	5.581E+14	3.069E+14	2.187E+14	1.667E+14
Total Neutron Source (Neutrons/s)	totals	-	3.212E+07	2.770E+07	2.558E+07	2.372E+07	2.118E+07

Table 3 Results of Source Term (16x16)

	Elements	Cooling Time					
		Discharge	1.0 y	3.0 y	5.0 y	7.0 y	10.0 y
Total Power (W)	LE	7.442E-01	5.031E-02	2.196E-02	1.393E-02	1.013E-02	6.704E-03
	AC	2.742E+03	2.658E+01	1.369E+01	1.288E+01	1.262E+01	1.227E+01
	FP	4.474E+04	2.634E+02	9.250E+01	5.124E+01	3.764E+01	2.984E+01
	totals	4.748E+04	2.900E+02	1.062E+02	6.413E+01	5.027E+01	4.212E+01
Radioactivity (Ci)	LE	1.363E+02	1.195E+01	3.912E+00	2.101E+00	1.325E+00	7.420E-01
	AC	1.013E+06	4.456E+03	3.762E+03	3.430E+03	3.142E+03	2.760E+03
	FP	3.670E+06	6.168E+04	2.366E+04	1.482E+04	1.190E+04	1.006E+04
	totals	4.684E+06	6.615E+04	2.743E+04	1.826E+04	1.504E+04	1.282E+04
Total Gamma source (Photons/s)	totals	-	1.656E+15	6.054E+14	3.387E+14	2.436E+14	1.865E+14
Total Neutron Source (Neutrons/s)	totals	-	3.194E+07	2.732E+07	2.522E+07	2.338E+07	2.090E+07

Table 4 Results of Source Term (17x17)

	Elements	Cooling Time					
		Discharge	1.0 y	3.0 y	5.0 y	7.0 y	10.0 y
Total Power (W)	LE	4.692E+01	6.918E-01	1.892E-01	1.289E-01	9.267E-02	5.851E-02
	AC	2.852E+03	2.992E+01	1.567E+01	1.473E+01	1.439E+01	1.395E+01
	FP	4.715E+04	2.808E+02	9.987E+01	5.587E+01	4.116E+01	3.262E+01
	totals	5.005E+04	3.114E+02	1.157E+02	7.073E+01	5.564E+01	4.663E+01
Radioactivity (Ci)	LE	9.401E+03	2.714E+02	5.886E+01	2.791E+01	1.735E+01	1.035E+01
	AC	1.051E+06	4.714E+03	3.968E+03	3.619E+03	3.316E+03	2.914E+03
	FP	3.870E+06	6.546E+04	2.540E+04	1.606E+04	1.294E+04	1.095E+04
	totals	4.930E+06	7.045E+04	2.943E+04	1.971E+04	1.627E+04	1.387E+04
Total Gamma source (Photons/s)		-	1.781E+15	6.583E+14	3.712E+14	2.673E+14	2.043E+14
Total Neutron Source (Neutrons/s)		-	3.675E+07	3.155E+07	2.913E+07	2.701E+07	2.413E+07

3. 결론

ACPF 운반 용기 해석을 위한 사용후 핵연료에 대한 선원항을 계산하였다. 계산 결과 선원항은 핵연료의 초기 농축도 및 방출 후 냉각 기간에 따라 크게 달라지므로 운반 용기 해석 시 적절한 핵연료의 선택이 요구된다고 할 수 있다.

참고문헌

1. I.C. Gauld, et als., "ORIGEN-S: SCALE System Module to Calculate Fuel Depletion, Actinide Transmutation, Fission Product Buildup and Decay, and Associated Radiation Source Terms," ORNL/TM-2005/39, Version 5, Vol. II, Book 1, Sect. F7 (2005)
2. Safety Analysis Report of KN-12 Shipping Cask - Chapter 5. Shielding Evaluation, GNB B 002_2002_Chp_5_02-01-25, Rev. 0 (2002).

가압경수로형 사용후 핵연료봉 내압 및 핵분열기체량 측정

이형권, 서항석, 권형문, 황용화, 전용범, 민덕기

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

nhkleel@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료봉 내압 및 핵분열기체량시험 자료는 핵연료 설계에서 열적·기계적특성을 분석하는데 기본적으로 필요한 자료이다. 특히 핵연료의 봉내압은 수명과 직결되며 요인이며, 원자력 발전의 경제성과 안전성을 확보하기 위한 고연소 핵연료에서는 더욱 중요하다. 핵연료는 연소도가 증가함에 따라 핵분열기체 누출량이 증가되며, 이로 인하여 연료봉내의 압력을 증가시키며, 원자로 안전성에 영향을 미치게 된다. 그러므로 핵연료의 수명을 연장시키고 안전성을 확보하기 위해서는 연료 설계 및 제조시 봉내압 및 기체량측정시험 자료가 필요하게 된다.

2. 실험 및 결과

가. 실험

실험은 Fig. 1에서와 같이 연료봉을 천공용기에 장전한 후 연료봉의 공간체적을 결정하기 위한 선행조건으로 질소가스를 이용하여 천공용기체적을 측정하여야 한다. 그 이유는 연료봉의 공간체적은 천공전과 천공후의 천공용기체적의 차로 구하기 때문이다. 천공용기체적 측정 후 장치내에 적절한 진공도까지 도달하면 펀치로 핵연료봉을 천공한다. 이때 천공된 핵연료봉에서는 핵분열기체가 방출되어 천공용기내로 팽창하게 되며, 어느 정도의 시간이 경과되면 천공용기내의 압력과 온도가 평형을 이룬다. 그리고 다음단계로 표준용기에 핵분열기체를 팽창시켜 어느정도 시간이 지나면 압력과 온도가 안정화된다. 이러한 과정에서 측정한 데이터로부터 사용후핵연료봉의 봉내압, 공간체적 및 핵분열기체량을 결정할 수 있다.^[1]

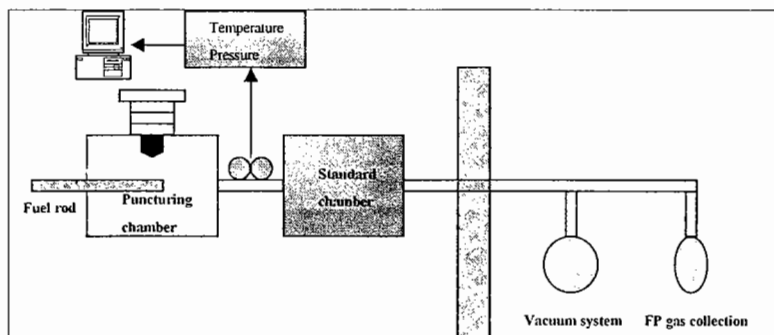


Fig. 1. Schematic diagram of fission gas puncturing device.

나. 결과 및 고찰

Table 1은 PWR 14 x14형 사용후핵연료봉에 대한 봉내압, 공간체적 및 기체량과 핵분열기체의 성분을 나타낸다.

Table 1 Results of puncturing test for PWR spent fuel rods.

연료봉 No.	연소도 (MWD/MTU)	봉내압(kPa)	공간체적(cm ³)	기체량(cm ³)	Xe(cc)	Kr(cc)	FFGR(%)
1	39,352	3,582	17.62	581.4	7.84	3.19	0.42
2	35,952	3,544	20.17	657.3	11.47	5.15	0.70
3	28,700	3,072	22.88	654.8	12.97	2.22	0.81
4	28,225	3,174	22.55	658.2		-	-
5	28,958	3,157	21.49	623.9	8.6	0.75	0.49
6	30,330	3,377	22.59	701.1	31.96	5.25	1.87

일반적으로 사용후핵연료봉의 내압은 연소도가 증가할수록 핵분열기체의 누출이 증가하여 압력이 상승하는 것으로 알려져 있다. 실험에서 연소도에 따른 연료봉내압은 연소도가 비슷한 값을 갖는 연료봉에서 거의 비슷하였으며, 연소도가 증가하면 봉내압은 증가하나 연소도가 증가한 만큼 직선적으로는 변화되지 않았다.

사용후핵연료봉의 공간체적은 연소가 진행됨에 따라 펠렛의 고밀화(densification)에 의해서 증가하다가 다시 팽윤(swelling)에 의해서 체적이 감소하게 된다. 또한 팽윤으로 인하여 핵연료봉의 피복관과 펠렛 사이의 직경방향 갭(gap)이 감소하게 된다. 공간체적의 변화는 연소도가 증가함에 따라 거의 직선적으로 감소하는 것으로 나타났다.

Xe과 Kr의 관계는 연소도가 28 ~ 39 GWD/MTU인 실험연료봉에서 2.2 ~ 11.5배로 나타났다. 핵분열기체 누출율은 연소도, 펠렛의 중심온도, 피복관과 펠렛 사이의 갭 및 U^{235} 의 농축도 등에 따라서 변화한다. R. Manzel 등은 U^{235} 의 가압경수로형 핵연료의 농축도와 초기갭(initial gap)의 크기에 따라서 핵분열기체의 누출에 관한 실험을 수행하였다. U^{235} 농축도가 3.8 ~ 4.2 %인 가압경수로형 핵연료봉의 갭이 215~220 μm , 180~190 μm 및 163~175 μm 일 때 핵분열기체 누출율은 갭이 가장 큰 연료봉에서 누출이 컸으며, 일반적으로 고농축 연료봉이 저농축 연료봉보다 누출율이 많았다. 그리고 U^{235} 의 농축도가 3.2%이고 갭의 크기가 190 μm 인 경우는 누출율 저연소도에서 누출율이 가장 크고 중간 연소도에서는 감소하다가 연소도가 증가할수록 다시 증가한다고 했다.^[2] A. Smirnov 등은 연소도 증가에 따른 핵분열기체 누출율은 연소도가 43 GWD/MTU일 때 까지는 거의 변화가 없다가 이후부터는 직선적으로 증가한다고 했다. 이 실험에서도 핵분열기체 누출율은 이와 비슷한 경향을 보였다. 실험결과에서 누출율은 0.42 ~ 1.87 %로 계산되었으며, NRC correlation 이내인 것으로 확인되었다.

3. 결론

가압경수로형 핵연료봉을 핫셀내에서 천공하여 봉내압, 공간체적, 핵분열기체량 측정시험과 기체에 대한 성분분석시험을 수행하였다. 시험결과, 핵연료봉 내압은 연소도가 증가함에 따라 증가하였으며, 공간체적은 연소도가 증가할수록 직선적으로 감소하는 것으로 나타났다. 이 실험에서 연료봉들의 핵분열기체 누출율은 0.42~1.87 %로 NRC correlation 이내로 확인되었다.

참고문헌

- [1] 이형권 외, "가압경수로 사용후핵연료봉의 핵분열기체포집장치 개발 및 모의핵연료봉을 이용한 시험평가", 한국원자력학회 춘계학술 발표회 논문집, 2000.
- [2] R. MANZEL, et al., "Fission Gas Release of High Burnup Fuel", Internal Atomic Energy Agency, p63-67, 1993.

고연소 핵연료봉 밀도시편 채취장치 및 핵연료봉 Tube core drilling machine 개발

서항석, 이형권, 전용범, 황용화

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

nhsseo@kaeri.re.kr

조사후시험시설은 국내 상용 원자력발전소에서 조사된 핵연료를 시험/평가할 수 있는 국내 유일의 시험시설이다. 국내 상용 원자력 발전소에서 연소한 원전 조사후핵연료의 성능을 평가하고 건전성을 검증하며, 고방사성 원자력 재료의 특성 시험을 수행함으로써 고연소도, 고성능 핵연료의 원전 조사 성능평가 분석과 핵연료 및 원자력 재료의 건전성 검증시험 결과를 제공 한다. 따라서 고연소도 핵연료봉 성능 및 안정성연구 프로젝트의 지원을 위해 고연소 핵연료봉 밀도시편 채취장치 및 핵연료봉 Tube core drilling machine 장치를 개발하게 되었다. 고연소도 핵연료에서는 핵연료봉의 여러 가지 성능 인자들이 변화하게 되므로 고연소도 핵연료봉의 안정성 검증을 위한 성능검증이 필요하다. 이에, 원자력 선진국들은 고연소도 핵연료봉 안정성검증방법과 평가기술개발을 주요 현안으로 채택하여 활발하게 연구 중에 있다. 국내의 경우 한국원자력연구원을 중심으로 고연소도 핵연료봉 성능 및 안정성연구 프로젝트가 진행되고 있다. 이를 위해, 1990년부터 국내 12개 가압경수로에 공급된 국내 핵연료봉 중에서 울진 2호기의 K23핵연료봉집합체(52.5 MWD/kgU-rod avg.)를 고연소도 핵연료봉으로 선정하여 조사후시험시설(PIEF)에서 핵연료봉의 안전성 시험을 수행하고 있다. 향후 연소도 70 MWD/kgU-rod avg. 이상의 고연소도 핵연료봉 개발을 목표로 핵연료봉 안정성 시험 및 평가기술 개발을 진행중이다.



Fig 1. OM picture of pellet and cladding.

핵연료봉 피복관은 중성자 조사를 받으면 피복관 기계적 성질이 약화된다. 이런 피복관 기계적 성질의 변화는 피복관의 안전성에 영향을 미치므로, 피복관의 기계적 건전성 확인을 위한 시험이 필요하다. 피복관의 기계시험을 위해서는 우선 피복관(cladding)과 소결체(pellet)을 분리하는데 소결체는 조사가 되면서 팽윤현상(swelling)에 의해 피복관과 접촉이 일어나고, 고압과 고온에 의한 화학반응에 의해서 피복관과 서로 고착하게 된다. 소결체와 피복관을 분리하기 위하여 유압을 이용한 장치를 그동안 사용하였으나, 고연소도의 핵연료봉의 경우 Fig. 1처럼 서로 견고하게 결합되어 기존장치를 이용한 분리가 용이하지 않다.

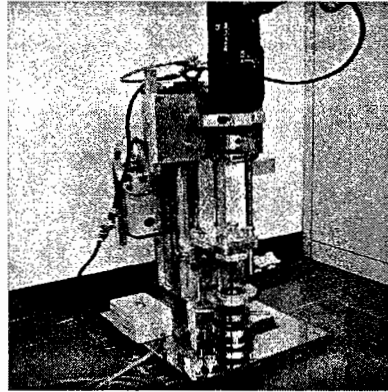


Fig 2. Tube core drilling machine.

따라서 본 연구에서는 피복관의 기계적 실험을 위해서 분리시 피복관 손상을 최소화하면서 피복관과 소결체를 안전하게 분리할 수 있는 핵연료봉 Tube core drilling machine(Fig. 2)을 개발하여 핫셀 내부에 설치하였다. 또한, 핵연료봉 단면 조직검사용 SEM시편과 밀도시편을 채취할 수 있는 밀도시편 채취장치(Fig. 3)을 개발하였다. 밀도시편 채취장치의 주요기능은 조사된 핵연료봉 소결체의 밀도측정을 위해서 피복관을 축방향으로 절단하여 밀도시편을 채취한다. 축방향으로 피복관 두 지점을 교차하게 절단한 후 핵연료봉을 파쇄하여 SEM조직 시편을 제작할 수 있다. 본 논문에서는 고연소도 핵연료봉의 실험을 위해 개발된 이 기기들을 소개하고 각 장비의 특징을 설명하였다.

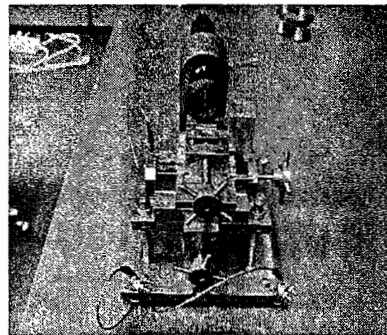


Fig 3. 밀도 시편 채취장치.

- 결론

사용후핵연료 및 고방사성 원자력 재료의 특성시험을 수행할 수 있는 Tube core drilling machine 및 밀도시편 채취장치를 개발하였다. 핵연료봉 Tube core drilling machine은 피복관의 기계적 성질이 변하지 않게 피복관과 소결체를 성공적으로 분리 하였으며 밀도시편 채취 장치는 소결체에 압력을 가하지 않고 피복관에만 다이아몬드 휠로 절단하여 제거함으로써 소결체의 파손을 최소화하여 시편을 채취하는데 좋은 결과를 얻었다.

핵심 운반용기 설계를 위한 단일재의 열전달 특성 평가

이주관, 방경식, 최우석, 강희영, 서기석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

siclee@kaeri.re.kr

1. 서론

핵심 운반용기는 핵심과 핵심간 또는 핵심과 방사성폐기물 저장시설간의 사용후핵연료 또는 고준위폐기물의 운반 및 저장에 활용되며, 국내에서는 핵심 접속용 소형 운반용기(Padirac cask, solid waste cask) 및 접속장치를 전량 해외로부터 수입하여 사용하고 있다. DUPIC이나 ACP 공정에서 사용되는 Padirac cask는 중성자 차폐체가 없는 소형 방사성폐기물 운반용기로 방사선차폐 안전성 및 운반 효율성 면에서 문제점을 갖고 있다. 따라서 한국원자력연구원에서는 2007년도부터 ACP 및 Pyroprocess 실증을 대비하여 사용후핵연료 및 고준위 공정폐기물 운반을 위한 핵심 운반용기를 개발하고 있다. 핵심 운반용기는 B형 운반용기로 구분되며, B형 운반용기는 국내외의 관련법규에 따라 정상운반은 물론 가상사고조건에서도 방사성물질의 누설이 발생되지 않도록 방사선차폐, 열 및 구조적 건전성이 유지되어야 한다. 운반용기의 열적 건전성을 유지시키기 위하여 정상조건에서는 핵연료로부터 방출되는 붕괴열(decay heat)을 외부로 적절하게 열전달 시켜야 하고, 반면에 화재사고조건에서는 외부 화염으로부터 유입되는 열을 적절히 차단하여 설계 압력 및 차폐체의 건전성이 유지되도록 설계되어야 본 연구의 목적은 기존의 핵심 용기의 단일재 재질 및 두께에 따른 열전달 특성을 해석적으로 평가함으로써 핵심 운반용기 설계를 위한 기본 자료를 확보하는데 있다.

2. 해석조건 및 방법

Padirac cask는 구조재로 탄소강을 감마선 차폐체로 150 mm 두께의 납을 사용하고 있다. 또한, 화재사고 조건시 고온으로부터 감마선 차폐체를 보호하기 위해 외각에 단일재로 50 mm 두께의 석회석을 사용하며, 충격완충을 목적으로 100 mm 두께의 Balsa wood로 전면을 감싸주고 있다. 핵심 운반용기의 열전달 특성을 평가하기 위하여 기존의 Padirac cask의 단일재 및 완충체인 석회석 50 mm + Balsa wood 100 mm 두께와 단일재/완충체 두께를 각각 절반으로 축소시킨 석회석 25 mm + Balsa wood 50 mm 두께에 대한 열전달해석을 수행하였다. 또한, 단일재 및 완충체로 16 mm의 3M 매트와 100 mm의 폴리우레탄 폼을 사용한 경우와 8 mm의 3M 매트와 50 mm의 폴리우레탄 폼을 사용한 경우에 대한 열전달해석을 수행하였다. 표 1은 열전달해석에 사용된 주요 재료의 열적 물성치를 나타내며, 단일재 및 완충체의 열전도도가 1 W/m-K 이내로 단열 성능이 우수함을 알 수 있다.

열해석을 위한 해석조건은 법규에서 규정하고 있는 정상운반조건 및 화재사고조건을 적용하였으며, 정상운반조건은 대기온도 38 °C에서 최대 태양열이 유입되는 경우이며, 화재사고조건은 정상조건하에서 800 °C화재가 30분 동안 진행된 후 자연 냉각되는 조건이다. 핵심 운반용기의 운반 대상은 연소도 43,000 MWd/tU, 냉각기간 10년인 PWR 사용후핵연료 10 kg을 기준으로 하였으며, 핵연료로부터 발생하는 붕괴열을 16 W로 고려하였다. 용기 표면에 유입되는 태양열유속은 법규에서 규정하고 있는 운반용기 형상이 곡면일 경우의 태양열유속 400 W/m²을 고려하였으며, 범용 열유동해석 프로그램인 FLUENT 코드를 이용하여 해석을 수행하였다.

Table 1. Thermal Properties of Materials

Materials	Thermal properties		
	Conductivity(W/m-K)	Density(kg/m ³)	Specific heat(J/kg-K)
Lead	35	11,340	129
Carbon steel	43	7,833	420
Limestone	0.92	900	1,650
Balsa wood	0.05	24	2,520
3M mat	0.15	865	1,385
Polyurethane foam	0.04	200	1,670

3. 결과 및 토의

그림 1은 화재사고조건에 대한 운반용기의 온도분포를 나타내고 있다. 운반용기의 내부 핵연료에서 발생하는 붕괴열이 16 W로 적은 양이므로 정상운반 및 화재사고조건에서 핵연료의 열적 건전성은 충분이 유지된다. 따라서 핫셀 용기 설계 시 납차폐체의 허용온도 이하 유지 여부가 중요한 설계요건이 되며, 표 2에는 단열재 및 완충체 두께에 따른 납차폐체의 최대온도를 나타내었다. 납차폐체의 온도는 정상운반조건에서 80 ~ 85 °C, 화재사고조건에서 91 ~ 102 °C의 온도로 납의 용융온도인 327 °C보다 훨씬 낮으므로 모든 조건에서 운반용기의 열적 건전성이 충분히 유지됨을 알 수 있다. 단열재 및 완충체로 석회석과 balsa wood를 사용한 경우와 3M 매트와 폴리우레탄폼을 사용한 경우의 단열 효과는 큰 차이가 없는 것으로 나타났다. 기존 핫셀 운반용기의 단열재 및 완충체 두께를 각각 1/2로 축소시켜도 열적 건전성이 충분히 유지되므로 기존 용기는 단열성능이 과도하게 설계되었음을 알 수 있다. 따라서 ACP 및 Pyroprocess 실증을 위한 핫셀 운반용기 설계시 단열재 두께를 기존 용기의 1/2 이하로 줄일 수 있을 것으로 판단되며, 본 연구결과는 향후 핫셀 용기의 단열재 및 완충체 최적설계를 위한 기본 자료로 활용될 예정이다.

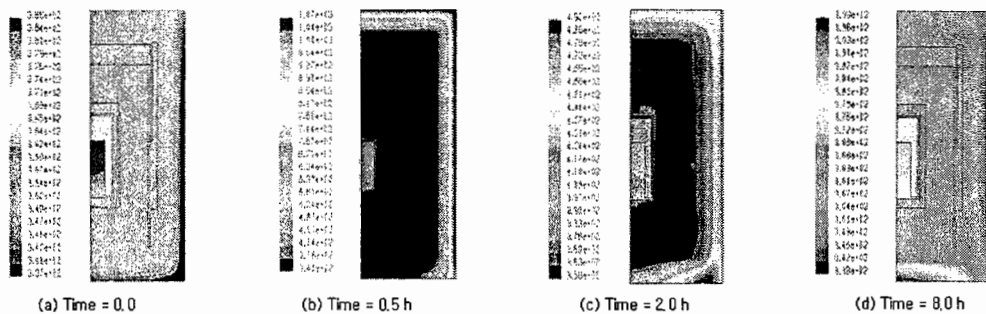


Fig. 1. Temperature Contour of Hotcell Cask under Fire Accident Condition.

Table 2. Maximum Lead Temperatures as a Variation of the Insulation and Shock Absorber

Thickness of Insulation and absorber (mm)	Maximum temperature of lead shield (°C)	
	Normal condition	Fire accident condition
Limestone 50 + Balsa 100	84	92
Limestone 25 + Balsa 50	80	105
3M mat 16 + PU 100	85	91
3M mat 8 + PU 50	81	102

고연소도 UO_2 사용후 핵연료의 Pellet-Clad Bonding Layer 미세조직 관찰

김대호, 김선기, 양용식, 방제건, 송근우, 권형문
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
kdh@kaeri.re.kr

1. 서론

연료의 경제성제고와 자원이용증대에 따라 국산 UO_2 핵연료의 고연소도화가 진행되고 있으며, 추가적으로 출력 증강이 더불어 연구 진행되고 있다. 이러한 추세에 조사후 핵연료 가열장비(Post-Irradiation Annealing Apparatus)를 이용한 국산 고연소도 UO_2 사용후 핵연료의 과도조건에서 성능분석을 위한 가열시험(안전성 시험)이 수행되고 있다. 정상상태에서 연소되는 고연소도 UO_2 핵연료의 pellet-clad gap closure의 원인으로는 소결체 기지내에 많은 양의 핵분열기체 축적, 수소침착과 irradiation-hardening에 의한 피복관의 연성 감소, 피복관의 크립다운과 소결체의 팽윤 등으로 짐작할 수 있다. 이러한 PCMI의 원인들로 인해 pellet-clad가 기계적 접촉을 통한 bonding이 진행된다. 피복관 및 소결체의 재료특성에 따라 bonding되는 연소도 시점은 다르겠지만, 상용 경수로 UO_2 핵연료의 경우 35,000 MWd/MTU에서 gap closure가 시작되어 pellet-clad bonding이 시작된다. 이러한 bonding은 반응도사고나 LOCA 사고 등의 과도상태시 소결체의 외곽에 형성된 rim 영역과 함께 치명적인 핵연료 손상을 초래할 수 있다. pellet-clad bonding 영역의 산화 및 가열시험을 통하여 pellet과 cladding을 분리하고, 미세조직을 관찰하였다.

2. 실험 및 결과

본 시험에 사용된 시편은 울진 2호기에서 봉평균 57,000 MWd/tU-rod avg.까지 연소된 핵연료로 국부연소도 65,000 MWd/tU UO_2 소결체의 피복관이 붙어 있는 외곽고형체 180 mg(피복관 50g 포함)을 사용하였다. 본 시편을 핫셀 내의 사용후 핵연료 가열시험장비(PIA)를 이용하여 400℃, 500℃ 및 600℃에서 각각 1시간씩 산화시킨 후 500℃에서 3시간의 추가 산화를 통하여 총 6시간의 산화가열시험을 실시하고 helium 분위기에서 분당 10℃/min 으로 1200℃까지 온도상승 후 30분가량 유지하면서 핵분열기체의 방출거동을 확인한 후에 감온하였다. pellet부분의 경우 대부분 rim 영역으로 산화의 진행정도가 늦고 가열중 핵분열기체의 방출은 미미하게 나타났다. 가열후 자연스럽게 분리된 clad부분과 pellet부분을 SEM 시편으로 가공하여 미세조직을 관찰하였다. 관찰결과 그림에서 보는 것과 같이 피복관의 내부 표면에서 cubic 형태의 결정립이 관찰되었으며, 이때의 결정립은 1 ~ 5μm의 크기로 분포하는 것을 확인하였다. 핵연료봉 제조시 21 bar의 Helium 가압에 따른 산소불순물을 16 ppm으로 제한하고 있는 점을 감안하면, 피복관 내부면의 산화층을 관찰하기 어렵다. 일반적으로 bonding 영역에서 α-Zr(O)x, (U, Zr) 및 $\text{UO}_2 + \text{U}$ 의 삼상구조로 구분할 수 있으나, 시험결과 pellet과 clad의 접촉시 Zr과 UO_2 사이의 화학적 결합보다는 피복관의 creep과 고연소도에 따른 rim의 형성으로 발생한 핵분열 기체팽윤에 의한 기계적 결합이 지배적인 bonding역할을 담당한 것으로 판단된다. 본 실험시 pellet과 clad가 쉽게 분리된 이유는 pellet 외면의 rim 형성에 따라 접촉부위가 상대적으로 견고한 압력으로 결합하다가 산화와 가열에 의한 계면에너지의 손실로 인해 기계적인 분리가 발생한 것으로 판단된다. 일반적인 bonding 영역에서의 삼상구조는 물리적인 활성에너지를 포함하여 화학적인 결합에 의해 형성하게 되지만, 핵연료봉 제조시 불순물 함유량 등의 제한조건을 감안하면 pellet-clad 사이의 화학적 결합보다는 고연소도에 따른 rim 영역에서 핵분열기체 팽윤이 기계적 결합을 주도하는 것으로 판단된다. 주기초 핵연료의 과도상태 운전에 의해 pellet 표면에서의 온도가 1500℃ 근처까지

이르면 pellet-clad 사이에서 쉽게 화학적결합이 진행되지만, 정상상태에서는 결합층이 기계적인 원인으로 진행되는 것으로 판단된다.

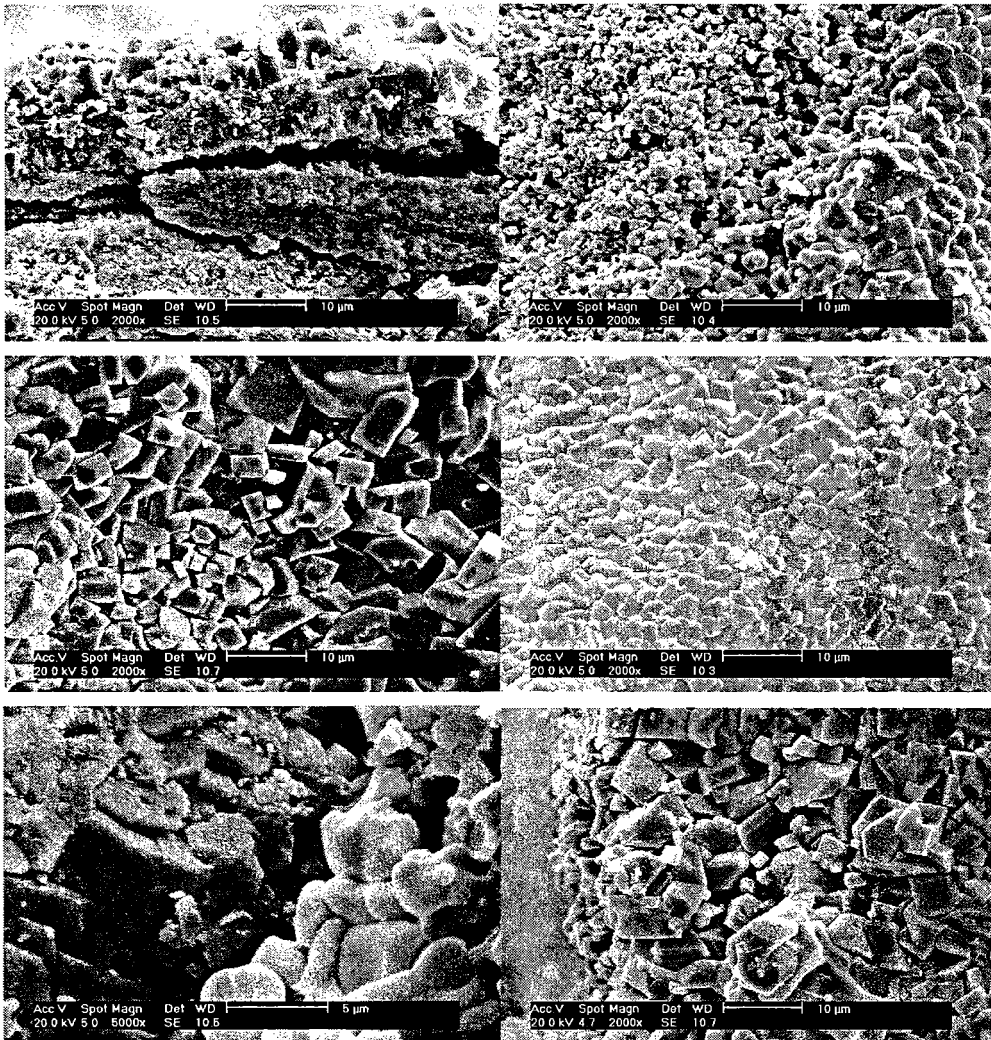


그림. 사용후 UO₂ 핵연료의 pellet-clad bonding layer 분리 미세조직 SEM사진

3. 결 론

핫셀내에서 PIA 장비를 이용하여 산화와 가열시험을 통해 bonding된 pellet과 cladding을 분리하여 전자주사현미경(SEM)을 통하여 미세조직을 관찰하였다. 결합된 부위는 500℃ 산화와 1200℃ 가열시험을 통하여 pellet과 cladding으로 분리되었으며, SEM 관찰결과 피복관의 내부표면에서 cubic 형태의 결정립이 관찰되었고, 이때 결정립은 1 ~ 5μm의 크기로 분포하는 것을 확인하였다. 소결체의 경우 rim 영역의 일부 산화된 1μm내외의 크기의 결정립을 관찰되었다. 정상상태의 고연소도 핵연료에서는 화학적 삼상결합보다는 기계적 결합이 지배적인 것으로 판단된다.

고연소도 UO_2 사용후 핵연료의 고온(1700°C) 가열시험 특성

김대호, 김선기, 양용식, 방제진, 송근우, 권형문
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
kdh@kaeri.re.kr

1. 서 론

국산 UO_2 핵연료의 고연소도화가 진행되고 있으며, 추가적으로 출력 증강이 더불어 연구 진행되고 있다. 이러한 추세에 조사후 핵연료 가열장비(Post-Irradiation Annealing Apparatus)를 이용한 국산 고연소도 UO_2 사용후 핵연료의 과도조건에서 성능분석을 통한 안전성 시험이 수행되고 있다. 조사후 핵연료 가열장비(PIA)를 이용한 고연소도 UO_2 사용후 핵연료의 시간에 따른 고온가열시험을 통하여 핵분열기체의 방출거동과 미세조직의 거동변화를 관찰하였다. 1700°C 가열에 따른 조직의 변화로 인해 분리된 핵분열 생성물의 확인시험이 EDS를 이용하여 실시하였다.

2. 실험 및 결과

본 시험에 사용된 시편은 울진 2호기에서 봉평균 $57,000 \text{ MWd/MTU-rod avg.}$ 까지 연소된 핵연료로 국부연소도 $65,000 \text{ MWd/MTU}$ UO_2 소결체의 고형체 150 mg 와 170 mg intermediate 부분을 사용하였다. 본 두개의 시편은 사용후 핵연료 가열시험장비(PIA)를 이용하여 핫셀 내에서 500°C , 800°C , 1000°C , 1200°C , 1500°C 및 1700°C 까지 각각 30분씩의 온도유지를 통하여 핵분열기체의 방출 거동을 실시간 확인하였으며, 이때의 가열분위기는 helium 150 ml/min 을 유지하였다. 두 번의 시험 전과정은 핵분열기체 방출거동 확인을 위해 ^{85}Kr 의 방출량을 베타 측정기와 감마 측정기를 이용하여 실시간으로 측정 하였으며, 가열시험이 종료된 후 전자주사현미경(SEM)을 이용하여 미세구조의 변화를 관찰하였다. 특히, 시편 중 그림에서 보는 것과 같이 결정립경계에 분리된 이물질에 대해 EDS를 이용하여 성분분석 시험이 시행되었다. 시험결과 핵분열기체의 방출은 500°C , 800°C , 1000°C 및 1200°C 에서 각각 뚜렷한 방출거동을 보이나, 1500°C 및 1700°C 에서는 핵분열기체의 방출이 그림 1.과 같이 미미하게 나타났다. 온도상승에 따라 UO_2 기지 내에서의 확산계수가 틀려지게 되고, 이때 방출되는 핵분열기체의 양이 결정되어 진다. 1200°C 이후 핵분열기체의 방출거동이 미미해지는 이유는 핵연료의 재구조화가 발생하는 시점으로 판단되며, 핵분열기체 및 핵분열생성물의 위치변화를 갖게 된다. 그림 2.와 같이 SEM 사진 분석결과 UO_2 기지 내에 많은 양의 방출되지 않은 핵분열기체가 남아 있는 것을 확인하였으며, 기지 내 pore에서 dissolution 된 핵분열생성물도 일부 관찰 되었다. 실제 가열조건에서의 온도가 상승하더라도 핵분열기체가 모두 빠져나오는 것이 아니라 일정한 확산도에 의해 방출되는 것임을 확인할 수 있다.

그림3.과 같이 시편의 결정립경계에 분리된 입자의 EDS 분석결과 시료의 방사선 activity가 너무 높아 분석감도의 정확도는 무척 낮지만 핵분열생성물 중 주요감마핵종인 Ru으로 확인되었다. 물론, 주요감마 방출 핵종인 Cs이나, Xe, Pt, Rh 및 Nd 등의 핵분열핵종이 나타나고 U이나 Pu 등도 함께 peak를 보이므로 정확한 정량적 분석을 위해서는 WDS가 함께 병행되어야 할 것으로 생각된다.

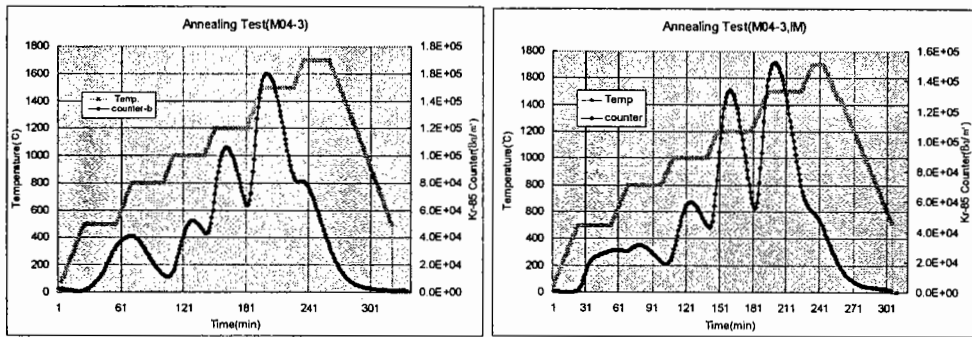


그림 1. 1차 및 2차 1700℃ 가열시험에 따른 핵분열기체 ^{85}Kr 의 방출거동

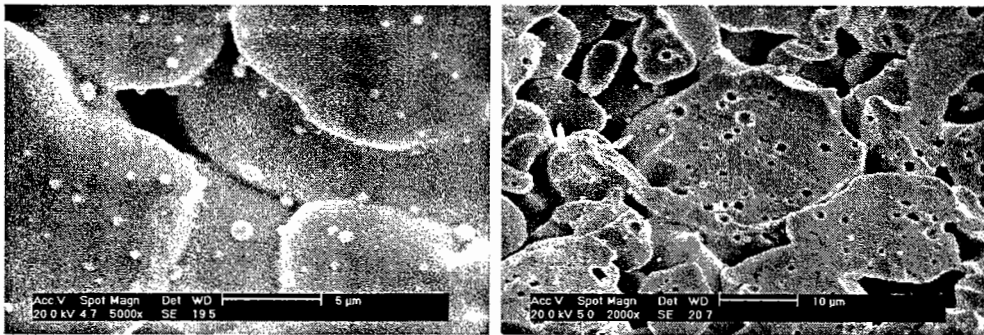


그림 2. 1차 및 2차 1700℃ 가열시험에 따른 미세사진

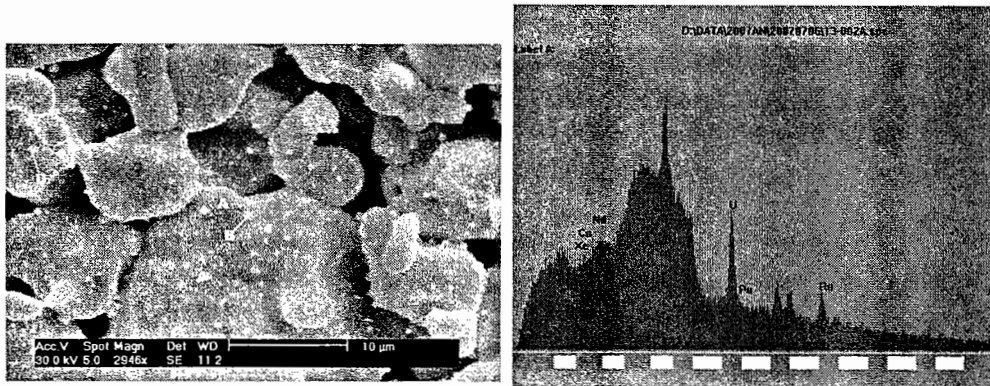


그림 3. EDS를 이용한 지정입자의 핵종분석 결과

3. 결 론

국산 고연소도 UO_2 핵연료의 2회에 걸친 1700℃ 핫셀 내 가열시험을 수행하여 핵분열기체의 방출거동과 SEM을 이용한 미세사진 분석과 EDS를 통한 핵종분석을 수행하였다. 가열시험결과 1200℃ 이후 핵분열기체의 방출거동이 미미해지는 것으로 나타났고 UO_2 의 재구조화가 발생하는 시점으로 판단다. 시편의 결정립경계에 분리된 입자는 EDS 분석결과 분석 정확도는 무척 낮지만 핵분열생성물 중 주요감마핵종인 Ru으로 확인되었다. 분석민감도를 높여 정확한 분석이 추가로 요구되며, peak에서 보이는 핵종의 정확한 정량적 분석을 위해서는 WDS가 함께 병행되어야 할 것으로 생각된다.

동위원소희석 질량분석법을 이용한 고연소 핵연료 중 지르코늄 동위원소 정량

김정석, 전영신, 박순달, 하영경, 지광용

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)

niskim1@kaeri.re.kr

PWR 고연소핵연료 중에 함유된 지르코늄 및 성분 동위원소(^{90}Zr , ^{91}Zr , ^{92}Zr , ^{93}Zr , ^{94}Zr , ^{96}Zr 및 Zr total)들을 동위원소희석 질량분석법 (isotope dilution mass spectrometry, IDMS)으로 정량하였다. 조사된 핵연료시료를 화학핫셀 내에서 질산(1+1) 용액으로 용해 및 희석하여 분석시료를 준비하였다. 시료 및 스파이크 (^{92}Zr)를 첨가한 시료를 12 M HCl 용액으로 전처리한 1 단계 이온교환수지관에서 다른 핵분열생성물을 용리시킨 후 지르코늄을 분리 회수하였다. 용출액에 함유되어 있는 지르코늄 동위원소의 동중원소인 몰리브덴을 제거하기 위하여 5 M HCl 용액으로 전처리한 2 단계 음이온교환수지관에서 정제하였다. 최종 분리한 용액을 열이온화 질량분석기 (thermal ionization mass spectrometer, TIMS)로 각각의 성분동위원소 조성을 측정하였다. 시료 및 스파이크 첨가시료의 측정결과를 이용하여 동위원소희석 질량분석법으로 시료 중의 총 지르코늄 및 각각의 성분 동위원소 함유량을 정량하였다. 정량결과를 ORIGEN code를 이용한 핵연료시료 중의 지르코늄 동위원소 함유량 계산치와 비교하였다.

표 1. 스파이크 표준물의 동위원소 조성

Spike	Isotope	Atom%	Precision(+/-)
^{92}Zr	Zr-90	0.97	0.01
	Zr-91	0.51	0.01
	Zr-92	98.06	0.03
	Zr-94	0.41	0.01
	Zr-96	0.05	0.01

표 2. 조사핵연료로부터 분리된 지르코늄의 동위원소 분포

Mass	88	89	90	91	92	93	94	95	96	97	98
Discharge	Sr	Sr, Y	Sr, Zr	Y, Zr	Zr	Zr	Zr	Nb, Mo, Zr	Mo, Zr	Mo	Mo
After Cooling	Sr	Y	Sr, Zr	Zr	Zr	Zr	Zr	Mo	Mo, Zr	Mo	Mo
Separated	-	-	Zr	Zr	Zr	Zr	Zr	-	Zr	-	-

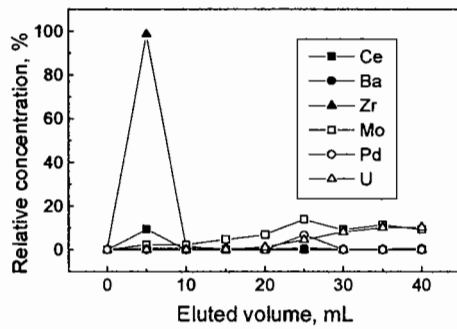


그림 1. 모의핵분열생성물로부터 지르코늄의 용리곡선

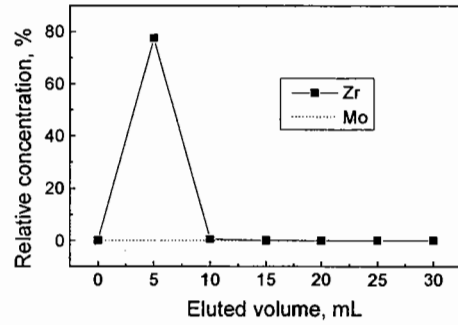


그림 2. 몰리브덴으로부터 지르코늄의 용리 곡선

건식 재가공 핵연료 제조를 위한 핫셀용 고온소결로 개발

이정원, 이도연, 조광훈, 이재원, 류호진, 박근일
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
iwlee3@kaeri.re.kr

1. 서론

고방사성의 사용후핵연료를 해체하여 회수한 소결체를 산화/환원 처리하여 산화물전환체로 만든 다음, 기존의 중수로 핵연료 소결체 제조공정 흐름에 따라 건식 재가공 핵연료를 제조하게 된다. 핵연료 설계사양을 만족하는 고밀도의 재가공 소결체를 만들기 위해서는 산화물전환체 분말을 압분, 성형한 후, 약 1,700℃ 이상의 고온에서 열처리해야만 하기에 고방사성의 핫셀(hot-cell) 내에서 전기로를 이용한 고온 가열은 많은 어려움이 따르며, 기술적 해법이 요구된다. 소결로는 통상 환원성분위기(수소)하, 고온에서 장시간 운용되므로 특수한 발열체 및 단열재가 요구되며 또한, 건식 재가공 핵연료 제조의 경우 고방사성의 사용후핵연료 물질을 직접 취급함으로써 사람의 접근이 불가능하여 차폐 및 밀폐된 한정된 공간인 핫셀에서 원격 취급기구로만 그 작업이 가능함으로 장비의 원격 운용 및 유지 보수성도 함께 고려되어야 하기 때문에 그 개발이 더욱 어렵다. 본 논문에서는 2,000℃까지 가열할 수 있는 핫셀용 고온 소결로의 개발에 대해 기술하고자 한다.

2. 고온 소결로 요건 및 설계

현재 확보된 핫셀 시설(IMEF, M6) 그리고 보조 장치 등을 고려하여, 건식 재가공 핵연료 압분체를 고온 열처리할 핫셀용 고온 소결로가 구비해야 할 주요 요건이 다음과 같이 도출되었다.

(가) 기능상 요건

- 성형체 6 kg 정도를 환원성 분위기에서 소결할 수 있어야 함.
- 배기가스 처리장치가 있어 배출되는 배기가스가 한계치를 넘지 않아야 함.

(나) 성능상 요건

- 소결로는 밀폐되어 가스 누설이 없어야 하고, 최대 13.8 kPa 압력에 견뎌야 함.
- 분위기 가스의 유량은 최대 30 L/min로 설계함.
- 소결 온도 1700℃, 최대 온도 1800℃로 설계함.
- 최대 가열 및 냉각 속도는 250 ℃/hr로 함.
- 교체해야 할 부품들은 원격조작기로 교체 가능해야 함.
- 세슘(Cs) 포집이 가능해야 함.

상기와 같은 요건을 바탕으로 고온소결로의 설계사양이 다음과 같이 결정되었다.

(가) 일반적인 사양

소결로는 핫셀 내에서 UO₂분말을 소결하는데 안정적이어야 하며, 원격조작기(MSM; Master Slave Manipulator)로 운용되고 유지, 관리에 있어서 효과적이어야 한다. 소결로는 수직 원통형 방식으로 설계될 것이며 장치를 쉽게 수리할 수 있도록 입증된 기술에 의해서 설계된다.

(나) 소결로의 성능 및 사양

- Uniform zone 치수 : 직경 120 mm x 높이 60 mm 이내
- 최대 가열온도 : 2,000 ℃
- 작업 온도범위 : 1,750 ±50 ℃
- Uniform zone의 온도편차 : ±3 ℃
- 최대 furnace 전력 : 25 kW

3. 고온 소결로 제작 및 성능시험

본 소결로는 영국의 AEA Technology에서 제작되었으며 상하 flange가 아래 위로 이동할 수 있으며, stainless-steel 재질로 이중 구조의 원통형 용기로 된 표면냉각 방식으로 구성되었다. 상단 flange에는 heater, 열전대의 경보 등을 조절하게 되는 전원 공급 장치들이 있으며, 배기관은 배출되는 물질이 잘 배출되도록 적당한 외형적 연결부분을 갖추었다. 그리고 하단 flange는 밀봉되는 flange가 적합하게 이동하여 밀봉될 수 있고, 아래쪽으로는 방열구조를 가진 crucible의 받침대로 구성되며, 이 flange는 ball-screw로 된 motor에 의해서 들어 올려지는 구조로 하였다. 이 장치는 냉각에 이어서 소결로의 고온 구역에서 시료를 바꾸어 줄 때, crucible를 낮추어 줄 수 있는 기능을 한다. 문을 열 때는 사고 방지를 위하여 연동장치가 있다. 소결로는 원통형의 tungsten 저항선으로 가열되며, 단열재의 안쪽 2개는 tungsten으로 하고, 나머지는 molybdenum으로 된 원통형 방열판 구조로 되어있다. 바깥쪽 층의 방열판은 약 700℃ 부근에서 배출된 물질들의 응축이 방지되어 운전되도록 설계되었으며, 방열판은 용기(vessel)의 차가운 벽에 의한 열손실을 방지하는 alumina 단열층 또는 이와 동등한 역할을 할 수 있는 재질의 단열층으로 되어 있다.

완성된 소결로의 시운전 및 성능확인을 위한 시험이 Table 1과 같은 프로그램으로 핫셀에서 수행되었다. 그 결과, 2000℃까지 프로그램에 따라 잘 작동되었으며, 설계 요구온도 및 기타 조건들을 잘 만족하여 핫셀 운용 고온소결로가 성공적으로 개발되었음을 확인할 수 있었다.

Table 1 The program for the sintering run

Segment	Heating Rate (°C/min)	Duration (min)	Target Temperature (°C)
1	20		1750
2	HOLD	120	1750
3	10		2000
4	HOLD	30	2000
5	10		150

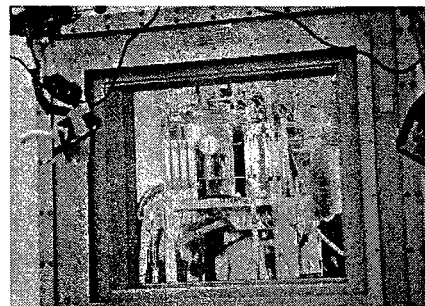


Fig. 1 The sintering furnace installed in a hot cell

4. 결론

원격 운용과 유지/보수를 고려해 한정된 공간인 핫셀에서 핵연료를 만들기 위한 제조장비를 개발한다는 것은 통상의 제조장비 개발과는 그 기본개념이 달랐으며, 더구나 조사후시험에 사용되는 핫셀용 시험기기와도 제조공정에 사용되는 공정장비라는 점에서 그 근본개념을 달리하는 것으로 국내에서는 개발 경험이 전무한 실정이었다. 그러나 본 고온소결로 장비개발을 통해 원격 취급 기구로 운용되고, 유지/보수되어야 하며, 동시에 고방사성 구역인 핫셀에서의 사용에 따른 여러 제한 요소들이 극복되어야 하는 핫셀용 제조장비 개발기술을 확보하게 되었다. 특히, 환원성(수소) 분위기에서 고온(2000℃)까지 가열되며 원격 운용과 수리가 가능해야 하는 고난도의 기술이 요구되는 본 소결로를 성공적으로 개발함으로써 축적된 기술과 개발 경험이 향후 pyroprocessing 기술 및 SFR 핵연료와 같은 미래형 핵연료 원격 장비 개발에 든든한 토대가 될 것이다.

핵연료의 연소도에 따른 연료봉 및 소결체 길이변화

엄성호, 황용화, 오완호, 권형문, 민덕기, 전용범, 류우석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)
eom@kaeri.re.kr

상용 원자력발전소에서 3주기 동안 연소한 핵연료에 대한 핫셀시험은 6개의 연료봉으로 선정하였다. 각 핵연료봉에 대한 감마스캐닝 시험은 고순도 Ge검출기(HPGe detector), 다중과고분석기(MCA)등을 사용하여 연료봉의 전 길이에 대한 감마스캐닝과 Cs-137 감마선 세기의 측방향 분포를 측정하였으며, 길이방향 특정위치(12개 위치)에 대한 감마선 분광분석을 수행하였다. 이 결과로부터 지지격자(spacer grid), 혼합지지격자(intermediate flow mixer)의 위치, 소결체(pellet)의 장전 상태 및 전체 스택(stack)길이 등을 구할 수 있었으며, 연료봉 상·하부 각각에 장전된 천연우라늄 blanket의 길이도 확인할 수 있었다. 또한 각 연료봉에 대한 연소후 생성된 핵분열생성물의 핵종을 분석하기 위하여 연료봉의 길이방향 위치 12 곳을 선정하고 그 위치 각각에 대한 감마선 스펙트럼을 측정하였다. 따라서 감마선 스펙트럼으로부터 감마선방출 핵종의 상대적 양을 측정하여 구한 Cs-134/Cs-137 핵종비와 감마스캐닝에서 얻은 Cs-137의 분포를 이용한 동위원소 상관법에 의해 연소도 분포를 나타내었으며, 연소도 분포를 이용하여 평균 연소도 값을 구할 수 있었다. 그리고 각 연료봉의 연소도에 따라 길이변화를 측정하기 위하여 칫수측정시 LVDT(linear variable differential transformer)를 사용하여 길이방향으로 스캐닝 측정하였다. 따라서 6개의 연료봉에 대한 특성을 상호 비교한 결과 그림 1에서 보는바와 같이 연료봉의 길이와 소결체 stack 길이 변화(성장)를 나타내었다. 그림에서 개략적으로 보아 연료봉의 길이 및 stack 길이의 성장이 연소도와 비례하여 증가하는 것으로 나타났다.

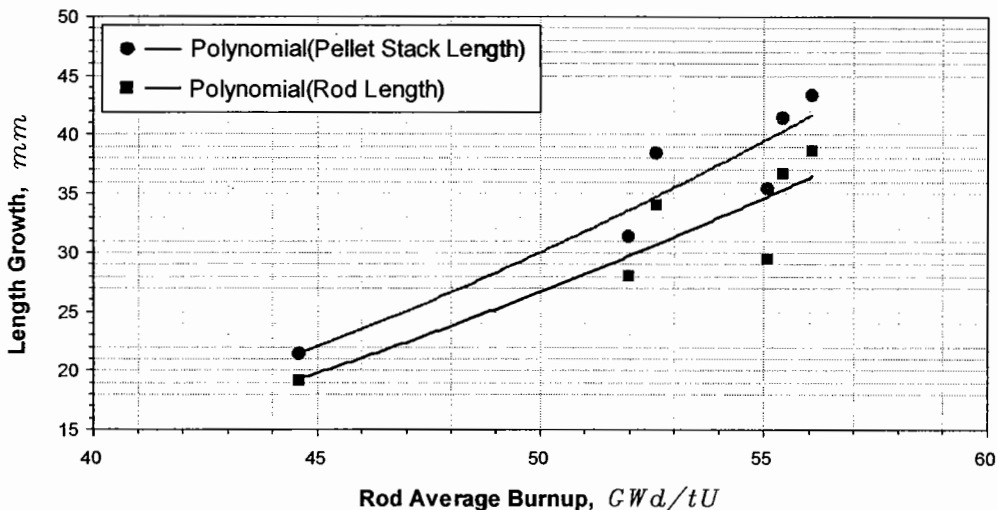


Fig. 1. Fuel Rod Length Change for Burnup.

디스크형 시편 측정을 위한 감마 시준기

박광준, 주준식, 신희성, 강희영, 김호동

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

kipark@kaeri.re.kr

1. 서론

지금까지 감마선분광분석법을 이용하여 디스크 형태의 고체 사용후 핵연료봉 시편에 대한 핵분열 생성물의 농도분포 및 연소도를 결정할 때, 4각형 슬릿(slit)의 감마선 시준기를 사용하였다. 비록 작은 크기의 시편이지만 비교적 많은 양의 감마광자가 방출되기 때문에 계수를 조절 및 직경 방향의 특정위치 측정을 위해서 시준기 사용은 필수적이다. 시편 표면의 특정 위치에서 핵분열 생성물의 농도분포 또는 연소도를 얻기 위해서는 미세 공간 분할 가능한 4각형 형태의 시준슬릿을 사용하여 여러 지점을 측정하여야 한다. 특히 연소도는 시편의 위치에 따라 다르기 때문에 여러 지점을 측정한 후, 평균 연소도를 계산하여야 한다. 따라서 이러한 과정에서 많은 시간이 소요된다. 그래서 이러한 문제점을 보완하기 위해서 감마선 차폐도 되고, 입체각도 크게 할 수 있는 시준기를 고안하게 되었다.

2. 시준기 집합체 구성

기존 4각 슬릿 감마선 시준기는 차폐능은 우수하지만 입체각이 작기 때문에 시편 중앙을 중심으로 반경 방향으로 여러 지점을 측정하여 평균 연소도를 결정하여야만 한다. 그러나 시준기를 2중 원추형 슬릿(double cone-shaped slit)으로 할 경우, 감마선 차폐능은 다소 떨어지나 입체각이 훨씬 커지기 때문에 시편의 모든 위치에서 방출되는 감마광자가 대부분 시준기 구조물에서 흡수되고, 흡수되지 않는 일부 광자와 슬릿 부분을 통과하는 광자만이 검출기에 입사하게 된다. 따라서 차폐기능도 발휘하며, 1회 측정으로 평균 연소도 결정이 가능하게 되므로 상당한 측정시간을 절약하게 된다.

가. 이중 원추형 시준기 차폐체

감마 시준기는 감마선 차폐 및 감마광자의 통과 기능 모두를 가져야 한다. 즉, 시준 슬릿 부분만이 감마광자를 통과시키고, 시준 슬릿 이외의 나머지 부분은 완벽한 방사선 차폐체 역할을 하여야 한다. 시준기의 방사선 차폐능은 시준기 재료 및 두께에 따라 다른데, 보통 밀도가 높은 텅스텐(W)이나 (Pb)를 사용한다. W는 Pb 보다 밀도가 높아 차폐능은 우수하지만 재료비 및 가공비가 높기 때문에 부득이 작은 크기로 높은 차폐능을 요할 경우에만 사용하게 된다. 반면에 Pb는 W에 비해 차폐능은 낮으나 비용이 저렴하고 가공이 용이하기 때문에 널리 사용되고 있다. 본 이중 원추형 감마 시준기는 좁은 슬릿 부분을 정밀하게 가공하기 위하여 경납(납합금)을 사용하였다. 순수한 Pb로 시준기를 만들 경우, Pb의 높은 연성 때문에 가공상의 어려움이 있기 때문이다.

시준 슬릿의 크기는 시편의 크기와 방사능의 세기를 고려하여 결정하였다. 원추형 슬릿의 넓은 부분은 디스크형 사용후핵연료 시편의 직경(~10 mm)과 측정 장치내에 시편을 안착시킬 때, 시편이 시준슬릿 구멍 중심으로부터 벗어나는 것을 고려하여 15 mm로 결정하였다. 시준기 길이는 시편의 방사능 세기를 1 Ci로 가정하고, 여기서 방출되는 감마광자가 맹시준기(슬릿이 없는 시준기)를 통과하여 검출기에 도달하는 양이 최소가 되도록 하는 길이, 즉 구조물의 크기를 최소화하면서 또한 자연방사능(background)도 최소한 낮게 유지할 수 있는 두께를 계산하여 120 mm로 결정하였다(그림1 참조). 왜냐하면 자연방사능이 높을 경우, 사용후핵연료 시편으로부터 획득하는 감마선 스펙트럼에서 특정 핵종(연소도 모니터 핵종)의 피이크를 정확하게 찾아낼 수 없기 때문이다.

나. 시준집합체 제작

원추형 시준기의 슬릿 구멍을 가공하는 일은 단순한 4각 슬릿이나 원형 슬릿을 가공하는 것

과는 다르다. 4각 및 원형 슬릿인 경우, 길이 방향에 대하여 모든 위치에서 동일한 거리 또는 직경을 갖고 있기 때문에 레이저 가공법을 이용할 수 있지만 원추형 슬릿인 경우, 양단 사이에 특정 각도가 이루어지기 때문에 직진성을 갖는 레이저 방법을 활용할 수 없다. 또한 슬릿 구멍이 워낙 작기 때문에 기계적인 가공법도 사용할 수 없다. 그래서 특수 주형틀을 이용하여 원추형 슬릿의 시준기를 제작하였으며, 중심 부분의 직경이 작고, 양단의 직경이 큰 이중 원추형의 시준기는 각각의 단일 원추형 시준기 2개를 만들어 직경이 작은 부분이 서로 접하게 배열시켜 완성하였다. 아무리 시준기를 정밀하게 가공해도 슬릿 구멍이 정확하게 정렬되지 않으면 무용지물이 된다. 그래서 2개의 원추형 시준기를 결합시킬 때, 슬릿 구멍의 중심선이 서로 일치하도록 하기 위하여 원통형의 시준기 틀(collimator frame)을 별도로 제작하여 사용하였다. 시준기와 시준기 틀 사이에 틈이 발생하게 되면, 슬릿 구멍의 정렬이 흐트러지기 때문에 틈이 없도록 조립하였다.

