

Abstracts of Proceedings of the
Korean Radioactive Waste Society
Spring 2010

한국방사성폐기물학회 학술논문요약집

- 2010년 봄 -

일시 : 2010. 5. 13(목)~14(금)

장소 : 덕산스파캐슬

주최 : 한국방사성폐기물학회

후원 : (주)대우건설, 무진기연(주)



사단
법인

한국방사성폐기물학회

Abstracts of Proceedings of the
Korean Radioactive Waste Society
Spring 2010

한국방사성폐기물학회 학술논문요약집

- 2010년 봄 -

- 일시 : 2010. 5. 13(목)~14(금)
- 장소 : 덕산스파캐슬
- 주최 : 한국방사성폐기물학회
- 후원 : (주)대우건설, 무진기연(주)



사단
법인

한국방사성폐기물학회

빈 면

목 차

제1분과 방사성 폐기물 정책 및 제염해체 (ORAL) 좌장 : 황두성 · 최왕규

09:00	방폐장 준공지연과 그 결과에 대한 고찰	21
	이병일 · 김우곤 [월성원전 · 방폐장민간환경감시센터]	
09:20	콘크리트 해체폐기물 부피감용 실증실험	23
	민병연 · 김상민 · 김계남 · 최왕규 · 이근우 [한국원자력연구원]	
09:40	방사성 폐액의 처리를 위한 무기-무기 이온교환 복합체 제조	25
	이정준 · 양병일 · 문제권 · 이근우 [한국원자력연구원]	
10:00	모의 방사성 핵종에 대한 광용발 제염공정 특성.....	27
	원희준 · 바이갈마 · 정종현 · 문제권 · 이근우 · 정운수 [한국원자력연구원]	
10:40	중 · 소형 원자로 발생 방사성폐기물 관리 방향 분석.....	29
	이수홍 · 이재민 · 한병섭 [(주)에네시스], 송민철 [한국원자력안전기술원]	
11:00	산과 중성염의 혼합 제염 용액에서의 퇴역 증기 발생기 금속 폐기물 제염 특성 평가	31
	권미경 · 최왕규 · 이근우 [한국원자력연구원]	
11:20	고주파 유도로(Induction Furnace)를 이용한 용융금속의 분배특성 평가 ...	33
	홍상범 · 박진호 · 황두성 · 이기원 · 정운수 [한국원자력연구원]	
11:40	Preparation of organic polymers for decontamination of surface radioactive contamination	35
	Ho-Sang Hwang, Bum-Kyoung Seo and Kune-Woo Lee [KAERI]	
12:00	해체 대상 고방사능 시설의 오염도 원격 측정용 ZnS(Ag)/plastic phoswich 검출기 제조 및 특성 평가	37
	서범경 · 이보람 · 이근우 [한국원자력연구원]	

제1 분과 방사성폐기물 정책 및 제염해체 (POSTER)

P0101	조사재시험시설 핫셀 배기덕트 제염기술 개발	41
	백상열 · 김기하 · 송웅섭 · 안상복 · 류우석 [한국원자력연구원]	

P0102	우라늄 변환시설 해체 방사성 폐기물의 특성 평가	43
	지연희 · 박승국 · 백삼태 [한국원자력연구원]	
P0103	Light ablation decontamination characteristics of metal specimen contaminated with simulated radionuclides at 532 nm	45
	Byambatseren Baigalmaa, Hui-Jun Won, Jei-Kwon Moon, Chong-Hun Jung and Kune-Woo Lee [KAERI]	
P0104	변환시설 발생 우라늄함유 유기폐액의 열분해 특성 및 조성 분석.....	47
	양희철 · 김상민 · 민병연 · 최왕규 · 이근우 [한국원자력연구원]	
P0105	겔 화학 제염에 의한 방사성 핵종 제거특성.....	49
	정종현 · 원휘준 · 문제권 · 이근우 · 김창기 [한국원자력연구원]	
P0106	A survey of non-radiological risk controls for decommissioning safety assessment	51
	KwanSeong Jeong and KuneWoo Lee [KAERI]	
P0107	불용핵물질 저장 관리	53
	황두성 · 최윤동 · 최휘경 · 이규일 · 정운수 [한국원자력연구원]	
P0108	방사성토양 제염을 위한 동전기제염 기술 개발	55
	김계남 · 손동빈 · 이승수 · 이기원 · 정운수 · 박진호 [한국원자력연구원]	
P0109	연구로 해체 기술 평가	57
	박승국 · 지연희 · 박진호 · 정운수 [한국원자력연구원]	
P0110	GRR-1 일차냉각계통 해체계획 수립	59
	정재훈 · 박정수 · 이병식 · 백춘선 [한국전력기술(주)]	
P0111	미국 에너지부(DOE) 방폐물관리시설 표준의 국내 적용성 분석.....	61
	손명성 · 김안섭 [대한전기협회], 나진수 · 이병식 [한국전력기술(주)]	
P0112	방사성물질 사용시설 해체 계획 수립 및 수행시 안전성 평가 활용에 대한 국제 동향 분석	63
	정관성 · 이근우 [한국원자력연구원]	
P0113	방사성토양 동전기제염폐액 처리기술개발	65
	손동빈 · 김계남 · 이승수 · 이기원 · 정운수 · 박진호 [한국원자력연구원]	

제2분과 방사성폐기물 처리 (ORAL)

좌장 : 양호연 · 조용준

09:00	폴리머 시멘트 고화체의 조성비에 따른 공극률 변화	69
	지영용 · 광경길 · 홍대석 · 김태국 · 류우석 [한국원자력연구원], 김동호 [한일원자력(주)]	
09:20	방사성폐기물 저감화를 위한 방사선관리구역 분리형 작업복 개발.....	71
	박병목 · 채경선 · 신경옥 · 김명호 [세안기술(주)] 윤용기 · 박종민 · 이병국 [한국수력원자력(주)]	
09:40	파이로 전처리공정의 배기체처리기술	73
	박장진 · 신진명 · 이재원 · 박근일 · 이정원 [한국원자력연구원]	
10:00	대기압 플라즈마 공정 기술을 이용한 제염설비 개발	75
	진동식 · 조천휘 · 김종화 [(주)엑트], 전상환 · 김용수 [한양대학교]	
10:40	폐순환냉각수계통 방식제에 따른 이온교환특성 평가	77
	이정진 · 이영채 · 이지훈 [한수원(주)원자력발전기술원]	
11:00	방사성폐액 전처리설비 처리성능 향상	79
	조향래 · 박경록 · 황태원 [한수원(주)원자력발전기술원]	
11:20	희토류 핵종 산화침전공정 발생 희토류 침전물내 잔류 공용염(LiCl-KCl) 분리 및 회수에 관한 연구	81
	은희철 · 양희철 · 김인태 · 이한수 · 조용준 [한국원자력연구원]	
11:40	휘발성 금속염화물 함유 란타나이드 산화물의 고형화	83
	박환서 · 조인학 · 박현혜 · 안병길 · 김환영 · 김인태 · 조용준 [한국원자력연구원]	
12:00	삼중수소 저장용기 열용량이 삼중수소 열량계 측정성능에 미치는 영향	85
	송규민 · 고병욱 · 이계우 · 손순환 · 정양근 [한전전력연구원] 장민호 · 윤세훈 · 강현구 · 조승연 · 정기정 [국가핵융합연구소] 정홍석 [한국원자력연구원]	

제2분과 방사성폐기물 처리 (POSTER)

P0201	활성탄소 섬유필터를 이용한 요오드 포집 및 감용기술 개발	89
	조여진 · 강덕원 [(주)아에리스]	
P0202	석탄회 필터를 이용한 세슘과 몰리브덴의 동시 포집	91
	신진명 · 박장진 · 이재원 · 이정원 · 김성훈 [한국원자력연구원]	
P0203	LiCl 및 LiCl-KCl 폐용융염 고화체의 물리화학적 특성평가	93
	박환서 · 조인학 · 박현혜 · 안병길 · 김환영 · 김인태 · 조용준 [한국원자력연구원]	

P0204	LiCl-KCl 공용융염내 요오드의 고정화를 위한 고화매질합성: 제올라이트계 물질과 AgI의 고온반응특성	95
	여선옥 · 박환서 · 조인학 · 박현혜 · 김인태 · 조용준 [한국원자력연구원]	
P0205	폐순환냉각수계통 무용존산소 방식특성 평가	97
	이지훈 · 양호연 · 이정진 [한수원(주)원자력발전기술원]	
P0206	무기합성복합체의 Al/Fe 조성변화에 따른 LiCl염폐기물의 고형화 특성	99
	조인학 · 박환서 · 박현혜 · 김인태 · 조용준 [한국원자력연구원]	
P0207	LiCl-KCl 공용융염 폐기물과 무기복합체의 탈할로겐화 반응특성	101
	박현혜 · 박환서 · 조인학 · 김인태 · 조용준 [한국원자력연구원]	
P0208	페지르칼로이 피복관의 전해정련을 통한 지르코늄 회수 타당성 예비평가	103
	박창제 · 강영호 · 이성재 · 양재환 · 나상호 · 심희진 · 강권호 · 이정원 [한국원자력연구원]	
P0209	한국원자력연구원 KURT 황산염환원 미생물이 우라늄 거동에 미치는 영향...	105
	오종민 · 이승엽 · 백민훈 [한국원자력연구원]	
P0210	알루미늄보레이트에 의한 염화리튬의 탈염소반응	107
	김환영 · 안병길 · 조용준 · 김인태 · 박환서 [한국원자력연구원]	
P0211	액체폐기물 처리성능 향상을 위한 RO시스템 적용 사례	109
	박경록 · 조항래 · 황태원 [한수원(주)원자력발전기술원]	
P0212	우라늄금속 폐기물 특성 및 처리	111
	최윤동 · 최휘경 · 이규일 · 황두성 · 정운수 [한국원자력연구원]	
P0213	사용후 핵연료 파이로공정발생 공용염폐기물내 희토류염 화물 분리 및 염 회수공정	113
	이태교 · 조용준 · 김인태 · 이한수 [한국원자력연구원]	
P0214	폴리머시멘트고화체에서의 폴리머첨가가 압축강도에 미치는 영향	115
	곽경길 · 김태국 · 지영용 [한국원자력연구원], 김동호 [한일원자력(주)]	
P0215	철재방사성폐기물의 자체처분을 위한 드라이아이스 제염장치 성능평가 ...	117
	김창환 · 이상태 · 조현태 · 김효철 · 이의동 [하나검사기술(주)]	
P0216	배기체 폐 필터 처리기술 개발을 위한 폐 필터의 특성평가	119
	양재환 · 박창제 · 나상호 · 심희진 · 강권호 · 이정원 [한국원자력연구원]	
P0217	연구로 및 우라늄변환시설 해체폐기물 처리계획	121
	이기원 · 홍상범 · 조광훈 · 박진호 · 정운수 [한국원자력연구원]	

P0218	LiCl 염 재생을 및 핵종분리의 고효율을 위한 결정화기 모델링	123
	정진석 · 조용준 · 김인태 · 이한수 [한국원자력연구원]	
P0219	10,000 Ci 삼중수소 저장용기의 수소저장특성	125
	박대엽 · 백승우 · 이민수 · 안도희 [한국원자력연구원]	
	손순환 · 송규민 [한전전력연구원]	
P0220	경수로 원자로 냉각재 CRUD 대표시료 채취 기술 연구	127
	김민재 · 정성엽 [(주)성우이앤티], 강덕원 [한전전력연구원]	
P0221	방사성폐기물 자체처분시 연마제염 개선에 대한 기술	129
	신정욱 · 박병목 · 채경선 · 정희성 [세안기술(주)]	
P0222	Polymer Solidification Technology – Technical Issues and Challenges	131
	Charles Jensen [Diversified Technologies Services]	
	JuYoul KIM [FNC Technology Co.]	
P0223	란탄계 산화물의 세라믹 고화체 제조	133
	안병길 · 박환서 · 김환영 · 조용준 · 김인태 [한국원자력연구원]	
P0224	(Na ₂ CO ₃ -NaHCO ₃)-H ₂ O ₂ 혼합탄산염 용액에서 Cs 및 Tc의 침전 제거	135
	이일희 · 임재관 · 이세윤 · 최은경 · 현준택 · 정동용 · 양한범 · 김광욱	
	[한국원자력연구원]	
P0225	탄산염계에서 금속산화물에 의한 과산화수소 분해	137
	정동용 · 최은경 · 양한범 · 이일희 · 김광욱 [한국원자력연구원]	

제3분과 방사성폐기물 처분 및 부지특성 (ORAL) 좌장 : 박주완 · 이민수

09:00	단열 암반의 배경 단열을 고려한 지하수 유동 모의 및 평가	141
	고낙열 · 지성훈 · 고용권 [한국원자력연구원]	
09:20	토륨의 용해에 미치는 탄산이온 농도의 영향	143
	김승수 · 민제호 · 백민훈 · 최종원 [한국원자력연구원]	
09:40	지하처분연구시설의 광섬유센서 모니터링시스템 운영 결과 분석	145
	배대석 · 김경수 · 고용권 [한국원자력연구원], 김중열 [(주)소암컨설팅트]	
10:00	장심도 정밀수리시험용 Straddle packer system 구축	147
	김경수 · 박경우 · 지성훈 · 고용권 · 최종원 [한국원자력연구원]	

10:40	방사성폐기물 처분장 운영 중 안전성 평가 체계 구축	149
	정종태 · 황미정 · 최희주 [한국원자력연구원]	
11:00	공학적 방벽에서의 구리의 장기부식연구	151
	이민수 · 최희주 · 최종원 · 이지현 [한국원자력연구원]	
11:20	선진핵주기 고준위폐기물 처분 모듈 개발	153
	최희주 · 이종열 · 이민수 · 조동진 · 국동학 [한국원자력연구원]	
11:40	Conceptual Modeling for Local Two-Dimensional Radionuclide Transport with Discrete Fracture Network in Wolsong LILW Disposal Center ...	155
	Joo-Wan Park and Sung-Wook Hong [KRMCI]	
	Doo-Hyun Lim [Golder Associates Inc.]	
12:00	처분시설 폐쇄후 잡고체폐기물 기체발생량 비교평가	157
	이선정 · 정해룡 · 박진백 [한국방사성폐기물관리공단]	

제3분과 방사성폐기물 처분 및 부지특성 (POSTER)

P0301	방사성 폐기물 처분장의 동적거동 모니터링을 위한 AE적응과 Moment Tensor 기법을 활용한 파쇄위치 추적기술 현황	161
	이경수 · 김진섭 · 권상기 [한국원자력연구원]	
P0302	Particle Flow Code 2D의 미시변수와 열전도도의 상관관계 분석	163
	이창수 · 전석원 [서울대학교], 권상기 [한국원자력연구원]	
P0303	처분 시설 운영자 자체 세부 인수기준 설정 방안	165
	전태훈 · 정성엽 · 최진규 · 정현철 [(주)성우이엔티]	
P0304	심지층 처분 방법 해석	167
	장철웅 · 이정성 · 김신 [제주대학교]	
P0305	파이로공정 금속폐기물 처분시스템의 예비선량평가	169
	국동학 · 조동진 · 이민수 · 이종열 · 최희주 [한국원자력연구원]	
P0306	하나로 폐기물의 주요 처분원가 분석	171
	김성기 [한국원자력연구원]	
P0307	Cam-Clay Model을 적용한 벤토나이트 물성 해석	173
	김현아 · 이민수 · 이종열 · 최희주 [한국원자력연구원]	
P0308	지하처분연구시설(KURT) 운영현황	175
	박정화 · 조원진 · 권상기 [한국원자력연구원]	

P0309	칼슘-벤토나이트의 팽윤거동: 염분의 영향	177
	임진규 · 이재완 · 조원진 · 권상기 [한국원자력연구원]	
P0310	지하연구시설(KURT)에서 비수착성 추적자를 이용한 현장 응질이동 실험	179
	이태엽 · 이재광 · 박정균 · 백민훈 [한국원자력연구원]	
P0311	KURT내 심부시추공(DB-1)의 주요 단열구간별 지하수의 지화학 특성.....	181
	김건영 · 박경우 · 류지훈 · 고용권 · 최종원 [한국원자력연구원]	
P0312	Statistical properties of background fractures observed at the deep borehole in KAERI Underground Research Tunnel(KURT)	183
	S.-H. Ji, D. H. Lee and K. W. Park [KAERI]	
P0313	Lattice Boltzmann Model을 이용한 3차원 Fractal 공극매질의 수리동역학적 특성 연구	185
	김정우 [한국원자력연구원]	
	Michael C. Sukop [Florida International University]	
	Edmund Perfect[University of Tennessee], Yakov A. Pachepsky [USDA-ARS]	
P0314	황산염환원박테리아에 의한 핵종의 나노광물포획 특성 연구	187
	이승엽 · 오종민 · 백민훈 · 최종원 [한국원자력연구원]	
P0315	공학적방벽시스템 현장실증시험 개념설계	189
	이재완 · 조원진 · 권상기 [한국원자력연구원]	
P0316	처분공 내 완충재블록 배치 및 유동특성	191
	이재완 · 임진규 · 조원진 · 권상기 [한국원자력연구원]	
P0317	GoldSim을 이용한 킬레이트 영향 평가방법	193
	이성호 · 이연명 [한국원자력연구원]	
P0318	장심도 시추공을 활용한 부지특성모델 연구	195
	박경우 · 고용권 · 김건영 · 박강섭 [한국원자력연구원]	
P0319	비정상 상태에서 고준위폐기물 처분장 공학적방벽시스템의 열-역학적 거동 모사	197
	조원진 · 이재완 · 권상기 [한국원자력연구원]	
P0320	방사성폐기물 처분안전성 평가 활용을 위한 웹기반 핵종 수탁데이터베이스 개발	199
	이재광 · 백민훈 [한국원자력연구원], 서민석 [(주)에네시스]	
P0321	방사성폐기물 처분용 고건전성 개발용기 재료의 이온확산 평가	201
	전종선 · 박상규 · 김연화 · 이재민 [(주)에네시스], 박종익 [(주)계림폴리콘]	

제4분과 사용후핵연료 및 핵연료주기 (ORAL)

좌장 : 신희성 · 윤종일

- 09:00 Safeguards-by-Design 프로세스에 관한 기술현황 분석 205
 신희성 · 송대용 · 안성규 · 한보영 · 박세환 · 정정환 · 엄성호 · 김호동
 [한국원자력연구원]
- 09:20 우라늄 산화 분말 내 ^{235}U 측정을 위한 Am-Li 중성자 선원을 이용한 능동형
 중성자 계수 207
 안성규 · 엄성호 · 신희성 · 김호동 [한국원자력연구원]
- 09:40 기준 파이로 시설의 계량측정시스템 방안과 미계량 물질 측정 불확도 209
 한보영 · 송대용 · 신희성 · 안성규 · 김호동 [한국원자력연구원]
- 10:00 국내 사용후핵연료의 열 · 재료 및 구조적 특성 211
 김용수 [한양대학교]
- 10:40 미국 사용후핵연료 관리 정책: 2010년 현황과 전망 213
 박병홍 · 권은하 · 이호희 · 고원일 [한국원자력연구원]
- 11:00 Study of the Eu^{2+} and Eu^{3+} coexist in LiCl-KCl Eutectic Melt by
 Spectrophotometry and Electrochemistry Method 215
 Tack-Jin Kim, Do-Hee Ahn and Han-Soo Lee [KAERI]
 Akihiro Uehara, Toshiyuki Fujii and Hajimu Yamana [Kyoto University]
- 11:20 고온 LiCl-KCl 용융염 내 Tb(III) 원소의 농도에 따른 형광분광 특성 분석 ... 217
 김봉영 · 이동형 · 윤종일 [KAIST]
- 11:40 레이저 유도 파열 분광법을 이용한 LiCl-KCl 용융염 시료 내 Na, Tb, Mo 원소
 분석 219
 이동형 · 김봉영 · 윤종일 [KAIST]
- 12:00 LiCl-KCl 용융염 내 란탄족 원소 (Tb^{3+} , Eu^{3+}) 형광신호의 온도 의존성 연구... 221
 정의창 · 배상은 · 차완식 · 박용준 · 배인에 · 송규석 [한국원자력연구원]

제4분과 사용후핵연료 및 핵연료주기 (POSTER)

- P0401 고체-액체 통합형 음극 장치에 대한 연구 225
 권상운 · 박기민 · 김정국 · 심준보 · 김광락 · 백승우 · 김시형 · 안도희 · 이한수
 [한국원자력연구원]

P0402	LiCl-KCl 용융염에서 우라늄의 전기화학적 특성 연구	227
	윤달성 · 백승우 · 김시형 · 김광락 · 심준보 · 안도희 [한국원자력연구원]	
P0403	고온 LiCl-KCl 용융염 내 UCl_3 합성반응에서 일어나는 U 산화수 변화 ...	229
	배상은 · 조영환 · 박용준 · 송규석 [한국원자력연구원]	
P0404	고온 구조 재료 분석 및 U 전착물과 eutectic 반응 특성	231
	이성호 · 조준호 · 박성빈 · 강희석 · 이성재 · 전완기 · 박기민 · 이한수 · 김정국 [한국원자력연구원]	
P0405	우라늄 전해정련에서 우라늄 용해에 대한 전기화학적 특성평가	233
	이성재 · 강영호 · 박성빈 · 황성찬 · 전완기 · 이한수 · 김정국 [한국원자력연구원]	
P0406	용융염 전기화학 반응기의 모델기반 전기장 모사	235
	김광락 · 백승우 · 김시형 · 심준보 · 안도희 · 이한수 [한국원자력연구원] 김지용 · 윤달성 [과학기술연합대학원대학교]	
P0407	우라늄-카드뮴 합금의 제조 및 증류거동조사	237
	김지용 [UST], 안도희 · 권상운 · 김광락 · 백승우 · 김시형 [한국원자력연구원]	
P0408	가압을 이용한 LiCl-KCl- UCl_3 용융염 이송 및 펠렛제조 특성	239
	강희석 · 우문식 · 전완기 · 김정국 · 이한수 [한국원자력연구원]	
P0409	삼염화 우라늄 제조를 위한 염소 공급관 개선 연구	241
	우문식 · 강희석 · 김정국 · 이한수 [한국원자력연구원]	
P0410	LiCl-KCl 용융염의 점도 특성	243
	안홍주 · 연제원 · 배상은 · 조영환 · 박용준 · 송규석 [한국원자력연구원]	
P0411	전해정련장치 전기장 2D/3D 해석 비교 연구	245
	김승현 · 류홍열 · 이종현 [충남대학교], 박성빈 · 김정국 · 이한수 [한국원자력연구원]	
P0412	Czochralski 결정화법을 이용한 염폐기물 정제시 LiCl 결정 크기분석 ...	247
	류홍열 · 김승현 · 이종현 [충남대학교], 박성빈 · 김정국 · 이한수 [한국원자력연구원]	
P0413	LiCl-KCl 및 액체 Cd 속에 있는 U의 $CdCl_2$ 에 의한 산화반응 특성	249
	심준보 · 김지용 · 한광선 · 윤달성 · 김시형 · 백승우 · 권상운 · 김광락 · 이한수 안도희 [한국원자력연구원]	
P0414	고온용융염 전해환원 공정에서 백금 산화전극의 전기화학 반응 특성	251
	정상문 · 신호섭 · 최은영 · 홍순석 · 허진목 [한국원자력연구원]	
P0415	다공성 고체 함침 LiCl 증발제거	253
	박병홍 · 정명수 · 조수행 · 허진목 [한국원자력연구원]	

P0416	우라늄 산화물의 전해환원 특성연구-Lab Scale Test	255
	최은영 · 정상문 · 허진목 · 최인규 · 권선길 · 강대승 · 홍순석 · 신호섭 [한국원자력연구원]	
P0417	우라늄제조 장치를 통한 잉곳시험	257
	조춘호 · 이운상 · 박성빈 · 박기민 · 이성호 · 김정국 [한국원자력연구원]	
P0418	전해환원공정에서 Fe-Base 합금의 부식거동	259
	조수행 · 강대승 · 홍순석 · 정명수 · 조해동 · 허진목 · 이한수 [한국원자력연구원]	
P0419	SQS 방법을 이용한 사용후 금속핵연료 전해정련 공정발생 공용염폐기물 처리	261
	조용준 · 김인태 · 이한수 [한국원자력연구원]	
P0420	회전형 휘발성 산화장치 제작 및 그레놀형 원료입자 제조 기초 실험	263
	이재원 · 윤여완 · 신진명 · 박근일 · 박장진 · 이정원 [한국원자력연구원]	
P0421	SIMFUEL 이용 고온 산화열처리 분말의 소결 특성	265
	이재원 · 김청한 · 박장진 · 박근일 · 이정원 [한국원자력연구원]	
P0422	모의 금속연료의 압축 크리프 거동	267
	나상호 · 주윤정 · 박창제 · 강권호 [한국원자력연구원]	
P0423	차폐셀과 근접구역의 부압조건 및 여과장치 개요	269
	황용화 · 이형권 · 서항석 · 권형문 · 장정남 · 전용범 · 민덕기 [한국원자력연구원]	
P0424	Sensitivity Analysis of the Criticality Evaluation Concerning Pyroprocess	271
	Fanxing GAO, Won Il KO, Chang Je PARK and Ho Hee Lee [KAERI]	
P0425	파이로 시설의 핵물질 흐름 분석 및 MUF 불확도 계산 프로그램 개발	273
	서지선 · 한보영 · 송대용 · 신희성 · 김호동 [한국원자력연구원], 임혜인 [UST]	
P0426	PRIDE 디지털 목업을 이용한 원격장비의 공간 및 취급성 분석	275
	김성현 · 김창희 · 김기호 · 김호동 [한국원자력연구원]	
P0427	수증기증류를 이용한 모의사용후핵연료 중 브롬 및 요오드 동시분리 및 정량	277
	김정석 · 김현정 · 박순달 · 전영신 · 한선호 · 송규석 [한국원자력연구원]	
P0428	국내 PWR 사용후핵연료의 방사능 및 열적 특성	279
	심지형 · 김용수 [한양대학교]	
P0429	SFR 핵연료 하나로 조사시험 캡슐 제조 공차에 따른 영향 평가	281
	천진식 · 이병운 · 양용식 · 서철교 · 김준환 · 이종탁 · 이찬복 [한국원자력연구원]	

P0430	사용후핵연료의 재료 및 기계구조적 특성 평가	283
	윤학규 · 김용수 [한양대학교]	
P0431	안전조치 적용을 위한 핵물질계량 LIBS 개발 장치구축	285
	정정환 · 양정하 · 정의창 · 신희성 [한국원자력연구원]	
P0432	핵연료주기 동적 시뮬레이션 분석	287
	정창준 · 고원일 [한국원자력연구원]	
P0433	사용후핵연료 안전성 평가를 위한 수소장입 지르코늄 피복관의 크립거동... ..	289
	정양일 · 김현길 · 최병권 · 박동준 · 박상윤 · 박정용 · 정용환 [한국원자력연구원]	
P0434	이산사건기반 파이로 핵물질흐름분석 모델(PyroFlow v1.0)	291
	이효직 · 김기호 · 김호동 [한국원자력연구원]	
P0435	사용후핵연료 집합체에 대한 내 · 외부의 연소도 측정	293
	엄성호 · 박세환 · 안성규 · 임혜인 · 손영준 · 권인찬 · 주준식 · 신희성 · 김호동 [한국원자력연구원]	
P0436	PRIDE 시설 계통설비 설계	295
	정원명 · 조일제 · 유길성 · 이은표 · 홍동희 · 구정희 · 이원경 · 김호동 [한국원자력연구원]	
P0437	PRIDE시설 아르곤 정제장치 설계 및 설치 방안	297
	홍동희 · 조일제 · 유길성 · 정원명 · 이은표 · 문성인 · 이원경 · 구정희 [한국원자력연구원]	
P0438	핫셀용 거시시편 표면분석을 위한 영상장치 개발	299
	서항석 · 전용범 · 이형권 · 권형문 · 황용화 · 장정남 [한국원자력연구원]	
P0439	PWR 사용후핵연료봉 내압 및 공간체적 측정시험 평가	301
	이형권 · 서항석 · 전용범 · 민덕기 · 권형문 · 황용화 [한국원자력연구원]	
P0440	원격성을 고려한 고효율 탈피복/분말화 일체형 장치개발	303
	김영환 · 정재후 · 김기호 · 박근일 · 이정원 · 이영순 · 이도연 [한국원자력연구원]	
P0441	국산 고연소도 사용후 핵연료의 HBS 고온 가열시험 특성(1)	305
	김대호 · 방제건 · 임익성 · 김선기 · 양용식 · 구양현 [한국원자력연구원]	
P0442	MA 함유 SFR 금속연료 헬륨방출 모델링	307
	이병운 · 천진식 · 김준환 · 이찬복 [한국원자력연구원]	
P0443	금속연료-피복관 상호반응 방지를 위한 Barrier 피복관 기술개발	309
	김준환 · 천진식 · 이병운 · 이찬복 [한국원자력연구원], 지승현 · 윤영수 [연세대학교]	

P0444	방사성 환경 적용을 위한 원격 취급시스템	311
	김기호 · 이종광 · 이효직 · 김성현 · 김창희 · 박병석 · 김호동 [한국원자력연구원]	
P0445	모듈식 원격 다발 용접장치 설계 및 성능시험	313
	김수성 · 이도연 · 박근일 · 이정원 [한국원자력연구원]	
P0446	파이로 공정 운전과 유지보수 절차서 검증을 위한 디지털 목업 설계 및 제작··	315
	박희성 · 김성현 · 박병석 · 김기호 · 김호동 [한국원자력연구원]	
P0447	사용후핵연료 특성 데이터 분석 프로그램 개발	317
	조동건 · 국동학 · 최희주 [한국원자력연구원]	

제5분과 방사선 안전 및 환경 (ORAL)

좌장 : 강문자 · 윤정현

09:00	고리 원자력발전소 주변 환경방사선(능) 장기 추세 및 축적경향 평가	321
	이갑복 · 정양근 · 양양희 [한전전력연구원], 김주열[(주)미래와도전]	
09:20	고온연소로와 액체섬광계수기를 이용한 해조류중의 요오드-129 방사능 분석··	323
	강문자 · 김희령 · 조영현 · 정근호 · 이완로 · 이창우 · 최근식 [한국원자력연구원]	
09:40	경주 처분장의 중 · 저준위 방사성폐기물 인수검사설비 구성 및 운영	325
	임석남 · 김생기 · 정기진 [한국방사성폐기물관리공단]	
10:00	방사성동위원소 생산시설이 주변 환경에 미치는 영향 평가	327
	최근식 · 박두원 · 김희령 · 강문자 · 이완로 · 이창우 · 정근호 · 조영현 · 최상도 박효국 [한국원자력연구원]	
10:40	PWR의 증기발생기 교체시 경제성을 고려한 작업자 피폭선량 저감화 방안 제시	329
	최수원 · 신상화 · 황주호 [경희대학교]	
11:00	건식저장을 위한 사용후핵연료 구조건전성 평가 수행체계 정립에 관한 연구··	331
	이성기 · 남윤석 · 김용환 · 전상윤 · 최기성 · 조창석 [한전원자력연료]	
11:20	사용후핵연료 수송/저장시스템 설계시 연소도이득효과 적용을 위한 동위원소 함량 보정계수 도출	333
	김경오 · 김순영 · 이우교 [(주)래드코어], 박제호 [(주)코네스코퍼레이션] 김태만 · 윤정현 [한국방사성폐기물관리공단], 김종경 [한양대학교]	
11:40	중수로 사용후연료 전용운반용기 성능검사를 위한 선원량평가	335
	김민철 · 최보열 · 맹성준 [한수원(주)원자력발전기술원]	
12:00	사용후핵연료 수송/저장 연소도 적용용기 설계특성 분석	337
	윤정현 · 최윤지 · 이은용 · 우상인 [한국방사성폐기물관리공단] 이강욱 · 박제호 [(주)코네스코퍼레이션]	

12:20	사용후핵연료 수송방안 평가기술 개발	339
	백창열 · 성기열 · 윤정현 [한국방사성폐기물관리공단], 신상원[(주)에네시스]	

제5분과 방사선 안전 및 환경 (POSTER)

P0501	중수로 사용후핵연료 전용운반용기 방사선차폐 성능평가	343
	김민철 · 정성환 [한수원(주)원자력발전기술원], 고재훈 [(주)코네스코퍼레이션]	
P0502	사용후핵연료 연소도에 따른 주요 핵종의 함량 변화 분석	345
	임혜인 [UST], 엄성호 · 서지선 · 박세환 · 신희성 [한국원자력연구원]	
P0503	사용후핵연료 수송방안분석 프로그램 개발 시나리오 예비 구성 및 DB 예비 설계	347
	신상원 · 이수홍 · 이재민 [(주)에네시스], 백창열 · 윤정현 [한국방사성폐기물관리공단]	
P0504	감마선 선량 측정을 이용한 사용후핵연료 집합체 연소도 분포 도출 연구 ...	349
	박세환 · 신희성 · 엄성호 · 임혜인 [한국원자력연구원]	
P0505	사용후핵연료 건식 중간저장시설의 안전등급 분류방안에 관한 고찰	351
	정재학 · 이윤근 [한국원자력안전기술원]	
P0506	중간저장 시설 방식선정을 위한 사용후핵연료 발생 전망 분석	353
	김태만 · 최윤지 · 조천형 · 윤정현 [한국방사성폐기물관리공단]	
P0507	LSDTS 장치 차폐 예비평가	355
	노경용 · 박창제 · 이용덕 · 이정원 [한국원자력연구원]	
P0508	KSC-1 수송용기 격납평가	357
	방경식 · 이주찬 · 서중석 · 민덕기 · 서기석 [한국원자력연구원]	
P0509	다목적 핫셀운반용기 및 접속시스템 개발	359
	최우석 · 이상훈 · 서기석 · 김호동 [한국원자력연구원]	
P0510	사용후핵연료 수송용기의 과도화재 전산시뮬레이션 방안분석	361
	이주찬 · 방경식 · 서기석 [한국원자력연구원], 김형진 · 윤정현 [한국방사성폐기물관리공단]	
P0511	판형 용기의 삼중수소 열량계 성능	363
	정동유 · 정도연 · 구대석 · 정홍석 [한국원자력연구원]	
P0512	미국의 사용후핵연료 건식저장용기 인증현황	365
	채경선 · 박병목 · 신경욱 · 박장순 · 전상환 [세안기술(주)]	
P0513	Ru 동위원소 비 측정에서 나타나는 Mo 동위원소 영향 및 이의 보정	367
	전영신 · 김정석 · 하영경 · 한선호 · 송규석 [한국원자력연구원]	

P0514	골드심 생태계 평가 모델 비교 검증 연구	369
	이연명 · 정종태 [한국원자력연구원]	
P0515	사용후핵연료 운반 안전성 평가를 위한 사고 조건 설정	371
	이수홍 · 신상원 · 이재민 [㈜에네시스], 성기열 · 윤정현 [한국방사성폐기물관리공단]	
P0516	사용후핵연료 해상수송 시나리오에 대한 안전성 평가	373
	안동현 · 황주호 [경희대학교]	
P0517	MCNPX 코드를 이용한 감마선원과 차폐의 다양한 조건하에서 선량계산 프로그램 개발	375
	김원직 · 박재우 [제주대학교]	
P0518	국내 원전의 액체 방사성유출물 배출 현황 및 특성평가	377
	육대식 · 정승영 · 이아란 · 이윤근 [한국원자력안전기술원]	
P0519	처분시설 부지주변 환경방사능 평가 및 경향 분석	379
	박은상 · 김정수 · 광상수 · 정의영 · 김생기 · 정기진 [한국방사성폐기물관리공단]	
P0520	밀봉 알파, 베타 표준선원을 이용한 다중선 비례계수기 유효성 평가.....	381
	고종현 · 이영주 · 강기두 [한수원(주)원자력발전기술원]	
P0521	HPGe검출기와외의 거리차에 따른 측정효율변화 고찰	383
	임성규 · 노인현 · 송관석 · 안창석 · 장동철 [한일원자력(주)]	
P0522	경주 처분장 주변 발토양에 대한 채소류의 방사성 Iodine 전이계수 측정 ...	385
	임광목 · 전인 · 박두원 · 최용호 · 금동권 [한국원자력연구원]	
P0523	원자력발전소 정지 수화학 산화처리 중 방사성코발트에 따른 원자로 냉각재 배관 선량을 평가	387
	최진수 · 성기방 · 양호연 [한수원(주)원자력발전기술원]	
P0524	원전 방사성폐기물 내 ¹²⁹ I의 방사능 측정방법에 대한 고찰	389
	송병철 · 김영복 · 최계천 · 한선희 · 이명호 · 송규석 [한국원자력연구원]	
P0525	ZrCo 용기 내 삼중수소 모사히터의 정상상태 운전	391
	정도연 · 정동유 · 구대서 · 정홍석 [한국원자력연구원]	
P0526	고준위 감마선 조사장치 조사시간 오차 측정	393
	원유호 · 조문형 · 강기두 [한수원(주)원자력발전기술원]	
P0527	정상운전시 가연성폐기물 감용 시설 주변 방사선 환경영향 평가	395
	김희령 · 황원태 · 최근식 · 홍상범 · 이기원 · 정운수 [한국원자력연구원]	

P0528	Uncertainty Analysis on the Health Risk Caused by a Radiological Terror.....	397
	Hyo-Joon Jeong, Won-Tae Hwang, Eun-Han Kim and Moon-Hee Han [KAERI]	
P0529	공기 중 방사성 제논 측정에서 최소검출농도(MDA) 산출에 관한 연구	399
	이완로 · 최상도 · 김희령 · 정근호 · 조영현 · 강문자 · 최근식 · 이창우 [한국원자력연구원]	
P0530	SDS 용기에서의 가열온도에 따른 삼중수소 공급속도	401
	구대서 · 정동유 · 정도연 · 정홍석 [한국원자력연구원]	
P0531	과거드럼 척도인자 적용을 위한 잡고체폐기물 방사능 분석	403
	강기두 · 박종길 [한수원(주)원자력발전기술원], 한선희 [한국원자력연구원]	
P0532	원전 폐순환냉각계통 탄소강 재질에 대한 방식제 농도영향 평가	405
	김상현 · 최병선 · 맹완영 [한국원자력연구원], 이지훈 · 양호연 [한수원(주)원자력발전기술원]	
P0533	사용후핵연료 건식저장 콘크리트 캐스크의 안전규제 요건 및 방사선 손상에 관한 기술현황 분석	407
	김진섭 · 최종원 · 권상기 [한국원자력연구원], 조계춘 [KAIST]	

빈 면

제1분과

방사성폐기물 정책 및 제염해체 (Oral)

빈 면

방폐장 준공지연과 그 결과에 대한 고찰

이병일, 김우곤

월성원전·방폐장민간환경감시센터, 경북 경주시 양북면 와읍리 394

byunglee@wsnesc.or.kr

요약

정부는 방폐장 부지선정에 19년을 소요하였다. 이 후 방폐장 특별법에 따라 주민투표를 실시하였으며 그 결과 2005년 12월에 경주로 결정되었다. 2008년 8월 실질적인 공사가 시작 되었으나 2009년 6월 방폐물공단에서는 30개월의 추가적인 공기가 필요하다는 준공지연을 발표하였다. 이 준공지연 발표 직 후 방폐장 안전성 논란이 불거졌다.