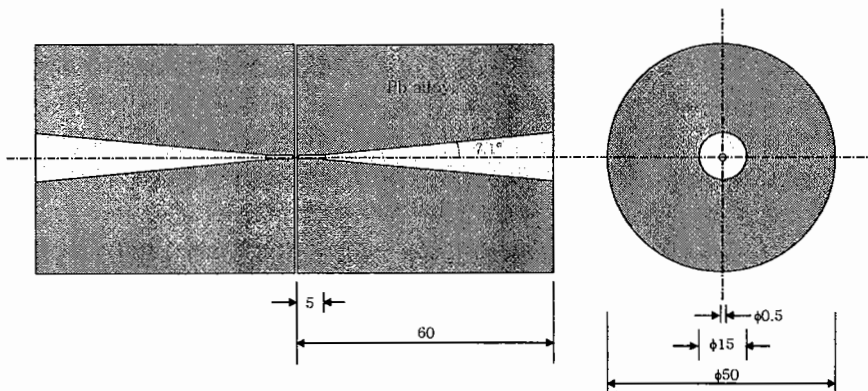


그림1. 이중 원추형 시준기 개요도

3. 결론

2중 원추형 슬릿 시준기를 사용하게 되면, 기존의 4각 슬릿 시준기에 비해 감마선 차폐능은 다소 떨어지지만 큰 입체각을 형성함으로써 시편 전체 면적을 단 1회 측정하여 평균 연소도를 결정할 수 있게 된다. 따라서 4각 슬릿 시준기를 사용할 때 보다 측정시간이 훨씬 줄어들므로 많은 시간을 절약할 수 있다.

핵분열기체 Xe의 WDS 피크 보정

권형문, 서항석, 이형권, 양용식, 장정남, 주준식, 전용범

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

django@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 소결체 기지 내에는 핵분열생성물인 Xe이 고용화되어 있다. Xe은 불활성기체로서 기지 내에서의 확산, 버블의 형성, 결정립계를 통한 방출 등을 통해 소결체를 벗어나 연료봉의 플레넘 영역으로 이동하여 봉내압 상승을 유발한다. 핵분열기체의 방출율은 연료봉 성능에 있어 매우 중요한 인자이며 설계요건이 된다.

핵연료 성능 예측의 기초자료로 활용될 수 있는 연료봉 반경방향 혹은 축방향에 따른 국부적인 핵분열기체 방출 정보는 미소영역의 핵분열기체 정량을 측정하여 획득할 수 있다. 연소도 지표 원소인 Nd를 통해 대표적인 핵분열기체인 Xe의 생성량을 평가하고 Xe의 미소 정량분석 결과를 비교하면 해당 위치의 국부적인 방출율을 산출할 수 있는 것이다. 하지만 국내에서는 아직 Xe의 미소 정량분석을 수행한 예가 없다.

한국원자력연구원 조사후시험시설에 설치되어 있는 차폐형 전자현미경에 WDS를 추가 설치함에 따라 사용후핵연료에 대한 미소 정량분석이 가능하게 되었다. 본격적인 WDS 정량분석에 앞서 피크 보정이 선행되어야 한다. 단 두개의 원소에 대한 피크 보정만으로도 전체 X선 스펙트럼에 대한 보정이 가능한 EDS와는 달리 WDS는 정량분석하고자 하는 모든 원소에 대하여 피크 보정을 해야한다. EDS의 피크보정이란 X선에 의해 여기된 전자의 전하량을 측정하는 과정에 대한 보정이라면 WDS의 피크보정은 검출기와 크리스탈을 구동하는 모터에 대한 보정이다. EDS는 X선에 에너지를 전하량으로 판단하는 반면, WDS는 검출기와 크리스탈의 위치로 판단하기 때문이다. 문제는 각 원소의 피크 보정을 위해 해당 원소의 표준시편이 필요하다는 것이다. 순수 Xe은 기체형태이므로 전자현미경 시편 제작이 불가능하며, 현재 기술로는 원하는 정확한 양의 Xe을 매우 균질하게 어떤 고체에 고용화하기 어렵기 때문에, 사실상 Xe 표준시편의 제작은 불가능하다. 이번 연구는 Xe 피크에 대하여 WDS를 피크 보정하기 위한 방법을 고찰하고 1차적인 보정 과정을 통해 그 가능성을 평가하였다.

2. 평가 및 결과

Xe의 $K\alpha_1$ X선 에너지는 29.782 keV이고 $L\alpha_1$ X선 에너지는 4.106 keV이다.(표 1 참조) 차폐형 전자현미경은 Philips XL-30 LaB6 타입으로 최대 가속전압이 30 keV이므로 해당 원소의 X선 에너지가 15 keV 이하여야 충분한 X선을 발생시킬 수 있다. 따라서 $L\alpha_1$ X선 피크를 Xe 원소분석에 활용하고 2.006 ~ 6.552 keV 에너지대를 검출할 수 있는 PET 크리스탈을 diffractor로 사용하였다.

Xe의 $L\alpha_1$ X선 피크를 보정하기 위해 인근 원소의 보정값을 활용하는 방법을 검토해 보았다. 보정값이란 검출기와 크리스탈 구동모터의 보정값으로 시편과 크리스탈, 검출기가 로랜드원 안에 물리적으로 고정된 체도를 따라 움직인다고 가정할 수 있으므로, 보정값은 X선 에너지값 변화에 일정한 경향으로 보일 것으로 판단되기 때문이다. 표준시편이 모두 확보되지 못한 상황에서 1차적인 예비 피크 보정을 수행하였다. 결과는 표 2와 같다.

표 1. Xe 근처 원소의 X선 에너지

원자번호	원 소	X선 에너지 (keV)	
		K α 1	L α 1
50	Sn	25.271	3.444
51	Sb	26.359	3.605
20	Ca	3.690	0.341
52	Te	27.472	3.769
53	I	28.612	3.938
21	Sc	4.088	0.395
54	Xe	29.782	4.106
55	Cs	30.973	4.286
56	Ba	32.194	4.466

표 2. Xe 근처 원소의 X선 피크 보정값

원소	원자번호	Bragg angle	피크 에너지 keV	Shell	보정값 (degree offset)	
					크리스탈	검출기
Sc	21	20.2887	4.088	K α 1	-1.5031	0.1198
I	53	21.1141	3.937	L α 1	-1.5112	0.1189
Te	52	22.1037	3.769	L α 1	-1.5739	0.1124
Sb	51	23.1731	3.604	L α 1	-1.6237	0.1025

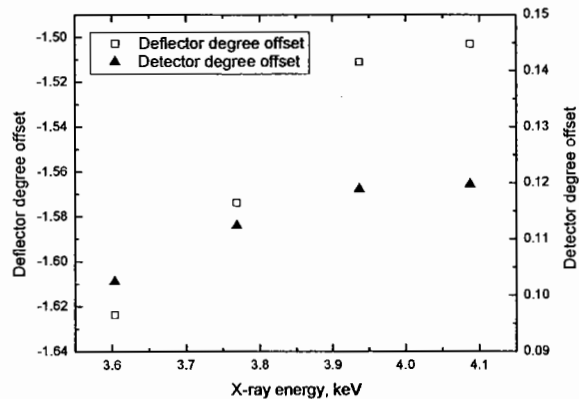


그림 1. X선 에너지에 따른 크리스탈 및 검출기 보정값

보정 결과, 피크에너지에 따라 보정값은 일정한 경향을 보임을 확인할 수 있었다. Xe은 I과 Cs 사이의 원소로 각 보정값의 내삽을 통해 Xe의 보정값을 얻을 수 있을 것이다. 1차 예비 보정을 통해 그 가능성을 확인하였다.

3. 결론

본 연구는 사용후핵연료 기지 내에 존재하는 핵분열기체 Xe을 WDS로 정량분석하기 위한 선행

연구로, 표준시편이 존재하지 않는 Xe의 피크 보정방법에 관한 연구이다. PET 크리스탈로 검출할 수 있는 4개 원소에 대해 피크 보정값을 산출하여 X선 에너지에 따라 보정값이 일정한 경향을 보임을 확인하였다. 이에 따라, Xe 뿐만 아니라 핵분열기체인 Kr, 핵확산저항성 정책에 따라 취급이 어려운 Pu에 대한 피크 보정도 가능할 것으로 판단된다.

감마스캐닝에 의한 연소도 추정방법 검증 연구

권형문, 엄성호, 장정남, 민덕기, 전용범
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
diango@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료에서 방출되는 감마선 스펙트럼을 측정하면 연료봉 내부의 감마 방출 핵종에 대한 정보를 얻을 수 있을 뿐만 아니라 핵연료의 연소상태 즉 연소도를 추정할 수도 있다. 본 연구는 한국원자력연구원 조사후시험시설에서 수행되어온 감마스캐닝에 의한 연소도 추정방법을 검증하기 위한 연구이다. 검증을 위해 사용후핵연료 미량의 시료를 용해하여 Cs-137 감마선을 측정된 결과와 여러 분리 단계를 거쳐 Nd-148를 ICP-MS로 정량분석한 결과를 연료봉의 감마스캐닝 결과와 비교하였다.

감마선을 이용하여 핵종비를 산출하는 식은 다음과 같다.

$$\frac{A_1}{A_2} = \frac{C_1}{C_2} \times \frac{\Gamma_2}{\Gamma_1} \times \frac{\tau_1}{\tau_2} \times \frac{\epsilon_2}{\epsilon_1} \quad (1)$$

여기서, A는 핵종량, atom 수

C는 감마선 검출량, counts

Γ 는 branching ratio

τ 는 반감기

ϵ 는 절대검출효율

위 식에서 평가하기 어려운 인자는 기하학적인 조건 및 검출기의 흡수율 등을 고려해야 하는 절대검출효율이다. 이를 보다 쉽게 평가하기 위해 상대검출효율을 고려해 볼 수 있다. 검출효율은 일반적으로 감마선 에너지와 식 2와 같은 관계를 갖으며, 상대검출효율을 적용하여 식 3과 같이 표현할 수 있다.

$$\epsilon \propto E^m \quad (2)$$

여기서, E는 감마선 피크 에너지

$$\left(\frac{\epsilon_1}{\epsilon_2} \right) = \left(\frac{E_1}{E_2} \right)^m \quad (3)$$

동일한 핵종에서 방출되는 두 개의 감마선을 이용하면 식 4를 통해 상대검출효율을 구할 수 있다. 사용후핵연료에서는 일반적으로 계수율이 높은 Cs-134의 604.7 keV와 795.86 keV 감마선을 이용한다.

$$\left(\frac{\epsilon_1}{\epsilon_2} \right) = \left(\frac{E_1}{E_2} \right)^m = \frac{C_1 \Gamma_2}{C_2 \Gamma_1} \quad (4)$$

핵종비는 Cs-134 핵종의 604.72 keV 감마선과 Cs-137 핵종의 661.66 keV 감마선을 측정하여 식 1을 통해 산출하였으며, 핵종비와 연소도의 관계는 Origen-S 코드를 이용하여 평가하였다.

2. 평가 및 결과

국내 상용발전소에서 운반된 사용후핵연료봉에 대해 감마스캐닝 시험을 수행하고 화학분석 결과와 비교한 결과는 표 1, 그림 1과 같다. Cs-134/Cs-137 핵종비에 의한 연소도 추정방법은 Nd-148에 의한 화학분석 방법에 비해 과도 평가되는 경향을 보였으며, 시료 용해후 Cs-137 감마선을 측정하는 방법과 유사한 결과를 보여주었다. 고연소도 핵연료의 경우, 피복관과 소결체의 사이에서 화학적인 반응부가 형성되어 소결체를 완전하게 제거하기 어렵게 된다. 특히 화학분석용으로 샘플링하는 과정에서 상대적으로 연소도가 높은 RIM 영역이 피복관에 남게 되어 연소도가 다소 저평가될 가능성이 있다. 또한 소결체 중앙부에 Cs이 일부 방출되어 상대적으로 연소도가 높은 외곽부의 감마선 기여도를 높일 가능성이 있을 것으로 판단된다.

표 1. 감마스캐닝에 의한 연소도 추정 결과와 화학분석 결과 비교

연료봉	봉평균연소도(GWd/tU)		위치(mm)*	화학분석연소도(GWd/tU)		Cs-137 분포(GWd/tU)	
	Code	핵종비		Cs-137**	Nd-148***	Code	핵종비
Rod-A	56.72	57.71	831	56.59	59.54	66.45	67.61
			2289	64.57	65.69	63.78	65.18
			3328	52.85	48.10	52.33	53.24
Rod-B	44.10	54.31	878	59.40		48.10	59.24
			2356	63.43		50.02	61.61
Rod-C	53.75	54.76	378		50.39	53.43	54.43
			2047		58.98	59.83	60.95
Rod-D	40.53	44.69	327		38.03	37.47	41.31
			2124		44.70	46.37	51.12

* 연료봉 하단으로부터의 높이

** 시료 용해후 Cs-137 감마선 측정

*** 시료 용해/분리후 Nd-148 정량측정

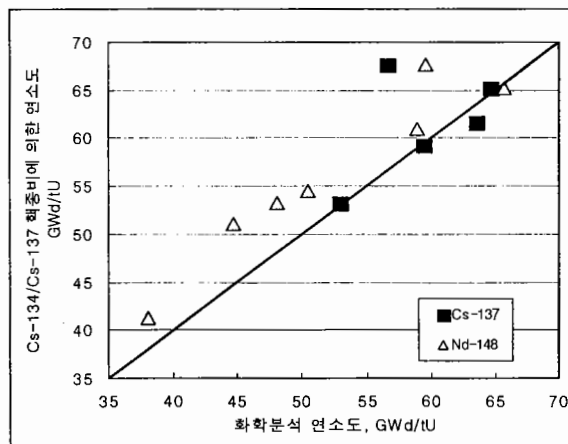


그림 1. 연소도 비교 결과

3. 결론

Cs-134/Cs-137 핵종비에 의한 연소도 추정방법은 Nd-148에 의한 화학분석 방법에 비해 과도 평가되는 경향을 보였다. 향후, 소결체 중앙부의 Cs 방출 영향과 cascade summing, self absorption 등에 대한 보정을 통해 감마스캐닝에 의한 연소도 추정방법을 개선할 계획이다.

조사후 지르코늄 합금의 미소경도 측정

장정남, 권형문, 서항석, 전용범

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

jeongnam@kaeri.re.kr

1. 서론

지르코늄 합금은 원자로 운전 조건에서 기계적 성질과 내식성이 우수한 장점으로 인해 지금까지 핵연료 피복관 및 압력관 재료 등으로 사용되고 있다. 최근 핵연료가 고연소, 장주기 체제로 전환됨에 따라 지르코늄 합금은 보다 가혹한 방사선 및 내부식 환경에서 조사 손상과 과도부식과 같은 문제점을 드러내고 있다. 따라서 고연소 장주기 체제에서 적합한 지르코늄 합금의 개발과 함께 지르코늄 합금의 조사후 기계적 물성과 같은 기초 물성 자료의 확보는 매우 중요하다. 이런 이유로 한국원자력연구원 조사후시험센터에서는 현재까지 국내 상용발전소에서 연소된 핵연료를 대상으로 조사후 시험을 수행하였고 많은 결과물을 축적해왔다. 본 연구는 그 중에서 핵연료 피복관으로 사용된 Zircaly-4 합금의 조사후 미소경도 값을 측정하였고 연소도와 온도에 따른 상관관계를 분석하고자 하였다.

2. 실험 방법

본 실험에 사용된 미소경도 측정 시험 시편은 고리 1,2 호기 및 영광 1호기에서 연소된 핵연료봉을 대상으로 하였고 피복관으로 사용된 재료는 모두 Zircaly-4이다. 본 원내 조사후시험센터 핫셀 내부에서 핵연료봉의 파괴 시험을 통해 핵연료봉 하단부에서부터 절단된 조사후 피복관 단면 시편을 얻었으며 이렇게 준비된 시편은 Leica microsystem 사의 Telatom-2(그림 1)에 장착된 Vickers diamond를 이용하여 미소경도를 측정하였다. 본 장비는 최대 900 배율, 최대 시험하중 100 gr으로 제작되어 있다. 본 시험에서는 500 배율에서 20초 동안 50 gr의 하중을 유지하여 얻어진 압흔을 통해서 미소경도 값을 산출하였다.

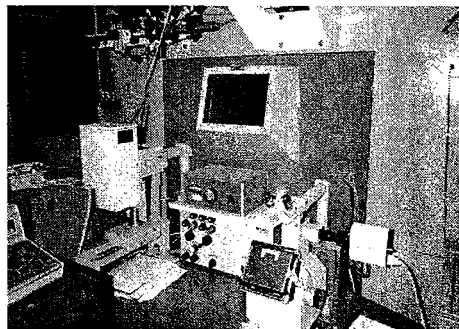
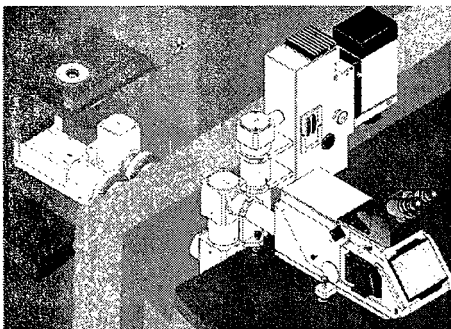


그림 1. 핫셀 내 미소경도 측정 시험장비 개략도 및 실제모습 (Telatom-2)

핫셀 내 핵연료봉의 파괴시험 전 각각의 핵연료봉에 대한 감마 스캐닝(γ -scanning)을 통해서 핵연료봉의 연소도 데이터를 확보하였다. 이후 파괴시험을 통해 얻어진 조사후 시편당 6회 경도측정을 실시하고 최대/최소치를 제외한 값들의 평균값을 그 시편의 미소경도 값으로 채택하였다.

3. 결과 및 논의

감마 스캐닝 결과 조사후 시험 시편은 대략 30 GWd/tU에서 55 GWd/tU 정도 연소된 것으로 나타났다. 그림 2는 핵연료봉의 연소도에 따른 하단에서부터 특정 위치에서 제조된 조사후 시편에 대한 미소경도 값을 보여주고 있다.

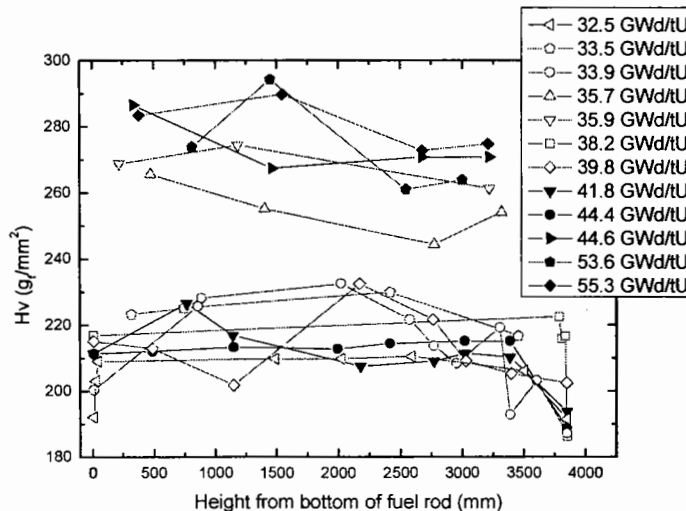


그림 2. 조사후 지르코늄 합금 시편의 연소도에 따른 미소경도

그림 2를 통해 알 수 있듯이 대체적으로 50 GWd/tU 이상의 고연소 피복관에서 미소경도 값이 증가하는 경향을 확인 할 수 있다. 또한 연소도 40 GWd/tU 이상의 핵연료봉에서 핵연료봉 하부에서 상부로 갈수록 미소경도 값이 다소 감소하는 경향을 보이는 것으로 나타났다. 이것은 높은 온도에서 annealing 효과에 의한 연성 증가에 따른 것으로 보이나 그 차이는 크지 않은 것으로 나타났다.

4. 결론

현재까지 수행된 조사후 핵연료 피복관의 미소경도 측정 결과, 지르칼로이-4 금속의 조사후 미소경도는 고연소 장주기로 갈수록 증가하는 것으로 드러났다. 이는 일반적으로 조사량 증가에 따른 조사경화 현상으로 설명될 수 있다. 하지만 고연소 장주기 체제에서 산화가속화에 따른 지르코늄 금속 내 산소 농도에 증가에 따른 강도 증가효과 또는 피복관 금속 기지내 수소침투 증가에 따른 기계적 특성변화와 같은 다른 요인들도 함께 검토되어야 할 것으로 판단된다.

5. 참고문헌

- [1] 민덕기 외, "고리원자력 2호기 원자력연료 조사후시험", 한국원자력연구소(2003.3)
- [2] 노성기 외, "조사후핵연료 시험평가 기술 개발", "KAERI/RR-1127/92", 과학기술부(1992.6)
- [3] 김용수 외, "중성자 조사가 산화 Zr 합금 미소조직과 기계적 물성 변화에 미치는 영향 연구", 한양대학교(2005.5)
- [4] 이기순, "조사공학", 문경출판사(1997)
- [5] R.W. Cahn, P.Haasen, E.J.Kramer, "Materials Science and Technology, A comprehensive Treatment Volume 10B, Nuclear materials Part 2", VCH Weinheim(1994)
- [6] Atomic Energy Review, "The Metallurgy of Zirconium", IAEA-Vienna(1971)

다목적 사용후핵연료집합체 해체장비 설계

김길수, 전용범, 민덕기, 이은표, 서항석, 권형문, 이형권, 황용화, 양송열, 손영준, 오완호

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045번지

ngskim@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구소의 조사후시험시설은 상용 원자로의 사용후핵연료에 대한 조사후시험을 목적으로 운영되고 있으며, 1987년 준공이후 현재까지 사용후핵연료에 대한 조사후시험이 수행되고 있다. 조사후시험시설의 풀에서 사용후핵연료 집합체로부터 사용후핵연료봉을 인출하기 위해서는 사용후핵연료 집합체의 상단 고정체를 해체한 후 천장 크레인 및 인덱스 등을 이용하여 사용후핵연료봉 인출공구로 선택된 사용후핵연료봉의 상단 부분에 접근하여 고정한 후 크레인을 상승시켜 사용후핵연료 집합체로부터 사용후핵연료봉을 인출하는 작업을 수행하고 있다. 이때 인출되어 상승하는 사용후핵연료봉의 길이와 인출 완료된 사용후핵연료봉으로부터 방사선이 수조 밖으로 방출되는 것을 억제하기 위한 안전한 거리를 감안하여 사용후핵연료 집합체는 수조의 수심이 매우 깊은 곳에 위치되어야 함으로 사용후핵연료 집합체에서 사용후핵연료봉을 선택적으로 인출하기 위한 인덱스를 사용후핵연료 집합체 상단에 설치하는 작업과 천장 크레인을 이용하여 사용후핵연료봉 인출공구로 사용후핵연료봉의 상단부를 고정하는 작업이 매우 어려울 뿐만 아니라 사용후핵연료봉의 인출은 크레인에 설치된 인출공구를 상승시키면서 작업을 함으로 크레인 작업자의 실수로 사용후핵연료봉이 과도하게 상승되어질 경우 방사선의 피폭을 받을 수 있으므로 새로운 장비를 Fig. 1과 같이 설계하였다.

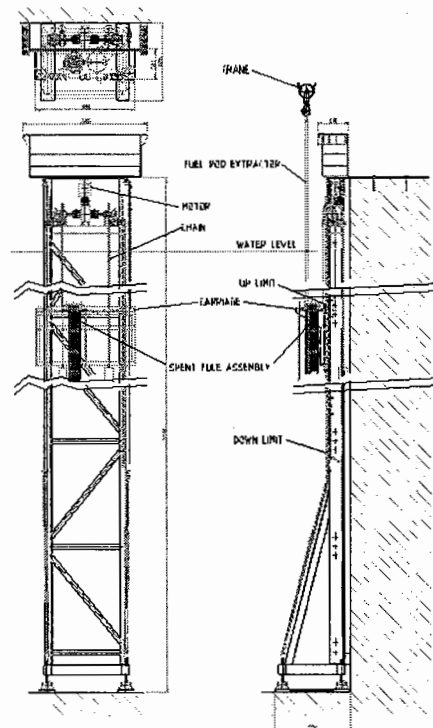


Fig 1. Multipurpose dismantling equipment for spent fuel assembly

2. 설계 결과

다목적 사용후핵연료집합체 해체장비는 사용후핵연료 집합체로부터 방출되는 방사선이 수조 밖으로 방출되는 것을 억제하기 위한 안전한 거리까지 상승시킴으로서 사용후핵연료 집합체에서 사용후핵연료봉을 선택적으로 인출하기 위한 인덱스를 사용후핵연료 집합체 상단에 설치하는 작업과 천장 크레인을 이용하여 사용후핵연료봉 인출공구로 사용후핵연료봉의 상단부를 고정하는 작업을 쉽게 하기 위한 것이다. 사용후핵연료 집합체로부터 사용후핵연료봉을 인출할 경우 사용후핵연료 집합체로부터 사용후핵연료봉을 인출할 경우 크레인을 사용하지 않고 사용후핵연료 집합체를 하강시킴으로서 사용후핵연료봉의 인출속도를 일정하게 유지할 수 있으며 부주위에 의한 작업자의 방사선 피폭을 방지할 수 있고 사용후핵연료봉이 상승하는 것을 차단할 수 있다. 다수의 사용후핵연료봉 이송관을 안착시킬 수 있으므로 다수개의 사용후핵연료봉 인출작업을 동시에 할 수 있으며 사용후핵연료봉 절편용기를 안착시킬 수 있어 절편용기의 이송작업이 편리하다. 현재 사용 중인 수조에도 설치가 가능하다.

Designing Ni-base superalloys for an electrolytic reduction process of a spent nuclear fuel

Jong-Hyeon Lee, Soo-Haeng Cho, Jeong-Gook Oh and Eung-Ho Kim

Korea Atomic Energy Research Institute, 1045, Daedeok-daero, Yuseong-gu, Daejeon, 305-353, Korea
jonglee@kaeri.re.kr

1. Introduction

The electrolytic reduction of a spent oxide fuel and a UREX+1a product or a spent advanced burner reactor oxide fuel involves the liberation of oxygen in a molten LiCl electrolyte, which results in a chemically aggressive environment that is too corrosive for most typical structural materials. In addition, the Uranium and TRU components in the reduced spent oxide fuel and UREX+1a products may form eutectics and liquid phases during a reduction process that increases the potential for a corrosion of the cell cathode. Even so, the electrochemical process vessel, structural cell components, and the electrical supply materials must each be resilient in the presence of oxygen, TRU and molten salt components, and various impurities at ~650°C to enable high processing rates and an extended service life.

Hence, the objective of this study is to develop advanced structural materials that will contribute toward the implementation of a new advanced technology for the electrolytic reduction of a spent oxide nuclear fuel and a UREX+1a product or a spent advanced burner reactor oxide fuel in a molten salt electrolyte. This study includes the modification of commercial alloys for a better corrosion resistance to an oxidative environment of a molten salt containing fuel elements.

2. Experimental and Results

Pseudo binary phase diagrams were constructed by using a commercial thermodynamic database, FACTSage, in order to understand the phase stability of the Ni-Cr-Al-Si-Nb alloy system as shown in Fig. 1.

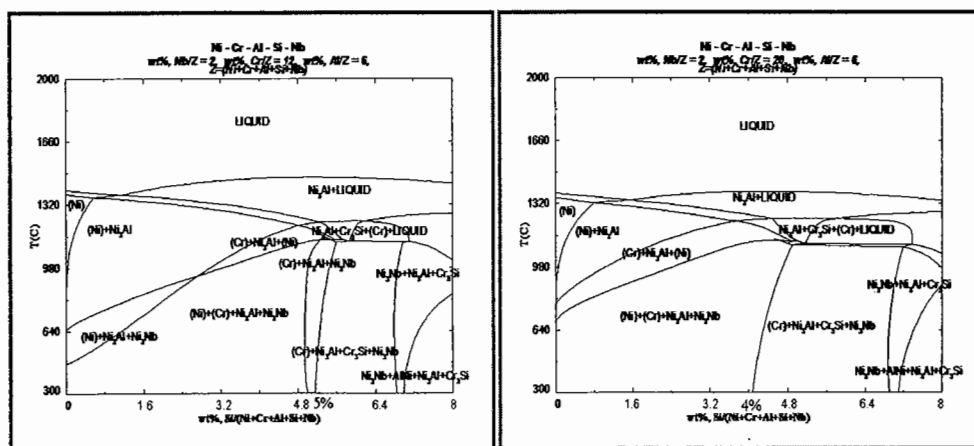


Fig. 1. Effect of the chromium content on the phase equilibria of the (Ni-Cr-Al-Nb)-Si pseudo binary phase diagrams

From the thermodynamic analysis results, commercial 713LC was modified with silicon and chromium. And a trace amount of zirconium and yttrium was added to observe the corrosion behavior change.

For the corrosion test, LiCl-Li₂O molten salt was introduced into the MgO test crucible at room temperature and then heated at 300 °C for 3 hrs in an Ar atmosphere to prevent any moisture pick-up. After reaching the set corrosion condition, the samples and alumina tube (6Φ) were immersed into the molten salt, and mixed gas was supplied through an alumina tube. The test condition is shown in Table 1. When the test was completed, the corrosion products were removed from the molten salt and cleaned by an ultrasonic washing. After a drying for more than 24 hrs, the weight variation was measured. The corrosion products and fine structures of the corroded samples were analyzed by XRD (X-ray Diffractometer, Rigaku, DMAX/1200), SEM (Scanning Electron Microscope, Jeol, JSM-6300), and EDS (Energy Dispersive X-ray Spectroscopy, Jeol, JSM-6,300).

Table. 1. The corrosion test conditions

Temperature	650 °C	Salt	LiCl-3wt.% Li ₂ O
Test Time	1, 3, 7, 9 day	Test vessel	MgO
Gas Sparge	Ar-10%O ₂	Gas Inlet Tube	Al ₂ O ₃

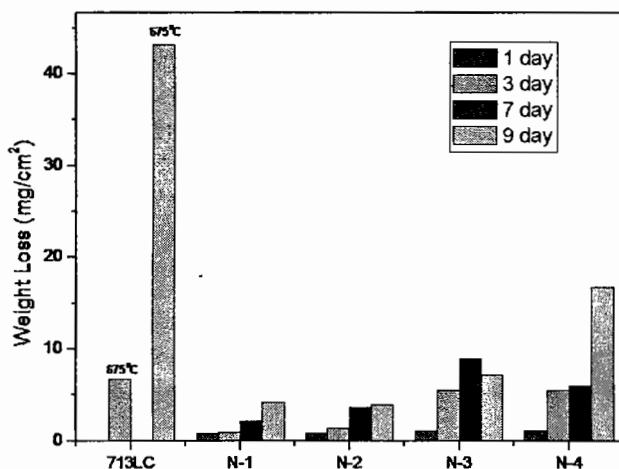


Fig. 2. Weight loss of the alloys corroded at 650 °C as a function of the time

Figure 2 shows the weight loss of the alloys corroded at 650 °C as a function of the time. The weight loss is drastically decreased when compared to the commercial 713LC. Especially the weight loss of sample numbers 1 and 2 are below 5 mg/cm² for the 9 days experiment. The corrosion resistance of a structural material is mainly dependent on the condition of the protective oxide layer. So, the corrosion products which were obtained during the cleaning step of the adhered salt were analyzed by XRD. The corrosion products of sample number 2 are mainly composed of NiO, metallic nickel, nickel chromium oxide spinel and chromium oxide as shown in Fig. 17. Aluminum and silicon oxides which are one of the alloying elements were not found among the corrosion products. This may imply that the oxide phases containing aluminum and silicon were retained in the oxide layer.

3. Conclusion

The research results show that the corrosion rates of the newly designed alloys were drastically decreased when compared to that of the commercial Inconel 713LC and a four times lower corrosion rate, 0.3 mm/yr was achieved. It was found that Si, Cr and Al diffused to the surface and formed a protective oxide layer, thus inhibited an internal intrusion of the oxygen ion.

Development of a continuous high throughput electrorefiner for a spent metallic nuclear fuel

J.H. Lee, K.H. Oh, Y.H. Kang, S.C. Hwang, H.S. Lee, E.H. Kim

Korea Atomic Energy Research Institute, 1045, Daedeok-daero, Yuseong-gu, Daejeon, 305-353, Korea
jonglee@kaeri.re.kr

1. Introduction

In the pyrometallurgical reprocessing technology of a spent nuclear fuel, an electrorefining in molten chlorides is the main step [1], and the efficiency of the process is one of the requirements for the treatment of a large volume of uranium in an integrated area [2,3]. So many attempts have been made to enhance the throughput of an electrorefiner [3,4]. The main concepts to enhance their throughput are to increase the cathode area and decrease the physical distance between the electrodes as well as to continuously operate the electrodeposition process without any interruptions. The electrorefiner which has been developed in KAERI consists of a multi channel graphite cathode surrounded by a toroidal rotating anode basket and a flexible screw conveyor to haul the uranium deposit and the noble metal particles independent of the electrodeposition process of uranium. High purity uranium product can be attained through a separate arrangement of the uranium and noble metal collectors. Also, a controlled molten salt flow is necessary to prevent a mixing of the uranium product and noble metal particles.

Hence, in this study, we would like to report on the numerical analysis results of a high throughput electrorefining concept calculated by a commercial CFD code, ANSYS CFX, prior to demonstrating an electrorefining operation. The mixing behavior of the molten salt was calculated according to the process parameters such as the rotation speed of the toroidal anode basket and the central screw agitator.

2. Result and discussion

Based on the assumption that an electrorefined uranium product would be recycled for a fuel, the high throughput electrorefiner in this study is designed to collect the uranium deposit and noble metal fission product particles by individual collectors as shown in Fig. 1. The geometry of the electrorefiner was designed by the built-in ANSYS design modeler version 11.0 of Workbench. With this collector design, a uranium deposit would be harvested in the central uranium collector of Fig. 1 c) ④ and the noble metal fission product particles would fall down into the outer noble metal collector of Fig. 1 c) ⑤, when an ideal fluid flow is provided during an electrorefining operation.

Fig. 2 shows the FEM mesh of a high throughput electrorefiner with 450,335 tetrahedral elements generated by the built-in ANSYS CFX-mesh, and a quarter of the full model was used for the calculation to save on calculation resources since it is an axisymmetry problem. For the calculation of the turbulent flow, the k- model was used, and the material properties and boundary conditions are summarized in Table 1. The size ranges of the uranium deposit and noble metal particles were obtained from a previous report and molybdenum was chosen as a

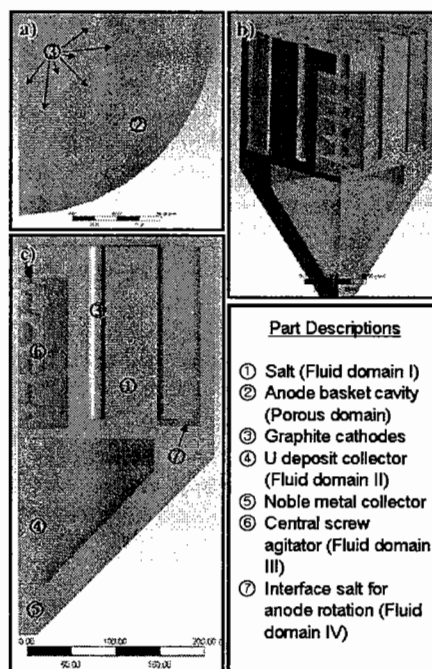


Fig. 1. Geometry of high throughput electrorefiner and part descriptions

a) Top view b) Isometric view
 c) Side view

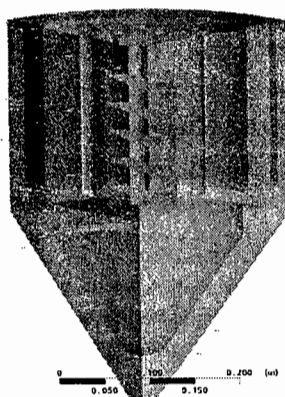


Fig. 2. FEM mesh of the high throughput electrorefiner

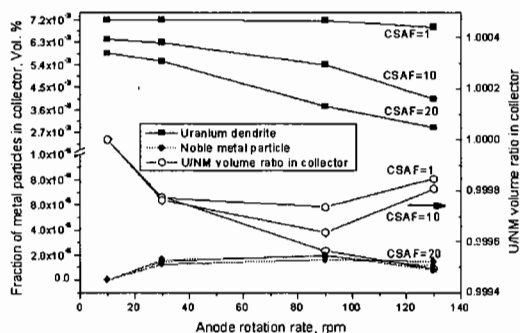


Fig. 3. Calculated volume fraction of the metal particles in the deposit collector as a function of the anode rpm (void fraction of anode cavity : 0.5, rpm of central screw agitator : 30, CSAF=cross sectional area factor)

representative noble metal in the spent nuclear fuel. The design criteria of the high throughput electrorefiner in this study is to treat 20kgU/24hr which means 0.2315 g of uranium dendrite is generated during 1 second on the cathode surface. In the same manner, the noble metal generation from the anode basket is calculated as 0.002315 g/s because the LWR spent fuel contains around 1% of noble metals. Prior to the experimental validations, separation behavior between the noble metal particle and uranium dendrite was investigated by calculating the volume fractions of each metal particle in the deposit collector as shown in Fig. 3. It is very difficult to define the CSAF of the uranium deposit due to its dendritic geometry, so various CSAFs from spherical to critical shapes were applied to observe how they affect the distribution behavior of the metal particles. The volume fraction of the uranium dendrite in the deposit collector decreased with the anode rpm as well as the CSAF, whereas the noble metal fraction tended to increase. This leads to a decrease of the U/NM volume ratio in the deposit collector which eventually decreases the purity of the final uranium product. The fraction of the uranium dendrite decreased more rapidly with the anode rpm as the CSAF increased. Uranium dendrite travels further through a molten salt before settling into a deposit collector as the drag force increases. The drag force of the uranium dendrite is also proportional to the CSAF.

3. Conclusion

Numerical simulation and assessment were performed for a high throughput electrorefining concept. The fine uranium dendrite tended to be affected by the molten salt flow and a significant amount of the uranium dendrite with a high surface area could pass over the deposit collector at a higher rotation rate of the central agitator or anode basket. It was numerically confirmed that a separate design of the deposit and the noble metal sludge collector is effective to recover a high purity uranium product if appropriate processing conditions are provided.

REFERENCES

- [1] Y.I. Chang, "The integral fast reactor," Nucl. Technol. 88, 129 (1989).
- [2] J.L. Willit, W.E. Miller, J.E. Battles, "Electrorefining of uranium and plutonium-A literature review," J. Nucl. Mater., 195, 229 (1992).
- [3] R.K. Ahluwalia, T.Q. Hua, D. VADEN, "Uranium transport in a high-throughput electrorefiner for EBR-II blanket fuel," Nucl. Technol., 145, 67 (2004).
- [4] S.X. Li, T.A. Johnson, B.R. Westphal, et al., "Electrorefining experience for pyrochemical processing of spent EBR-II driver fuel," Proc. Global2005, Tsukuba, Japan : Atomic Energy Society of Japan, Paper No. 487 (2005).

전해환원기술의 응용: SiO₂로부터 Si 금속 제조

이수철, 허진목, 서중석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

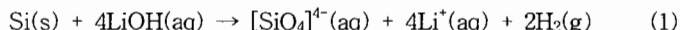
imhur@kaeri.re.kr

용융염상에서 금속산화물을 금속으로 환원시키는 전해환원기술은 원자력계의 후행핵주기 분야에서 산화물 형태 사용후핵연료를 금속 형태 사용후핵연료로 전환시켜 Electrowinning 등의 건식 처리공정에 적용시키고자 하는 이른바 Head-end 공정으로 최근 많은 주목을 받으며 집중적으로 연구되고 있다. 한국원자력연구원도 Advanced Spent Fuel Conditioning Process의 주공정으로 전해환원공정을 2001년부터 연구해 오고 있으며, 현재는 ACPF 핫셀에서 Simulated Fuel을 사용하여 kg/batch 규모로 실험을 진행하고 있다. 이러한 연구과정에서 축적된 경험 및 전문성을 산업적으로 응용하고자 하는 노력의 일환으로, 연구진은 TiO₂로부터 Ti 금속 제조에 개발된 전해환원 기술을 적용한 바 있으며, 본 연구에서는 전해환원기술의 응용성을 보다 확장하여 그 기술을 SiO₂로부터 Si 금속 제조에 적용하였다.

전해환원기술은 원자력계 이외에도 금속 산화물의 환원 및 금속에서 잔류 산소를 빼내기 위한 간단하고 효율적인 공정으로 널리 주목받고 있다. SiO₂의 전해환원에 대해서도, CaCl₂, LiCl-KCl-CaCl₂ 용융염계에서 수행한 연구들이 보고되고 있다. 이러한 SiO₂의 전해환원 기술은 "solar grade SiO₂ (SOG-SiO₂)"로부터 "solar grade Si (SOG-Si)"를 효율적으로 제조하는 데에 적용될 수 있을 것으로 기대된다. 왜냐하면, SOG-SiO₂는 저렴하고 쉽게 정제가 가능하므로, 이를 전해환원기술로 SOG-Si로 제조할 수 있다면, 비용 및 생산성 측면에서 실리콘 태양열 전지 생산에 크게 기여할 것으로 판단되기 때문이다.

우라늄산화물의 우라늄 금속으로의 전해반응에 사용되는 기술에 따라, 본 연구에서도 Li₂O의 *in situ* 전해에 의한 환원반응의 촉진을 기대하며, LiCl-Li₂O를 전해질로 사용하였다. 전해환원 실험에서 사용된 출발물질은 SiO₂ (Alfa Aesar, -325 mesh, 99.8%) 분말이었다. 정전류 및 정전압 실험을 수행하였으며, 반응 메커니즘에 대한 실험적 접근은 부분환원 생성물과 반응 중 용융염 내의 Li₂O 농도 측정을 통하여 이루어졌다.

정전류 실험 과정에서 셀 전위는 LiCl의 열역학적 분해전위인 -3.46 V보다는 양이고, Li₂O의 분해 전위인 -2.47 V보다는 음인 영역에 있었다. 따라서, 본 연구의 실험조건에서 전해반응은 Li₂O의 *in situ* 전해에 생성된 Li 금속에 의하여 SiO₂가 Si로 환원되는 catalytic EC 메커니즘에 대부분 좌우되는 것으로 유추되었다. 최종생성물을 회수하여 XRD로 분석한 결과, 순수한 Si상이 형성됨을 확인하였다. 그런데, 전해환원장치의 환원전극부에서 회수한 생성물로부터 잔류염을 증류수로 세척/제거하여 Si 금속분말을 회수하는 과정에서 Si 금속의 손실이 발생하였다. 이는 전해환원 시스템 환원전극부의 다공성 마그네시아 basket 내부에 축적된 Li₂O가 세척액에서 LiOH로 전환되고, 다음 반응에 의하여 Si를 녹이는 것에 기인하는 것으로 판단되었다.



따라서 Si 금속을 회수하기 위한 세척은 LiOH를 중화시킬 수 있는 강산 분위기에서 수행하였다. 그 결과, 본 연구진은 최초로 용융 LiCl-Li₂O 전해질을 사용하여 SiO₂로부터 Si 금속을 전해환원법으로 제조할 수 있었다.

Li₂O 및 산소가 미세 우라늄 금속분말의 용융에 미치는 영향 평가

허진목, 서중석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

jmhur@kaeri.re.kr

한국원자력연구원에서는 LWR 사용후핵연료의 처분성을 향상시키는 한편, 사용후핵연료에 남아 있는 가용한 에너지 자원을 금속핵연료 주기에 순환시킬 수 있는 건식공정을 1997년 이후 중점적으로 개발해 오고 있다. 그 주요 단위공정으로는 Voloxidation, Electrochemical Reduction, Electrowinning, Cathode Processing, Electrowinning 등이 있는데, Electrochemical Reduction 과정에서 회수된 환원전극 생성물의 주요 성분은 미세 우라늄 금속분말, LiCl-Li₂O 잔류염, 그리고 Li 금속이다. 그런데 한국원자력연구원에서 개발하고 있는 고용량 연속식 Electrorefiner의 장치 개념에 따르면, Electrochemical reduction 공정의 환원전극 생성물은 금속 잉곳 형태로 Electrorefiner의 산화전극 basket에 이송된 다음, LiCl-KCl 공용융염계에서 전해정련 하도록 되어 있다. 따라서, Smelting 공정이라고 일컬어지는 부가 공정에 의하여 Electrochemical Reduction 공정에서 회수된 환원전극 생성물로부터 잔류염 및 Li는 분리되고, 우라늄 미세 금속분말 등의 금속 성분은 잉곳 형태로 집합되어야만 한다.

본 연구에서는 LiCl-Li₂O 잔류염 및 산소가 우라늄 금속분말의 용융에 미치는 영향을 열역학적으로 분석하고 이를 실험적으로 검증하는 과정을 수행하였다. 잔류염 중에서는 Li₂O가 우라늄 미세분말의 산화를 초래하는 것으로 밝혀졌으며, 이를 최소화시킬 수 있는 우라늄 용융 온도영역이 제시되었다. 산소의 경우에는 산소에 의한 이산화우라늄 산화막이 우라늄 금속분말의 용융 온도에 미치는 영향과 함께, 산소압력, 온도, 우라늄에 녹아있는 산소 농도 사이의 관계식을 열역학적 분석을 통하여 도출하였다.

이론적으로 도출한 우라늄 금속분말 용융 방법을 실험적으로 구현하기 위하여, 본 연구에서는 우라늄 잉곳을 제조하기 위해 일반적으로 사용되고 있는 기존의 Cathode Processing과 차별화되는 두 가지 방법을 도입하였다. 이는 용융 반응기로 closed vessel을 사용하는 것과, 분말의 consolidation을 위하여 Li 금속을 첨가하는 것이다. Closed vessel의 경우, 염의 진공 휘발을 고려할 필요가 없으므로 용융시스템이 상대적으로 단순해지는 장점이 있으나, 이 경우 염은 확산 휘발되고, 일부 dross로 남는 염은 잉곳으로부터 잘라서 분리해 내어야 한다. Li 금속은 그 자체로 환원제로서의 기능도 가지고 있으나, 본 용융시스템에서는 우라늄 금속분말의 표면에 존재하는 산화막을 파괴하여 용융단계에서 금속분말이 용이하게 응집되도록 하는 역할을 주로 수행하는 것으로 나타났다.

U₃O₈ 금속분말을 650 °C LiCl-Li₂O 공용융염에서 Electrochemical Reduction 시켜 제조한 시료를 대상으로, closed vessel 이용 및 Li 첨가가 미세 우라늄 금속분말의 용융에 미치는 긍정적 영향을 확인할 수 있었다. Closed vessel의 가압 밀폐 조건에서 용융/응고하여 제조한 금속 응집체의 물 성분분석이 이루어졌으며, 아울러 Li 첨가에 따른 dross 조성 변화에 대해서도 논해졌다. 이러한 Lab-scale 연구결과의 scale-up 장치로의 적용을 위해서는 vessel 및 crucible의 재료, 용융온도 및 시간의 최적화, 금속분말 중 잔류염 (특히, Li₂O) 양에 대한 제한 조건 설정, 여타 금속성분의 용융 및 잉곳에의 잔류 거동 등에 대한 후속 연구가 집중적으로 수행되어야 할 것이다.

고온 리튬용융염계에서 MCrAlY-ZrO₂-MgO 코팅층의 부식거동

조수행, 오정국, 조해동, 이종현, 김용호

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

nshchol@kaeri.re.kr

1. 서론

산화물 사용후핵연료의 금속전환공정은 고온 용융염 LiCl-Li₂O계에서 우라늄산화물을 전해환원하는 공정으로 음극에서 우라늄메탈로 환원되며, 양극에서 산소가 발생된다. 이러한 전해환원공정은 650℃ 이상의 고온에서 부식성이 강한 용융염상에서 이루어지고, 산소가 발생되어 용융염 취급장치는 가혹한 부식환경에 놓이게 됨으로 이에 적합한 용융염 취급장치 재료개발이 요구된다. 일반적으로 초내열합금의 사용온도의 상승에 따른 격심한 산화와 부식에 대한 대책, 고온에서의 기계적 성질 개선 등을 동시에 해결할 수 있는 합금개발은 어려운 실정이므로 각각을 별도로 개선하고 상호 적용되며, 고온에서 사용되는 재료들의 높은 열화학적 하중을 완화하기 위한 방법으로 열차폐코팅이 많이 사용되고 있다. 본 연구에서는 산소가 발생하는 고온 LiCl-Li₂O 용융염계 분위기에서 고온용 재료인 IN713LC 표면에 MCrAlY(M=Ni, NiCo)의 금속간 화합물 bond coat, 기지금속과 확산층간의 결합력을 향상시키기 위한 pack cementation, ZrO₂-MgO 산화물의 top coat으로 이루어진 코팅층과 기지금속간의 부식거동을 고찰하여 용융염부식억제형 재료개발에 필요한 자료를 도출하고자 한다.

2. 실험방법

본 연구에서 사용한 시편(70mm(L)×15mm(W)×2 mm(T))은 상용의 초합금, IN713LC를 사용하였으며, 표면을 #60 Al₂O₃ grit blasting으로 조도를 높인 후, Table 1에 제시된 기지금속에 코팅 물질을 플라즈마 용사로 코팅을 하였다. 또한 용사된 피복층 표면의 Al content를 향상시키고자 Auminizing 처리를 행하였다. 부식실험은 부식환경온도; 675℃, 부식시간; 216시간, Li₂O 농도; 3wt%, 혼합가스 농도; Ar-10%O₂ 분위기하에서, 혼합용융염 LiCl-Li₂O를 MgO 도가니에 넣고 아르곤 분위기에서 가열하였으며, 용융염의 온도가 675℃에 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 세척하여 용융염을 제거하였으며, 부식생성물의 분석, 미세조직 관찰을 위해 XRD, SEM과 EDS를 사용하여 분석하였다.

Table 1. Characteristics of substrate and coating materials

Layer	Product	Composition(wt.%)	Process	Thickness
Substrate	IN713LC	74Ni-11.6Cr-0.1Fe-6.1Al-0.8Ti-4.2Mo	Rolled/Heat Treat	2mm
Top coat	METCO 204NS	ZrO ₂ -24MgO	APS	200~250 μ m
Bond coat	AMDRY 365-1	Ni-23Co-17Cr-13Al-0.5Y	APS	100~150 μ m
	AMDRY 965	Ni-22Cr-10Al-0.1Y		

3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 bond 및 top coat, aluminizing 한 as-coated 시편의 단면사진과 구성원소의 mapping 분석결과를 나타낸 것이다. Bond 및 top 코팅층의 접합상태는 매우 양호하나, 코팅층에는 microcrack, porosity 및 oxide stringer가 나타났다. Fig. 2에는 LiCl-3%Li₂O, 675℃, 216시간동안 부식실험 한 bare IN713LC, bond coat, aluminizing, top coat 시편의 무게손실을 나타내었다. NiCrAlY-Aluminizing-ZrO₂/MgO 코팅된 시편의 무게손실이 가장 낮게 나타났다. Fig. 3은 LiCl-3%Li₂O, 675℃, 216시간동안 부식실험 한 bond coat, aluminizing된 IN713LC 시편의 부식층 단면사진과 부식층 구성원소의 mapping 분석결과를 나타낸 것이다. 외부피막이 박리된 내부피막은 M, Al-산화물로 형성되었으며, bond coat의 구성 원소 중 Cr은 외부확산으로 인해 고갈된 것으로 나타났다. Fig. 4에는 LiCl-3%Li₂O, 675℃, 216시간동안 부식실험 한 bond 및 top 코팅된 IN713LC 시편의 부식층 단면사진과 부식층 구성원소의 mapping 분석결과를 나타내었다. (Ni,Cr)-rich, Al₂O₃, (ZrO₂-MgO)-rich로 구성되었다. ZrO₂는 열전달계수가 낮고 열팽창계수가 금속과 유사하여 고온에서 열응력을 감소시켜 top coat로 적용되면 내구성이 개선될 것으로 판단된다.

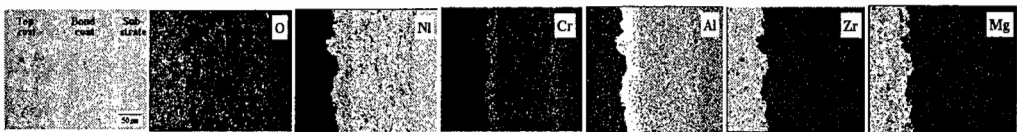


Fig. 1. Cross-sectional SEM image and elemental distribution of NiCrAlY, ZrO₂-MgO coated and aluminized IN713LC.

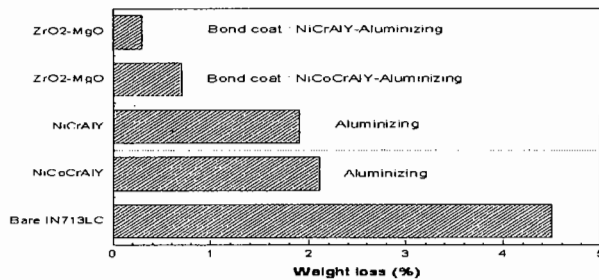


Fig. 2. Weight loss of tested specimens corroded at 675℃ for 216 h.

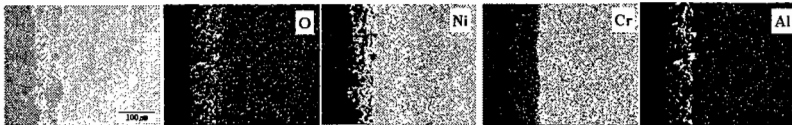


Fig. 3. Cross-sectional SEM image and elemental distribution of NiCrAlY coated and aluminized IN713LC corroded at 675℃ for 216 h.



Fig. 4. Cross-sectional SEM image and elemental distribution of NiCrAlY, ZrO₂-MgO coated and aluminized IN713LC corroded at 675℃ for 216 h.

전류밀도 및 교반에 따른 Zn 수지상의 전착거동 분석

김시형, 유영재, 백승우, 권상운, 심준보, 김광락, 정홍석, 안도희
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)
exodus@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 핵연료로부터 SFR(U-Pu-Zr) 핵연료를 제조하기 위해서 전해질 공정염(LiCl-KCl)로부터 U, Pu, MA(Am, Np, Cm)를 Cd 등과 같은 액체음극으로 동시 회수하는 공정이 개발되고 있다. 액체음극으로 회수되는 성분 중에서 U은 수지상(dendrite)을 형성하는 경향이 있으며, 이 수지상이 액체음극 표면에 부유하게 될 경우 음극으로 작용하여 U만 선택적으로 회수하게 되므로, 이를 방지하기 위해서 수지상을 파쇄할 수 있는 교반기가 개발되고 있다. 본 연구에서는 수지상 생성조건과 수지상의 물성을 이해하기 위하여, 수용액계에서 모의 액체음극인 Ga과 모의 수지상 재료인 Zn를 이용하여 전해반응에서의 수지상 생성/성장 조건과 교반기에 의해 수지상이 파쇄되는 거동을 관찰하였다.

2. 실험 및 결과

본 연구를 위하여 제작된 실험 장치는 Fig. 1과 같으며, 양극은 99.9%의 순도를 갖는 Zn plate, 표준전극은 백금(Pt), 음극으로는 순도 99.99%의 Ga이 이용되었고, 용융점이 30℃인 Ga을 액상으로 만들기 위하여 전해조(water bath)에 50℃의 물을 순환시켰다. 1M ZnSO₄ 전해질용액 내의 용존 산소를 제거하기 위하여 He 개스를 흘려주었고, Zn 이온의 이동을 용이하게 하기 위하여 bath stirrer를 100 rpm으로, 액체 Ga 음극에 생성되는 Zn 수지상을 파쇄하기 위하여 cathode stirrer를 40 rpm으로 회전시켰다. 전해반응으로 석출되는 Zn가 수지상을 형성하는 조건을 찾기 위하여 음극 전류밀도를 50~100 mA/cm²까지 변화를 주었다. 전해조 및 음극도가니 등의 재료는 모두 아크릴로 되어 있어서 육안으로 수지상 성장거동을 관찰할 수 있었다.

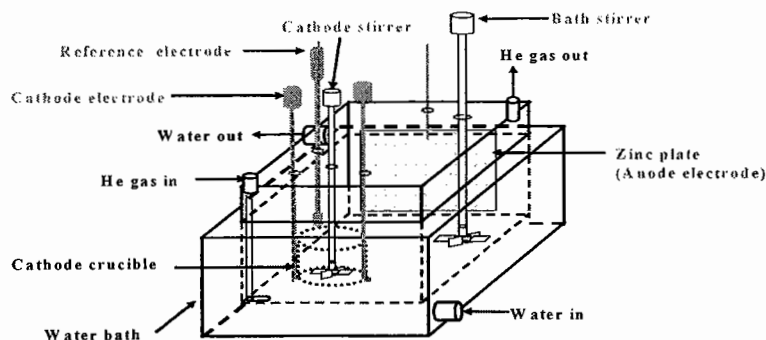


Fig. 1 Schematic diagram of LCC experimental apparatus

Fig. 2는 음극 전류밀도 및 음극교반에 의한 Zn 석출물의 형상변화를 나타낸 것이다. 50mA/cm²로 전착을 하였을 때(Fig. 2(a))는 Zn가 수지상으로 성장하지 않은 반면에, 90mA/cm²에서는 수지상으로 성장하였다(Fig. 2(b)). 액체 Ga 표면에서 수지상 종자(seed)가 형성된 후에 그 종자를 중심으로 나뭇가지 모양으로 성장하였는데, 특히, bath stirrer와 가까운 영역에서 가장 빠르게 성장하였다. 그것은 이 영역에서 bath stirrer에 의한 Zn 이온의 물질이동이 가장 빨랐기 때문으로 사료된다. 결론적으로, 75mA/cm² 이하에서는 Zn가 수지상으로 성장되지 않고 단순히 Ga

표면에 균일하게 전착하는 반면에, $85\text{mA}/\text{cm}^2$ 이상에서는 Zn가 수지상으로 성장함을 확인하였다. Fig. 2(c)는 교반기에 의해 수지상이 파쇄됨을 보여주는 것으로서, Zn 수지상이 stirrer에 의해 쉽게 파쇄되는 것을 육안으로 확인하였다. 이 연구를 통하여, U도 전류밀도에 따라서 전착특성이 다르고 또한, 형성된 U 수지상이 stirrer에 의해 비교적 쉽게 파쇄 될 것으로 예상되었다.

이론적 전착량은 아래의 Faraday 법칙으로 계산하였고, 실제 전착량은 양극(Zn plate)의 전해 반응 전, 후의 무게변화를 이용하여 구하였으며, 이 값들을 바탕으로 각 실험조건의 전류효율(실제 전착량/이론적 전착량)을 계산 한 결과 약 98%를 나타내었다.

$$\text{이론적 전착량} = \frac{\text{current}(A) \times \text{time}(sec) \times \text{atomic weight}(g/mol)}{\text{electron number} \times \text{Faraday constant}(96485 C/mol)}$$



(a) $50\text{ mA}/\text{cm}^2$, rpm : 0 (b) $90\text{ mA}/\text{cm}^2$, rpm : 0 (c) $90\text{ mA}/\text{cm}^2$, rpm : 40

Fig. 2 Zn product shapes depending on cathode current density and cathode stirring

Fig. 3은 음극 전류밀도 또는 교반에 따른 음극전위 변화를 나타낸 것이다. 전류밀도가 증가할 수록 음극전위는 절대값이 감소하였으며, 수지상으로 거의 성장하지 않는 $75\text{mA}/\text{cm}^2$ 이하에서는 시간에 따른 음극전위 변화율이 서로 비슷한 경향을 보였으나, 수지상이 잘 성장하는 $90\text{mA}/\text{cm}^2$ 에서는 음극전위 변화율이 크게 증가하였다. 이것은 수지상의 발달로 인해 음극의 면적이 증가하여 전류밀도가 작아지는 효과가 발생하였기 때문으로 사료된다. $90\text{mA}/\text{cm}^2$ 조건에서도 교반을 할 경우에는 음극전위 값의 증가율이 감소되었는데 이것은 수지상이 파쇄되었기 때문이다.

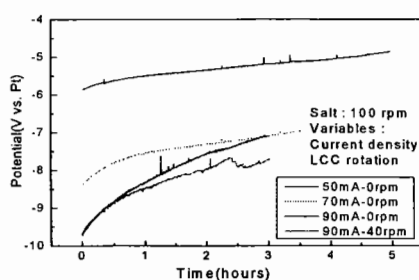


Fig. 3 Variation of cathode potential depending on current density and cathode stirring

3. 요약

$75\text{mA}/\text{cm}^2$ 이하에서는 Zn 석출물이 수지상으로 성장되지 않고 Ga 표면에 균일하게 전착되었으나, $85\text{mA}/\text{cm}^2$ 이상에서는 수지상으로 성장하였다. 액체 Ga 표면에서 수지상 종자(seed)가 생성된 후에 그 종자를 중심으로 나뭇가지 모양으로 성장하였는데, 특히, bath stirrer와 가까운 영역에서 가장 빠르게 성장하였다. 또한, 수지상은 결합력이 매우 약하여 stirrer에 의해 쉽게 파쇄됨을 확인하였다.

U₃O₈ 분말의 고온 용융염 전해환원 반응에 관한 연구

박병홍, 이일우, 서중석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150-1)

bhpark@kaeri.re.kr

산화물 형태의 사용후핵연료를 고온 건식공정을 이용하여 금속전환시키는 공정 기술은 사용후 핵연료의 부피 저감과 고방열성 핵종 제거를 통한 사용후핵연료 관리비용 감소를 위해 개발되고 있다. 사용후핵연료의 금속전환은 고온 LiCl-Li₂O 용융염계에서 전기화학적 방법으로 이루어진다. 이와 같은 고온 용융염 전해환원 공정은 환원을 위한 대상물질을 음극으로 하고 비소모성 양극을 사용하여 높은 순도의 금속전환체와 높은 회수율을 보이는 장점을 지니고 있다. 현재 전해환원 공정은 기술 적용가능성의 단계를 넘어 대용량화를 위한 scale-up의 연구가 활발히 진행되고 있다. 그러나 현재까지 분말형 U₃O₈의 전해환원에 대한 공정조건에 따른 반응에 관한 연구는 부족한 실정이다.

본 연구에서는 10 g U₃O₈/batch 반응기를 사용하여 다공성 마그네시아 필터에 충전된 U₃O₈ 분말의 일체형 음극에서의 반응에 대한 공정조건의 영향에 대한 연구를 시도하였다. 반응기에 인가된 전류의 양을 변화시켜 환원율을 측정하였으며 전압 거동을 관찰함으로써 U₃O₈의 전해환원 특성에 대한 정성적 및 정량적 자료를 얻었다. 낮은 전류 조건에서 U₃O₈의 환원의 전압 변화는 높은 전류 조건과 상이한 거동을 보였으며 이는 각 전류 조건에서 상이한 반응 메커니즘이 작용하는 것으로 판단된다. 낮은 전류 조건에서 일체형 음극의 전위 변화는 Li 환원 전위에 도달하지 못했으나 점차 반응시간이 경과함에 따라 Li 환원 전위 근처로 변화하는 다단 반응 거동을 보였다. 그러나 높은 전류 조건(0.8A)에서는 반응 초기부터 Li 환원 전위에 도달하여 Li 환원에 이어지는 화학반응에 의해 U₃O₈이 금속으로 전환되는 것으로 나타났다.

Li 환원에 의해 U₃O₈이 금속으로 전환되는 경우 일정 전류 조건에서 U₃O₈의 금속전환율은 인가 시간 즉 인가 전하량에 선형적으로 변화하였다. 이는 U₃O₈의 전해환원이 Li 환원에 이은 화학반응에 의해 발생한다는 간접적 증거로서 전기화학 반응 특성인 일정 전류 조건하에서 일정한 반응속도를 나타내고 있다. 그러나 전기화학적으로 생성된 Li 금속이 반응 종료후 일체형 음극에 잔존하였으며 이는 Li 금속과 U₃O₈의 빠른 화학 반응을 고려하였을 때 전기화학적 반응에 의해 생성된 Li 금속이 일체형 음극의 산화물 분말이 밀도차 등에 의해 적절히 접촉하지 못했다는 것을 의미하고 있다. 따라서 전해환원 반응의 전류 효율을 극대화시키고 반응시간을 단축시키기 위해서는 일체형 음극에서 전기화학적 반응에 의해 생성된 Li 금속과 산화물의 접촉을 활성화시켜야 한다.

사용후핵연료 건식분말화 반응기 모사를 위한 모델 개발

박병홍, 서중석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150-1)

bhpark@kaeri.re.kr

사용후핵연료의 부피 저감을 위해 개발된 한국원자력 연구원의 사용후핵연료 차세대 관리공정은 산화물 사용후핵연료를 금속으로 전환시키는 전해환원 공정을 중심으로 전해환원 반응물 준비를 위한 건식 분말화 공정과 전해환원 공정에서 나오는 금속전환체를 처리하는 스멜팅 공정으로 구성되어 있다. 각 공정에 대한 연구는 개별 공정의 실증과 반응기 개발 등을 위해 독립적으로 진행되어왔다. 그러나 각 단위 공정들을 포함하는 공정간 연구는 아직 적극적으로 이루어지지 않고 있다. 이와 같은 상황에서 공정간 연계에 대한 선행 연구로서 수식을 이용한 반응기 모델 개발이 필요하게 된다.

사용후핵연료 차세대 관리공정 전체의 대용량화를 위해서는 각 공정들 사이에 최적화가 이루어져야 한다. 각 공정의 반응시간이 서로 상이하며 회분식 반응으로 건식분말화 및 전해환원 공정이 운전되기 때문에 동일한 용량의 반응기가 설치되는 경우 공정 반응 시간차에 의해 일정시간 동안 한 공정은 운전되지 않는 상황이 발생할 수 있다. 따라서 건식분말화 반응기 모사를 위한 모델 개발을 통해 건식분말화 반응시간 결정은 공정간 연계 및 최적화를 위해 중요하다. 사용후핵연료에는 수십종의 화학종이 존재하며 각 화학종의 건식분말화 반응기 내에서의 반응성을 실험적으로 측정하는 것은 불가능하다. 따라서 수식적 접근을 통한 화학반응 해석 방법이 화학종 결정을 위해 적절하며 이는 전해환원 반응기에 도입되는 산화물의 형태 파악을 위해 필요하게 된다.

본 연구에서는 기체는 연속적으로 반응기에 도입되며, 산소와 반응하여 산화되는 고체 반응물은 회분식으로 도입되는 건식분말화 반응기 모사를 위해 반회분식 반응기 모델이 적용되었으며 이전 연구에서 개발된 UO_2 산화의 동적 모델이 적용되어 건식분말화 반응의 공정 시간 예측을 위한 모델이 개발되었다. 이 결과를 바탕으로 반응기에 도입되는 기체의 산소 농도 및 기체 유량에 따라 반응 시간을 계산하였다. 기체 유량이 산화 반응에 충분하지 않는 경우 반응 시간은 한계 반응 속도에 의해 증가하였으며 기체 유량이 최대 반응 속도를 넘어서는 경우 더 이상의 유량 증가는 반응속도 단축에 영향이 없음을 보였다. 또한 각 화학종의 금속-산소 고용체를 가정하여 건식분말화 반응 이후 안정적인 산화물 형태를 예측하여 전해환원 반응기에 도입되는 산화물의 화학적 형태 및 조성을 제시하였다.

지르코늄 산화물의 고온 용융염 전해환원

박병홍, 이일우, 서중석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150-1)

bhpark@kaeri.re.kr

고온 용융 $\text{LiCl-Li}_2\text{O}$ 계에서 전기화학적 반응을 이용한 전해환원 공정은 산화물 사용후핵연료의 금속전환을 위해 개발되어 왔다. 이와 같은 건식공정 개발은 최근 활발히 진행되고 있으며 부피 저감과 고방열성 핵종제거 등 산화물 사용후핵연료를 금속으로 전환시키는 목적과 장점은 이전 연구들에서 충분히 기술되어 있다. 사용후핵연료는 다양한 군의 화학종으로 구성되어 있다. 크게 우라늄과 TRU, 희토류, 귀금속류, 휘발성 핵종 및 알칼리와 알칼리토금속들로 구분할 수 있다. 현재까지는 공정 실용화를 위해 이와 같은 다양한 종류에 대한 전해환원 거동에 대한 연구는 관심 화학종인 우라늄과 희토류 등에 국한되어 왔다. 이에 비해 귀금속류에 대한 전해환원 거동에 대한 연구는 부족한 실정이다.

귀금속 산화물들은 $\text{LiCl-Li}_2\text{O}$ 계에서 Li과의 반응에 의해 금속으로 전환되는 것으로 알려져 있다. 그러나 실험적으로 $\text{LiCl-Li}_2\text{O}$ 계에서 귀금속 산화물들을 금속으로 전환시키는 연구는 수행되지 않았다. 사용후핵연료 중 귀금속 핵종은 Zr, Sn, Mo, Ru, Pd 등이 존재하며 이중 Zr의 양이 가장 많으며 Mo, Ru, Pd이 뒤를 잇고 있다. 본 연구에서는 사용후핵연료 내 귀금속 중 가장 많은 부분을 차지하는 ZrO_2 를 대상으로 650 °C의 $\text{LiCl-3wt\% Li}_2\text{O}$ 용융염에서 전해환원 반응성을 실험적으로 측정하였다.

전해환원 거동 측정에 앞서 대상 산화물의 용융염에 대한 안정성을 판단하기 위하여 ZrO_2 의 $\text{LiCl-3wt\% Li}_2\text{O}$ 에 대한 용해도가 측정되었으며 시간에 따른 용융염상의 Zr 농도 분석 결과 ZrO_2 는 공정 용융염에 대해 용해되지 않는 것으로 나타났다. 일체형 음극인 다공성 마그네시아에 ZrO_2 분말을 충전하여 순환주사법의 전기화학적 실험 방법을 이용하여 ZrO_2 의 전해환원 전위를 측정하였으며 Li 금속 생성 전위에서 정전류 조건 하에 ZrO_2 의 전해환원 실험을 수행하였다. 회수된 환원물에서의 산소 조성은 기체 분석기를 통해 이루어졌으며 XRD 분석 결과 일부 Zr-Li-O 화합물이 검출되었다. 일체형 음극에서 회수된 금속전환체 내의 산소 함량은 공급전하량이 적은 경우 감소하다 공급전하량이 증가하는 경우 다시 증가하는 거동을 나타내고 있다. 이는 일체형 마그네시아 내의 Li_2O 농도 증가에 의해 환원된 Zr이 다시 산화되는 것으로 판단된다. 따라서 ZrO_2 를 금속으로 전환시키기 위해서는 일체형 음극 내의 산소 이온의 농도가 낮은 상태로 유지되어야 한다.

ACPF 금속전환공정 개선 연구

정원명, 이호희, 홍순석, 서중석, 김용호
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지
wmchoung@kaeri.re.kr

한국원자력연구원은 핵연료주기 건식공정으로서 산화물 형태의 사용후핵연료를 고온의 용융염 매질에서 전기화학적 방법에 의해 금속으로 전환하여 고발열성 및 고방사성 핵종을 효율적으로 제거하고, 사용후핵연료의 부피, 발열량 및 방사선의 세기를 크게 감소시킴으로서 사용후핵연료를 안전하고 효율적이며, 경제적으로 관리하기 위하여 차세대관리 종합공정(ACP : Advanced spent fuel Conditioning Process)을 개발하고 있다. 개발된 공정의 핫셀 실증을 위하여 조사제시험시설(IMEF) 지하에 핫셀 및 부대시설의 건설을 2005년 7월에 완료하고, 핫셀 내에 Lab. Scale의 차세대관리 종합공정 시험장치를 설치하였으며, 천연우라늄을 사용하여 2006년까지 총 4 campaigns의 Inactive 공정시험을 수행하였다.

본 연구에서는 현재까지의 Inactive 공정시험 결과를 분석하여 실제 사용후핵연료를 사용한 Active 공정시험을 보다 안전하고, 효율적으로 수행하기 위하여 공정의 효율성과 장치의 원격운전성 측면에서 장치의 개선방향을 제시하고, 이를 근거로 장치를 개선하였으며, 개선된 주요방향은 표 1에 표기된 내용과 같다. 개선된 공정조건과 장치를 이용하여 현재 Inactive 공정시험을 수행하고 있으며, 시험결과를 반영하여 ACPF 핫셀에서 Active 공정시험을 수행하기 위한 차세대관리 종합공정을 완성하고, 공학규모의 Scale-up 공정 개발을 위한 기준 설계자료로서 활용할 수 있다.

표 1. ACPF 공정개선 주요내용

구 분	개선 방향	효 과	비 고
공정 개선	염(LiCl) 재사용	- 염폐기물 발생량 감소 - 핫셀 공간의 효율적 활용 - 염 이송에 따른 과열 방지 - 전극의 용융염 체류시간 축소	
	온도 제어시스템 개선	- 반응기 과열로 인한 부식 완화 - 염 증발량 감소	
반응기 장치 개선	반응장치 구조 개선	- 반응기 상부 및 Cathode 염 증기 응결현상 완화 - 반응기 조립 및 해체 용이	
	원격운전성 개선	- 구조의 단순화로 인한 원격운전 용이 - 장치의 Coverage 확보	

다성분 금속염의 용융염 전해분리 해석

김광락, 안도희, 백승우, 권상운, 김시형, 심준보, 정홍석, 김용호
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150-1)
krkim1@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료에는 독성이 강한 장반감기 초우라늄원소(TRU)를 함유하고 있기 때문에 향후 효율적 관리대책이 절실하다. 이러한 부담을 경감시키기 위해 TRU를 군분리하여 이들 원소들이 환경에 더 이상 영향을 주지 않도록 핵반응에 의한 단 반감기 핵종으로 변환시키는 것이 가능하다.

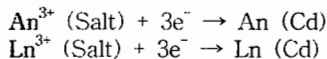
핵확산 저항성에 적합한 분리개념을 갖는 파이로프로세스 기술을 이용하여 부피를 감축하고, 우라늄 및 TRU 등의 유효자원을 회수하여 원자로시스템에 재활용함과 동시에 고준위폐기물의 처분에 따른 환경 위해도를 획기적으로 감축시킬 수 있다.

용융염 전해공정에서 금속으로 환원된 핵연료는 수회의 용융염 전해정련 배치를 거치는 동안 우라늄이 회수되고, TRU 그리고 희토류(RE) 원소 및 기타 핵분열 생성물이 누적 잔류된다. 이러한 용융염에 잔류된 TRU 원소는 카드뮴과 같은 액체음극에서는 미소한 활성화 계수에 의한 금속염의 환원전위가 비슷하게 되어 공석출 회수가 가능성이 매우 높으므로 핵확산 저항성이 뚜렷하다. 이 기술은 액체 카드뮴 음극(LCC; Liquid Cadmium Cathode)을 채택한 특별한 교반 및 수지상 파쇄 구조의 전극장치를 통해 공학규모로 구현이 가능한 전해제련 시스템으로 주목받고 있다.

본 연구에서는 악티나이드 및 희토류의 다성분 금속염의 전해제련 시스템의 설계, 운전 및 거동 예측을 위해 용융염-액체음극 전해를 모사할 수 있는 정전류 전해모델을 설정하고, 물질전달 및 열역학적인 자료를 기반으로 전해특성을 살펴보았다. 모델은 용융염-액체음극 계면에서 확산층 두께를 가정하고, 확산층의 농도 구배로부터 이동된 이온의 물질수지 그리고 전극표면의 전기화학적 반응에 의한 활성화 과전위와 전극반응 속도를 고려하였다.

2. 이론 및 결과

양극용해(Anodic Dissolution)와 음극전착(Cathodic Deposition)이 동시에 일어나는 전해정련로와는 달리, 전해제련로는 금속염의 환원반응에 의한 음극 전착만을 고려하여 다음 악티나이드 원소들(An)과 희토류 원소들(RE)의 전기화학적 반응식은 다음과 같이 반쪽전지반응(Half-cell Reaction) 들이 일어난다.



금속염이 액체음극 상에 환원반응이 일어나는 전해제련 시스템 (LiCl-KCl/Cd)에서의 전극반응에 참여하는 원소들의 전기화학적 평형전위는 Nernst 식으로 표현된다.

$$E_i^e = E_i^o + \frac{RT}{n_i F} \ln \left(\frac{\gamma_i^{\text{Salt}} C_{i,s}^{\text{Salt}}}{\gamma_i^{\text{Cd}} C_{i,s}^{\text{Cd}}} \right) \quad (1)$$

음극에서의 전극반응은 주로 평형전위와 전극표면에서의 과전위에 의해 전극전위가 결정된다. 즉,

$$E_c = E_i^e + \eta_i \quad (2)$$

전극반응은 전기화학적 분극이 활성화 에너지에 의해 제한되고, 전극표면에서의 과전위와 관련되는 속도론을 나타내는 Butler-Volmer 방정식이 사용된다. 전극표면에서의 전극반응 속도식으로 일반화된 Butler-Volmer 방정식은 이런 활성화 공정을 수학적으로 나타내어준다. 전극과 용융염 전해질 사이의 경계면에서 금속염 원소 i의 전극반응에 대한 전류밀도(I_i)는 다음과 같이 주워진다.

$$I_i = I_{o,i} \left[\exp \left\{ \frac{\alpha_i n_i F}{RT} \eta_i \right\} - \exp \left\{ - \frac{(1 - \alpha_i) n_i F}{RT} \eta_i \right\} \right] \quad (3)$$

희분식 전해제련로에서 용융염 전해질과 LCC 경계면 확산층에서 농도분포가 선형으로 가정하여 벌크와 경계면 확산층에서 유동의 연속성에 의한 물질수지 그리고 Faraday 전하이동 속도식을 고려하여 개별 금속염이 차지하는 전류량의 합은 외부 전류와 같다.

$$I_i^c = n_i F D_i^{Salt} \frac{C_{i,b}^{Salt} - C_{i,s}^{Salt}}{\delta_c^{Salt}} = n_i F D_i^{Cd} \frac{C_{i,s}^{Cd} - C_{i,b}^{Cd}}{\delta_c^{Cd}} \quad (4)$$

상기 식들은 평형전위, 과전위 및 전극전위의 함수인 연립 비선형식으로 표현되어 전체적으로 전하이동에 따른 활성화 분극이 전극전위의 증가와 관련되어진다. 따라서 전극반응에 참여하는 원소들의 전하이동은 외부전류에 따라 전기화학적 활성화 전위 또는 확산계수에 따라 전류밀도가 결정된다.

본 모사해석은 용융염 전해질-액체음극 경계면에서의 양쪽 확산층 두께를 0.002cm로 가정하여 정전류 (Galvanostatic) 전해인 경우(전해조건: Table 1) LCC에 전착되어 형성되는 원소의 농도변화를 예측하였다. Fig.1에서 보여주는 바와 같이 LCC에서 환원전위가 낮은 U의 전착이 먼저 시작되어 용융염에서의 U 농도가 낮아짐에 따라 전극전위가 조금씩 증가함을 나타낸다. 용융염에서 U의 양이 충분히 감소하여 LCC에서 U 농도가 일정 값을 유지할 때 전극 표면전위는 Pu의 환원이 시작되면서 급격히 변화함을 볼 수 있다. Pu은 음극에서 개별 전착이 일어나지 않으며 액체음극 특성상 환원전위가 비슷한 Am과 동반 전착이 진행되며, 용융염에서 상대적으로 양이 많은 Pu의 전착종료 시점에서 환원전위 값이 큰 희토류 원소들(La, Nd)의 전착이 비로소 시작됨을 보여주고 있다. 본 연구에서는 전해조건에 따라 원소들의 전하이동과 관련되어 차지하는 전류값에 의해 다성분 금속염의 전해특성을 알 수 있으며, 전극전위 및 확산계수에 의해 제한되는 전착거동을 예측할 수 있는 모사능을 확인하였다.

Table 1. Electrolysis conditions and parameters used in calculation at 450°C

Electrolysis conditions and parameters	Symbols	Values
Volume of molten salt (cm ³)	V _{salt}	425
Volume of liquid Cd cathode (cm ³)	V _{Cd}	160
Initial concentration in electrolyte salt (mol/cm ³)	C _{UCl3} ⁰	4.8×10 ⁻⁵
	C _{PuCl3} ⁰	1.5×10 ⁻⁴
	C _{AmCl3} ⁰	1.1×10 ⁻⁵
	C _{LaCl3} ⁰	3.1×10 ⁻⁵
	C _{NdCl3} ⁰	9.9×10 ⁻⁵
Cathodic transfer coefficient	α	0.5
Exchange current density of reaction (mA/cm ²)	I ₀	0.1

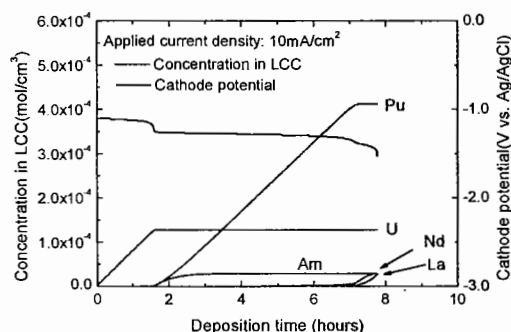


Fig 1. Electrodeposition of U, Pu, Am, La and Nd in LCC from molten salt electrolyte.

3. 요약

본 연구에서 제시된 모델을 기반으로 KCl-LiCl/Cd의 전해제련 시스템 해석을 통하여 다성분 금속염의 전해 분리의 기본 특성을 이해할 수 있었으며, 주어진 정전류 전해제련 모사에서 전해거동을 예측할 수 있었다. 또한 시간에 따른 용융염 전극반응에 참여하는 각 원소들의 전류 및 전극반응에 가해지는 전위를 예측할 수 있는 모델로써 전해장치의 설계 및 운전시 전해 변수들이 전해 성능에 미치는 영향을 판단하는데 유용하게 활용될 것이 기대된다.

우라늄 용해용 다공질 세라믹도가니의 반응 특성 조사

이윤상, 이종현, 조준호, 김용수, 조동욱, 박성빈, 이한수

한국원자력연구원 선진핵주기공정개발그룹, 대전광역시 유성구 덕진동 150

yslee@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료의 건식 처리공정은 금속상의 사용후핵연료를 전해정련하여 순수한 우라늄을 회수하는 공정으로서 이때 우라늄 전착물은 다량의 용융염을 함유한 수지상 형태이다. 따라서 우라늄의 중간저장 혹은 재활용을 위해서는 회수된 우라늄 전착물 내의 용융염을 제거한 후 잉곳을 제조하는 이른바 Cathode process를 거치게 되는데, 전착물을 잉곳으로 주조하기 위해서는 용융상태의 우라늄의 강한 반응성으로 인하여 흑연도가니를 세라믹으로 코팅하여 사용하던지, 또는 세라믹 도가니를 사용하여 용해한 후 잉곳 형태로 제조하게 된다. 일반적으로 우라늄을 용해할 때에는 흑연도가니에 세라믹을 코팅하여 사용하나, 사용후핵연료 건식처리 공정에서와 같이 장시간 운전이 예측되는 경우엔 코팅 층이 박리하여 탄소가 우라늄에 혼입되게 되면 불순물 허용치를 넘길 수 있으므로 문제가 된다. 또한 세라믹 도가니를 사용할 경우 제사용 시 열 충격에 의한 균열 등의 발생으로 제사용이 불가능하거나 또는 세라믹 재료가 우라늄과 반응하여 우라늄의 손실이 발생할 수 있다. 따라서 이 연구에서는 5 가지 종류의 세라믹 재료를 선정하여 1300 ℃에서 우라늄과 반응시켜 SEM/EDX, XRD 등을 사용하여 우라늄과의 반응 특성 결과를 소개하고자 한다. 또한 열역학계산을 통하여 반응성을 검토하고 실험 결과와 비교하고자 한다.

2. 실험방법 및 결과

우라늄 용해에 사용할 수 있는 표 1과 같은 5 가지 종류의 다공성 세라믹 도가니(지름 25 높이 30 mm)를 그림 1과 같은 흑연 mold에 조립한 후 우라늄 피를 장입하여 3 kHz의 고주파유도로에서 1300 ℃로 1시간 유지하여 우라늄을 용융시킨 상태로 반응시키며, 냉각 후 mold 표면에서 우라늄과의 반응 층을 SEM/EDX를 사용하여 분석하였다.

Table 1. Characteristics of porous ceramic materials

품명 및 재질	특성	비중	내화도	기공률
Al ₂ O ₃	다공질, >99%이상	3.2	2030 ℃	17%
MgO	"	2.8	2600 ℃	20%
CaO	다공질, >98%이상	2.7	2570 ℃	17~20%
ZrO ₂	다공질, (CaO 4.5% 안정화)93% 이상	4.2	2350 ℃	22%
Y ₂ O ₃	다공질, 99.5% 이상	3.8	2410 ℃	23%

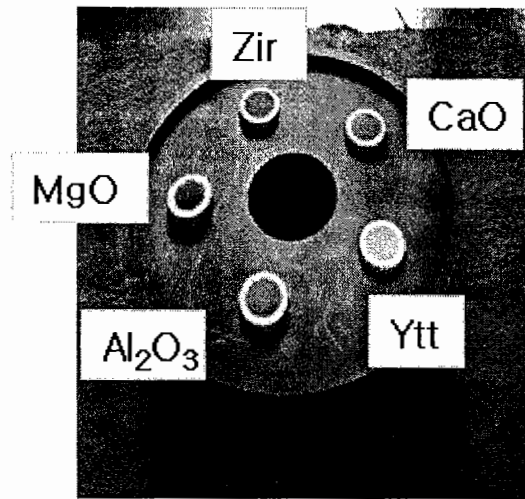


Fig 1. Moulds for experiment

열역학계산은 HSC 열역학계산 s/w를 사용하여 실험에 사용된 세라믹 재료와 우라늄 및 용융염중에 포함된 염화우라늄과의 반응에 대하여 Gibb's Free Energy 값을 검토하였다. 그림 2에 도시된 바와 같이 Al_2O_3 및 ZrO_2 를 제외한 실험에 사용된 세라믹 재료는 우라늄과의 반응성이 없는 것으로 조사되었으며, Al_2O_3 및 ZrO_2 는 우라늄의 용융 시 반응을 일으킬 우려가 있는 것으로 판단된다. 한편 전해정련용 LiCl-KCl용융염 내에는 UCl_3 를 포함하고 있는데, 열역학 계산 결과 Y_2O_3 , MgO 및 CaO등은 UCl_3 와 반응하여 염화물을 형성하는 것으로 조사되었다. 실험결과와 열역학 계산결과와 근접한 경향을 나타내었으며, 이로부터 Cathode processor용 mold재료 선정에 있어서

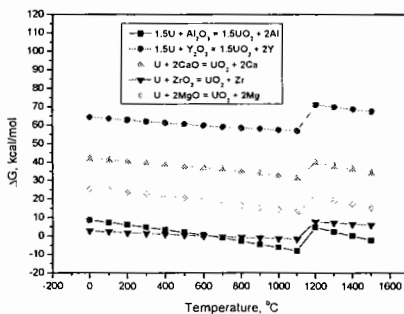


Fig 2. Chemical stability of oxide materials with uranium

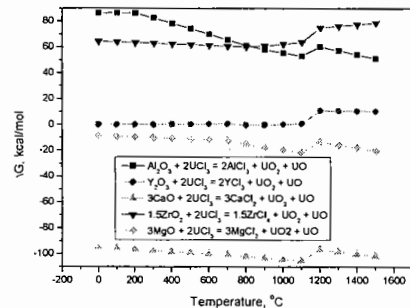


Fig. 3. Chemical stability of oxide materials with uranium chloride

기본 자료를 확보할 수 있었다.

3. 결론

열역학적 계산 결과 Al_2O_3 는 우라늄과 반응하므로 적절하지 못하고, Zirconia 도가니는 일부 구간에서 반응하나, 1300 °C에서는 반응하지 않는다. Yttria는 우라늄과 반응하지는 않으나 UCl_3 와 반응할 우려가 있으므로 우라늄 전착물의 용해용 도가니로는 적절하지 않음을 알 수 있었고, 일련의 반응성 실험결과 이를 확인 할 수 있었다.

U 전착물을 이용한 염증류 특성 시험

조동욱, 박성빈, 조춘호, 김응수, 이윤상, 이한수, 김응호

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

cdw17mp@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료를 처리하기 위한 건식 전해정련 공정은 LiCl-KCl 공정염 매질에서 진행되며 매질 내에는 UCl_3 , TRU염화물, RE염화물 등이 함유되어 있다 전해정련 후 음극 전착물인 우라늄은 수지상(dendrite)으로 형성된다. 이러한 우라늄 음극 전착물을 전해조로부터 회수하면 표면 및 내부에 공정염 및 기타 금속 염화물이 포획되어 있다. 이러한 음극 전착물로부터 순수한 우라늄을 회수하기 위한 방법으로 증기압 차이를 이용한 분리방법인 증류공정이 일반적으로 적용된다. 따라서 본 연구에서는 금속염화물을 증발 제거함으로써 우라늄 손실 없이 순수한 우라늄 ingot을 회수하기 위한 감압 조건의 변화와 가열 온도의 조절로 여러차례 염증류 실험을 수행하고, 그 특성을 분석하였다.

2. 실험 및 결과

연구 대상인 금속염화물의 증기압을 나타낸 Fig.1에서처럼 온도에 따른 증기압의 차이가 큼을 알 수 있다. 이 결과로부터 전착물에서 염을 분리할 수 있음을 알 수 있다.

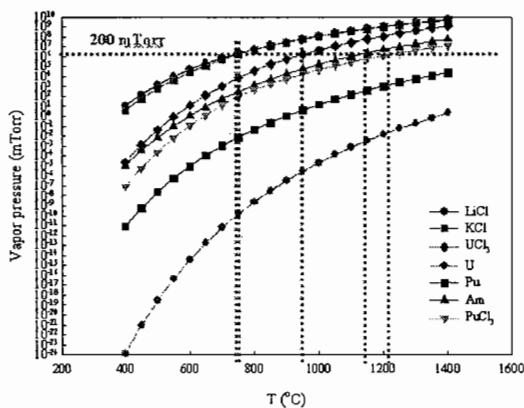


Fig 1. Vapor pressures of the elements

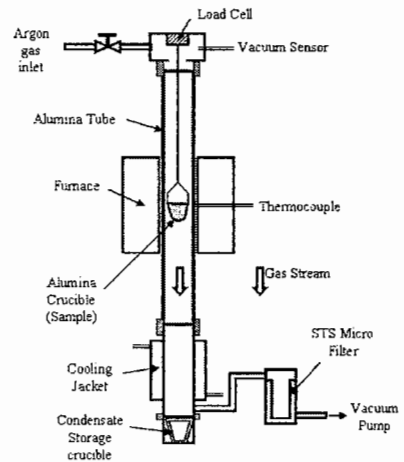


Fig 2. Schematic drawing of Vacuum evaporation apparatus

Fig.2와 같이 염증류 장치는 상단부, 중단부, 하단부 및 콘트롤 패널로 크게 4부분으로 구성되어 있다. 상단부는 무게 측정을 위한 load cell unit, 중단부는 용융염 증류를 위한 가열부 및 하단부는 증발된 용융염을 냉각시켜 고체입자로 회수하는 응축회수부로 구성된다. 일정 감압조건에서 가열에 의해 증발된 염은 하단부에 연결된 진공펌프와 상단부의 Ar 가스유입에 의해 상부에서 하부로 유체흐름이 형성되어 하부에서 응축 및 회수되는 개념으로 설계되었다.

Fig.3에서 보는 바와 같이 감압조건의 변화에 따른 증류 실험으로써, 500, 300, 200, 100mTorr 로 각각 감압조건을 변화시키면서 상온에서 1000℃로 일정한 가열속도(3℃/min)로 승온시켰으며, 승온

후 일정 시간(1h) 동안 유지시켜 승온에 따른 무게 변화를 실시간으로 측정함으로써 염증류 특성을 고찰하였다. 사용된 시료는 전해정련 공정에서 회수된 우라늄(U) 전착물을 전처리 없이 사용하였다. 감압조건이 커질수록 증류속도가 증가하며 잔류염이 감소함을 확인할 수 있었다. 또한 SEM 분석을 통해 전착물 표면에 염이 휘발되었음을 확인할 수 있었다.

가열 온도의 조절에 의한 증류 실험은 감압조건 변화 실험으로부터 얻어진 적정 감압 조건 (200mTorr) 하에서 염증류를 목적으로 일정온도(700, 800, 900, 1000℃)까지 일정한 가열속도(3℃/min)로 승온시켰으며, 승온 후 일정 시간(1h) 동안 유지시켜 승온에 따른 무게 변화를 실시간으로 측정함으로써 염증류 특성을 고찰하였다. Fig.4와 같이 일정유지 온도가 높을수록 증류속도가 증가하였으며 잔류염이 감소함을 확인할 수 있었다. SEM 분석을 통해서도 전착물 표면에 염이 휘발되었음을 확인할 수 있었다.

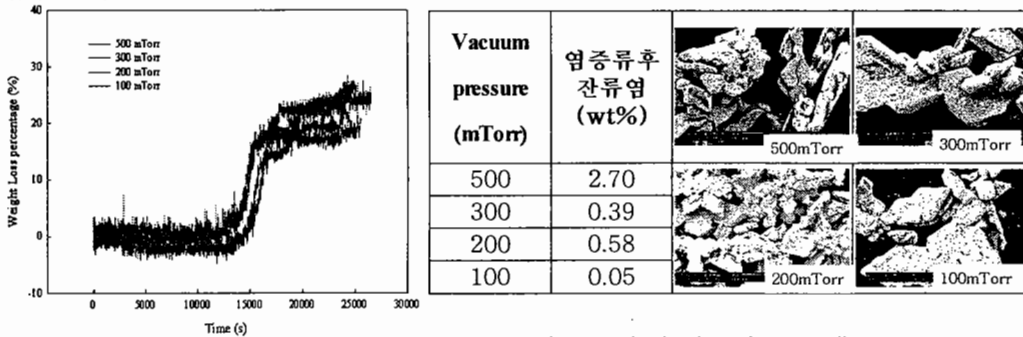


Fig 3. Evaporation behaviors of uranium cathode deposit according to vacuum condition with time.

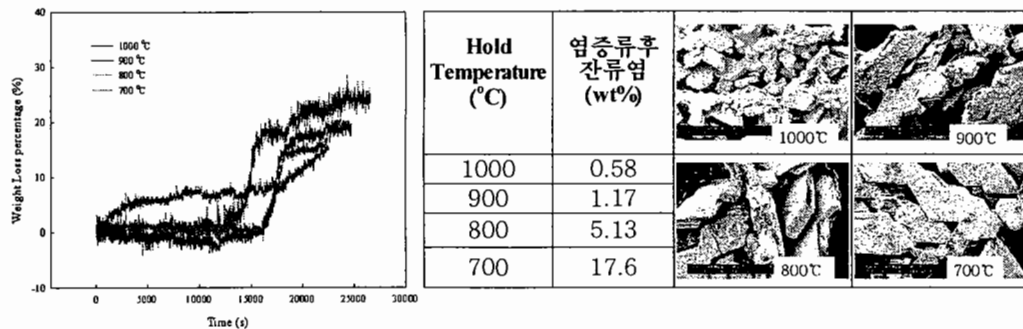


Fig 4. Evaporation behaviors of uranium cathode deposit according to vacuum condition with time.

3. 결론

진공도가 낮아질수록 염증류후 잔류염(wt%)은 감소함을 확인하였으며 300mTorr 이하에서는 거의 99% 이상의 염제거율을 나타내었다. 온도조건이 낮아짐에 따라서 염증류후 잔류염(wt%)이 증가하였으며 900℃ 이상에서 거의 99% 이상의 염제거율을 보였다. 앞으로 용융염의 각 성분에 대한 증기압 및 PuCl₃의 환원에 대한 제한 조건으로부터 효과적으로 용융염을 제거하는 최대 진공압 및 최적 유지온도를 도출하는 연구가 필요하다.

용융염이 포함된 우라늄 전착물의 염회발 및 잉곳 제조 특성

박성빈, 조동욱, 오규환, 이종현, 이윤상, 황성찬, 강영호, 이한수, 김용호

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

sbpark@kaeri.re.kr

1. 서론

최근 원자력에너지의 필요성과 사용후핵연료의 발생량이 증가함에 따라 GEN-IV 및 GNEP 등을 통해 사용후핵연료의 폐기물의 양에 대한 절감 및 에너지 효율 극대화에 관심을 기울이게 되었고 이에 대한 정책 및 연구가 활발하게 진행되고 있다. 고온건식공정(Pyroprocess)는 사용후핵연료를 처리하는 대안으로 주목을 받고 있는 공정이다. 고온건식공정 중 전해정련(electrorefining) 공정은 용융염을 매질로 사용하여 환원전위에 따라 핵분열생성물로부터 순수한 우라늄을 분리 회수하는 중요한 공정이다. 전해정련공정을 거치면서 우라늄이 고체전극에 전해전착 되어지는데, 고체전극에 전착된 우라늄 석출물은 약 30~40 wt%의 용융염을 포함하고 있다. 이 석출물로부터 순수한 우라늄을 회수하고 금속 잉곳으로 제조하기 위해서는 용융염을 제거해야 한다. 특히, 용융염 속에 PuCl_3 이 잔존하게 되면 고온에서 우라늄 잉곳 제조시 PuCl_3 가 금속 우라늄과 반응을 하여 Pu 으로 환원될 수 있기 때문에 저온에서 용융염을 제거해야 할 필요가 있다. 따라서 전해석출된 우라늄을 원하는 일정한 형태의 잉곳으로 제조하기 전에 염회발공정을 도입할 수 있다. 이번 연구에서는 우라늄 석출물에 대해 진공압과 유지온도변화에 따라 Hertz-Langmuir 관계식을 적용하여 용융염의 휘발 특성을 고찰하고자 하며 우라늄 잉곳을 제조하는 특성을 알아보고자 한다.

2. 실험 및 결과

염회발장치는 증류관, 가열시스템, Ar 분위기제어시스템, 진공펌프, 휘발된 염을 포집하는 응축 시스템으로 구성되어 있다. 용융염을 포함하고 있는 일정량의 우라늄 석출물을 염회발장치에 장입하여 가열과 진공 휘발을 통한 회분식 조업으로 염회발 과정을 수행하게 된다. 용융염의 휘발 특성은 주로 용융염의 각 구성성분의 증기압과 온도에 크게 의존한다. Fig.1(a)는 진공압 변화에 따른 우라늄 석출물의 염의 휘발 특성을 나타낸다. 진공압이 낮아지면서 휘발이 더 잘 일어남을 확인할 수 있었다. 이 실험결과에 대해 진공휘발에 관련된 관계식인 Hertz-Langmuir을 적용하여 염 휘발거동을 고찰할 수 있었다.

$$M = \frac{\alpha P_i}{\sqrt{2\pi m R T}}$$

여기서 α 는 0~1의 값을 가지는 휘발계수를 나타내며 최대 휘발량에 대한 실제 휘발량의 비를 나타낸다. 실험결과로부터 휘발계수의 값을 구할 수 있었으며 이를 Table 1에 정리하였다. 진공압이 낮아지면서 휘발계수가 커졌으며 이는 실험결과와 일치하는 경향임을 확인할 수 있었다. 또한 유지온도를 변화시키면서 우라늄 석출물의 염회발 실험을 수행하였다. 그 실험결과를 Fig.1(b)에 나타내었다. 유지온도가 낮아지면서 염회발이 잘 일어나지 않음을 확인할 수 있었다. 한편 700 °C 유지온도에서의 염회발거동을 살펴보면 LiCl-KCl 용융염의 증기압온도보다 낮은 온도하에서도 염 휘발은 진행이 되나 잔류염이 많음을 확인할 수 있었다. 더 많은 염을 휘발시키기 위해서는 유지시간을 더 길게 해야 하지만 조업시간이 길어지는 단점을 고려해야 할 것이다. 한편 유지온도 변화에 대한 휘발계수는 유지온도가 낮아짐에 따라 Table 2와 같이 휘발계수가 감소함을 확인할 수 있었다. 유지온도가 700°C인 경우 휘발계수가 높게 나왔는데 이에 검토가 필요하다.

Fig.2는 우라늄 석출물의 염증류 및 잉곳을 제조하는 특성을 알아보기 위해 상온에서 1300°C까지 승온시킨 후 1300°C에서 2시간 유지한 실험결과이다. Fig.2(a)는 1300°C까지 선형적으로 승온시킨 결과이며 Fig.2(b)는 1000°C에서 2시간 유지하여 2단계 승온시켜 잉곳제조를 수행한 결과를 나타낸다. 실험장치의 밀폐성 문제로 약 50%의 우라늄만 잉곳으로 제조되었으며 나머지는 산화되었을 뿐 아니라 염회발시 튜브현상으로 인해 도가니 외벽에 비산되어 있음을 확인할 수 있었다. 따라서

장치의 보완으로 우라늄석출물의 산화를 방지하며 비산을 최소화하는 연구가 수행되어야 할 것이다.

3. 결론

전해정련공정으로부터 나온 우라늄 석출물로부터 순수한 우라늄을 얻기 위해 용융염을 제거하기 염취발공정을 도입하게 되었다. 염취발특성을 알아보기 위해 진공압 및 유지온도 변화에 따른 염취발 실험을 수행하였고 Hertz-Langmuir 관계식을 적용하여 휘발계수를 얻을 수 있었다. 진공압이 낮아질수록, 유지온도가 높아질수록 염취발 효율이 커짐을 확인하였다. 우라늄석출물로부터 우라늄 잉곳을 제조하기 위해 선형적 승온법과 2단계 증류법을 적용하여 우라늄 잉곳제조 특성을 알아보았다.

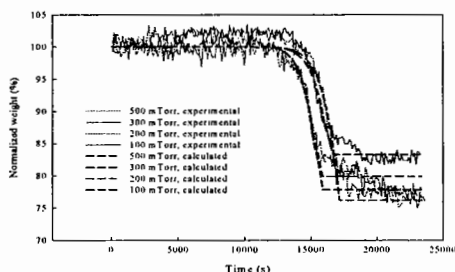


Fig. Effect of vacuum pressure on the salt evaporation.

(a) Vacuum pressures upto 1000 °C heating

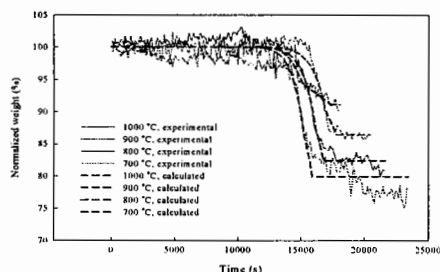


Fig. Effect of temperature on the salt evaporation at 200 mTorr.

(b) Holding temperatures at 200 mTorr

Fig.1. Effects of the vacuum pressures and the 1 hour holding temperatures on the salt evaporation.

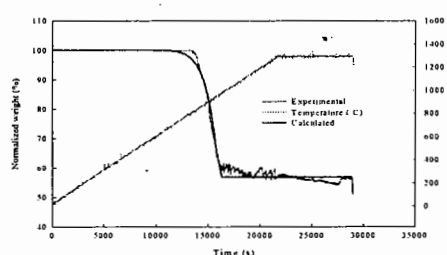


Fig. Salt distillation & U ingot manufacturing from U deposit.
2007/06/20, alumina crucible, 200 mTorr.
1300 °C (3-4 °C/min) 2 h.

(a) Direct heating

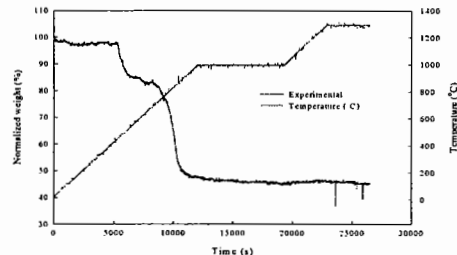


Fig. Salt distillation & U ingot manufacturing from U deposit.
2007/06/28, graphite crucible, 200 mTorr.
1000 °C 2h - 1300 °C 1h (5 °C/min).

(b) Stepwise heating

Fig.2. Salt distillation and U ingot manufacturing from U deposit upto 1300°C at 200 mTorr.

Table 1. Comparison of the evaporation coefficients with respects to the vacuum pressures.

Vacuum Pressure (mTorr)	Evaporation coefficient (a)
500	3.040×10^{-5}
300	4.656×10^{-5}
200	1.251×10^{-4}
100	1.779×10^{-4}

Table 2. Comparison of the evaporation coefficients with respects to the 1 hour holding temperatures.

Holding Temperature (°C)	Evaporation coefficient (a)
1000	1.251×10^{-4}
900	5.619×10^{-5}
800	4.630×10^{-5}
700	1.661×10^{-4}

UCl₃ 제조장치 설계 제작 및 성능평가

우문식, 강희석, 이한수, 김용호

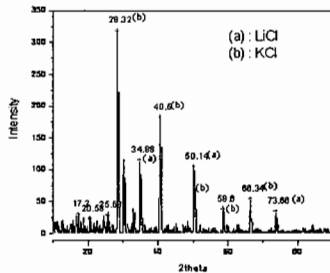
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

mswoo@karei.re.kr

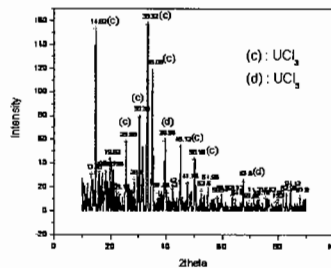
1990년 중반부터 한국원자력연구원(KAERI)에서는 장수명핵종 소멸처리를 위하여 우라늄 및 TRU를 전해정련법으로 회수하는 기술을 개발하여 왔으며, 전해정련조에 사용된 salt는 LiCl-KCl 용융염을 사용하였다. 용융염에서 U 및 TRU를 전기화학적으로 음극에 전착시켜 분리하기 위하여 초기 salt 용액에 충분한 우라늄 이온이 존재하여야한다. 그리고 충분한 우라늄이온이 존재하기 위하여 반응기내 salt 중량의 9wt% 정도의 UCl₃가 필요하다. 지금까지 KAERI에서는 1kg-U/batch의 전해정련장치 및 석출물회수 장치를 제작하여 실증실험을 완료하였다. 사용된 UCl₃는 반응기의 salt층 내에서 U 금속과 CdCl₂를 주입하여 반응시켜 제조하였으나, 07년부터 수행되는 engineering scale 규모의 장치에서는 다량의 UCl₃가 필요하게 되었다. 기존의 UCl₃를 제조방법은 다량의 CdCl₂가 필요하고, 반응후 많은 Cd 금속 폐기물이 발생하게 된다. 본 연구에서는 일차적으로 동일한 반응기내에서 Cl₂가스와 액체 Cd 금속간의 반응을 이용하여 CdCl₂를 제조 후, 제조된 CdCl₂와 U 금속을 반응시켜 UCl₃를 제조하였다. 즉 UCl₃ 제조 반응식은 다음과 같다.

- 하부 Cd 층의 반응식 : $\text{Cd} + \text{Cl}_2 \rightarrow \text{CdCl}_2$
- 상부 LiCl-KCl salt 층의 반응식 : $3\text{CdCl}_2 + 2\text{U} \rightarrow 3\text{Cd} + 2\text{UCl}_3$

UCl₃ 제조장치의 구성은 Cl₂가스 발생장치, UCl₃ 제조 반응기(반응기 ID 6 x H 15cm), 배기체 가스 흡수장치, 염소가스 측정 장치 등으로 구성되어있다. UCl₃제조 실험은 LiCl-KCl (41:59mol%) 200g, U 14g을 600℃에서 Cl₂ 가스 공급속도를 30ml/min로 3시간 반응시킨 후 XRD 분석 결과 그림 1,2와 같이 UCl₃를 제조할 수 있었다.



(그림1. 반응 전 용융염)



(그림2. 반응 후 용융염)

Cd를 이용한 저비용의 우라늄염화물 제조특성 연구

강희석, 우문식, 김용수, 이윤상, 이한수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

hskang1@kaeri.re.kr

1. 서론

전해정련조에서 출발물질로 사용되는 UCl_3 의 제조 시 이제까지 알려진 고전적인 방법은 Gerd Meyer 등[1]이 연구한 U metal의 filings를 수소분위기에서 $250^\circ C$ 로 가열하여 UH_3 를 생성시킨 다음, Ar 분위기에서 $300^\circ C$ 로 dehydrogen시키고, 여기에서 얻어진 미세분말을 HCl gas와 $250^\circ C$ 에서 반응시키면 UCl_3 와 UCl_4 가 얻어지는 방법이었다. 하지만 염소화반응의 반응물질로 사용되는 gas 상태의 HCl은 철제 금속 또는 어떤 형태의 합금으로 된 철제 반응용기를 부식시킨다는 심각한 고민이 존재한다. 따라서 부식성이 없는 염소화반응의 반응물질이 여러 분야에서 탐구되고 있다.

$CdCl_2$ 는 철제 반응용기에 대한 부식성이 없으면서 U 을 UCl_3 로 염소화시킬 수 있는 적합한 물질로 William E. Miller 등[2]이 소개한 바 있다. 만일 상용화된 $CdCl_2$ 를 구입해 UCl_3 제조공정에 사용한다면 너무 높은 비용과 Cd 폐기물로 인한 2차적 비용이 발생하는 단점이 있다. UCl_3 제조를 위한 또 하나의 방법은 pyrophoric UH_3 를 이용하는 방법인데, 이 방법 또한 대용량의 UCl_3 제조를 위해서는 안전을 고려한 장비 및 설치비용이 매우 높은 벽에 부딪히게 된다. 하지만 gas 상태의 Cl_2 와 액체상태의 Cd를 반응시켜 $CdCl_2$ 를 생성시킨 후, 제조된 $CdCl_2$ 와 U 을 반응시켜 UCl_3 를 제조할 수 있다면 상용의 $CdCl_2$ 를 구입해서 사용하는 방법보다 훨씬 적은 비용의 이점이 있으며, 반응물질의 Cd가 연속적으로 재순환되어 U와 반응하여 UCl_3 를 생성하는 $CdCl_2$ 의 제조에 사용되므로 대량의 Cd 폐기물이 생성되는 상용의 $CdCl_2$ 를 직접 사용하는 방법보다 유리한 장점이 있다. 그러므로 본 연구의 목적은 Cl_2 gas에 의한 철제 반응용기 및 주변장치의 부식이 발생되지 않는 상태에서 gas 상태의 Cl_2 와 액체상태의 Cd, 그리고 U metal을 이용하여 LiCl-KCl의 용융염에서 UCl_3 를 제조하는 방법과 장치개발에 있다. 부수적인 목적은 UCl_3 의 제조반응 시 가능한 한 낮은 비용과 Cd 폐기물이 생성되지 않는 조건으로 수행할 수 있는 방법 및 장치개발에도 있다.

2. 실험 및 결과

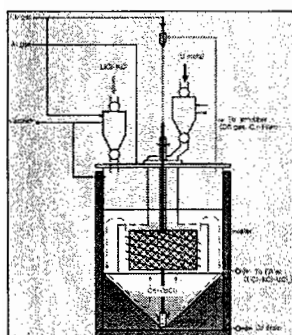
UCl_3 의 제조반응 시 생성물질인 UCl_3 가 생성되기까지 수반되는 반응식은 다음과 같다.



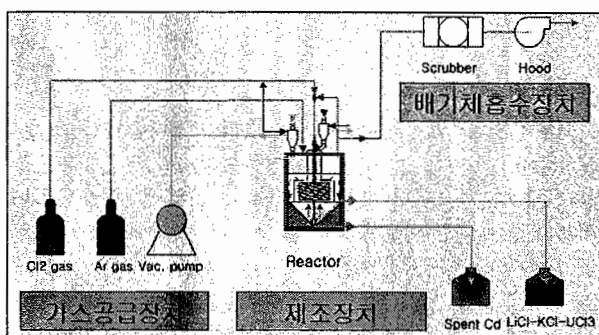
UCl_3 의 제조반응 시 반응용기 및 관련 장비의 재질의 부식이 없이 다량의 UCl_3 를 제조하기 위해 부식성이 없는 $CdCl_2$ 를 이용하였다. 반응기 및 Cl_2 gas 라인은 부식에 비교적 강한 sus316을 사용하였으며, 그림 1의 (a)와 같은 구조로 반응기를 제작하였다. 액상의 Cd층은 반응기 내에서 바닥층이고, 바로 위층은 초기에는 $CdCl_2$ 가 없는 KCl-LiCl 혼합염 층으로 유지된다. 반응기 내부의 온도는 두 층이 액체상태로 유지될 수 있도록 $600^\circ C$ 를 유지하였다. 금속튜브를 넣어 아래쪽 끝은 액상의 Cd 층에 담가지도록 하고, 반응기 하단의 액상 Cd층에 Cl_2 gas를 주입하여 반응식 (1)과 같은 반응으로 $CdCl_2$ 를 생성시킨 후 제조된 $CdCl_2$ 밀도는 3.37, Cd는 7.82이고 Cd에서 $CdCl_2$ 의 용해도는 거의 0에 가까우므로 $CdCl_2$ 는 밀도차이에 의해 액체 Cd층의 위쪽 층인 KCl-LiCl 혼합염 층으로 이동하게 된다. 이동된 $CdCl_2$ 는 반응기의 상부 LiCl-KCl salt 층에 위치된 U ingot이 담긴 basket과 접촉하게 되고, 접촉된 $CdCl_2$ 와 U ingot은 반응하여 UCl_3 를 생성하게 된다. 반응 후 Cd 금속은 밀도차이 때문에 다시 반응기 하단의 액상 Cd 층으로 내려와서 재순환하게 되고, 제조된 UCl_3 는 salt층에서 용해되어 UCl_3 -LiCl-KCl 형태로 존재하게 된다. 반응 완결 후 반응기의 온도를 낮추어 반응기에 압력을 가하여 생성물을 고형화 시켰다. 반응이 완결된

후 그림 2와 같이 시료를 채취하여 그림 3과 같이 XRD 분석을 수행하였다.

향후 J. Gonzalez 등[3], M.R. Esquivel 등[4]이 연구한 Fe와 Ti, Cerium dioxide 등에 대한 염소화 반응같이 Cd와 U의 염소화반응에 대한 온도의 영향을 확인하는 non-isothermal chlorination, isothermal chlorination, 그리고 Cl_2 gas의 공급 시 total flow rate의 영향을 확인할 필요가 있다.



(a)



(b)

그림 1. UCl_3 제조장치; (a) 반응기, (b) 장치개념도

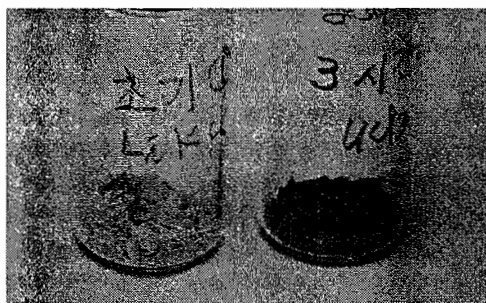


그림 2. LiCl-KCl 과 $\text{UCl}_3\text{-LiCl-KCl}$ 혼합염

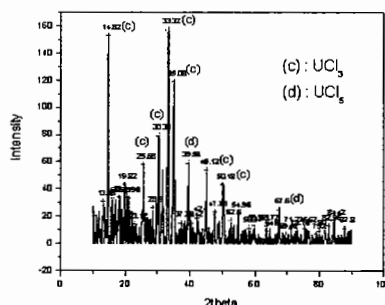


그림 3. UCl_3 의 XRD 분석

3. 결론

전해정련시스템에서 출발물질인 $\text{UCl}_3\text{-LiCl-KCl}$ 의 제조를 위해 Cl_2 gas에 의한 철제 반응용기 및 주변장치의 부식이 발생되지 않는 상태에서 우라늄염화를 제조실험을 수행하였다. 부식성은 없지만 상용으로는 고가인 CdCl_2 보다 상대적으로 저가인 Cd와 Cl_2 를 이용하여 CdCl_2 를 생성시킨 후, 제조된 CdCl_2 와 U metal을 반응시켜 UCl_3 를 제조하였다. 액상의 Cd에 Cl_2 gas를 공급시켜 CdCl_2 를 생성시켰으며, Cd와 CdCl_2 의 밀도차이에 의한 CdCl_2 의 이동을 유도하여 U metal과 반응하도록 접촉시키는 장치를 제작하여 $\text{UCl}_3\text{-LiCl-KCl}$ 의 생성을 확인하였다.

참고문헌

- [1] Gerd Meyer, H-Chr. Gaebell and R. Hoppe, "K₂UCl₅, Rb₂UCl₅, UCl₃ and a Comparison with Analogous Rare Earth Chlorides", J. of the Less-Common Metals, 93(1983) 347-351
- [2] William E. Miller, Zygmunt Tomczuk, US Patent: US 6,800,262,B1, "Method for making a Uranium chloride salt product" 2004
- [3] J. Gonzalez, M. del C. Ruiz, "Bleaching of Kaolins and Clays by Chlorination of Iron and Titanium" Applied Clay Science 33 (2006) 219-229
- [4] M.R. Esquivel, A.E. Bohe, D.M. Pasquevich, "Chlorination of Cerium Dioxide", Thermochemica Acta, 398(2003) 81-91

LiCl-KCl 공융염의 잔류 악티늄족 원소 회수방안 분석

심준보, 유영재, 김시형, 백승우, 권상운, 김광락, 정홍석, 김용호, 안도희

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

njbshim@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 (SF)의 감용을 위한 건식 처리과정 (Pyroprocessing)에서 연료 중에 포함된 U 및 초우라늄 원소(TRU) 등은 전해정련 및 제련 공정을 이용하여 음극에 석출시켜 회수한다. 다량의 연료를 처리할 경우에는 용융염 중에 핵분열생성물 (Fission products)이 누적되기 때문에 폐용융염 처리과정에서 FP의 제거가 요구된다. 그러나 용융염에는 악티늄족 원소가 잔류되어 있어서 용융염 처리과정 이전 단계에서 이들 원소를 충분히 제거해주어야 한다. 잔류 악티늄족 원소의 회수(Drawdown; DD) 방안으로는 산화, 전해, 환원추출 또는 이들의 조합 방법을 적용할 수 있다.

본 연구에서는 고속로 (SFR) 연료물질 회수를 위해 Cd 음극 (LCC)을 이용한 전해제련에 이어 적용되는 잔류 악티늄족 원소 회수(DD) 방안의 하나로 전해 및 산화를 조합한 공정을 제시하고 HSC 전산코드를 이용하여 산화물 생성반응에 대한 열역학적 계산 및 간단한 실험 등을 통해 그 가능성을 검토하였다.

2. 실험 및 결과

○ 잔류 악티늄족 회수방안 및 열역학적 타당성 분석

SFR 연료 제조를 위해 LCC에 의한 U/TRU를 회수하는 전해제련 (EW) 공정은 동반 석출되는 희토류 원소 (RE)의 함량을 조절하는 것이 중요하다. 따라서 적절한 조업조건에서 EW 공정을 종료해야 하며, <그림 1>에서 보는 바와 같이 EW 조업후 용융염에 잔류하는 악티늄족 원소(An)는 Cd 음극을 사용하여 전해시켜 회수한 뒤 동반 석출된 과량의 RE는 선택적으로 산화물을 형성시켜 Cd-An 합금에서 분리하여 용융염 처리공정으로 보내는 것으로 개념을 설정하였다. DD 공정에서 당초의 An 선택회수 개념은 용융염 상에서 산소를 미량 조절하여 산화물을 형성시키려 하였으나, 열역학적 계산결과 금속 Oxychlorides가 생성되어 An/RE의 선택 분리가 곤란한 것으로 파악되었다. 따라서, RE의 선택 산화방법을 Cd 금속 상에서 산소를 미량 조절하여 산화물을 형성하는 방법을 검토하였으나 500 ℃의 온도에서는 산소농도 조절도 쉽지 않아 CdO와 같은 생성 ΔG 값이 매우 작은 화합물을 산화제로 선정하여 Cd-M 합금 속에 첨가시키는 것으로 변경하였다.