감시기구에서는 안전성 논란의 출발이 준공지연으로 야기되었음을 인식하고 준공지연 원인분석을 하였다. 그 결과 감시기구에서 확인한 준공지연의 원인은 당초 실현하기 매우 어려운 공기를 설정한 것이며 또 이를 실현 가능한 공기로 수정(준공지연)하는 과정에서 과거의 오류를 인정하지 않고 공사의 어려움을 검토한 내부문서가 유출되어 시민들을 혼란스럽게 한 것이 주된 이유임을 확인하였다.

1. 서론

영국의 사회학자 앤서니 기든스는 그의 저서 '기후변화와 정치학'에서 지구온난화의 문제는 인류가 경험한 과거의 어떤 문제보다도 심각하며 전 세계가 정치적으로 접근해야한다고 주장하고 있다. 이명박 대통령은 2009년 12월에 열린 제15차 유엔기후변화협약 당사국 총회에서 2020년 배출전망치보다 온실가스의 30% 감축계획을 발표하였다. 이에 앞서 정부에서는 국정운영의 새 비전으로 저탄소 녹색성장을 발표하였고 여기에 원자력비중확대가 포함되어 있다.

이 때 원자력발전과 더불어 필요한 시설이 폐기물처분장이다. 왜냐하면 원자력발전을 하는 경우에 방사성폐기물의 생성은 피할 수 없으며 국내 발전소에 저장 중인 폐기물의 포화를 고려할 때 폐기물처분장의 시급한 필요성은 두 말할 필요가 없다. 국내 발전소 1개 호기는 연간 약 200개의 폐기물 드럼을 생성한다. 현재 국내에서 운

영 중인 20개호기 발전소를 고려하면 약 4000드럼이 연간 생성된다.

경주는 국가적 난제를 해결하고 지역경제를 살리고자 많은 사람들의 노력으로 마침내 2005년에 방폐장 특별법에 따라 주민투표로 경주에서 유치하였다. 그러나 방폐장 공사를 시작한지 10개월 만인 2009년 6월에 30개월의 준공지연을 발표하였다. 준공지연의 이유는 크게 두 가지로써 첫째, 울진원전의 폐기물포화를 해결하고자 의욕적인 공기를 설정하였으며 둘째, 굴진과정에서 예상치 못한 연약지반이 발견되었다는 것이다. 이 발표 직 후 방폐장 안전성 논란이 불거졌다.

2. 본론 : 준공지연 바로보기

감시기구에서는 안전성 논란이 준공지연발표 직 후에 불거졌음에 주목하고 준공지연의 구체적인 이유를 확인하는 것이 매우 중요함을 인지하였다. 이 과정에서 확인된 내용으로는 당초의 공기설정과 폐기물 포화시점과의 관계, 24개월 공기의 적절성, 공기 준수를 위한 TFT의 운영과 결과, 공사의 어려움을 지적한 내부문건의 작성과 유출배경, 준공지연 이유의 비객관성, 30개월 준공의 실현가능성에 대한 의문, 인수저장시설의 규모 그리고 안전성 논란의 개연성 등이며, 이들 각각에 대하여 자료를 통해 그 내용을 살펴보았다. 본 논문에서는 지면의 한계로 인하여 이 중 주요 사안에 대한 부분만을 지적하였다.

폐기물포화시점과 준공시점: Fig. 1은 울진원전의 폐기물 발생추이를 나타낸 것이다. 살펴보면 폐기물 포화시점이 2009년으로 확인되며, 이것은 사업자가 선정한 초기 방폐장 준공시점인 2009년과 일치하고 있음을 알 수 있다.

당초 24개월의 공기의 실현가능성: Fig. 2의 암반등급별 분포와 국내 터널공사의 암반등급별 평균 굴진속도를 적용하면 현재 방폐장의 진입동굴

의 공사에 필요한 시간을 계산할 수 있다. 그 결과 1950m의 건설동굴을 완성하는데 필요한 산술적 기간은 약 2.5년으로 예상할 수 있다. 이는 당초 공사기간(2년) 내에 방폐장 완공이 불가능했음을 확인할 수 있는 부분이다.

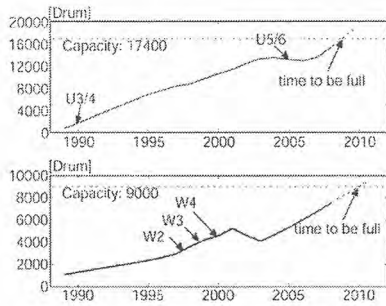


Fig. 1. 울진과 월성원전 폐기물발생량

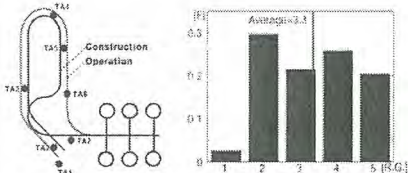


Fig. 2. 방폐장개략도와 시추공별 암반등급

준공지연 이유의 비객관성: 사업추진측에서 발표한 준공지연의 이유는 굴진과정에서 예상치 못한 연약지반이 발생하여 굴진속도가 저하 되었다는 것이다. 이를 확인하기 위하여 굴진초기의 굴진속도를 확인하고 그 결과를 Fig 3에 나타내었다. 약 공사초기 10개월 간의 굴진속도는 1.2-1.5m/d 로 확인되었다. 이 굴진속도는 4-5등급에서의 평균 굴진속도로서 사업자가 발표한 예상치 못한 연약지반발생으로 인한 준공지연은 설득력이 없으며 준공지연과 무관해 보인다.

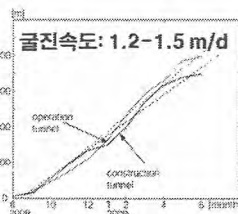


Fig. 3. 공사초기 굴진속도

안전성논란의 개연성: 지역주민들의 입장에서는 Fig. 4와 같이 당초 공기인 24개월 보다 더 긴 30

개월이 추가적으로 필요할 만큼 연약지반이 발생하였는데 과연 안전하게 건설될까? 라고 방폐장의 안전성에 의혹을 갖는 것은 충분히 있을 수 있는 일이다.

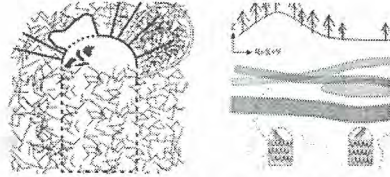


Fig. 4. 연약지반에 따른 주민들 우려사항

3. 토의 및 결론

방폐장 준공지연의 출발은 울진원전의 폐기물 포화를 해결하기 위해 애당초 불가능하게 설정된 당초의 공사기간으로 보인다. 또, 안전성 논란의 핵심은 방폐장 완공이 당초 설정된 공기 내에 실현하기 어렵다는 사실을 검토한 내부 자료의 유출과 현실적인 기간으로 공기를 조정하는 과정에서 설득력이 부족한 이유들로 불거진 신뢰회손의 문제이며 그 결과의 부산물로 보인다. 이 문제를 해결하기 위해서는 문제 발단의 1차적 책임이 사업 추진측에 있음을 인정하고 구체적 표현을 통한 신뢰회복이 필요해 보인다. 또 불거진 안전성 논란을 종식시키기 위해서는 방폐장 안전성평가 방법론(지하시설인 경우 모든 상황을 현재 확인 할 수 없으며 공사를 진행하면서 설계와 공학적 보강을 통해 안전성을 확보)을 주민들과 공유하고 현재 추가로 확인해야 하는 부분을 설명해야 한다. 또 공사를 진행하며 확인된 사안에 대하여 주민들에게 상세히 알려야 한다. 이 과정에서 지역의 주민들이 책임 있는 역할을 할 수 있는 기회를 제공하여 주민들 스스로 지역의 주인임을 확인할 수 있도록 노력해야 한다.

또 경주방폐장의 처분방식은 동굴형태로써 여전히 불확실성이 존재함을 상기할 때 향후 진행에 있어 매우 세심함이 필요함을 지적하지 않을 수 없다. 왜냐하면 공사 진행과정에서 예기치 못한 상황의 발생이나 추가적인 공기연장은 주민들에게 큰 충격으로 전달될 수 있기 때문이다.

4. 참고문헌

- [1] 한국방사성폐기물관리공단, 중·저준위방폐장 건설·운영 안전성분석보고서, 2007
- [2] 지식경제부, 원자력 발전백서, 1994년~2009년

콘크리트 해체폐기물 부피감용 실증실험

민병연, 김상민, 김제남, 최왕규, 이근우

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 대덕대로 1045

bymin@kaeri.re.kr

1. 서론

보통 콘크리트의 30%는 다공성의 시멘트이고 나머지 70%는 석영이나 석회암 같은 농후한 집합체로 오염핵종의 대부분은 콘크리트 표면에 주로 오염되어 있으나 해체 콘크리트 폐기물의 대부분은 오염 준위가 낮기 때문에 적절한 제염 처리를 거친다면 상당량의 콘크리트 폐기물을 자체처분(Self-disposal)할 수 있으며, 제한적으로 원자력 분야에 재이용(reuse)이 가능하다[1, 2]. 본 논문에서는 실증규모의 분쇄장치를 사용하여 연구로 2호기와 우라늄 변환 시설에서 발생된 오염된 콘크리트 해체폐기물을 사용하여 콘크리트 폐기물로부터 방사성 핵종을 분리하여 방사성폐기물 감용과 원자력 시설내에서 제한적으로 재활용 할 수 있는 골재를 회수하고자 가열분쇄 공정 실증실험을 수행하여 콘크리트 폐기물로부터 분리된 골재의 분포와 분리된 골재에 분포된 방사성 핵종 농도를 분석하여 자체처분 대상 골재의 비율을 산정하여 가열분쇄 공정 실증장치의 성능 평가하였다.

2. 본론

연구로 해체시 발생된 중량콘크리트 폐기물을 해체 현장으로부터 운송하여 약 50kg/batch 규모로 실증실험을 수행하였으며 경량콘크리트로는 우라늄 변환시설 해체 시 발생된 우라늄으로 오염된 콘크리트 2001 드럼에 실증현장으로 운송하여 약 80kg/batch 규모로 Fig. 1과 같이 실증실험을 수행하여 방사성 해체 콘크리트 폐기물 감용을 위한 최적 운전조건을 확립하고 실증장치의 성능을 평가하였다. 실증실험 후 생산된 골재의 분포 특성은 표 1과 같다. 실증실험 시 설정된 운전조건 450℃ 30분 가열, 20분 조밀 분쇄를 수행하였다. 연구로 방사중 중량 콘크리트 폐기물의 경우 골재 보다는 미분말에 서의 오염도 준위가 높게 나타났다. 약 80%의 굵은골재와 잔골재를 생산하였다.

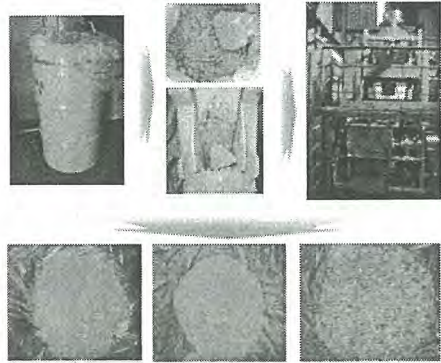


Fig. 1. Demonstration of dismantled concrete waste

원자로의 구조체인 중량콘크리트의 경우 Fe 및 Ni 동위원소가 구조체에 포함되어 원자로 운전과정에서 생성되는 중성자와 상호작용을 통하여 방사화되므로 순베타핵종인 Fe-55 및 Ni-63원소에 대해 핵종분석을 수행하였다. Fe-55 방사능이 굵은 골재에서 최대 5.81 Bq/g으로 나타났으며 Ni-60 방사능은 거의 없음을 알 수 있었다. 방사성폐기물의 자체처분에 관한 규정(교육과학기술부 고시 2001-30호)에서 제시하고 있는 허용기준 및 핵종별 농도에 따라 본 평가에서 고려하고 있는 Fe-55, Co-60, Ni-63, Cs-134, Cs-137, Eu-152 및 Eu-154 의 경우 기타 방사성핵종으로 분류되며 규정에서 제시한 피폭선량평가 수행시 처분제한치인 개인에 대한 연간 10 μ Sv/yr와 집단선량 1 man · Sv/yr을 충분히 만족할 것으로 보인다.

Table 1. Specific activity of Ni-63, Fe-55

시 료	Fe-55 (Bq/g)	Ni-63 (Bq/g)
가열분쇄 전 콘크리트	1.71 ± 0.095	<0.14
가열분쇄 후 굵은골재	5.81 ± 0.202	<0.14
가열분쇄 후 잔골재	2.53 ± 0.096	<0.11

우라늄 변환시설 콘크리트 폐기물의 80% 분리 감

용이 가능함을 확인하여 Fig. 2, 3에 수록하였다. 연구로 및 우라늄 변환시설 해체 발생 콘크리트 폐기물 처리사업 적용을 위한 시스템 설계 모형을 생산하여 Fig. 4에 나타내었다.

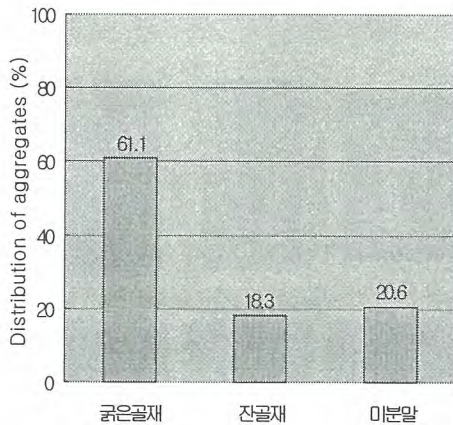


Fig. 2. Distribution of aggregates generated form UCP.

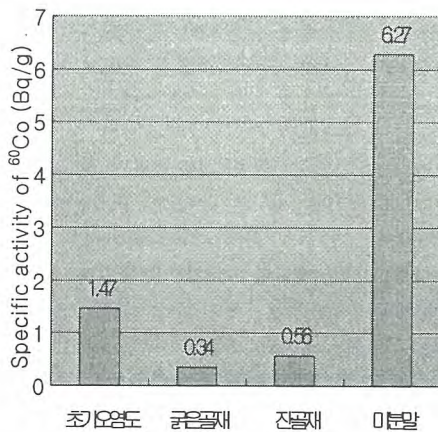


Fig. 3. Specific activity of aggregate generated from UCP

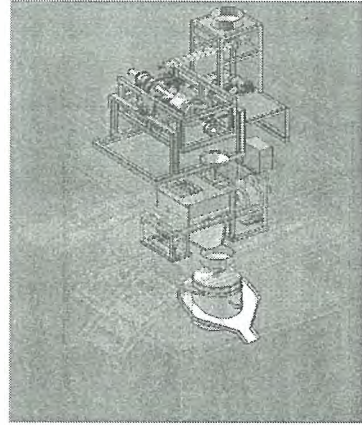


Fig. 4. Schematic of pilot plant

3. 결론

원자력 연구시설 해체 시 발생한 경량 콘크리트 폐기물에 대한 실증실험 통해 연구로 및 우라늄 변환시설 콘크리트 해체폐기물의 감용 및 자체처분 사업시 상당한 양의 콘크리트 해체 폐기물의 부피 감용이 이루어질 것으로 사료된다.

4. 감사의 글

본 논문은 2009년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국과학재단 원자력 연구개발 사업의 지원으로 수행되었다.

5. 참고문헌

- [1] White, T. L., Foster, D. Jr., Wilson, C. T. and Schaich, C. R. : Phase II microwave concrete decontamination results, ORNL Rep. No. De-AC05-84OR21400, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tenn. (1995)
- [2] Cox, E. J. and Garde, R. : Decontamination of concrete surfaces at the Los Alamos Scientific Laboratory, PNL-SA-8855 (1990)

방사성 폐액의 처리를 위한 무기-무기 이온교환 복합체 제조

이정준, 양병일, 문제권, 이근우

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

jilee@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성 폐액의 처리 방법으로는 침전, 용매 추출, 흡착 및 이온교환, 막분리, 증발농축 등이 있다[1]. 침전 등의 방법으로 제거가 어려운 Cs의 경우, 이온교환과 같은 방법의 적용에 대한 연구가 이루어져왔다. 이온교환방법을 사용할 경우에는 사용 후 폐이온교환수지의 재생이나 처리가 복잡하다는 단점이 있다. 이온교환수지에는 유기성, 무기성의 여러 종류가 있지만, 폐이온교환수지의 재생이나 처리, 처분 안정성 등을 고려하여 무기성 이온교환수지의 사용이 권장되고 있다.

여기에서는, 무기성 이온교환제의 한 종류인 ferrocyanide계 이온교환수지를 사용하여[2], 분말상태의 이온교환제(KCoFC)를 졸-겔 합성을 통해 실리카 기반으로 입자화시켜 Cs 등을 제거하기 위한 무기-무기 이온교환 복합체 제조를 위한 최적 조건을 규명하였다.

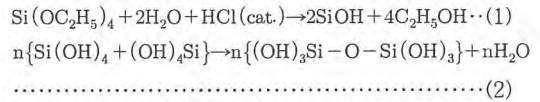
2. 본론

2.1 KCoFC 제조

먼저 분말 형태의 무기성 이온교환제를 제조하는 방법으로서, 0.5M $\text{Co}(\text{NO}_3)_2$ 1,200mL와 0.3M $\text{K}_4\text{Fe}(\text{CN})_6$ 500mL를 혼합하여 24시간 교반하고, No. 1 정량 여지에 여과하면서 초순수로 Co농도가 1mg/L가 될 때까지 세척하여 dry oven에서 건조시킨 다음, 막자사발로 분쇄하여 desiccator에 보관하였다[1].

2.2 졸-겔 반응

일반적인 졸-겔 반응을 아래 식 (1) 및 (2)에 나타내었다[3]. TEOS(Tetra ethoxysilane or Tetraethyl orthosilicate; $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$)와 물이 산 또는 염기를 촉매로 하여 SiOH를 생성하는 Hydrolysis 반응과, SiOH의 Condensation 반응이 순차적으로 일어남으로써 실리카 기반의 입자를 형성하게 된다.



위 반응에서 분말상태의 KCoFC를 첨가하여 최종적으로 생성되는 실리카에 의해 KCoFC가 고정되어 전체적으로 입자가 큰 이온교환 복합체가 생성되게 된다(Fig. 1). 여기에는 TEOS에 대한 H_2O 및 HCl의 첨가비율, 에탄올 휘발 조절 여부, 교반속도, 건조 온도 등이 생성되는 복합체의 균질성, 강도, 겔화 시간 등에 영향을 미치게 된다.

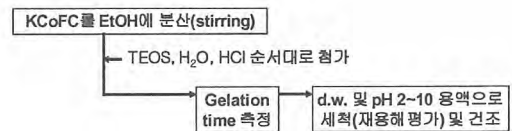


Fig. 1. Schematic flow of the preparation of inorganic-inorganic ion exchanger composite

2.3 무기-무기 이온교환 복합체 제조

과거에 수행된 연구에서, KCoFC의 함량 80%의 이온교환 복합체를 제조하였고, TEOS와 H_2O 및 HCl의 몰비는 1 : 4 : 0.4에서 최적으로 조사되었다[4]. 본 연구에서는, TEOS : H_2O 의 몰비를 1 : 4로 고정하고, HCl의 몰비를 낮춰 생성된 무기-무기 이온교환 복합체의 성능을 증가시키는 방법을 검토하였다. TEOS : HCl의 몰비를 1 : 0.01, 0.02, 0.05, 0.1, 0.2, 0.4로 하여 복합체를 제조한 다음, 재용해 여부를 판단하여 제조가능한 최소 HCl의 몰비를 선정하였다.

먼저, 1.0g의 KCoFC를 20mL vial에 취하고, 에탄올 0.5mL를 첨가하여 교반시켜 액상에 잘 분산되게 하였다. 이어서, 순차적으로 TEOS, H_2O , HCl을 첨가하여 반응을 진행시켰다. 겔화가 진행되면 dry oven(70℃)에서 건조시켰고, 건조 후에 초순수로 여러 번 세척하여 다시 건조시켰다. 반응 조건을 표1에 나타내었다.

또한, 생성된 입자를 초순수 및 산, 알칼리 용액에 침지시켜 KCoFC 분말이 용액으로 재용해되는지 조사하는 실험(dissolution test)을 통해 졸-겔 반응으로 생성된 입자의 안정성을 평가하였다.

이온교환 복합체의 제조시 Hydrolysis 반응에서 생성되는 에탄올의 휘발 속도가 복합체의 성능에 미치는 영향을 파악하기 위해, 상기의 복합체 제조시 capping 및 no-capping의 조건으로 실행하였다. 또한, 마그네틱 바의 교반속도, 건조 온도 등의 영향을 평가하기 위해 교반속도-고, 중, 저 및 건조온도-상온, 70℃, 100℃의 조건으로 복합체를 제조하였다.

2.4 무기-무기 이온교환 복합체 성능 평가

제조된 이온교환 복합체를 대상으로 그 성능을 비교하기 위하여, Cs 모사 폐액을 이용하여 제거 실험을 실시하였다. 복합체 0.1g을 Cs 모의 폐액 100mL(Cs 농도 : 100mg/L)에 넣고, 24시간 shaking하면서 시간에 따라 5mL씩 샘플링하여 Cs 농도를 AA(AAnalyst400, Perkin-Elmer Co.)로 측정하였다. Table 1에 실험 조건을 나타내었다.

Table 1. Experimental conditions of sol-gel reactions on the various TEOS vs. HCl ratio

Cs conc. (mg/l)	100		
V(ml)	100		
Kinds of exchanger	TEOS	1	
	H ₂ O	4	
	HCl	0.02, 0.05, 0.1, 0.2, 0.4	
Mass of exchanger (g)	0.1		
L/S ratio (mL/g)	1000		
Shaking speed (rpm)	120		
Sampling time (hr)	0.5, 1, 2, 4, 10, 24		

3. 결론

먼저, TEOS : HCl의 몰비가 1 : 0.01이 되도록 제조한 복합체의 경우, 분말의 KCoFC가 재용해되어 복합체로서 적합하지 않는 것으로 나타났고, 1: 0.02 이상의 몰비로 제조한 복합체의 경우 KCoFC의 재용해가 없는 것으로 조사되어, 복합체 제조시 첨가 가능한 HCl의 최소 몰비는 1(TEOS) : 0.02로 확인되었다(Fig. 2).

Cs 모의 폐액을 이용한 복합체의 성능 평가 실험결과, TEOS : HCl의 몰비가 1 : 0.02인 복합체에서 Cs 제거가 우수한 것으로 나타났다. 이는

HCl의 첨가량이 낮아 실리카 입자의 밀도를 적게 하여 KCoFC 분말이 실리카 입자에 고정된 상태에서, 상대적으로 높은 Cs 제거성능을 갖기 때문인 것으로 여겨진다.

또한, 복합체 제조시 capping 및 no-capping의 영향은 거의 없는 것으로 확인되어, gelation time을 단축시키기 위해 no-capping의 상태로 제조하는 것이 좋을 것으로 판단되었다.

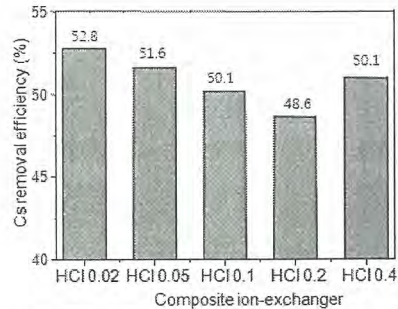


Fig. 2. Cs removal efficiency in SiO₂-KCoFC (80 % KCoFC) ion exchanger prepared with different TEOS : HCl addition ratio

4. 참고문헌

- [1] KAERI/RR-2415/2003, Research on Radiochemistry & Nuclear Chemistry, KAERI (2003)
- [2] J. Moon et al., Multi-component ion exchange kinetics with PAN-KCoFC composite ion exchanger, Korean J. of Chemical Engineering, 22(1), pp. 127-132 (2005)
- [3] D. Nardargi et al., Rapid reduction in gelation time and impregnation of hydrophobic property in the tetraethoxysilane (TEOS) based silica aerogels using NH₄F catalyzed single step sol-gel process, J. Alloys and Compounds 480, pp. 689-695 (2009)
- [4] J. Lee et al., Preparation of SiO₂-KCoFC composite ion-exchanger for removal of Cs in the soil decontamination waste solution, Transactions of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting Gyeongju, Korea, October 29-30 (2009)

모의 방사성 핵종에 대한 광용발 제염공정 특성

원휘준, 바이갈마, 정종현, 문제권, 이근우, 정운수
한국원자력연구원, 대전광역시유성구 대덕대로 1045
nhiwon@kaeri.re.kr

1. 서론

작업자의 접근이 어려울 정도의 고 준위 방사능으로 오염된 구역에 대해, 제염공정을 원격 적용함에 의해 이 지역의 방사선 준위를 낮출 수 있다[1]. 광용발 제염 공정은 레이저를 사용하여 오염원과 오염부위 물질을 원격으로 제거하는 공정이다. 본 연구의 목적은 광용발 제염공정 개념과 제염 인자를 파악하는 데에 있다.

2. 본론

2.1 실험

레이저 발생장치로 프랑스 Quantel 사에서 제작된 Brilliant b를 사용하였다. 본 장치의 반복율은 10 Hz, 펄스에너지는 각각 1064 nm에서 850, 532 nm에서 420 및 355 nm에서 190 mJ/pulse 이다. Beam 직경은 8 mm, 펄스폭은 5.0 ns 이다.

보조 기체로는 질소, 방사성 핵종의 모사를 위해 CsCl, Co(NH₃)₂Cl₂, Eu₂O₃ 및 CeO₂를 사용하였다. 제염 시편으로는 Type 304 stainless steel을 사용하였다.

2.2 제염장치 개요

광 용발 제염장치는 크게 레이저 발생장치, 파장변경장치(harmonic generation), 레이저 전송장치, 및 레이저 토치로 구성된다. 광용발 토치는 보조기체를 통과시키기 위한 호스, 발생된 제염 생성물을 포집시키기 위한 여과 장치와 연결되어 있다. 레이저 토치의 위치를 원격으로 조정하기 위해 XY 방향 이송장치와 제염 대상과의 거리를 조절하기 위해 노즐에 의한 Z 축 방향 이송장치로 구성된다. 본 광용발 제염공정에 대한 개요도를 그림 1에 도시하였다.

2.3 실험 결과

2.3.1 제염 장치

레이저 발생장치는 레이저 발생기와 광원 발생

기로 구성되며 harmonic generator 에 의해 1064, 532 및 355 nm 로 파장이 변경되었으며 각 파장에서 펄스에너지를 energy-meter에 의해 측정 한 결과 설계치를 만족함을 확인하였다. 10 Hz의 반복율은 active pulse 와 passive pulse 비율을 조절함에 의해 1~10 Hz 사이로 조절이 가능하였다. 한편, 집속된 beam의 직경은 1~8 mm 범위에서 조절이 가능하였다. 광용발 제염 생성물 포집장치는 200 nm 이하의 미세 입자를 99.99% 이상 제거하였으며, 실험 중 질소기체의 유속을 잘 조절하였다. 대 면적 적용 용 XY 및 Z 축 stage는 현재 제작 중에 있다. 시편 표면에 대한 레이저의 동적 광용발 특성을 컴퓨터에 의해 조작되는 소형 XY stage에 대해 평가하였으며 시편에 대해 균일한 식각특성을 보여줄 수 있었다.

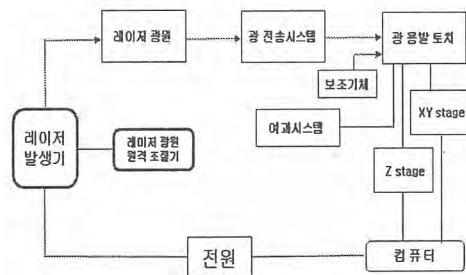


Fig. 1. Schematic diagram of light ablation decontamination process

2.3.2 모사 제염 실험

532 nm 파장에서 이온성 오염원(Co, Cs)과 입자성 오염원(Eu, Ce)에 대해 shot number를 변화시켜가며 제염성능 실험을 수행하였으며 그 결과를 그림 2에 도시하였다. 제염효과는 Co = Cs > Eu > Ce 의 순서로 나타났으며, 이온성 오염이 입자성 오염보다 쉽게 제거됨을 확인할 수 있었다. 또한 Cs⁺과 Co²⁺ 이온은 42 shot의 조사에 의해 완전 제거된 반면, Eu³⁺과 Ce⁴⁺ 이온은 시간경

과에 따라 서서히 제거되었다.

532 nm 파장에서 각 오염원 별 조사 면에 대해 15° 경사진 상태에서의 제염특성 실험을 수행하였으며 이를 그림 3에 나타내었다.

조사 각도를 15° 변경함에 따라 lump(분홍색 부분)가 조사 반대편에 발생함을 보여준다. 또한 Cs^+ 과 Co^{2+} 이온은 조사 각도 변경전과 마찬가지로 완전히 제거되었으며, Eu와 Ce는 조사 각도 변경에 따라 제거 효율이 증대되었다.

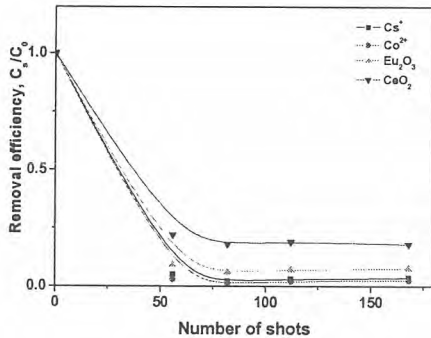


Fig. 2. Removal efficiency versus number of laser shots for 4 kinds of simulated radioactive specimens (14 shots/sec and 11.54 J/cm^2).

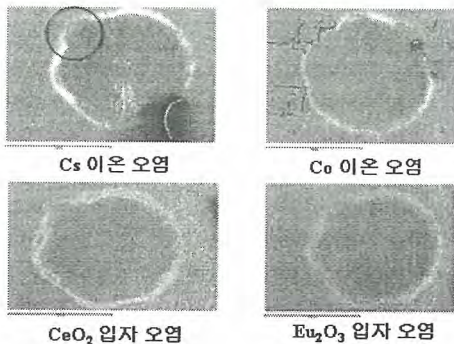


Fig. 3. SEM micrographs after 84 shots of laser irradiation, 15° inclination from the perpendicular direction (14 shots/sec).

3. 결론

광융발 제염공정의 원격적용을 위한 연구가 수행되고 있다. 본 제염공정은 방사성 오염물 자체가 근원적으로 제거될 뿐만 아니라 발생되는 이차폐기물의 양도 무시할 만하므로 최근에야 적용

을 위한 연구가 활발히 수행되고 있다. 본 연구를 통해 제염 공정에 영향을 미치는 인자들 중 조사 각도도 중요함을 파악하였으며 광융발 제염공정의 개요를 나타내었다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발 중장기 연구사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] 원휘준 등, "사용후핵연료 건식재활용시설의 개보수를 위한 제염방안 도출", KAERI/RR-3067/2009(2010).

중·소형 원자로 발생 방사성폐기물 관리 방향 분석

이수홍, 이재민, 한병섭, 송민철*

(주)에네시스, 대전시 유성구 구암동 328

*한국원자력안전기술원, 대전시 유성구 과학로 34

realsh@enesys.co.kr

1. 서론

전 세계적으로 특정 목적을 위한 중소형 원자로의 개발이 진행되고 있다. 연구 목적 및 상용화를 위하여 국내와 국외에서 개발 중인 중소형 원자로는 계통의 단순화 등을 통하여 안전성을 증대하고 방사성 폐기물의 발생을 최소화 할 수 있도록 하고 있다. 중소형 원자로의 운영을 통하여 발생하는 방사성 폐기물의 관리 및 처리는 새로운 위해 요소의 저감을 위하여 체계적으로 수립되어야 하기 때문에 중소형 원자로를 개발하는 국가 및 컨소시엄 기관들은 개발 중소형 원자로의 방사성폐기물 발생 및 처리 계통에 대한 개발 기술 및 방사성폐기물의 발생 저감화 방향을 제시하고 있다. 본 연구에서는 개발 중소형 원자로의 방사성폐기물 저감화 방향을 분석하고 IAEA에서 제시한 신개발 원자로의 방사성폐기물 관리 방향 등의 분석을 수행하였다.

2. 본론

2.1 중소형 원자로의 개발 동향

현재 전세계적으로 중소형 원자로는 원자력 발전 용량의 16.5%를 차지하고 있으며 운영 중인 것은 146기, 신설하고 있는 것은 12기이다. 신개발 중소형 원자로는 경제성의 증대, 안전성 및 신뢰성의 확보, 핵연료 주기의 개선, 그리고 방사성 폐기물 발생의 저감화를 목표로 약 26종이 개발 중에 있다. 이 중 13기는 수냉각 중소형 원자로이며 6기는 고온 가스 및 가스 냉각 중소형 원자로이다. 6기는 소듐 또는 납-비스무스 냉각 고속로이며 1기는 HTGR 형태의 초고온 개념의 액체 염화 원자로이다. 국내에서 개발하고 있는 SMART의 원자로형인 가압경수로형을 채택하고 있는 개발 중소형 원자로로는 IRIS(미국 포함 국제 컨소시엄), CAREM-25[300](아르헨티나), MARS(이탈리아), SCOR(프랑스), VBER-300(러시아) 등이 있다.

2.2 개발 중소형 원자로의 방사성폐기물 저감화 기술 적용 방향

원자로형별로 적용되는 방사성폐기물의 저감화 기술은 다음과 같다.

2.2.1 수냉각 중소형 원자로

- 보론 미사용
- 1차 계통의 간소화 및 관련 기기의 감소
: 집약형 설계, 최소화, 계통 연결의 간소화
- 낮은 운전 온도
- 운전 주기 증가
- 원자로 해체 공정의 간소화
- 폐기물 처분 및 처리 기술의 개발

2.2.2 가스 냉각 중소형 원자로

- 사용후핵연료의 고온 소결을 통한 고준위 방사성폐기물의 저감화
- 금속 구조재의 방사화 방지 기술 적용

2.2.3 액체 금속 냉각 중소형 원자로

- 핵연료 재처리의 신개념 건조 기술이 적용된 폐쇄적 핵연료 주기를 통하여 방사성폐기물 발생의 감소화
- 장수명 고준위 방사성폐기물 감소 기술 적용

2.3 개발 중소형 원자로의 방사성폐기물 저감화 관리 계획

국외에서 현재 개발 중인 주요 중소형 원자로의 방사성폐기물 발생 저감화를 위하여 적용하는 기술로는 IRIS는 핵연료의 재장전을 near-term 조건에서 4년, mid-term 조건에서는 8년으로 설정하여 사용후핵연료의 발생량을 감소화시킨다. MARS의 경우 1차측의 방사성 오염이 최소화 될 수 있도록 설계하였으며, 특히 1차측이 낮은 온도에서 운전됨으로써 1차측 구조재의 피로도를 저감시켜 이에 따른 부수적인 방사성폐기물의 발생을 저감시키도록 하고 있다. 또한 모든 구조물의 크기를 기존 대형 원전에 비하여 극히 작게 설계하여 부속물의 탈부착을 용이하게 하여 해체의 공정을 단순화 시켰다. SCOR의 경우 보론을 사

용하지 않아 1차측의 오염을 감소시키며 이에 따라 방사성폐기물의 발생량이 적어지고 삼중수소의 발생을 최소화 하도록 하였다. IMR의 경우도 1차측의 계통 설계를 단순화하고 보론을 사용하지 않아 방사성폐기물 발생량을 최소화 하였다. VBER-300은 본래 선박용 원자로 규격으로 설계됨에 따라 1차측의 누출이 최소화 할 수 있도록 하였으며 closed-loop 시스템으로 1차 냉각수의 오염을 최소화 하고 자체적인 개발 관리 체계를 통하여 폐기물의 발생을 최소화 하였다. 또한 폐기물 재처리 기술을 적용하여 액체고형화 폐기물은 최대 40m³, 고체폐기물은 20m³을 초과하지 않도록 하고 있다.

2.4 방사성폐기물의 관리 방향

IAEA에서는 TECDOC-1434를 통하여 개발되는 신형 원자로 및 핵연료 주기에 대한 기술 개발 현황을 제시와 해당 로형 등에 대한 평가 방법과 경제성 및 안전성, 환경 영향 조건을 제시하였다. 특히 방사성폐기물에 대한 일반적 관리 방향과 이를 통한 신개발 원자로의 방사성폐기물 관리 방향 기준을 제시하였다.

방사성폐기물에 대해서는 다음과 같이 9개의 기본적인 관리 원칙을 제시하였다.

- 가능한 최소한 발생할 수 있도록 한다
- 인간을 보호할 수 있는 허용된 기준으로 관리
- 환경을 보호하기 위한 허용 수준으로 관리
- 신뢰성 확보를 위하여 기준 준수
- 현재에 허용되는 수준을 유지
- 관련 시설의 운영주기동안 타당한 수준 유지
- 다음 세대에 영향을 주지 않도록 함
- 생성/관리의 상호의존성에 대한 신뢰성 확보
- 규제 범위 내에서 관리

이러한 방사성폐기물에 대한 기본 원칙에 대하여 신형로의 경우 규제 범위 준수에 대한 기본적인 사항을 제외하고 4개의 범주로 통합하여 관리 방향을 제시하고 있다. 해당 기준은 개발 원자로의 기술 특성에 따라 다시 세분화하여 기준이 제시되어야 하나 일반적인 기준은 4개의 항목으로 최소화, 인간과 환경의 보호, 다음 세대로의 영향 규제, 방사성폐기물 관리의 최적화로 설정된다. 기본 원칙 1인 발생의 최소화의 경우 ALARP(as low as reasonably practical, social and economic factors taken in to account)을 기준으로 하고 있으며, 기본 원칙 2인 인간 및 환경의 보호의 경우

피폭 및 방출 예측 평가를 통한 피폭 대상군에 대한 법적 제한치를 제시하도록 하고 있다. 기본 원칙 3은 현재 발생 방사성폐기물로 인하여 다음 세대에 부담을 주지 않도록 하고 있으며 이를 위하여 발생 폐기물에 대한 기술 유효성을 검토하여 적용 가능한 기술이 도입되도록 하고 있다. 기본 원칙 4인 방사성폐기물 관리의 최적화는 관리 기술 공정의 수립 및 분류 기준의 설정을 요구하였다.

3. 결론

본 연구에서는 전세계적으로 개발 중인 신형 중 소형 원자로의 개발 동향 및 폐기물 관리 기술 현황을 제시하였다. 또한 IAEA에서 제시하는 기본적인 방사성폐기물 관리 방향을 분석하고 이를 통한 신형 원자로의 설계 및 적용 특성에 따른 타당한 관리 방향의 수립 방법을 제시하였다. 현재 제시되고 있는 관리 방향을 구체화 하기 위해서는 개발 중 소형 원자로의 계통 설계 특성 등의 분석이 추가적으로 수행되어야 하며 이를 통하여 해당 개발 원자로형에 적합한 방사성폐기물의 관리 방향의 설정이 구축될 수 있을 것이다.