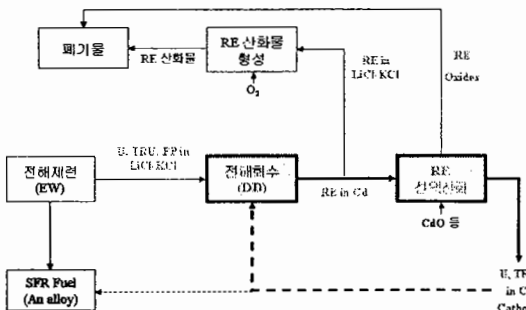


그림 1. 전해 및 RE 선택산화에 의한 An 회수개념

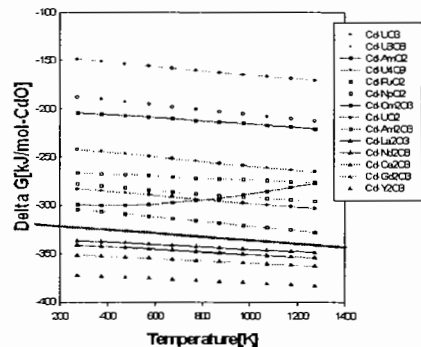


그림 2. 금속산화물 생성 ΔG 계산결과

○ CdO 산화제에 의한 Cd음극 석출물의 선택산화 방안 분석

<그림 2> 및 <표 1>에 나타난 바와 같이 Cd-M 합금에서 일어나는 CdO에 의한 An 및 RE 금속의 산화물 형성 반응에 대한 ΔG 값을 HSC 전산코드를 이용하여 열역학적 계산하고 반응진

행 가능성 및 An/RE의 선회회수 가능성에 대해 검토 및 분석하였다. <그림 2>에서 온도 400~1,200 °C의 범위에 걸쳐 ΔG 값이 파란색 선으로 구분되는 An과 RE 산화물이 상호분리 가능함을 볼 수 있다. 산화물 생성반응의 ΔG 값은 <표 1>에서 보는 듯이 Am과 가장 가까운 La 사이의 차이가 약 25.6 kJ/mol-CdO 이었으며 U-La 사이는 48.3 정도가 된다. 또한 같은 RE 금속 중에서 Ce-Y 사이는 약 29.5 kJ/mol-CdO 가 된다.

본 연구에서는 CdO 산화제에 의한 RE 금속의 선택산화 반응의 실효성을 확인하기 위하여 우선 RE 원소만을 이용하여 실험하였다. Y에 대해 ΔG 값 차이가 더 큰 Nd이나 La를 Y와 함께 용융 Cd에 각각 약 3.5 wt%가 되도록 넣어 Cd-M 합금을 제조한 뒤, 550 °C에서 CdO를 Y의 약 50 %만 산화되는 mol 수로 첨가하여 10시간 동안 반응시켜 생성된 시료를 XRD로 분석하였으며 <그림 3-a>에 나타내었다. 또한 Cd의 영향을 배제한 조건에서 RE 금속과 CdO 산화제의 직접 반응을 실험한 결과도 <그림 3-b>와 같이 얻었다. 액체 Cd 상이나 직접반응에서 형성된 산화물은 HSC 계산에서 예측한 바와 같이 Y 금속이 선택적으로 산화되어 주로 Y_2O_3 가 생성되었음을 <그림 3-a,b>에서 볼 수 있다. 그러나 Cd 상 반응에서는 CdO도 약간 검출되었다. 직접 반응에서 반응기 뚜껑 안쪽에는 미세한 Cd 방울들이 맺혀 있었으며 XRD 상에 검출된 La 금속은 시료의 분리 과정에서 남아있던 La가 동반된 것으로 추측된다.

Cd 상 산화실험에서 나타난 점은 RE 산화물이 형성된 뒤 Cd와 뒤섞여 있어서 공정을 적용할 경우 RE 산화물만을 Cd로부터 회수하기가 용이하지 않을 수 있을 것으로 우려된다. 한편 RE를 선회 회수한 후 Cd-An 합금을 음극으로 다시 사용하기 위해서는 산화제로 $CdCl_2$ 등을 사용하는 방법이 공정 적용 측면에서 보다 바람직할 것으로 생각된다.

표 1. CdO이용 산화물 생성반응 ΔG

Reaction Equations	ΔG at 875K [kJ/mol-CdO]
$CdO + 2/3Pu = 1/3Pu_2O_3 + Cd(l)$	190.324
$CdO + 1/3U = 1/3UO_3 + Cd(l)$	-162.627
$CdO + 3/8U = 1/8U_3O_8 + Cd(l)$	-203.301
$CdO + 1/2Am = 1/2AmO_2 + Cd(l)$	-213.828
$CdO + 4/9U = 1/9U_4O_9 + Cd(l)$	-256.695
$CdO + 1/2Pu = 1/2PuO_2 + Cd(l)$	-272.823
$CdO + 1/2Np = 1/2NpO_2 + Cd(l)$	-289.952
$CdO + 2/3Cm = 1/3Cm_2O_3 + Cd(l)$	-292.778
$CdO + 1/2U = 1/2UO_2 + Cd(l)$	-295.858
$CdO + 2/3Am = 1/3Am_2O_3 + Cd(l)$	-318.485
$CdO + 2/3La = 1/3La_2O_3 + Cd(l)$	-344.116
$CdO + 2/3Nd = 1/3Nd_2O_3 + Cd(l)$	-349.3
$CdO + 2/3Ce = 1/3Ce_2O_3 + Cd(l)$	-349.591
$CdO + 2/3Gd = 1/3Gd_2O_3 + Cd(l)$	-358.513
$CdO + 2/3Y = 1/3Y_2O_3 + Cd(l)$	-378.115

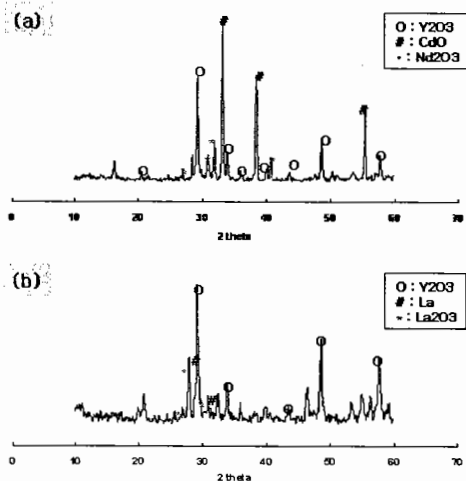


그림 3. 산화물시료 XRD분석: a)Cd상 산화, b)직접산화

3. 결론

본 연구에서는 전해제련 후 용융염에 잔류하는 악티늄족 원소 회수방안의 하나로 전해 및 산화를 조합한 공정을 제시하고 HSC 전산코드를 이용하여 산화물 생성반응에 대하여 열역학적 계산 및 CdO를 이용한 산화실험을 수행하여 선회 회수방안의 가능성을 검토하였다.

Cd-M 합금에서 일어나는 CdO에 의한 An 및 RE 금속의 산화물 형성 반응의 HSC 전산코드를 이용한 계산결과 온도 400~1,200 °C의 범위에서 RE 산화물의 선회회수가 가능한 것으로 나타났다.

액체 Cd 상이나 직접 산화반응 실험결과 형성된 산화물은 HSC 계산에서 예측한 바와 같이 Y 금속이 선회적으로 산화되어 주로 Y_2O_3 가 생성되었음을 확인할 수 있었다.

전해에 의한 LiCl-KCl 용융염중의 우라늄 회수

권상운, 유영재, 김광락, 심준보, 백승우, 김시형, 정홍석, 안도희, 김용호

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

swkwon@kaeri.re.kr

장 반감기 원소들의 소멸처리를 위해서는 사용후 핵연료 내에 존재하는 장수명 핵종군 원소들의 분리가 필요하다. 분리방법중의 하나인 건식공정은 습식공정에 비해 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 원리는 우라늄, 희토류 원소, TRU 원소 및 귀금속 등으로 구성된 ingot 양극으로부터 용융염으로 녹아나오는 우라늄을 고체음극에 전착시켜 제거하고, 나머지 원소들 중에서 악티나이드 원소들을 액체음극에 전착시켜 회수하는 것이다. 이 공정들이 반복되면 용융염중에 fission product(FP) 들의 농도가 증가하여 용융염처리과정이 필요하다. 용융염에 잔존하는 악티나이드 원소들은 용융염 처리 작업전 제거하지 않으면 FP와 함께 섞여서 분리된다. 따라서 용융염중의 악티나이드 농도를 최대한 낮추는 공정이 필요하며(drawdown), 환원추출 및 전해 등의 방법을 이용한다.

본 연구에서는 다공성 세라믹 포집용기가 달린 고체음극과 액체음극을 각각 이용하여 용융염중의 악티나이드 농도를 최대한 낮추려는 연구를 수행하였다. 고체음극의 경우에는 액체음극과 달리 전착물이 쉽게 이탈하기 때문에 세라믹 포집용기를 전극 주위에 설치하였다. 용질로는 우라늄을 악티나이드 대표원소로 그리고 세륨을 희토류 대표원소로 사용하였다. 실험에 사용된 장치는 Fig.1.에서처럼 열전대, 교반기, reference electrode, anode 및 cathode(고체 혹은 액체) 등으로 구성하였다. 고체 및 액체음극을 사용하였을 때 모두 정전류를 인가하여 전해실험을 수행하였으며, 전해 실험중 우라늄 및 세륨 농도의 변화를 측정하기 위해 시료를 채취하였다.

고체 및 액체음극 모두에서 용융염중의 우라늄 전착이 성공적으로 잘 이루어 졌으며, 90% 이상의 우라늄이 제거되어도 매우 소량의 세륨만 함께 전착 되었다. 용융염중의 최종 우라늄 농도는 수십 ppm 에 이르렀다. Fig. 2는 고체음극을 이용하여 전해실험을 수행할 때의 cathode 및 anode의 전압 변화를 나타낸 것이다. 약 8시간 동안의 전해 실험에서도 전압이 잘 유지되었고, 특히 현상은 발견되지 않았다. Fig.3은 시간에 따른 용융염의 색상 변화를 나타낸 것으로 우라늄의 전착이 진행됨에 따라 용융염 채취시료의 냉각후 색상은 UCl_3 의 색상인 짙은 보라색에서 색상이 점차 옅어지다가 최종적으로 $CeCl_3$ 의 색상인 백색으로 바뀌는 것을 확인할 수 있다.

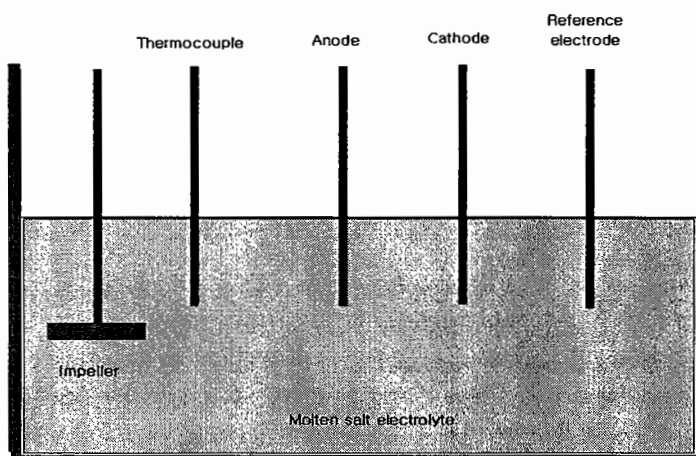


Fig. 1. Experimental set-up for electrolysis.

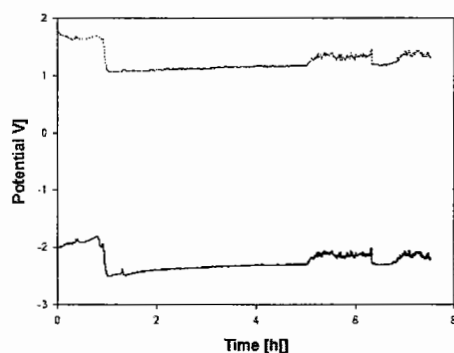


Fig. 2. Potential profiles of the anode (top) and the cathode(bottom)
(current density: $60\text{mA}/\text{cm}^2$)



Fig.3 Color change of salt samples during electrolysis.

공학규모 Pyroprocess 실증시설 예비 기본요건 분석

유길성, 정원명, 구정희, 조일제, 국동학, 권기찬, 이원경, 이은표, 홍동희, 윤지섭, 박성원

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150-1)

yougil@kaeri.re.kr

현재 전 세계 에너지 및 환경문제, 특히 화석연료의 사용으로 인한 지구 온난화 문제 등으로 원자력 에너지에 대한 국제적 관심이 점차 높아가고 있으며, 특히 지속가능 발전을 위한 에너지의 장기공급 문제에는 원자력이 가장 적합하다는 공감대가 전 세계적으로 형성되어 가고 있다. 그러나 현재와 같은 원자력 발전체계에서는 핵연료 사용의 효율성 및 사용후핵연료의 관리 문제가 원자력의 지속적인 발전 가능성에 가장 큰 장애물이다. 이러한 장애물을 해결하기 위한 연구가 원자력발전국들에서 활발히 진행되고 있으며, 그 해결책의 하나로 원자력발전소에서 타고 나온 사용후핵연료를 처리하여 사용후핵연료 내에 잔존하는 핵연료 물질들을 열중성자로 및 고속로를 이용해 다시 재활용하고, 한편으로는 장주기며 독성이 강한 핵종을 고속로에서 태워 단주기 핵종으로 변환하고 열발생이 많은 단주기 핵종들은 별도 보관/관리함으로서 고준위 및 고발열성 폐기물의 양을 최대한 줄여 방사성폐기물 처분장의 활용도를 획기적으로 높일 수 있는 방안 등이 연구되어 오고 있다.

한국원자력연구원도 이러한 사용후핵연료의 처분효율 제고 및 재활용과 관련하여 1997년부터 Pyroprocess 공정을 개발해 오고 있다. 2001년부터는 약 6년간에 걸쳐 Pyroprocess의 전처리 공정 및 전해환원 공정에 대한 실험실 규모 실증이 가능한 ACPF(Advanced spent fuel Conditioning Process Facility) 핫셀시설을 개발 완료하였다.

향후 Pyroprocess의 상용화를 위해 한국원자력연구원은 2016년까지 약 10톤/년 규모의 공학규모 Pyroprocess 실증시설을 건설하고 이를 기초로 2025년까지 100톤/년 규모의 Pyroprocess 원형시설을 건설하여 여기서 나온 우라늄 및 TRU 물질을 이용해 2030년까지 개발 예정인 소듐냉각고속로에 초기노심 핵연료를 제작, 공급 할 계획으로 있다.

본 연구에서는 10톤/년 공학규모 Pyroprocess 실증시설에 대한 개념설계를 위해 이 시설의 전반에 걸친 기본되는 설계요건들을 예비 분석해 보았다.

공기 유량의 시간 변화에 따른 U_3O_8 타원입자에 대한 거동 특성 해석

김영환, 정재후, 이효직, 박병석, 윤지섭
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
yhkim3@kaeri.re.kr

Abstract

ACP(Advanced Spent Fuel Conditioning Process)의 금속전환로에 U_3O_8 을 공급하기 위하여 20 kgHM/batch의 UO_2 펠릿(pellets)을 처리할 수 있는 건식분말화 장치가 개발되고 있다. 건식분말화 장치는 500 °C 온도에서 공기를 공급하여 일정한 입도범위의 균질한 U_3O_8 을 만든다. 이런 건식 분말화 장치의 효율을 높이기 위해서는 반응로에 불어 넣어주는 공기의 유량을 증가시킬 필요가 있다. 하지만 공기와 반응하여 생성되는 U_3O_8 입자는 그 크기가 최소 3 μm 정도로 매우 미세하여, 반응로 출구를 통해 외부로 빠져나갈 가능성이 있다. 이를 방지하기 위해 분말화 장치 출구 바깥에는 필터가 설치되어 있으나 공기와 함께 U_3O_8 입자가 계속해서 빠져나갈 경우 입자로 인해 필터가 막혀 제 기능을 할 수 없게 된다. 따라서 건식 분말화 장치는 미세한 U_3O_8 입자가 반응로 밖으로 빠져나가지 않도록 입구에서의 공기 유량을 일정 수준 이하로 조절해주는 것이 필요하다. 이 연구의 목적은 초기 유량으로부터 유량을 점점 증가시키면서 시간변화에 따른 입자 거동 특성을 해석하며, 결과로부터 주어진 크기의 타원입자에 대해 최대 허용 공기 유량을 결정하고자 한다. 이 해석을 위해 유동과 입자를 동시에 해석할 수 있는 ANSYS-CFX 5.7.1과 ANSYS-CFX 10.0 두 가지의 소프트웨어가 사용되었다. 해석 결과를 바탕으로 좀더 정확한 유량 한계치 계산을 위해 추가로 수행되어야 할 해석에 대해 제안하였다.

1. 구형이 아닌 입자에 대한 적용

입자가 연속체 속을 지난다고 생각할 때, 입자의 가속에 영향을 주는 외부에서 가해지는 힘은 입자와 유체의 속도 차이 그리고 입자에 의한 유체의 변형에 의해 발생한다. 그러한 입자의 거동 방정식은 Basset, Boussinesq, 그리고 Oseen에 의해 유도되었다. 구형이 아닌 입자에 대한 drag force는 입자의 거동 방정식의 첫 번째 항에 cross sectional area factor가 곱해진 값으로 표시된다. 이 factor는 열전달이나 물질전달 상관식에서 사용되는 surface area factor와 유사하다. 식 1은 구형이 아닌 입자에 적용되는 equivalent diameter 이다. 여기서 m_p 는 입자의 질량, d 는 입자의 지름, ρ 는 밀도, ρ_p 는 입자를 뜻한다.

$$d = \left(\frac{6m_p}{\pi\rho_p} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (1)$$

2. 지름 3 μm 타원형 입자에 대한 transient 해석 결과

가장 크기가 작은 3 μm 의 타원형 입자에 대한 transient 해석을 수행하였다. 해석은 초기 공기 유량을 0 kg/s에서 0.0018 kg/s까지 100초 동안 천천히 증가시키는 조건을 적용하였다. 이전 연구의 steady 해석에서와 마찬가지로 1초 동안 입구에서 공기와 함께 반응로 내로 삼입되는 U_3O_8 입자의 개수는 10개이다. 해석 결과는 1초마다 추출하여, 유량 허용치를 계산하는데 사용하였다. 그림 1~그림 6은 3 μm 타원형 입자에 대한 transient 해석 결과이다. 그림 1~그림 3에서 볼 수 있듯이, 입구에서의 공기 유량이 적은 해석 초기에는 입자들이 입구 근처에서 더 이상 상승하지 못한다. 하지만 유량을 증가시키기에 따라 입자는 점점 상승하여, 해석시간 91초(입구 공기 유량 = 0.001638 kg/s)에는 출구에 거의 다다르며, 해석시간 92초(입구 공기 유량 = 0.001656 kg/s)에는 입자가 반응로 출구 밖으로 빠져나가는 것을 그림에서 확인할 수 있다. 해석시간 91~92초에서 입자가 빠져나가기 시작했다고 해서, 그 시점을 한계유량으로 파악하기 힘들다. 이유는 처음 빠져나가기 시작한 입자가 반응로 내를 이동해 온 시간을 고려해야 하기 때문이다. 처음 빠져나간 시점에서의 입자가 그 지점까지 이동하는데 걸린 시간은 10초 정도이다.

입자에 비해, 공기의 속도가 더 빠른 것을 고려할 때, 입자가 빠져나가는 시점에서 출구에서의 공기는 입자가 입구에서 삽입될 때와 같이 들어온 공기보다 더 이후에 반응로 내로 유입된 공기일 것이다. 여기서 입자가 출구로 빠져나가는 시점에 입자에 영향을 주는 공기는 입자가 삽입된 지 2초 후의 공기라고 결론지었다. 따라서 입자가 삽입된 후 2초 후의 공기유량이 이 입자에 대한 유량 한계치라고 볼 수 있다. 그 값은 해석시간 84초 일 때이며, 공기유량이 0.001512 kg/s 일 때이다. 이 값은 근사치이며, 공기의 유량이 시간에 따라 계속해서 증가하는 것을 고려할 때, 유량 한계치는 미세하게 더 큰 값을 가진다고 볼 수 있다.

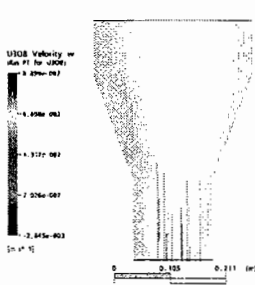


그림 1 해석시간 30초(입구 공기 유량 = 0.00054 kg/s) 때 입자의 거동특성

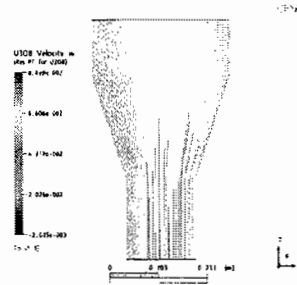


그림 2 해석시간 50초(입구 공기 유량 = 0.0009 kg/s) 때 입자의 거동특성

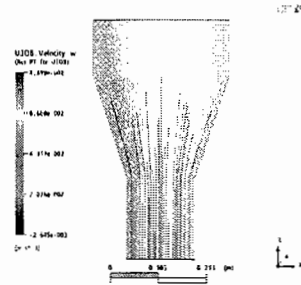


그림 3 해석시간 70초(입구 공기 유량 = 0.00126 kg/s) 때 입자의 거동특성

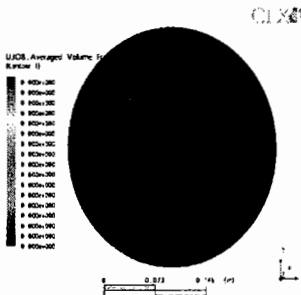


그림 4 해석시간 91초(입구 공기 유량 = 0.001638 kg/s) 때 출구에서의 입자 volume fraction

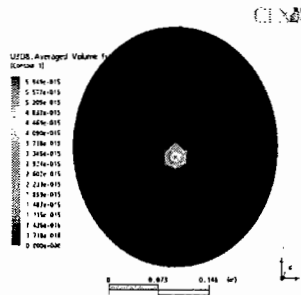


그림 5 해석시간 92초(입구 공기 유량 = 0.001656 kg/s) 때 출구에서의 입자 volume fraction

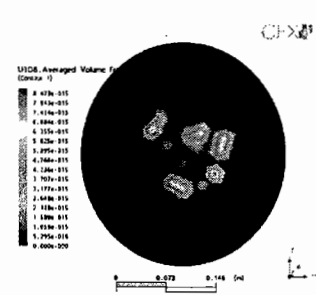


그림 6 해석시간 100초(입구 공기 유량 = 0.0018 kg/s) 때 출구에서의 입자 volume fraction

결 과

3 μm 인 타원형 U_3O_8 입자의 시간변화에 대해 각각 transient 해석을 수행하였다. 해석결과와 입자거동특성을 분석하여, 입자가 vol-oxidizer 반응로 바깥으로 빠져나가지 않을 유량 한계치의 범위를 도출하였다. 타원형 입자에 대한 이전의 steady state 해석 결과, 3 μm 입자에 대한 유량 허용치는 0.0015 kg/s 0.00155 kg/s 범위 안에 있는 것으로 예측되었다. transient 해석 결과, 유량 허용치는 0.001512 kg/s 이므로, 이 범위 안에 들며, steady 해석 결과와 잘 일치한다고 볼 수 있다. 시간에 따른 공기 유량 증가에 의한 약간의 증가분을 고려한다고 해도, steady 해석에서 예측된 결과에서 벗어나지 않을 것으로 보인다. 또한 그 값은 steady 해석에서 예측한 유량 한계치 범위 내에서 결정되었으며, 따라서 steady 해석과 transient 해석 사이의 결과 타당성이 존재한다고 볼 수 있다. 추가적으로 반응로 내에서의 유량 한계치를 좀 더 정확히 예측하기 위해서는 하나의 입자 크기에 대한 해석이 아닌 다양한 크기의 입자가 존재하고, 각 입자가 실제 실험 조건과 같은 개수 밀도 분포를 가지는 조건하에서의 해석이 수행되어야 할 것이다.

모사 피복관을 이용한 탈피복 시험

정재후, 박병석, 김영환, 윤지섭, 홍동희, 황정식
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

nihjeong@kaeri.re.kr

1. 서 론

탈피복 시험은 실제의 사용후핵연료(Nuclear Spent Fuel)를 사용하여 사용후핵연료 차세대관리공정시설(ACPF : Advanced Spent Fuel Conditioning Process Facility) 내에 설치된 실증용 탈피복 장치로 시험을 수행하여야 하나, 이는 현실적으로 불가능한 일이다. 그래서 사용후핵연료와 유사한 값을 가진 모사 피복관을 제조하여 시험을 수행한다. 이러한 시험을 수행하기 위하여 온도별(340, 380, 450, 670도)로 예비 모사 피복관을 제조한 후 인장시험을 하고, 시험 결과를 통하여 사용후핵연료의 기계적 성질(인장강도 581 MPa, 항복강도 698 MPa, 연신율 11.2 %)과 유사한 최적의 조건을 도출(물 102 cc, 온도 450도, 105 bar, 15시간 유지) 후, 탈피복 시험에 사용할 모사 피복관 280개(20 kgHM/2 batch 용)를 제조한다. 이는 ACPF 내의 장치를 이용하여 탈피복 시험을 수행한다. 시험결과, 탈피복된 Hull의 시편 및 Blade는 주사전자현미경(SEM : Scanning Electron Microscope)을 통하여 시편의 파단면과 Blade의 내구성(마모, 취성) 등을 분석 및 평가한다.

2. 탈피복 시험

ACPF 내에 설치된 실증용 탈피복 장치와 탈피복 시험에 사용한 지르칼로이 튜브 및 모사 피복관은 그림 1에서와 같다. 시험 방법은 ACPF 내의 장치를 이용하여 모사 피복관으로 부터 Pellet 과 Hull을 분리한다. 분리시 탈피복 속도는 지르칼로이 튜브나 모사 피복관 모두 같은 속도로 하였다. 압출관의 하강 속도는 57초, 상승 속도는 17초로 시험을 수행하였으며, 행정 길이는 172 mm 이다. 탈피복 시험에 사용한 피복관은 135개(20 kgHM/batch)로 135회 시험을 수행하였다.

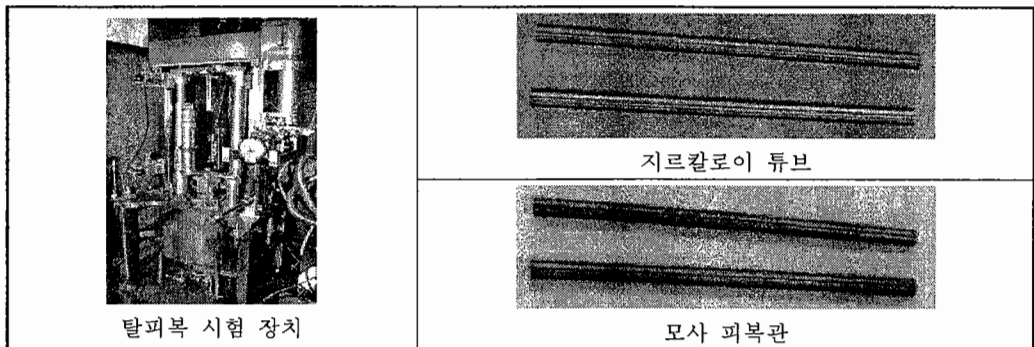


그림 1. 실증용 탈피복 시험 장치 및 지르칼로이 튜브/모사 피복관.

3. 탈피복 시험 결과

3.1 탈피복 후 Hull의 모습 및 Hull 파단면 관찰

ACPF 내에 설치된 실증용 탈피복 장치를 이용하여 지르칼로이 튜브와 모사 피복관의 탈피복 시험을 하였으며, 그림 2는 탈피복 후의 지르칼로이 튜브 및 모사 피복관의 모습과 파단면을 나타낸 것이다. Hull의 파단면을 관찰하기 위해 SEM을 사용하였고, 모델은 Philips XL-30W 이며, 파단면의 배율은 1,000x 배로 촬영하였다. 시험 결과, Hull의 모습은 그림 2에서와 같이 모사 피복관의 파단면이 지르칼로이 튜브의 파단면 보다 더 거칠고, 파단면이 일부 떨어져 나간 것을 볼 수 있다. 이러한 현상은 모사 피복관이 지르칼로이 튜브보다 경도와 취성이 높다는 것을 의미한다.

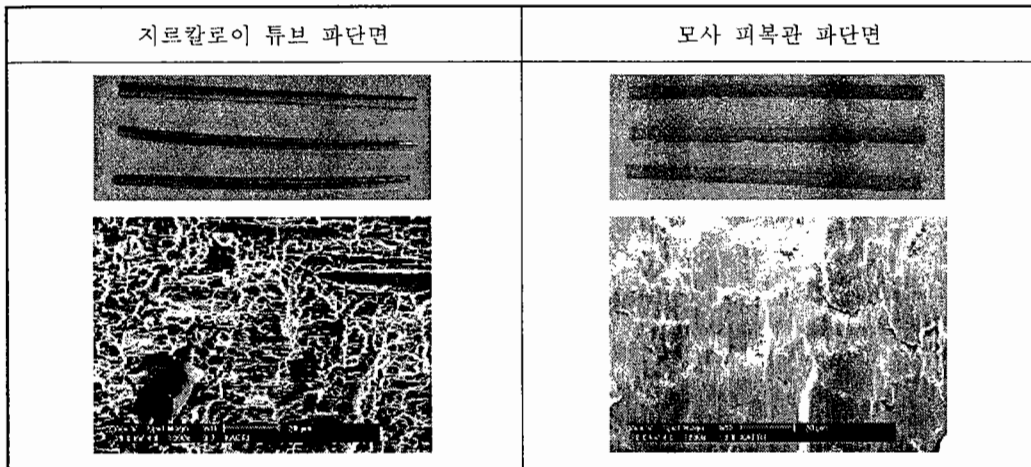


그림 2. 탈피복 후의 Hull 파단면.

3.2 Blade의 내구성(마모, 취성) 평가

지르칼로이 튜브 및 모사 피복관을 시험한 후 Blade에 대한 내구성(마모, 취성 등) 평가를 각각 하였다. 평가에 사용된 연료봉은 지르칼로이 튜브와 모사 피복관 10개를 사용하여 시험을 수행하였다. 그림 3은 지르칼로이 튜브 및 모사 피복관을 탈피복 한 후, 마모된 Blade 면을 각각 관찰하기 위하여 SEM을 촬영한 것이다. Blade 관찰 결과, 모사 피복관을 탈피복한 Blade가 지르칼로이 튜브를 탈피복 Blade 보다 내구성(마모, 취성 등)이 좋지 않다는 것을 알 수 있었다.

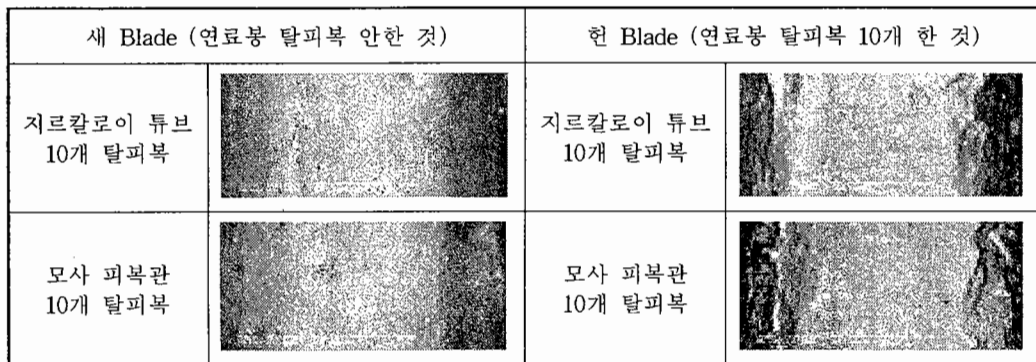


그림 3. 탈피복 후 마모된 Blade의 SEM (500x).

4. 결론

실증용 탈피복 장치는 건식 분말화 공정 장치에 필요한 UO_2 펠릿을 공급하기 위한 장치이며, 연료봉을 Blade module 속으로 밀어 넣어 연료봉의 옆면을 3개의 조각으로 찢어내는 장치를 제작하여 ACPF 내에 설치하였다. 본 연구에서의 모사 시험을 위하여 온도별(340, 380, 450, 670도)로 예비 모사 피복관을 제조한 후 인장시험을 수행하였다. 시험 결과를 통한 사용후핵연료봉의 기계적 성질(인장강도 581 MPa, 항복강도 698 MPa, 연신율 11.2 %)과 유사한 최적의 조건을 도출(물 102 cc, 온도 450도, 105 bar, 15시간 유지) 한 후, 모사 시험에 사용할 모사 피복관 280개(20 kgHM/2 batch 용)를 제조하였다. 제조한 모사 피복관은 ACPF 내에서 실증용 탈피복 장치를 이용한 탈피복 시험을 수행하였다. 시험결과, 탈피복된 Hull의 시편과 Blade를 각각 SEM 촬영을 통하여 시편의 파단면과 Blade의 내구성(마모, 취성)을 종합 분석 및 평가하였다. 이러한 일련의 탈피복 시험은 향후 High throughput(대용량) 탈피복 장치의 Scale-up 데이터 생산에 기본 자료로 활용될 것이다.

PYRO MOCK-UP 시설 구조적 안전성 해석

권기찬, 이은표, 정원명, 구정희, 이원경, 조일제, 국동학, 유길성, 윤지섭

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

kiechankwon@kaeri.re.kr

한국원자력연구원에서는 핵비확산성 사용후핵연료 건식처리기술인 파이로공정(pyroprocess)의 실증을 위한 Pyro Mock-up 시설(PMF)을 개발하고 있다. 현재 개념설계 단계에 있으며, 구조적 측면에서 PMF를 구축할 연구원 내의 후보부지에 대한 구조적 안전성 평가와 함께 PMF 자체의 구조적 개념에 대한 설계가 진행되고 있다. PMF는 크게 공기분위기 셀과 아르곤분위기의 셀로 구성된다. 아르곤분위기 셀에는 공정장치들의 대부분이 위치하게 되며, 이를 조작하기 위한 크레인, 고하중 조작기, 원격 조작기, 차폐창 등과 같은 설비들이 설치된다. 따라서 PMF를 철골구조물로 설계하는 경우 셀 내부 압력조건 및 설비하중에 의한 구조적 변형이 발생한다. 본 논문에서는 아르곤분위기 셀의 구조적 안전성에 대한 유한요소해석 결과를 제시한다.

유한요소해석 모델은 Fig. 1과 같으며, 이는 현재 고려중인 아르곤분위기 셀의 철골구조 설계에 기초하였다. 전체적으로 H-형강(200×200×8×12)에 의해 구조가 지지되며, H-형강 사이에 L-형강(50×50×6)을 추가적으로 설치한다. 셀 내부는 두께 6 mm의 스테인레스강 재료의 라이너로 처리된다. H-형강과 L-형강은 빔(beam) 요소를 사용해 모델링하였으며, 내부 라이너는 쉘(shell) 요소로 모델링하였다. 그리고 각 부재의 접합부는 서로 고정된 것으로 모델링하였다. 아르곤분위기 셀의 압력조건이 $-8 \sim +2 \text{ inH}_2\text{O}$ 이므로, 이 값을 분포하중으로 라이너 표면에 적용하였다. 기계설비들은 측면의 H-형강에 주로 설치되며, 설비 중 구조변형에 가장 영향을 주는 크레인의 하중을 추가적으로 적용하였다. 크레인의 용량과 크레인의 자중을 고려해 5 ton의 하중을 적용하였다.

그

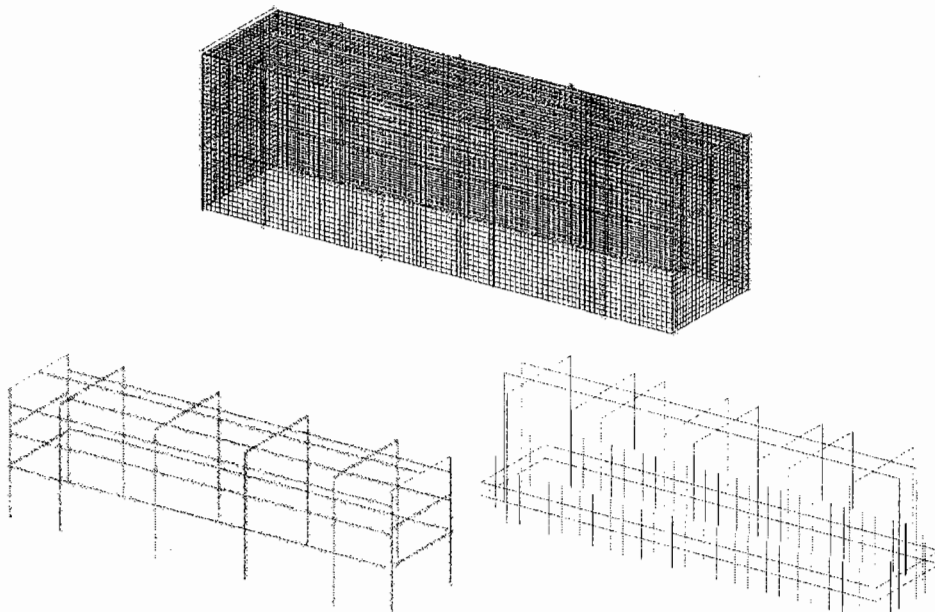


Fig. 1 Finite element model

리고 셀 바닥의 절점들은 고정된 것으로 가정하였다. 유한요소해석을 위해 상용코드 ABAQUS를 사용하였으며, 재료거동은 선형탄성을 가정하고 정적해석을 수행하였다.

Fig. 2와 Fig. 3은 셀 내부에 8 inH₂O의 부압이 걸리고 크레인에 의한 하중 5 ton이 작용하는 경우에 대한 변위 분포와 von-Mises 응력 분포를 보여준다. 최대 변위는 상부 라이너에서 발생하며, 그 값은 21 mm로 우려할 만한 변형은 발생하지 않는다. 또한 H-형강과 L-형강에서 발생하는 최대 변위는 각각 4 mm와 15 mm이다. 따라서 H-형강이 지지하는 부분은 변형의 거의 발생하지 않음을 알 수 있다. 최대 응력은 48 MPa로 역시 상부의 라이너에서 국부적으로 발생하며, H-형강과 L-형강 부재에서 발생하는 최대 응력은 각각 37 MPa와 31 MPa이다. Table 1에는 셀 내부에 8 inH₂O의 부압 및 2 inH₂O의 양압이 걸리는 경우들에 대해 해석결과를 수록하였다. 일반적으로 탄소강이나 스테인레스강의 항복응력이 200 MPa 정도임을 고려하면, 구조물 부재에서 발생하는 최대 응력이 항복응력보다 현저히 적으므로 PMF의 철골구조 설계는 구조적 안전성을 가지고 있다고 평가된다.

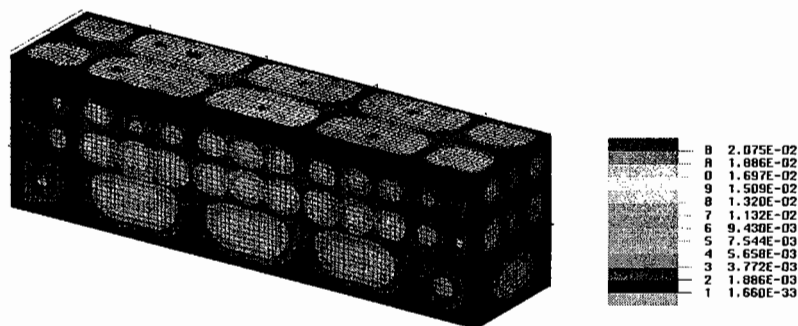


Fig. 2 Displacement result of finite element analysis

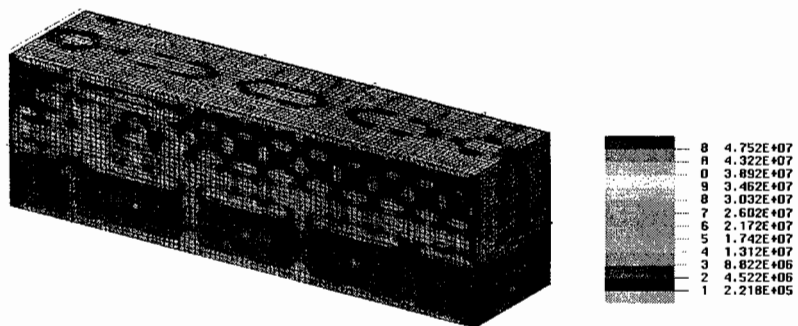


Fig. 3 von-Mises stress result of finite element analysis

Table 1 Maximum displacement and stress

Cell pressure	Liner		H-beam		L-beam	
	Disp.	Stress	Disp.	Stress	Disp.	Stress
+8 inH ₂ O	21 mm	48 MPa	4 mm	37 MPa	15 mm	31 MPa
-2 inH ₂ O	5 mm	25 MPa	2 mm	27 MPa	4 mm	25 MPa

그래픽 시뮬레이션을 통한 탈피복 장치의 유지보수 검증

김성현, 박희성, 최창환, 이효직, 정재후, 박병석, 윤지섭

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

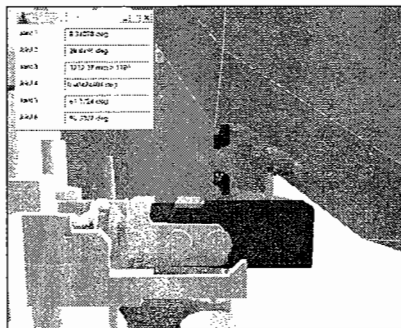
hyun@kaeri.re.kr

1. 서론

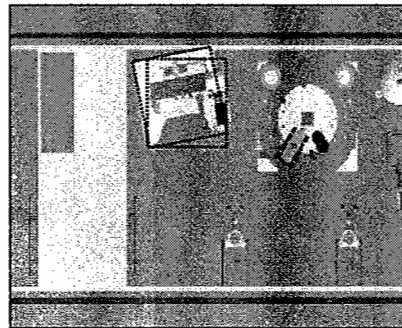
한국원자력연구소에서는 효율적이고 안전하게 사용후핵연료의 처리방안을 마련하고자 사용후핵연료를 재활용할 수 있는 사용후핵연료 차세대관리종합공정(Advanced spent fuel Conditioning Process, ACP) 기술을 개발하고 있다. 이 공정은 핫셀에서 실증하기 위해 사용후핵연료 차세대관리종합공정 실증시설(Advanced Spent Fuel Conditioning Process Facility, ACPF)을 건설하여 시운전을 수행하고 있다. 본 연구에서는 ACP에 대한 디지털복합(digital mock-up)을 구축하고 핫셀이라는 격리된 공간에서의 원격운전, 유지/보수 및 핵물질 운반을 디지털복합을 이용하여 다양한 검증작업을 수행하였다. 특히, 공정장치의 유지보수성에 대한 절차를 수립하였으며 시뮬레이션을 수행한 결과를 바탕으로 실제 유지보수 작업을 수행한 결과를 비교하여 최적의 절차를 수립하였다.

2. 유지보수 절차에 대한 시뮬레이션 및 수행 결과

핫셀 안에 설치되는 장치들은 고장 시에 유지보수를 고려하여 설계/제작된다. 선정된 유지보수 대상의 모듈에 대해서 인양 고리, 간섭문제, 장비 접근, 취급 장비의 모듈중량 등을 고려된다. 3차원 그래픽 모델링은 시뮬레이션을 고려하여 장치들의 구조, 기능 및 동작을 파악하고, 장치가 그 동작할 수 있도록 모델에 기구학을 부여한다. 탈피복장치의 유지보수 작업에 필요한 유지보수 장비인 크레인과 원격조정기, 탈피복장치를 모델링하여 가상핫셀에 배치를 하였다. 예상되는 탈피복장치의 유지보수작업은 리미트 스위치, 압출 핀, 모터 모듈 및 블레이드 모듈 교환이다. 각 유지보수 작업에 대한 절차에 따라 시나리오를 수립하여 그 절차가 구현되도록 프로그램을 작성하였다. 시뮬레이션 구현을 위해서는 원격조정기가 작업영역 안에서 동작할 수 있도록 작업 경로가 설정되어야 한다. 이러한 작업경로를 확인하면서 경로를 설정하고 프로그램을 구성하여 시뮬레이션을 구현하였다. 그림 1과 2는 4가지 작업 중에 모터 모듈을 교환하는 유지보수작업이며, 그림 1은 원격조정기를 이용한 유지보수작업과 그림 2는 원격조정기와 크레인을 사용한 유지보수 작업에 대한 시뮬레이션이다. 그림 1의 a에서 보는 바와 같이 원격조정기가 정상적인 위치에서 장치의 유지보수작업을 수행할 때에 작업영역을 벗어남을 볼 수 있다. 이를 개선하기 위해서는 b와 같은 위치로 장치의 위치를 변경함으로써 작업을 수행할 수 있었다.



a) the unreachable position of the manipulator



b) the movement of the slitting machine

Fig 1. Analysis of maintenance for the slitting machine.

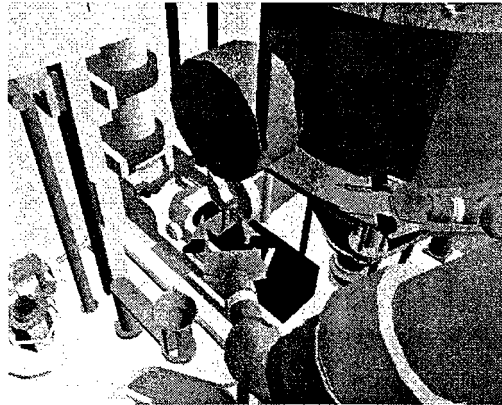


Fig 2. Simulation of maintenance for exchanging the motor using the crane.

탈피복장치의 4가지 유지보수 작업 중에 모터모듈을 제외한 3가지 작업은 시뮬레이션 결과는 탈피복장치의 이동과 관련 없이 모든 작업이 가능하였다. 모터 모듈의 교환하는 작업은 그림 1과 2와 같이 시뮬레이션을 수행할 수 있었으며 실제 작업과 비교하여 보았다. 실제 작업에서는 그림 1과 같이 작업을 하였을 때 매니퓰레이터의 조작은 매우 힘들었다. 그림 2와 같은 작업절차에는 장치의 개선사항을 도출하여 장치를 수정하여 작업을 수행하였다. 이 유지보수 작업은 전자의 절차와 비교해서 후자의 절차가 작업시간을 단축할 수 있었다. 이와 같이 작업 절차에 따른 작업의 난이도와 작업시간의 차이가 상존하기 때문에 이에 대한 검증작업으로 최적의 유지보수 절차를 수립하였다.

3. 결론

핫셀내에서 탈피복장치의 원격운전/유지보수 절차를 위한 가상환경을 구축하였고, 유지보수 절차에 대한 여러 시나리오를 검토하고 그 절차를 시뮬레이션으로 구현하였다. 구현된 유지보수 절차를 따라 실제 실험을 수행하였다. 따라서, 여러 가지 수행 절차에 대한 작업의 난이도와 작업 시간을 평가하여 최적의 유지절차를 확립할 수 있었다.

전산모사에 의한 중성자 카운터의 효율 평가

주준식, 박광준, 신희성, 강희영, 김호동

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

nisiu@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 취급시설에서 핵물질 계량은 안전조치 측면에서 볼 때 필수적이며, 여러 가지 측정방법이 사용되고 있다. 습식재처리를 하는 경우, 핵물질 계량 방법은 중성자측정, 감마선분광분석, 열량측정, K-Edge/K-XRF 등 측정할 수 있는 비파괴적인 방법이 다양하다. 그러나 pyro 공정에서의 핵물질 계량은 습식재처리 공정에서의 핵물질 계량 방법을 그대로 활용할 수가 없다. 그 이유는 습식공정에서는 거의 모든 핵분열 생성물이 제거되지만 pyro 공정에서는 일부 감마선을 방출하는 핵분열 생성물이 잔존하기 때문이다. 이러한 핵분열 생성물이 존재하기 때문에 감마선분광분석법 및 중성자 측정법에 의한 핵물질 계량에 걸림돌이 되고 있다. 본 연구에서는 pyro공정 핵물질 계량을 위한 전단계로서, 소량의 디스크형 조사후 핵연료시편에 대한 핵특성을 분석하기 위해서 감마/중성자 통합 측정시스템을 설계하였다.

2. 기본 모델 설정 및 효율 평가

본 감마/중성자 통합 측정장치는 방사선 준위가 높은 사용후핵연료를 취급하기 때문에 차폐형 글로브 박스내에 설치된다. 기존의 글로브박스에 측정장치를 설치해야만 하는 입장이므로 통합 측정장치의 크기에 제한을 받게 된다. 따라서 이러한 장치의 크기가 작으면 작을수록 시편 인입/배출 작업이 용이하게 되지만 측정효율이 떨어지는 단점도 상존한다.

가. 기본 모델 설정

중성자 측정장치 부분의 구성은 중성자 감속재, 감마선 차폐체, He-3 검출기, 외부 덮개 등으로 구성된다. 제한된 공간내에서 최대의 측정효율을 얻기 위해서 그림1과 같은 기본 모델을 설정하였는데, 이는 최적의 감속재 두께, 감마선 차폐 등을 고려하여 설정하게 되었다. 이 기본 모델에서 검출기 길이는 현재 보유하고 있는 검출기 (직경 1인치, 길이 30.3 cm) 길이를 근거로 하여 구조물의 모델을 결정하였는데, 이 높이로 하였을 때 차폐형 글로브박스 내부에서 측정 장치의 높이가 핵연료 시편을 원격으로 취급하기에는 상대적으로 높기 때문에 어려움이 있게 된다. 따라서 검출기 길이가 절반 정도 되는 검출기 구입을 예상하여 측정 장치의 높이를 절반으로 낮추는 경우도 고려하였다.

나. 효율 평가

중성자 카운터에 대한 검출효율 평가는 MCNPX 코드를 이용하여 위의 두 가지 모델에 대하여 수행하였으며, 그 결과는 표1과 같다. 표에서 보는바와 같이 검출기 길이를 30.3cm 로 한 중성자 카운터의 구조물에 대해서는 16.6%, 그리고 15.4cm 길이의 검출기를 갖는 구조물에서는 10.7%의 검출효율을 갖는 것으로 나타났다.

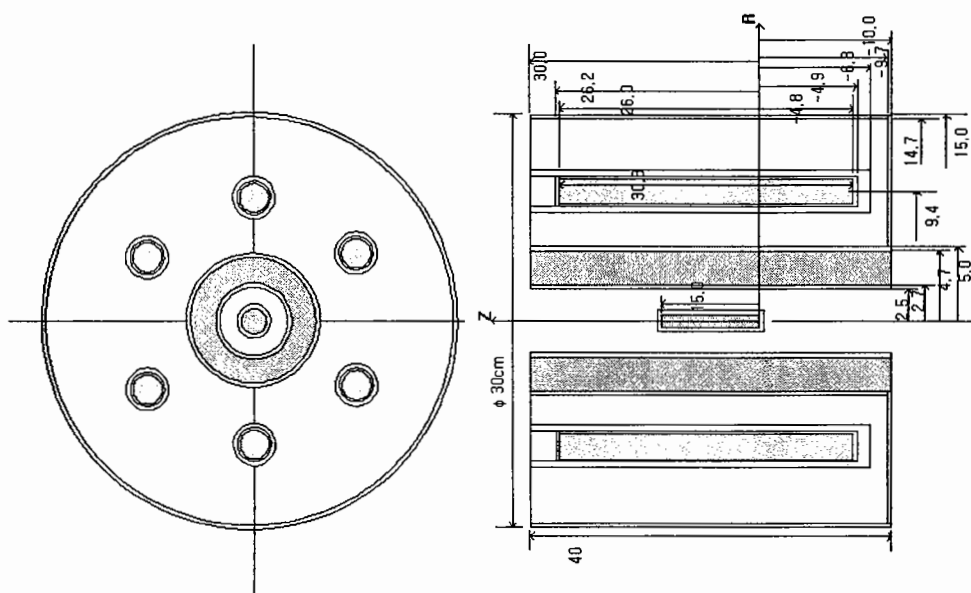


그림1. He-3 검출기 길이를 30.3cm로 선정한 경우의 중성자 카운터 구조물의 기본 모델

표1. He-3 검출기 길이/구조물 치수 변화에 따른 효율평가 결과 (MCNPX 코드 계산)

He-3검출기 크기 길이,cm 직경,cm		He-3기체압력	중성자 감속재	검출기 홀 반경	효율, %
30.3	2.54	4기압	HDPE	1.45cm	16.5
15.4	2.54	4기압	HDPE	1.45cm	10.7

3. 결론

소량의 사용후핵연료 디스크형 시편에 대한 핵특성 분석장치를 구축하기 위하여 중성자 카운터의 기본 모델을 설정하고, 검출 효율을 MCNPX 코드로 평가하였다. 평가결과, He-3 검출기의 길이가 30.3 cm (직경 1인치)인 경우, 16.5%로 계산되었으며, 또한 중성자 감속재, 감마선 차폐체 등의 높이를 절반으로 줄이고, 검출기 길이를 15.4 cm (직경 1인치)로 할 때, 10.7%의 효율을 갖는 것으로 계산되었다. 중성자 카운터가 제한된 공간의 차폐형 글로브박스 내에 설치되어야 하므로 어느 모델을 선택할 것인가는 이러한 중성자 검출효율과 사용후핵연료 시편의 원격조정 용이성 등을 고려하여 차후에 결정할 것이다.

탄산용액 계를 사용하는 산화용해-침전 조합 기술에 의한 SF로부터 U의 분리 공정에서 탄산염의 전해적 회수/순환 기술 개발

김광욱, 김연화, 김성민, 임재관, 이일희

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)

nkwkim@kaeri.re.kr

1. 개요

최근에 종래의 SF 용해와는 다르게 상온 탄산염 계를 사용하여 SF의 산화 용해가 가능함을 제시하고 이후 용매추출법이 아닌 침전법을 사용하여 Pu은 단독으로 분리가 되지 않으면서 U과 TRU 핵종을 FP 핵종으로부터 고순도 분리에 대한 가능성에 관한 연구가 제시되고 있고 있으며 [1], 2003년 미국 LANL도 AFCI comparison 보고서에서는 냉각 결정화에 의한 침전법을 사용하는 습식 공정이 핵확산 저항성 및 폐기물 발생 측면에서 다른 용매추출을 사용하는 습식 공정에 비하여 높은 장점이 있음을 보고하였다. 본 연구실에서는 Fig.1에서와 같이 높은 알칼리 탄산염 매질에서의 SF 용해 및 침전 기술의 조합을 사용하여, SF의 대부분을 차지하는 U만을 선택적으로 분리하여 C-class화함으로써, 고준위 폐기물 처분장 능을 증대시킬 수 있고, 핵확산저항성과 친환경적성을 동시에 가지는 한국 실정에 적합한 습식공정 개발의 가능성을 제시하였다. 여기에서는 높은 pH 탄산 용액계에서 U과 TRU 핵종의 산화 전위차 및 용해도 특성을 이용하여 U만을 탄산용액에 용해시키고 TRU와 거의 대부분의 FP는 혼합 침전물로 분리하며, 이후 U과 같이 일부 용해된 불순물 핵종(Cs, Tc, Mo)을 U으로부터 분리하기 위하여 U과 선택적 흡착을 하는 amidoxime을 통한 U만을 분리한 후 pH를 조정에 의하여 U을 고순도로 침전 분리한다. 이때 공정에서 사용된 탄산염 및 무기산 용액은 온 전부 회수/순환시켜 2차 폐기물의 발생이 거의 없도록 한다. 이러한 공정에서는 Pu와 MA 핵종은 어떠한 경우도 단독으로 분리될 수 없으며 기술적으로도 PUREX, UREX등과 유사성이 없어 개발 기술이 높은 핵확산저항성을 가지며 또한 OH⁻를 이용한 침전법 및 전해 탄산염 순환 기술을 사용하여 환경친화성 및 조업안전성을 가지게 된다.

본 연구에서는 Fig.1의 공정에서 U이 분리된 후 불순물 금속이온(Mo, Tc 등)을 함유한 탄산염 용액을 salt-free의 전해적인 방법에 의한 공정 내에서 회수/순환시키기 위한 방법이 연구되었다.

2. 실험 방법

본 연구에서 사용된 전해 탄산염 회수 장치에서는 Fig.2에서와 같이 양이온 교환막인 Nafion 424를 갖는 분리막 전해 반응기와 CO₂ 흡수탑을 연결하여 사용하였으며, 탄산용액으로는 소량의 Mo, Re (Tc 대용물질), Mo 및 Cs를 함유한 0.5 M Na₂CO₃ 용액을 사용하였다. 양극과 음극에서 발생하는 물 분해 반응에 의해 양극방으로 주입되는 탄산용액은 산성화 되면서 CO₂ 가스를 방출되고, 이 CO₂ 가스는 NaOH가 생성되는 음극방과 연결된 CO₂ 흡수탑을 통해 회수되었다. 용액계의 탄산염 농도는 TOC에 의해 분석되었으며, 금속 이온은 ICP를 통해 분석되었다.

3. 결과 및 고찰

Fig.3에 전해 반응기에 의한 탄산염 회수 특성을 보이는 대표적인 결과를 보인다. 탄산용액을 가지는 양극방의 pH는 초기 11.5를 보이나 용액이 물 분해 반응에 의해 산성화되면서 전형적인 탄산염 적정 곡선과 같이 2개의 변곡점을 가지며 pH 1정도까지 변화되었고, 약 pH 7 이하에서부터 이때 용액중의 탄산염은 99% 이상 CO₂로 탈기 되었다. 한편 음극방에서는 양극방으로부터 전해 영동에 의해 이동된 Na⁺ 이온과 물 분해 반응에 의해 pH가 거의 14를 가지는 알칼리 용액이 생성되고 이 용액이 CO₂ 흡수탑으로 순환되면서 양극방에서 발생된 CO₂를 CO₃²⁻로 변환시키며

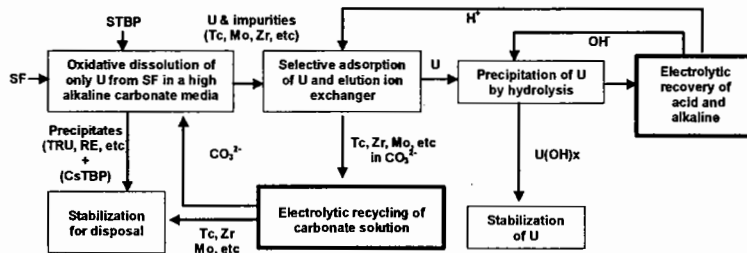


Fig.1 Conceptual diagram of a process to recover only U from a nuclear spent fuel by an oxidative dissolution of U in a strong alkaline carbonate media.

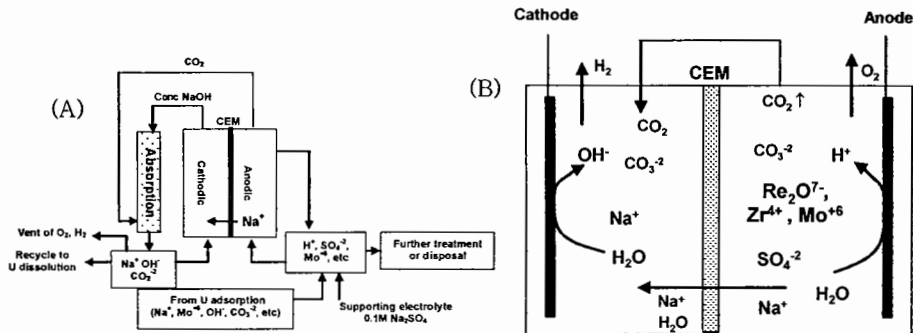


Fig.2 Experimental apparatus diagram (A) for an electrolytic de-carbonation and recycling of a sodium carbonate salt and electrolytic reaction mechanism in the cell (B).