4. 참고문헌

- [1] IAEA Nuclear Energy Series No. NP-T-2.2, Design features to achieve defence in depth in small and medium sized reactors, 2009
- [2] IAEA-TECDOC-1536, Status of small reactor designs without on-site refuelling, IAEA, 2007
- [3] IAEA-TECDOC-1451, Innovative small and medium sized reactors : design features, safety approaches and R&D trends, IAEA, 2005
- [4] IAEA-TECDOC-1485, Status of innovative small and medium sized reactor designs 2005, IAEA, 2006
- [5] IAEA-TECDOC-1434, Methodology for the assessment of innovative nuclear reactors and fuel cycles, IAEA, 2004

산과 중성염의 혼합 제염 용액에서의 퇴역 증기 발생기 금속 폐기물 제염 특성 평가

권미경, 최왕규, 이근우

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

mkkwon@kaeri.re.kr

1. 서 론

원자력 산업 규모가 점진적으로 커짐에 따라 원자력 시설의 유지 보수 및 노후화된 기기의 교체 물량이 증가되고 있다. 특히 수명이 다한 증기발생기와 같은 대형 금속 폐기물의 발생은 방사성 폐기물 관리에 커다란 부담을 주고 있는 실정이며 이들 대형 금속 폐기물 처리가 시급한 실정이다. 현재 국내에서는 고리 원자력 발전소에서 2기의 증기 발생기가 1998년에 교체되었으며, 2011년에도 올린 원자력 발전소에서 6기의 증기 발생기가 교체될 예정으로 있다. 실제 국내뿐만 아니라 해외에서도 다양한 제염 기술을 이용하여 대형 금속성 폐기물 처리를 한 사례가 있다. 벨기에의 SCK·CEN에서는 제염제로 황산세륨($CeSO_4$)을 사용한 MEDOC(Metal Decontamination by Oxidation with Cerium) 공정을 비롯한 다양한 화학 제염을 도입하여 BR3 증기발생기를 규제 해제 폐기물로 전환하여 처리하였으며, 스웨덴에서도 건식 연마제염 공정을 이용하여 Ringhals 퇴역 증기발생기를 처리하였다. 미국의 EPRI에서는 Maine Yankee 발전소를 비롯한 많은 원자력 이용 시설을 불화붕산(HBF_4)를 제염제로 하여 운영 중인 증기 발생기를 제염하여 운영 효율을 높였으며, Westinghouse 사에서도 LOMI 및 ELOMIX 기술 등을 이용하여 Gulf State Utilities 사의 River Band BWR 발전소 등을 처리하였다. 또한 CITROX와 NITROX는 옥살산을 이용하여 PWR과 BWR의 다수 원전을 제염하였으며, 산화 공정으로 AP(Alkaline Permanganate), NP(Nitric Permanganate), HP(Permanganic Acid) 등의 여러 가지 제염 기술이 상용화되어 현재 운영되고 있는 원자력 시설 및 교체·퇴역 시설의 제염에 이용되고 있다. 위의 사례의 공통점으로, 제염 공정에는 대개 산(acid) 용액이 해리되면서 $[H^+]$ 이온이 pH를 낮추어 금속 이온의 용해도를 높이고 제염 효율을 증가시키기 때문이다. 그러나 산 용액의 농도가 너무 높거나, 모재의 표면 산화막 및 구조 특성을 고려하지 않고 산 용액을 선택한다면, 제염 후 발생하는 2차

폐기물이 다량으로 발생되어 폐기물 처리에 많은 비용이 들게 된다. 기존의 HF/HNO_3 제염 기술은 제염 효율은 좋지만, 부식성이 강해 균일한 제염 성능을 기대하기 어렵고 적절한 수준의 용해 성능을 초과해 2차 폐기물이 다량으로 발생하는 문제점이 있다.

본 연구에서는 이러한 문제점을 보완하기 위해 산(acid) 용액(불산(HF) 및 질산(HNO_3))에 중성염을 혼합하여 제조한 제염 용액 내에서 스테인리스 스틸(Stainless steel) 304 및 인코넬(Inconel) 600의 모재 및 산화 시편에 대한 접촉 시간, 제염제의 농도, 반응 온도 등의 다양한 인자들을 변화시켜 반응 속도를 평가하였으며 이를 바탕으로, 방사성 동위원소(Radioisotope, RI)를 이용하여 산과 중성염의 혼합 용액 내에서 제염 계수를 산출하여 제염 효율을 평가하였다.

2. 실험 방법 및 결과

금속 시편과 혼합 제염 용액간의 농도, 온도 및 접촉 시간 변화에 따른 제염 효율을 도출 및 평가하기 위해 스테인리스 스틸 304(STS 304), 인코넬 600(Inconel 600)을 이용하여 실험을 진행하였다. 본 실험에서 제염 용액을 구성한 산 성분은 불산(HF , assay : 48~51%) 및 질산(HNO_3 , assay : 61%)이며, 중성염은 불화나트륨(NaF , assay : 99.9%) 및 질산나트륨($NaNO_3$, assay : 99.9%)을 사용하였다. 불소 이온(F^-)을 포함한 HF 와 NaF 는 0.25~0.5M의 범위로 제조하고, 질산 이온(NO_3^-)을 포함한 HNO_3 와 $NaNO_3$ 는 0.25~1.0M로 제조하여 사용하였다. 온도 변화를 용이하게 하고 혼합 제염 용액과 금속의 모재 및 산화 시편의 균일한 반응을 촉진하기 위해 항온 교반조를 사용하였다. 제조한 용액은 각각 100 mL씩 분취하여 250 mL 플라스크 병에 넣었으며, 두 용액이 섞여서 반응하는지 확인한 후, 용액의 변화가 없는 것을 확인하고 각각의 병에 무게를 측정된 모재 및 산화 시편을 투입하였다. 제염 용액과 금속 시편이 들어있는 플라스크 병을 항온 교반조에 넣고 90°C, 60 rpm으로

설정하여 4시간 동안 30분 또는 1시간 마다 시편과 제염 용액을 분리하여 반응 후 변화된 시편의 무게를 측정하였다. 이전 실험 내용 (HF 0.5M/NaNO₃ 1.0M, NaF 0.5M/HNO₃ 1.0M 제염 용액과 금속 시편의 제염 효율 비교)을 바탕으로 혼합 제염 용액의 농도를 변화시켜 진행한 실험 결과를 다음 Fig. 1에 나타내었다. Fig. 1은 HF 0.5M/NaNO₃ 0.5M 및 NaF 0.5M/HNO₃ 0.5M으로 구성된 혼합 제염 용액으로 제염 후 모재 금속 시편의 질량 감소를 시편의 단면적으로 나누어 나타낸 그림이다.

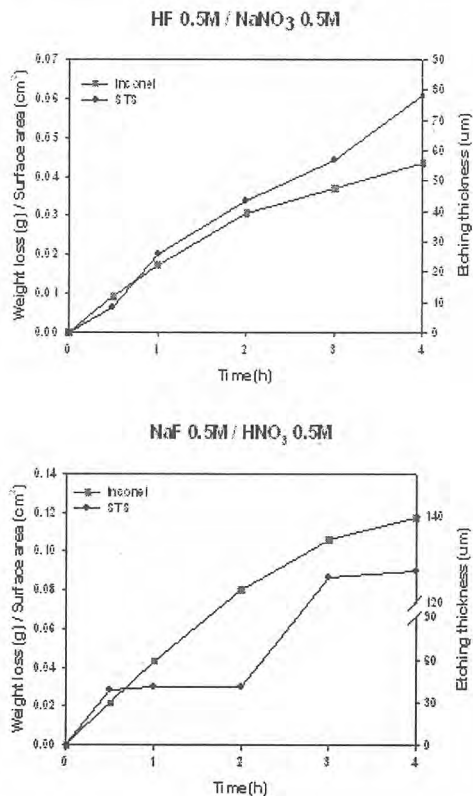


Fig. 1. 90°C에서의 HF/NaNO₃ 및 NaF/HNO₃과 반응 후 모재 금속 시편의 단면적 당 질량 감소량

두 그림을 통해 동일한 조건일 때 HF/NaNO₃ 혼합 제염 용액보다 NaF/HNO₃ 혼합 제염 용액의 금속 모재 시편의 용해율이 더 큰 것으로 나타났다. 이는 HF와 HNO₃의 산도의 차이로 인한 영향

으로 보이며, 각각의 제염 용액에서의 금속 시편 간의 제염 효율을 비교해 보면, HF/NaNO₃ 혼합 제염 용액을 사용하였을 때는 Inconel 600과 STS 304의 용해율은 큰 차이가 없이 비슷하였으나, NaF/HNO₃ 혼합 제염 용액을 사용한 결과, Inconel 600의 용해율이 STS 304보다 훨씬 높게 나타났다. 그 이유는 Inconel 600 재질이 STS 304 재질보다 산에 더 취약하기 때문인 것으로 사료된다. 혼합 제염 용액의 농도를 1/2로 감소시켜 금속 모재 시편의 용해율을 살펴본 결과, Fig. 1과 비슷한 경향을 나타내었으며 용해율 또한 Fig. 1의 결과의 약 1/2~2/3 정도로 나타났다. 이를 바탕으로 혼합 제염 용액과 반응 전/후의 시편의 표면 변화를 알아보기 위해 표면 분석 및 SEM, EDS 및 XRD/XRF 분석을 실시하였다.

3. 결 론

본 연구에서는 산과 중성염의 혼합물로 구성된 제염 용액 내에서 Inconel 600과 STS 304 모재 및 산화 시편에 대한 제염 용액의 농도, 반응 시간 및 온도에 따른 용해율을 평가하였다. 실험 결과 HF/NaNO₃에 비해 NaF/HNO₃ 혼합 용액의 금속 시편의 용해율이 더 높았으며, 각각의 혼합 제염 용액의 용해 특성은 HF/NaNO₃는 금속 재질에 상관없이 두 금속 시편 모두 용해율이 비슷한 반면, NaF/HNO₃는 STS 304에 비해 Inconel 600이 용해율이 훨씬 높게 나타났다. 이는 Inconel 재질이 산 용액에 취약하여 나타난 결과라 사료된다.

4. 감사의 글

본 연구는 지식경제부의 공업기반 기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] B.S. COVINO, Jr., J.V. SCALERA, T.J. DRISCOLL, and J.P. CARTER, Dissolution behavior of 304 stainless steel in HNO₃/HF Mixture, Metallurgical Transaction A, Vol.17A, 137-149, 1986.

고주파 유도로(Induction Furnace)를 이용한 용융금속의 분배특성 평가

홍상범, 박진호, 황두성, 이기원, 정운수
 한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
 sbhong@kaeri.re.kr

1. 서론

세계적으로 수많은 원자력시설의 운영 및 해체 과정에서 상당한 양의 금속폐기물이 발생된다. OECD/NEA 자료에 의하면 향후 50동안 발생하는 금속폐기물의 양은 약 3,000만 톤 정도가 될 것으로 추산된다. 이러한 폐기물의 대부분은 방사성물질에 의해 미미하게 오염되어 있어 재활용하는 경우 상당한 경제적 이득을 얻을 수 있다^[1].

원자력연구원에서는 연구로 1&2호기 및 우라늄 변환시설의 해체를 성공적으로 수행하고 있다. 연구로 해체과정에서 해체된 철재폐기물은 252.5 톤이 발생하였고, 발생량의 85%정도가 자체처분 대상폐기물로 분류된다. 우라늄변환시설 해체 철재폐기물은 178.3 톤이 발생하였고, 발생량의 70% 정도가 자체처분대상폐기물로 분류되었다. 이러한 금속폐기물은 특별한 처리방안 없이 절단하여 저장용기에 포장하여 저장하고 있는 실정이다. 그러나 해체과정에서 발생된 금속폐기물은 모두 폐기물로 처분할 대상이 아니므로 이를 재사용 및 재활용을 통해 경제적인 이득을 얻을 수 있다. 해외 선진국 및 국내에서도 원자력시설 해체과정에서 발생된 금속폐기물의 재활용을 위한 용융연구가 수행되었고, 스웨덴 Studsvik, 프랑스 SODECI, 일본 JAEA 및 독일 Siempelkamp 등에서 상당한 규모의 용융시설을 구축하여 운영하고 있다. 이러한 시설에서는 유도로(Induction Furnace)의 장점인 용탕의 교반효과를 이용하여 용융금속 내 성분이 균질하게 혼합되는 효과를 얻고, 운전 및 제어가 용이하고 및 가열시간이 적어 생산성 향상할 수 있는 장점이 있다^[2].

연구로 및 우라늄변환시설 해체금속폐기물 처리를 위해 고주파 유도로(Induction Furnace)를 이용하여 용융처리를 위한 기초연구를 수행하였다. 금속 용융과정에서 불순물의 형태로 다양한 원소를 첨가하여 분배특성을 조사하였고, 방사성 물질을 첨가하여 핵종이 용융금속내에 균질하게 분포하는지 확인하였고, 핵종이 Ingot, Slag 등으

로 이동되는 분배특성을 확인하였다. 이러한 결과는 향후 고주파 유도로를 이용한 금속용융 과정 및 용융 후 재활용을 위한 안정성평가 등에 유용한 자료로 활용할 수 있다. 해외 선진국의 경우 금속용융에 의한 분배인자에 대한 연구가 활발하게 이루어 졌고 이를 이용하여 자체처분을 위한 선량평가 및 농도 도출을 위한 연구가 수행되고 있다^[3-4].

2. 본론

2.1 실험 장치

금속폐기물의 용융을 위해 사용된 고주파 유도로는 직경이 10cm 높이가 30cm에 용량이 7 kg/batch의 로체를 이용하였다. 입력전원은 3상의 440V, 60 Hz이며, 출력전원은 200 kW, 출력주파수는 1~5 kHz로 구성하였다. 용융장치의 최고가열온도는 약 1700 °C이고, 입/출력 전원 및 출력은 컴퓨터제어방식으로 작동되도록 설계 제작하였다. 용융 후 용융금속을 원격으로 제어하여 도가니로 붓기 위해서 도가니가 로체의 Tilting 각도에 따라 위치가 자동으로 조작이 가능하도록 Tilting 장치를 제작하였다. 그 외에 냉각수공급시스템, 배기처리시스템 등을 구성하여 용융장치를 설치하였다.

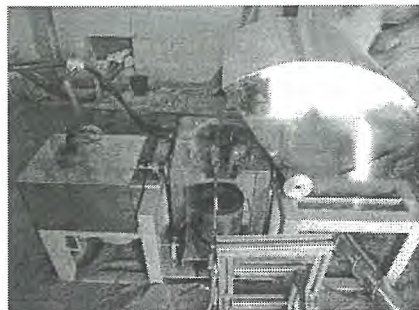


Fig. 1. Induction furnace melting system

2.2 용융과정의 분배특성

고주파 유도로를 이용하여 철재(carbon steel) 용융과정에서 다양한 추적자(Tracer)를 첨가하였다. Tracer는 금속형태의 Co, Cs, Ce를 첨가하였고, 방사성핵종으로는 우라늄과 Co-60을 첨가하여 용융과정에서 분배특성을 확인하였다. Co-60의 경우 대부분이 Ingot내에 존재하며, 우라늄의 경우 대부분 Slag로 이동함을 알 수 있다.

Table 1. Partition factor in melting process

구분	금속 Tracer			방사성물질	
	Co (%)	Cs (%)	Ce (ppm)	U (Bq/g)	Co-60
시료 (용융전)	0.19	<50	<10	0.04	0.16
Ingot	0.20	<50	<10	0.04	0.16
Slag	0.01	<50	4800	0.23	0.03

2.3 Ingot내 균질도 평가

용융과정에서 사용된 Tracer는 금속 형태의 Co, Ni, Mn, Cu, Al을 첨가하였고 Ce와 Cs는 질산염으로 첨가하여 실험을 수행하였다. Ingot내에 첨가된 Tracer의 분포를 확인하기 위해 시료를 판형으로 가공하고 9개의 영역으로 구분하여 각 위치에서 시료를 채취하여 ICP-AES분석을 수행하였다. 판형으로 가공된 Ingot는 Figure 2와 같다.



Fig. 2. Sampling position in the ingot

용융된 Ingot내 방사성핵종인 Co-60과 우라늄의 분포를 확인하기 위해 연구로 및 우라늄변환시설의 해체폐기물을 이용하여 핵종의 분포를 확인하였다. 우라늄변환의 경우 180 kg/Batch의 용융로체를 이용하였다. 분석을 위해 Ingot의 상, 중, 하로 구분하여 3개의 지점에서 시료를 채취하여 분석하였다. 결과는 Table 2 및 Table 3에 제시하였듯이 Ingot내에 다양한 금속 Tracer 및 방사성핵종인 Co-60, Uranium의 분포는 유도로의

특성과 같이 매우 균질하게 나타남을 알 수 있다.

Table 2. Distribution of the tracer in the ingot

위치	Ni (%)	Mn (%)	Cu (%)	Co (%)	Al (ppm)	Cs (ppm)
1	0.20	0.33	0.21	0.66	<50	<50
2	0.21	0.36	0.24	0.68	<50	<50
3	0.21	0.35	0.23	0.68	<50	<50
4	0.20	0.35	0.22	0.68	<50	<50
5	0.20	0.35	0.22	0.64	<50	<50
6	0.21	0.35	0.22	0.67	<50	<50
7	0.20	0.34	0.22	0.68	<50	<50
8	0.20	0.33	0.22	0.66	<50	<50
9	0.20	0.34	0.22	0.66	<50	<50

Table 3. Distribution of Uranium and Co-60 in ingot

위치	Co-60 (Bq/g)	U (Bq/g)
상단	0.163	0.032
중단	0.167	0.046
하단	0.162	0.042

3. 결론

고주파 유도로를 이용하여 금속 용융과정에서 분배특성을 확인한 결과 Co의 경우 대부분이 Ingot내에 존재하며, 우라늄의 경우 대부분 Slag로 이동함을 알 수 있다. 용융 후 Ingot내 Tracer 및 방사성핵종의 분포를 확인한 결과 다양한 금속 Tracer 및 Co-60 및 Uranium의 경우에도 매우 균질하게 분포함을 알 수 있었다.

4. 참고문헌

- [1] OECD/NEA, Recycling and Reuse of Scrap Metals, NEA report of CPD, 1996.
- [2] 박진호 외, EPN 방식 일과처리에 의한 제염 후 처리공정 개발, KAERI/CR-352/2009.
- [3] U.S. NRC, Radiological Assessments for Clearance of Materials from Nuclear Facilities, NUREG/CR-1640, Washington, 2003.
- [4] Recommended radiological protection criteria for the recycling of metals from the dismantling of nuclear installation, Radiation Protection No.89, 1998.

Preparation of organic polymers for decontamination of surface radioactive contamination

Ho-Sang Hwang, Bum-Kyoung Seo, Kune-Woo Lee

Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI) 1045 Daedeok-daero, Yuseong-gu, Daejeon 305-353, Korea
hshwang@kaeri.re.kr

1. Introduction

Strippable coatings are innovative technologies for decontamination that effectively reduce loose contamination. These coatings are polymer mixtures, such as water-based organic polymers that are applied to a surface by paintbrush, roller or spray applicator [1]. In this study, the core-shell composite polymer for decontamination from the surface contamination was synthesized by the method of emulsion polymerization and blends of polymers.

2. Experimental

2.1 Materials

All water was distilled using an automated distillation apparatus. The monomers, styrene (St, Aldrich) and ethyl acrylate (EA, Aldrich) were washed three times with a 5 % sodium hydroxide solution and then three times with distilled water to remove their inhibitors and dried over calcium chloride and stored at 0°C. Ammonium persulfate (APS), sodium dodecyl sulphonate (SDS), polyvinyl alcohol (PVA, 88% hydrolyzed, Mw 89,000-98,000) and polyvinyl pyrrolidone (PVP, Mw 40,000) from Aldrich Co. were used without further purification.

2.2 Preparation of Strippable polymer solution

Before the polymerization was started, water, surfactant and monomer were fed to the reactor; the stirred speed was set at the desired value. In a typical polymerization, the seed was first prepared by emulsion polymerization in a three-necked glass reactor equipped with a condenser, a mechanical stirrer, and a gas inlet to maintain a nitrogen atmosphere. St monomer in distilled water were pre-emulsified in the presence of SDS by stirring at 85°C for at least 20 min, before addition of APS to

start the polymerization reaction. The reaction was maintained at 85°C for at least 4 h. In the second stage of the reaction, quantitative EA was added into the seed latex emulsion. This mixture was kept under a nitrogen atmosphere and stirred for 5h. The poly(St-EA) polymer latex and PVA and PVP were blended with a mechanical stirrer. The blending was performed 85-90°C, employing a mechanical stirrer speed of 200 rpm. The system was cooled to room temperature and the final polymer was obtained without any post preparative treatments. The ingredients and reaction conditions were shown in Table 1.

Table 1. Ingredients and conditions for the synthesis of PS seed latex and the poly(St-EA)/PVA/PVP composite polymer

	PS seed latex	Poly(St-EA)/PVA/PVP composite particles
St (g)	5	
EA (g)		2.5
Seed latex emulsion (g)		5
DI water (g)	200	250
APS (g)	0.1	0.025
SDS (g)	0.004	
PVA (g)		12.5-37.5
PVP (g)		7.5-37.5

2.3 Determination of DF

The strippable polymer emulsion is composed of poly(St-EA) composite polymer, PVA and PVP. Decontamination factors for strippable coating materials were performed as follow: Several aluminum disks (1 cm diameter) were prepared by adding contaminant solution (Sr-90). Each contaminated disks were analyzed via Low Background Counting System before being treated

with strippable coating. All coatings were allowed complete dry for 24 h. The coatings were removed from disks, and the disks were again analyzed via Low Background Counting System. Using the count rates before and after decontamination, decontamination factors were calculated using equation 1, where β_1 is the β count before decontamination and β_2 is the β count after decontamination.

$$\text{Decontamination Factors}(DF) = \beta_1 / \beta_2 \quad (1)$$

2.4 Results and Discussion

The results for these coating are shown in Table 2. The decontamination factors obtained for Sr-90 on the disk plate studies were observed to decrease as the amount of contaminant on the disk increased. This was probably due to a conflict between the time required for the larger amounts of contaminant to permeate into the polymer and the drying time of the coating; in other words, it is likely that the coating dried before the larger amount of Sr-90 was drawn into it. It was shown the DF values of 8.9 to 12.8 at all the polymer composition. Poly(St-EA)-PVA-PVP coating have the ability to contamination for the contaminant.

Table 2. Decontamination factors for the decontamination of Sr-90 contaminated disk using poly(St-EA)-PVA-PVP

Polymeric Composition (wt%)	Initial (Bq/sample)	Final (Bq/sample)	DF
PVA 5 PVP 3	1138	111	10.3
PVA 7 PVP 5	1042	107	9.7
PVA 8 PVP 6	1039	81	12.8
Poly(St-EA) PVA 9 PVP 7	1187	92.4	12.8
PVA 10 PVP 8	1169	124	9.4
PVA 15 PVP 15	1155	129	8.9
	1965	211.7	9.3

3. Conclusions

These studies conclude that surfaces could be effectively decontaminated by the PVA and PVP based strippable polymer method. The products were made up of copolymers (St, EA) and blend polymers (PVA, PVP) with core-shell structure. Upon curing or drying, these coatings form strong films that can easily be peeled or stripped from the surface.

4. Reference

- [1] M.A. Ebadian, Susan C. Madaris, Carmen Alicia Aponte, Assessment of strippable coatings for deactivation and decommissioning, U.S. Department of Energy, 1999.

해체 대상 고방사능 시설의 오염도 원격 측정용 ZnS(Ag)/plastic phoswich 검출기 제조 및 특성 평가

서범경, 이보람, 이근우

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

bumja@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설의 개선·보수 또는 해체 시에는 시설 내부 및 기기들에 대한 정확한 방사선학적 오염 특성을 평가해야한다. 특히, 핵연료주기시설과 같은 고방사능 시설의 경우는 방사선량이 높기 때문에 작업자의 접근이 어렵고, 공간이 협소하여 기존의 검출기를 이용하여 오염도를 직접 측정하기는 어렵다. 이러한 이유로 고방사능 오염시설의 경우는 주로 smear 시료를 채취하여 실험실에서 계수하는 간접법을 이용하여 오염도를 측정하고 있으며, 간접법의 경우는 전이성 오염만 측정이 가능하기 때문에 시설 내부의 총오염도는 측정할 수 없는 단점이 있다.

고방사능 구역의 오염도를 원격으로 직접 측정하기 위하여 섬광체와 광섬유를 이용한 센서를 제조하여 알파선 또는 베타선 등을 측정할 수 있는 검출기를 개발하였다[1-3]. 이들 검출기들은 측정하고자 하는 방사선에 대응하는 섬광체를 사용하였고, 원거리 신호 전송을 위하여 플라스틱 광섬유를 사용하였다.

본 연구에서는 고방사능 구역에서 알파선과 베타선의 오염도를 원격으로 동시에 측정할 수 있는 검출소재를 개발하였다. 검출소재는 알파선 측정용 ZnS(Ag) 섬광체와 베타선 측정용 플라스틱 섬광체를 이종으로 결합하고, 에폭시 지지체에 광섬유를 삽입하여 측정 및 신호 전송이 동시에 가능한 일체형으로 제조하였다. 제조한 검출소재의 광학적 특성 및 방사선학적 특성을 평가하였고, 알파선과 베타선의 동시 측정 및 신호 전송 특성을 평가하였다.

2. 본론

2.1 섬광층 및 광섬유 지지체

오염도 측정용 센서의 지지체는 광도관으로서의 투명성과 신호 전송용 광섬유를 지지할 수 있는 기계적 강도가 요구된다. 특히, 방사선과의 상호작용에 의하여 생성된 섬광이 광섬유로 이동하는 과정에서 지지체 내부의 기포에 의한 산란을 최소화하기 위하여 제조 시에 기포의 발생이 최소화되어야 한다. 이

러한 조건을 만족시키기 위하여 에폭시 수지의 함량을 변화시키면서 지지체를 제조하였다.

지지체로서의 안전성을 평가하기 위하여 기계적 강도를 측정하였으며, 광도관으로서의 투명도는 가시광선 영역에서의 투과도를 측정하였다. 또한, 방사능 오염도 측정 시에 잡음으로 작용할 수 있는 에폭시 지지체 자체에서의 가시광선 영역에서의 발광 특성을 평가하였다.

2.2 베타선 검출용 플라스틱 섬광층

경화촉진제에 베타선 측정이 가능한 섬광체인 제1용질인 2,5-diphenyloxazde (PPO)와 wave shifter인 제2용질 1,4-bis[5-phenyl-2-oxazol]benzene (POPOP)를 첨가하여 투명한 에폭시 수지와 혼합하여 섬광검출 소재를 Fig. 1과 같은 형태로 제조하였다. 에폭시 수지와 경화제의 함량을 변화시키며 투명도, 경화속도, 기계적 강도 등을 분석하여 최적의 혼합비율을 정하고, 유기섬광체의 함량을 변화시켜 투과도 및 발광량을 평가하여 최적의 제조조건을 도출하였다.

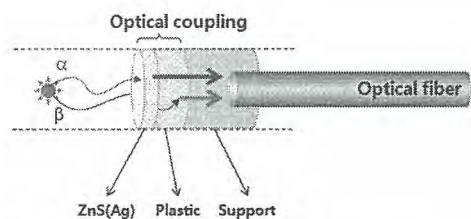


Fig. 1. Phoswich detector for the simultaneous counting of .alpha- and beta particles.

2.3 알파선 검출용 ZnS(Ag) 섬광층

알파선 검출이 가능한 섬광층은 Fig. 1과 같이 알파선 계수용 무기섬광체 ZnS(Ag)를 플라스틱 섬광층 위에 도포하여 제조하였다. ZnS(Ag) 섬광체는 분말 상태로만 존재하기 때문에 투명한 섬광체와 달리 알파선의 에너지를 충분히 흡수하고, 섬광을 광섬유

로 전송하기 위하여 섬광층의 두께 조절이 중요하다. 섬광층의 두께를 결정하기 위하여 Fig. 2와 같이 MCNPX 전산코드를 이용하여 모사하였다. 알파선의 에너지는 평균 에너지인 5 MeV로 정하였고, 섬광층의 기하학적 조건은 실제 제조한 모양과 동일하게 유지하였으며, ZnS(Ag) 섬광층의 면밀도를 5에서 40 mg/cm^2 로 변화시키면서 알파선의 반응확률을 계산하여 알파선의 에너지를 최대로 흡수할 수 있는 두께를 결정하였다. 결정한 최대 두께를 근거로 하여 실제 섬광층을 제조하여 알파선의 검출이 최대가 되는 섬광층 두께를 결정하여 실험 조건을 선정하였다.

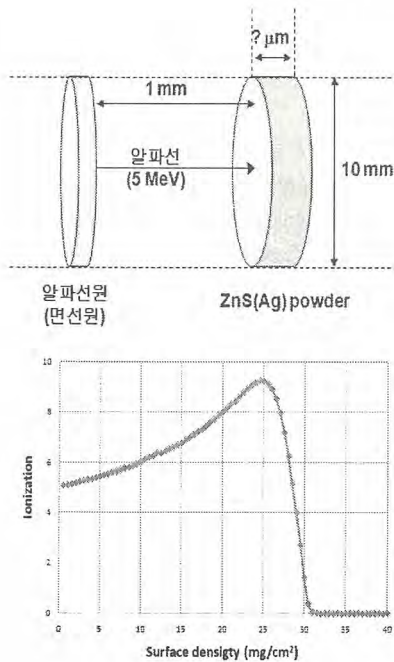


Fig. 2. The simulation condition of the alpha particle detection for determination of the optimal layer thickness and absorption curve of the alpha particles in the counting material.

3. 결론

핵연료주기시설과 같은 고방사능 시설의 해체에 요구되는 알파선과 베타선의 오염도를 원격으로 측정할 수 있는 검출소재를 개발하였다. 투명 에폭시 지지체에 알파선 측정용 ZnS(Ag) 섬광층과 베타선 측정용 플라스틱 섬광층을 이중으

로 배치하여 알파선과 베타선을 동시에 측정할 수 있으며, 원거리 신호전송이 가능한 광섬유를 일체형으로 결합하여 신호 전송효율을 높일 수 있었다. 이러한 원격 측정용 검출소재는 고방사능 시설의 오염도 측정 시에 작업자의 안전성을 확보할 수 있으며, 현장에서 신속한 오염도 측정이 가능하다.

4. 참고문헌

- [1] S. Usuda, "Development of ZnS(Ag)/NE102A and ZnS(Ag)/Stilbene phoswich detectors for simultaneous α and $\beta(\gamma)$ counting", J. Nucl. Sci. Tech. 29, pp.927-929 (1992).
- [2] S. Usuda, K. Yasuda, and S. Sakurai, "Simultaneous counting of radiations emitted from actinides with improved phoswich detectors by applying optical filters", J. Alloys and Compounds 271, pp.58-61 (1998).
- [3] K. Yasuda, S. Usuda, and H. Gunji, "Development of scintillation-light-transmission type phoswich detector for simultaneous alpha- and beta-(gamma) ray counting", IEEE Trans. Nucl. Sci. 47(4), pp. 1337-1340 (2000).

제1분과

방사성폐기물 정책 및 제염해체 (Poster)

빈 면

조사제시험시설 핫셀 배기덕트 제염기술 개발

백상열, 김기하, 송웅섭, 안상복, 류우석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
sybaek1@kaeri.re.kr

1. 서론

조사제시험시설은 고방사능물질인 조사핵연료 등의 핫셀시험을 위한 시설로서, 시험과정에서 발생된 오염공기를 정화하기 위한 특수 공기조화설비를 운영한다. 핫셀의 오염공기는 배기 덕트를 통하여 DUP 배기 계통으로 연결된 고효율 입자(HEPA) 필터와 활성탄 필터를 통하여 정화되어 시설외부로 배출된다. 핫셀을 장기간 운전하면 오염공기의 통로인 배기챔버와 덕트는 방사능 입자에 오염되어 주변의 방사능 준위를 상승시켜 시설의 안전운전을 저해한다. 따라서 본 논문에서는 오염된 배기챔버 및 덕트의 제염방법 및 관련 절차에 대하여 논의하였다.

2. 본론

2.1 제염대상 설비 현황

제염을 실시할 설비는 핫셀에서 지하 필터뱅크로 연결되는 3개의 원형 덕트와 하나의 챔버이다. 핫셀 내부의 방사성 오염공기를 외부로 내보내는 배기관으로 T-304 스테인레스 스틸로 제작되었다.

2.2 제염 개요

M2 핫셀 지하 덕트 및 챔버를 해체하여 비닐로 격리된 방에서 제염을 실시하며, 덕트 및 챔버의 형태는 그림 1, 2와 같다.

제염을 위한 장비는 리프트, 공구류, 방사능물질 제거용 끝이나 집게, 분진마스크, 1회용 작업복, 비닐시트, 안전장구, 저장함, 제염용품 등이 사용된다.

2.3 상세 제염 절차

제염작업은 그림 3과 같이 덕트 및 챔버를 해체하여 격리된 방에서 수작업으로 진행 하였으며 상세 절차는 아래와 같다.

1) 안전장구를 착용한다.

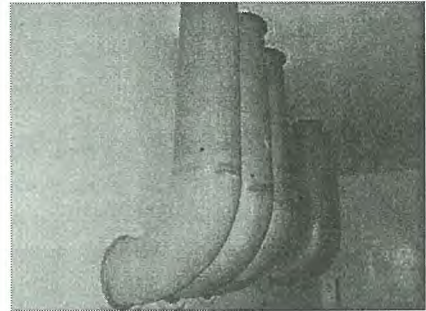


Fig. 1. M2 Hot Cell Duct

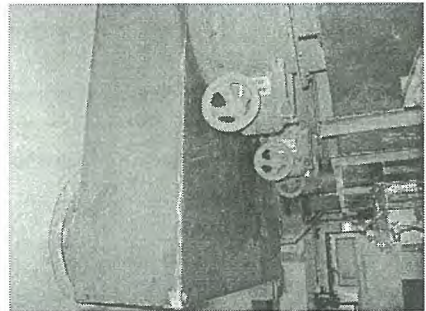


Fig. 2. M2 Hot Cell Duct Chamber

- 2) 작업자는 작업구역의 바닥 및 측면에 비닐시트를 설치하여 작업공간을 분리한다. 필요시 경계표시를 구분 한다
- 3) 주변 및 대상 덕트에 대한 방사선량을 측정한다.
- 4) 챔버 하부에 리프트를 설치한다.
- 5) 덕트에 공기가 흐르지 않도록 댐퍼를 잠근다.
- 6) 일정시간동안 정지해 놓는다.
- 7) 볼트를 푼다.
- 8) 챔버를 아래로 내린다.

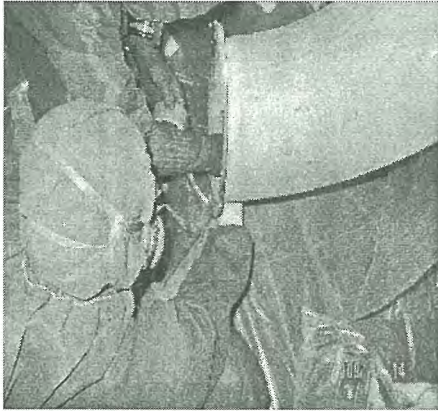


Fig. 3. Decontamination work

- 9) 끌, 집게 및 끈끈이를 이용하여 덕트 내 방사능 물질을 제거한다. 이때 방사능물질이 날리지 아니하도록 한다.
- 10) 오염부위의 취급 시 중량 및 방사능 물질의 2차 오염 방지에 주의하여야 한다.
- 11) 제거된 방사능물질은 저장함에 넣는다. 이때 비산되지 않도록 한다.
- 12) 방사능물질이 제거되었는지 방사선측정기를

이용하여 측정한다.

- 13) 측정결과 제거되지 않았으면 제거될 때 까지 수행한다.
- 14) 방사능물질이 제거되면 챔버와 덕트 연결 부위에 가스켓을 설치한다.
- 15) 리프트를 이용하여 챔버 및 덕트를 원래 위치로 올린다.
- 16) 볼트와 너트를 이용하여 고정시킨다.
- 17) 주변에 대한 방사능 측정을 실시한다.
- 18) 작업장 주변을 정리 정돈 한다.

3. 결과 및 기대효과

내부가 오염된 배기 챔버 및 덕트의 방사선 준위 저감을 위한 제염 방법 및 기술을 개발하여 핫셀 설비에 적용하였다.

개발된 절차에 따라 제염을 수행하여 오염 준위 결과는 표1과 같다. 표에서 보는바와 같이 제염 전에 각 부위 별 방사선량을 측정결과는 300~3,300 $\mu\text{Sv/h}$ 이었으며, 제염 후 측정결과는 20~42 $\mu\text{Sv/h}$ 로 약 1/15 이하로 나타났다.

본 논문을 통하여 개발된 제염기술은 핫셀시설의 설비 제염에 유용한 자료로 활용될 수 있다.

Table 1. Radiation Dose Rate before/after Decontamination

번호	측정위치	주요핵종	제염 전 방사선량률($\mu\text{Sv/h}$)	제염 후 방사선량률($\mu\text{Sv/h}$)	비고
1	챔버아래 (왼쪽전면)	Co-60, Cs-137	2200	34	
2	챔버아래 (왼쪽바닥면)	Co-60, Cs-137	3300	20	
3	챔버아래(오른쪽바닥면)	Co-60, Cs-137	980	38	
4	배기관용접부위(왼쪽)	Co-60, Cs-137	700	24	
5	배기관용접부위(오른쪽)	Co-60, Cs-137	300	42	
6	배기관 아래부위	Co-60, Cs-137	800	24	

우라늄 변환시설 해체 방사성 폐기물의 특성 평가

지연희, 박승국, 백삼태

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

ivh0229@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에 소재하고 있는 우라늄변환 시설(UCP, Uranium Conversion Plant)의 해체가 이루어졌다. UCP의 제염, 해체 활동에서 발생한 해체폐기물은 총 589톤이다. 이 중 459 톤의 방사성폐기물에 대해 특성을 평가하였다. 해체 방사성 폐기물을 재료적인 특성별로 분류하고 이 분류에 따른 주요 핵종의 비방사능 값과 총 방사능 값을 도출하였다. 평가에는 해체정보 관리시스템(DECMMIS, Decommissioning Information System)이 활용되었다. 발생 폐기물의 총 방사능량은 23,540.3 MBq로 평가 되었다. 이러한 자료들은 추후 원자력시설의 해체계획 수립 및 설계에 기초자료로 활용될 것이다.

2. 본론

우라늄 변환시설의 해체대상은 ADU 및 AUC 공정에 사용되었던 계통의 탱크류, 배관류 및 장치류 등 대부분 금속류로서 해체 방사성폐기물은 52.3톤이다. 또한 오염된 건물의 바닥에서 제염활동을 통해 제거된 오염 콘크리트가 191.5톤 발생하였다. 그 외에 가연성 방사성폐기물이 7.9톤, 비가연성 방사성폐기물이 174.7톤 그리고 라군 슬러지 방사성 폐기물이 32.8톤 발생하였다. 다음 표 1.에 해체 폐기물 현황을 나타내었다. 비가연성 방사성폐기물의 대부분은 오염된 토양이다.

Table 1. Dismantling waste generation.

구 분	해체폐기물 (ton)	
	방사성폐기물	자체처분대상
금속류	52.3	126
콘크리트	191.5	3.7
가연성	7.9	0
비가연성	174.7	0
라군슬러지	32.8	0
계	459.2	129.7

분류기준에 의거 구분된 방사성 고체 폐기물 중 중저준위 방사성폐기물에 대하여 재료 특성별로 평가하였다. 분석된 핵종들 중 ^{238}U , ^{234}U , ^{235}U 가 대부분을 차지한다. 재료 특성별로는 크게 금속류, 콘크리트류, 가연성, 비가연성, 라군 슬러지로 분류하였다. 이는 다시 각각의 재료의 물성 특성별로 세분류로 구분하였다. 금속류는 알루미늄, 탄소강, 스테인레스 스틸과 납으로 구분하였다. 종류가 많은 가연성 방사성 고체 폐기물은 종이류, 비닐류, 목재류, 고무류, 플라스틱류, 및 섬유류와 기타폐기물로 구분되었다. 비가연성 방사성 폐기물은 토양과 잡고체 등으로 구분되었다.

표 2.의 종류별 저장 현황에서 보는바와 같이 200리터 드럼이 1,362드럼, 4m^3 컨테이너가 36개가 발생했으며 이들 대부분은 원자력연구원 방사성폐기물 저장고로 이송되어 저장하였고 현재 해체현장에는 390 드럼이 저장 관리 되고 있다.

Table 2. Waste container storage

종류 \ 용기종류(개)	200ℓ 드럼	4m^3 컨테이너
금속	2	14
콘크리트	613	19
가연성	76	1
비가연성	530	2
라군슬러지	141	0
계	1,362	36

3. 결론

우라늄변환시설 건물의 내부 콘크리트 표면을 제염하면서 발생된 콘크리트 폐기물이 발생된 고체 방사성폐기물 중 191.5 톤으로서 제일 많은 양이며, 총 방사능량은 10,759.4 MBq으로 나타났다. 특성 평가결과 주요핵종인 ^{234}U 의 총 방사능량은 2,696.6 MBq이고 ^{238}U 은 2,626.5 MBq, ^{235}U 은 121.9 MBq의 값이 산출되었고 핵종별 방사능량의 분포를 다음 그림 1. 에 나타내었다.

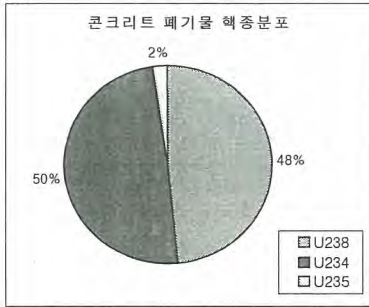


Fig. 1. Distribution of the nuclides on the concrete waste

금속류 방사성폐기물의 물성특성은 탄소강, 알루미늄, 스테인레스 스틸, 기타금속으로 구분하였고, 발생량은 탄소강 41,397.8 kg, 알루미늄 258.1kg, 스테인레스 스틸 5,668 kg, 기타금속 4,976.1 kg으로 금속류의 발생 총 방사능량은 1,026.4 MBq이며, 대부분의 금속류 방사성폐기물은 오염된 것이다.

Table 3. Total activity of the metallic waste according to each nuclide. (MBq)

구분	발생량 (ton)	^{238}U	^{234}U	^{235}U
알루미늄	0.3	2.032	2.091	0.094
탄소강	41.4	226.107	232.609	13.541
스테인리스스틸	5.7	22.645	23.541	1.063
기타	4.9	0.008	0.008	0.002
계	52.3	250.792	258.249	14.7

가연성 방사성폐기물은 실험실 탁자와 같은 목재류를 제외하고는 대부분이 제염, 해체 활동에서 발생되는 2차 폐기물이다. 이는 해체활동 지역의 2차 오염을 방지하기 위해 설치한 바닥재용 비닐 또는 green house 설치용 비닐과 작업종사자의

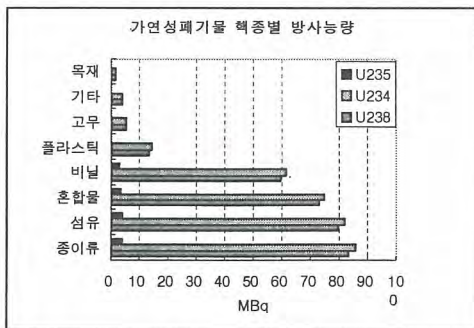


Fig. 2. Activity of the combustible waste according to the main nuclides.

피폭방지를 위한 보호 장구인 섬유류, 그리고 제염활동에서 발생된 제염지 등을 대표로 들 수 있다. 이들 가연성 방사성폐기물의 총 방사능량은 1310.7 MBq로 산출되었으며, 평가 결과는 그림 2. 과 같다.

비가연성 방사성 폐기물의 총 방사능량은 10,443.8 MBq이며 주요핵종의 방사능량은 표 4. 에 나타내었다. 비가연성 방사성 폐기물은 석면, 세라믹, 유리 석고, 모래, 흙, 기타 잡고체로 구분하였다. 기타 잡고체는 해체 부산물의 형태가 특별히 구분되어지지 않는 것들과 제염 시 발생한 집진기 먼지와 부스러기 등이 포함되어 구분되었고, 흙은 우라늄 변환시설 1층 바닥 집수구 부근에서 발견된 오염된 토양이다.

Table 4. Total activity of the non-combustible waste according to each nuclide. (MBq)

구분	^{238}U	^{234}U	^{235}U
기타잡고체	452.74	461.83	14.52
흙	1984.5	2041.14	92.64
모래	56.94	58.46	2.65
석면	22.62	23.26	1.15
세라믹	5.49	5.64	0.25
유리	0.74	0.75	0.03
석고	0.18	0.18	0.01
계	2,523.21	2,591.26	111.25

Light ablation decontamination characteristics of metal specimen contaminated with simulated radionuclides at 532 nm

Byambatseren Baigalmaa, Hui-Jun Won, Jei-Kwon Moon, Chong-Hun Jung and Kune-Woo Lee
Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeokdaero, YuseongGu, Daejeon, 305-353, Korea
nhjwon@kaeri.re.kr

1. Introduction

A laser ablation decontamination technology which is reported as a new and innovative technology has been developed to secure an appropriate decontamination technology for a refurbishment or a decommissioning radioactive hot cells in Korea. In the present study, we investigated the basic performances of a Q-switched Nd:YAG laser system with a second harmonic generation (532nm) in the decontamination of the metal specimens contaminated with simulated radionuclides. The surface morphology and the relative atomic mole percent ratio of the specimen surfaces were investigated by using SEM and EPMA.

2. Methods and Results

2.1 Specimen Preparation

Type 304 stainless steels were cut into a rectangular form to prepare the experimental specimens. They were polished with abrasive papers, and washed with water and ethyl alcohol. The specimens were contaminated as follows: Eu_2O_3 powder (Aldrich Chemical Company, inc) mixed with distilled water was slowly dropped onto the surface of stainless steel by injection and then dried in a room temperature. Two kinds of $\text{Co}(\text{NH}_4)_2(\text{SO}_4)_2$ and CsNO_3 solutions were also dropped onto the specimen surfaces, respectively and then dried for the test. The relative atomic molar percent of surface elements before laser irradiation was analyzed by EPMA (JSM-6300).

2.2 Laser irradiation

A Second harmonic generation Q-switched Nd:YAG laser was employed. Fig. 1 shows the schematic diagram of the experimental apparatus.

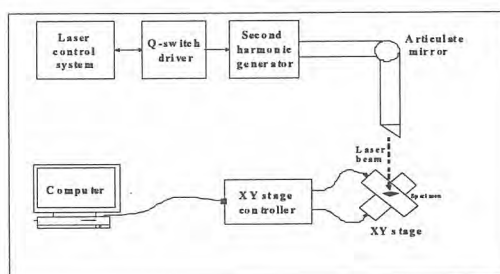


Fig. 1. Schematic diagram of the experimental apparatus.

2.3 Test results

Removed weight of the metal specimen at 1Hz of repetition against the shot numbers under three fluence conditions is shown in Fig.2.

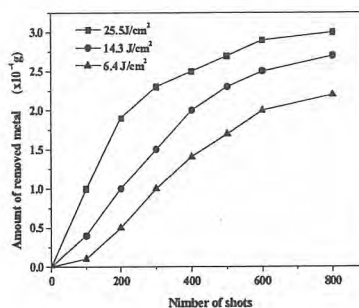


Fig. 2. Relationship between the removed metal weight and the shot numbers.

The amount of removed metal is increased with the shot number at a given fluence. The values of the apparent removal rate are 1×10^{-6} , 4×10^{-7} , and 9×10^{-8} g/shot at 25.5, 14.3, and 6.4 mJ/cm^2 , respectively. Also amount of removed metal increased with fluence at given number of shot.

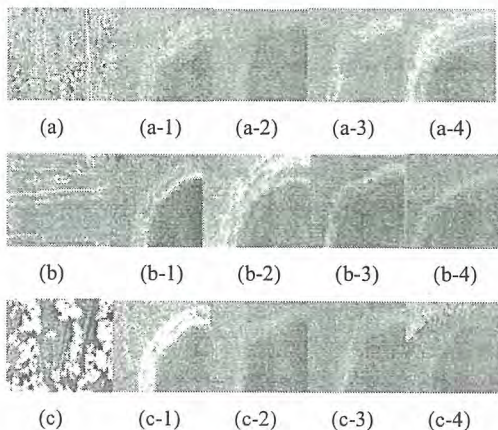


Fig. 3. SEM images of SUS 304 surface (50X) contaminated with (a) CsNO_3 ; (b) $\text{Co}(\text{NH}_4)_2(\text{SO}_4)_2$ before and after 8 laser shots of laser irradiation at $1:0^\circ$, $2:15^\circ$, $3:30^\circ$ and $4:45^\circ$.

The exposed specimen morphology was examined by SEM at a magnification of 50X. SEM micrographs of the specimens before and after 8 shots, laser energy fluence 14.3 J/cm^2 of laser irradiation at a given angle for the 0° , 15° , 30° , 45° are shown in Fig.3. Here, (1), (2), (3) and (4) are the specimen irradiation angle for 0° , 15° , 30° and 45° respectively. As shown in Fig 3 (a), (b) and (c) contaminants on the metal surface were evenly attached and connected with each other. From the EPMA analysis it was found that Co^{2+} and Cs^+ ions are included in a crystal. On the other hand, as shown in Fig. 3(c), Eu_2O_3 powders are dissipated. Comparing the former study [1], the effected surface was smooth irrespective of the change of irradiation angle from 0 to 45° . From the figure, the stainless steel surface was slightly melted and it formed different shape of crater by the change of irradiation angle. It can be seen that the crater is formed

elliptical shape. The removal efficiency was worse at 45° .

3. Conclusion

Laser decontamination tests of the surrogate specimen was performed to evaluate the light ablation performance. Simulated radionuclides on the metal specimens were removed satisfactorily by the laser ablation method. The ablation depth was around 1×10^{-6} g/shot at 25.5 J/cm^2 . The increase of laser fluence increased the laser ablation depth. The results indicate that the secondary generated from the ablation metal of stainless steel is negligible. From the result, the irradiation angle from 0 to 30° was most suitable.

4. Acknowledgement

This work has been carried out under the Nuclear R & D Program funded by the Ministry of Education, Science and Technology.

5. REFERENCES

- [1] B. Baigalmaa, H. J. Won, J. K. Moon, C.H. Jung, and J. H. Hyun, "A comprehensive study on the laser decontamination of surfaces contaminated with Cs^+ ion", Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 67, pp.1526- 1529, 2009.

변환시설 발생 우라늄 함유 유기폐액의 열분해 특성 및 조성 분석

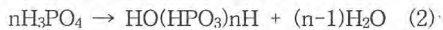
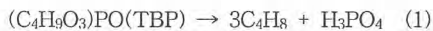
양희철, 김상민, 민병연, 최왕규, 이근우

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

nhcyang@kaeri.re.kr

1. 개 요

열중량 분석기 (Thermogravimetric Analyser)를 이용하여 우라늄 함유 TBP (tributyl phosphate) 유기폐액의 열분해 특성을 고찰하고 우라늄 및 인함량 분석결과를 비교하여 TBP유기폐액의 화학적 조성을 예측하였다. 우라늄-질산-TBP 복합체 ($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2(\text{TBP})_2$)와 같이 유기용제에 의해 추출되어 화학적 형태로 결합되어 있는 이온형태의 우라늄은 폐기물의 고온 분해 과정에서 휘발되어 배기가스 처리계통에서 응축되어 미세한 입자의 형태로 환경으로의 배출이 우려된다는 문제점을 가지고 있다. 물론 이 과정에 산성가스인 NO_x 와 PO_x 도 발생된다. TBP는 고온 소각 처리시에 다음 반응(1)에 의해 기체상 탄화수소와 인산으로 분리된다. 기체상 인산은 배기체 처리공정에서 응축되어 부식성이 강한 인산으로 여과장치나 관내벽에 침적되어 소각공정의 안전한 운전을 어렵게 한다고 보고되고 있다[1].



따라서 이러한 문제점이 배제된 소각대체공정의 개발이 필요한데 이를 위해서는 유기폐액의 화학적 조성과 열적 거동특성에 대한 정보가 필요하다. 본 연구는 한국원자력연구원 변환시설에서 발생되어 저장되고 있는 우라늄을 함유하는 TBP유기용제 폐기물의 화학종의 조성을 열중량분석과 무기원소인 인과 우라늄의 함량으로부터 추정하고자 하였다. 본 연구의 결과는 한국원자력연구원 발생 TBP함유 유기폐액을 우라늄이나 유해가스의 배출 없이 환경적으로 안전하게 분해 처리할 수 있는 수증기개질과 같은 소각대체기술의 연구 개발에 필요한 기초자료로 활용될 것이다[2].

2. 시험방법 및 결과

시험에 사용된 두 종류의 유기폐액은 각각 다른 농도의 우라늄 및 인 함량을 가지는 한국원자력연구원 변환시설에서 발생되어 저장되고 있는 우라늄 함유 TBP폐기물로, TBP-dodecane 혼합폐기물에서 진공증류에 의해 dodecane이 일부 제거된 TBP가 주성분인 폐기물이다. 열중량분석기 (TGA-601, LECO)를 사용하여 이 두 유기폐액과 순수 TBP의 질소분위기(99.9% O_2)에서의 온도 증가 (ramping rate: $4^\circ\text{C}/\text{min}$)에 따른 무게의 변화를 측정하고 그 결과를 그림 1에 나타내었다.

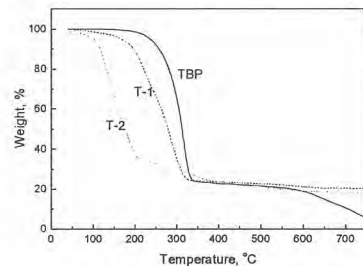
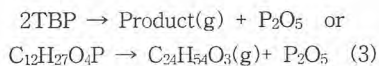
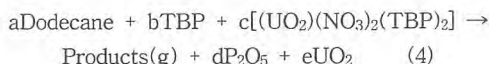


Fig. 1. Weight reduction of uranium-containing TBP wastes and pure TBP under nitrogen atmosphere (T-1: U 82.56 g/L, P 67.79 g/L, T-2: U 59.94 g/L, P 34.19 g/L)

세 시료 무게감량은 모두 순수 유기물이 분리되는 유기물의 열분해 단계와 이후에 잔류하는 승화성 P_2O_5 의 승화단계로 구분된다. TBP 시료의 경우 약 100°C 에서부터 무게감량이 시작되고 200°C 이후에서 급격한 무게감량이 진행되어 전체의 80% 정도가 1단계의 유기성분 분리반응에 의해 기체상의 탄화수소를 배출함을 알 수 있다. 이 TBP의 열분해 반응은 다음 (3)식으로 표현될 수 있는데 반응의 당량평가(stoichiometric estimation)가 TGA에서의 무게감량과 일치한다.



이 (3)반응식의 반응 후에 잔류하는 P_2O_5 는 승화성으로 온도의 증가에 따라 지속적인 무게의 감량이 일어나고 있다. T-1 시료의 경우에는 무게의 감량이 순수 TBP에 비해 조금 낮은 온도에서 빠르게 진행되는데 이는 TBP에 비해 더 낮은 온도에서 휘발되는 dodecane이 조금 포함되어 있기 때문인 것으로 추정된다. T-2의 경우에는 더욱 낮은 온도에서 급격한 휘발이 진행되고 있다. 이로부터 T-2 시료에는 비점이 216°C 로 200°C 이하에서도 상당한 증기압을 가지는 dodecane이 상당히 많이 포함되어 있음을 알 수 있다. 이러한 TGA 결과로 추정되는 시료의 화학종과 시료의 우라늄 및 인의 함량분석결과에 의한 당량평가로부터 T-1 및 T-2 폐기물은 우라늄 함유 TBP adduct $[(\text{UO}_2)(\text{NO}_3)_2(\text{TBP})_2]$ 와 과잉의 TBP 및 dodecane를 함유하는 혼합폐기물로서 이의 열분해반응은 다음 반응식 (4)로 표현될 수 있다.



당량평가에 의해 위 (4)반응식의 계수 a, b, c, d, e를 결정하여 이로부터 다음 표 1과 같이 각 시료의 화학적 조성과 열분해 잔류물의 조성을 추정해 볼 수 있다. 물론 이 결과는 앞의 TGA 분석에 의한 무게감량과 일치한다.

Table 1. Chemical compositions of two TBP wastes determined by the thermograms and contents of uranium and phosphate

	반응물			열분해 잔류물	
	Dodecane	TBP	$[(\text{UO}_2)(\text{NO}_3)_2(\text{TBP})_2]$	P_2O_5	UO_2
TBP	0	1	0	0.5	0
T-1	1.52	1.57	0.35	1.135	0.35
T-2	3.49	0.64	0.25	0.57	0.25

3. 결론

본 연구의 결과로부터 한국원자력연구원 변환시설에서 발생되어 저장되고 있는 우라늄함유 유기

폐액의 조성을 추정할 수 있었으며 고온 열분해 조건에서 분해특성에 대한 기본 자료를 얻었으며 이는 열분해 및 수증기개질공정의 개발을 위한 실험 및 모델 연구에 활용될 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 중장기 원자력연구 개발사업으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] Toshiki Sasaki et al, Steam-Assisted Pyrolysis System for Decontamination and Volume Reduction of Radiactive Organic Waste, J. Nucl. Sci. Technol. Vol. 46, No. 3, pp. 232-239, 2009
- [2] Hee-Chul Yang, et al., Korean Chemical Engineering Research, On the Alternative Incineration Technologies for the Treatment of Hazardous Waste Vol. 45, No. 4, pp. 319-327, 2007

겔 화학 제염에 의한 방사성 핵종 제거특성

정중현, 원휘준, 문제권, 이근우, 김창기

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

nchjung@kaeri.re.kr

1. 서론

제염 화학용액의 분사에 의한 방사선 오염의 현장제염은 다량의 제염폐액을 발생시키고 제염대상과의 짧은 접촉시간 때문에 제한된 제염효율을 나타낸다. 따라서 화학 제염제에 화학적으로 불활성이고 비표면적이 큰 미세 고체형태의 점도성 겔화제로 구성된 점도성 제염용액을 사용한 겔 화학 제염기술 개발이 이루어졌다[1]. 용액과 달리 이러한 겔의 분사는 경사지거나 수직한 대면적 금속표면의 현장제염을 가능하게 할 수 있다. 특히 화학제염에 비해 접촉시간의 조절을 통한 재료부식 특성을 조절할 수 있으며 스테레스 강, 합금 및 도막 표면 등 다양한 모재에 형성된 오염을 해체없이 현장에서 제거할 수 있다[2-3]. 따라서 화학제염이 갖는 높은 제염효과를 유지하면서 단점인 폐기물 발생을 보완함으로써 비교적 대면적의 현장 제염에 효율적으로 이용할 수 있는 기술이다.

그러나 효과적인 겔 화학제염기술을 개발하기 위해서는 겔화제와 제염화학제와의 물리화학적 적합성, 겔 화학제염제의 분사와 오염 표면에서의 점착 거동 최적화를 위한 제염제의 유변학적 물성조절과 제염 후 폐기물의 진공흡입이 가능한 형태의 오염 건조 및 균열거동 등 제반의 영향인자를 고려하여야 한다.

본 연구에서는 폐기물 발생 측면에서 유리한 유기겔을 기조로 하고 착화제를 제염제로 사용하여 방사성 핵종의 제염특성을 조사하였다.

2. 본론

대표적 오염핵종인 Cs의 제염거동을 조사하기 위해 비방사성 surrogate (CsCl)를 스테레스 강 304 표면에 균일하게 분산시켜 오염시편을 제조하였다. 겔 화학제염제는 점성을 유지하기 위한 겔화제에 화학 제염제를 첨가하여 제조하였다. 겔

화제로는 수용성 합성 고분자인 polyvinyl alcohol (PVA)에 필요한 고분자 량을 줄일 수 있는 화학 첨가제로 구성되었다. 제염제로는 oxalic acid, citric acid 등의 착화제를 2 wt% 미만의 농도로 첨가하였다. 95 °C의 온도에서 겔 형성제를 용해시킨 후 첨가제와 제염제를 혼합하여 겔 화학 제염제를 제조하였으며 이 겔 제염제를 Cs 오염 시편에 균일 분산시켜 3 시간 동안 제염시킨 후 연속 sheet 형태로 제거하였다. 이후 표면을 탈염수로 세척하여 제염 전·후의 무게측정을 통해제염거동을 파악하였다. 아울러 제조된 겔 화학제염제의 점도와 시간에 따른 겔 점착특성을 조사하였다.

Fig. 1에 표시된 오염농도에 따른 겔 화학 제염을 실험결과에서 알 수 있듯이, 0.01 g/cm²의 Cs 오염에 대한 제거율은 98-99 % 이상인데 반해 0.0025 g/cm²의 오염에 대해서는 이보다 낮은 96-98 %의 제거율을 나타내어 오염도에 따른 제염 효과가 차이가 있음을 알 수 있다. 또한 표면 조도에 따른 제염실험 결과 연마표면에 형성된 오염의 제거율이 미연마 표면 오염에 비해 제염 효과가 높았는데 이는 표면 조도가 낮을수록 겔 유체의 젖음성이 양호해진 때문으로 생각된다.

겔화제의 농도변화에 따른 제염거동은 Fig. 1에서 보듯이, 겔 형성제와 첨가제의 농도비 뿐만 아니라 폐기물량의 발생에 큰 영향인자인 겔 형성제의 양이 첨가제의 양에 비해 겔 화학 제염거동에 중요함을 알 수 있다.

또한 PVA 기조의 겔 화학제염제를 미연마 스테레스 강 표면에 도포시킨 후 시간 경과에 따른 겔의 부착력 시험결과, 겔 화합물은 초기 5분 경과 후 약 30 %의 무게감소를 나타내었으나 이후 감소량이 점차 둔화되어 3시간의 제염 후에는 초기값 대비 50 % 이내의 무게감소를 나타냄으로써 도포 후 오염 금속 표면에 효과적으로 점착되는 것을 확인할 수 있었다. 특히 PVA 농도가 증가한 경우 점착 성능이 보다 우수함을 알 수 있다.

겔 화학제염제로 도포된 제염 전의 오염시편과

제염 후 건조시켜 제거된 gel에 포집된 Cs 및 시편 표면에 대해 나타낸 Fig. 2에서 보듯이 외견상으로도 효과적으로 제염되었음을 알 수 있다.

3. 결론

기존 화학제염이 갖는 높은 제염효과를 유지하면서 화학제염의 단점인 폐기물 발생을 크게 저감할 수 있는 특징을 갖는 겔 화학제염 기술을 개발하여 대면적의 현장 제염에 이용하기 위한 연구로서, 유기겔을 기제로 하고 착화제를 제염제로 사용하여 Cs 방사성 핵종의 제염특성을 조사하였다. 수용성 합성 고분자인 polyvinyl alcohol (PVA)과 화학 첨가제로 구성된 겔화제에 2 wt% 미만의 농도로 착화제를 첨가하여 제조된 겔 화학제염제를 사용하여 3시간 이내의 비교적 짧은 제염시간을 통해 0.0025 g/cm^2 의 농도 이상의 Cs 오염에 대해 약 97 % 이상의 제거율을 얻을 수 있었다.

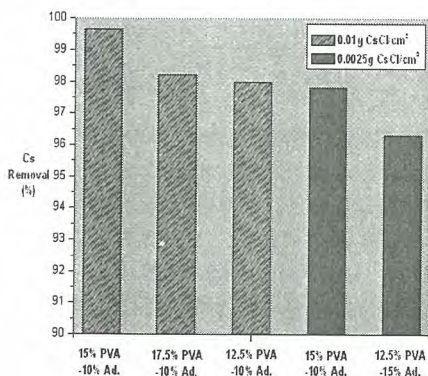


Fig. 1. Removal of Cs with variation of gel fluid formulation.

향후 보다 효율적인 겔 화학제염기술을 개발하기 위해 겔화제와 화학 제염제와의 적합성 시험에 의한 부식 및 용해 거동의 최적화, 겔 화학제염제의 유변학적 물성조절에 의한 겔 화학제염제의 분사와 오염 표면에의 점착 거동 최적화 및 제염 후 폐기물의 건조 및 균열특성에 대한 거동 파악 등을 수행할 예정이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발 중 장기계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] G. Jean-Paul, et. al., "Gel decontamination et son utilisation pour la decontamination radioactive de surfaces" FR-A-2656949, 1990
- [2] A. Purohit et. al., "Method for the decontamination of metallic surfaces" US 650407, 2003
- [3] S. Faure, "Innovative Processes for nuclear decontamination solids" (Exchange meeting between KAERI-CEA, 2008

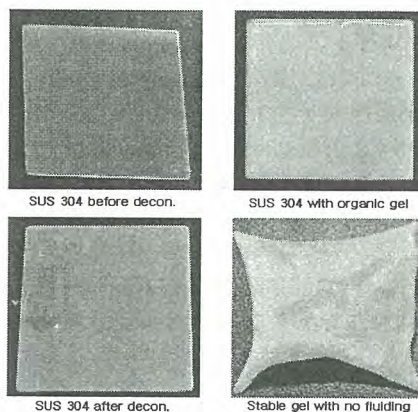


Fig. 2. Removal of Cs with organic gel.

A survey of non-radiological risk controls for decommissioning safety assessment

KwanSeong Jeong, KuneWoo Lee

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

ksjeong1@kaeri.re.kr

1. Introduction

The non-radiological risk controls for decommissioning safety assessment need to understand risk assessment methodologies and the thought processes encompassed in hierarchies of control. This paper discusses the recently issued standards and guidelines that require risk assessments and the use of a hierarchy of control, the purpose of a hierarchy of control, risk assessment and a hierarchy of controls are joined with sound problem-solving methods to create a safety decision hierarchy, hazard identification and analysis, and risk assessment methods.

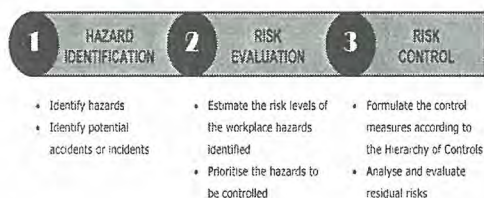


Fig. 1. Generic steps of risk assessment

2. A survey of risk assessment & hierarchy of control in industrial safety

2.1 ANSI

ANSI presents the below hierarchy of controls[1].

- Elimination or substitution
- Engineering controls
- Awareness means
- Training and procedures (administrative controls)
- PPE

2.2 MIL-STD-882D/SEMI

The order of precedence for mitigating hazards is given[2][3].

- Eliminate hazards through design selection

- Incorporate safety devices
- Provide warning devices
- Develop procedures and training

3. Purpose of a hierarchy of control

A hierarchy is any system of actions, things or persons ranked one above the other. For risk practitioners, a hierarchy of controls establishes the actions to be considered in a order of effectiveness to resolve unacceptable hazardous situations. Achieving an understanding of the significance and the rationale for this order is an important step in the continuing evolution of the practice of safety. For many situations, a combination of the risk management methods included in a hierarchy of controls may be applied.

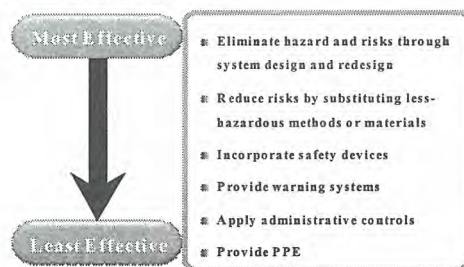


Fig. 2. Actions in order of effectiveness

4. The logic of taking action in an order of effectiveness for risk controls

Safety management requires that one establish the rationale for the order in which the list is presented. Actions described in the first, second and third levels are more effective.

4.1 Action - Level 1

If the hazards are eliminated in the design and redesign processes, risks that derive from those

hazards are also eliminated. The intent is to design to acceptable risk and to minimize the human action necessary in the work process. Examples include designing to eliminate hazards related to falls, ergonomics, confined spaces, noise and chemicals. If no hazards are present, there is no potential for harm, and, thereby, no risk.

4.2 Action - Level 2

By substituting less-hazardous methods or materials, risks can be substantively reduced. Examples include using automated materials handling equipment rather than manual materials handling; providing an automatic feed system to reduce machine hazards; using a less-hazardous cleaning material; and replacing an old steam heating system and its boiler explosion hazards with a hot air system. This reduces the need to rely on the actions of worker, although perhaps not to the same extent as designing out the hazard.

4.3 Action - Level 3

When safety devices are incorporated into the system or product in the form of engineering controls, risk can be reduced, as an reliance on the worker or product user's actions. Safety devices include machine guarding, interlock systems, presence-sensing devices, safety nets, fall prevention systems, and all devices and systems that separate hazardous energy from worker.

4.4 Action - Level 4

Warning systems, through vital in many situations, are reactionary. They alert worker only after a hazard's potential is in the process of being realized. Warning system effectiveness and the effectiveness of instructions, signs and warning labels rely considerably on administrative controls, training, and the quality of maintenance and worker's reactions.

4.5 Action - Level 5

Administrative controls include appropriate work methods and procedures, personnel selection, training, supervision, motivation, work scheduling, job rotation, scheduled rest periods, maintenance,

management of change, investigations, inspections and behavior modification. These controls rely on the appropriateness of the particular method in relation to needs, capabilities of those responsible for their delivery and application, quality of supervision and performance of workers. It is difficult to achieve a superior level of effectiveness in all these areas.

4.6 Action - Level 6

Proper use of PPE such as safety glasses, safety shoes, gloves and hearing protection rely on an extensive series of supervisory and personal actions, such as the identification of the equipment needed, and its selection, fitting, training, inspection and maintenance.

5. Conclusion

Ensuring that actions taken accomplish their intended goal is an integral step in an effective problem-solving technique. For safety management purposes, measuring for effectiveness requires verifying whether actions taken have truly reduced the risk to the level expected. If the residual risk is not acceptable, the thought process involved with the safety decision hierarchy must be reapplied, beginning with hazard identification and analysis process.

6. Acknowledgement

This work was supported by Nuclear Research & Development Program of the KOSEF grant funded by MEST.

7. References

- [1] American national Standard for Industrial Robots, ANSI/RIA, 1999
- [2] U.S. DOE Military Standard System Safety Program Requirement, MIL-STD-882D, 2000
- [3] Semiconductor Equipment and Materials International, SEMI, 2000

불용핵물질 저장 관리

황두성, 최윤동, 최휘경, 이규일, 정운수
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
dshwang@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서는 핵물질 투명성을 확보하고 핵물질 유출 가능성을 원천봉쇄하여 대외 신뢰도 향상을 위하여 여러 곳에 분산 보관 저장되어 있는 사용이 종료된 각종 핵물질을 체계적으로 통합 보관 저장을 위한 저장시설 건설이 요구되었다. 이에 따라 2009년 7월 공사를 완료하고, 사용을 위한 시설 사용전 검사를 2009년 7월에 신청하여 동년 8월에 교과부로부터 시설검사 적합 통보를 취득한 후 2009년 10월부터 시설을 운영 중에 있다.

2. 본론

우라늄 잔류물질 저장시설은 지상 1층 연면적 $172\text{m}^2(17 \times 12\text{m})$ UF₆ 실린더 전용저장고와 연면적 174m^2 의 지상 1층 및 지하 1층의 각종 불용핵물질 저장고로 구성되어 있다. 시설 내에는 불용핵물질의 저장을 위한 크레인이 설치되어 있으며, UF₆ 실린더 이송을 위한 전용 실린더 취급장치가 있다.

저장시설에 저장 중인 불용핵물질은 감손우라늄(DU)과 천연우라늄(NU) 물질이며 Fig. 1과 같으며, 저장량은 우라늄 기준으로 NU 3,424 kg, DU 156,484 kg 이다. 대표적인 불용핵물질로서는 감손 우라늄 물질인 UF₆가 있다. 1983년 자원 확보 일환으로, 경수로용 핵연료를 미국으로부터 수입하고, 남은 우리나라 소유 분 UF₆ 약 185 톤(총량기준)을 미국으로부터 도입한 바 있다. UF₆는 모두 15톤 크기 용기(48Y 실린더) 15개에 담겨져 있다. 그리고 핵연료 개발 등 여러 연구 과정에서 발생한 많은 양의 산화우라늄, 금속 및 합금우라늄 등이 있다. 이외에 우라늄 변환시설의 해체공사 중 발생한 공정 중 우라늄 물질 12 드럼과 라군슬러지 폐기물 처리를 통하여 발생한 고농도우라늄(약 15wt%) 함유 슬러지 처리후 폐기물 등 128드럼이 있다.

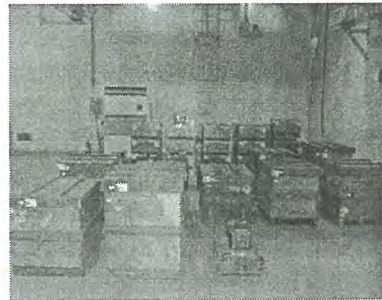


Fig. 1. Residual uranium storage status

불용핵물질은 물리화학적 특성에 따라 분류하여 지정된 포장 용기 내에 포장되어 있으며, 표준용기는 200L 드럼, 72 L 및 54 L 철제 박스, 철제 캐비닛, UF₆ 전용 실린더로 구성되어 있다.

불용핵물질의 안전한 저장관리 및 IAEA 사찰 및 국가검사를 위하여 Fig. 2와 같이 불용핵물질 저장 현황도를 작성하였으며, 향후 안전한 저장 관리를 위한 전산 체계 개발의 기초 자료로 사용할 예정이다.

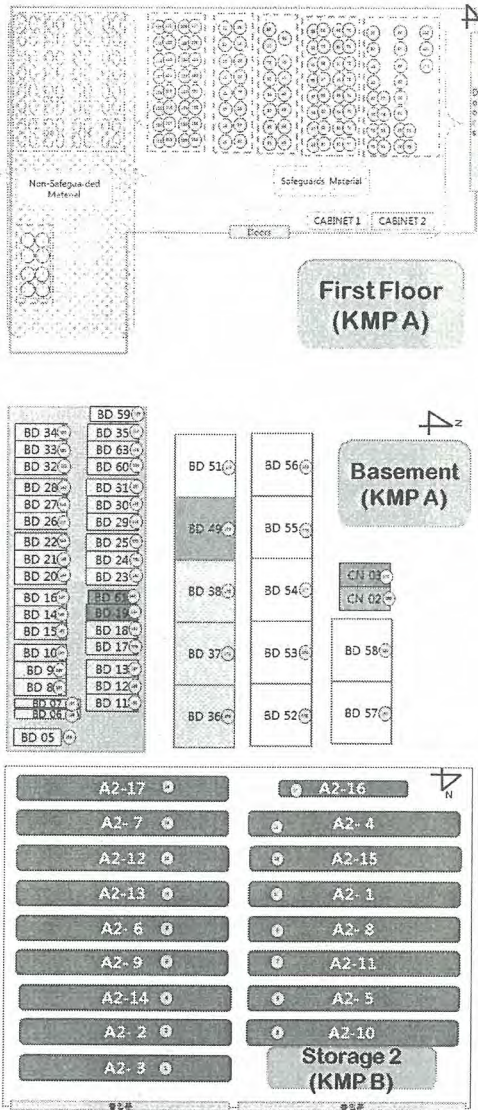


Fig. 2. Residual uranium storage mapping

한편 연구원 내에는 핵연료 및 방사선차폐체 개발 중에 발생한 감손우라늄 메탈칩을 저장 관리 중에 있다. 우라늄 메탈은 산소와의 반응성이 커서 입자가 작은 경우 자연발화가 일어날 수 있다. 따라서 우라늄 메탈칩은 오일이나 물속에 보관하고 있다. 연구원 내에서는 이를 처리하기 위해 지속적으로 연구 개발을 진행해 왔으며, Fig.3 과 같은 산소공급식 산화처리장치를 개발하여 새빛연료동에서 발생한 약 715kg의 우라늄 메탈칩을 처리하였다.

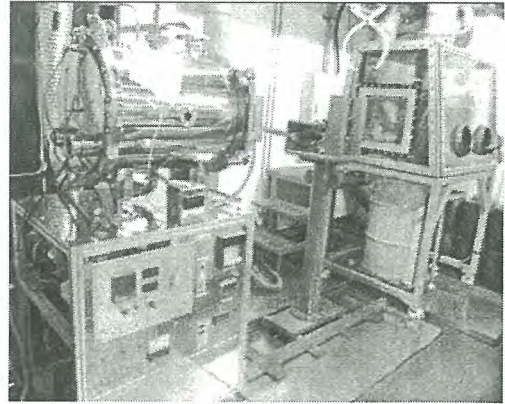


Fig. 3. Oxidation treatment equipment of uranium metal chip

현재 연구원 내에 저장 보관 중인 우라늄 메탈칩은 서울 연구로에서 발생하였던 것으로 그 양은 약 633kg이며, 이들은 슬러지 형태로 이루어져 있다. 이를 처리하기 위하여 메탈칩의 특성 조사와 산화 처리 효율을 높일 수 있도록 산화처리 장치를 개선 중에 있다.

3. 결론

한국원자력연구원 내 사용이 종료된 각종 불용핵물질의 대부분은 현재 통합 저장시설인 우라늄잔류물질저장시설에 안전하게 저장 중에 있으며, 효율적인 저장 관리를 위하여 전산체계개발을 진행 중에 있다. 또한 불용핵물질 중 우라늄 메탈칩과 같은 불안정한 핵물질의 안정화 처리를 위하여 처리장치 개발을 진행 중에 있다.

방사성토양 제염을 위한 동전기제염 기술 개발

김계남, 손동빈, 이승수, 이기원, 정운수, 박진호

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

kimsum@kaeri.re.kr

1. 서론

한국의 원자력시설 주변 부지에서 굴착하여 보관 중인 방사성 오염토양을 제염하기 위해 부지 특성에 적합한 동전기제염기술을 개발하였다. 짧은 제염기간 동안 최대 제거효율과 최소 폐액을 얻을 수 있는 50L 규모 동전기제염장치를 제작하고, 이 장치의 최적제염조건을 도출하고자 실제 방사성 토양을 사용하여 시간에 따른 코발트와 세슘의 제거효율을 측정하였다.

2. 본론

2.1 50L 장치제작

한국원자력연구원에서 보관중인 방사성 토양의 오염특성에 적합한 50L의 pilot 규모 동전기장치를 제작하였다[Fig. 1]. 제작된 50 L 동전기장치는 아크릴 토양셀, 두개의 전극실, 세정제 저장조, 폐액

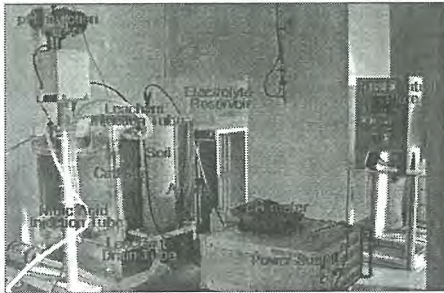


Fig. 1. Manufactured 50 L electrokinetic decontamination equipment

저장조, pH 조정조 그리고 Power supply로 구성되고 오염토양이 차 있는 아크릴 토양셀의 크기는 44×62×64cm이며 여과 막은 전극간과 오염토양 사이에 위치하여 오염토양으로부터 이동하는 공극수에 포함된 토양입자의 방출을 방지하고, 세정제 저장조는 세정제 용액을 토양셀로 공급하고, pH 조정조는 음극실의 pH상승을 제어한다.