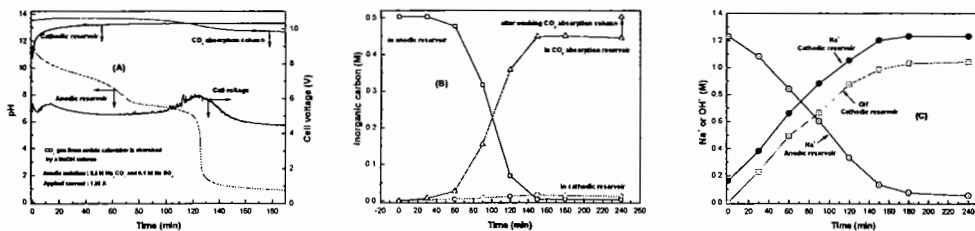


Fig.3 Changes of pH and its cell voltage (A), of inorganic carbon concentrations (B), and of sodium and hydroxyl ions in a system with an independent CO₂ absorption column and with using an anodic solution of 0.5 M Na₂CO₃ containing 0.1 M Na₂SO₄ and a cathodic solution of 0. M Na₂SO₄ with a change of electrolytic time.

pH가 다소 감소되나, 이후 곧 회복되는 것을 관찰 할 수 있다. 또한 탄산염에 포함된 Na⁺가 이온 교환막을 통과하는 만큼 음극방의 OH⁻농도가 생성됨을 관찰 할 수 있다. 음이온 교환막을 사용하는 경우 Na⁺가 이동을 하지 못하여 탄산염의 회수가 거의 일어나지 않음을 실험적으로 관찰 할 수 있었다. 양이온 교환막을 사용하는 경우 Fig.2와 같은 방법에 의해 금속 이온을 함유하는 탄산 용액에서 금속이온을 분리하며 거의 100% 가깝게 회수 순환을 할 수 있음을 알 수 있었다. 양이온 교환막에서 +1가 금속이온인 Cs⁺은 Na⁺와 같이 음극방으로 이동을 하지만, 나머지 Mo, Re, Zr 등은 음극방으로 전혀 이동을 하지 못한다. 따라서 Fig.1에서 전체 탄산염 회수 단계 전에 Cs를 분리하지 않는 경우는 회수된 탄산염 용액이 U산화 용해 단계로 순환되기 전에 Cs를 제거하는 방법이 추가로 고려되어야 함을 알 수 있었다.

참고문헌

[1] N. Asanuma, M. Harada, Y. Ikeda and H. Tomiyasu, *J. Nucl. Sci. Tech.*, 38, 866 (2001).

탄산염용액에서 우라늄산화물 용해

서희승, 정동용, 김광욱

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)

meotuldosa@hanmail.net

1. 개요

종래의 SF 용해와는 다르게 저온에서 비산성(non-acidic) 탄산염 계를 사용하여 SF의 산화 용해가 가능함을 제시하고 이후 용매추출법이 아닌 침전법을 사용하여 Pu은 단독으로 분리가 되지 않으면서 U과 TRU 핵종을 FP 핵종으로부터 고순도 분리에 대한 가능성이 최근에 제시되고 있다. 또한 2003년 미국 LANL (Los Alamos National Laboratory)도 AFCI comparison 보고서에서 냉각 결정화에 의한 침전법을 사용하는 습식 공정이 핵확산 저항성 및 폐기물 발생 측면에서 다른 용매추출을 사용하는 습식 공정에 비하여 높은 장점이 있음을 보고하였다.[1] 본 연구실에서는 탄산염 매질에서의 SF 용해 및 침전 기술만을 사용하여, SF의 대부분을 차지하는 U만을 선택적으로 분리하여 C-class화합으로써, 고준위 폐기물 처분장 능을 증대시킬 수 있고, 핵확산저항성과 친환경적성을 동시에 가지는 한국 실정에 적합한 습식공정 개발의 가능성을 연구하고 있다. SF의 처리를 위해 제시되는 이러한 기술은 최근에 태동되는 기술이어서 자료도 많지 않은 상태이므로 학문적, 기술적 개발 가치를 갖고 있다. 이러한 공정이 핵확산 저항성을 갖게 하기 위해서는 SF의 용해 시 U만의 선택적 용해와 동시에 기타 핵종은 미용해 또는 침전 혼합상 유지, 처분 부지능 증진 증대를 위해서는 U의 고순도 분리, 그리고 친환경성을 위해서는 폐기물 발생의 최소화라는 기술적 조건이 만족되어야 한다.

따라서 본 연구에서는 기존의 습식 공정에서 사용하는 고온 고농도 질산 매질 하에서 SF를 용해하는 개념 대신, 저온에서 SF로부터 U만을 선택적으로 분리하기 위한 연구의 하나로써 탄산염에서 우라늄산화물의 용해 특성을 살펴보았다. 탄산염에서 U은 U-carbonato complex 형태로 용해되는 데[2], Na_2CO_3 와 NaHCO_3 의 농도에 따른 영향을 알아보고 U이 보다 잘 용해할 수 있는 적합한 pH 범위를 실험을 통하여 알아보았다.

2. 실험 및 결과

실험에 사용된 우라늄산화물은 $\text{UO}_{2.18}$ 과 $\text{UO}_{2.67}$ 분말로서 입자크기는 평균 $5.4 \mu\text{m}$ 와 $7.7 \mu\text{m}$ 였다. 탄산염 용액은 시약급 Na_2CO_3 , NaHCO_3 를 물에 녹여 제조하였다. pH 조절을 위해 10M 짜리 NaOH와 HCl 용액을 사용하였다. 일정한 탄산염 농도와 조정된 pH를 갖는 용액에 우라늄산화물 분말을 첨가한 후 항온진탕기에서 대략 3일간 교반한 후 용액중 우라늄 농도를 Arsenazo III 시약을 사용하는 비색법을 사용하여 분석하였다.

Fig. 1과 Fig.2는 Na_2CO_3 와 NaHCO_3 용액에서 $\text{UO}_{2.18}$ 을 용해시킬 때 pH 증가에 따른 용해도 변화를 나타낸 것이다. 탄산염 농도에 상관없이 대략 pH 7에서 pH 10의 범위에서는 용해도가 크게 변하지 않았으나 pH가 더 증가하는 경우 용해도가 급격히 감소하는 경향을 나타내고 있다. 이때 농도가 급격히 감소하는 pH 값은 탄산염 농도가 클 수록 크게 나타났다. 한편 용해시 우라늄은 아래와 같은 반응에 의해 uranyl carbonate 착물로 용해가 일어나는 것이 일반적인 데[3], 용해된 우라늄 용해액의 UV-스펙트럼을 통해 확인할 수 있었다.(Fig.3)



Fig.4는 0.05M~1.0M NaHCO_3 농도에서 $\text{UO}_{2.18}$ 과 $\text{UO}_{2.67}$ 의 용해정도를 나타낸 것이다. 이때의 용해결과는 용해농도가 거의 변화지 않는 pH 7.5~10.5 범위에서의 값이다. 대체로 O/U 비가 큰

$UO_{2.67}$ 의 용해가 더 잘되는 것을 볼 수 있다. 이는 우라늄산화물에서 U의 산화상태는 $UO_{2.67}$ 의 경우가 $UO_{2.18}$ 보다 높은 경우로 용해시 U의 산화상태가 높을 수 록 용해가 더 잘 되고 있는 것이다. 이는 위의 식(1)에서 보는 바와 같이 U 용해가 3가 산화상태보다 6가의 산화상태에서 더 잘 일어나기 때문으로 생각할 수 있다. 한편 탄산염 농도에 따른 용해정도는 0.5M 이상에서 용해는 더 증가하지 않는 것으로 나타났다.

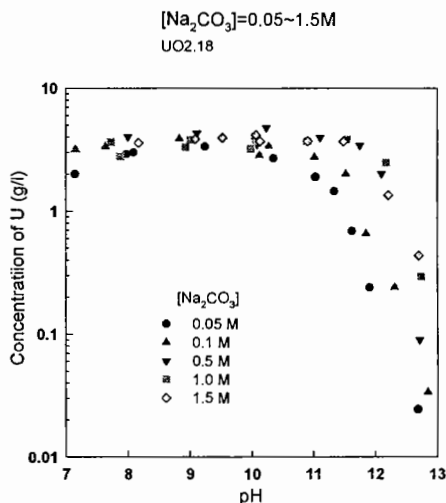


Fig.1 Dissolution of $UO_{2.18}$ with pH in various Na_2CO_3 concentration solution.

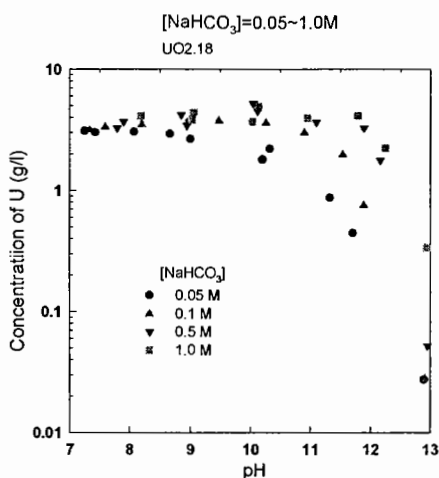


Fig.2 Dissolution of $UO_{2.18}$ with pH in various $NaHCO_3$ concentration solution.

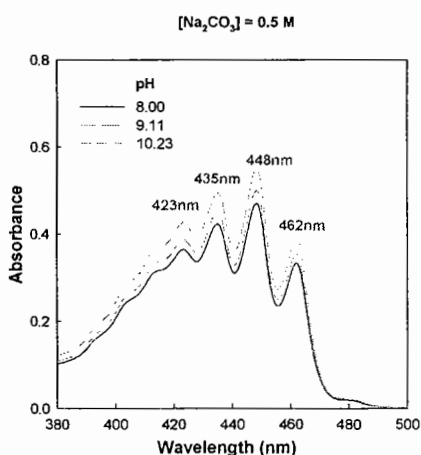


Fig.3 Absorbance spectra of uranyl carbonate complex in $[Na_2CO_3]=0.5M$ solution.

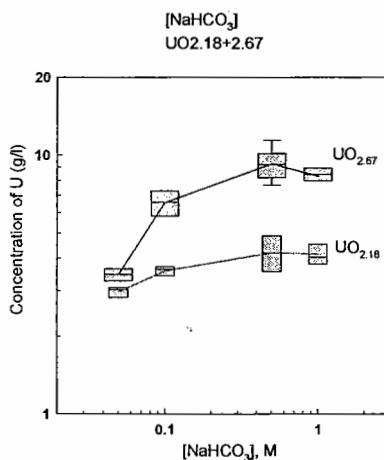


Fig.4 Comparison of the dissolution of $UO_{2.18}$ and $UO_{2.67}$ with various $NaHCO_3$ concentration in the range of pH 7.5~10.5.

3. 결론

본 실험을 통해 탄산염 용액에서 염 농도의 영향과 pH 영향 등을 통하여 우라늄산화물의 용해 특성을 살펴보았다. $UO_2(CO_3)_3^{4-}$ 착물 형태로 용해됨을 스펙트럼 분석을 통하여 확인할 수 있었으

며, 산화물에서 U 산화상태가 높을수록 용해가 더 잘 일어남을 확인할 수 있었다. 또한 탄산염 농도가 0.5M 이상에서 용해는 그다지 증가 하지 않는 결과를 보였다.

참고문헌

- [1] N. Asanuma, M. Harada, Y. Ikeda and H. Tomiyasu, *J. Nucl. Sci. Tech.*, 38, 866 (2001).
- [2] Grenthe, I., Fuger, J., Konings, R. J. M., Lemire, R. J., Muller, A. B., Nguyen-Trung, C., Wanner, H., *Chemical Thermodynamics of Uranium*, NEA-OECD, Eds., North Holland Elsevier Science Publishers B. V., Amsterdam, The Netherlands, (1992).
- [3] D.L. Clark, D.E. Hobart, M.P. Neu, *Chem. Rev.*, 95, 25 (1995).

탄산염 매질에서 Mo의 비산성 저온 용해특성 분석

양한범, 임재관, 정동용, 이일희, 김광욱

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150 번지

nhbyang@kaeri.re.kr

1. 서론

핵확산 저항성을 유지하면서 사용후핵연료(SF)의 효율적인 관리 및 재활용할 수 있는 원자력 에너지의 안정적 공급시스템을 구축과 연관된 분리공정 연구가 진행되고 있으며, 최근에는 고준위 방사성폐기물을 탄산계 매질을 사용하는 비산성 저온 산화용해-침전 분리기술 연구에 대한 관심이 고조되고 있다.[1,2] PWR 사용후 핵연료중에 함유되어 있는 원소와 함량을 ORIGEN 코드로 계산한 자료에 의하면[1], 악티나이드 원소(U, Np, Pu, Am)와 핵분열생성물[알칼리 금속(Cs, Rb), 알칼리 토금속(Sr, Ba), 희토류원소(Y, La, Ce, Pr, Nd, Sm), 백금족원소(Ru, Rh, Pd) 및 기타 전이원소(Zr, Mo, Tc, Te)로 이루어져 있다. 본 연구에서는 핵분열생성물의 탄산계 매질에서의 용해도 특성 연구를 위해 SF중 함량이 비교적 높고(약 0.33 wt%), 산화상태가 다양하며 알칼리매질에서 적절한 용해도 나타내는 몰리브덴을 대상으로 알칼리 탄산염 용액에서 Mo의 저온 산화용해를 실험하고 그 특성을 분석하였다.

2. 실험 및 결과

Mo는 SF중에 합금형태의 금속 침전(metallic precipitate) 형태와 세라믹 형태의 산화물 침전(oxide precipitate) 형태의 혼합 형태로 존재하며, Mo(metal)과 Mo(IV)O₂는 산화제에 의해 Mo(VI)로 산화되어 용해되므로 Mo, Mo(IV)O₂, Mo(VI)O₃ 분말을 대상으로 알칼리 탄산염용액 및 산화제를 사용하여 Mo의 알칼리 탄산염 용액에서 용해특성을 실험하였다. 용해실험은 온도조절이 가능한 배양기를 사용하여 25℃에서 수행하였다. 상용시약으로 실험용으로 구입한 Mo, Mo(IV)O₂, Mo(VI)O₃ 분말을 대상으로 SEM 사진을 측정하여 구한 Mo:O의 비를 보면, Mo는 0.14~0.24, Mo(IV)O₂는 1.88~2.22, Mo(VI)O₃는 2.74~4.17로 분석되었다. Mo 및 Mo(IV)O₂는 일정한 형태의 산화물로 존재하였으나, Mo(VI)O₃는 Mo:O의 비로 볼 때 여러가지 산화상태가 혼재된 혼합 산화물 형태를 보였다. 참고문헌[4]에 의하면 대부분의 6가 몰리브덴 (MoOx) 산화물은 x 값에 따라서 조성비 MoO_{2.75} - MoO₃ 사이에 7가지의 산화상태가 혼합된 화합물이라는 사실이 X-선 분말 분석, 단결정 분석 및 결과 열분석 결과 확인되었다.[4] 용해실험은 1차적으로 탄산염 종류에 대한 Mo의 용해특성을 조사하였다. 농도가 0.1M인 Li₂CO₃, K₂CO₃, (NH₄)₂CO₃ 및 Na₂CO₃ 탄산염용액에 대한 Mo, Mo(IV)O₂, Mo(VI)O₃의 용해도를 측정한 결과, Mo 및 Mo(IV)O₂에 대한 용해도는 Li₂CO₃ < K₂CO₃ < Na₂CO₃ < (NH₄)₂CO₃ 순서로 용해도가 증가하였으며, Mo(VI)O₃에 대한 용해도 K₂CO₃ ≅ Na₂CO₃ < Li₂CO₃ < (NH₄)₂CO₃ 순서로 용해도가 증가하였다. 그리고 Mo의 산화상태에 따라서는 Mo < Mo(IV)O₂ ≪ Mo(VI)O₃ 순서로 용해도가 증가하였다. Mo 용해에 미치는 탄산염 Na₂CO₃ 농도의 영향에 대한 실험은 Na₂CO₃ 농도를 0.2M~2.0M 변화시켰을 때, Mo 및 Mo(IV)O₂의 용해도에 미치는 영향은 크게 나타나지 않았으나, Mo(VI)O₃의 경우에는 Na₂CO₃ 농도가 증가할수록 Mo(VI)O₃ 용해도는 급격하게 증가하였다.

탄산염 0.5M Na₂CO₃ 용액의 pH 변화에 대한 영향을 실험결과, Mo 및 Mo(VI)O₃에 대한 용해도는 pH= 13에서 가장 크게 나타나고, pH=8에서 가장 작게 나타났다. 그리고 pH 10 ~ 11에서 Mo 용해도는 거의 비슷한 결과를 나타내었다. 그리고 Mo(IV)O₂에 대한 용해도의 경우, pH가 8~10일

때 증가하였으며, pH가 11~13일 때 용해도가 감소하였다. 이와 같은 현상은 용해용액의 용해 전 후의 pH 변화현상과 용액의 pH 조절을 위해 사용한 HCl과 NaOH 용액에 의한 외부이온의 영향 및 Na_2CO_3 농도 감소현상으로 설명이 가능하다. 첫 번째는 0.5M Na_2CO_3 용액의 pH를 용해 전 일정하게 조정하여 Mo를 용해한 다음, Mo 용해용액의 pH를 다시 측정한 결과 $\text{Mo(VI)O}_3 \gg \text{Mo(IV)O}_2 < \text{Mo}$ 순서로 pH가 낮아졌음을 알 수 있었으며, 용액의 pH가 낮아지면 오히려 Mo의 용해도가 증가한다는 사실로 해석할 수 있으며, 두 번째는 0.5M Na_2CO_3 용액의 pH를 HCl과 NaOH 용액으로 조정한 후 Na_2CO_3 농도를 TOC로 분석한 결과, HCl 용액을 사용하여 pH를 조정 한 용액의 Na_2CO_3 농도가 감소하였다. 따라서 Na_2CO_3 농도 변화의 영향과 pH 변화의 영향이 복합적으로 작용한 결과로 해석된다. 탄산염 Na_2CO_3 용액에서의 Mo 용해도는 $\text{Mo} < \text{Mo(IV)O}_2 \ll \text{Mo(VI)O}_3$ 순서로 증가하므로 Mo 및 Mo(IV)O_2 를 산화시키기 위하여 산화제로 $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_8$ (또는 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_8$), NaOCl 및 H_2O_2 산화제를 사용하여 산화제의 종류 및 산화제 농도의 영향에 대해 실험 결과는 Table 1과 같다.

Table 1. Solubility of Mo(metal), Mo(IV) O_2 and Mo(VI) O_3 with oxidant in Na_2CO_3 media.(g/L)

Medium Oxidant	[Na_2CO_3], M											
	0.2M			0.5M			0.8M			1.0M		
	Metal	(IV)	(VI)	Metal	(IV)	(VI)	Metal	(IV)	(VI)	Metal	(IV)	(VI)
0.15M $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_8$	4.01	15.2	30.5	4.57	16.7	86.5	4.32	16.6	119	4.33	16.4	133
0.5M NaOCl	0.63	3.88	30.5	0.63	3.57	86.5	0.66	3.46	119	0.61	3.43	133
0.5M H_2O_2	3.97	24.1	44.4	2.78	24.0	77.4	2.05	23.4	112	1.57	23.8	137

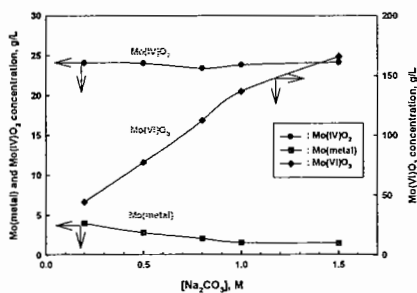


Fig. 1. Solubility of Mo(metal), Mo(IV) and Mo(VI) as a function of Na_2CO_3 concentration : Mo - xM Na_2CO_3 - 0.5M H_2O_2 system, at 25 °C

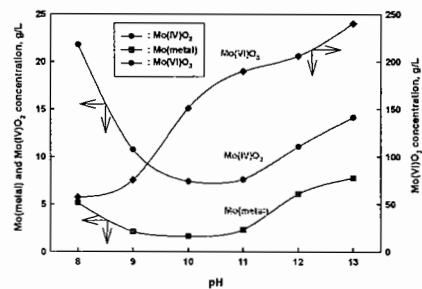


Fig. 2. Solubility of Mo(metal), Mo(IV) and Mo(VI) as a function of pH : Mo - 0.5M Na_2CO_3 - 0.5M H_2O_2 system, at 25 °C

4. 참고문헌

1. Y. Asano, Nucl. Technol. 120, 198 (1997).
2. N. Asanuma, J. Nucl. Sci, Technol. 38, 866 (2001).
3. H. Kleykamp, J. Nucl. Mater., 131, 221-246 (1985).
4. H.J. Emeleus and A.G. Sharpe(Ed.), Advances in Inorganic chemistry and radiochemistry, Vol. 10, Academic press, New york and London, (1967)

제4분과

방사선 안전 및 환경 (Oral)

월성원전 삼중수소제거설비 운영후 기체 삼중수소 배출량 변화 분석

신현근, 서원선, 지함청

한국수력원자력(주) 월성원자력본부, 경북 경주시 양남면 나아리 260

sinhg@khnp.co.kr

1. 삼중수소제거설비 개요

국내 최초로 운영되는 월성원자력본부 삼중수소제거설비(Wolsong Tritium Removal Facility, 이하 WTRF)는 월성3,4호기 건설시 중수로원전 4개호기 운영에 따른 삼중수소 배출 저감대책의 일환으로 설치가 결정되었다. WTRF는 세계 최초의 액상촉매교환방식을 채택한 것으로 중수 중의 삼중수소를 액체상태에서 분리하고 초저온(-256°C) 상태에서 농축하는 선진기술이 적용되었다. WTRF의 목적은 4기의 월성원전 가동 원자로로부터 감속재 및 냉각재내 삼중수소를 제거하고 제거된 삼중수소를 고정화하여 부지에 안전하게 저장하며, 삼중수소가 제거된 중수를 원전으로 되돌려 줌으로써 방사선작업 종사자의 피폭량 및 환경으로의 방사능배출량을 최소화하는 것이다.

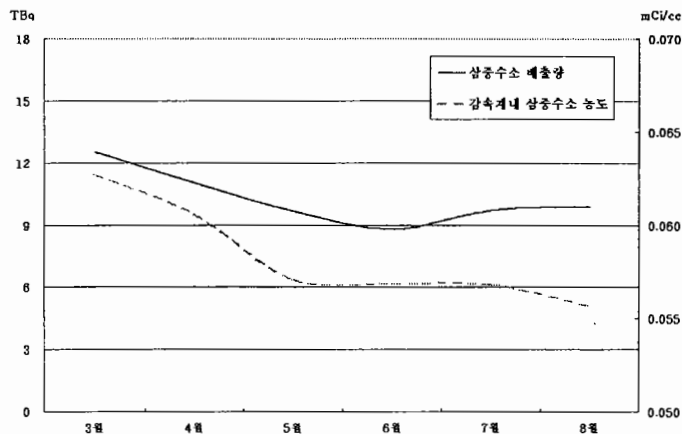
삼중수소는 중수를 감속재 및 냉각재로 사용하는 중수로에서 중성자가 중수의 중수소 핵에 포획됨으로서 생성된다. 발전소에서 삼중수소제거설비로 중수를 이송한 후 삼중수소 분리, 농축, 저장 공정을 통하여 감속재 및 냉각재내 삼중수소의 농도를 저감시킨다. WTRF에서 제거되는 삼중수소량을 최대화하기 위해 중수급수원은 기본적으로 감속재 중수가 된다.

2. WTRF 운영현황

2007년 3월 13일 WTRF로 첫번째 중수 이송작업을 하고난 후 지난 8월 31일까지 66,014kg의 감속재 중수가 처리되어 1호기로 재이송되었으며 월평균 11,002 kg의 중수를 처리하고 있다. 제거된 삼중수소량은 378만 큐리로서 티타늄 저장용기(8EA)에 저장되어 지하저장고에 보관된다. 향후 안정적으로 운영되면 연간 약 700g의 삼중수소가 생산될 것으로 예상된다.

3. WTRF 운전후 계통수(감속재) H-3 농도 및 기체 삼중수소 배출현황

지난 3월 WTRF 운영이후 월성 1호기의 삼중수소 배출량과 감속재내 삼중수소 농도가 지속적으로 감소하는 추세를 아래 그래프에서 알 수 있다.

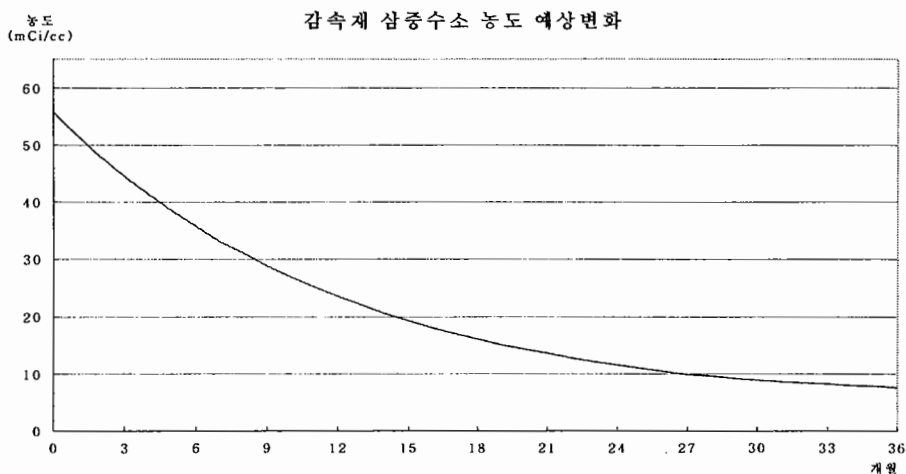


지난 2004~2006년간 월성 1호기의 월평균 삼중수소 배출량은 14.4 TBq이며 WTRF 운영후 월평균 월성 1호기의 삼중수소 배출량은 10.3 TBq로서 3년 월평균 대비 28.5% 감소하였다. 감속

계통내 삼중수소 농도는 WTRF 가동전 월평균 62.7mCi/cc이었으나 가동이후 지속적으로 감소하여 2007년 8월의 감속재내 월평균 삼중수소 농도는 55.7mCi/cc로서 11.2% 감소하였다.

WTRF 중수처리량이 증가할 때 월성 1호기의 삼중수소 배출량도 감소한다. 7월에 1호기 삼중수소 배출량이 증가한 것은 WTRF 간이정비를 5월 10일에서 6월 20일까지 수행함에 따라 WTRF 운영을 정지하였기 때문이다.

WTRF 가동률 60%를 유지한다고 가정할 경우 아래의 그래프에서 보는 바와 같이 감속재내 삼중수소 농도는 55.7mCi/cc에서 월성1호기 압력관교체가 시작되는 21개월 후에는 13.5mCi/cc로 줄어들 것으로 예상된다. 이에 따라 기체 H-3 배출량도 현재에 비해 20% 이하로 줄어들 것으로 기대된다.



4. 결론

WTRF의 운전이 안정화되고 목표이용률인 80%를 유지할 수 있는 운영능력을 갖추게 되면 월성 부지에서의 연간 총 삼중수소 배출량은 크게 감소할 것으로 예상된다. 현재 월성 1호기 삼중수소 배출량은 공기중 삼중수소 연간제한치의 약 0.1%인 DTO 300 TBq/년 수준이다. WTRF 운영에 의한 H-3 배출량 감소효과는 초기에 크며 시간이 지날수록 작아진다. 4개 호기 감속재를 지속적으로 처리할 경우 월성부지에서의 총 배출량은 WTRF를 운전하기 전에 비하여 80% 감소할 것으로 예상된다.

Optimization of auto-deposition for Po-210 in environmental sample

Myung Ho Lee, Hye Ryun Cho, Kyoung Kyun Park, Kih Soo Joe, Won Ho Kim, Euo Chang Jung,
Kwang Yong Jee

Korea Atomic Energy Research Institute 150 Deokjin-Dong, Yuseong, Daejeon 305-353, Korea
mhlee@kaeri.re.kr

1. Introduction

Monitoring polonium-210 in effluent and natural waters requires a method which is reliable, rapid and sensitive. The most widely used techniques for determination of Po-210 are the spontaneous deposition of polonium on to silver from weakly acidic solutions [1,2]. This method is subject to interference from oxidants, organic and inorganic materials. The presence of interfering ions makes the procedure less reliable both by reducing the deposition yield of polonium and increasing the thickness of the deposited layer. Therefore, for obtaining reliable activity concentration of Po-210 in water, it is necessary to purify polonium from interference elements and nuclides before plating.

Recently, highly selective chemical methods of Po-210 like extraction chromatography with Sr-resin in environmental samples have been developed [3,4]. With Sr Spec resin, the chemical recoveries of Po-210 in environmental samples are so changeable that they are sometimes obtained to be less than 60 %. Therefore, it is desirable to check the parameters affecting the recovery of polonium such as pH, time, volume and temperature in the deposition solution for obtaining reliable data of Po-210 analytical method. In this study, the chemical yield was investigated in simulated solution on different deposition conditions and the determination method of Po-210 modified deposition step was applied to tap water sample.

2. Experiments and Results

In a series of experiments, polonium was deposited on silver plate with changing pH (-1.0 - 5.0), time (0.5 h - 3 h), volume (5 mL - 25 mL) and temperature (30 °C - 90 °C). The plating experiments were performed twice. After completion of deposition, the silver disc was removed, washed with distilled water and dried at room temperature. The planchette was then measured by alpha spectrometry. To compensate for chemical recovery, Po-209 (30 mBq), as a yield, were added into 2.5 L tap water sample. MnO₂ precipitation was obtained in ammonia solution pH 9, after adding KMnO₄ and MnCl₂. The precipitate was dissolved with 2 M HCl (1% H₂O₂) and Po was purified by Sr Spec resin method. After pH adjustment, the purified Po fraction was auto deposition and polonium was measured by α -spectrometry.

In chemical aspects, several parameters such as pH, reducing agent (ascorbic acid) and complexing agent (sodium citrate) are influenced on spontaneous deposition of polonium in the large volume of water sample. Among factors affecting the recovery of polonium, pH is a main parameter in the deposition of polonium for purified polonium sample after chemical separation. Most of polonium was deposited on the silver plate at acidic pH (0.0 - 2.0) zone. Over pH 3.0, polonium is easily adsorbed onto the surface of beaker and reduced recovery. Also, below pH -0.5, the silver was etched, which reduced recovery and decreased the α -peak resolution.

In physical aspects, the theoretical deposition rate of polonium can be expressed as

$$dN/dt = K_1(A\omega^{0.5}/V)(N_0 - N_s)\exp(K_2T)$$

where dN/dt is the rate of deposition; K_1 and K_2 are constants; T is the absolute temperature; A is the active area; V is the volume of solution, ω is the angular velocity of rotation of the disc; N_0 and N_s are the concentrations of polonium in the bulk liquid and at the disc surface respectively [5]. This equation indicates that optimum plating conditions would require high temperature and angular velocity and small solution volume. In this study, the recoveries of Po-209 from the simulated solution were measured as a function of time, volume and temperature with/without stirring. About 99 % of polonium was deposited on the silver plate over 1.5 h. With deposition times longer than 3 h, the surface of

silver plate may be etched from acidic solution and reduces recovery. At a stationary silver disc, the recovery of Po-209 from the solution at 90 °C was just 60 % after 1.5 h. With rotation for 1.5 h, recovery of Po-209 was nearly 100 % at 90 °C. Also, with increasing temperature, the recovery of Po-209 was increased. The improvement in the deposition at higher temperatures with rotation has been explained by the removal of ozone, which coated on the surface of silver disc as silver oxide or peroxide, formed from dissolved oxygen in the solution.

With extraction chromatography with Sr-resin, the activity concentrations of Po-210 in tap water of Vienna was measured to be in the range of 1.50 mBq/L to 3.96 mBq/L with a mean value of 2.18 ± 1.06 mBq/L. The chemical yields of Po-210 in tap water samples with extraction chromatography method were presented in Table 1. The chemical yields for the deposition solution adjusted to pH 2 were lower than those for the deposition solution adjusted to pH 0. These means the deposition solution adjusted to pH 2 may be not enough to dissolve the evaporated residue, which was contained polonium and crown ether, passed through Sr-resin. However, the deposition solution adjusted to pH 0 can dissolve easily the residue, so that the deposition solution is transferred completely to deposition apparatus. Also, the addition of reducing agent increased the chemical yield by 7 - 11 %. However, there were not found to be significant effect on increasing the chemical yield after adding complexing agent, which can facilitate the deposition of Po, though it was reported that the chemical yield of Po was increased with adding complexing reagent on the spontaneous deposition of Po in the presence of large quantities of foreign ions.

3. Summary

The deposition conditions for plating polonium have been optimized with deposition parameters such as pH, volume and temperature of the deposition and deposition time. In the tap water, the chemical yields of polonium for the deposition solution adjusted to pH 0 were higher than those for the deposition solution adjusted to pH 2. This modified auto-deposition method made it possible to obtain reliable data of activity concentration of Po-210.

REFERENCES

- [1] W. W. Flynn, "The determination of low levels of polonium-210 in environmental materials," *Anal. Chim. Acta*, 43, 221-227 (1968).
- [2] J. D. Smith and T. F. Hamilton, "Improved technique for recovery and measurement of polonium-210 from environmental materials," *Analytica Chimica Acta*, 160, 69-77 (1984).
- [3] N. Vajda, J. LaRosa, R. Zeisler, P. Danesi and G. Kis-Benedek, "A novel technique for the simultaneous determination of ^{210}Pb and ^{210}Po using a crown ether," *J. Environ. Radioactivity*, Vol. 37(3), pp. 355-372 (1997).
- [4] D. Biggin, T. Cook, B. Mackenzie and M. Pates, "Time-efficient method for the determination of ^{210}Pb , ^{210}Bi , and ^{210}Po activities in seawater using liquid scintillation spectrometry," *Anal. Chem.* 74, 671-677 (2002).
- [5] J. D. Smith and T. F. Hamilton, "Improved technique for recovery and measurement of polonium-210 from environmental materials," *Analytica Chimica Acta*, 160, 69-77 (1984).

Table 1. Chemical yields of Po-210 in tap water

Chemical method	Deposition method	Activity concentration of Po-210 (mBq/L)	Chemical yield (%)
Solvent extraction	Classical (pH 2)	1.42 ± 0.16	93.2 ± 4.5
	Optimized (pH 0)	1.67 ± 0.14	92.2 ± 5.1
Extraction chromatography	Classical (pH 2)	1.93 ± 0.22	60.1 ± 3.9
	Optimized (pH 0)	1.62 ± 0.15	90.3 ± 4.2

액체섬광계수법을 이용한 지하수 중의 Tc-99 분석 방법

정근호, 조영현, 강문자, 이완로, 김희령, 최근식, 이창우

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

chungkh@kaeri.re.kr

1. 서론

테크네튬-99 (Tc-99)는 우라늄의 핵분열 생성물이며 Mo-99의 베타선 붕괴 반응에 의해 생성된다. 테크네튬-99는 최대 붕괴에너지가 292 keV인 베타방출 핵종으로서 반감기가 213,000년이며, 베타 붕괴 반응에 의해 Ru-99를 생성한다. 테크네튬-99는 천연우라늄의 자발적 붕괴에 의해서 일부 생성되나 대부분의 Tc-99는 원자로의 운영이나 원자력 재처리 설비로부터 생성된다. 전세계적으로 25~30톤의 방사성 테크네튬이 생성되고 이중 1%인 약 150~200 TBq 정도가 환경으로 방출된다. Tc-99는 환경에서 주로 TcO_4^- 상태로 존재하며, 화학적으로 매우 안정하고 수용액 중에서 이동성이 매우 크다. 또한 TcO_4^- 는 SO_4^{2-} 의 화학적 유사성 때문에 환경에서 먹이사슬을 통해 인간에게 전달될 수 있는 특징이 있다.

Tc-99는 월성 중·저준위 방사성폐기물처분시설 부지주변 방사선 환경 조사계획서에 명시된 감시핵종 중의 하나이나, 아직까지 국내에서 환경감시 목적으로 Tc-99 분석을 일상적으로 할 수 있는 수준은 아닌 상황이다. Tc-99는 지하수 이동을 통한 방사성핵종 누출 여부를 평가하기 위한 핵종 중 하나이다. 그러므로 본 연구에서는 액체섬광계수법을 이용하여 지하수 중의 Tc-99를 분석하기 위한 방법을 검토하였다.

2. 실험 및 결과

지하수 중에 존재하는 Tc-99는 TcO_4^- 의 화학적 형태로 음이온 교환수지에 결합시킨 후 Tc-99의 베타핵종 분석에 방해를 일으키는 기타 방사성 핵종(H-3, C-14, S-35, Sr-90, Y-90, Th-234 등)을 제거시킨다. 농축 질산을 이용하여 Tc-99를 용출시킨 후 아민 계열의 유기용매를 이용하여 TcO_4^- 를 추출한다. Tc-99를 추출한 유기용매는 액체섬광용액과 혼합되어 액체섬광계수법으로 Tc-99 방사능을 측정한다. 화학적 수율은 Tc-99m(반감기: 6.06 시간)을 사용하여 측정한다.

백그라운드 측정용 바탕시료는 자일렌에 혼합된 5% tri-octyl amine 용액 5 ml와 Ultima Gold-LLT (Packard) 15 ml를 혼합하여 제조하였다. 효율측정용 표준시료는 바탕시료에 Tc-99 표준물질 74Bq를 첨가하여 만들었다. 소광 정도는 제조된 표준시료에 니트로메탄을 0~100 μl 첨가하여 변화시켰다. 시료 제조시 Packard사의 20 ml 폴리에틸렌 바이알(low diffusion PE-vial)을 사용하였다. 모든 시료는 액체섬광계수기 (LKB Quantulus 1220)를 사용하여 120분씩 3회 반복 측정하여 Tc-99를 계측하였다. 화학적 수율은 전처리 과정을 거친 후 폴리에틸렌 바이알에 액체섬광용액과 혼합되어 있는 Tc-99m을 감마핵종분석기를 이용하여 계측 후 계산하였다. 화학적 수율을 측정하기 위해 사용된 Tc-99m의 감마에너지에 의한 영향을 최소화 하기위해 Tc-99m의 방사능이 완전히 붕괴된 후 Tc-99의 액체섬광계측을 실시하였다. 그림 1은 표준시료를 액체섬광계수기로 측정하여 얻은 것으로 전형적인 Tc-99의 스펙트럼을 나타낸다. 분석방법의 품질관리를 위하여 바탕시료와 바탕시료에 Tc-99 표준물질을 3.7 Bq, 7.4 Bq, 11.1 Bq 첨가한 표준시료 3개를 만들어 측정하였다. 또한 지하수 시료도 바탕시료, 지하수 바탕시료에 Tc-99 표준물질을 첨가하여 표준시료 3개를 제조하여 측정하였다. 본 분석방법의 전체적인 불확도 (95% 신뢰구간)는 6.5% 이내였으며, 분석결과와 첨가한 표준물질의 방사능과 잘 일치하였다.

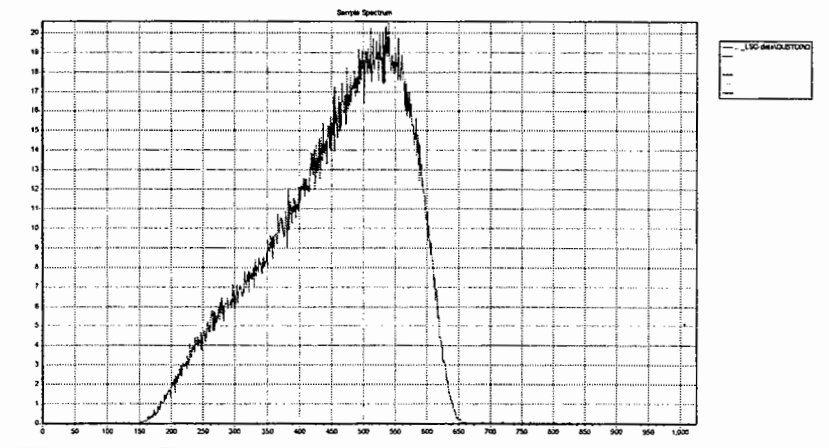


그림 1. 액체섬광계수기로 측정한 전형적인 Tc-99의 스펙트럼

시료 사용액 50mL, 측정시간 120분일 때 Tc-99의 용매 추출 후 액체섬광계수법에 의한 지하수 중의 Tc-99 분석방법의 MDA는 1 mBq/mL까지 근접할 수 있어, 중·저준위 방사성폐기물처분시설 부지주변 환경 방사능 감시에 효과적인 분석방법으로 사용될 수 있음을 확인하였다. 앞으로, TEVA 수지층 이용한 선택적 Tc-99 분리방법과 ICP-MS에 의한 Tc-99 분석을 실시하고자 한다. 또한, 확립된 분석법으로 중·저준위 방사성폐기물처분시설 부지주변의 지하수 시료를 분석할 계획이다.

Study on Guidelines for Airborne Radioactive Effluents Monitoring -Centered Around ANSI N13.1-

Wan-tae KIM, Seung-young JEONG, Je-keun CHON, Min-chul SONG
Korea Institute of Nuclear Safety PO Box 114, Yuseong, Daejeon 305-600, Korea,
k221kwt@kins.re.kr

1. Introduction

The release of airborne radioactive effluent from nuclear facilities to the environment is generally monitored by radiation detection instrumentation and sampled for laboratory analyses during normal operation, and anticipated operational occurrences, and under post-accident conditions.

Sample extraction has been conducted with sampling system which is very useful facility, but there are a lot of complexities for getting representative samples. For example, temperature, effluent flowrate, duct geometry, effluent composition, particle size, etc.

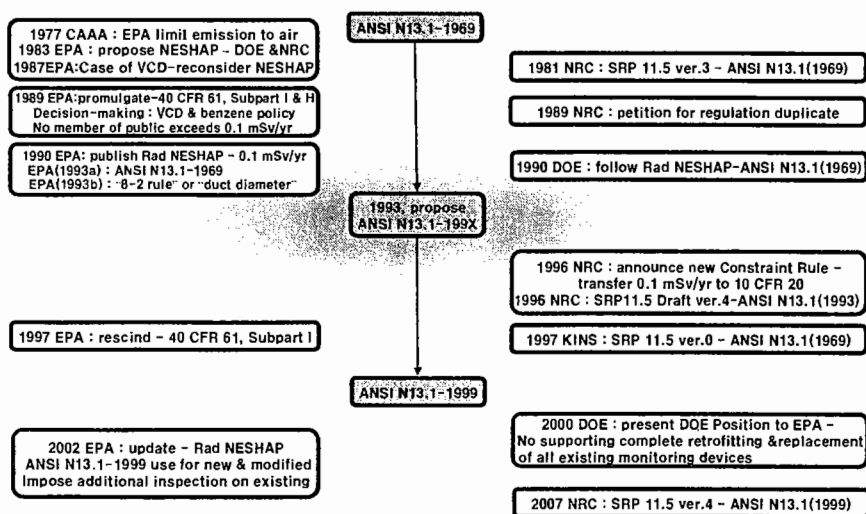
Since the construction permit for Kori-1 issued in 1972, 20 units of NPPs are under operation, and 6 units are under construction. All of operating NPPs in Korea have used stacks (and ducts) sampling system, which have used isokinetic sampling method with multiple small-diameter nozzles in accordance with the guidelines in ANSI N13.1-1969 in spite of various types of NPPs.

The design features of sampling system that includes the transport line and sampling flow rate are different in each facilities, because the various types of NPPs has different sampling circumstances and sampling location. Also, newly designed NPPs have much more number of stack than previous type of NPPs, and it caused to increase the number of sampling system in entire NPPs.

It is essential to use a uniform method for measuring, evaluating, recording, and reporting data on radioactive material in effluents. The uniform method can provide a uniform basis for data comparison from the different facilities. It allows the data summary by regulatory body, and can be used to assess the licensee's effluent controls and the potential environmental impact of radioactive materials in effluents.

2. Guidelines of Monitoring

2.1 Backgrounds



In 1981, the USNRC required the location of probes, detectors, sampling points, and sample stations, and the bases for the selection of these sampling or monitoring points are compared with the

guides for sampling from ducts and stacks contained in ANSI N13.1-1969, in its SRP 11.5 - ver. 3.

In 1983, EPA proposed NESHAPs for DOE facilities and NRC-licensed facilities. In 1987, EPA concluded the NESHAPs should be reconsidered with the case of Vinyl Chloride Decision.

In 1989, EPA published NESHAPs for eight radionuclide source categories. The revised rule were more prescriptive, based primarily on the decision-making framework outlined in the vinyl chloride decision and the benzene policy. This regulation, an implement of the federal Clean Air Act (CAA) National Emission Standards for Hazardous Air Pollutants (NESHAP), requires no member of the public would receive an effective dose in excess of 0.1 mSv (10 mrem) in a year from the release of radionuclides from DOE and NRC-licensed facilities via the air pathway.

The USNRC sued USEPA during the development of the radionuclide NESHAP promulgated in 1989, which regulation was contained in USEPA's 40 CFR Part 61, Subpart I. The USNRC petitioned for reconsideration of the NESHAP for NRC-licensed facilities, on the basis that this regulation duplicated USNRC's regulatory program. However, USNRC did not have data from these facilities to verify the emissions, and did not constrain emissions below the USEPA limit. Between 1992 and 1996, USEPA evaluated the USNRC program at thousands of facilities. Based on the data collected, USEPA concluded that radionuclide emissions from USNRC- and Agreement State-licensees did not exceed the 10 mrem/yr standard established in the NESHAP. USEPA found that USNRC's regulatory program protects the public health to a safe level with an ample margin of safety.

The USEPA and USNRC agreed to transfer the 0.1 mSv/yr (10 mrem/yr) limit on air emissions in USEPA's Subpart I to USNRC's Part 20 as a constraint on air emissions. This was achieved in two steps: USNRC announced its new constraint rule, incorporated into Part 20, in the Federal Register on December 10, 1996, to be effective January 9, 1997; and USEPA rescinded Part 61, Subpart I, for USNRC licensees, in a Federal Register notice on December 30, 1996.

In 1990, the Environmental Protection Agency's 40 CFR 61, Subpart H, "National Emission Standards for Emissions of Radionuclides Other than Radon from Department of Energy Facilities" (Rad NESHAP) became effective for DOE facilities. With the implementation of Rad NESHAP, the technical requirements for determining dose to the public became more rigidly defined. This regulation called out the requirements of the ANSI N13.1-1969. This guidance concentrates heavily on the ability of a sampling system to representatively collect large particles (greater than about 3-5 μm Aerodynamic Equivalent Diameter(AED)) through isokinetic sampling. In addition, sampling sites are required to be selected following procedures in USEPA(1993b).

In 1993, the ANSI N13.1-1969 is currently being revised. The proposed title for ANSI N13.1-199X is Guide to Sampling Airborne Radioactive Materials in Stacks and Ducts.

In 1997, the KINS issued its SRP to require the location of probes, detectors, sampling points, and sample stations, and the bases for the selection of these sampling or monitoring points are compared with the guides for sampling from ducts and stacks contained in ANSI N13.1-1969.

In 1999, the ANSI N13.1-1999 is issued.

In July 12, 2000, the USDOE presented DOE Position on ANSI 13.1-1999 to support the EPA's proposal to make the modifications for compliance with the ANSI standard apply primarily to new or modified facilities rather than require complete retrofitting of all DOE facilities.

In 2002, the USEPA updated its regulations at 40 CFR 61, Subparts H to require the use of ANSI N13.1-1999 for all applicable newly constructed or modified facilities and imposed additional inspection requirements on existing facilities consistent with the revised ANSI.

In March 2007, the USNRC also updated its SRP 11.5 at NUREG-0800 (version 4) to require the effluent monitoring instrumentation and sampling systems should be designed to automatically take representative samples at a known flow rate established in accordance with ANSI N13.1-1999.

2.2 Deficiencies in Rad NESHAP

The Rad NESHAP called out that sampling sites are required to be selected following procedures in USEPA(1993b). The reference method based on a general rule that sampling should be done at least 5 - 8 diameters downstream from a disturbance and at least 2 diameters upstream flow disturbances. The techniques for characterization are clearly provided, but the criteria for evaluation of the characterization are not. That is, although the velocity profile at the sampling site is determined, there are no numerical criteria for deciding if the profile is adequate. There is an assumption inherent in the site selection

process that the degree of flow development and mixing are directly related to the distance from disturbance. This, unfortunately, is not necessarily true.

In addition, the implementation of Rad NESHAP called out the requirements of the ANSI N13.1-1969. This guidance concentrates heavily on the ability of a sampling system to representatively collect large particles (greater than about 3-5 μm Aerodynamic Equivalent Diameter(AED)) through isokinetic sampling. The reference method provides a strong basic framework for the concerns in sample probe design. The concept of isokinetic sampling is key in this framework. However, other characteristics of the bulk effluent (i.e., the degree of flow development and particulate mixing) are also critical to determine the design requirements of the probe.

Using the site characterization methodology prescribed by USEPA(1993b), no assumptions can be made about these characteristics. These methods provide measurement procedure but no criteria. Therefore, USEPA(1993a) assumes nothing about flow development and mixing and calls out ANSI recommendations for probe design.

ANSI N13.1(1969) provides guidance for particulate sampling probes that utilize a multinozzle array to accommodate any deficiencies in the flow development or mixing. This scheme has a significant drawback, however. As additional nozzles are added, the loss of particles increase due to impaction in the small nozzle inlet and tube bends. Depending upon the density of the particulates at a ratio 2.0, particulates are underestimated by 10 to 50%. (Density = 3D mass of particulate/volume of particulate.)

2.3 Performance Criteria of ANSI N13.1-1999

In 1999, ANSI N13.1 issued again as new version which compensate the deficiencies as described above. ANSI N13.1-1999 "Sampling and Monitoring Release of Airborne Radioactive Substances from the Stacks and Ducts of Nuclear Facilities" is a performance-based standard rather than the prescriptive 1969 version.

To assure a representative sample is collected, the standard established required sampling system performance criteria. These criteria are listed below.

- Total transport of 10 μm AED particles and vaporous contaminants shall be $> 50\%$ from the free stream to the collector/analyzer.
- Sampler nozzle inlet shall have a transmission ratio between 80% and 130% for 10 μm AED particles.
- Sampler nozzle shall have an aspiration ratio that does not exceed 150% for 10 μm AED particles.
- Characteristics of a suitable sampling location are : a) coefficients of variation over the central 2/3 area of the cross section within $\pm 20\%$ for 10 μm AED particles, gaseous tracer, and gas velocity; b) flow angle $< 20^\circ$ relative to the long axis of the stack and nozzle inlet; and c) the tracer gas concentration shall not vary from the mean $> 30\%$ at any point on a 40 CFR 60, Appendix A, Method 1 velocity mapping grid.
- Continuous measurement of the required effluent flow rate variation is $> \pm 20\%$ in a year.
- Effluent and sample flow rate shall be measured within $\pm 10\%$.
- Continuous measurement and control of the required sample flow rate if flow varies $> \pm 20\%$ during a sample interval. Flow control shall be within $\pm 15\%$.

3. Under Tasks

New plants under construction in Korea are planning to use ANSI N13.1-1999. And, the performance criteria of ANSI N13.1-1999 have been studied to impose on the existing facilities for data comparison.

Structural Evaluation of IP-2 Packages for Low and Intermediate Level Radioactive Waste

Sunghwan Chung, Kabsoon Kim*, Kiseog Seo**, Seungho Lee

Korea Hydro and Nuclear Power Co., Ltd., 25-1 Jang-dong Yuseong-gu Daejeon 305-343, Korea

*Korea Nuclear Engineering & Service Corporation

**Korea Atomic Energy Research Institute

shchung@khnp.co.kr

Introduction

Korea Hydro and Nuclear Power Co., Ltd.(KHNP) is developing two kinds of IP-2 packages to transport low and intermediate level radioactive waste(LILW) steel drums from the on-site temporary storage facilities of nuclear power plants to the disposal facility. The packages are designed to comply with the requirements of IAEA Safety Standards Series No.TS-R-1[1] and Korea Atomic Energy Act[2][3] for Type IP-2 packages. One package is able to contain eight 200-liter steel waste drums and also another package eight 320-liter steel waste drums. Both packages including waste drums do not exceed six tons of total weight and their structure and external dimensions are identical. Performance of the packages is demonstrated by analyses and confirmed by safety tests. This paper describes the evaluation carried out to demonstrate the structural performance of two IP-2 packages and their compliance with the regulatory requirements.

IP-2 Packages

Two kinds of IP-2 packages with the same external dimension of 1.6mWx3.4mLx1.2mH are designed to transport eight LILW steel waste drums of 200-liter and 320-liter. The package as shown in Fig.1 consists of a body, a lid, lid bolts and internal drums. The body of packages is made of carbon steel of SS400 and shielding wall thickness of the body and the lid is 12mm. The lid is securely fastened down with lid bolts and waste steel drums are secured firmly by internal supports shown in Fig.2 to ensure that they do not move during transport. The packages including eight steel drums do not exceed six tons of total weight due to the capacity of the on-board crane of the purpose-built transport vessel. The design of the package incorporates criteria based on IAEA Safety Standards Series No.TS-R-1 and Korea Atomic Energy Act for Type IP-2 packages.

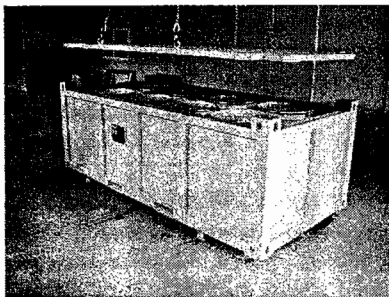


Fig.1 Overview of IP-2 package

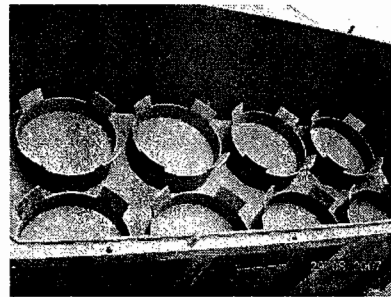


Fig.2 Drum supports inside the package

Structural Analyses

Structural analyses to ensure that the integrity of packages is maintained under all credible loads for free drop conditions specified in the regulations were performed using the LS-DYNA explicit transient finite element analysis code. Analyses for 0.9m free drop conditions were carried out for a total of 15 drop directions as shown in Fig.3 and Fig.4 such as vertical, horizontal, corner and oblique because it is difficult to define the impact direction for which maximum damage is expected. The analysis result for corner drop impact(direction 7) causing maximum stress is shown in Fig.5 and Fig.6.

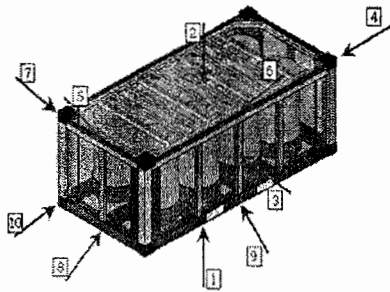


Fig.3 Drop directions for 200-liter drum package

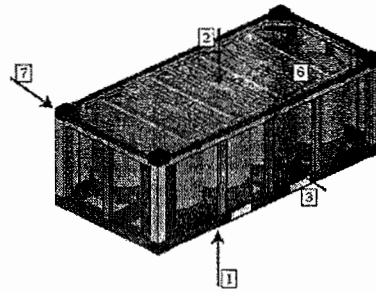


Fig.4 Drop directions for 320-liter drum package



Fig.5 Corner drop analysis

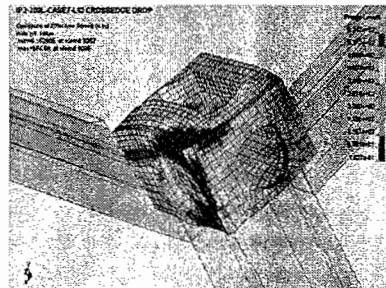


Fig.6 Deformation of corner fitting

Safety Tests

For confirmation and verification of the analysis results, a total of five free drop tests from 0.9m height onto a rigid target in different drop positions using two prototype package models. Figure 7 shows a vertical drop test of 200-liter drum package and Fig.8 shows the measured acceleration data.

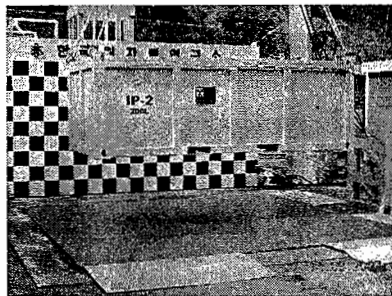


Fig.7 0.9m vertical drop test



Fig.8 Measured acceleration

Conclusion

Structural performance of two IP-2 packages in normal conditions of transport was demonstrated by a combination of analyses using the verified code LS-DYNA and safety tests carried out on two prototype test models. The structural analyses and safety tests demonstrated that the packages comply with the regulatory requirements.

References

- [1] IAEA Safety Standards Series No.TS-R-1, "Regulation for Safe Transport of Radioactive Material", 2005
- [2] MOST Ordinance No.93, "Regulation on Technical Standards for Radiation Safety Management", 2006
- [3] MOST Notice No.2001-23, "Regulation for Packaging and Transport of Radioactive Material", 2001

IP-2형 방사성 폐기물 운반용기의 적층조건에서의 구조 안전성 평가

남경오, 정성환, 최종락, 이주찬, 서기석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

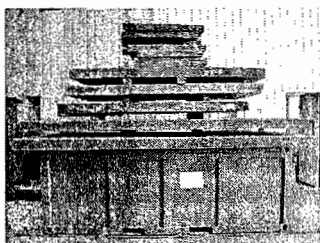
namko@kaeri.re.kr

1. 서론

IP-2형 방사성폐기물 운반용기는 원자력발전소의 폐기물 임시저장시설에서 방사성폐기물 처분 시설까지 육로 및 해상운송을 통해 폐기물이 담긴 드럼을 운반하기 위한 용기이다. IP-2형 운반용기는 200 또는 320리터 드럼을 2×4의 배열로 8개까지 적재할 수 있는 용량을 지니며, 차폐 및 운반용기로서의 기능을 가진다. 구조는 크게 본체, 내부지지구조물, 뚜껑 및 체결용 볼트로 구성된다. 본체는 직육면체 형상으로 사각각관으로 제작되었으며, 8개의 모서리에는 인양 및 결속을 위해 모서리쇠가 설치되었다. 내부지지구조물은 각 드럼과 본체와의 간격을 유지하여 충돌로 인한 손상을 방지할 수 있는 기능을 가진다. IP-2형 운반용기의 해상운송에서는 육로운송과 달리 선박에 대량으로 적재하기 위해 다단으로 적재하게 되는데, 본 운반용기의 적층조건은 6단 적재로 운반용기 총중량의 5배 하중이 용기의 상부에 작용하는 조건에서 구조 안전성이 평가되어야 한다. 본 연구에서는 IP-2형 운반용기의 적층조건에서의 구조 안정성 평가를 위해 용기에 5배 하중이 되는 중량을 적용하여 수직 압축력이 작용하도록 하고 각 기둥의 수직 변형량을 측정하였다. 또한 적층시험 전후로 외형치수검사, 육안검사 그리고 차폐체 조음과 두께검사를 수행하였다. 적층시험은 24시간동안 수행되었다. 전산해석은 ABAQUS/Standard를 이용한 정적해석을 수행하였다.

2. 시험 및 해석결과

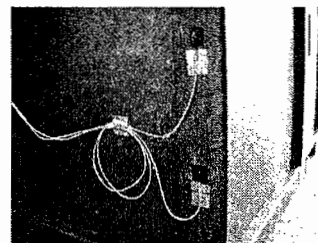
해상운송의 적층은 6단 적재조건으로 드럼을 포함한 용기의 총중량 6.5톤의 5배 하중인 32.5톤의 중량물을 용기의 상부에 적재하여 24시간동안 용기의 변형량을 관찰하면서 320리터 드럼 용기의 적층시험을 수행하였다. 중량물은 실제 용기를 사용하지 않고 시험장소의 높이제한과 취급의 용이성을 고려하여 동일한 중량의 후판(thick plate)을 이용하였다.(Fig 1. (a)참조) 변형량 측정은 중량이 작용하는 기둥에 변위를 측정할 수 있는 레이저 변위센서를 부착하여 직접 변형량을 측정하였다.(Fig 1. (b)참조) 레이저 변위센서는 키엔스 LK-G150 모델을 이용하였다. 또한 반대편 기둥에는 스트레인 게이지를 상하부에 부착하여 변형률을 측정하였다.(Fig 1. (c)참조)



(a) stack of the container



(b) installed laser displacement sensor



(c) installed strain gauge

Fig 1. Stack test of the IP-2 radioactive waste transfer container

레이저 변위센서를 이용한 변위 및 스트레인 게이지를 이용한 변형률을 24시간 동안 측정하였

다. 시험결과 레이저 변위센서를 이용한 변위는 중량물을 적재한 후 기둥에서 약 0.141 mm 압축된 결과를 보였다. 또한 스트레인 게이지를 이용한 변형을 측정에서는 약 0.143 mm 압축된 결과를 얻을 수 있었다. 중량물이 적재된 후 24시간이 경과되는 동안 변위 및 변형률은 큰 변화를 보이지 않았다. 24시간 경과 후 중량물을 재하(unloading)했을 경우 변위 및 변형률은 다시 초기상태가 되었다. 이는 적재시험 중 중량물에 의한 소성변형이 거의 없었음을 보여주는 것이다. 적재시험 후 육안검사를 통해 용기의 외형 및 내부검사를 수행한 결과에서도 특별한 손상부위나 변형된 부위를 발견할 수 없었다. 또한 볼트의 풀림토크검사, 외형치수검사 및 차폐체 초음파 두께검사에서도 큰 변화는 없었다. 결과적으로 적층시험을 통해 6단 적재조건에서 용기의 구조적 안전성이 확보되었음을 확인할 수 있었다. 시험결과를 토대로 ABAQUS/Standard를 이용해 적층시험에 대한 정적해석을 수행하였다. 용기 하부의 모서리쇠를 구속하고 상부 모서리쇠에 32.5톤에 대한 분포하중을 적용하였다. 해석결과에서 대부분의 응력발생은 모서리쇠와 기둥에 집중되어 있었으며 그 외의 부재, 판재, 볼트 그리고 뚜껑에는 거의 응력이 발생하지 않았다. 기둥의 전체변형량은 0.084 mm 압축된 결과를 보였다. 재료의 물성, 사각단면의 기둥 단면적 그리고 모서리쇠에 작용하는 분포하중을 고려할 경우 수치적 계산에서는 약 0.125 mm 압축 변형된 결과를 보였다. 앞서 기술한 적층시험, 유한요소해석 그리고 수치계산 등의 결과는 해상운송 컨테이너 기술기준 중에서 적층에 의한 좌굴로 연구변형이 3 mm를 넘지 말아야한다는 기준을 모두 만족시켰다. 특히 적층시험에서 영구변형은 하중 재하 후에 거의 나타나지 않았다. 또한 차폐능 손실이 20%를 넘을 수 없는 기술기준도 만족하고 있음을 차폐두께검사를 통해 입증할 수 있었다. 내부검사에서도 드럼의 손상이나 뚜껑열림 현상은 발생하지 않았다.