2.2 문제점개선

제작된 50L 동전기장치를 시운전하였을 때 3가지 문제점이 발생하였다. 첫 번째는 pH 조정조에 음극의 pH 상승을 저지하기 위해 높은 농도의 HNO_3 를 넣어 음전극실로 천천히 흘러들어가게 했는데 아크릴로 만든 pH 조정조가 높은 농도의 HNO_3 에 의해 녹아서 HNO_3 가 흘러나오는 입구를 막아버림으로 pH 조정조의 재질을 PVC로 바꾸어 다시 제작하였다. 두 번째는 여과 막을 지지하는 철망 STS 304가 높은 전압과 높은 농도의 질산 때문에 음전극실 철망의 상부가 녹아내렸으므로 PVC로 바꾸어 다시 제작하였다. 세 번째는 동전기 시험을 위해 power supply를 이용하여 양극과 음극 사이의 전류밀도를 10 mA/cm^2 으로 주었을 때 실험실 규모 실험결과를 근거로 예상했던 전압보다 높은 전압이 발생했다. 그러나 시험시간이 경과하여 장치내의 오염토양이 전류체로 변하며 전압이 점차 감소하여 약 2일 경과후 예상했던 10V 이하로 낮아져 문제가 해결되었다.

2.3 제염실험

제작된 50L 동전기장치를 이용하여 방사성오염 토양에 대한 제염효율을 평가한 결과 Fig. 2와 같이 코발트는 10 mA/cm^2 하에서 초기 코발트와 세

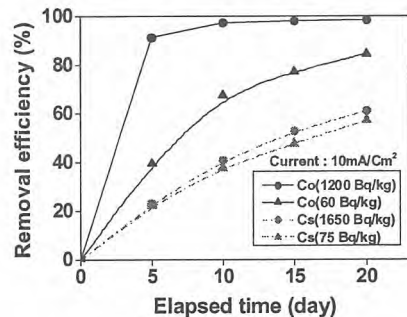


Fig. 2. Removal efficiency along the decontamination elapsed time for different radioactivity concentrations in radioactive soil

습의 농도가 다를 때 20일간 동전기제염 수행 후 제염결과를 비교한 것이며, 초기의 농도가 클 때 제거효율이 높았고, 초기의 농도가 클 때 코발트의 제거효율은 세슘의 제거효율보다 증가 폭이 컸다.

Fig. 3는 동전기장치의 토양셀 내에 주입한 방사성토양의 평균입도가 다를 때 20일간 전기화학제염 수행 후 제염결과를 비교한 것이며, 토양의 평균입도가 클 때 제거효율이 높았고, 토양 평균입도가 0.6 mm에서 1.2 mm로 증가했을 때 세슘의 제거효율은 약 2% 증가하였다.

Fig. 4는 동전기장치 토양셀 내에 가해진 전류밀도의 변화에 따른 20일간 전기화학제염 수행 후 제염결과를 비교한 것이며, 토양셀 내의 전류밀도가 클 때 제거효율이 높았고, 전류밀도가 10 mA/cm²에서 20 mA/cm²로 증가시켰을 때 세슘의 제거효율은 약 2% 증가하였다.

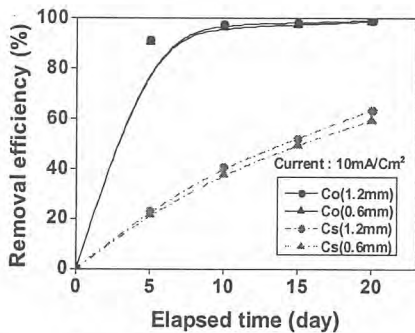


Fig. 3. Removal efficiency along the decontamination elapsed time for different particle sizes of radioactive soil

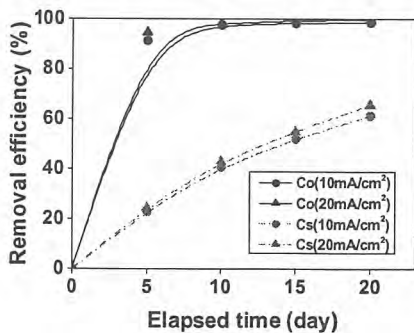


Fig. 4. Removal efficiency along the decontamination elapsed time for different electric currents in a soil cell

3. 결론

원자력시설 주변 방사성토양의 오염특성에 적합한 50L규모의 동전기제염장치를 제작하고 최적제염조건을 도출하였다. 즉, 초기의 농도가 클 때 코발트의 제거효율은 세슘의 제거효율보다 증가 폭이 컸다. 토양 평균입도가 0.6 mm에서 1.2 mm로 증가했을 때 세슘의 제거효율은 약 2% 증가하였다. 전류밀도가 10 mA/cm²에서 20 mA/cm²로 증가시켰을 때 세슘의 제거효율은 약 2% 증가하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 한국정부가 지원하는 한국과학기술재단의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] G. N. Kim, Y. H. Jung, J. J. Lee, J. K. Moon and C. H. Jung, "An analysis of a flushing effect on the electrokinetic-flushing removal of cobalt and cesium from a soil around decommissioning site", Separation and Purification Technology 63 pp. 116-121 (2008).
- [2] G. N. Kim, W. Z. Oh, H. J. Won and W. K. Choi, "Removal of cesium and cobalt from soil around TRIGA reactor using electrokinetic method", J. Ind. Eng. Chem., 9(3), pp.306-313(2003).pp. 263-277(2003).

연구로 해체 기술 평가

박승국, 지연희, 박진호, 정운수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150-1

skpark2@kaeri.re.kr

1. 서론

국내 최초의 원자력시설인 연구로 1,2호기의 해체사업의 수행에 적용된 제염 및 해체 기술에 대해 평가하고 분석하였다. 제염 및 해체 기술의 평가에는 주로 투입된 장비의 특성에 맞게끔 적용된 기술의 분류를 기준으로 하였다. 이 평가 연구에는 DECOMMIS (DECOMMis Information System, 해체정보관리 시스템)에 입력되고 처리된 자료들이 활용되었다. 총 투입된 장비 및 기술에 활용된 시간은 46,920 시간으로 평가되었다. 이는 연구로 해체사업에 총 10년이 소용된 것으로 기준할 때 2배에 해당하는 시간으로서 원자력시설의 제염, 해체 활동에는 장비를 활용한 활동의 비중이 큰 것을 알 수 있었다. 또한 해체 현장에 투입된 해체작업종사자들의 총 투입시간 74,153 시간(man-hours)의 63.3%에 해당되는 것으로 대부분 장비를 이용한 해체활동이 수행되었음을 알 수 있었다.

2. 본론

서울 공릉동에 위치하고 있는 연구로 1,2호기의 해체사업이 종료되었다. 이는 국내에서는 최초로 수행된 원자력시설의 제염, 해체활동이며 이사업은 한국원자력연구원에 의해 직영형태로 수행되었다. 1998년부터 해체설계, 해체계획서 작성, 인허가 취득을 통해 2001년 6월부터 본격적인 해체활동이 시작되어 2008년 말까지 연구로 2호기와 동위원소생산을 위한 부속시설, 그리고 주변시설들의 해체가 수행되었다. 원자력시설의 수명 종료에 따른 해체활동에서 주된 공정은 해체 대상물의 제염 및 해체이다. 해체 대상물 중 오염 또는 방사화된 구조물은 대부분 본체로 부터의 제거, 절단 및 파쇄 공정으로 수행된다. 오염정도가 낮거나 방사능이 약해서 접근성이 용이하고 해체 대상물이 수작업으로 취급될 정도의 중량물은 수작업공구를 이용한 제염과 해체가 이루어졌다. 높게 방사화 되었거나 심하게 오염된 대상물의 제

염 및 해체에는 원격 장비 또는 long reach tool을 활용하였다. 원자력시설의 해체기술은 이번 연구로 해체사업을 통하여 처음으로 적용, 실증되는 기술들이 많다. 일반 산업현장에서 기 적용되었던 기술이나 장비들도 많이 활용되었다. 그러나 운영 및 적용대상이 원자력시설로서 오염된 시설 또는 구조물이고 해체 및 제염 활동 중에 생태계로의 오염 확산을 방지해야만 하는 조건에서의 장비의 활용 및 기술의 적용은 많은 어려움을 수반하였다. 장비의 운영자들의 과다피폭 방지를 위해 작업시간에 대한 제약과 해체장비의 작동 중 필수적인 2차 오염폐기물의 확산을 방지하기 위한 추가 설비의 설치 및 운영이 필수로 대두되었다. 해체기술은 크게 절단기술 및 파쇄기술로 크게 구분할 수 있다. 다음 표1에 이를 구분하여 나타내었다.

Table 1. Description on the dismantling technologies and equipments

구분	대상	기술	장비
절단기술	금속류	Frame cutting, Plasma cutting, Hydraulic Under waster cutting, Band sawing, Nibbler cutting, Wheel sawing, Arc torching	Frame cutter, Plasma arc torch, Hydraulic cutter, Band saw, Nibbler, Hydraulic & Electric wheel saw, Long reach tool, Arc torch
파쇄기술	콘크리트류	Core drilling, Hammer drilling, Diamond wire cutting, Wheel sawing, Breaking, Crushing,	Diamond core drill, Diamond wire saw, Wheel saw, Hydraulic & Electric breaker, Hammer drill, Back hoe+ crusher, bucket, breaker,

대부분의 해체는 절단기술에 의해 수행되었다. 대상물이 금속류이거나 비가연성 고체일 경우에 이 기술이 적용되었다. 금속류의 절단에는 기본적으로 frame cutting이 적용되었다. frame cutting은 오염도가 낮은 대상물의 절단에 용이하고 자력증을 소지한 작업자가 많고 산소와 아세틸렌의 제

료비가 비교적 저렴한 것이 특징이다. 방사화가 높거나 오염이 많이 된 대상물의 해체에는 plasma arc torch를 long reach tool에 접목하여 활용되었다. 원자로 수조내 있는 대상물들은 원격으로 작동되는 hydraulic cutter를 수중에서 작동시켜 절단하였다. 이 기술이 적용되는 장비는 수조내 각종 배관류와 원형구조물을 절단할 수 있는 것과 평평한 형태의 대상물을 절단할 수 있는 가위형태인 것이 있다. 원자로심의 shroud는 가위형태의 cutter를 사용하여 세절까지 수행한 후 수조 내에서 차폐용기에 장입하였다. 배관류의 2차 절단인 세절에는 band saw 등이 활용되었고, 탱크류의 절단에는 일부 nibbler가 시도됐으나 두께가 두껍고 이음매 때문에 성공하지 못하였다. 수조 라이너를 제거하기 위한 wheel saw와 일반 전기용접기에 의한 절단 해체도 시행되었다. 다른 대표적인 해체 기술은 파쇄공법이다. 이는 주로 대상물이 콘크리트로서 diamond core bit와 diamond wire를 함께 사용한 대형구조물의 절단과 원형비트를 사용한 코어 드릴링, 그리고 소형 해체대상 콘크리트 구조물일 경우에 적용된 hammer drill이나 hydraulic breaker 등이 있다. 원자로 수조콘크리트 중 최후 방사화 콘크리트의 해체에는 back hoe에 장착된 crusher를 활용한 파쇄 기술이 적용되었다. 여러 번의 실험을 통해 특수하게 제작된 diamond core bit를 사용한 빔포트 코어 드릴링 절단 기술은 국내에서는 처음으로 원자력시설을 대상으로 400mm 이상의 대구경의 드릴링 기술을 적용하여 수행한 대표적인 성과로 나타낼 수 있다. 제염 기술은 대부분 오염된 설비 및 건물에 적용되었다. 금속류에 대한 2차 제염에는 초음파 제염, 화학 제염 및 고압 수증기 제염 등이 적용되었다. 콘크리트 제염 대상물에는 scabblers, pinning 및 grinder와 같은 장비를 vacuum system과 혼용하여 사용하는 기술이 적용되었다. 제염, 해체 적용기술의 평가에는 해체 정보관리 시스템, DECOMIS가 활용되었다. 이 DB시스템은 해체작업, 해체 폐기물관리, 해체 방사선안전관리 및 해체 품질관리 등 해체 활동에서 발생하는 모든 정보 및 자료를 입력 및 요구에 따른 처리와 출력을 할 수 있도록 개발되었다.



Fig. 1. Technologies on the cutting & dismantling

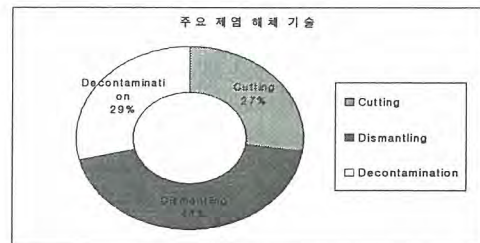
3. 결론

제염 및 해체 기술 평가는 대상물에 대해 장비 및 기술력이 투입된 시간으로 평가되었다. 투입되고 활용된 시간은 다시 장비 및 해체 기술의 특성에 따라 세분되었다. 이러한 자료를 활용하여 전체 및 부분적으로 해체 대상물의 특성에 맞추어 장비 및 기술이 적용되었음을 평가하였다.

총 발생된 해체 폐기물 2,580톤 중 주로 간접 발생 폐기물인 가연성 및 잡고체 폐기물을 제외한 나머지 2,537톤의 폐기물이 제염, 해체 활동을 통해서 생산된 해체폐기물이며, 이들 제염, 해체 활동에 대부분의 장비 및 해체 기술이 적용되었다. 총 46,920 시간 동안 장비를 사용한 해체 기술적용 중에 44%인 파쇄 해체 기술이 제일 많이 사용된 것과, 이는 절단 해체 기술에 비해 약 1.6 배가 더 적용된 것을 다음 표 2 에서 알 수 있었다.

Table 2. Evaluation on the applying time of the technology

절단해체기술	사용시간 (hr)	파쇄해체기술	사용시간 (hr)
Plasma cutting	2,294	Diamond core drilling	5,304
Hydraulic underwater cutting	1,322	Concrete breaking	3,007
Electric band sawing	1,914	Hammer drilling	4,685
Wheel sawing	809	Diamond wire sawing	5,716
Long reach cutting	288	Hydraulic core boring	805
Arc torching	1,836	Back hoe+crushing	979
Frame cutting	4,354		
Sum	12,815	Sum	20,495



GRR-1 일차냉각계통 해체계획 수립

정제훈, 박정수, 이병식, 백춘선

한국전력기술(주), 경기도 용인시 기흥구 마북동 360-9

amagedon@kopec.co.kr

1. 서론

본 논문에서는 그리스 연구용 원자로(Greek Research Reactor (이하 GRR-1))의 일차냉각계통 교체사업에서 수행하고 있는 기존 일차냉각계통에 대한 해체계획 수립 내용을 제시하고자 한다. GRR-1은 그리스 아테네 중심에서 12km 떨어진 국가과학연구센터 ‘데모크리토스’ (National Center for Scientific Research “Demokritos” (이하 NCSR “D”)) 내에 위치하고 있다. 최초 핵심계는 1961년 7월 달성하였고 운전은 1964년 4월에 개시하였다. 정격출력은 1MW였으나 1970년도에 주요 계통을 개선하여 1971년 6월부터 5MW로 운전하였으며 현재는 휴지 중이다.

GRR-1 일차냉각계통 교체사업의 목적은 기존의 5MW인 출력을 10MW로 승격하기 위하여 일차냉각계통을 10MW로 교체하는 것이다. 총사업기간은 2009년 6월부터 24개월로 모두 4단계로 되어 있다. 1단계에서는 원자로수조 라이너의 검사 및 보수, 기존 일차냉각계통의 개념설계 등을 수행하고, 2단계에서는 기존 일차냉각계통의 해체 검토 및 해체계획서 권고안 작성, 기존 일차냉각계통 교체에 위한 사전토목작업과 신규 일차냉각계통 예비설계를 수행하며, 3단계에서는 기존 일차냉각계통 해체작업 감독, 신규 일차냉각계통 최종설계, 구매시방서, 시공시방서 및 관련 절차서 작성 등을 수행하고, 마지막 4단계에서는 제작 및 구매, 설치, 시험, 시운전 등을 수행할 예정이다.

GRR-1 일차냉각계통 해체는 국내 TRIGA 연구로 1&2호기와 우라늄변환시설 해체경험을 바탕으로 해체계획을 수립하고 해체계획서 권고안을 작성하여 NCSR “D”에 제출하였다.¹

2. 본론

2.1 적용 법규 및 표준

본 사업의 적용 법규 및 표준은 IAEA 기준을

우선적으로 적용하였고 유럽표준(EN)과 유럽전기통신표준(ETS) 등의 유럽연합의 법규 및 표준과 전세계적으로 통용되는 미국기계학회(ASME) 표준을 적용하였다. 방사선방호기준은 유럽원자력공동체(EURATOM)의 기준과 일치하는 그리스 자국법을 적용하였다. 그러나 해당 법규나 표준을 적용할 수 없는 항목은 미국연방법과 국내법을 일부 적용하였다.

2.2 해체계획 수립시 주요 고려사항

일차냉각계통의 해체계획 수립시 주요 고려사항은 작업구역의 방사학적 상태, 상세해체방안, 작업자의 보건 및 안전과 환경 및 대중에 대한 방사선방호, 물리적 보안 및 방사성물질 계량 통제, 방사성폐기물 관리, 작업일정 관리와 품질보증 등이다. 그 중에서 가장 중요한 고려사항은 시설의 방사학적 상태인데, 최초 원자로수조 표면측정보고서에 의하면 제어봉은 18 Sv/hr, 노심과 연결된 그리드 플레이트는 1.2 Sv/hr, 3번 빔포트는 21.2 mSv/hr, Thermal Column (T/C) 전면부의 납차폐판은 5.5 mSv/hr이다. 또한 고방사선 상태의 제어봉, 노심 및 그리드 플레이트 등은 이동 및 차폐보관한 후의 표면측정보고서에 의하면, T/C 상부와 측면부가 2 mSv/hr로 가장 높고 그 주변은 0.1~1.2 mSv/hr 정도이다. 따라서 T/C 주변을 차폐 후 해체작업을 할 경우 심각한 문제는 없을 것으로 보인다. 그 외의 고려사항은 해체작업시 고려해야 할 일반적인 것들이다.

2.3 일차냉각계통 해체계획 수립

2.3.1. 해체대상 설명

해체대상은 일차냉각계통과 연계된 원자로수조 내부의 일부 기기, 일차냉각계통 및 일차정화계통이다. 그 중에서 방사학적으로 가장 중요한 해체대상은 원자로 수조 내부의 플레퍼와 출구배관인데, 출구배관은 해체대상에서 제외하기로 논의 중에 있어서 플레퍼 작업시만 방사선 피폭에 주의하면 된다. 대부분의 해체물은 일차냉각계통의 기기 및 배관인데 구성을 살펴보면 Fig. 1과 같다.

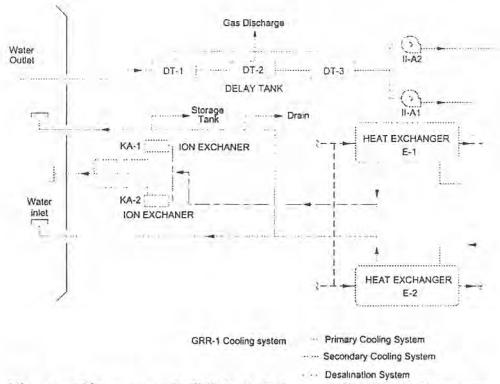


Fig. 1. Diagram of GRR-1 Primary Cooling System

일차냉각계통은 원자로수조 내외부, 펌프실 출입 터널, 펌프실, 열교환기실과 지연탱크실 내의 배관, 밸브 및 계측기기와, 2기의 열교환기, 2기의 펌프, 3기의 지연탱크, 펌프실 전용 덕트 등으로 구성되어 있다. 또한 일차냉각계통에 부착된 일차 정화계통에는 이온교환기 및 필터가 2계열로 설치되어 있으며 정화된 냉각수를 직접 원자로수조로 공급하도록 되어 있다.

2.3.2 일차냉각계통 해체계획 수립

일차냉각계통의 해체계획의 상세작업은 장비 이동, 인력 충당 등의 준비작업, 원자로수조 내부의 설비와 배관 제거, 원자로수조 외부의 설비와 배관 제거, 지연탱크 내부 액체 제거, 지연탱크 제거, 열교환기 내부 액체 제거, 열교환기 제거, 이온교환기와 덕트 등의 기타 설비 제거, 제염, 방사선조사 등으로 구성하였다.

2.3.3 방사선방호

방사선방호에 대한 법규 및 표준은 IAEA기준, ICRP 60과 그리스 자국법 등을 따른다. 방사선방호 업무는 방사선관리구역 내의 모든 해체활동에 대하여 작업자의 안전을 보장하고 ALARA 원칙에 따라 방사선에 의한 대중과 환경의 영향을 합리적으로 최소화하기 위해 작업자 피폭 최소화, 방사선작업허가서(RWP) 관리, 부유물에 의한 방사학적 위험을 완화하기 위한 호흡 방호, 방사성 물질의 통제 및 저장 등을 수행한다. 또한 보건물리 프로그램을 수립하여 보건물리장비와 계측기기의 보관, 교정, 시험 및 유지, 외부유출방사능의 감시, 방사선조사, 작업자 피폭 관리, 오염물질 통제, 출입관리, 부유방사능 감시 등을 수행한다. 또한 작업자의 해체활동별 피폭선량을 평가한다.

2.3.4 방사성폐기물 관리

방사선관리구역 내 해체작업에서 발생하는 해체물은 모두 방사성폐기물로 간주하며 IAEA 방사성폐기물 분류기준은 IAEA Safety Standards Series No. 111-G-1-1에 따라 고준위, 장수명 중저준위, 단수명 중저준위, 규제면제로 분류한다. 운반은 IAEA Safety Standards Series No. RS-ST-1에 따라, 저장은 IAEA Safety Standards Series No. WS-G-6.1에 따라 관리한다. 규제면제 농도기준은 IAEA Safety Standards Series No. RS-G-1.7의 기준에 따른다.

2.3.5 최종방사선조사

GRR-1 관리구역은 일차냉각계통을 교체 설치 후 역시 방사선관리구역으로 사용할 예정이므로 최종방사선조사는 필요치 않다. 단, 노후화된 강관구조물로 된 열교환기실은 내부 기기 및 배관을 해체하고 다른 용도로 사용하기 위해 최종방사선조사를 MARSSIM(NUREG-1575)²의 절차에 따라 실시한다.

3. 결론

GRR-1 일차냉각계통 해체는 GRR-1을 10MW로 승격시키기 위한 일차냉각계통 교체사업의 일부로서 국내 TRIGA 연구로 1&2호기와 우라늄변환시설 해체경험을 바탕으로 IAEA와 ICRP 기준, 유럽연합 법규 및 표준, 그리스 자국법, 미국연방법 등에 따라 해체계획을 수립하였다. 해체계획 수립시 중요하게 고려한 것은 고방사선작업에 의한 작업자의 안전과 대중 및 환경에 대한 영향의 최소화, 방사성폐기물의 안전한 관리, 작업일정의 준수 등이며 성공적인 해체를 수행할 것으로 기대한다.

4. 참고문헌

- [1] 한국전력기술(주), Recommendation for the Decommissioning Plan of the Old Primary Cooling System, 2010. 2
- [2] U.S. NRC, Multi-agency Radiation Survey and Site Investigation Manual(MARSSIM), NUREG-1575, 1994

미국 에너지부(DOE) 방폐물관리시설 표준의 국내 적용성 분석

손명성, 김안섭, 나진수*, 이병식*

대한전기협회, 서울특별시 중구 도기전길 45

*한국전력기술(주), 경기도 용인시 기흥구 용구대로 257

mssohn@kepic.or.kr

1. 서론

우리나라 중·저준위 방사성폐기물 관리시설의 건설 공정이 50%를 넘어선 상황에서 방사성폐기물 관련 법령상의 안전규제기준을 만족하고, 방사성폐기물 처분시설의 효율적이고 안전한 관리를 통해 지역주민과 국민 모두에게 신뢰를 얻을 수 있는 관리체제를 구축하기 위해서는 방사성폐기물 관리시설의 건설 및 운영과 관계되는 상세 기술표준을 조사하여 우리나라의 실정에 적합한 표준을 적용하는 것이 필요한 상황이다.

따라서 본 연구에서는 미국 에너지부(DOE: Department of Energy)의 방폐물관리시설 기술지침 및 기술표준의 내용을 분석하여 우리나라의 적용성을 검토 및 분석하였다.

2. US DOE 표준의 적용성 검토

2.1 US DOE 현황

미국의 DOE는 DOE의 원자력시설에서 발생되는 사용후핵연료, 고준위 폐기물, 초우라늄폐기물, 저준위 폐기물의 처리, 중간저장 및 최종 처분에 대한 책임을 가진 정부기관이지만 NRC(Nuclear Regulatory Committee)와 EPA(Environmental Protection Agency)의 안전규제를 받고 있는 사업자로서 관련 연방규제법규 및 안전규제지침을 만족하는 폐기물관리를 위한 기술지침(Manual, Guide) 및 기술표준(Technical Standard)을 개발하여 적용하고 있다.

2.2 적용성 검토

US DOE의 방폐물관리시설 관련 기술지침 및 표준은 M(Manual), G(Guide), O(Order), STD(Standard) 등으로 구분되며, 중·저준위 폐기물 관리시설에 적용되는 표준 목록을 표 1에 수록하였다.

Table 1. US DOE Guides and Standards

분류	번호	제목
Manual	M 435.1-1	Radioactive Waste Management Manual
	M 460.2-1A	Radioactive Material Transportation Practices Manual for Use with DOE O 460.2A
Guide	G 435.1-1	Implementation Guide for use with DOE M 435.1-1 (Radioactive Waste Management)
	G 420.1-1	Nonreactor Nuclear Safety Design Criteria and Explosive Safety Criteria Guide for use with DOE O 420.1 Facility Safety
	G 420.1-2	Guide for the Mitigation of Natural Phenomena Hazards for DOE Nuclear Facilities and NonNuclear Facilities
	G 420.1-3	Implementation Guide for DOE Fire Protection and Emergency Services Programs for Use with DOE O 420.1B, Facility Safety
	G 450.1-1A, 2, 3, 4, 5, 6, 9	Implementation Guide for Use with DOE O 450.1 (Environmental Protection Program)
	G 460.2-1	Implementation Guide for Use with DOE O 460.2 (Radioactive Material Transportation)
Standard	DOE-STD-10 20-2002	Natural Phenomena Hazards Design and Evaluation Criteria for Department of Energy Facilities (DOE-STDs-1021, 1022, 1023)
	DOE-STD-10 66-99	Fire Protection Design Criteria
	DOE-STD-10 90-99	Hoisting and Rigging

2.2.1 US DOE Manual

M 435.1-1은 고준위, 초우라늄, 저준위 및 혼합 저준위 방폐물 관리에 적용되는 것으로 DOE의 관련 조직 및 계약자들이 작업자 및 일반인의 안전을 확보하고 환경보호를 위해 취해야 할 절차상의 요건 및 관행을 규정하는 것이다. 이 매뉴얼은 폐기물 정의, 폐기물의 관리 및 기본요건, 사고 조치, 수명주기 관리계획 수립, 폐기물 인수/인증/이송, 포장 및 수송, 부지선정 및 시설의 설계, 저장, 처분, 감시 등 방폐물 관리 전반에 대한 사항을 명확하게 제시하고 있어 방폐물 관리시설의 운영 전반에 대한 기반이 되는 관련 기준 정립에 참조할 수 있는 좋은 표본이다.

M 460.2-1A는 방사성물질의 운송 기준을 규정하는 것으로 운송계획 수립, 비상계획 수립, 운송 경로 설정 및 보안, 운송수단 요건, 운송과정 추적, 검사, 사고 시의 후속조치 등에 대한 기준을 제시하고 있어 방사성폐기물의 운송 전반에 대한 기준 수립에 참고할 수 있다.

2.2.2 US DOE Guide

G 435.1-1은 DOE M 435.1-1 요건의 이행을 위한 구체적인 방법을 제시하는 것이다. 이 지침은 DOE M 435.1-1 요건의 목적, 예시를 포함한 이행 방법, 요건에 대한 추가 참고자료 등을 제시하고 있는 것으로 방폐물관리시설의 부지선정, 설계, 건설, 및 운영 전반에 대한 기반이 되는 관련 기준 정립에 참조할 수 있는 좋은 표본이다.

G 420.1-1은 원자로를 제외한 원자력시설의 설계 및 건설에 있어 원자력 안전성 측면에서 산업 기술기준을 선정하여 적용하는 방법을 제시한다. 이 지침은 안전설계가 안전성분석 및 기술적 판단의 품질에 달려 있다는 것을 강조하고 있으며 원자력 안전설계 개념 및 요소, 기능상의 설계기준, 계통, 구조물 및 기기의 설계 및 건설 기준을 제시하고 있다. 이 지침은 DOE가 관련 시설의 안전성 확보와 인허가 취득을 위해 제정한 것으로 WIPP 등 관련 시설에 적용하고 있다. 또한 NRC와 EPA의 안전규제기준과 산업 표준의 명확한 연계성을 제시하므로 관리시설 설계 및 건설 관련 기준 정립에 참조할 수 있는 좋은 표본이다.

G 420.1-2는 원자력시설 및 비원자력시설의 자연재해 경감을 위한 지침을 제시한다. 시설의 자연재해 경감을 위한 단계적 접근 방법, 자연재해 방지 설계, 자연재해 평가, 지진의 감시, 자연 재해 이후의 시설에 대한 검사 절차 등을 제시하는 것으로 자연재해에 대비한 방사성폐기물 관리시설의 설계, 운영, 안전성 평가와 관련한 기준 정립에 참조할 수 있는 좋은 표본이다.

G 420.1-3은 화재로 인해 시설의 내부 또는 외부로 위험 물질 또는 방사성물질이 방출되어 작업자 및 일반인과 환경에 부적절한 영향을 미치는 것을 방지하고 시설의 계통, 구조물 및 기기에 대한 손상을 최소화하기 위한 화재예방 프로그램 수립 및 이행에 필요한 지침을 제시하는 것으로 방폐물 관리시설의 화재예방 설계 및 프로그램 운영 관련 기준 정립에 참조할 수 있다.

G 450.1-1A 시리즈는 원자력 시설의 운영과 관련한 자연화재 방지 및 대응조치, 공해방지, 지하수 오염 방지 및 감시를 위한 지침을 제시한다. 방사성폐기물 관리시설의 운영에 따른 환경보호 프로그램의 수립에 참조할 수 있다.

G 460.2-1은 방사성폐기물의 운송과 관련한 세부 지침을 제시하는 것으로 DOE M 460.2-1A와 함께 방사성폐기물의 운송 전반에 대한 기준 수

립에 참고할 수 있다.

2.2.3 US DOE Standard

DOE-STD-1020은 DOE G 420.1-1의 이행을 위한 상세 설계 및 평가기준을 제시하는 것으로 관련 산업 기술표준(ASME, IEEE 등)과 함께 적용하도록 규정하고 있다. 이 기술표준은 자연재해에 대비한 방사성폐기물 관리시설의 설계, 운영, 안전성 평가와 관련한 상세 기준 정립에 참조할 수 있는 좋은 표본이다.

DOE-STD-1066은 화재로 인한 시설의 내부 또는 외부로 위험 물질 또는 방사성물질이 방출되어 작업자 및 일반인과 환경에 부적절한 영향을 미치는 것을 방지하고 시설의 계통, 구조물 및 기기에 대한 손상을 최소화하기 위한 화재예방 설계기준을 제시한다. 화재방호 일반 설계기준, 소방수 공급계통 설계기준, 구조적 화재방호 설계기준, 인명 안전 설계기준, 전기설비 설계기준, 유도 가스에 대한 방호 설계기준, HEPA필터 등의 배치설계 및 설치기준 등 방폐물관리시설의 화재예방 설계 및 화재예방 프로그램 운영과 관련된 기준 정립에 참조할 수 있다.

DOE-STD-1090은 원자력시설에서 방사성물질을 인양, 이송하기 위한 설비의 설계 및 운영에 고나한 상세 기준을 제시하는 것으로 방사성폐기물 관리시설의 폐기물 인양, 이송 등에 관한 기준 정립에 참고 할 수 있다.

3. 결론

DOE의 기술지침 및 기술표준은 안전규제요건을 만족하는 동시에 구조 설계, 기기 및 부품의 설계/제작, 재료, 화재예방 등 산업계 표준과의 연계성을 명확하게 제시하고 있으므로 방사성폐기물 관리시설의 건설, 운영과 관련된 표준의 적용에 있어 일관성을 도모할 수 있어 방사성폐기물 관리시설의 종합적이고 일관된 표준 적용을 위한 기반표준(governing standard)을 제정하기 위한 모델로 적절하다.

우리나라는 방폐물 계통설비에 관한 전력산업기술기준(KEPIC: Korea Electric Power Industry Code)을 운영중이지만, 관리시설에 관한 표준이 정립되지 않은 상태이므로 DOE 지침 및 표준에 우리나라의 실정을 반영하여 KEPIC으로 개발하는 것이 필요하다.

방사성물질 사용시설 해체 계획 수립 및 수행시 안전성 평가 활용에 대한 국제 동향 분석

정관성, 이근우

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

ksieong1@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성 물질을 사용하는 모든 시설들은 수명기간 동안 안전성이 입증되어야 하므로 각국의 법령 및 국제적으로 합의된 권고안에 의하여 해체 계획수립과 작업수행에 있어서 안전성 평가는 기본적으로 수행되어야 한다. 해체활동에 대한 계획 수립, 수행, 통제 등에 참여하는 운영자, 규제자 및 기타 전문가들에게 도움을 주기 위하여 국제원자력기구(IAEA)는 2004년 11월부터 2007년 12월까지 30개 회원국 100 여명(적극적인 참여 50명)의 전문가들이 참여하여 ‘원자력시설의 해체시 안전성 평가(evaluation and demonstration of safety during decommissioning of nuclear facilities, DeSa)’에 대한 프로젝트를 수행하였다. DeSa 프로젝트의 결과를 유용하게 활용하기 위하여 회원국들의 요청에 의해 FaSa(Use of Safety assessment in planning and implementation of decommissioning of facilities using radioactive material) 프로젝트를 시작하게 되었다.

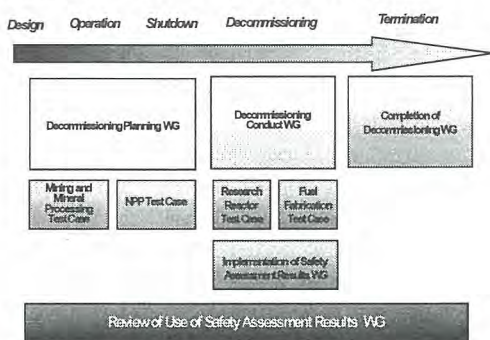


Fig. 1. FaSa project

2. 본론

2.1 FaSa 프로젝트 활동 내용

FaSa 프로젝트의 기본 목표는 해체 계획수립과

작업수행 시 안전성평가의 활용에 대하여 현실적이고 유용한 권고사항들을 제공하는 것이다. 이러한 분야들은 DeSa 프로젝트에서 간단하게 논의되었거나 전혀 설명되지 않았다. 해체계획 수립부터 시설 및 부지의 규제해제까지 전 기간 동안 안전성 평가의 활용에 대한 국제적 합의 권고안 개발과 DeSa 프로젝트 결과의 강화가 이 새로운 프로젝트의 목표이다. FaSa 프로젝트는 권고안을 제공하고 해체 전주기(계획, 규제, 수행 및 종료)에 참여한 시설 운전자, 기술자, 규제자 및 기타 전문가들에게 이러한 권고안들의 실증을 제공하고 자 한다.

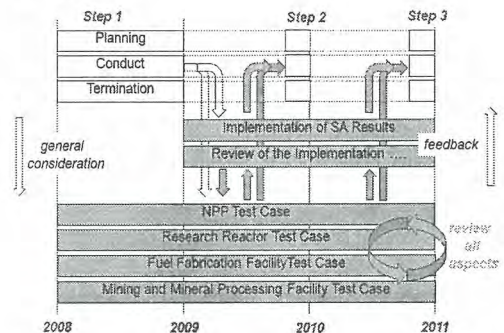


Fig. 2. Main phases of the FaSa working groups activities

FaSa 프로젝트의 특정 목표는 회원국들의 경험과 좋은 사례들을 조사하고 이것을 바탕으로 다음 사항들에 대한 권고안을 개발하는 것이다.

- 안전성 평가 방법론 및 결과의 활용과 초기 안전성 평가에 의한 해체계획 수립 그리고 모든 해체활동에 대한 안전성 평가 및 관리
- 해체 절차에 있어서 안전성 통제 수단들의 정의 및 현장 적용에 안전성 평가의 활용과 안전 기준 준수를 위해 해체 단계에 이들의 확대적용. 변경된 시설 상태의 관리와 안전성 평가 범위 밖의 잠재적 위험성에 관한 권고안

- 시설의 수명주기(운전개시, 운전, 운전중지, 해체) 전 기간 안전성 평가, 해체계획 및 안전성 관련 문서 작성에 안전성 평가 결과의 적용 그리고 해체 관리에 있어서 등급화된 방법 적용
- 안전성 평가의 운전자에 의한 내부 검토, 운전자를 제외한 독립적 검토 및 규제 검토를 위한 방법론/접근방법에 대한 권고안과 이들의 시설 수명주기 동안 효과적인 적용 및 관리. 주기적 안전성 검토의 범위, 목표 및 활용과 산업 안전성 통제를 위한 규제요건의 통합뿐만 아니라 해체 프로젝트 모든 단계에서 안전성 최적화 실증
- 회원국들이 자발적으로 참여한 원자력시설에서 해체 활동에 대한 안전성 평가의 실증.

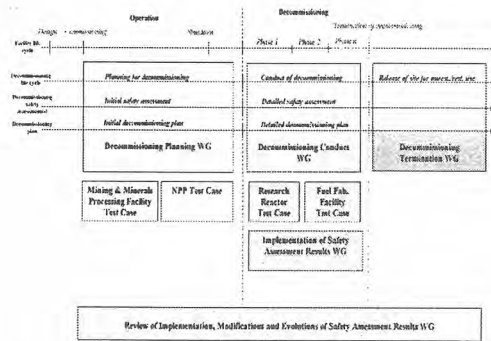


Fig. 3. FaSa 국제협력 프로젝트 추진계획

2.2 FaSa working group 구성

FaSa 프로젝트는 다음과 같이 3개의 working group으로 구성되어 있다.