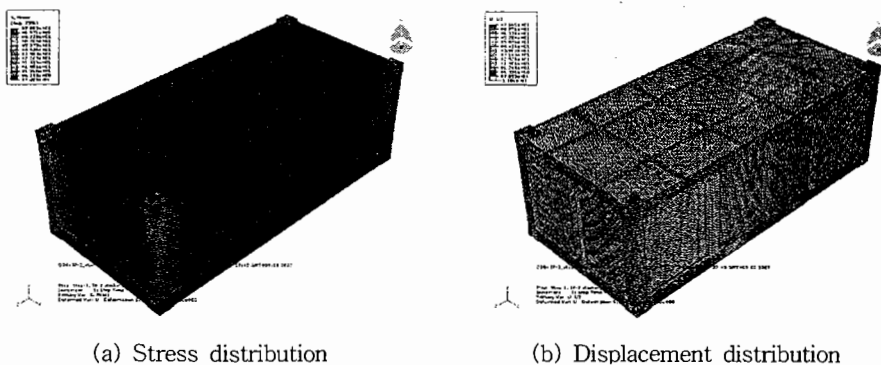


Fig 2. Results of the ABAQUS/Standard analysis

3. 결론

IP-2형 방사성폐기물 운반용기의 육상운송은 개별운송방식으로 이루어지지만 해상운송의 경우 많은 용기를 적재해야 하는 공간적 제약성을 고려할 경우 적재조건에서 용기의 구조적 안전성을 평가하는 것은 매우 중요하다. 특히 장시간 운송으로 인한 용기의 피로변형을 고려할 경우 수치적 해석을 통한 검증보다는 실증시험을 통한 검증을 통해 구조적 안전성을 평가해야 할 필요성이 있다. 본 연구에서는 용기의 24시간 적층시험을 수행하여 6단 적재에서의 용기 변형량을 측정하였고 결과적으로 기둥부에서 0.14 mm 정도의 변형이 발생했음을 확인하였다. 이는 해상운송 컨테이너 기술기준을 만족하는 결과로 전산해석과 수치해석을 통해서도 유사한 결과를 확인할 수 있었다. 또한 차폐능 손실로 시험전후 초음파측정을 통해 기술기준을 만족함을 확인하였다.

방사성폐기물 핵종분석 결과를 사용한 폐수지의 운반물등급 분류 방법

김태욱, 최기섭, 강기두

한수원(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1

taewook@khnp.co.kr

방사성폐기물 드럼을 소내 또는 소외로 운반하려면 과기부령 제30호 '방사선안전관리 등의 기술기준에 관한규칙'에 따라 운반물 등급을 결정하고, 운반물 등급별 기술기준에 만족하는 운반용기를 사용하여야 한다. 운반물의 운반등급을 결정하기 위해서는 운반물 내 핵종재고량을 평가가 필요하며 이에선 직접 또는 간접 측정방법을 사용할 수 있다.

감마핵종 재고량 평가를 위한 직접 측정방법에는 감마핵종분석기로 분석하는 방법이 있고, 간접 측정방법에는 감마핵종존재비와 선량대방사능 환산인자를 사용하여 분석하는 방법이 있다. 알파베타핵종 재고량 평가를 위한 직접 측정방법에는 시료를 채취하여 방사화학분석을 수행하는 방법이 있고, 간접 측정방법에는 감마핵종과 알파베타 핵종의 방사능 비율인 척도인자를 사용하는 방법이 있다. 본 연구는 고밀도폴리에틸렌 고건전성용기에 담겨진 폐수지의 핵종재고량을 평가하기 위하여 방사성폐기물 핵종분석 결과와 선량대방사능 방법을 사용한 직간접 혼합방법을 사용하여 수행되었다.

원전에서 발생된 방사성폐기물의 핵종분석결과는 2002년부터 2005년까지 노형 및 6개 폐기물 유형으로 분류하여, 알파, 베타, 감마 총 18개 핵종에 대하여 도출되었다. 전체 핵종의 존재비는 운반물 등급 분류에 사용되었으며, 이중 8개 핵종에 대한 존재비는 선량대방사능 환산방법에 사용되었다.

선량대방사능 환산방법은 드럼의 표면선량을 측정하여 감마핵종 재고량을 평가하는 방법이다. 감마핵종간의 존재비를 알고 있을 때 적용되며, MCNP 코드를 사용하여 폐기물 종류별로 실제 폐기물을 모사하여 핵종별 단위 방사능 당 드럼 표면에서의 선량률을 계산하였다. 핵종별 존재비는 다음과 같다.

핵종	존재비(%)	핵종	존재비(%)
^{60}Co	6.800	^3H	0.015
^{137}Cs	14.666	^{14}C	0.477
^{125}Sb	0.464	^{56}Fe	18.616
$^{110\text{m}}\text{Ag}$	0.019	^{59}Ni	0.291
^{134}Cs	12.888	^{63}Ni	24.033
^{54}Mn	3.073	^{90}Sr	0.026
^{58}Co	18.536	^{94}Nb	0.00139
^{144}Ce	0.090	^{99}Tc	< 10 ⁻³
		^{129}I	0.00489
		전 알파	< 10 ⁻³

또한, 방사능대선량 환산인자는 다음과 같다.

핵종	^{60}Co	^{137}Cs	^{125}Sb	$^{110\text{m}}\text{Ag}$	^{134}Cs	^{54}Mn	^{58}Co	^{144}Ce
환산인자 (mSv/h/TBq)	4.22×10^2	8.62×10^1	5.83×10^1	4.31×10^2	2.40×10^2	1.34×10^2	1.51×10^2	6.70×10^{-1}

위의 감마핵종 존재비와 방사능대선량 환산인자를 사용하여 다음과 같이 단위 방사능당 표면선량률을 환산하였다.

$$D = \sum_{i=1}^8 C_i \times R_i$$

여기서 D는 8개 핵종의 단위 방사능당 표면선량률 환산인자이고 C_i 는 핵종 i의 방사능대선량 환산인자이고 R_i 는 핵종 i의 존재비이다. 그러면 D의 역수는 8개 핵종의 선량대방사능 환산인자가 된다. 핵종별 선량대방사능 환산인자는 D의 역수에 핵종 i의 존재비 R_i 를 곱하여 구한다.

8개 감마핵종의 핵종별 선량대방사능 환산인자가 도출되면 핵종 i의 존재비 R_i 를 사용하여 나머지 알파베타 핵종의 존재비를 환산할 수 있으며, 같은 비율을 적용하면 총 18개 핵종의 핵종별 선량대방사능 환산인자가 도출된다. 이를 사용하면 표면선량률을 측정하여 드럼 내의 핵종재고량을 평가할 수 있게 된다.

핵종재고량이 도출되면 혼합 핵종의 A2값을 구하고 이를 총 방사능과 비교하여 운반등급을 결정할 수 있다. 계산결과 A형과 B형 운반물을 나누는 경계값인 A2값은 고밀도폴리에틸렌 고건전성용기 폐수지의 경우 1.19 TBq로 나타났다.

핵종	분율 R_i (%)	$A2_i$ (TBq)	$R_i/A2_i$
^{60}Co	6.800	0.4	0.170
^{137}Cs	14.666	0.6	0.244
^{125}Sb	0.464	1.0	0.005
$^{110\text{m}}\text{Ag}$	0.019	0.4	0.000
^{134}Cs	12.888	0.7	0.184
^{54}Mn	3.073	1.0	0.031
^{58}Co	18.536	1.0	0.185
^{144}Ce	0.090	0.2	0.005
^3H	0.015	40	0.000
^{14}C	0.477	3	0.002
^{55}Fe	18.616	40	0.005
^{59}Ni	0.291	-	-
^{63}Ni	24.033	30	0.008
^{90}Sr	0.026	0.3	0.001
^{94}Nb	0.00139	0.7	0.000
^{99}Tc	0.00032	0.9	0.000
^{129}I	0.00489	-	-
총 알파	0.00031	0.001	0.003
합계	100.0	$\sum_{i=1}^{18} \frac{R_i}{A2_i}$	0.842
혼합 A2	1.190		

연구원 내 토양 및 콘크리트 폐기물의 자체처분을 위한 선량평가

홍대석, 지영용, 강일식, 손중식

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150-1)

dshong@kaeri.re.kr

1. 서론

1988년도 원자력연구소 서울사무소의 폐쇄과정에서 발생한 토양 및 콘크리트 폐기물은 발생이 후 대전의 방사성폐기물 저장고에서 지속적으로 안전하게 관리되어 왔다. 이러한 토양 및 콘크리트 폐기물의 자체처분을 위하여 방사선적 특성분석을 수행하였고 그 결과에 따라 자체처분 대상 폐기물을 선정하였다. 선정된 폐기물이 현재 자체처분과 관련되어 제시된 원자력법상의 기준을 만족하는 지를 평가하기 위하여 자체처분 시나리오를 수립하고 그에 따른 선량평가를 수행하였다.

2. 자체처분 대상의 선정

자체처분 대상 폐기물로는 저장고 내의 토양 및 콘크리트 폐기물 중 1988년도에 발생하였고 표면방사선량이 $0.3 \mu\text{Sv/hr}$ 인 것들이 우선적으로 선정되었다. 선정된 폐기물에 대하여 드럼 당 2 liter의 대표시료가 채취되었으며 이 중 1 liter를 이용하여 드럼의 방사선적 특성이 분석되었다. 분석 결과 토양 및 콘크리트 폐기물에 존재하고 있는 주요 방사성 핵종은 Co-60와 Cs-137이었으며 전체 폐기물 중 상당량이 상당히 낮은 방사능 농도를 나타내고 있는 것으로 파악되었다. 이는 발생당시 저준위로 발생한 폐기물 내 주요핵종의 반감기(Co-60 : 5.3년, Cs-137 : 30.2년)에 비해 저장기간이 어느 정도 경과했기 때문이라고 판단된다.

시료 분석결과 전체 2,974 드럼(토양 : 1,832 드럼, 콘크리트 : 1,142 드럼)의 총 γ 방사능농도가 IAEA에서 Co-60 및 Cs-137에 대하여 자체처분을 위해 제시하고 있는 개별핵종 농도 기준 및 핵종별 총합 농도 기준 농도인 0.1 Bq/g 을 만족시켰다[1]. 따라서 이러한 드럼을 최종적인 자체처분 대상 폐기물로 선정하였다.

3. 자체처분에 따른 선량평가

국내 원자력법상에서는 자체처분 여부를 판단하기 위한 선량기준(연간 개인피폭선량 $10 \mu\text{Sv}$ 미만, 연간 집단피폭선량 $1 \text{ man} \cdot \text{Sv}$ 미만)을 제시하고 있으므로 IAEA 기준을 만족하는 2,974 드럼에 대한 자체처분 시나리오를 수립한 후 이에 대한 선량을 평가하였다[2]. 자체처분 시나리오로서는 사업장일반폐기물(생활, 지정폐기물 제외) 및 건설폐기물(폐콘크리트, 폐아스콘, 폐토사, 오니, 폐석고, 폐보온재, 열경화성페합성수지)을 취급하는 매립시설에 규제해제된 폐기물을 매립하는 것으로 설정하였다. 이 경우 원자력연구원에 드럼으로 포장되어 저장되고 있는 폐기물은 컨테이너 백(톤백)으로 옮겨 담아서 매립지까지 운반된 뒤 비방사성 일반폐기물과 같이 매립된다.

선량평가를 위한 도구로는 RESRAD 코드가 사용되었으며 매립지 주변의 거주민과 매립지 작업자를 대상으로 선량을 평가하였다. 평가대상으로는 매립 작업자, 매립 후 근무자, 매립장 사용 후 거주자 등을 설정하였다. 코드에서 사용되는 입력변수는 최대한 현장의 상황을 반영하였으며 그렇지 못한 경우에는 RESRAD 코드에서 제공하는 기본값을 사용하였다. 선량평가 결과는 Table 1에 제시한 바와 같았다.

Table 1. Radiological dose due to cleared wastes

평가대상	평가결과	
	개인 ($\mu\text{Sv/yr}$)	집단 (man-Sv/yr)
매립 작업자	4.55E+0	1.37E-5*
매립 후 근무자	1.00E-2	3.00E-7*
매립장 사용 후 거주자	3.70E+0	6.39E-2**

4. 결론

현재 원자력연구원의 방사성폐기물 저장고에는 약 4,800 드럼의 토양 및 콘크리트 폐기물이 저장되어있으며 이러한 폐기물은 전체 저장용량의 약 40%를 처리하고 있어 처분비 및 운영비의 절감을 위해 처리가 필요한 실정이다. 본 연구에서는 토양 및 콘크리트 폐기물 중 발생 후 저장기간이 상당히 경과한 것들로 총 γ 방사능 농도가 0.1 Bq/g인 폐기물을 대상으로 자체처분 여부가 가능한지에 대한 선량평가를 수행하였다. 총 2,974 드럼의 자체처분에 따른 매립장 작업자 및 주변 주민들에 대한 선량평가 결과 IAEA에서 제시하는 농도 기준 및 국내 자체처분 관련 규정에서 제시하는 선량 기준을 모두 만족하는 것으로 평가되었다.

대전의 원자력연구원에서 저장 중인 방사성폐기물은 영구 처분시설의 운영이 시작될 경우 원자력발전소의 방사성폐기물과 더불어 처분시설에 영구 처분되어야 한다. 그러나 처분 비용으로 200 리터 드럼당 약 500만원의 비용이 소요될 것으로 평가되고 있다. 원자력발전소의 경우 처분비용으로 적립된 기금이 있으나 원자력연구원은 별도의 기금이 없으므로 최대한 처분 비용을 절감하여야 하는 상황에서 처분대상 방사성폐기물의 양을 줄이는 가장 효율적인 방법은 부피저감화와 규제해제가 될 것이다. 본 연구에서 평가한 규제해제 대상 폐기물이 모두 자체처분 될 경우 저감화할 수 있는 처분비용은 약 150 억원 정도가 될 것이라 평가된다.

향후 현재 보관 중인 12,500 드럼 이상의 폐기물도 단계적인 선량평가 및 자체처분을 통하여 관리 및 처분 비용을 상당부분 줄일 수 있을 것이라 판단된다.

5. 참고문헌

- [1] International Atomic Energy Agency, "Derivation of Activity Concentration Values for Exclusion, Exemption and Clearance", Safety Reports Series No. 44, International Atomic Energy Agency (IAEA), (2005).
- [2] 과학기술부고시 제 2001-30 호

제4분과

방사선 안전 및 환경 (Poster)

NPL 교차분석시료에서의 동시합성효과에 대한 평가

이완로, 박두원, 정근호, 김희령, 조영현, 강문자, 최상도, 박승임, 박지연, 최근식, 이창우

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

petor@kaeri.re.kr

1. 서론

감마분광분석기를 이용한 감마방출핵종 분석시 동시합성효과를 고려해야 할 경우가 종종 생긴다. 동시합성효과는 크게 두 종류가 있는데 하나는 random 동시합성효과이고 다른 하나는 true 동시합성효과이다. Random 동시합성효과는 여러 핵종에서 방출된 두 개 또는 그 이상의 에너지가 검출기 분해시간 이내에 동시에 흡수되어 합해진 에너지에서 측정되는 것으로 주로 count rate에 영향을 받는다. 또 다른 하나는 한 핵종에서 연속적으로 두 개 또는 그 이상의 에너지가 방출될 때 일어나는 것이 true 동시합성효과이다. True 동시합성효과는 count rate와 상관없이 검출기와 기하학적인 절대효율에 매우 민감하고, 특히 well 형태의 검출기에서는 반드시 고려해야 한다. 이런 동시합성으로 인하여 나타나는 현상은 원래의 peak에서 count수가 감소하는 현상뿐만 아니라 summing 효과로 다른 에너지에서 peak 관찰되는 효과가 있다. 이런 효과에 대한 연구는 지속적으로 연구자들에 의해서 토론되었으며, ANSI N42.14에서 자세히 설명되었다[1, 2]. 본 연구에서는 NPL 교차분석에 참여한 경험을 토대로 true 동시합성효과에 대해서 평가하였다.

2. 실험 및 결과

그림 1에서는 2007년도 NPL(National Physical Laboratory)에서 주관한 교차분석시료 중 동시효과를 고려해야 하는 대표적인 핵종인 Cs-134에 대한 붕괴도를 개략적으로 보여주고 있다. Cs-134는 베타붕괴를 하여 Ba-134로 변환되는데 이때 여러 방사선이 방출된다. 이 중에서 true 동시합성에 많은 영향을 주는 것은 604.71 keV와 795.85 keV이다. 이는 검출기 분해능 이내인 6 ps내에서 동시에 방출되고 방출률도 매우 높기 때문에 두 에너지의 합인 1400.56 keV영역에서 동시합성 peak가 측정된다. 이때 동시합성효과를 고려하지 않고 604.71 keV와 795.85 keV를 이용한 Cs-134 방사능은 실제 값보다 낮을 수 있다.

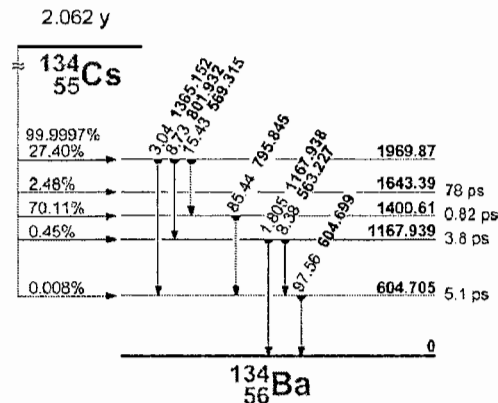


Fig. 1. Decay drawing of Cs-134

2007년도 NPL 교차분석 시료에서는 Cs-134핵종이외에 동시합성효과를 고려해야 하는 Ba-133 핵종이 포함되어 있었다. 동시합성효과를 고려하는 방법은 두 에너지의 합에서 나타난 peak가 정규 분포를 이루고 충분히 클 때, 동시합성 peak비를 만큼 원래의 에너지에 보상해주는 방법을 이용하였다.

그림 2에서는 NPL시료에 포함된 핵종 중에서 Ba-133, Cs-134에 대해서 동시합성을 고려하지 않았을 경우와 고려했을 경우를 주어진 값과 비교한 결과를 보여주고 있다. 그림에서 보면 Cs-134 및 Ba-133의 경우는 고려하지 않았을 경우 거의 20 %의 상대차이를 보이고 있다. 이는 교차분석에서 outlier로 처리될 수 있는 값이며, 동시합성 효과를 고려할 경우 주어진 값에 5 % 이내로 좋은 결과를 얻었다.

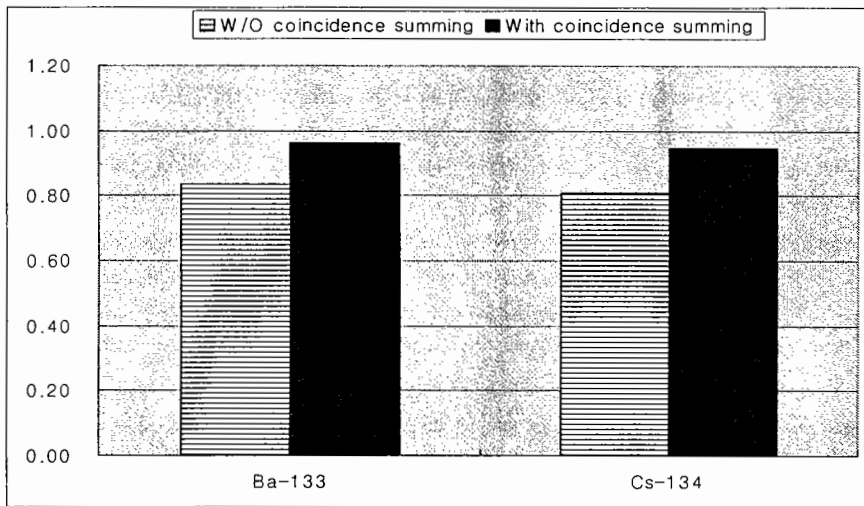


Fig 2. Ratio of measured activity to stated activity for without and with coincidence summing effect

3. 결론

감마분광분석기를 이용하여 감마방출핵종을 분석할 때 true 동시합성효과를 고려해야 하는 핵종에 대해서 그 효과를 고려하지 않았을 경우에 실제 제시된 값과 비교하여 많은 차이점이 보일 수 있기 때문에 반드시 고려해야 함을 알 수 있었다. 또한 본 연구에서는 소스와 검출기의 거리 및 기하적인 형태와 상관없이 간단히 true 동시합성효과를 고려하는 방법을 제시하여 실제 환경분석자들에게 도움이 될 수 있을 것이다.

참고문헌

- [1] ANSI N42-14, "Calibration and Use of Germanium Detectors for the Measurement of Gamma-Ray Emission Rates of Radionuclides".1999.
- [2] Menno Blaauw, "The Use of Sources Emitting Gamma-rays for Determination of Absolute Efficiency Curves of highly Efficient Ge Detectors", NIM A32, pp.483-500, 1993

불활성기체 핵종분율측정 방법론

김동균, 김군열, 장영대, 신성규

(주)한국원자력엔지니어링, 경기도 성남시 분당구 야탑동 145번지

kdk5109@hanmail.net

1. 서론

불활성기체(Noble Gas)는 화학적으로 비활성의 성질을 가지므로 원칙적으로 완전 처리하는 것이 곤란하다. 원전 운전중 발생하는 대표적인 핵종으로 ^{40}Ar 이 중성자와 반응하여 생성후 주로 환형기체계통 퍼지시 유출되는 ^{40}Ar 및 핵분열에 의해 생성되어 손상연료로부터 냉각재로 누설되어 냉각재누설에 의해 유출되는 ^{133}Xe , ^{135}Xe , $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 등이 있다

중수로형 발전소에서 발생하는 불활성기체는 폐기체처리계통(Off Gas Management System)에서 지연·붕괴처리 또는 환배기계통(HEPA 필터 및 활성탄 필터 설치)을 통하여 직접 배출이 되며 배기구(Stack) 종단에 설치된 기체 유출물감시기(Gaseous Effluent Monitor)에 의하여 감시되고 배출량(기체유출물감시기에 따라 Bq 또는 Bq-MeV 단위로 측정이 되어지고 있음)이 평가 되어진다.

$$* \text{일일배출량(Bq-MeV)} = \sum [\text{배출량(Bq)} \times \text{단위 변환상수}(C_i) \times \text{핵종분율}(f_i)]$$

여기서,

배출량(Bq) : 24시간동안 배기구를 통하여 배출된 Bq 단위의 방사능

단위 변환상수(C_i) : 핵종 i를 Bq $\rightarrow$ Bq-MeV로 변환하기 위한 변환상수

핵종분율(f_i) : 전체 방사능에 대한 i 핵종의 분율

표1. 불활성기체 핵종별 Bq $\leftrightarrow$ Bq-MeV 단위 환산표

핵 종	반 감 기	감마선에너지(MeV)	방 출 율	변환상수 (Bq-MeV/Bq)
Ar-41	1.83h	1.294	0.992	1.2836
Xe-133	5.24d	0.031	0.253	0.0453
		0.081	0.365	
Xe-135	9.10h	0.250	0.899	0.2479
Kr-85	10.7y	0.514	0.004	0.0022
Kr-85m	4.48h	0.151	0.753	0.1577
		0.305	0.140	
Kr-88	2.84h	0.196	0.260	1.9546
		2.196	0.132	

과기부고시 제2002-23호 “방사선방호등에 관한 기준”에서는 일반인의 선량한도를 기준으로 각각의 핵종에 따라 배기중 배출관리기준을 설정하고 있으나 배기구를 통하여 연속적으로 배출되는 핵종은 다핵종 이므로 측정되어지는 핵종분율에 의해 평가되어지는 선량평가의 값도 크게 변할 것이다.

따라서, 본 방법론은 현재 기체유출물감시기에 설치된 샘플라인으로 부터 1회/일, 1000ml 마르넬레비커(Marinelli Beak)를 이용 수동으로 시료를 채취하여 핵종분율을 구하는 방법은 핵연료교체, 관련계통의 퍼지(Purge), 계통상태변화에 따라 유동적인 관리구역내의 핵종별 농도 변화를 반영하기에는 미흡한 점이 있다고 판단하여 시간에 따라 유동적인 관리구역내의 핵종농도 변화를 실질적으로 반영할수 있는 핵종분율 측정방법을 제시하여 시료의 대표성 확보 및 핵종별 배출량을 얻기 위함이다.

2. 핵종분율 측정법 개선방안

핵종분율 측정법에 있어 시간의 변화에 따른 핵종농도 변화를 반영하기 위해서는 연속적인 시료측정을 기초로한 데이터를 이용하는 것이 바람직하다고 판단하여 본 방법론에서는 시료의 연속공급 및 연속되어 공급되는 시료를 측정하기 위한 방법을 구축하였다.

연속측정 설비의 기본 시스템은 기존의 기체유출물감시기 전단에 신설배관을 연결하고 진공펌프 및 유량계 설치하여 일정한 유량으로 감마핵종분석기 검출기 상부에 위치한 시료포집용기에 공기시료를 공급하게 되며 연속적으로 공급되는 공기시료는 감마핵종분석기에 의하여 측정되어지고 측정이 완료된 시료는 시료회수 라인을 통하여 기체유출물감시기 후단으로 회수된다. 이 과정에서 배치파일(Batch file)을 통한 임의의 시간 단위로 측정된 핵종데이터를 가지고 핵종분율을 구하게 된다. 또한 사용되는 시료포집용기는 마리넬리비커의 하부에 시료의 입·출이 가능한 관을 설치하고 용기의 한 공간에 시료가 정제하지 않고 전체를 순환하기 위한 구조를 만들기 위하여 감마선 흡수가 작은 재질로 얇게 약간의 격자를 만들며 연속적으로 공급되는 시료를 측정하여야 하므로 측정시간 동안 반감기에 의한 붕괴는 보정을 하지 않는다. 즉, 보정식에서 측정시간 동안 붕괴하는 값에 대한 보정항 $\frac{1}{1 - e^{-\lambda t_m}}$ 을 수행하지 않는다.

$$A_0 = \frac{\lambda \cdot N_\gamma}{f \cdot \epsilon_P} \cdot \frac{1}{1 - e^{-\lambda t_m}}$$

여기서,

A_0 : 측정초기 시료의 방사능	λ : 붕괴상수
N_γ : 측정된 γ -선 Peak의 면적	t_m : 측정시간
f : 붕괴당 γ -선의 방출비율	ϵ_P : 전에너지 흡수 Peak의 검출효율

본 시스템에 사용되어지는 설비는 현장상황(위치 및 작업공간)을 고려하여 공간의 최소화와 유지관리의 편의성에 중점을 두어 일체형 모듈(Module)의 사용, 검출기의 전기적·기계적 냉각방식을 채택하며 펌프의 후단에 필터를 설치하여 입자에 의한 계통오염을 방지하고 오염시 계통의 세척을 위한 압축공기를 공급할수 있는 라인을 신설하며 주변기기의 원활한 작동을 위한 항온·습을 유지하기 위한 설비와 밀폐된 공간으로 구성된다.

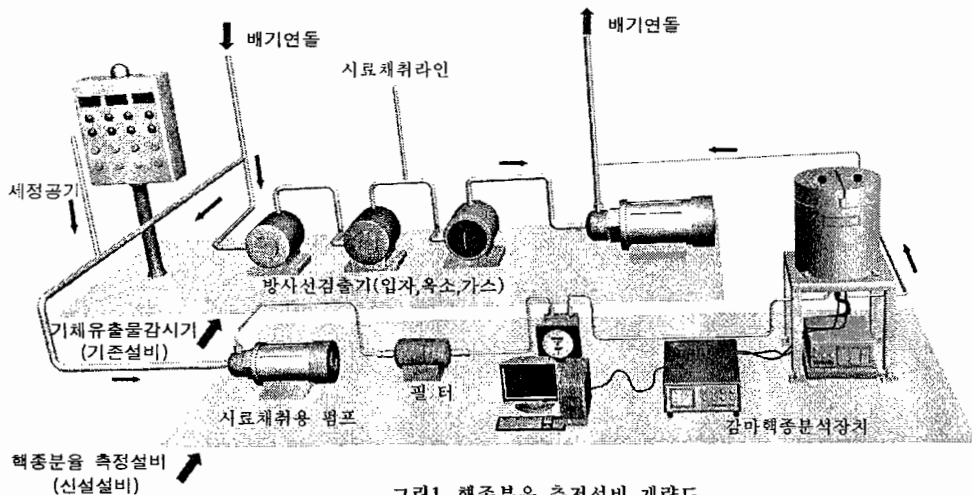


그림1. 핵종분율 측정설비 개략도

3. 결 론

배기구조로 배출되는 불활성기체의 핵종분율 측정에 있어 연속측정 시스템을 구축하여 임의의 시간 단위로 측정이 될 경우 얻을 수 있는 기대효과는 다음과 같다

- 핵연료교체, 관련계통의 퍼지(Purge), 계통상태변화에 따라 유동적인 관리구역내의 핵종별 농도변화에 따른 시료측정의 신뢰성을 높일수 있고
- 주관이 배제된 시료를 얻을수 있으므로 보다 객관적인 배출량 및 선량평가가 이루어 질수 있으며
- 모니터 또는 페이지를 통한 특정 핵종의 변화를 확인할 수 있으므로 계통 이상 유·무의 판단 및 신속한 조치를 할수 있으며
- 운전전수 및 방사선작업에 따른 핵종 데이터의 수집이 쉬워지므로 적절한 작업방법의 선택 및 방사선안전관리를 통한 피폭선량의 감소 및 폐기물저감화를 이룰수 있을 것이다

논토양에서 방사성 I와 Sr의 분배계수

임광목, 전인, 최용호, 박두원, 금동권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)

kmlim@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력 시설로부터 누출된 방사성 핵종은 지표수나 토양을 오염시켜 농산물이나 축산물을 통해 인체 내로 흡수되어 방사선 피폭을 일으키거나 생태계내의 동식물에 방사선적 피해를 줄 수 있다. 방사성폐기물 처분장에서 유출될 수 있는 장반감기 핵종은 일단 누출되면 장기간 동안 지속적으로 주변 토양에 잔존하여 토양에서 생산되는 농작물의 오염을 유발하므로 유출시 주변 토양에 대한 오염특성을 평가하기 위한 특성자료들이 필요하다. 토양에서의 핵종 거동은 토양에 따라 차이가 있으므로 평가의 신뢰도를 위해서는 여러 가지 토양에 대한 특성인자 자료를 확보하여 대표성이 높은 값을 도출하는 것이 중요하다. 여러 가지 토양특성 자료 중에서 핵종의 거동을 예측하는 데 필요한 가장 기본적인 것이 토양 수분과 기질 간 핵종의 분배계수(K_d , distribution coefficient)이다¹⁾. 본 연구에서는 경주 중.저준위 방사성폐기물 처분장 주변 4곳의 논토양을 채취, 건조하여 ^{125}I 및 ^{85}Sr 을 처리한 물이 들어있는 상자에 투입한 후 시간별로 분배계수를 측정하고 핵종 및 토양 간 차이를 분석하였다.

2. 실험 및 결과

2007년 4월에 경주 중.저준위 방사성폐기물 처분장 주변 반경 5 km 내에 분포하는 4곳의 논에서 토양을 채취하였다(그림 1 참조). 토양은 전부 산성 토양으로서 유기물 함량은 3% 내외였고 토성은 대채로 양토 계열이었다.



Fig. 1. Picture of collecting paddy soils

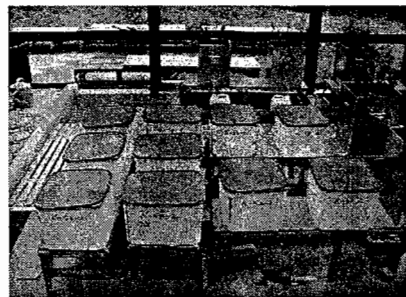


Fig. 2. Picture of the KD experiment box

채취한 논토양을 동위원소 실험온실로 운반한 후 약 10일간 건조시켰다. 5월 22일에 준비한 분배계수(KD) 조사상자(25cm×33cm×20cm)에 햇빛을 차단하기 위하여 흰색 비닐Tape을 부착한 후 물 9 kg(9 L)을 넣은 다음 실험온실 내에 배치하였다(그림 2 참조). 각 조사상자에는 상자당 마이크로피펫을 이용하여 조사상자의 수표면 상에 균등하게 분포하는 10개의 점을 향해 1 ml씩의 방사성 용액을 토양 투입 6일 전에 처리한 다음 토양 투입 직전에 물 시료를 채취하여 방사능 농도를 측정(^{125}I : 263 Bq ml⁻¹, ^{85}Sr : 49 Bq ml⁻¹, carrier free in chloride form, 토양투입일 기준)하고 초기농도로 하였다. 5월 28일에 그동안 증발된 물의 양만큼 보충한 후 건조된 논토양을 상자당 10 kg씩 조사상자에 투입하였으며 실험은 2 반복으로 수행하였다.

분배계수를 산출하기 위하여 표면수를 토양 투입 후 약 5시간, 1일, 3일, 8일에 그리고 이후로는 1주일~3주일 간격으로 채취하였다. 시료의 채취량은 토양 투입일에만 상자당 6 ml씩을, 그 후로는 상자당 10 ml씩을 채취하였다. 채취한 시료는 계측용기에 HCl(conc.) 3 ml와 증류수를 혼합하여 높이를 일정하게 맞춘 후 HPGe 검출기(EG&G, ORTEC)를 이용한 γ -spectrometry법으로 핵종

농도(Bq/ml)를 측정하고 식 (1)과 같이 분배계수(Kd, ml/g)를 산출하였다.

$$K_d = \frac{\text{액종의 고상 농도 (Bq/g-solid)}}{\text{액종의 액상 농도 (Bq/ml-liquid)}} \quad (1)$$

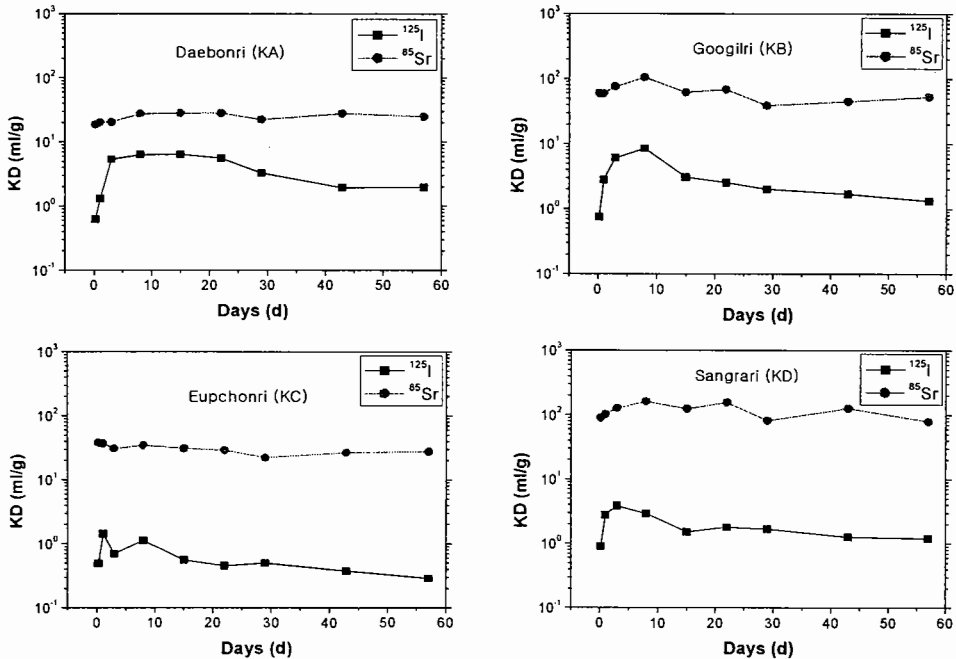


Fig. 3. Time courses of distribution coefficients of ¹²⁵I and ⁸⁵Sr in the flooded soils.

각 논토양에서 측정된 분배계수는 그림 3과 같다. ¹²⁵I는 대체적으로 토양투입 후 약 1주일 정도까지는 분배계수가 급격히 증가하다가 그 이후부터는 서서히 감소하는 경향을 보였으며, ⁸⁵Sr는 ¹²⁵I에 비해 분배계수가 대체로 1 order 정도 컸으나 시간에 따른 변이는 훨씬 작았다. 두 핵종 간 분배계수의 차이로 볼 때 토양에서 방사성 I의 이동성이 방사성 Sr보다 훨씬 클 것으로 예측된다. 한편, 뿌리흡수에 있어서는 특정 핵종에 대한 작물체의 능동적 흡수 등이 매우 중요하므로 분배계수 값만으로 대소를 예측하는 것은 적절치 않은 것으로 보인다. 토양별로는 ¹²⁵I의 경우 읍천리 토양에서 분배계수가 가장 낮았으며 다른 토양에서는 대체로 비슷하였다. ⁸⁵Sr의 경우에는 상라리 토양에서 분배계수가 가장 높았으며 대본리와 읍천리 토양에서 가장 낮았다.

3. 결론

경주 중·저준위 방사성폐기물 처분장 주변 4곳의 논토양을 채취하여 ¹²⁵I와 ⁸⁵Sr를 처리한 물에 투입한 후 시간별로 지표수의 방사능 농도를 측정하여 핵종의 분배계수를 조사하였다. 토양별로는 읍천리 토양에서 대체적으로 분배계수가 낮은 경향을 보였으며, 핵종 간에는 ⁸⁵Sr가 ¹²⁵I에 비해 4배~100배 정도 높았다.

감사의 글 : 본 연구는 과학기술부가 주관하는 원자력 연구개발 사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

- 1) C.F. Baes, R.D. Sharp, A.L. Sjoreen, R.W. Shor, A review and Analysis of Parameters for Assessing Transport of Environmentally Released Radionuclides through Agriculture, ORNL-5786, 1984.

영광원자력발전소 주변 해양시료에서 입도 및 우라늄 분포경향 평가

염유선, 김승평, 한상준, 홍성열*

조선대학교, 광주광역시 동구 서석동 375번지

*한수원(주), 서울특별시 강남구 삼성동 167번지

ysyeom@stmail.chosun.ac.kr

1. 서론

2007년 현재 영광원자력발전소는 6개 호기가 가동 중에 있고, 원자력발전이 안전하다는 인식이 과거에 비해 높아졌으나 방사성폐기물과 원자력발전소의 사고, 고장 등의 잠재적 요인에 따른 환경적 부담은 여전히 논란이 되고 있기 때문에 원전주변의 환경시료를 체계적·지속적으로 계측 및 분석한 후 그 결과를 공개함으로써 원자력시설물이 위치한 지역 주민뿐만 아니라 국민들로부터 원자력산업에 대한 신뢰성 확보 및 증진에 지속적으로 노력할 필요가 있다.

이러한 일환으로 본 연구에서 2006년도에 실시한 영광해양방사능 종합조사는 1999년 실시한 1차 조사 범위와 동일하게 영광원자력발전소 배구수를 중심으로 조류 방향에 따라 남·북으로 각 10km(총 길이 20km), 바다쪽으로 5km(폭 5km)에 해당하는 해양과 해안 지역을 대상으로 조사한 입도 및 우라늄 분석결과를 1차년도와 비교 검토함으로써 원자력발전소에 의한 영향 여부를 평가하고자 하였다.

2. 실험 방법

1) 우라늄 및 초우라늄 분석

우라늄 분석의 경우 토양시료 7g을 10시간동안 500℃로 회화시켜 ^{232}U 1mL (0.182 Bq/mL)를 추적자(Yield tracer)로 가한 뒤 질산(80mL)과 불산(20mL)을 이용하여 토양의 Matrix 성분을 분해하였다. TBP와 CCl_4 유기용매를 이용하여 우라늄을 수층에서 유기층으로 추출하였고, 8M 염산을 사용하여 토륨성분을 제거하였다. 다시 1M 염산으로 우라늄 성분을 역추출하여 우라늄만을 순수 분리하였다. 전기전착용액을 이용하여 우라늄 성분을 전기 전착시켜 분석을 수행하였다.

초우라늄의 경우 유기물을 제거하기 위해 해저퇴적물 시료 50~100g을 550℃에서 24시간동안 회분시켰다. ^{242}Pu (Yield tracer, 0.02865 Bq/mL) 1mL를 가한 뒤, 8M 질산(HNO_3), 0.9M 불산(HF), 1M 질산알루미늄($\text{Al}(\text{NO}_3)_3$)용액을 이용하여 Matrix 성분을 분해한 후 0.2M TOPO (Triethylphosphine Oxide in Cyclohexane)을 이용하여 다른 Matrix 성분으로부터 Pu를 분리한 후 0.5M 아스코르브산(ASCORBIC ACID IN HCl)을 이용하여 Pu를 역추출하였다. 방해 핵종(Other α -emitting radioisotopes)을 제거하기 위해 LaF_3 을 이용한 공침 과정과 Column을 이용한 음이온교환(Dowex 1×8, 100~200mesh) 과정을 거쳤다. 전기전착 용액을 이용하여 Stainless steel disc에 Pu를 전착(800~900mA for 2hrs)시킨 후 α -ray spectrometry(Model 676A, EG&G ORTEC)로 계측하였다.

2) 입도 분석

퇴적물을 입도 분석을 위한 시료는 10%의 H_2O_2 와 0.1M HCl을 차례로 넣고 유기물과 탄산염을 제거한 후 습식체질(Wet sieving)에 의하여 조립질과 세립질로 분리하여 이 중 조립질은 건조 후 진탕기(Rotap sieve shaker)로 15분간 체질하여 입도별 무게를 구하였고, 세립질은 침전시킨 후 마그네틱 자동교반기를 이용하여 대표성을 띌 수 있도록 교반시켜 적당량(약 5g)을 취하여 자동입도 분석측정용 시료로 제작하여 Master-Size(X350F)를 사용하여 분석하였다.

3. 분석 결과

1) 해저퇴적물 $^{239+240}\text{Pu}$ 및 우라늄(^{238}U , ^{235}U , ^{234}U) 분석결과

조사해역 10개 지점에서 $^{239+240}\text{Pu}$ 분석용 해저퇴적물 시료를 채취한 후 농도를 분석하였고, 그 결과를 [Table 1]에 나타내었다.

Table 1. Analysis result on $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{238}U , ^{235}U , ^{234}U in submarine sediment (단위 : Bq/kg-dry)

sample NO.	$^{239+240}\text{Pu}$		^{238}U		^{235}U		^{234}U		Ratio of $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	
	1차 조사	2차 조사	1차	2차	1차	2차	1차	2차	1차	2차
b38	0.13±0.03	0.058±0.013	11.8±0.54	6.10±0.57	0.59±0.13	<0.06	11.6±0.54	5.83±0.56	0.98	0.96
g11	0.20±0.03	0.081±0.010	12.4±0.56	10.3±0.50	0.53±0.12	0.15±0.06	11.8±0.55	10.0±0.49	0.95	0.97
g31	0.10±0.02	0.130±0.008	9.77±0.41	13.4±0.93	0.41±0.08	<0.006	9.98±0.41	13.6±0.94	1.02	1.02
k1	0.14±0.02	0.073±0.012	13.4±0.65	16.1±1.66	0.48±0.12	0.34±0.24	12.6±0.64	13.9±1.54	0.94	0.86
k21	0.17±0.02	0.113±0.020	13.4±0.57	14.9±1.01	0.63±0.12	<0.06	13.2±0.57	12.8±0.93	0.99	0.86
k41	0.10±0.02	0.055±0.011	12.1±0.51	10.8±0.75	0.63±0.12	0.37±0.14	11.6±0.50	11.2±0.76	0.96	1.03
C3	0.09±0.03	0.231±0.048	10.6±0.49	12.9±0.71	0.46±0.12	0.31±0.11	10.1±0.48	12.7±0.70	0.95	0.98
C15	0.14±0.03	0.013±0.015	12.3±0.59	11.2±0.66	0.71±0.14	0.35±0.12	13.0±0.60	12.6±0.70	1.06	1.13
M3	0.18±0.02	0.329±0.069	13.7±0.56	14.9±0.96	0.78±0.13	0.98±0.25	13.0±0.54	16.9±1.01	0.95	1.13
M15	0.05±0.02	0.225±0.039	15.9±0.64	14.1±0.78	0.85±0.15	0.98±0.21	15.2±0.63	14.8±0.80	0.96	1.05

2) 입도 분석

1 ϕ 간격으로 선별된 시료들은 각 시료마다 중량비로 환산하여 Folk(1968)와 McBride(1971) 방법에 따라 통계처리 및 누적분포곡선을 그린 후 Folk and ward(1957) 방식을 이용하여 $M_z\phi$ (mean ϕ)값을 산출하였고, 그 결과를 [Table 2]에 나타내었다.

Table 2. Granularity analysis result on submarine sediment

sample NO.	$M_z\phi$ (mean ϕ)	sediment type	sample NO.	$M_z\phi$ (mean ϕ)	sediment type	sample NO.	$M_z\phi$ (mean ϕ)	sediment type	sample NO.	$M_z\phi$ (mean ϕ)	sediment type
a39	5.13	medium silt	g-33	4.67	coarse silt	E5	5.17	medium silt	O3	4.68	coarse silt
b36	5.17	medium silt	k-1	5.99	medium silt	E13	5.48	medium silt	O16	4.78	coarse silt
b38	4.83	coarse silt	k-21	6.80	fine silt	L8	4.76	coarse silt	O19	4.71	coarse silt
c5	5.30	medium sand	k-41	4.60	coarse silt	L12	4.97	coarse silt	P14	4.60	coarse silt
c11	3.56	fine sand	A-1	5.09	medium silt	L20	4.60	coarse silt	Q1	3.58	very fine sand
c15	5.08	medium silt	A-3	4.97	coarse silt	M1	5.41	medium silt	Q3	4.73	coarse silt
c17	5.39	medium silt	A-14	5.95	medium silt	M5	5.03	medium silt	R6	5.26	medium silt
f40	5.27	medium silt	D-6	5.44	medium silt	M7	4.95	coarse silt	R7	4.73	coarse silt
g11	5.73	medium silt	D-10	5.83	medium silt	N9	5.75	medium silt	S95	2.33	fine sand
g31	4.53	coarse silt	E-1	4.00	very fine sand	O1	4.95	coarse silt	T34	2.18	fine sand

4. 결론

$^{239+240}\text{Pu}$ 농도 경향은 2차 조사 결과가 1차 조사에 비해 다소 높게 나타났지만 배수구를 기준으로 거리에 따른 확산 경향은 나타나지 않았다. 2005년도에 한국원자력안전기술원에서 한국 주변해역의 해저퇴적물을 대상으로 조사한 후 제시한 $^{239+240}\text{Pu}$ 농도는 0.39 Bq/kg-dry로 1차 및 2차 조사 결과로 나타난 농도 값이 일반 해양환경에서의 농도 범위에 포함되었다. 조사 결과로 나타난 ^{234}U 와 ^{238}U 의 방사능 농도비 범위는 0.86~1.13로 자연 환경에 존재하는 농도비인 1.03과 큰 차이가 없는 것을 확인 할 수 있었다. 이러한 계측 및 분석 결과로부터 본 조사에서는 원전 운영으로 인한 영향은 나타나지 않았다.

발전소 주변 해역에서 채취한 해저퇴적물의 입도분석 결과 $M_z\phi$ 는 0.71~6.80이었고, Silt와 Clay, Colloid의 양은 각각 0.18~61.9%, 0~13.4%, 0~16.2%에 이르기까지 매우 다양하게 나타났으며, 2차 조사 결과로 나타난 $M_z\phi$ 가 1차에 비해 높게 나타나고 있는 것을 볼 수 있는데, 이러한 경향을 보이는 것은 시간이 증가함에 따라 해저퇴적물을 구성하고 있는 입자들이 점점 작아지거나 미세해짐에 따라 나타나는 현상이라 판단된다.

참 고 문 헌

1. 한국전력공사, "영광원전 주변 해양방사능 종합조사", 1999, 2007.
2. 한국수력원자력(주), "원자력발전소 주변 환경방사선조사보고서", 2006.
3. 한국원자력안전기술원, "전국환경방사능 조사", 2006.

인공신경망을 이용한 환경방사능자료의 결측값 처리

정효준, 한문희, 황원태, 김은한

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

jeong1208@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설 주변 환경 중에 존재하는 방사능 물질 모니터링을 위해, 방사성물질을 주기적으로 혹은 실시간으로 측정하고 있다. 그러나 기기의 고장이나 측정과정상의 문제로 인하여 결측값이 발생할 수 있다. 결측값은 자료의 연속성을 방해하여 원자력 시설에서 주기적으로 실시되는 환경 영향평가에 어려움을 줄 수 있다. 따라서, 본 연구에서는 시간에 따라 연속적으로 측정된 자료 중 확보가 가장 용이한 공간감마선량율을 이용하여 환경모니터링 과정 중에 발생할 수 있는 결측값을 처리하기 위한 인공신경망의 적용가능성을 검토하였다.

2. 방법 및 결과

인공신경망은 인간 신경세포인 뉴런의 시스템을 컴퓨터를 이용하여 구현한 인공지능 분야의 하나로써, 패턴 인식, 식별 및 분류, 의사결정 등에 응용되고 있는 기술이다. 인공신경망은 결측값 처리에 이용되는 보간법이나 다중회귀 등의 방법에 비해 비선형함수의 지원이 가능하여 환경자료의 처리에 널리 이용되고 있다. 인공신경망의 입력층은 입력데이터(x_i), 연결강도 벡터(w_{ji}), 임계값 벡터(B_j)를 이용하여 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$I_j = \sum w_{ji} x_i + B_j$$

입력층에서 계산된 값은 미리 설계된 전이함수에 의해 아래의 식과 같이 계산된 값을 은닉층(혹은 중간층)으로 출력하게 된다.

$$y_j = f(I_j)$$

은닉층에서는 y_j 값을 전달받아 아래와 같이 반응벡터(L_k)가 구해지고, 전이함수를 거쳐 출력층으로 보내지게 된다.

$$L_k = \sum w_{kj} y_j + B_k$$

여기서 y_j 는 은닉층의 입력데이터, w_{kj} 는 은닉층의 연결강도 벡터, B_k 는 은닉층의 임계값을 나타낸다. 신경망은 출력 값과 목표값을 비교하여 평균제곱오차(Mean Square Error)를 계산하게 된다.

$$MSE = \frac{1}{n} \sum (O_d - O_p)^2$$

여기서 O_d 는 목표값, O_p 는 신경망에 의한 계산값, n 은 데이터의 수를 나타낸다. 인공신경망은 입력층을 통과하여 결과층의 출력이 목표값과 비교되는 주기(Epoch)를 반복하면서 학습(훈련)이 이루어진다.

본 연구에서는 인공신경망 모형을 구축하기 위해 1998년부터 2004년 까지 대전에서 측정된 월별 공간감마선량 시계열 자료를 그림 1과 같이 모델개발과 검증에 8:2로 배분하여 사용하였다. 과거보고시에는 공간감마선량율의 보고준위를 시간당평균값의 개념을 사용하고 있으나 본 연구에서는 환경 중에서 측정되는 모든 방사성물질의 결측치 처리에 대한 확장성을 염두에 두고 공간감마선량의 월평균 데이터를 사용하였다. 인공신경망은 그림 2와 같이 입력층의 자료가 출력층의 자료에 근사하도록 각 층 사이의 연결강도가 조정되도록 학습되었다. 입력층의 구성을 위해 예상되는 결측값과 전시간대의 측정된 값들과의 상관계수를 조사하였다. 상관계수가 0.3을 초과하는 t-6까

지의 값을 입력층으로 배치하고 예측이 예상되는 t시간대의 값을 추정하도록 인공신경망을 구성하였다. 신경망은 학습오차가 1×10^{-3} 에 도달하거나 1,000 Epoch에 도달하면 종료하도록 설계하였다.

인공신경망의 훈련은 은닉층의 뉴런 갯수가 각각 15와 9일 때에 가장 양호하였다. 훈련자료 중 10%를 유효자료로 사용하여 과도한 훈련을 방지 하였으며, 첫 번째 은닉층과 두 번째 은닉층이 15와 9를 초과하면 과도 훈련되어 유효자료의 상관성이 급격히 감소함을 확인할 수 있었다. 그림 3은 인공신경망의 훈련결과와 검증결과를 나타낸 것으로, 훈련자료 간의 상관계수는 0.96이었으며 검증자료의 상관계수는 0.78이었다. 검증자료의 높은 상관성으로 보아 구축된 인공신경망은 예측 값을 적절히 처리하고 있음을 알 수 있다.

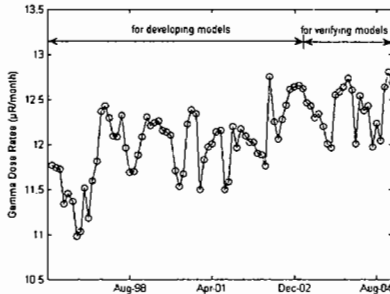


그림 1. 월별 공간감마선량 시계열 자료

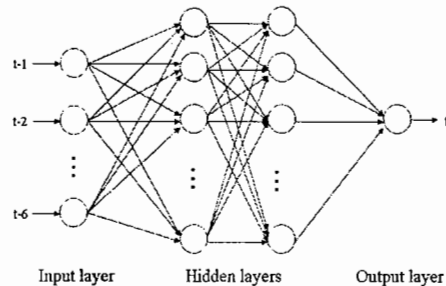


그림 2. 인공신경망의 구조

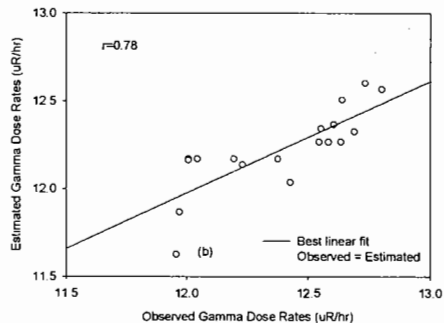
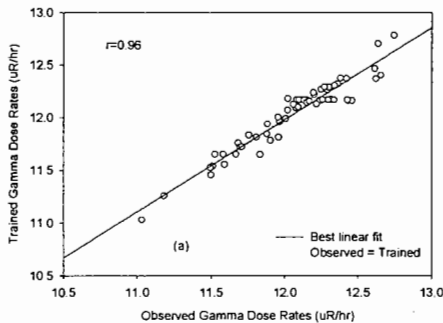


그림 3. 인공신경망의 훈련 및 검증

3. 결론

본 연구에서는 원자력 시설에서 측정되는 환경자료의 예측값을 처리하기 위한 방법으로 인공신경망을 사용하였으며, 그 적용가능성을 공간감마선량을 자료를 이용하여 검토하였다. 구축된 인공신경망은 예측이 나타난 시점부터 6번째 이전의 값을 사용하여 양호하게 예측값을 처리함을 확인하였다. 본 연구에서는 자료의 획득이 용이한 공간감마선량을 이용하여 인공신경망 모형을 구축하였으나, 측정주기 및 방법이 다른 방사성물질의 예측값 처리에도 적용이 가능할 것으로 판단된다.

참고문헌

1. Mathworks, Neural network toolbox user's guide, 2000
2. U. Brunelli, V. Piazza, L. Pignato, F. Sorbello, S. Vitabile, Two-days ahead prediction of daily maximum concentrations of SO₂, O₃, PM₁₀, NO₂, CO in the urban area of Palermo, Italy. Atmospheric Environment 41, 2967-2995.

SMART 원자로 방사선비상기초구역 설정을 위한 소의선량 평가

이재민, 전종선, 박상규, 김태현, 한병섭

(주)에네시스, 대전광역시 유성구 장대동 337-2번지

imlee@enesys.co.kr

1. 서론

원자력발전소에서 방사성물질 누출사고시 주민보호를 위해 신속하고 효과적인 비상대책이 집중적으로 강구되어야 할 지역으로 "비상계획구역"이 설정되어 있다. 현재까지 "비상계획구역"은 대용량 상업용원자로 중심으로 설정되었다. 그러나 SMART 원자로의 경우 중소형원자로이며 현재 운전중인 발전용 원자로와는 그 구조 및 안전성 확보 정도가 다르다. SMART 원자로의 경우 기존 원자력발전소에 비해 획기적으로 안전성을 확보하도록 설계되었다. 이러한 안전성 확보를 위한 노력과 비용은 운영, 유지, 보수 비용 및 사회적 수용성 확보 비용과 상쇄되어야 할 것이다. 본 연구에서는 국내외 개량형 경수로 연구자료를 기초로 SMART 설계자료를 반영한 기초 평가를 수행하였다.

2. SMART 원자로 방사선비상기초구역 설정을 위한 소의선량 평가

비상계획구역 설정시 피폭경로에 대한 구역을 설정해야 한다. 피폭 경로는 방사능운에 의한 경로와 섭취에 의한 경로로 구분하는 것이 적절하다고 판단된다. 방사능운에 의한 피폭 경로의 주된 피폭 원인은 방사능운과 흡착 물질에 의한 감마선 외부 피폭과 방사능운 경로에 따른 흡입 피폭이 있다. 잠재적 피폭은 수 시간에서 수일에 걸쳐 일어나게 되며, 섭취 피폭경로의 주된 피폭 원인은 오염된 생야채나 우유와 같은 음식과 물을 통해 일어난다. 잠재적 피폭은 수 시간에서 수개월에 걸쳐 일어난다.

SMART 원자로의 사고시 소의결말 분석을 평가하였다. 노심재고량 평가를 위하여 ORIGEN-2 코드를 사용하였다. 이 코드는 미국 ORNL에서 개발한 것으로 현재 가동중인 상업용 원자로에 대부분 적용이 가능하여 이 코드를 통하여 노심내 방사화 생성물, 핵분열생성물, 악티나이드 및 중성자, 광자에 대한 재고량을 평가할 수 있다. SMART 원자로 재고량 평가를 위하여 PWRUS 라이브러리를 적용하였고 660MWth, EFPD 1000일 운전 조건으로 코드 계산을 수행하였다. 본 연구에서는 NUREG-1465의 사고시 방사선원항 연구결과와 EPRI TR-113509에서 제시한 연구결과를 바탕으로 환경방출 선원항을 가정하였다. SMART 원자로의 경우 개량형경수로 수준의 안전성을 확보한다는 가정을 통하여 환경방출 선원항을 도출하였다. 기본적인 가정으로는 가상 중대사고를 설정하고 기본적인 핵종군별 방출분율은 NUREG-1465를 적용하였고 이중 요오드 핵종군에 대하여 EPRI 연구의 AP600 노형에 적용하였던 방출분율을 적용하였다. EPRI의 AP600 연구의 경우와 같이 격납건물의 건전성은 유지된다는 가정을 설정하고 격납건물 설계누설율을 0.15 volume%/day로 적용하여 환경방출 선원항을 도출하였다. 사고 발생후 24시간동안 환경방출선원항이 대기로 방출된다고 가정하여 소의 선량 평가에 적용하였다. 사고시 SMART 원자로의 소의 선량 평가를 위하여 EPRI의 방법론을 적용하였다.