- Working Group I
 - Decommissioning planning WG
 - Decommissioning conduct WG
 - Decommissioning termination WG
- Working Group II
 - Decommissioning planning WG
 - Decommissioning conduct WG
 - Decommissioning termination WG
- Working Group III
 - Nuclear power plant test case WG
 - Fuel fabrication test case WG
 - Research reactor test case WG
 - Mining and mineral processing test case WG
- Working Group IV
 - Implementation of safety assessment results

WG

- Review of implementation, modifications and evolutions of safety assessment WG

3. 결론

원자력시설 해체를 위한 계획수립부터 부지의 규제해제까지 전 기간 동안 안전성 평가의 활용에 대하여 현실적으로 유용한 권고사항들을 제공하기 위해 IAEA 주관의 국제프로젝트 회의가 진행되고 있으며, 해체 안전성 평가 대한 교훈과 좋은 경험을 교환할 수 있는 정보교류의 장이 될 것이다.

4. Acknowledgement

This work was supported by Nuclear Research & Development Program of the KOSEF grant funded by MEST.

5. References

- [1] Second joint technical meeting on the use of safety assessment in planning and implementation of decommissioning of facilities using radioactive material(FaSa), KAERI/OT-2229/2009, 2009

방사성토양 동전기제염폐액 처리기술개발

손동빈, 김제남, 이승수, 이기원, 정운수, 박진호
 한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
 shondb@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설 주변 오염부지의 방사성토양을 제염하는 기술인 동전기 개발 실험(김제남, 2008)에서 우라늄을 포함하는 침출수 즉 동전기제염폐액이 발생하며, 방사성이 발생하는 폐액, 폐기물의 경우 처리비용이 고가이므로 침출수부피 감소를 위한 처리기술 개발은 필수불가결한 요소이다.

일반적으로 수처리는 응집과 침전, 탈수여과의 과정이 필요하며, 동전기제염폐액의 경우 응집과 침전 과정을 통하여 일부 동전기제염폐액 상등수는 재사용하고 침전물은 탈수여과과정을 통해 부피를 감량하는 것이 타당하다. 또한 응집과 침전을 용이하게 하고, 동전기 제염 후 폐액의 낮은 pH를 보정하기 위해 적정 응집제의 사용이 필요하다. 특히 우라늄이 포함된 침전물의 탈수를 위해 0.2 μ m의 필터를 사용하는데 부피감소를 위해서는 필터의 사용량을 줄이는 것이 중요하다.

본문에서는 동전기제염폐액을 처리하는 과정에서 적정 응집제를 선정하고, 필터의 표면에 Cake을 형성하여 필터의 사용주기를 짧게 하는 침전물의 문제점을 해결하기 위해 동전기제염폐액의 건조형상을 살펴보고자한다.

2. 본론

2.1 적정 응집제의 선정

방사성토양 동전기제염폐액 처리기술의 핵심은 부피의 감소에 있으며, 적정 응집제를 선정하여 상등수의 재활용과 침전물의 탈수가 중요한 과정이 된다. 적정 응집제를 선정하기 위하여 다양한 대표적인 응집제를 선정하여 동전기제염폐액에서 침전물을 비교하였다.

응집제에는 pH를 보정하기 위해 Calcium Hydroxide와 Sodium Hydroxide를 사용하였으며 입자크기를 조절하기 위한 응집제로 유기응집제인 Polymer(Poly Acryl Amide)와 무기응집제인 Magnetie와 Ferrite, Sulfuric Aluminum가 사용되었다.

동전기제염폐액의 낮은 pH를 보정하고 응집을 원활하게 하기 위해 Calcium Hydroxide와 Sodium Hydroxide를 사용하였으며 응집제량에 따라 다음과 같은 중화곡선을 얻었다.

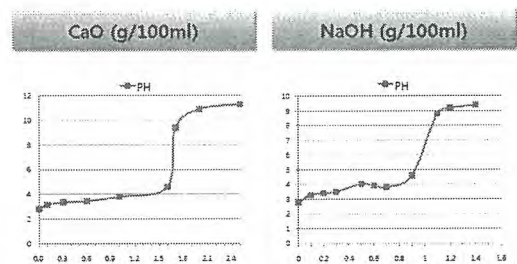


Fig. 1. pH Distribution of Cohesive Agent Quantity

pH에 따른 선행침전실험과 (Sayed M. Badawy, 2005)에 따르면 pH9 정도에서 최적의 응집이 발생하고 탈수여과에 유리하므로 Calcium Hydroxide는 1.75 g/100ml(동전기제염폐액) Sodium Hydroxide의 경우 1.25 g/100ml(동전기제염폐액)이 적정 응집량으로 나타났다.

또한 서로 다른 응집제인 Calcium Hydroxide와 Sodium Hydroxide, Chloric Calcium의 침전실험을 실시하였으나, 전체적으로 응집이 잘 이루어지지 않고 콜로이드상태를 이루어 낮은 침전률을 나타냈으며, Sodium Hydroxide에서 가장 높은 침전률을 나타냈다. 또한 응집제를 넣지 않는 경우는 증발이 거의 발생하지 않는 특성을 나타내었다.

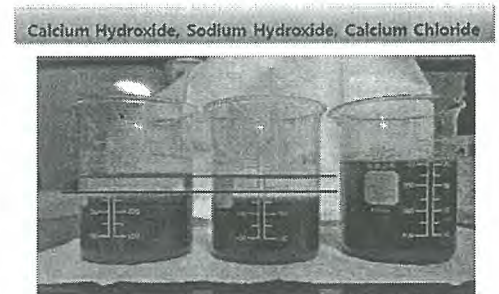


Fig. 2. precipitation rates of Several Cohesive Agents

2.2 동전기제염폐액의 탈수건조형상

동전기제염폐액이 상등액과 침전물로 분리된 후 침전물은 탈수의 과정을 거치게 된다. 탈수과정 중 중요한 것은 필터의 교환주기를 최대한 연장하여 최종 처리할 필터의 부피를 줄이는 것에 있다. 필터의 교환주기는 필터의 폐색정도에 따라 결정되는데 응집된 침전물이 필터 표면에서 Cake을 형성하여 폐색이 발생하므로 Cake의 공극률이 중요한 변수가 된다. 일반적으로 침전물의 입자가 작으면 작을수록 공극률이 작아지고 폐색이 빨리 발생하므로 Cake를 형성하는 입자의 크기가 크면 필요한 필터의 사용량을 줄일 수 있다. 탈수된 Cake의 입자형성크기를 살펴 보기 위해 동전기제염폐액에 응집제를 가하고 건조하여 폐액입자의 형상을 관찰했으며 응집제의 종류와 양에 따라 다음과 같은 결과를 얻었다.

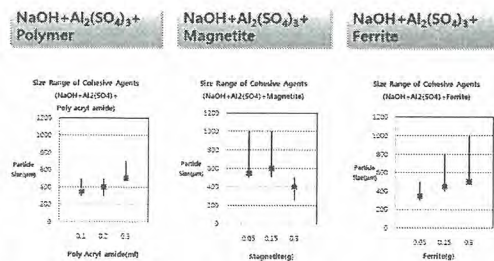


Fig. 3. Particle Size of Cohesive Agent Quantity

일반적으로 응집제의 양을 증가함에 따라 입자의 크기가 증가하는 경향을 보였다. 다만 Magnetite의 경우 일정량 이상의 응집제를 주입할 경우 과과점이 발생하여 입자의 크기가 작아지는 현상이 발생되었다.

Label number	Chemical species	Size range (nm)	Average size (nm)	Shape	Particle ratio
1	CaO	none	0.5	Cake	0.75(100)
2	NaOH	100-200	150	spear shaped and sharp	0.75
3	NaOH+Magnetite 0.5	300-500	350	sharp	0.75
4	NaOH+Al ₂ (SO ₄) ₃ +Polymer 0.1	300-500	350	polygon	none
5	NaOH+Al ₂ (SO ₄) ₃ +Polymer 0.2	500-700	400	polygon	none
6	NaOH+Al ₂ (SO ₄) ₃ +Polymer 0.3	500-700	500	polygon	none
7	NaOH+Al ₂ (SO ₄) ₃ +Magnetite 0.05	500-1000	250	sharp and polygon	0.7
8	NaOH+Al ₂ (SO ₄) ₃ +Magnetite 0.15	500-1000	600	sharp and polygon	0.7
9	NaOH+Al ₂ (SO ₄) ₃ +Magnetite 0.3	250-500	400	sharp and polygon	0.7
10	NaOH+Al ₂ (SO ₄) ₃ +Ferrite 0.2	300-500	350	sharp and polygon	0.7
11	NaOH+Al ₂ (SO ₄) ₃ +Ferrite 0.15	500-800	450	sharp and polygon	0.7
12	NaOH+Al ₂ (SO ₄) ₃ +Ferrite 0.3	500-1000	500	sharp and polygon	0.7

Table 1. Particle Size of Various Cohesive Agents

최적의 응집제 선정과정은 pH를 조절하고 침전물의 입자크기를 키우는 응집제선택과 추가적으로 입자의 크기를 키우는 응집제를 넣는 과정이 필요했으

며 응집제를 투입하는 모든 경우의 수에서 선택적으로 12가지 경우를 실험한 결과 Label number 8의 경우에서 입자의 평균크기가 가장 크게 나타났으며 침전이 잘 일어나는 것으로 나타났다.

3. 결론

동전기제염폐액을 낮은 pH에서 pH9로 맞추기 위해, pH를 조정하기 위한 적정응집제량은 Calcium Hydroxide는 1.75 g/100ml(동전기폐액) Sodium Hydroxide의 경우 1.25 g/100ml(동전기폐액)이 적정응집제량으로 나타났다.

또한 입자의 크기를 키우기 위하여 응집제를 추가하는 경우, 다른 응집제보다 적은 양으로 과과점 직전까지 도달할 수 있으며, 평균입자의 크기가 큰 Magnetite가 포함되는 조합이 최적의 응집제에 선택되었다.

4. 감사의 글

본 연구는 한국정부가 지원하는 한국과학기술재단의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] 한국폐기물자원순환학회, 2008년 춘계학술연구회발표논문집, pp.524-526, 2008
- [2] 한국폐기물자원순환학회, 한국폐기물학회지 Vol.25, No.2, pp.146-153, 2008
- [3] Chemical Engineering Journal 80, pp.237-244, 2000
- [4] Radiation Physics and Chemistry 73, pp.125-130, 2005

제2분과

방사성폐기물 처리 (Oral)

빈 면

폴리머 시멘트 고화체의 조성비에 따른 공극률 변화

지영용, 광경길, 홍대석, 김동호*, 김태국, 류우석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

* 한일원자력(주), 안양시 만안구 안양7동 202-4 동양벤처스텔

yyji@kaeri.re.kr

1. 서론

일반적으로 시멘트 고화체의 내부구조는 수화반응에 의해 생성되는 Calcium Silicate Hydrate (CSH) 결정들과 공극과의 연속적인 배열로 구성되며, 이 공극들이 시멘트 고화체의 성능에 직접적인 영향을 미친다. 고화체 내부에 공극이 많을수록 그 강도는 현저히 떨어지며 물의 침투성은 증가하게 된다[1]. 따라서 본 연구에서는 물과 시멘트의 혼합시 일정 양의 폴리머를 첨가함으로써 시멘트 고화체가 가지는 공극의 양을 줄일 수 있는 polymer-modified cement(PMC) 고화체들을 제조하여 공극률 변화를 측정하였다. 이때 폴리머의 첨가로 인해 폴리머와의 결합이 시멘트와 물과의 수화반응을 방해하여 CSH 결정의 성장을 저하시킴으로써 시멘트 고화체가 가지는 본래의 기계적 강도를 크게 떨어뜨리지 않아야 한다. 이에 대한 평가의 일환으로 폴리머, 물 및 시멘트의 여러 혼합비에 따라 제조된 시편들의 압축강도를 측정하였으며, 이로부터 폴리머의 최적 혼합비를 결정하였다.

2. 본론

2.1 폴리머 시멘트 고화시편 제조

PMC 고화체는 포틀란트시멘트 몰타르에 물성개질을 위하여 열가소성 폴리머를 혼합한 것으로, 시멘트에 폴리머를 혼합함으로써 내수성 및 인성을 증진시키는 등 재료의 물성치를 향상시킬 수 있다. 본 연구에서는 물과 시멘트의 혼합비(W/C)를 33 %와 50 %로 설정한 상태에서 폴리머의 첨가량을 달리하여 시편들을 제조하였으며, 그 내역을 표 1에 나타내었다. 이때 압축강도 측정에서 요구하는 시편의 길이 및 높이 비를 2로 유지하기 위하여, 직경 50 mm 및 높이 100 mm의 몰드에 폴리머, 물 및 시멘트 반죽을 넣어 4 주간 경화시켰으며, 7일간의 경화기간마다 압축강도를 측정하였다. 그림 1에 일정한 경화기간이 흐른 뒤

몰드에서 꺼낸 시편을 나타내었다.

Table 1. Specification of polymer-modified cement specimens

*W/C = 0.50		W/C = 0.33	
Index	**P/T	Index	P/T
BT0	0.00	CT0	0.00
BT1	0.14	CT1	0.08
A1	0.17	CT2	0.11
BT2	0.20	CT3	0.14
BT3	0.25	CT4	0.17
BT4	0.29	CT5	0.20

* W/C : water-to-cement ratio

** P/T : polymer-to-total mixture ratio

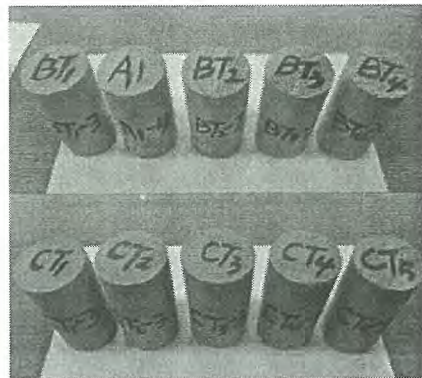


Fig. 1. Polymer-modified cement specimens for the compressive strength test

압축강도 측정결과 폴리머 첨가에 따라 그 강도는 감소하는 경향을 보이지만, 모든 경우에서 중저준위방사성폐기물 인수기준에서 요구하는 경질 고화체에 대한 35.08 kgf/cm² (500 psig) 기준을 초과하였다. 특히 W/C에 대한 비가 33 %인 시편에서는 그 압축강도가 모두 200 kgf/cm² 이상으로 측정되었으며, 4 주간의 경화시간을 거칠 경우, 8 %의 폴리머를 함유한 시편은 폴리머 첨가에 따른 그 강도의 변화가 미미하였다.

2.2 공극률 측정

시멘트 고화체의 공극률은 고화체의 다른 물성에 영향을 미치게 되는데, 공극률이 큰 경우는 고화체가 조밀하지 못하다는 것으로써, 이는 고화체의 압축강도, 내수성 및 동결 융해 저항성 등의 내구성 저하를 야기하게 된다. 공극률 평가 시험법으로는 일반적으로 수침법과 수은치환법 등이 있으며, 본 연구에서는 물의 투과성을 이용하는 수침법[2]을 이용하여 PMC 고화체 시편의 건조 밀도 및 공극률을 구하였다.

먼저 공극률 측정을 위한 시편으로써 약 1 cm x 1 cm x 1 cm 크기를 가지는 육면체 모양의 시편들을 가공하여 24시간 이상 건조하였다. 그림 2의 밀도측정 장치를 이용하여 시편들의 건조무게(W_d)를 측정정한 후, 물속에서의 무게(W_w) 및 포화 무게(W_s)를 각각 측정하였으며, 식 (1)로부터 시편의 건조밀도(ρ_d)를 계산하였다. 그리고 폴리머와 시멘트의 밀도 및 혼합비로부터 유추되는 이론밀도(ρ_t)를 계산하여 식 (2)로부터 시편의 공극률(P)을 구하였다.

$$\rho_d = \frac{W_d}{V_d} = W_d \times \frac{\rho_w}{W_s - W_w} \quad (1)$$

$$P = 1 - \frac{\rho_d}{\rho_t} \quad (2)$$

여기서, V_d 는 건조시편의 부피, ρ_w 는 물의 밀도를 의미한다.

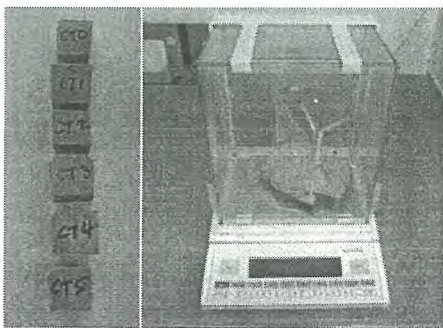


Fig. 2. Specimens for the porosity test and the analytical balance with a density determination kit

W/C의 비가 33%인 PMC 고화체 시편에 대한 공극률을 그림 3에 나타내었으며, 폴리머의 첨가량이 증가할수록 공극률이 감소함을 알 수 있다.

그림에서 보듯이, 폴리머 함량이 5 %까지는 공극률이 급격히 떨어지며, 그 이후부터 약 15 %까지는 일정한 공극률을 보이고 다시 크게 떨어지는 경향을 보인다. 그러나 공극률이 작을수록 내수성이 우수하지만, 20 %의 폴리머를 첨가한 시편의 압축강도가 폴리머를 첨가하지 않은 시편에 비해 약 50 % 감소하는 경향을 보이기 때문에 폴리머 함유량을 5 ~ 15 % 이내로 설정하는 것이 적합한 것으로 판단되었다.

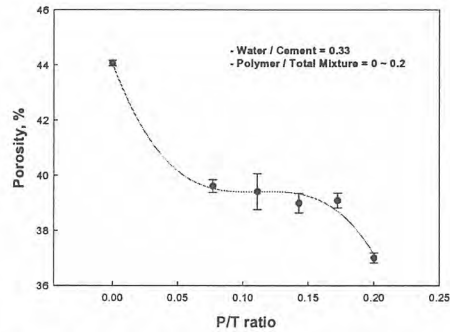


Fig. 3. Porosity of the polymer-modified cement with the difference of polymer content

3. 결론

시멘트 고화체가 가지는 공극의 양을 줄이기 위하여, 물과 시멘트의 혼합시 일정 양의 폴리머를 첨가한 PMC 고화체 시편들을 제조하였으며, 폴리머 첨가에 따른 공극률 변화를 측정하였다. 그 결과 폴리머의 함유량이 증가할수록 공극률은 감소하여 내수성이 우수해지지만 고화체의 내구성 측면에서 그 강도를 저하시키는 것으로 판단되었다. 따라서 강도변화에 영향을 최소화하면서 고화체의 내수성을 향상시킬 수 있는 폴리머 함유량의 범위는 약 5 ~ 15 % 이내로 결정되었다.

4. 참고문헌

- [1] 고화체 특성규명 연구, KAERI-NEMAC/RR-139/94, vol 2 (1994)
- [2] 금속 소결체의 소결밀도 시험방법, KS D 0033 (2001)

방사성폐기물 저감화를 위한 방사선관리구역 분리형 작업복 개발

박병목, 채경선, 신경욱, 김명호, 윤용기*, 박종민*, 이병국*

세안기술주식회사, 서울특별시 금천구 가산동 481-10 벽산디지털밸리 2차 910호

*한국수력원자력(주), 경상북도 경주시 양남면 나아리 260번지 월성 1발전소

pbm@sae-an.co.kr

1. 서론

원자력발전은 지난 30년간 값싸고 안정적인 전력을 공급함으로써 우리나라의 경제발전에 기여하였다. 하지만 원자력발전은 필연적으로 방사성폐기물이 발생하게 된다. 원자력발전소에서 발생되는 방사성폐기물은 방사능도 및 열 발생률에 따라 중·저준위 및 고준위 방사성폐기물로 분류된다. 현재 국내 원자력발전소내 임시 보관중인 중·저준위 방사성폐기물은 단계적으로 경주에 건설 중인 영구처분시설로 옮겨 인간의 생활권으로부터 영구히 격리시켜 안전하게 관리하게 될 것이다.

원자력발전사인 한국수력원자력은 2015년 까지 중·저준위 방사성폐기물을 50%이상 저감 한다는 목표로 전사적으로 다양한 기술개발 및 업무개선 노력을 하고 있다. 본 연구 또한 중·저준위 방사성폐기물 중 혼방섬유류인 방사선관리구역 작업복을 개선하여 고체 방사성폐기물 및 액체 방사성폐기물의 저감과 작업복 구매비용 절감을 통한 경제적 이득을 추구함으로써 방사성폐기물 기본정책중 하나인 '방사성폐기물 발생량 최소화'에 기여하고자 한다.

2. 본론

현재 국내 원자력발전소에서 사용하는 방사선관리구역 작업복은 혼방섬유 작업복과 PVA(Poly Vinyl Alcohol) 재질의 수용성 작업복이 있으며 이 두 종류의 작업복을 방사성폐기물 발생량 및 경제성 등의 특성을 비교하면 다음과 같다.

[혼방섬유 작업복]

- 사용회수 : 재 사용가능(파손 및 오염이 폐기 이상인 경우 제외)
- 처리방법 : 드럼처리 후 영구처분, 유리화 후 영구처분 가능

- 방사성폐기물 발생량 : 최종 방사성폐기물 드럼 발생량 많음(드럼 처리 후 영구 처분시)
- 구매비용 : 경제성 우수(1회 구매로 폐기 까지 사용)
- 기 타 : 반영구 염색 가능

[PVA 작업복]

- 사용회수 : 1회 사용
- 처리방법 : 용액화 후 처리, 제염 필터 드럼 처리 후 영구처분
- 방사성폐기물 발생량 : 최종 방사성폐기물 드럼 발생량 적음(용액화 후 처리)
- 구매비용 : 경제성 떨어짐(1회 사용으로 구매 비용 부담)
- 기 타 : 용액화 설비 제작 및 운영비용, 용액화 설비 오염발생시 처리 문제

위의 내용을 보면 혼방섬유 작업복과 PVA 작업복은 서로 장·단점을 갖고 있음을 알 수 있다. 현재 혼방섬유 작업복의 중량은 280 g/m² 이나 140 g/m² 이하의 중량으로 개선을 추진하고 있으며, 이 경우 현재 드럼 발생량을 절반으로 줄일 수 있다. 본 연구는 이보다 더 드럼발생량을 줄이기 위한 방안으로 상·하의가 일체로 된 원피스 타입의 현재 작업복을 팔, 다리 및 몸통 부분으로 분리하여 국부 오염시 발생되어졌던 방사성폐기물량을 줄일 수 있으며 액체방사성폐기물을 계획적으로 관리 할 수 있을 뿐만 아니라 작업복 구매비용을 절감 할 수 있는 장점을 갖게 된다.

방사선안전관리 경험사례 및 방사성폐기물관련자료[1, 2, 3]를 살펴보면 원자력발전소의 작업복 소모량은 경상운전중일 경우와 핵연료 교체를 위한 계획예방정비에 따라 다른데 폐기 및 오염보관대상 작업복은 대부분 계획예방정비 작업시 발생되고 있다. 폐기 및 오염보관대상 작업복 발생은 원자력발전소의 상업운전 기간, 계획예방정비 전 원자력발전소 운전상태, 계획예방정비 기

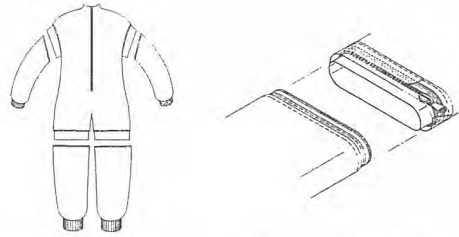
간, 경상 및 계획예방정비 기간 중 추가되는 작업 공정 등에 따라 작업복 폐기 및 오염보관수량에 영향을 미치게 된다.

따라서 폐기 및 오염보관대상 작업복의 감량을 위한 개선방안으로서 방사선관리구역내 작업환경 및 조건에 따라 국부 오염이 발생할 경우 또는 오염준위가 국부적으로 상이할 경우 작업복 부위별로 분리가 가능하도록 개발한 것으로 다음과 같은 장점을 갖는다.

- 장점1) 폐기에 해당하는 오염이 국부에 발생할 경우 분리하여 폐기함으로써 방사성폐기물 발생량 감소
- 장점2) 서로 다른 오염준위로 각각 국부 오염된 작업복들을 오염준위별로 분리하여 저장 가능하며 보관 이하의 오염준위인 경우 바로 세탁하여 재사용 할 수 있으므로 보관 장소 활용이 극대화됨
- 장점3) 서로 다른 오염준위로 각각 국부 오염된 작업복들을 오염준위별로 분리하여 추후 세탁함으로써 세탁시 발생하는 오염전이 면적 최소화
- 장점4) 세탁시 오염준위가 비슷한 작업복을 세탁 할 수 있어 세탁배수 수집시 직접배출을 계획적으로 유도할 수 있음
- 장점5) 작업복 구매 비용절감 및 방사성폐기물 저장으로 인한 경제적 이득 추구

분리형 작업복 사용에 따라 위의 장점이 발생하지만, 단점으로는 작업복 구매시 현재의 단가보다 다소 구매비용이 증가할 수 있으며, 작업복 분리 및 체결에 따른 작업시간이 증가 할 수 있다.

다음 그림은 현재의 작업복과 개발된 분리형 작업복을 도시한 것이다.



분리형 작업복(분리된 상태) 팔, 다리 연결부위 상세도

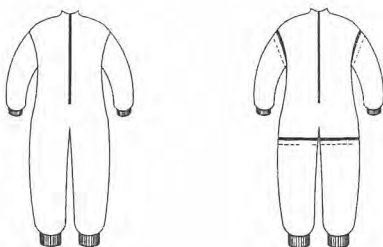
Fig. 1. Clothing for Radiation Working Personnel

3. 결론

방사성폐기물 저감을 위해 개발한 방사선관리구역 분리형 작업복은 현재 사용중인 중량 280 g/m² 인 혼방섬유 작업복 및 중량 140 g/m² 이하로 개선된 작업복에 모두 적용가능하며, 분리형 작업복이 갖는 단점은 장점이 갖는 것에 비하여 매우 적은 것으로 분리형 작업복의 현장 도입을 통해 방사성폐기물 기본정책 중 하나인 ‘방사성폐기물 발생량 최소화’에 기여할 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

- [1] 한국수력원자력(주), 2009 방사선안전관리 Work-shop, pp8-9, pp.15-17, 2009
- [2] 한국수력원자력 홈페이지-www.khnp.co.kr
- [3] 한국방사성폐기물 관리공단 홈페이지-www.kmrc.or.kr



상-하의 원피스 타입 작업복 분리형 작업복(연결된 상태)

파이로 전처리공정의 배기체처리기술

박장진, 신진명, 이재원, 박근일, 이정원
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
jjipark@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로 전처리공정을 위해서는 집합체 해체, 연료봉 인출, 연료봉 절단, 탈피복, 분말화, 고온 휘발성산화 공정 등이 필요하다. 이들 공정 중 절단, 산화 탈피복공정(저온 휘발성산화공정)에서는 휘발성핵종(Kr/Xe, H-3, C-14)이 고온 휘발성산화공정에서는 휘발성핵종(Kr/Xe, H-3, C-14)과 준휘발성핵종(Cs, Tc, I, Rb, Ru 등)이 휘발할 수 있다. 이들 핵종들은 시설안전운전과 작업자 안전을 위해 반드시 안전하게 관리해야 한다.

본 논문에서는 기존 전처리공정을 기술하였고 이에 따른 핵종휘발율을 기술하였다. 그리고, 휘발성 핵종 처리법, 준휘발성 핵종 처리법에 대하여 기술하였고 본 연구팀이 제시한 선택적 배기체처리공정에 대하여도 기술하였다.

2. 본론

2.1 기준 전처리공정

본 논문에서는 500℃에서 산화하여 만들어진 분말을 1200℃, 진공에서 열처리하는 고온 휘발성산화공정을 채택하는 것을 전제로 하였다.

2.2 핵종 휘발율

Table 1에는 500℃에서 열처리하는 저온 휘발성산화공정(표준 휘발성산화공정)과 1200℃, 진공에서 열처리하는 고온 휘발성산화공정(고온 휘발성산화공정)의 각 핵종별 휘발율을 나타내었다[1]. 고 방사성/고 방열 핵종인 Cs의 경우 저온 휘발성산화공정의 경우 10% 미만 휘발되지만 고온 휘발성산화공정의 경우는 98%의 휘발율을 보이고 있다. 장수명핵종 Tc-99의 경우 저온 휘발성산화공정의 경우 1% 미만, 고온 휘발성산화공정의 경우는 92%를 나타내고 있다. 또다른 장수명핵종인 I-129의 경우 각각 10% 미만과 100%의 휘발율을 나타내고 있다.

2.3 휘발성핵종 처리

삼중수소는 사용후핵연료로부터 HT형태로 배출되기때문에 이의 안전한 포집을 위해 본 논문에서는 400℃에서 CuO를 이용하여 HTO형태로 전환하여 이를 분자체(molecular sieve)를 이용하여 상온에서 포집하는 기술을 고려 기술개발 하고 있다.

C-14의 경우 습식법, Ca(OH)₂ 흡착법, Ba(OH)₂ 흡착법 등 기술이 존재하나 본 연구에서는 칼슘필터를 이용 약 700℃에 CaCO₃ 형태로 포집하는 고온 반응법을 채택하였다. Kr/Xe의 경우 저온 증류법, 용매 흡수법 등이 있으나 저온 고체 흡착법을 적용하였다.

2.4 준휘발성핵종 처리

고온 휘발성산화공정 중에는 준 휘발성 핵종 Cs, Rb, Tc, Ru, I 등이 휘발될 수 있다. 본 연구에서는 Cs 핵종 포집을 위해 석탄회 필터를 이용하여 pollucite 형태로 안전하게 포집하였다. 장수명핵종 Tc의 경우는 칼슘 필터를 이용하여 칼슘테크네튬산화물 형태로 포집하며 요오드의 경우는 은 침착 제올라이트를 이용하여 AgI 형태로 포집하였다. 본 연구팀에서는 석탄회 필터와 칼슘필터를 직접 개발하여 실험에 이용하였고, 미국 INL연구소와 INERI과제를 통해 사용후핵연료를 이용하여 고온 휘발성산화공정에서 휘발하는 핵종을 포집하는 연구를 수행하고 있다.

2.5 선택적배기체 처리법

고온 휘발성산화공정에서 휘발하는 각 핵종을 선택적으로 분리하여 포집하면 고준위폐기물 발생량을 줄일 수 있고, Cs 폐필터의 중저준위 폐기물화 등 많은 장점이 예상되기 때문에 Fig. 1과 같은 선택적 배기체 처리공정을 제안하여 이를 실현하고자 노력하고 있다. INL과의 공동 연구를 통해 실제 사용후핵연료를 이용한 실험결과[2] Cs, Tc, I이 선택적으로 포집되었음을 확인하였다.

3. 결론

고온 휘발성산화공정의 경우 Kr/Xe, H-3, C-14 과 같은 휘발성핵종과 Cs, Tc, I 과같은 준휘발성 핵종이 휘발된다. 이들을 안전하고 효율적으로 포집하기위한 선택적 배기체처리공정이 제시되었다. Cs, Tc, I 과 같은 준휘발성 핵종에 대해서는 본 연구팀이 개발한 필터를 이용하여, 실험실 규모로 사용후핵연료 이용 선택적 포집 가능성을 확인하였다.

4. 감사의 글

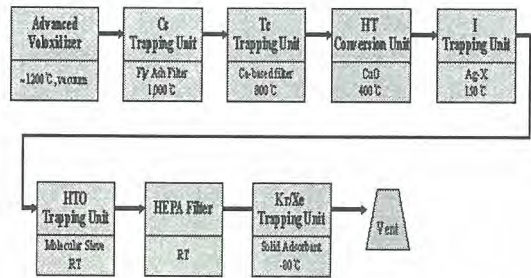
이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.(연구과제 고유번호: 2009-0062283)

5. 참고문헌

- [1] J.J. Park, J.M. Shin, G.I. Park, J.W. Lee1, J.W. Lee2 and K.C. Song, "An Advanced Voloxidation Process at KAERI", Global 2009, Paris, 2009
- [2] B. R. Westphal, J. J. Park, J. M. Shin, G.I.Park,K.J.Bateman,andD.L.Walquist, "Selective Trapping of Volatile Fission Products with an Off-Gas Treatment System", *Separation Science and Technology*, Vol. 43, pp. 2695-2708, 2008

Table 1. Removal rates (%) of fission products

Nuclide	Standard voloxidation	Advanced voloxidation
Kr/Xe	<30%	100%
H-3	100%	100%
C-14	<10%	100%
Cs	<1%	98%
Tc	<1%	92%
I	<10%	100%
Ru	<1%	97.6%
Rh	<1%	82.7%
Te	<1%	53.3%
Mo	<1%	61.7%
Rb	<1%	96%



* Trapping methods and conditions might change with further experiments.

Fig. 1. Schematic diagram of selective off-gas treatment system for the PRESENT process

대기압 플라즈마 공정 기술을 이용한 제염설비 개발

진동식, 조천휘, 김종화, 전상환*, 김용수*

(주)엑트, (305-509)대전시 유성구 관평동 705 한밭대학교 기술상용화센터 3층

*한양대학교, (133-791)서울시 성동구 행당동 17번지

ids@actbest.com

1. 서론

현재 국내에는 원자력발전소 등 원자력관계시설의 운영 중에 발생된 많은 양의 방사성 금속폐기물이 저장되어 있으며, 향후 원자력관계시설 등의 해체 시 막대한 양의 방사성 금속폐기물이 발생될 것으로 예상된다. 방사성 금속폐기물의 제염은 주로 전해제염과 같은 습식제염기술을 사용하고 있으나, 작업자의 안전 위험성과 다량의 2차 방사성폐기물이 발생하는 단점을 가지고 있다. 이러한 문제점을 해결하기 위해 전 세계적으로 플라즈마 제염공정 기술을 포함한 다양한 건식제염기술의 개발이 현재 진행 중에 있다. 본 연구에서는 건식제염기술로서 현재 상용화를 준비하고 있는 저온·저진공 플라즈마 제염공정 기술과 상호 보완적으로 활용될 수 있는 대기압 플라즈마 공정 기술을 적용한 제염설비를 개발하여 그 특성과 활용 가능성을 분석하였다.

2. 본론

건식제염기술로서 현재 상용화를 준비 중인 저온·저진공 플라즈마 제염공정 기술은 매우 높은 제염 효율성으로 그 기술성을 인정받고 있지만, 플라즈마 조건을 유지하기 위해서는 지속적인 진공상태와 이에 필요한 진공시스템 설비가 요구됨으로 현장 적용성(이동성)에 다소 제한적인 단점을 가지고 있다. 이러한 문제점은 진공시스템이 요구되지 않는 대기압 플라즈마 공정 기술을 제염공정 기술에 적용할 경우 해결될 수 있으며 상호 보완적으로 활용될 수 있을 것이다.

현재 산업적 및 연구용으로 사용되고 있는 대기압 플라즈마 공정 기술을 제염공정 기술에 적용하기 위해서는 현장 적용성이 우수해야 하며, 필요시 방사성 금속폐기물의 모재를 회수 및 재사용하기 위해서는 300 °C 이하의 낮은 온도의 플라즈마 조건을 형성해야 한다. 이러한 조건을 만

족하고 경제성 및 효율성 등을 감안하면 Fig. 1과 같은 저온 플라즈마 토치 방식이 제염공정 기술에 적용될 수 있는 최적의 조건을 가지는 것으로 평가되었다.

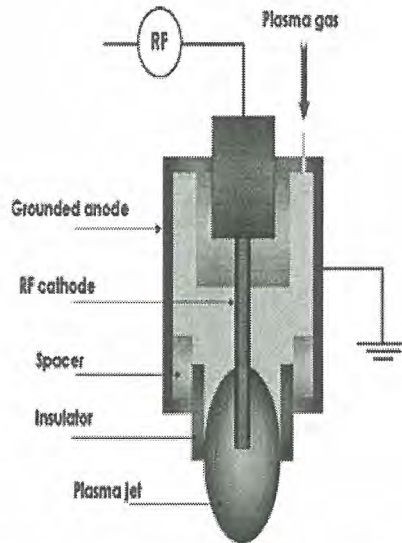


Fig. 1. The Cold Plasma Torch Mode

제염공정 연구를 위해 선정된 저온 플라즈마 토치 방식의 제염설비는 Table 1과 같이 입체면 처리를 위한 원통형 형식과 평탄한 대면적 처리를 위한 직육면체 형식의 두 가지 형식으로 제작되었다. 두 형식 모두 전원은 13.56 MHz의 RF 출력을 사용하였으며, 전극은 열 및 전도성이 우수한 알루미늄을 사용하였다. 또한 안정적이고 균일한 플라즈마의 발생을 위하여 두 전극 사이에 1 mm 두께의 석영판을 위치시켰다. 제작된 제염설비의 전극 형태별 최적의 공정조건을 도출하기 위해 플라즈마 기체로 사용된 헬륨 및 아르곤의 유량을 변화, 기체 조성비의 변화 그리고 인가되

는 RF 출력 변화에 따른 라디칼 강도 변화, 플라즈마 온도 분포 및 플레임 크기를 분석하였다.

Table 1. The Structural Characteristics of Electrode Types

구분	원통형	직육면체형
플라즈마 기체 방출 유효 면적	$4.78 \times 10^{-5} \text{ m}^2$	$1.23 \times 10^{-4} \text{ m}^2$
플라즈마 기체 유효 체적	$1.147 \times 10^{-6} \text{ m}^3$	$5.852 \times 10^{-6} \text{ m}^3$
중심 전극 표면의 면적	$1.206 \times 10^{-3} \text{ m}^2$	$7.315 \times 10^{-3} \text{ m}^2$

먼저 플라즈마 기체로 사용된 헬륨 및 아르곤 기체 각각의 유량률 변화에 따른 라디칼 강도 변화 실험에서 주어진 출력 조건에서 헬륨 유량률이 1 slm에서 10 slm까지 증가함에 따른 라디칼 강도 변화가 두 형식 모두 헬륨 유량률이 5 slm 정도에서 가장 큰 값을 보였으며 가장 안정적인 플라즈마 조건을 형성하였다. 이에 반해 아르곤 기체만을 사용할 경우에는 두 형식 모두 매우 불안정한 플라즈마 조건을 형성하는 것을 발견할 수 있었다. 하지만 헬륨 기체를 사용하여 안정적인 플라즈마 조건을 형성한 후 아르곤 기체를 혼합할 경우 안정적인 플라즈마 조건은 유지되지만 라디칼 강도는 감소하는 것을 확인할 수 있었다.

효율적인 제염공정을 위해서는 일정 길이 이상의 플라즈마 플레임이 요구된다. 가벼운 헬륨 기체만을 사용할 경우에는 두 형식 모두 수 mm의 짧은 플레임 길이가 형성되었지만, 헬륨 기체에 무거운 아르곤 기체를 각각 10 slm 단위로 혼합할 경우에는 플라즈마 플레임 길이가 1.5 cm까지 증가하는 것을 확인할 수 있었다.

플라즈마 조건에서 발생하는 라디칼과의 화학반응을 증대시키기 위해서는 일정 이상의 온도조건이 요구된다. 원통형 형식의 제염설비의 경우에는 헬륨 기체만을 사용할 경우가 더 높은 온도 조건을 형성하는 반면, 직육면체 형식의 제염설비의 경우에는 헬륨과 아르곤 기체를 혼합하는 것이 더 높은 온도조건을 형성하는 것을 확인하였다. 플라즈마 플레임이 형성되는 전극으로부터 거리에 따른 온도 분포는 두 형식 모두 비슷한 특성을 보였으며 5 cm 부근에서 대기 온도로 떨어지는 것을 확인하였다.