소의선량 계산을 위한 코드로는 확률론적 선량평가 코드인 MACCS-2 코드를 사용하였고 기상 자료는 울진 원전 지역의 기상자료를 이용하였다. 선량은 총유효선량당량(TEDE)이며 누출높이로는 지표누출을 고려하였다. 이상과 같은 입력자료를 바탕으로 소의선량 평가를 수행하여 그 결과

를 원자로 중심반경에 따른 선량값으로 다음 표 1과 그림 1에 나타내었다. 여기서 50% 확률값의 선량은 옥내대피 기준인 10 mSv에 대응하는 값이고 90% 값은 소개 기준인 50 mSv에 대응하는 값이다.

표 1. SMART 원자로 거리별 소외선량

거리(m)	50% TEDE(Sv)	90% TEDE(Sv)
100	9.47E-02	3.15E-01
200	1.77E-02	5.20E-02
300	1.68E-02	3.04E-02
400	9.40E-03	2.05E-02
500	9.34E-03	1.16E-02
600	6.60E-03	1.07E-02
800	6.55E-03	7.65E-03
1000	4.57E-03	5.49E-03

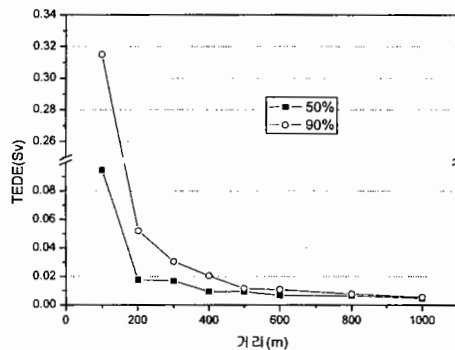


그림 1. SMART 원자로 거리별 소외선량

위 표 1과 그림 1에서 알 수 있듯이 SMART 원자로 사고시 옥내대피에 대응하는 50% 확률값에서 거리 400 m에서 피폭선량이 9.43 mSv로 나타났고 소개에 해당하는 90% 확률값에서는 거리 300 m에서 피폭선량이 30.4 mSv로 나타났다.

3. 결론

SMART 원자로의 기본적인 특성과 개량형 경수로의 안전 특성을 통하여 주민보호지침을 만족하는 거리를 평가하였다. 기존 상업용 경수로에 비해 작은 노심재고량과 과거 비상계획구역 설정 시 적용하였던 방출율을 경수로에 대하여 개선한 NUREG-1465의 방출선원항을 적용한 결과, 주민보호지침을 만족하는 거리가 400m 정도로 축소됨을 알 수 있었다. 그러나 최종적으로는 기술적 평가의 불확실성을 고려한 안전여유도와 규제측면의 여유도를 설정하고, 더불어 주민 수용성, 정책적 측면, 비용효과 등의 평가를 통하여 방사선비상기초구역을 설정하여야 할 것이다.

국내 중·저준위방사성폐기물 관리현황에 대한 고찰

우주희

한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 구성동 19번지

woozoo78@kins.re.kr

이 논문에서는 우리나라 방사성폐기물 관리의 실태를 파악하기 위하여 국내 원자력이용시설의 분포 및 운영현황을 종합적으로 살펴보았다.

- 국내 원자력이용시설 분포 및 시설현황

국내 원자력이용시설은 크게 발전용 원자력이용시설과 비발전용 원자력이용시설로 구분할 수 있다. 발전용 원자력이용시설에는 한국수력원자력(주)에서 운영 중인 경수로 16기와 중수로 4기의 발전용 원자로가 해당되며, 비발전용 원자력이용시설에는 그 성격에 따라 폐기시설, 해체시설, 교육시설 그리고 연구 및 기타시설로 분류할 수 있다. 2006년말 기준, 국내 방사성폐기물을 관리 중인 주요 원자력이용시설의 위치와 시설현황을 간략하게 정리하면 아래 그림1과 같다.

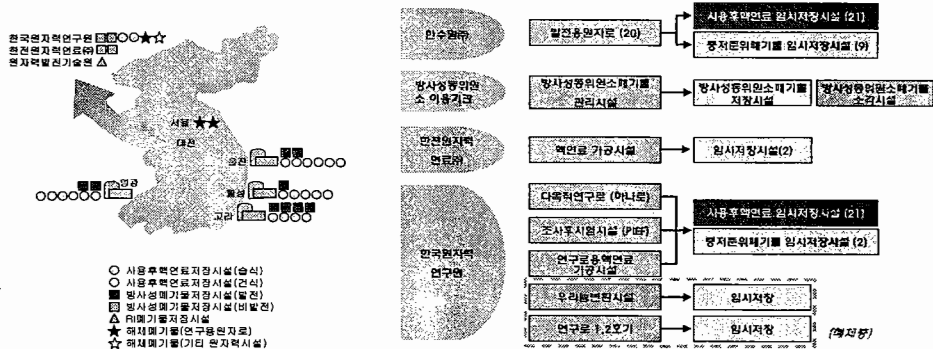


그림1. 방사성폐기물 관리기관 위치 및 시설현황 (2006. 12. 31 기준)

- 중·저준위방사성폐기물 관리현황

방사성폐기물은 그 물리적인 상태에 따라 고체, 액체 그리고 기체 방사성폐기물로 분류할 수 있으며, 이중 고체폐기물에는 잡고체(제염지, 작업복, 장갑, 신발 등), 농축폐액, 폐수지, 폐필터 등이 포함된다. 그림2는 2006년말 기준 국내 중·저준위 방사성폐기물 종합 저장현황을 나타낸 것이다.(단, 핵연료물질 이용과정 중 발생된 부산물은 제외)

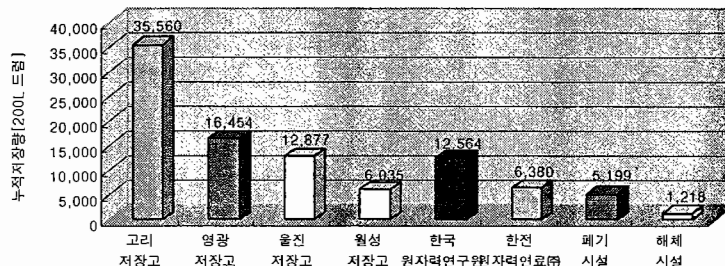


그림2. 국내 중·저준위 방사성폐기물 종합 저장 현황 (2006. 12. 31 기준)

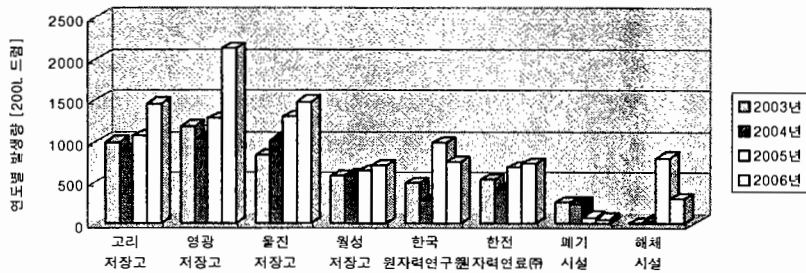


그림3. 국내 중·저준위 방사성폐기물 연도별 발생 현황

그림2에서 알 수 있듯이, 가장 오랜기간 운전 중인 고리부지가 발전시설 중 가장 많은 저장량 분포를 나타내며 이는 비발전시설의 총저장량 보다 높은 수치이다.

그림3은 국내 중·저준위 방사성폐기물의 연도별 발생 현황을 나타낸다. 발생량 추이변화를 보면 발전시설의 경우 전년도 대비 저장량이 계속해서 증가하며, 특히 2006년 고리와 영광의 경우 사용 후핵연료의 조밀저장대 교체 과정에서 방사성폐기물이 추가로 발생하였다. 비발전시설의 해체시설은 2005년 연구로1,2호기 해체작업으로 인하여 해체폐기물이 크게 증가하였고, 폐기시설에서는 허용기준치 이상의 방사성폐기물 인수에 대한 관리기준 강화와 동위원소폐기물에 대한 자체처분 활성화로 저장량의 변화가 거의 없다.

한편, 액체 및 기체방사성폐기물의 경우 과기부고시 제2002-23호(방사선방호 등에 관한 기준) 제6조(배출관리기준)에 따라 부지별로 배출된 액·기체유출물의 방사능을 핵종군별로 구분하여 관리하고 있으며, 2006년 한 해 동안 부지별로 배출된 액·기체유출물의 총 방사능량을 각각 그림4의 (a)와 (b)에 도시하였다. 또한, 이에 따른 부지별 소외주민의 예상피폭선량은 그림4의 (c)와 같다.

2006년 한 해 동안 부지별로 배출된 액체 유출물의 방사능을 살펴본 결과, 발전시설 부지의 경우 삼중수소와 핵분열성 및 방사화생성물이 액체 유출물의 상당 부분을 차지하고 있으며, 반면에 비발전시설이 있는 대전 덕진동 부지의 경우 전알파 및 전베타가 대부분을 차지하고 있다.

또한, 기체 유출물의 경우, 발전시설 부지에서는 공통적으로 삼중수소와 불활성 기체가 대부분을 차지하였고 특히 중수로인 원성부지의 경우 삼중수소와 불활성 기체에 의한 영향이 경수로보다 크게 나타났다. 반면에 대전 덕진동 부지에서는 삼중수소와 불활성 기체를 비롯하여 여러 기타 핵종도 배출되었다.

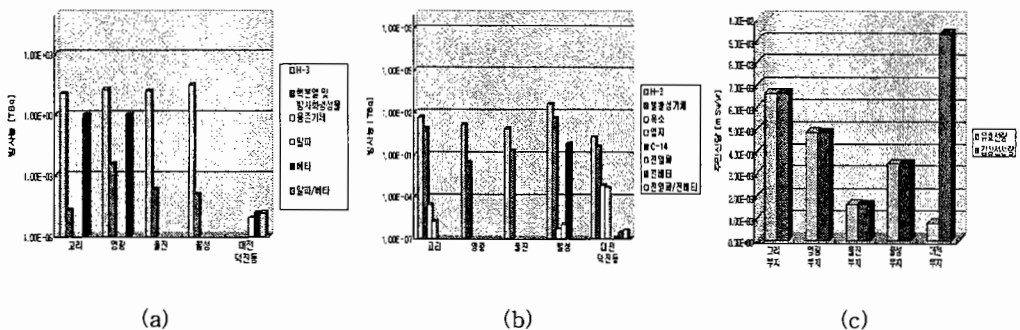


그림4. 부지별 액·기체유출물 방사능 및 주민피폭선량((a)액체, (b)기체, (c)주민피폭선량, 2006년도)

본 논문에서는 방사성폐기물 관리에서의 정보공개의 중요성 차원에서 현재의 전반적인 방사성폐기물 관리현황에 대하여 소개하였다. 이러한 자료는 우리나라의 방사성폐기물 발생 추이 및 관련 연구에 기초자료로 활용될 것으로 예상된다.

방사성폐기물 드럼 비파괴 검사를 위한 X-ray 장비 평가

박종길, 맹성준, 황태원

한수원(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1번지

gospel77@khnp.co.kr

1. 서론

원전에서 발생된 방사성폐기물 드럼을 영구 처분장에 처분하기 위해서는 드럼 내용물의 물리화학적 특성이 처분사업자가 제시한 인수요건에 적합한지를 검사해야 한다. 검사해야 할 항목은 크게 두 가지로 분류할 수 있는데, 그 중 한 가지는 대표드럼을 선정하고 선정된 드럼내용물의 시료를 채취하여 분석하는 파괴분석 항목이고 다른 하나는 드럼의 내용물의 시료를 채취하지 않고 분석하는 비파괴분석 항목이다. 인수기준 중 파괴분석항목으로는 킬레이트제 농도, 고화체의 침출지수, 방사선 영향, 압축강도, 유리수, 가스 발생, 부식성, 폭발성 물질 등 유해물질의 존재 유무 및 농도 등이며 비파괴 분석항목으로는 내용물, 빈 공간, 유리수, 압축강도이다. 압축강도와 유리수가 파괴 및 비파괴 항목 모두에 해당하는 이유는 대표시료를 채취하여 파괴적인 방법으로 측정할 수도 있고 비파괴 장비를 사용하여 측정할 수도 있기 때문이다. 비파괴 검사 기술 중 X-ray CT(computed tomography) 기술을 이용하면 드럼내 내용물 파악은 물론 빈공간과 유리수에 대해 정량분석이 가능한 것으로 알려져 있다[1,2]. 본 논문에서는 원전에서 보관하고 있는 드럼들의 특성을 분석하고 검사에 필요한 X-ray 에너지를 계산하여 검사 장비 사양을 결정한다. 그리고 나서 검사방법에 대한 시나리오를 구성하며, 각 시나리오별로 소요되는 비용을 계산하여 경제성 비교를 하고 경제성이 우수한 시나리오들의 적용 가능성 등을 고려하여 최적의 시나리오를 선정한다.

2. X-ray 출력 결정

X-ray 비파괴 검사장비를 이용하여 검사해야 할 내용은 드럼의 내용물, 유리수 정량분석(HIC 드럼의 경우 1 vol.%이하, 기타 드럼은 0.5 vol.% 이하임을 입증), 채움율(85% 이상)이다. X-ray 검사 장비의 사양을 결정하기 위해서는 드럼 종류별로 드럼 사양 및 내용물을 조사하고 드럼을 투과시킬 수 있는 X-ray 출력을 결정해야 한다. 원전별로 보유하고 있는 드럼 종류는 크게 320 L 이하 드럼, 1,200 L 드럼 및 2,000 L 드럼으로 나눌 수 있는데 본 논문에서는 320 L이하의 드럼만 X-ray를 이용하여 검사한다고 가정하고 드럼별 구성 물질을 조사하여 X-ray의 출력별 투과 능력을 계산하였다. 검사체가 복합적인 재료로 이루어져 있을 때 X-ray 투과율은 다음 식으로부터 구해진다.

$$I_n = I_o \exp \left[- \sum_{i=1}^n (\mu_i x_i) \right]$$

여기서 μ_i 는 물질 i 의 선형감쇠계수이고 x_i 는 해당 물질의 두께이다. 투과율을 계산하기 위해 드럼의 구성 물질들에 대한 선형감쇠계수를 구하였다. 복합물질의 선형감쇠계수는 NIST의 웹사이트[3]에 제공되어 있는 질량감쇠 계수에 각 물질의 밀도를 곱하여 계산하였다. 적절한 X-ray 에너지 선정기준은 일반적으로 엑스선 검출기의 신호대 잡음비(S/N) 값을 고려하면 투과율(I/I_o)은 10^{-4} 이상이 되어야 한다.

계산결과 450 KeV X-ray 장비를 이용하여 검사가 가능한 저밀도 드럼 수는 58,992 드럼으로 나타났고 드럼 종류는 DOT-17H(200 L)(가연성 잡고체, 비가연성 잡고체, 탈수 폐수지, 파라핀 고화체), 차폐 잡고체(260 L)(가연성 및 비가연성 잡고체), DOT-17H 재포장(320 L)(가연성 및 비가연성 잡고체, 탈수 폐수지, 파라핀 고화체), 차폐 잡고체 재포장(320 L)(가연성), 초고압 압축 재포장(320 L)(가연성 잡고체, 철재 드럼을 제외한 비가연성 잡고체)로 나타났다. 2.3 MeV X-ray 장비를 이용하여 검사가 가능한 고밀도 드럼 수는 18,502 드럼으로 나타났고 드럼 종류로는 DOT-17H (200 L)(붕산 및 폐수지 시멘트 고화체, 폐필터 드럼), DOT-17H 재포장(320 L)(붕산 및 폐수지 시멘트 고화체, 폐필터 드럼), 초고압 압축 재포장(320 L)(철재)로 나타났다.

3. 검사시나리오 구성 및 경제성 검토

검사 시나리오 구성을 위해 다음과 같이 가정하였다: ① 기 발생 폐기물을 처리한 후에는 고밀도 드럼은 발생하지 않는다, ② 연간 검사대상 드럼 수는 13,000드럼이다, ③ 검사방법은 RTR(Real Time Radiography)로 유리수 및 빈공간 존재 유무를 빠르게 검사하고 상세검사가 필요한 경우에는 CT 검사를 수행한다. 이때 드럼당 소요되는 시간은 RTR 검사 5분, RTR과 CT검

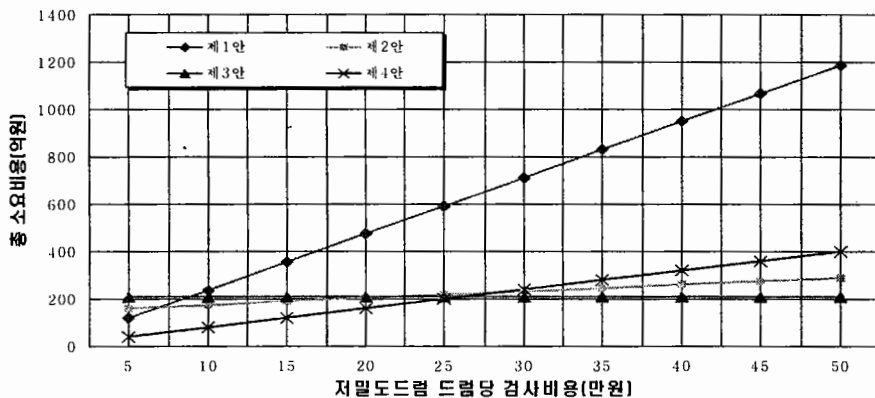
사를 함께 하는 경우는 30분이다, ⑤ 검사에 투입 가능시간은 약 1,664 시간이다($52\text{주} \times 0.8(\text{연간 유효작업 분율}) \times 5\text{일/주} \times 8\text{시간/일} = 1,664\text{시간}$).

연간 검사해야 할 13,000드럼을 검사하는데 필요한 X-ray 장비 숫자를 계산하기 위해 CT 검사를 해야 할 드럼 분율에 따라 검사소요시간을 계산하고 연간 장비 사용시간인 1,664시간으로 나누어 소요 대수를 계산하였다. 초고압 압축 재포장 드럼은 유리수나 채움율 측면에서 CT 검사를 할 필요가 없을 것으로 예상되므로 CT 검사 대상 드럼 분율은 50% 이하일 것이다. 따라서 이동식 장비 2대이면 연간 13,000드럼을 검사할 수 있을 것으로 판단된다. 만약 X-ray 설비를 이용하여 드럼내의 내용물만 검사한다면 CT 검사가 필요하지 않을 것이고 RTR 검사만 하게 되면 이동식 장비 1대면 검사가 가능하다.

경제성 분석을 위해 다음과 같은 4가지 시나리오를 구성하였다: ① 제1안 : 모두 외주로 검사한다, ② 제2안 : 이동형 0.45 MeV 장치 2대를 구매하여 검사하고 0.45 MeV로 검사가 되지 않는 드럼은 외주로 검사한다, ③ 제3안 : 이동형 0.45 MeV와 3.0 MeV X-ray 장비를 각 1대 구매하여 자체 검사한다, ④ 모두 외주로 검사하되 과거 발생 폐기물의 검사가 종료되는 6년 동안만 시행하고 향후 발생되는 폐기물에 대한 비파괴 검사는 시행하지 않는다.

경제성 및 적용성 검토를 위한 가정 사항은 다음과 같다: ① 이동형 X-Ray 시스템 가격 : 3.0 MeV(5.0 백만원), 0.45 MeV(2.5백만원), ② 연간 유지보수비 : 장비 가격의 10%, ③ 3.0 MeV 설비이용 외주 검사비 : 0.45 MeV 설비를 이용하는 검사비의 2배, ④ 외주 검사 시점 및 물량(1안 및 2안) : 검사가 시작된 시점부터 5년째 되는 해에 9,300드럼, 6년째 되는 해에 9,300드럼, ⑤ 인건비 : 2인 1조, 1인당 연간 3,000만원, ⑥ 할인율 및 감가상각 : 5%, 40년 동안 정액법.

위의 가정들과 현재 계산식을 이용하여 네 가지 시나리오에 대해 40년간 소요되는 총비용을 계산한 결과는 다음 그림과 같다.



4. 결론

X-ray CT 시스템을 이용하면 드럼내 내용물 검사, 유리수 검사, 채움율의 정량검사가 가능하며, 연간 13,000 드럼을 검사하기 위해서는 450 KeV와 2~3 MeV 이동형 장비 각 1대가 필요하고 내용물 검사만 할 경우에는 2~3 MeV X-ray RTR 이동형 장비 1대면 충분한 것으로 나타났다. 고출력 장비의 경우 차폐 등으로 인해 이송에 어려움이 예상되므로 2 MeV급 설비를 확보하여 운영하는 것이 바람직하다고 판단된다. 4가지 검사 시나리오에 대한 경제성 및 적용 가능성 검토 결과는 발생자가 장비를 확보하여 자체적으로 검사하는 것이 바람직한 것으로 나타났다. 그 이유는 외주 검사를 단기간만 하는 업체를 수배하는데 어려움이 있고 설령 수배 가능하다 하더라도 저밀도 드럼 당 검사비용이 25만원 이상될 가능성이 크기 때문이다.

참고문헌

- [1] Richard H. Bossi, Frank A. Iddings, George C. Wheeler(Technical Editors); Patrick O. Moore(Editor), "Nondestructive Testing Handbook(3rd Edition) - Volume 4 : Radiographic Testing", Chapter 3 and 11, American Society for Nondestructive Testing, INC.,(2002).
- [2] R. T. Bernardi and Harry Martz, Jr., "Nuclear Waste Drum Characterization with 2MeV X-Ray and Gamma-Ray Tomography", *Material Evaluation*. Vol. 53, No. 10, Columbus, OH: American Society for Nondestructive Testing(October 1995): p 1121-1122, 1124-1126.
- [3] NIST 웹사이트 : <http://physics.nist.gov/PhysRefData/XrayMassCoef/cover.html>

중·저준위 방사성 폐기물 관리를 위한 검사시스템

이창재, 양민호, 윤재웅, 이상민, 최영수, 김준수
테크원네이버(주), 서울특별시 송파구 방이동 63-9 신동양빌딩2층
3333iae@hanmail.net

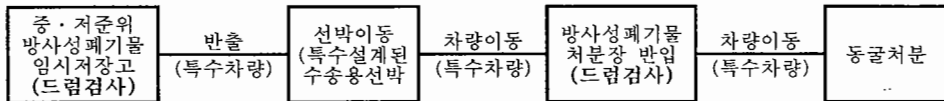
1. 서론

원자력을 이용하는 과정에서 필연적으로 발생되는 방사성폐기물은 함유되어있는 방사성핵종의 특성에 따라 고준위방사성폐기물과 넓은의미의 중·저준위방사성폐기물로 크게 분류된다. 여기서 중·저준위 방사성폐기물이란 원자력발전소에서 나오는 폐필터, 폐윤활유, 폐이온 교환수지등의 중준위폐기물과 작업복, 장갑, 덧신, 폐부품, 방사성동위원소를 이용하는 병원및 연구소에서 나오는 방사성동위원소 폐기물 등 저준위 폐기물을 말한다 이러한 발전소에서 발생되는 중·저준위 방사성폐기물은 이제까지 원자력발전소의 방사성폐기물 임시저장시설에 저장하였는데, 추후 포화가 예상됨에 따라 우선 중·저준위방사성폐기물 동굴처분방식의 영구처분장을 건설하여 국가차원에서 안전하게 관리할 예정이다. 이러한 원자력발전소에서 발생되어 생성된 방사성폐기물드럼이 원자력발전소에서 영구처분장으로 이동저장할경우 그 방사성폐기물 드럼의 내용물, 표면오염도, 방사선량률, 압축강도, 핵종분석등을 검사하고, 데이터베이스화하여 정보를 저장및 기록하는데 이를 통합적으로 검사하는 시스템을 개발, 체계적으로 절차화하여 방사성폐기물을 관리하는데 도움이 되고자 한다.

2. 결과

가. 검사지점

다음은 원자력발전소의 방사성폐기물 임시저장고에서 반출하여 동굴처분될때까지 과정이며, 방사성폐기물드럼에 대한 신뢰성을 확보하고 안전하게 관리할 목적으로 방사성폐기물 발생지에서 반출전 인수검사와 방사성폐기물처분장에서 인수후 재차 검사한다.



나. 검사조건

- 방사성폐기물드럼은 육안검사(Camera)를 통해 외부손상 유무를 확인한다.
- 방사성폐기물드럼의 형태와 크기가 여러종류(Table 1. 참조)임으로 가장 많이 발생되는 드럼의 종류를 파악하여 컨베이어에 의해 순차적으로 검사하는 표준규격(Standard)과 비표준규격(Non Standard)을 별도로 설치하여 검사한다(Fig 1.참조)

다. 검사절차 및 내용

1) 방사성폐기물 컨테이너

방사성폐기물 임시저장고에서 적재한 드럼의 컨테이너를 하적한다.

2) 육안검사(Visual Inspection Units with CCTV)/무게측정(Fig 2. 참조)

시설의 내부에 설치한 CCTV를 통해 방사성폐기물 표면을 여러방면으로 Scanning하면서, 드럼외부의 손상정도를 확인하며 검사한 이미지를 자동적으로 저장하고, 무게를 측정한다.

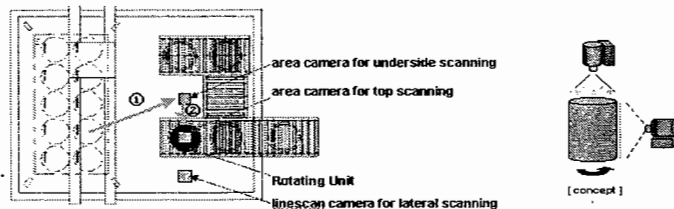


Fig 2. Visual Inspection System

3) 표면의 방사선량률측정

고정 설치된 검출기(Detector)를 통해 방사선량률을 측정하여 기록을 저장한다.

4) 표면의 오염도측정/핵종분석

표면의 오염도를 측정하여 기록저장하고, 운반되어온 드럼을 turntable에 올려놓으면 회전운동과 병진운동을 하여 전체드럼을 세부부분으로 나누고 이와 동시에 검출기 부분이 상하운동하면

서 전체드럼을 Scanning하여 감마선 분광분석을 한후 이를 바탕으로 Scaling factor를 적용하여 알파/베타선 세기를 산출하여 총 방사능량을 구한다.

5) X-ray(CT)

육안검사가 불가능한 드럼내부를 Scanning하여 컴퓨터처리된 3차원 영상으로 확인하면서 방사성폐기물의 종류, 상태, 크기 및 위치등을 검사한다.

6) 압축강도(UT)

초음파의 투과속도가 콘크리트의 밀도 및 탄성계수에 따라서 변화되는 것을 이용하며, 이 투과속도로부터 콘크리트의 동적특성, 강도, 균열상태 등 드럼내 콘크리트 압축강도(고화상태)를 측정한다.

7) 바코드 부착

각각의 드럼에 일련번호, 표면오염도/방사선량률, 핵종, 압축강도, 폐기물종류, 발생일시등의 기록을 데이터 베이스화 하여 저장한다.

8) 라벨링 및 프린트(Labeling and printing units)

드럼에 대한 정보를 문서화하여 기록하고 보관한다.

Type of Waste Container/Package		Weight (kg)	Dimension (W×L×H)
Category	Waste Container/Package		
Disposal Container	16-Pack Disposal Container	18,340	2.73×2.73×1.14(m)
	9-Pack Disposal Container	10,810	2.4×2.4×1.21(m)
Transport	Transport Container (200L and 320L)	6,000	1.6×3.4×1.2(m)
Major Waste Package	200L Drum	500	∅617×H887mm
	320L Drum	250	∅713×H960mm
	PE Container	2,000	∅1,194×H1,290mm
Other Waste Package	C1 Concrete	6,900	∅1,400×H1,300mm
	C2 Concrete	6,900	∅1,400×H1,300mm
	C4 Concrete	6,000	∅1,100×H1,300mm
	Kori Cylindrical Concrete Container	3,500	∅650×H1,370mm
	Kori 4 Pack Concrete Container	6,000	1.460×1.460×1.180mm
	HIC(FE)	2,000	∅1,181×H1,289mm

Table 1. Type of Waste Container/Package

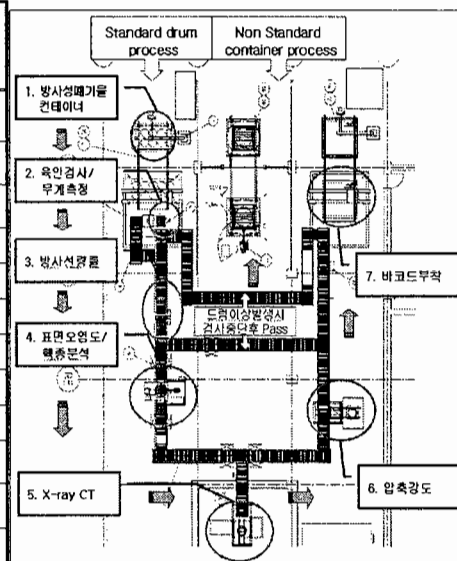


Fig 1. 검사시스템 개략도

3. 결론

방사성폐기물은 함유하고있는 방사능에 의한 위험으로부터 인간의 피해를 방지하고, 생활권으로부터 영구히 격리하기 위해 영구처분을 하는데, 국민의 이해 및 신뢰도를 확보하기 위해서는 방사성폐기물드럼에 대한 관리가 무엇보다 중요하다. 이러한 필요성 때문에 방사성폐기물드럼에 대한 체계적인 검사시스템을 도입, 체계화하여 방사성폐기물을 관리, 운영하는데 도움이 되고자 하며, 추후에 검사하는 장비에 대한 상세한 내용을 지속적으로 검토하여 발전시켜 검사시스템에 적용하고자 한다.

참 고 문 헌

1. 방사선안전관리등의 기술기준에 의한 규칙
2. 과학기술부고시 제2005-18호 「중·저준위 방사성폐기물 인도규정」
3. 과학기술부고시 제2005-12호 「중·저준위 방사성폐기물 처분시설 운영등에 관한 기술기준」

처분우선순위 결정을 위한 DTC 방법을 사용한 중·저준위 드럼의 방사능 재고량 선행평가

이상철, 안민호, 이윤희, 이진재

한국과학기술원, 대전광역시 유성구 과학로 335

lsc237@kaist.ac.kr

1. 서론

현재 발전소내 저장중인 약 70,000 드럼에 대한 처분우선순위를 결정하기 위한 하나의 요소로서 드럼의 방사능적 특성은 우선적으로 고려되어야 한다. 하지만, 드럼 핵종분석장치를 통한 계측이 아직 이루어지지 않은 상황이므로, 본 연구에서는 드럼의 방사능적 특성의 경향성을 평가하기 위해 선량 대 방사능 환산 방법 (Dose to Curie Conversion Method : DTC method)과 척도인자 방법을 활용하여, 핵종별 방사능을 도출하였다. 도출된 핵종별 방사능은 인도규정 내 처분농도 제한치와 비교하여, 제한치를 초과하는 드럼의 드럼유형별, 발전소별, 핵종별 특징을 분석하였다.

2. 기존드럼 방사능 평가 방법 및 한계성

한수원(주)에서 수행한 과제인 “척도인자 운영프로그램 및 기존드럼 핵종분석방법 개발”의 용역 결과물인 선량 대 방사능 환산 프로그램은 드럼의 12지점의 표면선량률, 드럼 생성일, 드럼 계측일, 핵종농도 적용일, 드럼질량을 입력하면 드럼 내 핵종별 농도를 도출하게 된다. 현재 ERP에 있는 드럼관련 자료 중 선량 대 방사능 프로그램의 입력 자료로서 사용할 수 있는 것은 3지점 혹은 12지점의 표면선량률, 드럼 생성일이며, 다른 입력사항은 다음과 같이 가정하였다. 드럼 계측일은 드럼 생성일과 동일하며, 핵종농도 적용일은 처분시점으로 예상하는 2008년 12월 31일로 가정하였으며 드럼질량은 개별드럼별 차이가 있겠지만, 드럼유형별로 아래의 표와 같이 가정하였다.

표 1. 기존드럼방사능 평가 시 가정된 드럼 질량(kg)

잡고체 (차폐:200L)	농축폐액 (파라핀:200L)	농축폐액 (시멘트:200L)	농축폐액 (시멘트:CI)	농축폐액 (시멘트:CII)	폐필터 (200L)	폐필터 (Type II)
300	200	300	4000	4000	300	4000

폐수지 (시멘트:200L)	폐수지 (단순:200L)	폐수지 (Alloy:HIC)	폐수지 (HDPE:HIC)	폐수지 (시멘트:CI)	폐수지 (시멘트:CII)	
300	300	1000	1000	4000	4000	

도출된 핵종농도는 인도규정에 나타난 핵종농도 처분제한치와 비교하여, 이를 초과하는지의 여부를 비교하여, 처분제한치를 초과하는 드럼의 핵종별, 드럼 유형별, 발전소별 특징을 분석하였다. 선량 대 방사능 환산 프로그램은 자체 보수적 특성을 가지고 있으므로, 선량 대 환산 프로그램을 통해 도출한 γ 핵종의 방사능은 실제 γ 핵종의 방사능과 차이를 가지게 된다. 모의 드럼 실험을 통하여 선량 대 환산 방법의 정확도를 검증해 본 결과, 실제 값과 약 1.5배 정도의 차이를 가지고 있는 것으로 나타났다. 또한 입력 자료의 부족으로 인해 드럼질량, 핵종농도 적용일 등의 여러 가지 가정 사항을 포함하여 평가 결과의 부정확성을 증가시켰다. 따라서 본 평가결과는 기존드럼 방사능의 경향성을 파악하기 위한 자료로만 활용되는 것이 적절할 것이다.

3. 기존드럼 방사능 평가결과

기존드럼 방사능 평가의 대상이 된 드럼을 발전소별, 유형별로 그 개수를 살펴보면 아래의 표와

같다. 표에서 볼 수 있듯이 드럼 발생량은 잡고체, 농축폐액, 폐수지, 폐필터 순으로 나타나는 것을 알 수 있으며, 농축폐액, 폐수지의 CI, CII과 폐필터의 Type II, Type IV 드럼의 경우, 울진발전소에서만 발생하는 것을 알 수 있다.

표 2. 발전소별, 드럼유형별 평가량

	잡고체 (일반:200L)	잡고체 (차폐:200L)	농축폐액 (파라핀:200L)	농축폐액 (시멘트:200L)	농축폐액 (시멘트:CI)	농축폐액 (시멘트:CII)	폐필터 (200L)	폐필터 (Type II)
고리	7350	1441	706	10713	0	0	639	0
영광	4171	11	1001	2427	0	0	59	0
울진	4362	0	939	0	789	24	10	10
월성	1019	40	0	0	0	0	184	0

	폐필터 (Type IV)	폐수지 (시멘트:200L)	폐수지 (단순:200L)	폐수지 (Alloy:HC)	폐수지 (HDPE:HC)	폐수지 (시멘트:CI)	폐수지 (시멘트:CII)
고리	0	1639	977	26	129	0	0
영광	0	501	781	0	84	0	0
울진	492	0	0	0	111	413	426
월성	0	0	1514	0	0	0	0

처분 제한치를 초과하는 드럼을 드럼 유형별로 살펴보면, 개수에서는 잡고체, 폐필터, 폐수지, 농축폐액 순으로 제한치를 초과하는 드럼이 많이 발생하고 있으며, 비율로 보았을 때는 폐필터, 폐수지, 잡고체, 농축폐액 순으로 제한치를 초과하는 드럼이 많이 발생하는 것으로 분석결과 나타났다. 특이할 점은 농축폐액에서는 처분농도 제한치를 초과하는 드럼이 전혀 발생하지 않았다. 처분농도 제한치를 초과하는 주요 핵종을 살펴보면, ^{91}Nb , ^{129}I 가 제한치를 벗어나는 경우가 가장 많았으며, 그 외 ^{59}Ni , ^{63}Ni , ^{99}Tc , ^3H , ^{14}C 가 제한치를 벗어나는 경우가 약간의 비율로 존재하였다. 전체적으로 제한치를 초과하는 핵종들은 대부분 반감기가 긴 핵종이었다.

처분 제한치를 초과하는 드럼을 발전소별로 살펴보면, 개수에서는 고리, 영광, 울진, 월성발전소 순으로 제한치를 초과하는 드럼이 많이 발생하고 있으며, 비율로 보았을 때는 월성, 고리, 영광, 울진발전소 순으로 제한치를 초과하는 드럼이 많이 발생하였다. 고리발전소의 발전 초창기에 생산된 잡고체 폐기물의 경우, 표면선량율이 높은 드럼이 다수 포함되어 있었기 때문에 위와 같은 결과가 나타났다고 판단된다. 아래의 표 3은 발전소별, 드럼유형별 처분 제한치 초과 드럼 수를 나타낸다.

표 3. 발전소별, 드럼유형별 처분 제한치 초과 드럼 수

Total	잡고체 (일반:200L)	잡고체 (차폐:200L)	농축폐액 (파라핀:200L)	농축폐액 (시멘트:200L)	농축폐액 (시멘트:CI)	농축폐액 (시멘트:CII)	폐필터 (200L)	폐필터 (Type II)
고리	17	340	0	0	0	0	53	0
영광	95	1	0	0	0	0	14	0
울진	16	0	0	0	0	0	4	4
월성	3	14	0	0	0	0	79	0

	폐필터 (Type IV)	폐수지 (시멘트:200L)	폐수지 (단순:200L)	폐수지 (Alloy:HC)	폐수지 (HDPE:HC)	폐수지 (시멘트:CI)	폐수지 (시멘트:CII)
고리	0	44	57	19	18	0	0
영광	0	22	0	0	10	0	0
울진	81	0	0	0	11	0	0
월성	0	0	0	0	0	0	0

3. 결론

기존드럼 방사능 평가결과는 처분우선 순위 수립 시 고려해할 중요한 요소로서 활용될 수 있으며, 방사능적 안전만을 고려했을 때, 농축폐액 드럼을 우선적으로 처분하는 것이 타당하다고 판단된다.

방사성 폐기물 소내 운송 및 선적시 작업자 피폭 평가

이재민, 전종선, 김태현, 한병섭

(주)에네시스, 대전광역시 유성구 장대동 337-2번지

jmlee@enesys.co.kr

1. 서론

중·저준위 방사성폐기물의 처분의 경우 각 원전 임시저장고에서 폐기물을 차량을 통해 선박으로 이동 후 처분시설로 해상운송한다. 각 단계별로 방사성폐기물의 취급 과정에서 작업자 피폭이 필연적으로 발생한다. 이러한 과정 중에 피폭관련 법규를 준수하여야 하고 또한 그 안전성을 입증하여야 한다. 본 연구에서는 잡고체 드럼을 IP 운반 용기로 전용선박을 사용해 운송하는 경우에 대하여 각 과정별 작업자의 외부피폭선량을 MicroShield를 사용하여 계산, 평가하였다.

2. 작업자 피폭 평가

MicroShield를 이용하여 원전 방사성폐기물 임시저장고로부터 전용운반선박으로의 선적까지의 작업자 피폭 예비평가를 수행하였다. 잡고체 드럼을 기준으로 피폭평가를 수행하였다. 운반과정은 폐기물 드럼을 IP 운반 용기 내 적재, IP 운반 용기를 전용 차량에 적재, IP 운반 용기를 전용 차량 이용해 선박으로 이동, IP 운반 용기를 선박에 적재 및 해상운송 후 선박 하역까지의 과정을 평가하였다. 이를 평가하기 위하여 각 작업 단계별 작업 시간, 작업 물량 등의 기초자료가 필요하다. 본 연구에서는 이를 다음과 같이 가정하여 수행하였다.

단계 1 : 폐기물 드럼을 IP 운반 용기 내 적재시

- 폐기물 드럼 8개를 IP 운반 용기에 적재하는 시간 0.5 h
- 잡고체 드럼에서 10 cm 떨어진 지점에서의 피폭선량 계산
- IP 용기 150개에 폐기물드럼 적재시 75시간 소요

단계 2 : IP 운반 용기를 전용 차량에 적재시

- 차량 1대 당 1회 이송 시 IP 운반 용기 2개 이송
- 전용 운반선 최대 적재량 1500 Ton 규모일 경우, IP 용기 적재 개수 150개
- 지게차 사용하여 IP 용기 2개를 전용 운반 차량에 적재시 20 분 소요
- 지게차 사용하여 IP 용기 150개를 전용 운반 차량에 적재시 25 시간 소요
- 지게차 운전자의 경우 IP 용기에서 50 cm 떨어진 지점에서의 피폭선량 계산

단계 3 : IP 운반 용기를 전용 차량 이용해 선박으로 이동시

- IP 운반 용기를 전용운반선까지 이동하기 위한 차량 이동 시간 0.5 h
- 차량 1대 당 1회 이송 시 IP 운반 용기 2개 이송
- 차량 운전자의 경우 IP 운반 용기에서 1 m 떨어진 지점에서의 피폭선량 계산
- 차량 운전자와 50 cm 이격 뒤에 납으로 5cm 차폐 후 45 cm 떨어져서 IP 운반 용기 위치
- 차량 사용하여 IP 용기 150개를 전용 운반선으로 이동시 75 시간 소요

단계 4 : IP 운반 용기를 선박에 적재시

- IP 운반 용기를 전용운반선에 적재하기 위한 크레인 결속 시간 0.5 h
- 전용 운반선 최대 적재량 1500 Ton 규모일 경우, IP 용기 적재 개수 150개
- IP 운반 용기에서 10 cm 떨어진 지점에서의 피폭선량 계산
- 크레인 사용하여 IP 용기 150개를 전용 운반선 적재시 75 시간 소요

단계 5 : 선박에서 하역시

- IP 운반 용기를 전용운반선에서 하역하기 위한 크레인 결속 시간 0.5 h
- 전용 운반선 최대 적재량 1500 Ton 규모일 경우, IP 용기 적재 개수 150개
- 크레인 사용하여 IP 용기 150 개를 전용 운반선에서 하역시 75 시간 소요
- IP 운반 용기에서 10 cm 떨어진 지점에서의 피폭선량 계산

다음 표에 IP 용기 150개 운반에 따른 각 단계별 피폭선량 평가를 나타내었다. 각 단계별 피폭선량은 작업자 1인이 단독으로 수행시의 결과이다. 작업자 피폭선량 한도량을 초과하지 않음을 알 수 있다.

표 1. 운송작업 단계별 작업자 피폭 평가

작업 단계	피폭선량(mSv)
폐기물 드럼을 IP 운반 용기 내 적재시	8.89E+00
IP 운반 용기를 전용 차량에 적재시	2.51E+00
IP 운반 용기를 전용 차량 이용해 선박으로 이동시	9.86E-02
IP 운반 용기를 선박에 적재시	4.91E+00
선박에서 하역시	5.77E+00

3. 결론

MicroShield를 이용하여 원전 방사성폐기물을 임시저장고로부터 전용운반선박으로의 선적까지의 작업자 피폭 예비평가를 수행하였다. 각 단계별 피폭선량은 연간 작업자 피폭선량 한도이하로 평가 되었다. 그러나 작업자 피폭 저감화를 위하여 교대 근무, 방호 용구 등의 대책을 통하여 피폭선량을 감소시킬 수 있는 대책이 필요하다. 또한 각 작업 단계별 경로 특성, 기기 운전 특성 등의 상세한 평가를 통하여 더욱 정확한 피폭평가가 이루어져야 할 것이다.

방사성폐기물 해상운송 경로별 위험도 평가

이재민, 전종선, 김태현, 박상규, 한병섭
(주)에네시스, 대전광역시 유성구 장대동 337-2번지
imlee@enesys.co.kr

1. 서론

중·저준위 방사성폐기물 처분시설이 2009년 말 가동을 목표로 현재 환경영향 평가, 상세설계 및 안전성 평가 등의 단계를 진행하고 있다. 현재 처분 부지로 결정된 경주시 월성 부근에 항만 건설을 위한 사업 및 전용운반선 설계가 진행 중에 있다. 중·저준위 방사성폐기물의 처분 수송은 현재 보관중인 임시 저장고에서 소내 항만 시설로의 이동과정, 선적, 해상운송로를 통해 처분시설 항만으로의 이송 그리고 처분장의 인수시설로의 이동 및 처분고 적재 등으로 이루어진다. 이러한 과정 중에 폐기물 운반용기 및 운반 조건 등의 다양한 것들이 관련 법규를 준수하여야 하고 또한 그 안전성을 입증하여야 한다. 구조물, 운반용기, 운반차량의 안전성 이외에도 수송 시 작업환경, 사고 시 환경영향 및 인간에 대한 체내외 피폭 평가 등의 다양한 평가가 요구된다. 본 연구에서는 RADTRAN 5.6 을 이용하여 해상운송시의 위험도를 평가하였다.

2. 운송위험도 평가

RADTRAN 5.6 을 이용하여 영광, 울진, 고리 원전으로부터 중·저준위폐기물 처분부지까지의 해상운송을 모사하여 위험도 예비평가를 수행하였다. 각 부지로 부터의 해상운송 거리는 영광, 울진, 고리 원전이 각각 478 km, 146 km, 51 km이다. 한국 인구밀도는 2005년 11월1일 기준 1 km²당 474 명을 기준으로 하였고 선박의 속도는 10노트, 18.52 km/h로 가정하였다. 해상 통행밀도는 시간당 50 척으로 하였고 선박에는 20 명의 선원이 탑승하는 것으로 설정하였다. 사고 빈도는 영국 NIREX의 1회 항해당 사고를 보수적으로 적용하였으며 fatality는 영국 NIREX의 5.36E-6/yr를 1회 항해당 사고로 보수적으로 적용하였다. 사고 유형은 충돌로 인한 핵종누출과 화재로 인한 핵종누출 두 가지에 대하여 적용하였다. 각각의 사고빈도는 영국 NIREX의 자료를 인용하였으며 해상운송시 충돌의 경우 항해당 핵종누출 확률 1.68E-4, 화재의 경우 1.78E-5를 적용하였다. 각각의 사고 해석을 위한 선원항 설정은 다음 표와 같다. IP 형 용기에 200 리터 드럼의 경우 8개, 320 리터 드럼의 경우 4개를 운송하는 것으로 설정하였다. 핵종 농도 자료와 사고시 누출율은 한수원(주)의 방사선환경영향평가에 사용된 자료를 인용하였다.

각 원전별 해상운송의 위험도 평가는 위 표의 폐기물을 단일 종류별로 IP 형 용기 150개를 1회 운송하는 것으로 설정하였다. 중·저준위 방사성폐기물의 운송과정에서의 방사선 영향은 매우 적은 것으로 나타났다. 다음 표에 각 운송경로별 위험도 평가 결과를 나타내었다.

표 1. Total Population Risk [LCFs] - Accident

운반폐기물 \ 운송경로	영광-처분부지	울진-처분부지	고리-처분부지
잡고체-초고압	2.01E-09	6.13E-10	2.14E-10
잡고체-일반	1.87E-09	5.71E-10	1.99E-10
농축폐액-시멘트	2.10E-09	6.41E-10	2.24E-10
농축폐액-파라핀	3.30E-09	1.01E-09	3.53E-10
폐수지-시멘트	1.20E-06	3.68E-07	1.29E-07
폐수지-건조	4.56E-07	1.39E-07	4.87E-08

동일한 사고 위험도 정보를 바탕으로 영광-고리-울진-처분부지로의 연결 운송에 대한 수송위험도를 평가하였다. 영광에서 84 개의 수송용기를 적재후 고리에서 38 개를 추가 적재후 다시 울진에서 28 개, 총 150 개의 수송용기를 처분부지로 운반하는 경로를 평가하였다. 각 원전별 적재용량은 임시저장고 용량에 비례하여 설정하였다. 구간별 거리는 영광에서 고리까지 424 km, 고리에서 울진까지 197 km, 울진에서 처분부지까지 146 km로 설정하였다. 운반 대상 폐기물은 잡고체 일반 드럼과 폐수지 시멘트 드럼에 대하여 평가를 수행하였다.

표 2. Total Population Risk [LCFs] - Accident 2

운반폐기물 \ 운송경로	영광-고리	고리-울진	울진-처분부지
잡고체-일반	1.71E-09	1.83E-10	1.36E-10
폐수지-시멘트	1.07E-06	4.97E-07	3.68E-07

3. 결론

RADTRAN 5.6을 이용하여 각 원전에서 중·저준위폐기물 처분부지까지의 해상운송을 모사하여 위험도 예비평가를 수행하였다. 위 평가 결과 이외에도 정상운송시의 총주민피폭량은 운송거리가 가장 긴 영광에서의 운송이 6.68E-05 Sv, 사고시의 경우 역시 영광에서 처분부지로의 직접 운송시, 폐수지-시멘트 단일 운송에 대하여 2.41E-05 Sv로 평가되는 등 비교적 위험도가 작음을 알 수 있었다. 그러나 수송안전성에서 중요한 선박 항해시의 위험도 관련 인자의 경우 NIREX의 보고서를 인용하였다. 보다 현실적이고 정확한 평가를 위해서는 이러한 선박 항해시의 위험도 관련 인자에 대한 국내 자료를 확보함과 동시에 사고시의 핵종 누출율에 대한 평가가 요구된다.

방사성 폐기물 용기 낙하사고시 피폭 평가

이재민, 전종선, 김태현, 한병섭

(주)에네시스, 대전광역시 유성구 장대동 337-2번지

imlee@enesys.co.kr

1. 서론

중·저준위 방사성폐기물 처분시 원전 발생 방사성폐기물은 소내 운송, 선적, 선박운송 및 하역 등 다양한 취급 단계를 거치게 된다. 이러한 다양한 취급 단계에서 발생 가능한 사고 중 취급 낙하사고의 발생빈도가 가장 높을 것으로 예상된다. 본 연구에서는 취급 낙하사고에 대하여 폐기물 종류에 따른 피폭선량을 평가하였다. 폐수지 재포장 시멘트 드럼과 폐수지 PE 용기의 운송시 낙하에 대하여 평가하였으며 대기방출로 인한 평가를 위하여 PAVAN 코드를 사용하여 대기확산인자를 구하여 평가하였다. NUREG/CR-4370의 폐기물 형태별 충돌 낙하에 대한 방출 특성자료를 이용하여 대기 방출 선원항을 설정하였으며 작업자의 외부피폭선량은 MicroShield를 사용하여 계산, 평가하였다.

2. 낙하사고시 피폭 평가

폐기물 저장고로부터 운송차량으로 크레인 사용 이송 작업 중 용기가 낙하하는 사고를 가정하여 피폭 선량을 계산하였다. 폐수지 재포장 시멘트 드럼 운송용기 낙하사고와 폐수지 PE 용기 1개를 B형 운반용기로 이송 중 낙하 사고를 평가하였다. 각각의 사고 가정은 다음과 같다. 폐수지 재포장 시멘트 드럼 운송용기 낙하 후 1개 드럼 파손시 드럼에서 10cm 이격 된 위치에서 드럼 재결속 작업 5분 진행, 지상으로부터 120 cm 높이의 외부 피폭 평가, 낙하사고로 인한 누출 발생. 폐수지 PE 용기 1개를 B형 운반용기로 이송 중 낙하 사고의 경우 HIC-PE 용기에서 10 cm 떨어진 거리에서 재결속 작업 5분 수행, 지상으로부터 120 cm 높이의 외부 피폭 평가, B형 운반용기 및 HIC 설계요건에 따라 운송사고시 용기 파손 및 내용물 누출이 없다고 가정하였다. 피폭선량 평가에 적용한 선원항은 한국전력기술주식회사의 처분시설 예비 개략설계 자료를 이용하였다.

대기확산인자를 계산하기 위하여 PAVAN 코드를 사용하였다. PAVAN 코드는 미국 원자력규제위원회 (U. S. NRC)의 원자력발전소의 설계기준 사고시 대기 확산 평가를 위하여 개발되었다. 미국 원자력규제위원회 (U. S. NRC) 규제지침서 1.145, "Atmospheric Dispersion Models for Potential Accident Consequence Assessments at Nuclear Power Plants"에서 제시하는 대기확산인자 평가에 적용가능하며 현재까지 상용 원전 및 원자로가 없는 다른 원자력시설의 평가에 사용되었다. 이 코드는 선량계산은 수행하지 않으며 풍향, 풍속, 대기안정도를 고려한 빈도분포를 바탕으로 특정 지점의 대기확산인자를 결정한다. 대기확산인자는 지표면방출로 고려하며 Gaussian plume model을 사용한다. 본 평가에서는 1998년부터 2000년까지의 월성지역의 기상자료를 입력값으로 사용하였다. 사고시 작업자 피폭의 경우 10 m의 거리에서 0-2시간의 대기확산인자 값을 적용하였으며 일반인 피폭의 경우 400 m의 거리에서 0-2시간의 대기확산인자 값을 적용하였다. 반경 10 km 내 집단선량계산에서는 월성원전의 인구자료와 10 km 거리의 연간평균 대기확산인자를 적용하였다.

사고시 방사능운에 의한 유효선량 평가시 방사능운에 의한 외부피폭과 호흡에 의한 내부피폭을 고려하였다. 해당 시간대에서 대기확산인자에 해당하는 핵종의 방출률은 일정하다고 가정하였다. 호흡률은 미국 원자력규제위원회 (U. S. NRC)의 규제지침 1.8에 따라 사고 후 0~8시간에 대해 $3.47 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{sec}$, 그 이상의 시간에 대해 $1.75 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{sec}$ 을 적용하였다. 선량환산인자는 국제방사선방호위원회의 신권고(ICRP-60)에 근거한다. 호흡에 의한 내부피폭 선량환산인자는 미국 ORNL (Oak Ridge National Lab.)에서 개발한 DFINT 코드, 방사능운에 의한 외부피폭 선량환산인자는 미국 ORNL (Oak Ridge National Lab.)에서 개발한 DFEXT 코드를 사용하여 평가된 값을 적용하였다. 충돌, 낙하로 인한 방출의 경우 피폭선량은 NUREG/CR-4370의 소외 방출 피폭 계산 방법을 이용하였다. NUREG/CR-4370의 폐기물 형태별 충돌 낙하에 대한 fc 인자값을 방출 분율로 사용한다. 각 사고 유형별 피폭선량은 다음 표와 같다.

표 1. 사고 유형별 피폭 선량

사 고 유 형	피폭구분	작업자	일반인	10 km집단피폭 (man-Sv)
폐수지 재포장 시멘트 드럼 낙하사고	유효선량(Sv)	1.38E-07	1.29E-07	7.67E-07
	외부피폭(Sv)	1.87E-04	0.00E+00	
	합(Sv)	1.87E-04	1.29E-07	
폐수지-PE 1 개 B형 운반용기 낙하사고	유효선량(Sv)	0.00E+00	0.00E+00	-
	외부피폭(Sv)	4.52E-03	0.00E+00	
	합(Sv)	4.52E-03	0.00E+00	

3. 결론

중·저준위 방사성폐기물 처분시 방사성폐기물의 다양한 취급 단계에서 발생가능한 사고 중 그 발생빈도가 높을 것으로 예상되는 취급 낙하사고에 대하여 폐기물 종류에 따른 피폭선량을 평가하였다. 폐기물 운반 특성에 따라 사고 방출 선원항을 설정하여 대기확산인자를 활용하여 방사능운에 의한 피폭과 사고 복구에 따른 작업자 외부 피폭을 평가하였다. 낙하사고의 경우 작업자의 경우 외부피폭이 주 피폭경로임을 알 수 있었다, 그러나 일반인 피폭 및 집단피폭선량 평가를 위해서는 사고 종류별 대기방출 특성을 평가하여 방출선원항을 정확히 설정함이 중요하다.

길이와 폭의 비가 작고 중량이 큰 A형 운반용기 경사낙하해석

김동학, 이대기, 이승호

한수원(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1번지

prfrog72@yahoo.co.kr

1. 서론

원자력발전소에서 발생된 폐수지를 고화하여 저장 및 처분하기 위한 고건전성용기는 소내의 폐기물처리시설에서 폐수지를 적제한 후에 임시저장고로 운반되어졌다가 향후 경주의 방폐물처분장에서 영구 처분될 것이다. 고건전성용기를 운반하기 위한 A형 운반용기는 관련법규에 따라서 안전성이 입증되어야 한다. A형 운반용기의 안전성 평가에서 자유낙하조건은 중요한 조건으로 운반용기가 자유낙하 하여도 안전함을 입증하여야 한다. 운반용기의 중량에 따라서 0.3~1.2 m의 높이에서 파손이 가장 큰 방향으로 자유낙하 하는 조건에 대하여 안전성을 입증하여야 한다.

고려되어야 할 낙하방향은 바닥수직방향, 뚜껑수직방향, 수평방향, 바닥무게중심방향, 뚜껑무게중심방향, 바닥경사방향, 뚜껑경사방향으로 7가지이다. 수직방향은 운반용기가 세워져 있는 방향으로 바닥이 충격되는 경우를 바닥수직방향, 뚜껑이 충격되는 경우를 뚜껑수직방향이라 하였다. 수평방향은 옆으로 누워있는 방향을, 무게중심낙하방향은 무게중심과 모서리가 중력방향과 일치하는 방향이다. 경사방향은 운반용기가 바닥에 1차로 충격된 이후에 회전하면서 2차로 회전과 함께 중력에 의한 속도로 큰 충격이 운반용기에 발생하는 방향이다. 경사방향은 2차 충격을 고려하여야 하는 조건으로 길이와 폭의 비가 커서 1차 충돌 이후에 회전력이 큰 경우에 주로 고려된다. 본 연구에서는 고건전성용기를 소내에서 운반하기 위한 A형 운반용기와 같이 길이와 폭의 비가 작지만 중량이 큰 경우의 바닥경사낙하해석을 수행하였다.

2. 고건전성용기용 A형 운반용기 바닥경사낙하해석

운반용기의 낙하해석을 수행하기 위하여 대칭성을 고려한 1/2 모델링 하였다. 볼트는 고려하지 않았으며 플랜지가 고정되어 있다고 가정하였다. 해석은 ABAQUS/Explicit를 사용하여 수행하였다. 사용된 요소의 종류는 3차원 요소인 C3D8R(8-node linear brick, reduced integration with hourglass control)이다. 요소의 개수는 18,724개이며 절점의 수는 30,431개이다. 각 부재간 사이는 마찰이 없는 접촉조건(Contact constraint)으로 가정하였다. 정상운반조건에 대한 자유낙하시험 조건을 적용하기 위하여 9.8 m/sec에 해당하는 중력가속도를 적용하였으며 0.6 m의 낙하높이에 해당하는 초기속도 3.43 m/sec를 모델의 초기조건으로 입력하였다. 대칭면은 대칭경계조건을 부여하였으며 강체는 고정시켰다.

그림 1은 바닥경사낙하조건에서의 반력 및 에너지 선도를 나타낸다. 1차 충돌에서의 반력은 8.7 msec에서 발생한 2.2 MN이며 2차 충돌에서는 1차 충돌보다 큰 2.75 MN로 약 79.4 msec에서 발생하였다. 초기 운동에너지는 35.13 kJ로 운반용기 중량의 절반인 5,969 kg의 0.6 m에 해당하는 위치에너지와 동일하다. 1차 충돌에 의하여 16.63 kJ까지 감소하다가 반발되면서 점점 증가하여 23.24 kJ이 된다. 운반용기가 1차 충돌이후에 회전하면서 운반용기의 무게중심이 아래로 이동하는 위치에너지 변화만큼 증가할 것이며 이러한 크기는 6.61 kJ로 총 운동에너지는 41.73 kJ이다. 1차 충돌에 의하여 20.08 kJ의 내부에너지가 발생하는데 이 중에 15.09 kJ의 소성변형에너지가 발생되어서 초기 운동에너지의 42.95%가 소성변형에 의하여 손실된다. 2차 충돌에서는 41.33 kJ의 내부에너지가 발생되는데 이 중에 34.12 kJ의 소성변형에너지가 발생된다. 운반용기의 총 운동에너지의 81.76%가 1차 및 2차 충돌에 의한 소성변형에 의한 손실이 된다. 변형에너지는 1차 및 2차 충돌시에 약간 발생한다. 1차 충돌에 의한 소성변형량은 15.09 kJ이며 2차 충돌에 의한 소성변형량은 19.03 kJ이다. 즉, 2차 충돌에 의한 소성변형량이 더 크다. 이러한 1차 충돌 및 2차 충돌에서 발생한 소성변형률의 비는 반발에서의 최대값의 비와 거의 같다.

그림 2는 바닥경사낙하조건에서의 격납경계인 내부 셸과 플랜지 부분의 최대 Tresca 응력이

발생되는 시간에서의 응력분포도와 최대 Tresca 응력이 발생하는 원안의 절점에서의 응력 선도를 보여준다. 1차 충돌에서는 바닥 코너에서 큰 응력이 발생된다. 1차 충돌이 발생한 이후에 회전에 의하여 2차 충돌에 의하여 뚜껑 플랜지 부분인 P3의 위치에서 큰 응력이 발생한다. 2차 충돌이 일어난 이후에 운반내용물인 고건전성용기가 운반용기에 가하는 충격에 의하여 P2의 위치에서도 큰 응력이 발생된다. 바닥코너에 발생되는 최대 Tresca 응력은 320.07 MPa로 1차 충돌이 발생되고 있는 7 msec에서 발생되며 뚜껑 플랜지 부에서 발생되는 최대 Tresca 응력은 370.28 MPa로 2차 충돌이 발생되고 있는 80.2 msec에서 발생된다. 운반내용물이 운반용기에 가하는 부분에서 발생되는 최대 Tresca 응력은 319.45 MPa로 83.00 msec에서 발생된다. P3에서 최대 응력이 나타나는 83 msec는 2차 충돌에서의 최대 반력의 2.75 MN의 14.9%에 해당하는 0.41 MN의 반력이 나타나는 시간으로 2차 충돌이후에 반발되는 도중에 운반용기는 상승하고 운반내용물은 계속적인 하강을 하면서 나타난다. 전체 운반용기의 격납경계에서 발생되는 최대 Tresca 응력은 370.92 MPa로 인장강도 1,034 MPa에 비하여 적은 값으로 격납부분의 파손이 발생되지 않아서 바닥경사 낙하조건에서 운반내용물의 분산 및 유실이 없이 안전하다.

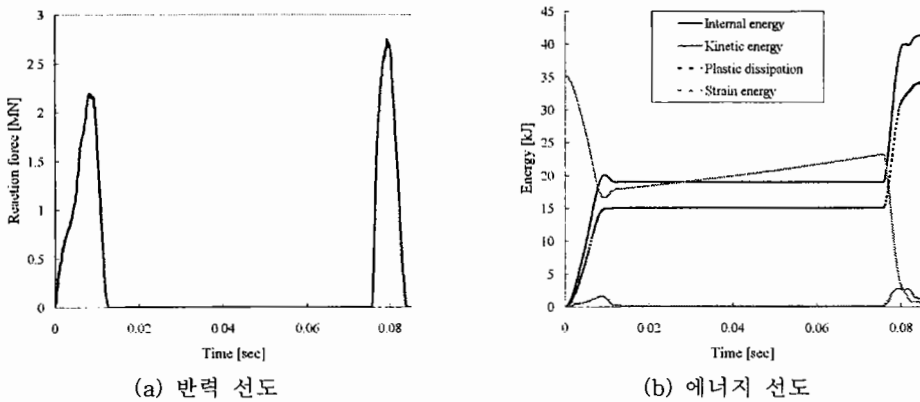


Fig. 1. 바닥경사낙하해석에서의 반력 및 에너지 선도

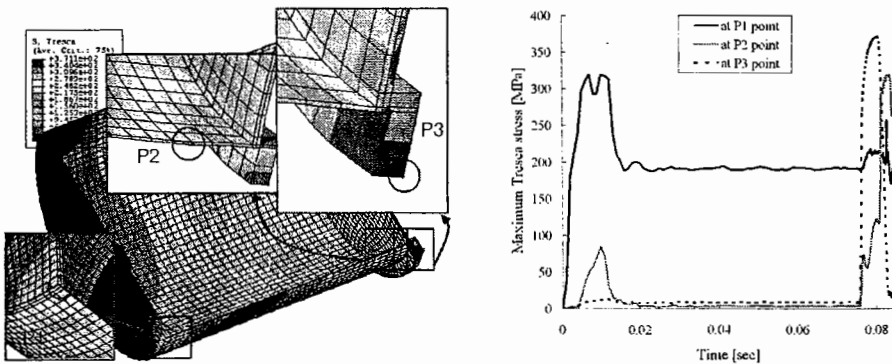


Fig. 2. 바닥경사낙하해석에서 격납경계의 최대 Tresca 응력이 발생하는 시간에서의 응력분포도 및 최대 응력이 나타나는 위치에서의 응력선도

3. 결론

길이와 폭의 비가 작아서 회전력이 작지만 중량이 큰 A형 운반용기의 경우, 경사낙하조건은 낮은 초기 낙하높이에 비하여 2차 충돌이 일어나는 위치의 낙하높이가 상대적으로 커서 2차 충돌에서 1차 충돌 시에 비하여 큰 충격력이 발생된다. 그러므로 길이와 폭의 비가 작지만 중량이 큰 A형 운반용기는 경사낙하조건은 중요한 평가조건이 된다.

방사능 오염부지의 복원행위에 관한 조사연구

황선태, 신동관

(주) 텍시빌, 대전광역시 서구 둔산동 1182번지, 송전빌딩 301호

sthwang12@hotmail.com

1. 서론

현재, 미국 환경보호청(Environmental Protection Agency: EPA)는 방사선 방호사업에서 방사능 오염 부지에서 방사능 복원(remediation) 및 제거(removal)를 위한 소위 수퍼펀드(Superfund) 프로그램을 지원하고 있다. "수퍼펀드"란 공해방지를 위한 대형자금으로서 공식적으로는 포괄적 환경반응, 배상 및 책임 법령(Comprehensive Environmental Response, Compensation, and Liability Act: CERCLA)으로 알려져 있는 미국 환경법에 대한 통칭으로서 뉴욕 Love Canal 재해^[1]에 대응하여 1980년 12월 11일 미국 의회에 의하여 입법화되었다. 원래, 수퍼펀드법은 심하게 오염된 유독성 폐기물 부지로부터 사람, 가정, 지역사회 등을 보호하기 위하여 창안되었다. 그러나 그 이후로부터 1990년까지 미연방정부는 방사능 오염부지의 정화를 위하여 더 많은 지침을 필요로 하게 되었다. 비록 모든 환경매체(예: 토양, 지하수, 공기)에서 정화활동이 진행되었지만, 공중의 관심, 기술적 복잡성 및 일관된 규정의 부족으로 그 진척도가 완만하였다. CERCLA는 어떤 부지이든지 국가우선순위목록(National Priorities List: NPL)에 등재되면 EPA에게 교정행위를 취할 수 있는 권한을 부여한다. 현재, 1,243 부지가 수퍼펀드 NPL상에 등재되어 있다.^[2] 수퍼펀드 프로그램은 국가적 불측사태 대응계획(National Contingency Plan: NCP)에 따라 위해도의 기준에 근거하여 NPL상에 등재된 방사능 오염부지에 적용된다. EPA의 방사선방호부는 수퍼펀드 프로그램에 치밀하게 간여한다. 특히, EPA 특유의 역할에는 테러리즘에 대한 대응, 유실된 방사성원천 관리, 방사성폐기물 처분의 안전조치 및 미국 국경선 경계 등이 포함된다.^[3]

2. 복원행위의 기준

일례로서, David C. Kocher^[4]에 의하면, Oak Ridge 보호구역 내의 방사능 오염부지에서 허용가능한 복원행위를 결정하기 위하여 제시된 방사선학적 기준은 다음과 같다:

- (1) 방사능 오염부지에 대한 활동기관의 통제 하에 있는 임의의 경계 밖의 공중에 대하여, 모든 피폭경로에 의한 유효선량당량 한계: 0.25mSv/y (평생 발암위험인자: 9×10^{-4}).
- (2) 방사능 오염부지로부터 일반 환경으로의 방사능 배출량은 합리적으로 가능한 한 낮게 (ALARA) 유지한다.
- (3) 방사능 오염부지에 대한 활동기관의 통제 상실 후, 임의의 시간에 그 부지로 부주의한 침입자에 대하여, 모든 피폭경로에 의한 유효선량당량 한계: 평생 만성피폭의 경우, 1mSv/y (평생 발암위험인자: 3.5×10^{-3}) 또는 단일, 급성피폭의 경우, 5mSv (평생 발암위험인자: 2.5×10^{-4}).
- (4) 합리적으로 달성 가능한 한도로, 중앙정부 및 지방자치단체의 필요조건에 일치되도록 지하수 및 지표수 수원의 보호. 그 보호 목표를 0.04mSv/y 로 가정할 경우, 평생 발암 위험인자: 1.4×10^{-4} .

3. CERCLA하에서 복원행위의 목표

CERCLA와 1990년 EPA의 이행법규에 의하면, 오염부지에 대한 복원행위의 목표는 다음의 사

향을 고려하여 전개되어야 한다고 명시하고 있다:

- (1) 지하수 및 지표수의 정화를 위하여 적용가능 또는 상용 및 고유 필요조항(Applicable or Relevant and Appropriate Requirements: ARARs)으로서 명시된 연방음료수 표준에 맞추어 다른 연방 또는 주 환경법하에서 확립된 ARARs,
- (2) ARARs에 포함되지 않았지만 고려되어야할(TBCs) 다른 정보(예를 들면, DOE 명령),
- (3) 알려진 또는 의심되는 발암성 물질(예를 들면, 방사성 핵종)을 위하여, 평생 발암위험인자의 상한선은 모든 물질과 모든 피폭경로에서 $10^{-4} \sim 10^{-6}$.

그러나 실제로, CERCLA 부지에서 평생 발암위험인자 $10^{-4} \sim 10^{-6}$ 를 위한 목표를 달성했던 사례가 없었다. 오히려, 1994년 EPA의 정화(cleanup) 결정에서 구현된 평생 발암위험인자는 일반적으로 $10^{-2} \sim 10^{-4}$ 의 범위로 나타났다. 그러나 슈퍼펀드(CERCLA) 정화에 관한 규정은 40CFR300에서 자세히 참고할 수 있다.

5. 결론

미국에서 방사능오염 부지를 위한 방사선학적 기준은 원자력에너지 법령의 권한 하에서 위험관리를 위한 방사선학적 패러다임에 본질적으로 기반을 두고 있다. 그러나 그러한 부지들은 보통 슈퍼펀드로 알려진 CERCLA의 권한 하에서 위험관리의 화학적 패러다임과 일치하여 복원되어진다. 여기서, 두 가지의 위험관리 패러다임은 방사선학적 패러다임의 중심이 되는 피폭 및 환경오염에 대한 한계와 화학적 패러다임의 중심이 되는 목표를 분명히 구별함으로써 그리고 그들에 의하여 건강위험과 환경오염을 ALARA 수준으로의 감소가 강조된다는 것을 인지함으로써 서로 용화시킬 수 있다. 한편, 비용에 상관없이 부합되어야 하는 기준의 어떤 것은 선량한계의 형태 혹은 화학적 패러다임의 응용에 있어서 현재 CERCLA하에서 인정받고 있는 규제개념을 나타내고 있지 않다는 것을 인지해야 한다. Kocher^[4]는 방사능오염 부지를 위한 복원행위의 기준이 어떻게 발암성 및 비발암성 위해화학물질에 응용될 수 있는가에 관하여 간략히 서술하였다. 그러나 그 응용성은 다소 추론적이며 비발암성 화학물질에 대해서는 더 더욱 추론적이다. 그러나 Kocher는 그의 연구보고서에서 모든 오염물질에 대하여 합리적으로 일관된 방법으로 피폭 및 환경오염에 대한 한계 및 목표의 개념을 응용할 수 있다는 것만을 지적하려고 의도하였다.

참고문헌

- [1] USEPA, Superfund 20th Anniversary Report, Retrieved on 2007-02-03.
- [2] USEPA, National Priority List Site by Status and Milestone, Updated on 2007-05-26.
- [3] EPA, Radiation Protection, EPA's Unique Role, EPA Office of Air and Radiation, EPA #402-F-01-021, March 2002.
- [4] D. C. Kocher, Radiological Criteria for Remedial Actions at Radioactively Contaminated Sites, Health Sciences Research Division, Oak Ridge National Laboratory September 1994.

콘크리트 해체폐기물의 건축물 재활용에 따른 방사선영향 평가

김계홍, 오원진, 정종현, 최왕규

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

ghkim@kaeri.re.kr

건설폐기물중 가장 양이 많은 폐콘크리트의 재활용은 부가가치가 높고 수요가 많기 때문에 재생 및 활용방안에 대한 연구는 필수적이다. 그리고, 원자력시설 해체 시 많은 콘크리트폐기물이 발생하지만 국내에 재활용 기술과 경험이 빈약한 상황이다. 원자력시설 해체폐기물의 70 ~ 80%가 콘크리트폐기물로 아직 단순 재활용 수준으로 부가가치가 높은 재활용을 위한 기술개발 여지가 크다. 또한 콘크리트폐기물 재활용에 의한 해체폐기물 감용은 해체사업의 경제성 향상에 크게 기여할 것이다.

그러나 원자력시설 해체 시 발생하는 콘크리트를 재활용하기 위해서는 합리적으로 설정된 피폭경로에서 잔류방사성물질에 의해 유발될 것으로 예상되는 방사선학적 영향에 대한 평가가 필요하다. 국내의 경우 “방사성폐기물 자체처분에 관한 규정”을 제시하고 있으며 방사능의 제한농도를 개인 및 집단에 대한 피폭방사선량이 재한치 미만이 되는 것이 입증되는 농도로 규정하고 있다.

본 연구에서는 원자력연구시설 해체 시 발생하는 폐콘크리트를 원자력관련 시설의 연구또는 실험 시설의 건물에 재활용함으로써 예상되는 방사선학적 영향평가를 수행하였다. 콘크리트 해체 폐기물에 잔류하는 방사선은 몇 가지 피폭 경로를 통해 일반인에게 방사선피폭을 유발할 수 있다. 재활용에 관련된 직접외부피폭, 건물 실내 공기 중으로 비산된 분진에 의한 외부피폭, 흡입(radon 포함)에 의한 내부피폭, 건물실내 표면의 방사능 입자 섭취에 의한 내부 피폭 등의 피폭경로를 고려하여 선량을 평가하였으며 평가도구는 RESRAD-BUILD 전산코드를 이용하였다.

개별 핵종에 대한 시나리오별 피폭방사선량을 평가하기 위하여 비방사능이 1 Bq/g의 핵종이 존재하는 것으로 가정하였다. 재활용 콘크리트의 밀도는 2.4 g/cm^3 로 가정하여 모든 피폭선량을 평가하였다.

단위 방사능 농도의 핵종이 유발하는 연간 개인선량을 평가하고 평가된 연간 개인선량을 규제 해체 기준선량($10 \mu\text{Sv/y}$)으로 나누어 핵종별 규제해체기준농도를 도출하였다. 방사성핵종별 예상 선량 기여분의 시간경과에 따른 변화추이를 건물의 수명 동안 평가하였으며 원자력시설 해체 시 발생한 콘크리트 재활용 방안에 대한 방사선영향평가 시 방사선량에 지배적인 방사선핵종이 시간 경과에 따라 달라질 수 있음을 확인하였다.

Safeguards approach at HANARO

Hyun-Sook Kim, Guk-Hoon Ahn

Korea Atomic Energy Research Institute, 150-1 Duckjin-dong, Yuseong-gu, Daejeon, 305-353

hskim77@kaeri.re.kr

1. Introduction

HANARO(High Flux Advanced Neutron Application Reactor) is a facility for research into nuclear science, materials, technology and engineering, isotope production and silicon irradiation, and it is a 30MW research reactor. It is one of the KAERI nuclear facilities under IAEA safeguards in accordance with the Safeguards Agreement between the Republic of Korea and the IAEA. The basic verification measure of the safeguards used by the IAEA is nuclear material accountancy. And containment and surveillance(C/S) measures, which are complementary to the nuclear material accountancy techniques, are applied in order to maintain a continuity of the knowledge gained through the IAEA verification. This paper describes the status of the safeguards at HANARO and the latest issue on the C/S measures of the spent fuel pool at HANARO.

2. Scenarios and Evaluation

1. The status of the safeguards at HANARO

1) Nuclear material accountancy

The IAEA identification code for the material balance area of HANARO is KOS-. It has 3 KMPs(Key Measurement Points) for the nuclear material flow and 4 KMPs for the physical inventory. Physical inventory taking and verification is carried out once a year and the procedures on it are as follows:

- ① Item identification and counting
- ② Preparation of an itemised inventory list for each inventory KMP
- ③ Non-destructive measurement

2) Containment and surveillance measures

C/S measures are applied in the Reactor hall, access routes to and from the reactor hall and pools, reactor pool, service pool, and the transport flasks of HANARO. So, the cameras were installed in HANARO.

2. The latest issue on the C/S measures of the spent fuel pool

Irradiated HANARO fuel has been stored in the spent fuel storage pool. It will be stored at the second layer of the spent fuel storage racks from the first half of 2009. So, it is necessary to consider the C/S measures on the spent fuel storage racks before the use of the second layer. KAERI discussed it with the IAEA. KAERI suggests two proposals to deal with the matter of the verification of the lower layer of the spent fuel assemblies as follows;

1) Proposal 1 for the C/S of the spent fuel storage racks

If a net with a 50mm mesh at the top of each layer is installed and an IAEA seal is installed between the nets in the spent fuel pool, it is impossible to move the spent fuels stored in the first layer.

2) Proposal 2 for the C/S of the spent fuel storage racks

After piling up the modules at the second layer, the bars are installed from the pool top to the top position of the modules at the third layer. It is impossible to move the spent fuels stored in the first layer without moving the module of the second layer. So, IAEA seal can be installed between the bar and the structure of the spent fuel pool. If the HANARO facility needs to move the modules of the second or third layer, KAERI has to notify the IAEA to detach the seal at the bar and work in the presence of an IAEA inspector.

KAERI and IAEA will further investigate these options for obtaining the optimum C/S measures of the spent fuel storage racks, and the C/S measures of the spent fuel storage racks will be finalized by the second quarter of 2008.

3. Conclusion

The status of the safeguards at HANARO and the latest issue on the C/S measures of the spent fuel pool at HANARO were reviewed in this report. Although KAERI and IAEA have discussed the matter of the verification of the lower layer of the spent fuel assemblies from the late 1990s, IAEA has yet to finalize it. So, KAERI suggests two proposals on the C/S measures for the verification of the lower layer of the spent fuel assemblies without the hinderance to the operation of the HANARO facility. IAEA will finalize it after reviewing the C/S measures KAERI suggests.

Safeguards approach for the nuclear waste at KAERI

Hyun-Sook Kim

Korea Atomic Energy Research Institute, 150-1 Duckjin-dong, Yuseong-gu, Daejeon, 305-353

hskim77@kaeri.re.kr

1. Introduction

There are 11 nuclear facilities at KAERI and some of them (R&D facility and Location Outside Facilities) consist of a number of laboratories. Experiments using small quantities of nuclear material are carried out in these laboratories and the nuclear waste produced from these laboratories has been increasing. On the other hand, nuclear waste including a nuclear material is under IAEA safeguards even if it includes small quantities of a nuclear material.

This paper describes the status and the safeguards approach to the small quantities of nuclear waste produced from the laboratories at KAERI.

2. Scenarios and Evaluation

1) Safeguards approach for the liquid waste of a nuclear material

Liquid waste of a nuclear material produced from the R&D laboratories is not solidified and is stored in each laboratory, while the liquid waste of a non nuclear material collected from all the laboratories is solidified annually to asphalt after a evaporation in the Radwaste Treatment Facility. As it has been increasing, it is difficult to store and manage it in the laboratories due to the lack of the storage space and a possibility of a container corrosion. So, KAERI discussed a safeguards approach for it with the IAEA. As a result of discussion, it will be possible for a liquid waste to be terminated from safeguards on a nuclear material if it is solidified. The follow-up measures for the safeguards termination of a liquid waste of a nuclear material are required as follows;

- a) Manufacture the tank for the liquid waste
- b) Designate a KMP for the tank
- c) Collect different kinds of the liquid waste from the laboratories to the tank
- d) Report it to IAEA. as TW (Transfer to retained waste)
- e) Report it to IAEA. as FW (Retransfer from retained waste) before solidifying the liquid waste
- f) Send notification of the solidification plan of the liquid waste to IAEA
- g) Solidify the liquid waste to asphalt

In the case of the irradiated liquid waste, it is produced by a burn-up measurement using spent fuel. It is also possible to be terminated from safeguards on a nuclear material if it is solidified by absorbing it in bentonite.

2) Safeguards approach for the solid waste of a nuclear material

Solid waste of a nuclear material from R&D laboratories is classified according to the nuclear material type, form and enrichment, then it is stored in each laboratory. As it has been increasing, the items for IAEA inspection are increasing and it is difficult to manage and control them in the laboratories. KAERI discussed a safeguards approach for it with IAEA. As a result of the discussion, the solid waste of a nuclear material from an experiment or process will be stored together regardless of the nuclear material type, form and enrichment from now on. In this case, it is possible to indicate the inventory of nuclear material using the continuation code in the nuclear material accounting reports.

3. Conclusion

The safeguards approach for small quantities of a nuclear waste from the laboratories at KAERI. was reviewed in this report. Liquid waste of a nuclear material can be terminated from safeguards on a nuclear material if it is solidified. In the case of the solid waste, it will be stored together regardless of the nuclear material type, form and enrichment from now on if it's inventory is well maintained in the nuclear material accounting reports. Therefore, the volume of the nuclear waste will be reduced and the items for IAEA inspection will be decreased. It will make a significant progress in the terms of a management and control on nuclear wastes.

통합안전조치체제적용에 따른 핵물질계량관리에 대한 고찰

김현숙

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진대로 1045

hskim77@kaeri.re.kr

1. 서론

우리나라는 전면 안전조치협정과 추가의정서에 명시된 핵물질검증방안을 적용받고 있으며, 현재 IAEA는 KAERI내 11개 원자력시설에 대하여 시설별 핵물질 검증방법을 채택하고 있다. 그러나 통합안전조치체제로 전환됨에 따라 시설별 검증방법에서 전 시설에 대한 핵물질 검증 방법으로 핵물질 검증방법이 변화할 될 예정이다.

본 논문에서는 기존의 안전조치 체제 및 통합안전조치 체제의 비교 분석하였고, 통합안전조치체제로 전환됨에 따른 KAERI 핵물질계량관리 및 대응방안에 대하여 고찰하였다.

2. 본론

1) 기존의 안전조치와 통합안전조치 비교

통합안전조치체제는 기존의 안전조치체제와 개념, 사찰빈도 및 사찰통보시기 등에 차이가 있으며 자세한 내용은 표 1에 나타내었다.

표 1. 기존의 안전조치와 통합안전조치 비교

	기존 안전조치체제	통합안전조치체제
1. 안전조치 개념	☐ 11개 안전조치 시설별 독립적인 안전조치개념 적용	☐ 연구소 전체에 대한 안전조치개념 적용
2. IAEA 사찰빈도 ① 물자재고검증 (PIV) ② 중간사찰 (Interim)	☐ IAEA 사찰 ① PIVs - 1회/년 ② 중간사찰 - 몇 회/년(특정시설에 한함)	☐ IAEA 사찰 ① PIVs - Cat. I 시설 : 1회/년 - Cat. II 시설 : 년 20%확률 ② Random Interim Ins. (RII) - Cat I. 시설 : 년 50%확률 - Cat II. 시설 : 년 20%확률
3. IAEA 사찰통보 ① PIV ② Interim	☐ 몇 주 전 통보	① PIV 계획 : 몇 주 전 ② Random Interim Ins. 계획 : 몇 시간 전

2) 통합안전조치체제 대응방안

① 실시간 핵물질계량관리체제

현 안전조치체제하에서 KAERI 안전조치 담당부서는 최소 몇 주 전 IAEA로부터 사찰일을 통보받고 있으며, 이를 시설 측에 통보하면 시설측은 안전조치 담당부서로 핵물질의 반입, 반출, 사용, 생산 및 저장 등에 관한 계량관리 자료를 제공하게 된다. 안전조치 담당부서는 이를 토대로 물자재고를 확정하는데 필요한 제반자료 및 주요측정지점별 특정핵물질 보유 현황 자료를 준비하게 되며, 장부와 실제 재고량을 비교·확인 후 IAEA 사찰수검을 받고 있다. 하지만, 통합안전조치체제로 전환하게 되면 몇 시간 전에 통보 사찰이 실시되기 때문에 이와 같은 절차를 통해서

사찰수검을 받는 것이 불가능하다. 따라서 통합안전조치체제하에서는 핵물질계량관리체제 뿐만 아니라 시설 측의 핵물질관리체제의 개선이 필요하다. 이를 위해서 KAERI는 실시간 핵물질 계량관리시스템을 개발 중에 있으며, 개발완료시 각 시설에 적용할 예정이며, 이 시스템은 통합안전조치체제하의 효율적 계량관리에 유용할 것이라 기대된다.

② 핵물질관리강화 및 기록유지

KAERI내 11개 시설 중 R&D시설 및 LOF시설의 경우, 각각 16, 10개의 실험실로 구성되어 있으며, 이들 실험실에서는 많은 연구원들이 소량의 핵물질을 이용하여 실험을 하고 있다. 현 안전조치체제에서는 안전조치 담당부서가 시설 측에 사찰일 통보하게 되면 계량관리를 위해서 모든 연구원들은 실험을 중단하고, 각 개인이 사용 중인 핵물질을 계량한 후 안전조치 담당부서로 통보를 하고 있지만 통합안전조치체제에서는 몇 시간 전 통보 사찰이 실시되므로 매일 자신의 핵물질 사용량 및 위치 등을 기록 유지 것이 필요하다. 이를 위해서는 핵물질 사용자들의 철저한 핵물질 관리 및 자신이 사용하는 핵물질에 대한 책임의식이 필요하다.

3. 결론

통합안전조치체제는 KAERI의 핵물질 계량관리체제에 많은 변화를 가져오게 될 것이며, 성공적 통합안전조치체제의 안착은 국가차원의 원자력 연구개발 활동에 대한 대외신뢰도 향상에 기여할 뿐만 아니라 우리나라의 제반 원자력활동에 대한 국제적 제약요인을 최소화시키는데 크게 기여할 것이다. 이를 위해서는 이러한 변화에 능동적으로 대응을 잘 하는 것이 중요하며, 무엇보다도 핵물질 사용자들의 핵물질관리에 대한 인식변화가 필요하다 또한 현재 개발 중인 핵물질계량관리시스템은 효율적 계량관리 뿐만 아니라 우리나라의 통합안전조치체제의 성공적 안착에 크게 기여할 것으로 보인다.

방사성폐기물 처분전 관리 시나리오 개발 연구

안민호, 이진재, 최경우*, 김성일*

한국과학기술원, 대전광역시 유성구 과학로 335

*한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 과학로 34

daniel-holy@nuchen.kaist.ac.kr

I. 서론

현재까지 국내 방사성폐기물관리와 관련한 대부분의 연구는 폐기물 처리와 처분으로 양분되어 연구되어 왔다. 방사성폐기물관리의 전과정중 일부인 폐기물 저장과 이에 관한 리스크에 대해서는 많은 연구들이 활발하게 진행되지 않고 있다. 국내의 방사성폐기물은 1978년 고리 1호기를 시작으로 하여 현재까지 70,000 드럼(200L 기준) 이상의 폐기물이 발생해오고 있다. 장기간의 방사성폐기물의 저장으로 인해 현재까지 유의 수준의 안전성 문제는 없었다 할지라도, 개별 드럼의 장기 저장에 따라 발생할 수 있는 위험인자들은 여전히 존재하고 있다. 이는 향후 방사성폐기물 처분전 관리 리스크를 평가할 때 고려되는 주요 안전성 요소들이 된다. 본 연구에서는 방사성폐기물 처분전 관리 리스크 평가에 필요한 시나리오의 개발을 위하여, 처분전 관리의 안전에 영향을 주는 인자를 도출하고, 도출된 인자를 이용하여 방사성폐기물 처분전 관리 시나리오를 개발하였다.

II. 방사성폐기물 처분전 관리 시나리오 개발

II-1. 시나리오 개발을 위한 초기사건 (Initiating event) 도출

방사성폐기물 처분전 관리 시나리오 개발을 위한 첫 번째 단계는 리스크를 초래할 수 있는 시나리오들에 대한 초기사건(IE)을 선정하는 것이다. 초기사건이란 정상 관리중인 방사성폐기물들이 방사능적, 물리적, 화학적, 생물학적 피해를 입음으로 인하여 방사능물질의 누출을 초래하는 사건을 의미한다. 초기사건은 아래의 그림 1에서와 같이 내부적인 요인에 의한 사건과 지진, 홍수 등과 같은 외부적인 요인에 의한 것으로 분류되어진다.

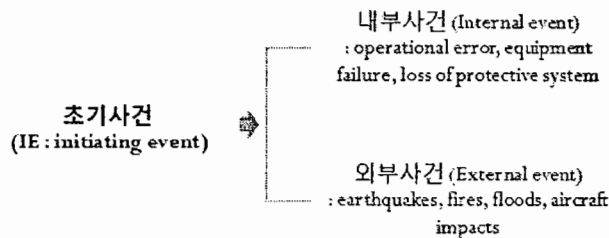


Fig 1. Initiating events related to a variety of the influence factor on safety

초기사건의 선정을 위하여 주 논리도 (MLD : Master Logic Diagram)를 구성하여 방사성폐기물 처분전 관리 시 발생할 수 있는 위험 인자들을 세 가지의 경우로 나누어서 분석을 하였다.

- 폐기물처리시설로부터 운송장치로의 이송 시 발생하는 위험 인자 (IE)
 - Lifting, failure, Fire, etc.
- 폐기물이 적재된 운송장치로부터 저장시설로 이송 시 발생하는 위험 인자 (IE)
 - Drum break, Gas generation, Fire, etc.
- 폐기물 운송장치로부터 저장시설에 드럼을 적재 시 발생하는 위험 인자 (IE)
 - Lifting failure, Structural failure, Fire, Gas generation, etc.

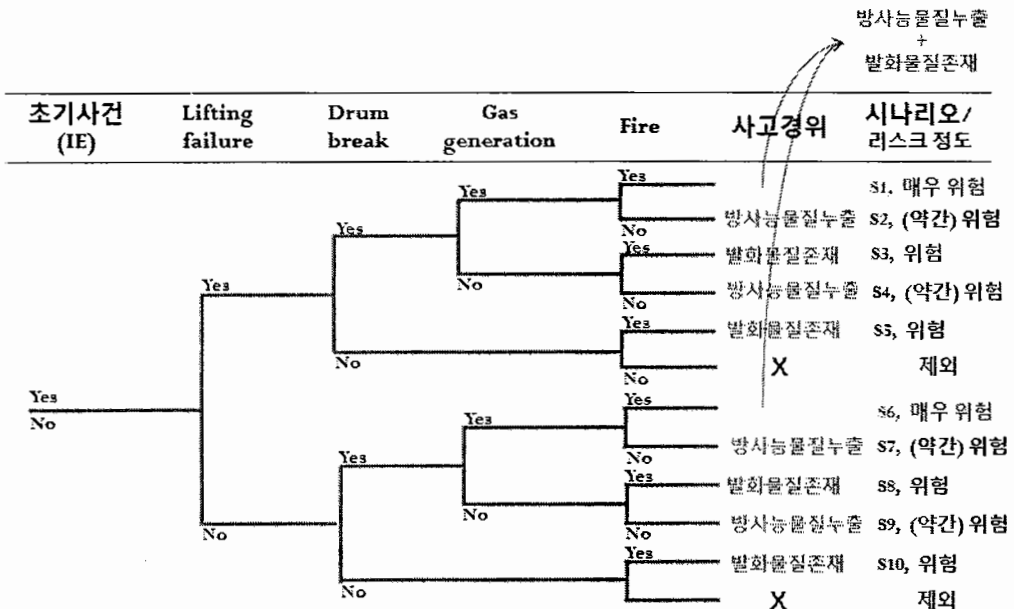
II-2. 방사성폐기물 처분전 관리 리스크 시나리오 개발을 위한 초기사건(IE)의 정립

주 논리도(MLD) 구성으로부터 개발되어진 모든 초기사건들에 대하여 screening 작업을 통하여 불필요한 범주 내에 있는 초기사건을 제거하고, 주 논리도 분석 내에 중복된 초기사건을 제거함으로써 불필요한 초기사건에 대한 사전 제거가 가능하다. screening 작업 이후, 최종 리스크 시나리오 개발을 위하여 유사한 초기사건별로 grouping 작업을 수행함으로써 시나리오 분석 작업의 효율성을 향상시킬 수 있다. 초기사건의 grouping을 통하여 3개의 대분류 체계, 4개의 중분류 체계로 나누어 최종 시나리오를 개발할 수 있다 (표 2).

Table 1. 방사성폐기물 처분전 관리 리스크 시나리오 개발을 위한 초기사건(IE) 목록

Drop		Gas generation	Fire
Lifting failure	Drum break	Gas generation	Fire
작업자의 실수로부터 기인하는 드럼의 화재	적정 중량(개수)을 초과하여 운송함에 따른 드럼의 추락	드럼의 추락 및 충돌에 따른 가스 발생	운송장치에서 발생하는 화재
적정 중량을 초과 적재함에 따른 드럼의 추락	작업자의 실수로부터 기인하는 드럼의 미끄러짐	장기저장 드럼으로부터의 가스 발생	저장시설에서의 화재

II-3. 방사성폐기물 처분전 관리 리스크 시나리오



III. 결론

본 연구를 통하여 10개의 방사성폐기물 처분전 관리 리스크 시나리오가 ETA(Event tree analysis) 방법을 통하여 개발되었다. 사고경위의 주요 원인은 크게 방사능물질의 누출과 발화물질의 존재로 볼 수 있고, 이들 원인에 의하여 개별 초기사건별로 이분수목법(Binary tree)을 이용하여 리스크 시나리오가 개발되었다. 시나리오 1, 6이 드럼의 파손으로 인하여 방사성핵종의 누출과 방사성 가스를 발생시켜 화재가 발생하는 아주 극단적인 리스크 시나리오이므로, 이에 비례하여 그 피해 정도도 가장 클 것으로 예상된다.

방사성폐기물 운반용기 완충재의 재질 특성 평가

남경오, 이주찬, 방경식, 최우석, 서기석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

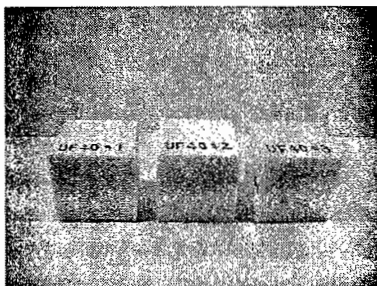
namko@kaeri.re.kr

1. 서론

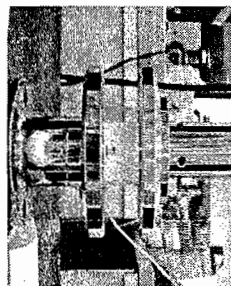
방사성폐기물 운반용기는 저장용기와는 달리 운송 중 발생할 수 있는 예상치 못한 사고에 대비한 대책이 강구되어야 한다. 이러한 사고에는 화재, 침수, 낙하, 관통, 파열 등 여러 형태의 사고 유형으로 분류될 수 있다. 특히 육상운송 중 차량의 충돌이나 추돌사고로 인한 차량에서의 용기이탈이나 교량에서의 추락, 크레인 인양작업 중 기계고장으로 인한 용기의 낙하 등 운반용기는 다양한 낙하사고에 노출되어 있다. 따라서 운반용기는 이러한 낙하사고조건에서 용기 내부의 방사성폐기물 유출이나 운반용기의 심각한 파손을 방지하기 위한 완충시스템이 구축되어야 한다. 이런 완충시스템은 용기에 직접 적용되거나 용기와 별도의 시스템을 구축하여 결합하는 방식 또는 두 가지 방식을 혼합한 형태로 구분된다. 용기에 직접 적용하는 경우는 용기 내외부 벽 사이에 완충재를 삽입하여 낙하충격 시 외부 및 삽입된 완충재가 충격을 흡수하여 내부 벽의 손상을 방지하는 시스템이다. 외부 완충시스템은 운반용기와는 별도로 충격을 흡수할 수 있는 별도의 충격흡수시스템을 제작하여 용기의 상하부에 장착하여 충격을 흡수하는 시스템으로 낙하사고 시 충격흡수시스템이 충격에너지를 흡수하여 용기손상을 방지하는 시스템이다. 마지막으로 두 시스템을 혼합한 형태로 가장 일반적인 방식이다. 운반용기 및 충격흡수시스템을 모두 갖추고 있어 가장 안전한 방식으로 평가할 수 있다. 이런 충격흡수시스템은 다양한 재질의 완충재를 사용하게 되는데 우레탄 폼, 나무, 에어 룸(air room), 허니콤 등이 주로 사용되고 있다. 특히 완충시스템을 설계하기 위해서는 운반용기 시스템에 가장 적절한 완충재를 선정하는 것이 중요하다. 이를 위해서는 완충재의 재질별 특성 평가가 이루어져야 한다. 그러나 아직 국내에서는 이런 완충재질에 대한 특성평가가 매우 미흡한 현실이다. 본 연구에서는 방사성폐기물 운반용기에 사용되는 완충재 재질에 대한 재질 특성 시험을 수행하였다. 본 연구결과는 완충재 선정 및 차후 해석을 위한 자료를 도출하기 위한 기초자료로 사용될 수 있을 것으로 판단된다.

2. 시험 및 결과

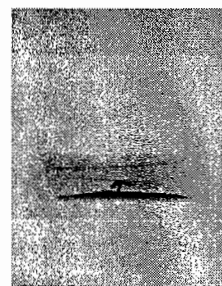
방사성폐기물 운반용기의 충격흡수시스템에 일반적으로 적용되는 발사 우드(Balsa wood), 우레탄 폼(urethane foam), 허니콤(honeycomb) 등에 대한 정하중 압축시험을 수행하였다. 우레탄 폼은 밀도가 각각 24, 26, 40 kg/m^3 인 시편을 준비하였다.(Fig 1. (a)참조) 압축속도는 5 mm/sec 이며 데이터획득속도는 2 msec으로 설정하였다.(Fig1 . (b), (c)참조)



(a) Density 40 kg/m^3 specimen



(b) Compression test

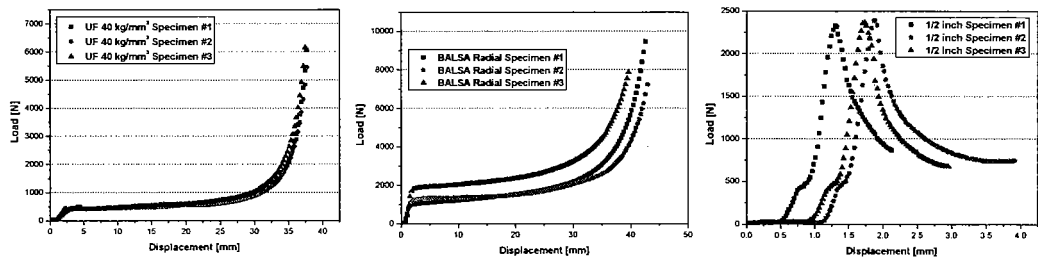


(c) After the test

Fig 1. Compression test of the urethane foam

발사 우드의 경우 나무라는 특성상 나이테의 방향에 따라 재질의 특성이 모두 다르다. 따라서 압축시험도 이런 방향성을 고려하여 수직, 반경 그리고 접선방향의 압축시험을 모두 수행하였다. 허니콤의 경우 격자모양의 간격에 따라 재질특성이 달라진다. 따라서 본 시험에서는 격자모양의 간격이 1/4, 1/2 그리고 1 인치인 허니콤에 대한 압축시험을 수행하였다. 압축속도와 데이터 획득 속도는 우레탄 폼과 동일하게 설정하였다. 시편 크기는 50 mm의 정육면체 형상으로 제작하였고, 허니콤의 경우 상하부면에 판재를 접착하였다.

밀도 40 kg/m^3 우레탄 폼의 정하중 압축시험 결과에서 변위가 약 2.6 mm까지 변형될 때까지는 하중이 선형적으로 변화하여 약 500 N까지 하중이 증가하였다. 그러나 이후 변위가 25 mm까지 하중의 변화 없이 변위만 증가하는 강소성 특성을 보이다가 그 이상 변위가 증가하게 되면 하중은 비선형적으로 크게 증가하는 경향을 보였다.(Fig 2. (a)참조) 이는 밀도가 24, 26 kg/m^3 인 시편에서도 비슷한 양상을 보였다. 발사 우드의 경우 반경 및 접선방향의 시편에서는 우레탄 폼과 동일하게 일정한 변위까지는 선형적인 하중 증가를 보이다가 그 이상 변위가 증가할 경우 하중은 더 이상 크게 증가하지는 않았다. 그러나 약 30 mm 이상 변위가 증가하게 될 경우에는 하중이 비선형적으로 증가하는 경향을 보였다.(Fig 2. (b)참조) 그러나 수직방향의 발사 우드 압축시험에서는 이와는 달리 일정 변위동안 하중이 증가하다가 더 이상의 하중 증가 없이 변위만 진전되는 경향을 보였다. 허니콤 시편의 압축시험에서는 다른 시편과는 달리 변위가 어느 정도 진전되는 동안에도 하중이 증가하지 않았다. 이 후 일정 변위에 도달하게 되면 하중은 급격하게 증가하는 경향을 보이다가 약 2400 N에서 다시 급격하게 감소하는 경향을 보였다.(Fig 2. (c)참조)



(a) Urethane foam 40 kg/m^3 (b) Balsa radial direction (c) Honeycomb 1/2 inch size
Fig 2. Results of the Compression test

3. 결론

방사성폐기물 운반용기의 완충시스템은 운반경로, 운반용기의 형상, 사고조건, 중량, 운송종류 등 다양한 외부 설계변수에 따라 재질의 선정이나 배치, 형상, 두께가 결정되어야 한다. 특히 기술한 설계변수에 따른 재질의 선정에 있어서 완충재의 특성 평가를 통해 가장 적합한 완충 재질 선정이 이루어져야 한다. 본 정하중 압축시험을 통해 우레탄 폼, 발사 우드, 허니콤 등의 충격흡수를 위한 완충재의 변형거동을 확인할 수 있었다. 또한 본 시험 데이터는 수치해석을 위한 물성 데이터로 활용할 수 있을 것으로 판단되며 추후 동하중 압축시험을 통한 동적거동 특성 연구가 수행되어야 할 것으로 사료된다.

사용후핵연료 수송비용 평가를 위한 선결 조건 결정

최희주, 차정훈, 이종열, 최종원

한국원자력연구원, 대전 유성구 대덕대로 1045

hichoi@kaeri.re.kr

원자력 발전을 통해 발생한 사용후핵연료의 관리를 위한 재원을 확보하기 위하여 한국수력원자력(주)가 원전사후처리충당금을 적립하고 있다. 재원 마련을 위한 비용은 전기사업법에 근거하여 평가하고 있으며, 산업자원부령 제279호에 의해 기존의 충당금 산식을 개정하였으며, 이 산식은 주기적으로 검토되고 있다.

산업자원부에서는 원전사후처리충당금의 적정성을 평가하기 위한 평가체계를 개발 중이다. 사용후핵연료 관리비용은 사용후핵연료 중간저장, 영구처분 및 수송과 관련된 제반 비용을 포함한다. 본 논문에서는 사용후핵연료 수송과 관련된 비용을 결정하기 위한 선결 조건을 검토하였다. 사용후핵연료 수송비용 평가에 있어 핵심 기술은 사용후핵연료 발생량과 처분율을 고려한 수송 로지스틱스 분석 결과의 적절성과 합리적인 단위 비용을 확보하는 것이다[1, 2]. 사용후핵연료 수송 경험이 부족한 국내 실정을 고려하여, 이와 관련하여 수송비용 평가에 필요한 최소한의 선결 사항을 국내 실정에 맞추어 결정하였다.

사용후핵연료 수송비용을 평가하기 위해서는 여러 가지 가정과 시나리오를 고려하여야 한다. 특히 우리나라와 같이 사용후핵연료 관리 정책이 결정되지 않은 상태에서, 수송비용을 평가한다는 것은 매우 어려운 일이다. 사용후핵연료 예상 발생량 및 연간 수송량, 수송 방법, 해상수송 시 경로 분석, 수송시스템 개념 등을 결정하여 제안하였다. 국내에는 고리, 월성, 울진 및 영광, 4곳의 원자력발전소 부지가 있다. 이들 모두를 대상으로 평가를 수행하여야 하나 비용평가 기술 확보를 위하여 우선 영광발전소만을 고려하였으며, 영광발전소에서 운전 중인 6기의 발전소 수명 동안 발생할 것으로 예상되는 사용후핵연료를 중간저장 및 영구처분을 위해 동해안의 가상 부지로 해상 및 육로 수송을 가정하였다.

수송 대상 사용후핵연료 특성을 결정하기 위하여 영광에서 이용되는 핵연료 특성을 비교하고, 이로부터 수송 캐스크 특성을 결정하였다. 사용후핵연료 발생량 추정에 이용된 핵연료 농축도와 방출량 등의 특성을 표 1에 나타내었다. 영광 부지에는 1990년 사용후핵연료가 방출된 이래 약 1,320톤의 사용후핵연료가 저장되어 있으며, 원자로 수명을 60년으로 가정할 경우, 그림 1에 나타난 바와 같이 약 7,200톤의 사용후핵연료가 원자로 수명동안 발생될 것으로 추정되었다. 사용후핵연료의 수송은 영광발전소로부터 중간저장시설로는 선박을 이용한 해상 수송을 가정하였으며, 수송선박 특성은 각국에서 이용하고 있는 선박들의 특성을 비교하여 결정하였다. 해상 수송을 통한 해로 분석을 위하여 국립해양조사원에서 제공하는 해상거리 프로그램을 이용하였다. 사용후핵연료 수송선박을 '위험물 운반선박'을 가정하여 해상거리 분석 프로그램을 이용하여 결정한 해로를 따라 선박의 운항시간을 분석한 결과 서해안에서 동해안으로의 항해 시간은 대략 30시간 정도로 추정되었다. 즉, 사용후핵연료를 해상 수송할 경우 국내 근해 항로를 따를 경우 2일이면 충분할 것으로 판단되었다.

연간 수송물량 결정을 위하여 중간저장 기간은 50년이며, 2016년부터 운영을 시작하여 영광발전소로부터 사용후핵연료를 25년간에 나누어 5,000톤을 수송하며, 2066년부터 영구처분시설로 30년에 걸쳐 운반하는 것으로 가정하였다. 수송 선박은 물량 분석 및 수송 단가 분석을 위하여 INF-2급과 INF-3급을 모두 고려하였다. 중간저장 시설로부터 영구처분시설로의 수송은 육로수송을 가정하였으며, 차량에 1개의 수송 캐스크를 운반하는 것으로 가정하였다. 이를 마탕으로 사

용후핵연료 수송비용 평가에 필요한 수송 시스템 개념을 설정하였으며, 설정된 수송시스템을 바탕으로 향후 수송비용 평가가 이루어질 계획이다.

표 1. 사용후핵연료 발생량 예측에 이용된 원자로 조건

Reactor name	Start of operation	Discharge rate (tU/yr)	Number of discharged assemblies (Ass/yr)	Maximum burnup (MWd/tHM)	U-235 enrichment (%)
YG-1	1986	18.7	43.6	60,000	4.5
YG-2	1987	18.7	43.6	60,000	4.5
YG-3	1995	18.5	44	60,000	4.5
YG-4	1996	18.5	44	60,000	4.5
YG-5	2002	18.5	44	60,000	4.5
YG-6	2002	18.5	44	60,000	4.5

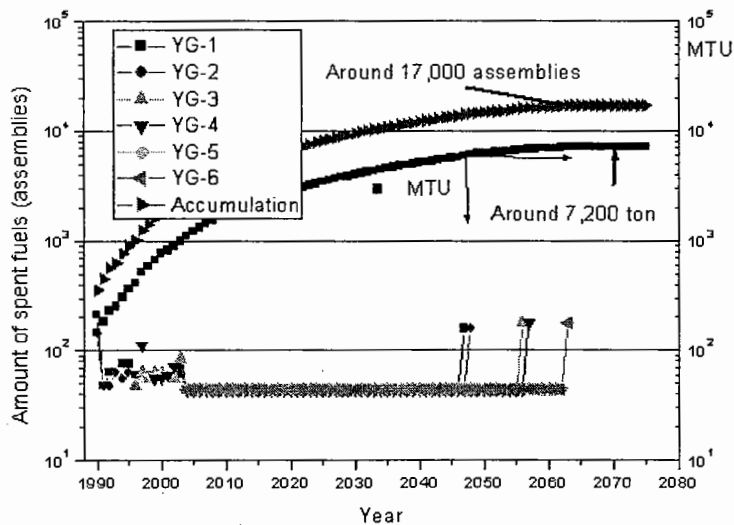


그림 1. 영광발전소에서 예상되는 사용후핵연료 발생량.

참고문헌

1. Cogema Logistics, Conceptual Designs for Transportation of Used Fuel to a Centralized Facility, Cogema Logistics (2003).
2. Cogema Logistics, Logistics of Transportation of Used Fuel to a Centralized Facility, Cogema Logistics (2003).

ACPF 수송용기 임계계산 비교

박창제, 강희영, 정창준, 민덕기, 이주찬, 방경식, 최우석, 서기석

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

cipark@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서 개발중인 차세대 핵주기 공정 실증시설에 사용될 운반 용기에 대해 임계계산을 수행하였다. 선원형은 17x17 경수로 핵연료 집합체로 농축도는 5.0 wt% U-235로 선정하였다. 선원형은 SCALE 5.0 시스템의 ORIGEN-S [1]를 이용하였고 감마 에너지는 18군, 중성자 에너지는 44 군을 이용하였다. 임계계산은 MCNPX [2]코드를 이용하였으며 비교를 위해 SCALE 5.0 시스템의 KENO-V[1]를 이용하였다.

2. 계산방법 및 결과 고찰

본 연구에서 계산되는 임계도는 구성재료에 대한 민감도 비교를 위해 다음과 같은 경우에 대해 수행하였다.

- 1) 핵연료
- 2) 핵연료 + 납 차폐재
- 3) 핵연료 + 납 차폐재 + SS 구조재
- 4) 핵연료 + 납 차폐재 + 폴리에틸렌 차폐재
- 5) 핵연료 + 납 차폐재 + SS 구조재 + 폴리에틸렌 차폐재

그림 1은 임계계산을 위해 이용된 단순화된 구조의 모양을 나타내고 있다. 핵연료는 단순화하여 중심에 원기둥 형태로 배치하였다. Table 1은 계산에 이용된 재료의 자료를 나타내고 있다.

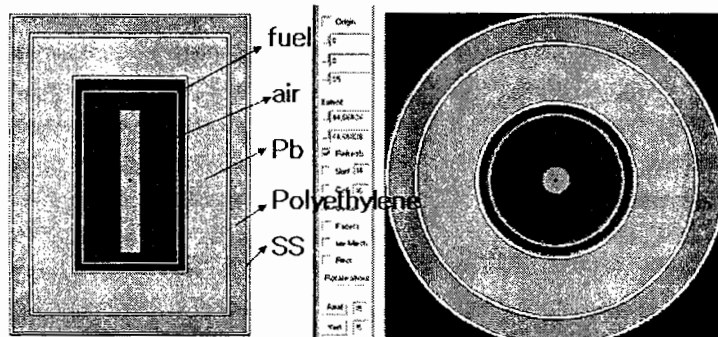


Fig. 1. Simplified configuration of the criticality calculation for the hot cell cask

Table 1 Composition of Materials for the Hot Cell Cask

	Polyethylene	Pb	S.S
Density (g/cm ³)	0.93	11.34	7.87
Composition (wt%)	H: 14.3 C: 85.7	Pb:100	C: 0.08, N: 0.1 Si: 0.75, P: 0.05 S: 0.03, Cr: 19 Mn: 2.0, Ni: 9.25 Fe: 68.74

계산 결과는 Table 2에 나타내었다. 계산에서 history 수는 500으로 하였으며, 핵연료나 핵연료와 납 차폐재 또는 스테인리스 스틸을 고려한 경우 임계도가 0.08 - 0.5 %로 거의 유사하게 산출되었다. 하지만 폴리에틸렌이 고려된 경우 약 4 - 6 %정도로 KENO가 높게 산출하였다. 이러한 요인은 폴리에틸렌에 포함된 C나 H의 산란 반응단면적의 영향으로 그 차이로 인한 민감도가 임계에 영향을 주는 것으로 판단된다. MCNPX의 경우 ENDF-VI 라이브러리가 이용되고 있으며, KENO-V의 경우는 ENDF-V이 이용되고 있어 라이브러리 차이도 함께 고려해야 할 것이다. 운반 용기 평가 시 사용후핵연료를 취급하기 때문에 임계는 충분히 만족할 것으로 판단된다.

Table 2 Criticality for Various Cases for the Hot Cell Cask

	Fuel only	Fuel + Pb	Fuel + Pb + SS	Fuel + Pb + Po	Fuel + Pb + Po + SS
MCNPX	0.08722 (0.00016)*	0.09197 (0.00017)	0.09288 (0.00016)	0.19043 (0.00063)	0.16428 (0.00052)
KENO-V	0.08767 (0.00018)	0.09163 (0.00022)	0.09295 (0.00020)	0.19724 (0.00062)	0.17387 (0.00051)
Relative Error (%)**	0.516	-0.369	0.075	3.576	5.838

* standard deviation, ** $(k_{\text{KENO}} - k_{\text{MCNP}}) / k_{\text{MCNP}} \times 100$

3. 결론

ACPF 운반 용기 해석을 위한 임계 계산을 수행하였으며 MCNPX 코드와 KENO-V 코드를 이용하여 비교하였다. 재료에 대한 민감도 계산을 수행하였으며 폴리에틸렌 차폐재를 제외하고 두 코드 모두 유사한 결과를 산출함을 확인하였다. 수송용기에서는 임계 계산에서 라이브러리 및 재료에 대한 민감도 있음을 확인하였으며 충분한 정확성을 위해 보다 면밀한 계산이 필요함을 알 수 있다.

참고문헌

1. I.C. Gauld, et als., "ORIGEN-S: SCALE System Module to Calculate Fuel Depletion, Actinide Transmutation, Fission Product Buildup and Decay, and Associated Radiation Source Terms," ORNL/TM-2005/39, Version 5, Vol. II, Book 1, Sect. F7 (2005)
2. D.B. Pelowitz, ed., MCNPX User's Manual, LA-CP-05-0369, Los Alamos National Laboratory, 2005.

최적의 물리적방호체제 구축을 위한 요건

이성호, 황용수, 이병두, 김현숙

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

shlee10@kaeri.re.kr

1. 서론

2000년대 초반 국제사회에서 핵물질 및 원자력시설에 대한 물리적방호체제에 대한 관심이 커지면서 우리나라도 2004년 이후 국내 관계법령 정비, 국가 물리적방호조직 구비 및 원자력시설의 물리적방호체제 강화 등 많은 성과를 거두어 왔다. 2000년대 이후 국제사회 및 국내에서 물리적방호체제 DBT(Design Basis Threat)를 바탕으로 물리적방호를 객관적으로 평가할 수 있는 기능을 추가하면서 강화되어 왔으며, 이는 국제 물리적방호 권고사항(IAEA INFCIRC 225, rev. 4)에 반영되어 왔다. 그러나 국내에서는 실제 평가에 필요한 Threat Definition(위협에 대한 정의) 및 Analysis & Evaluation Code(물리적방호 평가코드) 개발이 현재까지 지연되고 있는 상황이다.

상기 두 가지 사안의 지연은 원자력시설 현장에서 물리적방호 강화(보완)에 많은 어려움을 주고 있는데, 이는 막대한 비용을 투입하여 물리적방호체제를 구축하여도 해당 원자력시설의 물리적방호가 얼마나 완벽한지 객관적으로 보장할 수가 없기 때문이다.

2. 본론

Threat Definition 및 물리적방호 평가코드 없이 효율적인 물리적방호체제 구축(보완)을 위해서는 평가코드가 궁극적으로 평가하게 될 Adversary task time과 PPS time간의 상관관계를 통하여 물리적방호체제를 효과적으로 구축할 수 있는 방안을 예측할 수 있다.

그림 1은 Adversary task time과 PPS time간의 상관관계를 나타내고 있으며, 개략적인 의미는 Adversary(침입자)가 원자력시설에 침투하여 목표달성에 필요한 시간을 Adversary task time으로 볼 때 물리적방호시스템으로 이를 저지하는데 필요한 시간을 PPS time required로 볼 수 있다.

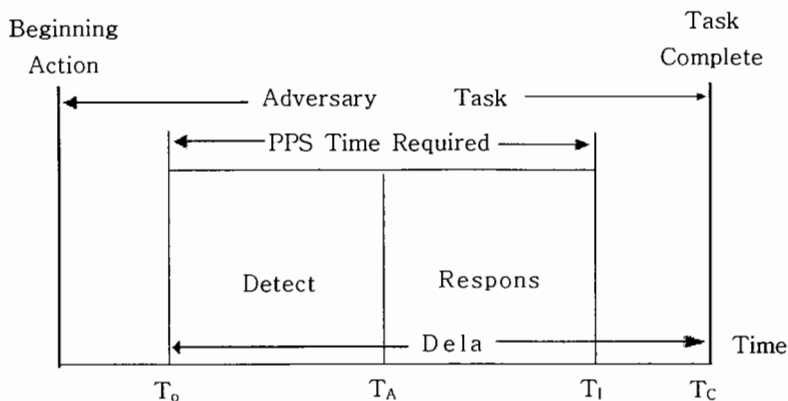


그림 1. Adversary task time 과 PPS time의 비교

침입자가 Beginning Action 시간에서 침투를 시작하면 Detection 장비에 의해 T_0 에서 최초 Alarm을 감지하게 되며 T_A 에서 Alarm은 최종 평가된다. Alarm이 평가된 T_A 이후 communication에 의해 Response team이 출동하고 Response team에 의해 T_1 에서 Adversary

task는 종료된다.

따라서, 만약 침입자를 Task 종료시점인 T_c 에 앞서 물리칠 수 있다면 T_1 는 T_c 앞쪽(왼편)에 존재하게 되고 이 물리적방호시스템은 잘 구축된 것으로 간주할 수 있는 반면, Task 종료시점인 T_c 이전에 물리칠 수 없다면 T_1 는 T_c 뒤쪽(오른편)에 존재하게 되고 침입자를 목적을 달성하게 되며 고 이 물리적방호시스템은 잘 구축된 것으로 간주할 수 없다.

또한, T_0 및 T_c 는 침입자인 Adversary에 의해 결정되는 시간인데 반하여, 물리적방호시스템은 T_A 및 T_1 에 관계된다. 즉, Detection 기능이 우수하고 Alarm assessment가 신속하게 이루어 질 경우, Detection time부터 Assessment time까지인 T_A 는 훨씬 짧아지고 물리적방호체제를 가동하는데 활용할 수 있는 시간이 길어진다. Response time이 짧아지는 것은 실제 외부에서 출동하는 병력의 도착시간이 짧아지는 것이므로 실제 이를 단축하는 것은 쉽지 않다. 따라서 해당 물리적방호체제를 그림 1에서 비교하였을 때, Response 시간을 일정하다고 하고 Delay 시간인 T_0 부터 T_1 까지가 충분히 길면서 Alarm Assessment 시간인 T_0 부터 T_A 는 짧은 경우, 물리적방호체제는 잘 구축되었다고 할 수 있다.

또한, 이러한 원자력시설의 물리적방호체제 평가는 객관적인 평가 Tool로써만 가능하며 원자력 선진국에서는 물리적방호 computer code를 개발하여 사용하고 있다.

3. 결론

이상과 같이 Adversary task time과 PPS time의 비교를 통하여 최적의 물리적방호체제가 갖추어야 할 요건들은 다음과 같음을 알 수 있다.

먼저, Detection/Alarm assessment/Response 시간의 합인 PPS time required가 짧아야 한다. 이는 Detection 효율이 좋도록 방호장비를 설치하여야 하며, 방호요원이 Alarm assessment를 신속하게 확인하여야 하며, 인근의 Response team의 출동시간이 짧을수록 효과적이라는 의미이다.

둘째, Delay 시간은 길어야 한다. Delay 시간이 길수록 침입자의 Adversary task time이 길어지고 최종적으로 Response team의 도착까지 대응할 수 있는 시간을 충분히 가질 수 있다. 이를 위하여, Detection은 가능한 빨리 이루어져야 하며, Detection 이후 침입을 물리적으로 지연할 수 있는 방호장비(목표물에 가까이 있는 방호장비)는 튼튼할수록 효과적이다.

셋째, PPS time required는 Detection/Alarm assessment/Response 시간의 합이므로 이중 한가지 기능이 약할지라도 다른 기능을 강화시켜 PPS time required를 줄여야 한다. 이는 PPS 설계자가 Adversary task time과 PPS time간의 상호관계를 잘 알고 있을 때 탄력적으로 적용하는 것이 가능하다.



Korean Radioactive Waste Society

대전시 유성구 대덕대로 1045 한국원자력 연구원 정보 과학동 2층 205호

TEL : +82-42-861-5851 FAX : +82-42-861-5852

E-mail : krs@kaeri.re.kr <http://www.krws.or.kr>