3. 결론

대기압 플라즈마 공정 기술을 제염공정 기술에 적용하기 위해 제작된 제염설비의 전극 형태별 특성분석을 통해서 최적화된 공정도출 및 현장 적용 가능성을 확인하였다. 따라서 지금까지 확보된 저온·저진공 플라즈마 제염공정 기술을 기반으로 현장 적용성이 뛰어난 대기압 플라즈마 제염공정 기술을 상호 보완적으로 접목한다면 방사성 금속폐기물 제염에 플라즈마 제염공정 기술의 우수성이 더욱 더 드러날 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 원자력 연구개발 중장기 계획 사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] J. Park, I. Henins, H.W. Herrmann, G.S. Selwyn, J.Y. Jeong, R.F. Hicks, D. Shim, C.S. Chang, An atmospheric plasma source, Appl. Phys. Lett. 76 (3) p.288-290, 2000
- [2] O. Goossens, E. Dekempeneer, C. Leys, D. Vangeneugden, R. Van De Leest, Application of atmospheric pressure dielectric barrier discharge in deposition, cleaning and activation, Surf. Coat. Technol. 142. 144 p.474-481, 2001
- [3] K. Niemi1, St. Reuter2, L. Schaper1, N. Knake1, V. Schulz-von der Gathen1, T. Gans3, Diagnostics on an atmospheric pressure plasma jet, Journal of Physics: Conference Series 71, 2007

폐순환냉각수계통 방식제에 따른 이온교환특성 평가

이정진, 이영채, 이지훈

한국수력원자력(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1

lji2426@khnp.co.kr

1. 서론

국내 원전의 액체방사성폐기물처리계통(LRS)은 LRS 유입 폐액 성분중 전처리설비에서 완전 제거되지 않은 화학성분이 후단의 이온교환설비(LRDPS)의 효율을 저하시키고 있다.

LRDPS로 고전도도 폐액의 유입은 폐액내 화학성분으로 인해 이온교환 탈염기 후단의 전도도 상승 및 pH 하강을 유발시킨다. 이온교환수지의 교환기 H^+ 혹은 OH^- 는 이온선택도가 높은 이온(Na^+ , Ca^{2+} 혹은 NO_3^- , SO_4^{2-} 등)과 교환되고, 탈염기 후단으로 방출되어 전도도와 pH를 변화시키는 원인이 된다.

특히, 폐순환냉각수계통의 방식제로 사용중인 아질산나트륨($NaNO_2$)은 고농도(700~1,000ppm)의 화학물질로, O/H 기간중 폐순환냉각수계통의 점검 및 관련기기 보수작업을 위한 계통수 배수시 LRS에 유입되어 이온교환수지를 단기간에 포화시킴으로써 고체방사성폐기물 발생 및 이온교환수지 교체작업으로 인한 작업자 피폭의 주원인이 되고 있다. 따라서 폐순환냉각수계통 방식제를 이온교환수지에의 영향이 적으며, 저농도로도 방식효과를 가지는 대체약품으로의 개선이 필요하다.

본 연구에서는 방식제로 국내외에서 널리 사용되고 있는 아질산나트륨과 하이드라진 방식제를 대상으로 실제 국내 원전에서 사용되고 있는 양이온교환수지와 음이온교환수지에 미치는 영향을 비교 평가하였다.

2. 실험방법

이온교환 평형 실험을 위해서 현재 원자력발전소에 사용하고 있는 강산성 양이온교환수지와 강염기성 음이온교환수지를 선정하였다. 적용 방식제로서는 현재 국내 원전에서 사용되고 있는 방식제인 아질산나트륨과 하이드라진을 비교 평가하였다. 실험순서는 먼저, 이온교환수지 무게를 잰 후 삼각플라스크 넣고 제조된 농도의 용액을 40mL씩 주입한다. 주입 후 항은 교반조에서 $25 \pm 1^\circ C$ 를 유지하며 일정한 교반속도를 유지하면서 충분히 평형에 도달하도록 약 48시간 이상을 반응시켰다. 그리고 채취한 시료는 0.2 μm syringe filter(ADANCMFS, INC., Cellulose Acetate Membrane Filter)를 이용하여 여과하였다.

분석방법은 대상 방식제 아질산나트륨일 경우 나트륨 이온은 이온 분석기(ORION 940model)로 분석하였으며, 아질산 이온(NO_2^-)는 비색법을 이용한 Colorimeter(C-MAC Co., LTD.)로 분석하였다. 그리고 대상방식제 하이드라진일 경우는 모두 Iodine 적정법으로 하이드라진을 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 방식제별 양이온 교환수지의 이온교환능 평가

양이온 교환수지에 대한 아질산나트륨과 하이드라진의 등은 흡착한 실험결과에 흡착모델인 Langmuir 모델과 Freundlich 모델을 적용하여 곡선맞춤(curve-fitting)하였다. 그 결과는 Fig. 1에 각각 나타냈으며, 각 모델 변수들은 Table 1에 나타내었다. Langmuir 모델과 Freundlich 모델은 다음과 같다.

Freundlich 모델 :

$$qe = KCe^N \quad (1)$$

qe는 흡착 평형 상태에서 흡착제 단위 g당 흡착된 흡착물질의 양(mmole/g), Ce는 수용액상 용질의 평형농도(mmole/L)이며 $K((mmole/g)/(mmole/L)^N)$ 와 N은 Freundlich 등온선 상수이다.

Langmuir 모델:

$$qe = \frac{Q^0 b Ce}{1 + b Ce} \quad (2)$$

qe와 Ce는 각각 흡착 평형 상태에서 흡착제 단위 g당 흡착된 흡착물질의 양(mmole/g), 수용액상 용질의 평형농도(mmole/L)이며, $Q^0(mmole/g)$ 는 최대 흡착용량이고 b(L/mmole)는 흡착에너지와 관계된 Langmuir 상수이다.

최대흡착량(Q^0)은 이온교환수지 평형실험을 통하여 1~100mM의 아질산나트륨과 하이드라진 방식제의 각각의 농도당 이온교환수지에 흡착된 양인 qe값과 용액속에 잔류되어 있는 방식제 양인 Ce 값을 구한 후 Langmuir model식에 각각의 농도값을 대입하여 구하였다.

그 결과 아질산나트륨 방식제의 최대흡착량(Q^0)은 4.0136(mmole Na^+/g)으로 아질산나트륨으로 환산하면 276.94(mg $NaNO_2/g$)이다. 그리고 하이드라진 방식제의 최대 흡착량(Q^0)은 2.7008(mmole N_2H_4/g)으로 단위환산을 하면 86.43(mg N_2H_4/g)이고, 양이온 교환수지에 대해 나트륨 이온이 하이드라진보다 약 1.5배가 흡착되는 것으로 나타났다.

Table 1에 보인 모델 곡선 맞춤 결과 이론값과 실험값 간의 편차를 통계적으로 나타낸 상관계수(r^2)이 0.9이상으로 모델이 잘 성립되었다. 특히 두 가지 방식제 모두 Freundlich 모델의 r^2 값이 높게 나타났다.

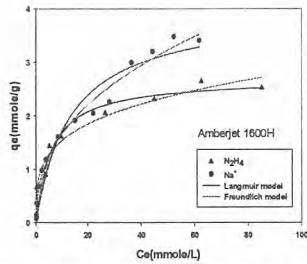


Fig. 1. Isotherm of Na^+ and hydrazine on cation exchange resin
(q_e : ion amounts exchanged with 1g ion exchange resin,
 C_e : aqueous-phase equilibrium concentration in solution)

Table 1. Adsorption Model Parameter of Sodium Ion and Hydrazine on cation exchange resin

	Langmuir			Freundlich		
	r^2	Q^0	b	r^2	K	N
Na^+	0.9703	4.0136	0.0730	0.9855	0.6257	0.4194
N_2H_4	0.9187	2.7008	0.1650	0.9554	0.8244	0.2684

3.2. 음이온 교환수지의 이온교환능 평가

음이온 교환수지에 대한 아질산나트륨과 하이드라진의 등온 흡착과 흡착모델로 곡선맞춤(curve-fitting)한 결과를 Fig. 2에 각각 나타냈으며, 각 모델 변수들은 Table 2에 나타내었다.

등온흡착 실험 결과 아질산나트륨 방식제의 아질산 이온 최대흡착량(Q^0)은 1.2866(mmole NO_2^-/g)으로 아질산나트륨으로 환산하면 59.18(mg NaNO_2/g)이다. 그리고 하이드라진 방식제의 최대 흡착량(Q^0)은 0.1587(mmole/g)으로 단위환산하면 5.0784(mg $\text{N}_2\text{H}_4/\text{g}$)이다. 음이온 교환수지에 대한 아질산염의 제거능이 높다는 것을 알 수 있다. 그 원인은 아질산나트륨 방식제가 하이드라진에 비해 이온화 경향이 높아 이온교환수지와 높은 반응율을 보이기 때문이다. 이러한 영향은 방사성 폐액처리시설의 이온교환수지탑을 초기에 포화시켜 폐이온교환수지의 증가 및 처리하는 작업자에게 피폭을 주는 역효과가 있다.

r^2 값은 0.8이상으로 대상방식제별 모든 모델에 적합하다고 판단되며 양이온교환수지와는 달리 Langmuir 모델의 r^2 값이 더 높게 나타났다.

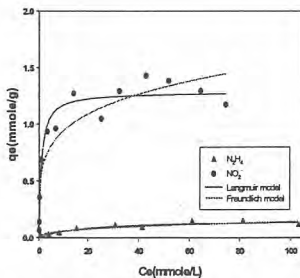


Fig. 2. Isotherm of NO_2^- and hydrazine on anion exchange resin
(q_e : ion amounts exchanged with 1g ion exchange resin,
 C_e : aqueous-phase equilibrium concentration in solution)

Table 2. Adsorption Model Parameter of Nitrite Ion and Hydrazine on anion exchange resin

	Langmuir			Freundlich		
	r^2	Q^0	b	r^2	K	N
NO_2^-	0.9461	1.2866	1.0066	0.8540	0.5762	0.2138
N_2H_4	0.8842	0.1587	0.0558	0.8431	0.0244	0.3831

4. 결론

아질산나트륨과 하이드라진 방식제를 대상으로 실제 국내 원전에서 사용되고 있는 양이온교환수지와 음이온교환수지에 미치는 영향을 비교 평가하였다. 양이온교환수지의 이온교환능을 평가한 결과 아질산나트륨 방식제의 나트륨 이온 최대흡착량(Q^0)은 4.0136(mmole Na^+/g)으로 하이드라진의 최대흡착량(Q^0)인 2.7008(mmole $\text{N}_2\text{H}_4/\text{g}$)보다 약 1.5배가 흡착되는 것으로 나타났다. 음이온교환수지의 이온교환능을 평가한 결과 아질산나트륨 방식제의 아질산 이온 최대흡착량(Q^0)은 1.2866(mmole NO_2^-/g)에 비하여 하이드라진의 최대 흡착량(Q^0)은 0.1587(mmole/g)로서 음이온교환수지에 대한 흡착능이 매우 감소한 것을 알 수 있다.

따라서 폐순환 냉각수계통 내 하이드라진 방식제를 적용할 경우 아질산나트륨 방식제를 사용할 때에 비하여 방사성폐액처리시설에서의 이온교환설비에 미치는 영향을 줄일 수 있음을 확인하였다.

5. 참고문헌

- [1] Sang-woon Shin, Hoyeon Yang, "Application of Silica-based Inorganic Ion Exchange Resin and its immobilization for the Treatment of Radioactive Liquid Waste", TR00NC04,C2002.7 in KHNP Report, 2002.
- [2] Warren L. McCabe, Julian C. Smith, Peter Harriott, "Unit Operations of Chemical Engineering", 6th Edition, McGraw-Hill Korea, pp1090, 2003.
- [3] W. Conard Fernelius et al., "Ion exchange", McGraw-Hill Book company, pp624, 1962.

방사성폐액 전처리설비 처리성능 향상

조항래, 박경록, 황태원

한수원(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1

hang@khnp.co.kr

1. 서론

최근 원전의 액체방사성폐기물 처리효율 향상과 2차 폐기물 최소화를 위한 연구가 미국 전력연구소(EPRI) 등을 중심으로 활발히 진행되고 있다. 특히 역삼투(RO)막을 이용한 처리기술은 제거 효율 측면에서는 우수성이 이미 입증되어 있으며 국내의 경우에도 선택성이온교환설비의 전처리설비로 이용되고 있다. 전처리설비의 효율적 운영을 위해서는 다양한 종류의 폐액에 대한 처리성능 향상 방안과 성능 유지를 위한 효율적인 운영방안 확립, 설비의 운전 및 정비 편의성 확보 등이 필요하다. 본 논문에서는 이를 위한 설비 개선사항과 성능 최적화를 위해 해결해야할 과제에 대해 논하고자 한다.

2. 본론

2.1 고농도 붕산폐액 처리

고농도의 붕산이 함유된 폐액을 상온에서 처리할 경우 역삼투막의 투과수 유량이 초기에 급감하는 현상이 전처리설비 시운전 과정에서 발생하였다[1]. 이는 붕산 폐액이 처리되는 과정에서 막 표면에서 발생하는 농도 분극현상과 붕산의 과포화에 따른 붕산 석출에 기인한 것으로 판단된다. 따라서 역삼투막 공급수의 온도에 따른 투과수의 유량변화에 대한 실험을 수행하였으며, 감소되었던 유량이 폐액의 온도가 약 40℃에 도달하자 거의 100% 회복되는 결과를 얻었다(Fig. 1).

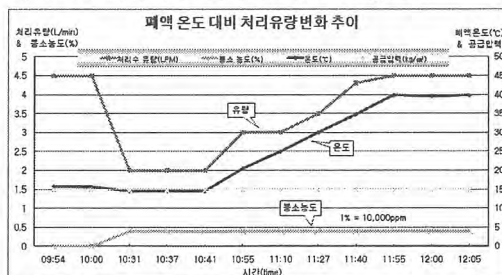


Fig. 1. Permeate Flow Rate vs. Influent Temperature of Reverse Osmosis Module

이러한 실험결과를 토대로 전처리설비의 역삼투막 공급수탱크 하부에 투입식 히터를 설치하여 공급수의 온도를 38~40℃ 범위 내에서 일정하게 유지함으로써 고농도 붕산폐액 처리성능을 개선하였다. 역삼투막 장치의 설계 회수율(30~40%)과 처리과정에서 농축 및 농도분극 현상을 고려하면 막 표면에서의 붕산 농도는 공급수 대비 3~4배가 되고, 40℃에서 붕산의 용해도는 약 14,000 ppm (as Boron) 이므로 40℃에서 처리 가능한 폐액의 붕산 농도 제한치는 4,000 ppm 정도이다.

2.2 오일함유 폐액 및 세탁폐액 처리

액체방사성폐기물 중 바닥폐액에는 오일 성분이 혼입될 수 있으며 오일은 부유입자 또는 고분자 물질과 반응하여 미셀(Micelle) 형태의 오일함유 입자를 형성한다. 세탁 폐액에는 섬유 보풀(Fluff)이 많이 존재한다. 이러한 폐액특성으로 인해 원전의 바닥 및 세탁 폐액을 전처리설비로 처리하는 과정에서 정밀여과(MF) 공정의 침지형 중공사막이 초기에 폐색되어 투과수 유량의 회복이 불가능한 상황에 이르게 된다[1]. 이와 같은 문제점을 해결하기 위해 정밀여과 공정 고액분리조 상부의 폐액 유입구에 오일 및 거대 입자 거름망을 설치하여 오일함유 입자와 보풀을 사전에 제거하는 방안을 강구하였다. 또한 다량의 오일폐액 유입이나 거름망의 장기사용으로 인한 폐색 시 폐액의 유입이 자동으로 차단되고 경보가 발생하여 운전원이 조치를 취할 수 있도록 하였다.(Fig. 2) 거름망으로 사용된 부직포의 규격은 두께 2~3mm, 공경 5~10 μ m 이며 유분 흡착성이 우수하다. 또한 거름망의 교체가 용이하며 폐 거름망의 부피가 작아 처리가 쉬운 장점을 가지고 있다. 따라서 세탁폐액 처리 시에도 정밀여과(MF)막의 처리성능이 유지될 수 있다. 아울러 정밀여과(MF)막에 과다한 부하를 유발할 수 있는 폐액이 전처리설비로 유입될 경우를 대비하여 시간모드 자동 역세운전 프로그램에 진공모드를 도입하여 흡입펌프에 의한 흡입압력(진공)이 제한치에 도달 시 자동으로 역세운전이 진행될 수 있도록 함으로써 막 보호와 수명연장을 도모하였다.

염의 휘발과 응축이 원활히 진행될 수 있도록 온도구배를 조성하는 것이 필요하다. 이를 위해 전산유체모사 프로그램을 이용하여 운전조건에 따른 챔버내 온도분포를 살펴보았으며, 그 결과를 바탕으로 회토류 침전물내 잔류 공용염의 분리 및 회수시험을 실시하였다. 그 결과, 운전온도에서 공용염의 휘발이 활발히 진행될 때 휘발부 온도의 상승이 느려지다가 일정시간 후에 급격히 상승하여 운전온도를 유지하는 현상을 보였으며, 응축부의 온도는 수집도 가장 상승하였다가 감소한 후 일정온도를 유지한 현상을 보였고 내부압력변화는 이러한 응축부의 온도변화와 유사한 경향을 보였다. 이 때 회토류 침전물(약 2kg)내 잔류 공용염은 거의 대부분 분리되어 침전물내에서 검출되지 않았으며, 휘발된 공용염은 99% 이상이 회수용기에서 하나의 덩어리 형태로 회수되었고 그 조성은 순수 공용염의 조성과 거의 일치함을 확인하였다.

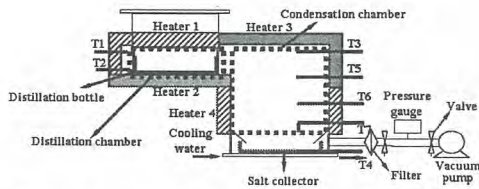


Fig. 1. A schematic diagram of the salt distillation apparatus used in this study.

3. 결론

공용염의 휘발속도와 응축특성을 바탕으로 회토류 침전물내 잔류 공용염을 분리 및 회수하기 위한 장치를 제작하였으며, 그 장치를 이용하여 회토류 침전물내 공용염의 증류시험을 실시하였다. 그 결과 잔류 공용염을 효과적으로 분리 및 회수하여 재활용할 수 있음을 확인하였으며, 공정 효율향상을 위해 챔버내 온도변화 및 압력변화와 챔버내 공용염 거동과의 관계규명에 대한 연구가 추가되어야 할 것으로 사료된다.

4. 참고문헌

- [1] Y. J. Cho, H. C. Yang, H. C. Eun, E. H. Kim and I. T. Kim, Characteristics of oxidation reaction of rare-earth chlorides for precipitation in LiCl-KCl molten salt by

oxygen sparging, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 43, 10, 1280-1286, 2006.

- [2] H. C. Eun, Y. J. Cho, H. C. Yang, H. S. Park, E. H. Kim, I. T. Kim, J. Radioanal. Nucl. Chem., 274(3), 621-624, 2007.
- [3] Garicia E., Dole V. R., Griego W. J., Lovato J. J., Axler K., Distillation separation of actinides from waste salts, Nuclear Materials Technology 1994 report, 61, (1994).
- [4] H. C. Eun, H. C. Yang, Y. Z. Cho, H. S. Park, H. S. Lee, I. T. Kim, J. Radioanal. Nucl. Chem., 280(3), 643-649, 2009.

휘발성 금속염화물 함유 란타나이드 산화물의 고형화

박환서, 조인학, 박현혜, 안병길, 김환영, 김인태, 조용준

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

hspark72@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로프로세싱 공정에서 발생하는 염폐기물내에는 Cs/Sr 및 희토류 산화물이 방사성 핵종으로 존재한다. 산화물 핵연료의 경우에는 Cs/Sr을 포함하는 LiCl-폐기물과 희토류원소를 포함하는 LiCl-KCl 염폐기물이 발생하는 반면에, 금속연료의 경우에는 LiCl-KCl내에 언급된 대부분의 방사성 핵종이 존재하게 된다. 이러한 방사성 폐기물의 처분부피를 감소시키기 위해서 방사성 핵종만을 선택적으로 제거하고 순수염을 재활용하는 기술이 연구되어 지고 있다. LiCl염폐기물은 결정화 기술을 통하여 90%이상의 염이 재활용되고 나머지 10%가 고화처리되어 최종처분되어진다. 산화물 핵연료처리를 위한 파이로프로세싱공정의 LiCl-KCl폐기물은 산소분산 및 잔류염의 휘발을 통해 99%이상 회수되어 재활용되고 나머지 잔류 희토류산화물만 고화처리하여 처분되어진다. 반면에, 금속연료의 처리과정에서 발생하는 공융용염내에는 Cs/Sr 및 희토류 원소를 모두 포함하고 있으며, 하나의 제거기술로는 처리가 쉽지 않아 복합적인 제거기술연구가 KAERI와 INL에서 공동으로 연구가 수행중에 있다. 이러한 폐기물에 대해서 공융용염을 결정화기술을 이용할 경우, 물질계가 복잡하여 모든 방사성 핵종을 농축시키는 데에는 한계가 있어 희토류 원소를 제거하기위해서 동일한 산소분산법을 사용하고, 다시 결정화를 통하여 Cs/Sr등을 농축하는 연구가 수행되어왔다. 그러나, 산소분산에 의한 침전층내에는 방사성 핵종인 Cs/Sr등이 공존하기 때문에 휘발처리하여 재활용하기가 쉽지 않다. 따라서, 휘발성 핵종을 포함하는 침전층을 안정하게 고화하는 연구가 필요하다.

방사성 폐기물로서 희토류산화물은 열적 안정성과 수화학적 안정성을 동시에 가지고 있어 그자체로도 매우 안정한 화합물이며 이를 고형화하기 위한 공정 온도에 현실적 제한은 없으나, 본 연구에서 다루는 휘발성 금속염화물을 포함하는 희토류 산화물로 구성된 폐기물의 경우에는 기존의 고온고화공정기술을 적용하기가 어렵다. 이러한 점에선 본 연구는 휘발

성 핵종의 열적 불안정성을 제거하고 고온에서 고화할 수 있는 방법을 제안하고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

LiCl-KCl공융용염 폐기물내 주요 희토류원소중에서 무게 및 방사능의 중요도를 고려하여 고화대상으로 Y, La, Nd, Ce 산화물을 선정하였다. 금속염화물을 함유하는 모의 희토류산화물 침전층은 침전층내에 존재하는 공융용염의 양을 고려하여 10wt% 금속염화물과 50wt% 금속염화물로 하였다. 이러한 폐기물을 고화하기위해서, $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$ (SAP)물질과 $\text{CaO-P}_2\text{O}_5\text{-SiO}_2$ (CaPS)를 aluminium(III) chloride hexahydrate, TEOS, calcium nitrate 그리고 phosphoric acid를 원료로 하여 슬젤법에 의해 50°C/70°C/90°C/110°C/650°C의 젤형성/숙성/건조/열처리의 단계를 거쳐 분말상으로 제조하였다.

모의 폐기물과 SAP의 반응성을 확인하기 위해 고화매질/폐기물과의 반응비를 변화시켜 650~850°C의 범위에서 반응시켜 반응생성물에 대해 XRD분석을 수행하였다.

CaPS의 경우 각각의 희토류 산화물에 대하여 반응비와 온도를 변화시켜 반응특성을 확인하고자 하였다. 또한 CaPS와 모의 폐기물의 무게비를 2~4로 변화시켜 혼합후 650°C에서 반응시킨 후, TGA분석을 통하여 열감량특성을 확인하였다.

또한 CaPS와 염화물이 없는 희토류 산화물만을 혼합하고 다시 유리매질을 혼합 및 열처리하여 고형화시료를 제조하였다 이때 희토류산화물의 waste loading은 약 33wt%내의이며, 1200°C에서 제조되었다. 이렇게 제조된 시료의 내구성은 PCT-A침출시험법을 이용하여 평가하였다.

2.2 실험결과

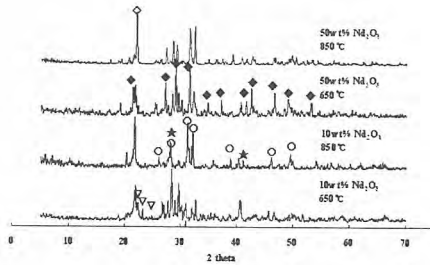


Fig. 1. XRD patterns of reaction products between CaPS and simulated waste (○:apatite ($\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2$), ◆:Monazite(NdPO_4), ▽:Li $_3\text{PO}_4$, ◇:SiO $_2$, ★:KCl)

Fig 1은 CaPS를 이용하여 650°C와 850°C에서 반응시킨 시료의 XRD pattern을 나타낸 것이다. 그림에서 보는 것처럼, Nd의 경우에는 monazite로 전환되는 것을 확인하였으며, Li의 경우에는 Li $_3\text{PO}_4$, K는 결정상은 확인되지 않았으며 미반응의 KCl이 확인되었다. 또한 CaPS내 Ca는 apatite로 전환되며 이때 일정부분의 Cl이 존재하는 것을 확인할 수 있었다. KCl을 제외한 대부분의 원소들이 열적으로 안정한 형태의 화합물을 전환되는 것을 확인하였다. KCl의 주어진 반응비에서 상대적으로 많은 폐기물량을 의미하며 이를 확인하기 위해, 반응비에 따른 열감량특성을 확인하였다.

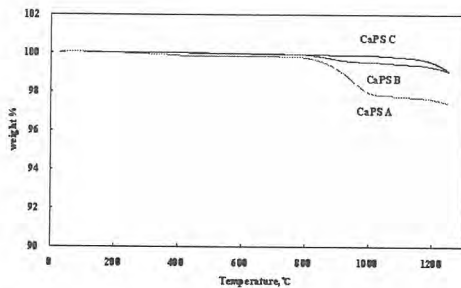
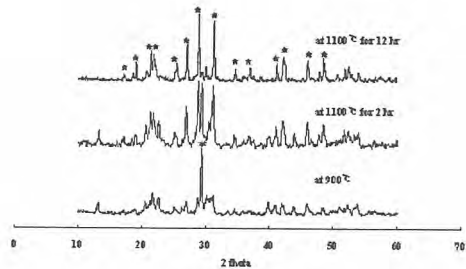


Fig. 2. Thermogravimetric analysis of products preprepared at 650°C and CaPS/salt=2 (Measurement condition: 200ml- O_2 /min, 10°C/min)

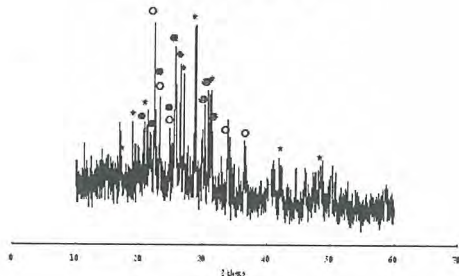
Fig. 2는 CaPS의 조성을 달리하고 CaPS와 금속염화물의 무게비를 2로하여 동일한 온도조건에서 반응시킨 시료의 열감량특성을 나타낸 것이다. 그림에서 보는 것처럼, CaPS C가 1200°C이하에서 1wt%이하의 감량을 나타내는 것을 확인하였다.

Fig. 3은 SAP과 희토류산화물이 포함된 폐기물에 대한 반응후 생성물의 XRD pattern을 나타낸

것이다.



(a) SAP + CeO $_2$



(b) SAP + salt+CeO $_2$

Fig. 3. XRD patterns of reaction products between SAP and rare earth oxide waste

그림에서 보는 것처럼, SAP은 CeO $_2$ 와 반응하여 monazite를 형성하나, salt의 존재유무에 따라 반응온도가 다르게 나타났다. salt가 없는 경우에는 900°C 이상에서 생성되는 반면에 salt가 존재하는 경우에는 650°C에서도 monazite가 형성되었다. 이러한 현상은 CaPS에서도 동일하게 나타났다. 각각의 반응실험후 고화체를 제조하여 침출실험한 결과, CaPS의 경우에는 SAP에 비해 상대적으로 알칼리 원소에 대해서는 낮은 침출저항성을 나타내었으나, 희토류의 고정화관점에서는 란타나이드의 고정화 물질인 apatite형성의 측면에서 유리하다.

3. 결론

본 연구에서는 휘발성 핵종을 함유하는 란타나이드계 산화물의 고화를 위한 기초반응특성을 조사하였다. 이로부터, 침전층내에 금속염화물이 많은 경우에는 salt의 안정화관점에서 SAP이 보다 유리하며, salt의 양이 적은 경우에는 CaPS가 보다 고화관점에서 보다 유리한 것으로 확인되었다. 현재, 고화체의 물리적 특성 및 내구성에 대한 여러 가지 시험방법이 진행 중에 있다.

삼중수소 저장용기 열용량이 삼중수소 열량계 측정성능에 미치는 영향

송규민, 고병욱, 이계우, 손순환, 정양근, 장민호*, 윤세훈*, 강현구*, 조승연*, 정기정*, 정홍석**

한전전력연구원, 대전시 유성구 문지로 65

*국가핵융합연구소, 대전시 유성구 신성로 14

**한국원자력연구원, 대전시 대덕대로 1045

kmsong@kepri.re.kr

1. 서론

국제핵융합실험로(ITER: International Thermo-nuclear Experimental Reactor)는 핵융합연료로 삼중수소를 사용할 예정이다. ITER 운영기간동안 약 18 kg의 삼중수소가 필요한데 월성 TRF (Tritium Removal Facility)나 캐나다 달링튼 TRF로부터 공급될 가능성이 높다. ITER로 운반된 삼중수소는 삼중수소 저장 및 공급시스템으로 장입되기 전, 운반용기에서 인출되지 않는 상태로 재고량을 확인하여야 하는데 이때 삼중수소 열량계를 이용한다[1-3]. 본 연구에서는 ITER 삼중수소 운반용기의 열용량 및 레퍼런스셀의 적용여부가 삼중수소 열량계의 측정성능에 미치는 영향을 살펴보고자 한다.

2. 본론

2.1 실험방법

본 실험에 사용된 열량계는 쉼타렘 580 시리즈 twin cell type이며, 발열량 측정센서로 펠티에소자를 장착하고 있다. 열량계의 성능시험과 검량을 위해 외부에서 전원을 공급할 수 있는 JEC(Joule effect cell)을 이용한다. Figure 1의 (a)가 JEC이며 (b)는 ITER 삼중수소 운반용기에 적용될 알루미늄 2차용기와 유사한 구조와 열용량을 갖는 더미용기이다. 알루미늄 2차용기는 2개를 제작하여 Figure 2와 같이 열량계의 측정셀과 레퍼런스셀에 장착하고 열용량 변화에 따른 열량계 성능특성과 레퍼런스셀 적용여부에 대한 영향을 살펴보았다. 삼중수소 0.1~60 gT 범위에 대한 등가열량인 100~20,000 mW의 열량을 공급하면서 정상상태에 도달하는데 소요시간을 측정하였다. 정상상태 도달여부는 해당시간 이전 30분 동안 펠티에소자에서 측정된 기전력의 %RSD (relative standard deviation) 값이 0.1% 이내에 들어오는

것을 기준으로 삼았다. 0.1%는 ITER 삼중수소 운반용기의 최대용량을 기준으로 약 0.7 gT (≈ 700 Ci)에 해당되는 양이다.

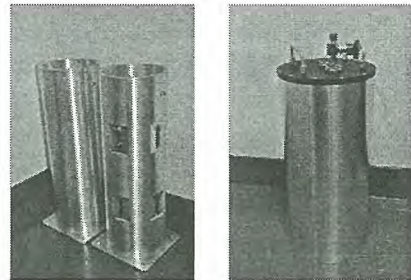


Fig. 1. Joule effect cell and aluminum container

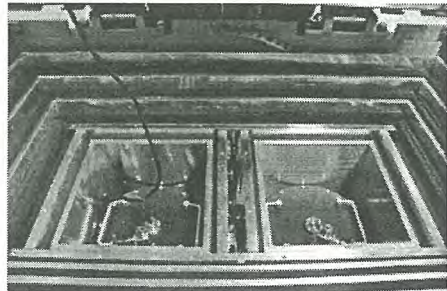


Fig. 2. Al container equipped in the calorimeter

2.2 결과 및 고찰

Figure 3은 JEC와 알루미늄 2차용기를 적용했을 경우 측정시간의 변화를 보여주고 있다. 알루미늄 2차용기는 JEC에 비해 상대적으로 열용량이 큰 편이며 현재 설계중인 ITER 운반용기의 알루미늄 2차용기와 열용량이 유사하다. 그림에서 보듯이 JEC를 적용한 경우 측정시간은 14시간이지만 알루미늄 2차용기를 적용할 경우 20시간이었다. 삼중수소 재고량 측정시간을 줄이기 위해서는 ITER 운반용기의 설계 시 열용량에 대한 고려가 필요하다.

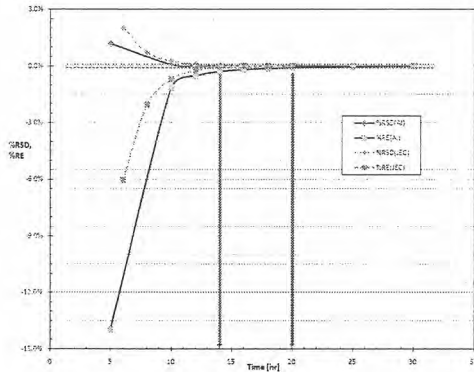


Fig. 3. Effect of heat capacity on measuring time

Figure 4는 레퍼런스셀의 유무에 따른 열센서의 시그널 안정성을 보여주고 있다. 20,000 mW에서는 레퍼런스셀의 유무와 상관없이 열센서에서 감지되는 시그널이 안정적이었지만, 100 mW의 경우 레퍼런스셀을 적용하지 않으면 시그널이 상당히 불안정하며 이로 인한 오차가 발생할 수 있음을 보여주고 있다. 추가 실험에서 500 mW에서도 시그널이 안정적이었다. 또한 실제 삼중수소를 이용한 실험에서 열용량이 작은 용기를 사용할 경우 레퍼런스셀의 적용이 큰 영향을 주지는 않았었다. 하지만 저장용기의 열용량이 큰 상태에서 발열량이 적을 경우 레퍼런스셀에 의한 영향이 있을 수 있다. 따라서 기존 JEC만을 이용한 검량방법 보다는 ITER 운반용기와 동일한 열용량을 갖는 더미용기를 측정셀뿐만 아니라 레퍼런스셀에도 적용하는 것이 정밀도를 높일 수 있음을 알 수 있다.

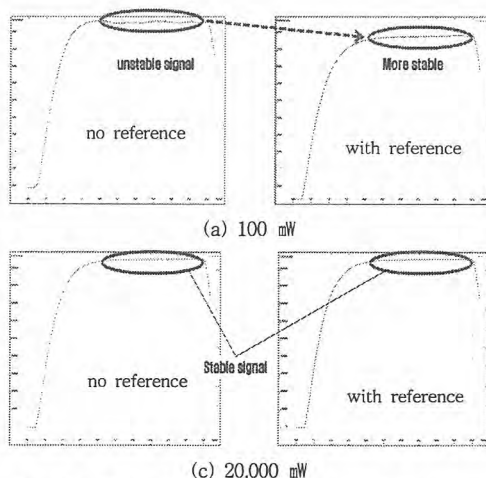


Fig. 4. Effect of reference on signal stability

3. 결론 및 향후계획

삼중수소 저장용기의 열용량과 레퍼런스셀의 유무가 삼중수소 열량계 측정시간과 시그널 안전성에 미치는 영향을 확인하였다. 삼중수소 약 15.43 kCi에 해당하는 500 mW 이상에서는 레퍼런스셀의 적용여부에 대한 영향이 크지 않았지만, 미량의 삼중수소 약 3.09 kCi 이하에 해당되는 100 mW에서는 열센서의 시그널이 안정적이지 못하여 정밀도를 떨어트릴 수 있었다. 또한 알루미늄 2차용기를 적용할 경우 JEC만을 적용하였을 때 보다 측정시간이 6시간 이상 증가하여 저장용기 열용량이 삼중수소 열량계 측정시간에 큰 영향을 주고 있음을 확인하였다.

향후 국제핵융합실험로에 삼중수소를 공급하기 위한 운반용기 설계가 완료되면 이와 동일한 형태와 열용량을 갖는 삼중수소 붕괴열 모사장치를 제작하여 삼중수소 열량계 측정특성을 살펴보고 삼중수소 재고량 측정시간의 예측을 포함한 삼중수소 재고관리 방안을 마련하고자 한다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 국제핵융합실험로 공동개발사업으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] K.-M. Song, "Status of TLS calorimeter development", Bilateral meeting between ITER IO and KO DA, Feb. 2-3, 2010.
- [2] 송규민, 고병욱, 이계우, 손순환, 강현구, 윤세훈, 장민호, 조승연, 정기정, 구대서, 정홍석, "ITER 삼중수소 저장 및 공급시스템의 삼중수소 측정과 재고관리방안", 한국방사성폐기물학회, 2009년 추계학술대회 논문요약집, 5-P-19, 2009
- [3] 송규민, 이계우, 고병욱, 이숙경, 손순환, "민감도 분석에 따른 삼중수소 열량계 운영방안개발", 한국방사성폐기물학회, 2009년 추계학술대회 논문요약집, 5-P-05, 2009

제2분과

방사성폐기물 처리 (Poster)

빈 면

활성탄소 섬유필터를 이용한 요오드 포집 및 감용기술 개발

조여진, 강덕원*

(주)아에리스, 서울시 서초구 반포동 728-36

kd52582314@nate.com

1. 서론

지구상에는 전 세계적으로 약 450여기의 원자력발전소가 현재 가동 중에 있다. 원자로의 가동과 더불어 액상, 고상 및 기상 형태의 방사성 물질들이 지속적으로 생성되며 환경으로의 오염 최소화를 위해 발생 폐기물의 특성에 적합한 다양한 형태의 폐기물 처리체통을 거쳐 정화 처리된 후 잔존 폐기물은 고체방사성 폐기물 형태로 보내지게 된다. 이들 고체폐기물들은 영구처분장에서의 처분비용과 직결될 뿐 아니라 발전 원가에도 지대한 영향을 미치기 때문에 원전 사업자들은 처분장으로 이송 전 다양한 감용기술을 개발, 적용하여 최대한 감용화를 위한 노력을 경주해 오고 있다. 원전에서 발생되는 폐기물 중에서 감용하기가 매우 어려운 폐기물은 폐수지(spent ion exchanger resin)와 공기정화계통(HVAC)에서 사용되는 활성탄필터(chacoal filter)이다. 폐수지는 고분자물질로 만들어지기 때문에 수지의 가교결합만 깨뜨린다면 CO₂와 물로 변화시켜 감용시킬 수 있으나 활성탄의 경우는 원료물질이 야자껍질로 고온에서 태워 만든 물질이기 때문에 부피감용이 매우 어렵다. 원전에서 사용 중인 입상활성탄은 비표면적이 900~1,000m²/g으로 비교적 넓기 때문에 모든 원전에서 I, Xe, Kr등의 기체 방사성핵종을 제거하는데 사용해 오고 있으며 이로 인해 상당량의 고체폐기물이 매년 발생되어 처분비용 증가에 기여해 오고 있다. 이러한 문제점을 해결하기 위해 일본의 경우는, 1980년대부터 기존의 활성탄 대신에 감용비와 방사성기체 제거능력이 뛰어난 대체물질인 활성탄소 섬유필터를 개발해 왔다. 최근 들어, 고성능/고감용 성능을 지닌 세공구조가 10~20Å의 균질한 활성탄소 필터 개발에 성공하였다. 활성탄소 섬유의 비표면적은 1,500~1,800m²/g으로 활성탄에 비해 약 2배정도 비표면적이 넓으며 균질한 제품 생산이 가능할 뿐 아니라 사용된 활성탄소 섬유필터는 감용 및 소각처리가 가능하기 때문에 원전에서의 활용가능성이 매우 높을 것으로 기대된다. 본 논문에서는 원자력발전소의 실적용을 고려하여 활성탄과 활성탄소섬유를 동일한 조건하에서 비교시험(ASTM D3808)한 결과와, 대기환경에 노출시 얼마나 오랫동안 그 성능을 유지할 수 있는지의 여부를 평가하기 위한

대기 노출시험을 수행한 결과에 대해 함께 기술하고자 한다.

2. 본론

2.1 ¹²⁵I에 의한 포집효율 실험 및 결과

본 실험은 의한/약학영역에서 광범위하게 사용하고 있는 실내공기 중의 ¹²⁵I에 대한 활성탄소 섬유필터의 포집효율에 대한 실험으로 일본 게이오대학 의학부에서 3년 동안 수행하였다. 실험은 활성탄소섬유필터(KK, No.900)의 경우는 방사능 농도가 각기 다른 두가지(12,690dpm, 16,470dpm)를 사용하였으며 12매를 장착할 수 있는 먼지제집기(L30.R&M사)를 사용하여 50~80cm/sec의 면속도로 5~30분간 실내습도 80% 이하의 환경 하에서 ¹²⁵I를 포집해 액체섬광측정기로 측정하였다.

분석결과(Fig.1 참조), 6매 이후부터는 1매를 사용했을 때와 비교할 때 극미량만이 통과됨을 알 수 있었다. 5매 이상을 사용했을 때는 공기 중 허용농도((MPC)air)의 1/100까지 화학형에 관계없이 거의 완벽히 포집되었으며 얇은 필터를 사용했기 때문에 계측도 매우 용이하여 5매의 방사능을 한번으로 측정이 가능하게 되어 간이측정도 용이한 것으로 나타났다. 활성탄(CP-20, Toyo Roshi Co.,Ltd)의 경우는, 오랜기간 동안 병원, 학교 및 산업체에서 사용해 왔지만 포집효율이 일정하지 않고 활성탄의 두께도 일정하지 않아 낮은 에너지의 요오드 방사능에 대한 측정효율의 신뢰성이 낮아 분석결과를 보정하여 평가해 왔다. Fig. 2에서 보여준 것처럼 두 개의 실(¹²⁵I 표지름과 동물관리실)에서의 포집효율이 일정하지 않게 나타났으며 동물관리실의 포집효율은 상대적으로 낮게 나타났다.

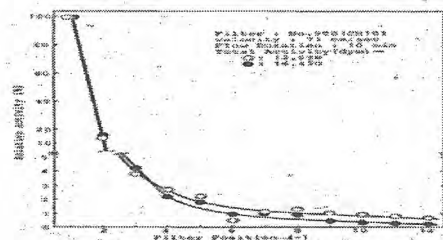


Fig. 1. The Reactivity Activity of each Filter

율은 상대적으로 낮게 나타났다.

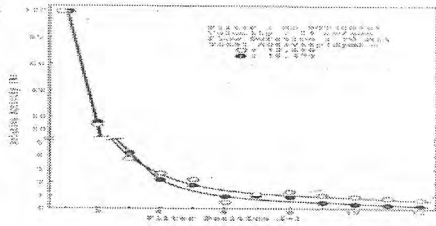


Fig. 1. The Reactivity Activity of each Filter

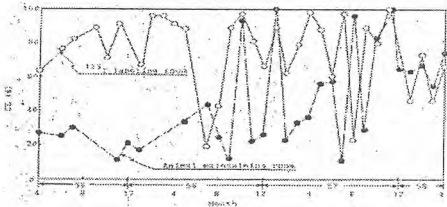


Fig. 2. The Variety of Collection Efficiency on AC

2.2 ASTM D3808과 동일한 시험 및 결과

- 1) 시험조건(미국, NUCON International Inc.에서 시험 수행)
 - 평형조정 준비시간: 16hr, 평형조정 시간: 4hr, 용리/이탈시간: 1hr, 총 20시간 통기.
 - 평가핵종: $\text{CH}_3^{131}\text{I}$, 온도: 30°C , 상대습도: 95%, 면속도: 20cm/sec, 층 두께 50mm
- 2) 시험결과(원자력 시험요구치(ASME AG-1): 97%, Fig. 4 참조)
 - 시험결과 99.999% 이상의 제거효율을 얻음. 이는 두께 150mm 이상의 AC 효율 값에 해당

2.3 대기노출 시험

- 1) 시험조건
 - K형(WAC Filter, TEDA첨착) 필터 사용, 온도: 25°C , 면속도: 8cm/sec, 상대습도: 60% 환경 하에서 365일 대기시험 수행
- 2) 시험결과: K형 활성탄소섬유(3bed)는 365일(1년) 98% 이상의 포집효율 유지(Fig. 3 참조)

2.4 소각처리시 CO_2 발생량 및 감용효과 비교

- 1) 동일 포집효율을 얻는 조건하에서, 입상활성탄은 3년간 트레이형 3대(57kg) 운전시 198kg의 CO_2 를 배출하며 활성탄소섬유는 3년간 트레이형 1대(5kg) 운전시 18kg의 CO_2 가 배출되므로 소각시 활성탄에 비해 CO_2 량을 년간 90% 이상 저감시킬 수 있음.
- 2) 입상활성탄은 트레이 5대(200ℓ) 발생시 별도의 처리 없이 드럼에 담아 처분장으로 이송 처리

해 하나 활성탄소섬유의 재질 특성상 압축처리가 가능하며 압축 시 부피가 약 1/20로 활성탄소섬유를 연소처리 시에는 약 1/1000까지 감용시킬 수 있음.

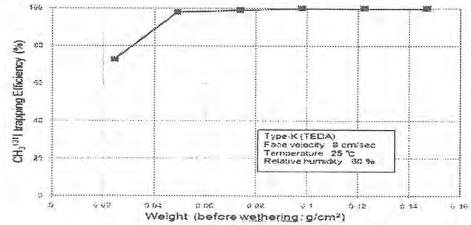


Fig. 3. 365 days Weathering Tests at Steady Condition

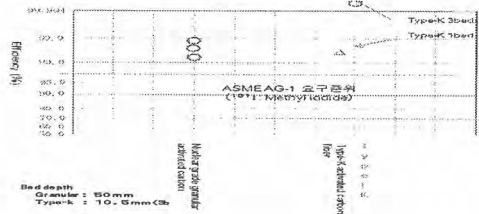


Fig. 4. Comparisons of Performance by ASTM D3808

3. 결론

활성탄소섬유필터(ACF)는 활성탄에 비해 동일 조건하에서 I 제거효율 99.999%, 사용수명 3배, 감용비는 1/20로 성능 및 경제성이 뛰어날 뿐 아니라 1회 장입량도 무게비로 1/10 정도밖에 되지 않아 취급이 용이하다는 장점을 지니고 있다. 또한, 소각처리 시 발생 CO_2 량도 90% 정도 저감시킬 수 있기 때문에 환경 친화적인 기체 정화여과재라고 여겨진다. 이러한 이유로 일본은 동위원소협회의 권고에 의해 향후 2년 내에 병원, 학교 및 산업체에서는 활성탄소필터로 대체 사용토록 강력히 권장하고 있다. 향후, 보다 심도 깊은 원전 실적용 연구가 수행되어 진다면 전 원자력발전소에 확대 적용되어질 수 있을 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

- [1] 나카사또가즈히사 “활성탄소섬유필터에 의한 공기중의 요오드 포집기술” 일본 방사선영양학회, pp.1-4, 1992
- [2] 노가와노리오 “활성탄필터의 현상과 금후의 과제” 동경대학 동위원소협회 pp.22, 2008

석탄회 필터를 이용한 세슘과 몰리브덴의 동시 포집

신진명, 박장진, 이재원, 이정원, 김성훈

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

jipark@kaeri.re.kr

1. 서론

Pyroprocess 공정의 전처리공정으로서 휘발성 산화공정을 도입하면 기존 휘발성 산화공정 채택 시 제거가 안 되는 Cs, I, Tc, Ru, Tc, Mo 등을 제거할 수 있다[1]. 휘발성 산화공정 중 휘발되는 핵종 중의 하나인 세슘은 고방열 및 고방사능 핵종이며 몰리브덴은 방사능은 없으나 발생량이 매우 큰 핵종으로서 적절히 처리하지 않을 경우 냉각시 배기체 처리설비의 관벽에 침적물을 생성한다.

현재 고도 휘발성 산화공정에서 제거된 세슘과 몰리브덴을 동시에 안전하게 포집하는 방법으로 석탄회 필터를 이용하여 이들을 고온에서 안전하게 화학흡착 하는 연구가 진행되고 있다. 향후 석탄회 필터를 고도 휘발성 산화공정의 배기체 처리에 적용하기 위해서는 이를 이용한 세슘과 몰리브덴의 동시 포집특성 자료가 필요하다.

따라서 세슘과 몰리브덴의 동시 포집제로서 화학적 조성의 변화로부터 동시 포집용 석탄회 필터를 제조하였다. 이러한 석탄회 필터를 이용하여 배기체 처리시스템에서 상압하 1000℃의 포집온도에서 세슘과 몰리브덴을 동시 포집하였으며, 이에 대한 포집 특성 평가를 위해 포집 전·후의 무게, XRD, SEM-EDX 등을 분석하였다.

2. 본론

본 실험에 사용된 OTS(Off-gas Trapping System)장치의 설계기준은 pyroprocessing 공정의 기준 핵연료인 PWR (초기농도 : 4.5 wt.%, 연소도 : 45,000 MWd/tU, 냉각기간: 5년)로서 1 batch 기준은 200 gHM 이었다. 배기체 처리시스템은 voloxidizer와 3개의 포집 zone으로 구성되었다. 포집실험은 voloxidizer에서 CsNO₃와 MoO₃를 이용하여 세슘과 몰리브덴 배기체 발생원을 기화시키고 첫번째 포집 zone에서 세슘과 몰리브덴 포집에 필요한 석탄회 필터를 10개를

포집통에 장착하여 기화된 배기체를 포집하였다.

포집 온도 조건은 승온 1시간 후에 첫 번째 포집 zone은 1000℃, 두 번째 포집 zone은 800℃에 도달되도록 한 후 2.5시간 유지시켰다. 각각의 포집 zone이 정해진 온도에 도달한 것을 확인하고, voloxidizer의 온도를 1.5시간 후에 1200℃에 도달하도록 한 후 1시간 유지시켰다. 또한 voloxidizer 가동 시작부터 공기를 0.5 L/min 유량으로 흘려 보내며 포집실험을 수행하였다.

포집 실험 후 CsNO₃와 MoO₃의 휘발률은 총 20.72%이었다. CsNO₃와 MoO₃의 휘발률을 고려하여 무게분석을 수행한 결과, 석탄회 필터 3단 내에서 세슘과 몰리브덴이 포집되었다. CsNO₃와 MoO₃의 잔존물을 XRD로 분석한 결과 Cs₂Mo₃O₁₀, CsAl(MoO₄)_{1.5}(SiO₄)_{0.5} 등 화학종의 생성으로 인해 이들 화합물들의 포화증기압이 세슘과 몰리브덴의 각 포화증기압 보다 낮기 때문에 휘발이 잘 되지 않아 휘발량에 대한 차이가 생긴 것으로 판단된다.

세슘과 몰리브덴 포집 후 석탄회 필터의 모습을 관찰한 결과 필터 1~3단의 색이 검갈색으로 변하였다. 석탄회 필터를 관통한 세슘과 몰리브덴의 농도구배를 측정하기위해서 1단부터 4단까지 필터를 SEM-EDX로 분석하였다. Fig. 1의 SEM 결과에서 보는 바와 같이 세슘과 몰리브덴이 포집된 석탄회 필터 1단부터 3단까지의 상은 개의 등딱지 모양같이 생긴 작고 bulky한 crystal 형태의 pollucite (CsAlSi₂O₆) 형상과 거친 구형입자의 응집체 형태의 powellite(CaMoO₄)로 나타났다. 반면에 세슘과 몰리브덴이 전혀 포집되지 않은 석탄회 필터 4단의 상은 구형의 입자가 소결되어 반쯤 용융된 모습과 기공이 형성된 모습으로서 석탄회 필터 1단부터 3단까지의 상과 전혀 다른 모습을 관찰할 수 있었다. 또한 EDX를 이용하여 석탄회 필터 1단의 표면의 화학적 조성을 분석한 결과 세슘은 22.14 wt.%, 몰리브덴은 31.58 wt.%이고 2단의 경우 세슘은 10.22 wt.%, 몰리브덴은 36.70 wt.%이었다. 따라서 세슘과 몰리브덴이 필

터표면에 잘 포집되어 있음을 확인할 수 있었다. 그리고 석탄회 필터 3단의 경우 세슘은 불검출, 몰리브덴은 39.98 wt.%로서 필터표면에 몰리브덴만 포집되어 있음을 확인할 수 있었다. 또한 석탄회 필터 4단의 경우 세슘과 몰리브덴이 검출되지 않았다. 따라서 세슘은 석탄회 필터 2단 내에 몰리브덴은 3단 내에 포집되었음을 알 수 있었다. 따라서 석탄회 필터를 이용하여 세슘과 몰리브덴이 공기분위기하 1000℃의 포집온도에서 동시 포집이 가능함을 확인할 수 있었다. 또한 세슘과 몰리브덴의 포집 후에 나타나는 석탄회 필터의 결정구조 및 미세 구조변화를 분석하기 위해서 석탄회 필터 1단을 XRD로 분석한 결과 Fig. 2에 제시된 것처럼 세슘과 몰리브덴은 석탄회 필터와 반응하여 세슘은 pollucite($\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$)상으로 몰리브덴은 powellite(CaMoO_4)상으로 포집되었음을 확인할 수 있었다.

3. 결론

고온 휘발성산화공정에서 발생하는 세슘과 몰리브덴의 동시 포집을 위해 석탄회 필터를 제조하여 이들의 포집특성 연구를 수행하였다. 그 결과 석탄회 필터 3단 내에 세슘과 몰리브덴의 동시 포집 가능성을 확인하였다. 세슘과 몰리브덴은 석탄회 필터와 반응하여 세슘은 pollucite($\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$)상으로 몰리브덴은 powellite(CaMoO_4)상으로 포집되어 향후 사용후핵연료 이용시 이들의 동시 포집 가능성이 기대 된다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.(연구과제 고유번호 : 2009-0062283)

5. 참고문헌

- [1] J.J. Park, J.M. Shin, G.I. Park, J.W. Lee1, J.W. Lee2 and K.C. Song, "An Advanced Voloxidation Process at KAERI", Global 2009, Paris, 2009

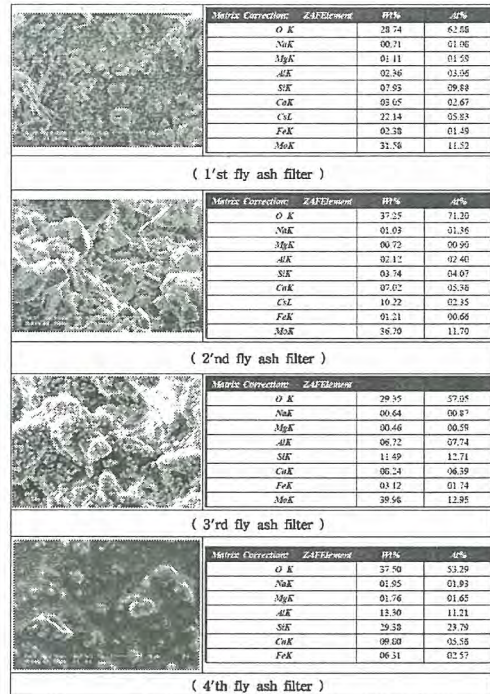


Fig. 1. SEM-EDX analysis from 1'st to 4'th fly ash filters after trapping gaseous cesium and molybdenum

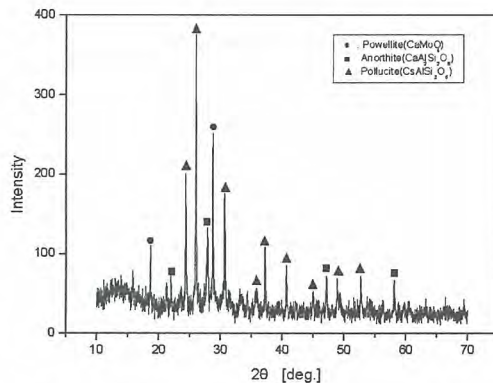


Fig. 2. XRD patterns of 1'st fly ash filter after trapping gaseous cesium and molybdenum

LiCl 및 LiCl-KCl 폐용융염 고화체의 물리화학적 특성평가

박환서, 조인학, 박현혜, 안병길, 김환영, 김인태, 조용준

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

hspark72@kaeri.re.kr

1. 서론

전기화학을 기반으로하는 파이로공정은 전해질을 필요로 하며, 이러한 공정의 과정에서 전해질은 방사성 핵종들로 오염되어 배출된다. 파이로공정에서 사용되는 전해질은 공정의 특성에 따라 여러 가지 전해질을 사용하며, 국내 및 미국의 INL(Idaho National Laboratory)의 전해정련공정에서 금속염화물로서, LiCl-KCl의 공용융염을 사용한다. 이러한 금속염화물은 900℃이하의 온도에서 휘발하는 특성을 가지며 규산질 유리와 상용성이 낮아, 기존의 유리고화법을 이용하여 고화시키기 어려운 방사성 폐기물이다. 이러한 이유로, 미국의 ANL(Argonne National Laboratory)에서는 제올라이트를 이용하여 염화물을 sodalite($\text{Na}_8\text{Al}_6\text{Si}_6\text{O}_{24}\text{Cl}_2$)로 전환하는 방법을 제안하였는데, 수화학적 안정성은 우수한 반면 최종 처분부피가 10배 이상 증가하는 단점을 가지고 있다. 러시아의 경우에는 금속염화물과 상용성이 높은 인산유리를 이용하여 고형화시키는 방법을 제안하였으나, waste loading이 높은 반면에, 고화체가 낮은 화학적 안정성을 가지는 단점을 가진다. 국내에서는 $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$ 를 이용하여 LiCl 폐기물을 탈염소화시킨 후, 고형화 시키는 방법을 통하여 염폐기물에 대해, 상대적으로 높은 waste loading과 화학적 안정성을 가지는 고화체를 제조할 수 있는 대안적인 고화기술을 제안하였으며, 이러한 방법을 LiCl-KCl 공용융염 폐기물에 대해서 적용하는 연구를 수행중에 있다.

본 연구에서는 SAP을 이용한 탈염소화법을 적용하여 파이로프로세싱에서 발생가능한 두가지 폐용융염의 고화특성과 고화체의 물리화학적 특성들을 비교평가하고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

LiCl염으로 구성된 모의 폐기물의 조성은

90wt% LiCl, 6.8wt% CsCl 그리고 3.2wt% SrCl_2 로 하였으며, LiCl-KCl 모의 폐기물은 90wt% LiCl-KCl(eutectic composition), 5wt% CsCl 그리고 5wt% SrCl_2 로 하였다. 상기의 폐용융염을 고화하기 위해 사용된 $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$ (SAP)의 조성은 LiCl염에 대해서는 Si/Al/P=1/1/1.25로, LiCl-KCl폐기물에 대해서는 Si/Al/P=1/0.75/1로 하였다. 상기의 SAP은 aluminium(III) chloride hexahydrate, TEOS 그리고 phosphoric acid를 원료로 하여 솔젤법에 의해 50℃/70℃/90℃/110℃/650℃의 젤형성/숙성/건조/열처리의 단계를 거쳐 분말상으로 제조하였다.

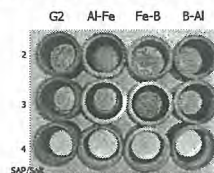
LiCl염에 대해서는 SAP/salt의 비를 2로 하였으며, LiCl-KCl염에 대해서는 SAP/salt의 비는 2~4로 하였다. 이와 같은 무게비로 혼합된 시료를 650℃에서 완전히 탈염소화시킨 후, 붕규산 유리를 25wt% 혼합비로 혼합후 1150℃에서 4시간동안 열처리하여 monolithic wasteform을 제조하여 물리화학적 특성을 평가하였다.

고화체의 분석을 위해, XRD, SEM등을 이용하였으며, 내구성 평가를 위해, PCT-A 및 ISO 동적침출시험법을 이용하여 침출속도를 확인하였다.

2.2 실험결과



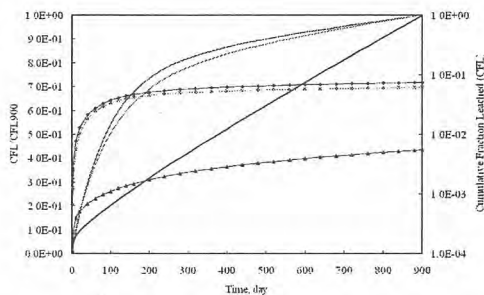
(a) LiCl with different G2 glass mixing ratios



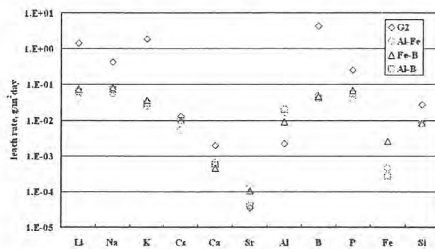
(b) LiCl-KCl with different glass composition

Fig. 1. photographs of wasteform for LiCl and LiCl-KCl waste

Fig 1은 각각의 폐기물에 대해 SAP을 이용하여 탈염소화반응 후 적정 유리매질을 binder로 이용하여 제조한 고화체를 나타낸 것이다. 그림에서 보는 것처럼, LiCl의 경우에는 주어진 조건하에서 대부분의 형상이 매우 균질하여 bulk separation이 없는 것으로 확인되었으나, LiCl-KCl의 경우에는 SAP/salt의 비에 따라 고형화의 정도가 달라지며, 유리의 조성에 따라서도 기포가 발생하는 고형화생성물도 존재하였다. LiCl-KCl의 경우에는 반응비가 3일때 가장 좋은 형상의 고화체를 제조할 수 있었다.



(a) ISO method for LiCl wasteform



(b) PCT-A method for LiCl-KCl wasteform

Fig. 2. Leaching test result by ISO method and PCT-A method.

Fig. 2는 각각의 고화체에 대한 침출시험결과를 나타낸 것으로, LiCl염에 대한 고화체는 유리의 혼합비에 따라 장기안정성에서 차이가 나타났다. 유리함량이 낮은 고화체의 경우, 900일에서 누적 침출분율이 약 7-8%인 반면에 유리함량이 높은 고화체의 경우 누적침출분율은 1%이하로 나타났다. 이때, LiCl염 고화체의 PCT-A의 Cs/Sr의 침출속도는 $10^{-3} \text{g/m}^2/\text{day}$ 이며, 고화체 자체의 침출속도는 $10^{-2} \text{g/m}^2/\text{day}$ 였다. LiCl-KCl염 고화체의 침출속도는 G2 유리를 제외하고 대부분의 원소들이 $10^{-1} \text{g/m}^2/\text{day}$ 이하였으며, Cs/Sr의 경우는

$10^{-3} \text{g/m}^2/\text{day}$ 이하로 나타났다. 이 경우에도 고화체 자체의 침출속도는 $10^{-2} \text{g/m}^2/\text{day}$ 을 유지하였다. LiCl계와 달리 LiCl-KCl에서는 G2유리는 내구성이 낮게 나타나는 것을 확인하였으며, 이는 공용염내의 KCl이 SAP과 반응하여 형성되는 생성물의 상과 밀접한 관계가 있다. 생성물내에 K를 포함하는 상이 주어진 G2유리와 화학적 결합을 통하여 수화학적 안정성이 낮은 쪽으로 전환되어, Li나 K 모두 상대적으로 낮은 침출저항성을 가진다. 이러한 단점은 유리조성에 Fe, Al, B의 조성을 변경하여 상용성과 아울러 화학적 안정성을 높일 수 있으며, 그러한 결과로, G2를 제외한 대부분의 고화체에서는 LiCl염 고화체와 유사한 내구성을 얻을 수 있었다.

현재까지 LiCl염 또는 LiCl-KCl염 고화체의 밀도는 큰 차이를 나타내지 않고 $2.3 \sim 2.4 \text{g/cm}^3$ 을 보였으며, 거의 동일한 탈염소화물질을 사용하기 때문에, 물리적 특성치에서도 큰 차이를 나타내지 않았다.

3. 결론

파이로프로세싱공정에서 발생하는 금속염화물계 방사성 폐기물은 두가지 종류로 배출되며, 본 연구에서는 이와 같은 방사성 폐기물의 고화처리를 위해 SAP으로 명명되는 무기매질을 적용하여 탈염소화 및 고화의 단계를 통해 내구성이 우수한 고화체를 제조할 수 있었다. 동일한 형태의 탈염소화 물질을 적용함에 있어서, KCl의 존재유무는 반응특성, 반응조건, 유리매질의 반응물과의 상용성 및 고화체의 내구성에 큰 차이를 발생시키며, LiCl염에서 적용되는 조건을 동일하게 적용하기보다는 조성의 변경, 반응비의 변경 및 유리조성의 조정이 필요함을 알 수 있었으며, 이를 통해 두가지 종류의 염폐기물을 고형화시켜 동일한 수준의 내구성을 확보할 수 있었다.

LiCl-KCl공용융염내 요오드의 고정화를 위한 고화매질합성: 제올라이트계 물질과 AgI의 고온반응특성

여선옥, 박환서, 조인학, 박현해, 김인태, 조용준
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
sunoky@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 핵연료내 우라늄 및 초우라늄원소의 회수 및 재활용을 위해 연구되고 있는 pyrochemical process를 통해 방사성 핵종을 포함하는 금속 염화물계 방사성 폐기물이 발생된다. 산화물핵연료의 경우에는 고온 전처리공정을 통해 휘발성 핵종이 분리되므로, 염폐기물내에는 휘발성 핵종이 매우 낮은 농도로 존재하는 반면에, 금속연료의 경우에는 휘발성 핵종이 그대로 존재하게 된다. 이러한 휘발성 핵종으로는 장반감기 핵종인 Tc 및 I와 방열성 핵종인 Cs가 주요핵종으로 고려되어, 선택적 제거 및 고화에 대한 연구가 수행되어 왔다. 그중에서 방사성 요오드는 산화물 핵연료의 경우에는 Ag첨착 제올라이트 필터를 이용하여 제거하는 방법을 KAERI에서 연구를 수행하고 있으며, 금속연료의 경우에는 이러한 휘발성 핵종이 공용융염내에 존재하므로, 제올라이트의 기하학적 공극 내에 금속염화물과 같이 고정화시키는 연구를 INL에서 수행하여 왔다.

본 연구팀에서는 금속연료의 전해정련공정에서 발생하는 공용융염의 제올라이트 고화법의 대안적인 방법으로 SiO_2 , Al_2O_3 및 P_2O_5 로 구성된 무기복합체를 이용하여 고화하는 연구를 수행하고 있으며, 반응과정에서 염소와 같이 요오드가 가스상으로 발생되며 이에 대한 처리방법이 요구된다. 요오드의 포집은 Ag-13X와 같은 제올라이트를 이용할 수 있으며, 시멘트 고화법으로 최종처리하는 방법이 제안된 바 있다. 그 외에도, AgI를 제올라이트-4A의 구조내에 고정화시키거나, AgAlO_2 , SiO_2 등을 이용하여 Ag-sodalite로 합성하는 방법 등이 보고되었다.

본 연구는 탈할로젠화 반응을 통하여 배출되는 할로젠의 포집물질을 다공성 AgO로 고려하여, AgCl 또는 AgI로 전환하고 이를 LTA 또는 FAU구조의 제올라이트 공극 내에 고정화하는 개념을 적용하고자 제올라이트와 AgI의 기초반응특성을 평가하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

본 실험에서 사용된 AgI는 AgNO_3 와 NaI를 각 각 물에 녹인 수용액을 혼합하여 AgI로 침전시켜 200℃에서 건조시켜 얻었다. 사용된 상용 제올라이트 Na-4A와 13X 분말을 650℃에서 12시간 열처리하여 제올라이트내에 수분을 제거한 뒤, 알콘 분위기의 glove box내에서 AgI와 혼합하였다. 이때 AgI의 무게비는 10~30wt%로 하였으며, 혼합물은 650℃, 750℃, 850℃와 950℃에서 1시간동안 반응시켜, 무게감량과 XRD분석을 수행하여 결정상의 변화를 확인하였다.

2.2 실험결과

AgI는 용해도(0.000003g/100ml)가 매우 낮은 물질로서, 녹는점은 558℃의 값을 가지나, 약 800℃내외에서 휘발하는 특성을 가진 물질이다. TGA 결과는 나타내지 않았으나, 800℃내외에서 거의 대부분이 휘발되는 것을 확인하였다. 이러한 점을 고려하여, 제올라이트와 반응 시 AgI의 휘발가능성을 보고자 혼합물과의 반응전후 무게변화를 확인하였으며 그 결과를 Fig. 1에 나타내었다.

Table 1. Weight loss after reaction at different temperature

		650℃	750℃	850℃	950℃
4A LTA	AgIwt%				
	0wt%	3.60%	4.20%	5.40%	5.80%
	10wt%	3.56%	4.31%	5.05%	6.14%
	15wt%	3.27%	4.12%	5.06%	6.89%
	20wt%	2.99%	3.78%	5.23%	8.31%
	25wt%	2.84%	3.69%	5.29%	8.83%
	30wt%	2.60%	3.61%	4.91%	8.16%
	0wt%	2.36%	5.31%	6.10%	6.89%
	10wt%	2.53%	4.17%	5.17%	6.16%
	15wt%	2.24%	3.83%	5.43%	7.17%
13X FAU	20wt%	2.29%	3.83%	5.67%	7.60%
	25wt%	2.05%	3.44%	4.54%	6.44%
	30wt%	1.89%	3.24%	4.83%	6.53%

Table 1에서 보는 것처럼, 열처리후 제올라이트에 여전히 일정수분이 존재하며, 온도에 따라 감량이

일어나는 것을 확인할 수 있었다. 이를 근거로 혼합물에서 제올라이트에 의한 무게감량은 wt%에 따라 달라지며, 4A의 경우에는 4.82~6.20wt%, 13X의 경우에는 4.06~5.22wt%의 값을 가진다. 혼합물의 경우, 13X에서는 제올라이트에 의한 무게감량보다 약 4~5wt%의 추가적 감량이 있으며, 4A의 경우 2~3wt%의 감량이 있는 것으로 확인되었다. 값의 차이는 크지 않으나, 상대적으로 LTA 구조의 4A가 AgI의 열적 휘발에 대한 저항성이 더 큰 것으로 확인되었다. 특히, AgI는 800℃에서 휘발되지만, 제올라이트와 혼합된 경우에는 휘발이 되지 않으며 이는 AgI가 제올라이트 공극내에 고정되어 있는 것으로 판단된다.

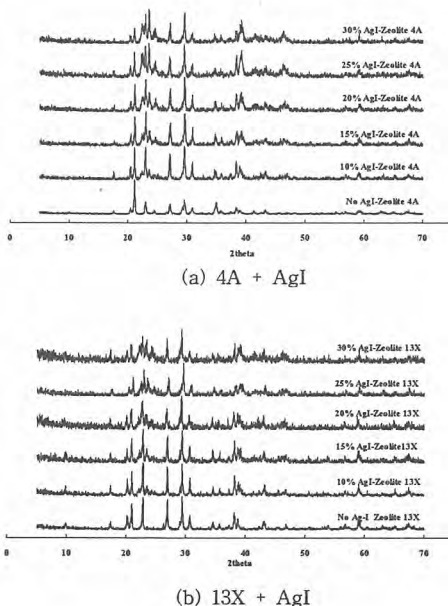


Fig. 1. XRD patterns of products after reaction at 950℃

AgI와 혼합된 제올라이트의 온도에 따른 반응 특성을 XRD 분석을 통하여 조사하였다. 원래의 제올라이트구조는 750℃까지는 유지되었으나, 그 이상의 온도에서는 구조가 변화되는 것을 확인하였다. Fig 1은 혼합물을 950℃에서 반응시킨 후 얻어진 생성물의 XRD patterns을 나타낸 것으로, AgI가 없는 경우에는 4A나 13X는 본래의 LTA 또는 FAU구조가 변화되어 nepheline으로 전환되는 것을 확인하였다. AgI가 존재하는 경우에도 이러한 구조변형을 확인할 수 있었다. 그러나

AgI가 존재하는 경우에는 4A와 13X 모두 AgI의 혼합비에 따라 특성피크들의 강도와 위치들이 점진적으로 변화되어 가는 것을 볼 수 있다. 앞서 언급된 것처럼, AgI 자체의 휘발은 800℃내외에서 일어나는 반면에, micropore를 가진 제올라이트와 접촉 시에는 용융된 AgI가 공극내에 occlusion되고 이러한 현상이 휘발특성을 제어함으로서, 실험 결과에서처럼, AgI의 휘발이 거의 없는 결과를 나타내었으며, 750℃이상의 온도에서 제올라이트와 반응하여 다른 형태의 결정상으로 전환되어가는 것으로 보여진다.

3. 결론

본 연구는 공용융염계 염폐기물을 처리하는 과정에서 탈할로젠화 반응에 의해 배출되는 요오드의 제거물질로, AgO를 고려하여 요오드를 AgI로 전환시킨 후, 잘 알려진 요오드 고정 Ag-sodalite의 합성을 목표로, 기본적인 반응특성을 조사하였다. 고온에서 AgI의 휘발특성은 제올라이트와 접촉시, 휘발특성이 거의 사라짐을 확인하였으며, AgI의 함량변화에 따른 결정상의 점진적 변화를 확인하였다. 13X 보다는 4A가 휘발특성의 측면에서 고정화에 더 유리하나, 당량적 반응실험과 추가적인 고온반응 실험을 통해 적절한 제올라이트계 물질을 선정할 계획이다.

폐순환냉각수계통 무용존산소 방식특성 평가

이지훈, 양호연, 이정진

한국수력원자력(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1

jihoon@khnp.co.kr

1. 서론

원자력발전소 폐순환냉각수계통의 방식법은 방식제를 사용하는 방법과 방식제를 사용하지 않는 무화학제 방법으로 나눌 수 있다. 일반적으로 폐순환냉각수계통은 적절한 농도범위의 방식제를 주입하여 계통을 구성하는 기기와 배관의 부식을 방지하지만 방식제를 사용하지 않는 무화학제 방식으로도 폐순환냉각수계통의 부식 조절이 가능하다.[1] 무화학제 방식법에 속하는 무용존 산소 방식은 폐순환냉각수계통의 냉각수에서 이온성 불순물과 용존산소의 농도가 낮으면 현저하게 낮은 부식률을 갖는 안정 산화막이 탄소강 표면에 형성되는 원리를 이용한 것이다. 불순물의 농도는 입자상에 대해서는 여과기에 의해, 이온성 불순물에 대해서는 탈염기에 의해 조절한다. 방식을 유지하기 위해서는 폐순환냉각수 계통에서의 산소농도와 거의 같은 농도로 보충수의 산소농도를 유지하는 것이 중요하다. 본 연구에서는 폐순환 기기냉각수계통의 무용존산소 운전의 방식효과를 규명하기 위하여 냉각수계통에 사용되는 탄소강 재료를 이용하여 부식특성 평가를 수행하였다.

2. 실험방법

무용존산소 부식특성 평가재료는 폐순환냉각수계통 배관 재질로 사용되는 탄소강(SA106 Gr.B)과 폐순환냉각수계통열교환기 shell side 재질인 탄소강(SA516-70)을 이용하였다. 시편준비는 ASTM G 1-03 "Standard Practice for Preparing, Cleaning, and Evaluating Corrosion Test Specimens"를 준용하였으며, 전면부식 시험은 ASTM G 31-72 "Standard Practice for Laboratory Immersion Corrosion Testing of Metals"를 준용하였다. 시편준비는 먼저 모재에서 절단하여 Fig. 1(a)에 도시한 바와 같은 형태의 시편을 가공한 후, 실험에 사용하기 전 #1500 emery paper를 이용하여 연마하였고 최종적으로 1 μ m의 알루미나 분말을 이용하여 연마하였다. 연마된 시편은 아세톤과 에탄올에서 초음파 세척/건조 한 후 0.1 mg 단위의 전자저울을 이용하여 초기 무게를 측정하여 기록하였다. 무게 측정이 완료된 시편은 알코올에 담가 보관하였으며, 시편홀더에 시편을 장착하기 위하여 가공된 구멍의 내부 면적까지 고려한 시료의 총 표면적은 256.28 mm²로 측정되었다. 전면부식실험은 Fig. 1(b)에 나타난 탈염수가 들어있는 부식실험용 초사용기를 이용하여 수행되었다. 실험 종료 후 반응기로부터 시편을 추출하여 아세

톤을 이용한 초음파 세척을 수행하였으며, 부식량을 측정하기 위하여 0.1 mg 단위의 전자저울을 이용하여 실험 후 무게를 2회에 걸쳐 측정하고 기록하였다. 또한 부식 시편을 집사 촬영하여 부식이 진행함에 따른 시편의 외면 상태의 변화를 함께 관찰하였다.

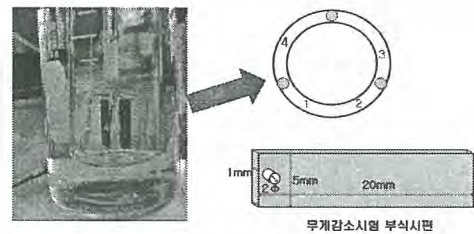


Fig. 1. Experimental apparatus for corrosion test

3. 결과 및 고찰

폐순환냉각수계통을 구성하는 소재 중에서 탄소강 재질에 대한 무용존산소 방식특성을 평가하기 위하여, 탈염수 중의 용존산소를 제거하기 위하여 질소가스로 약 2시간 동안 탈기한 시료와 산소가 포화된 상태의 시료를 이용하여, 실험용액의 온도를 90°C로 유지한 상태에서 시간에 따른 시편의 표면 상태 변화와 무게 변화량을 측정하였다.

표면 관찰 및 무게 측정은 실험 시작 후 각각 24시간, 72시간 이 경과된 후에 실시하였다. Fig. 2와 Fig. 3은 SA106 Gr.B 강과 SA516-70 강의 용존산소 조건별 시편 표면을 관찰한 사진이다.

SA106 Gr.B 강의 무용존산소 조건 부식은 Fig. 2(a), (b)에 보인 바와 같이, 초기에는 경미한 균일부식과 부분적인 국부부식이 발생되고 있으나 산소포화조건에 비하여 국부 부식정도가 낮은 것이 관찰되었다. 이는 무용존산소 조건에서 형성된 magnetite(Fe_3O_4)는 용존산소를 제거함으로써 전면부식 속도를 대폭 감소시킨 것으로 판단된다. 반면에 Fig. 2(c), (d)에 나타난 산소포화 조건에서는 초기부터 국부적인 부식이 발생되어 전체적으로 국부부식이 심화되는 부식 거동을 확인하였다. 산소포화 조건에서는 SA106 Gr.B 강의 미세조직을 구성하고 있는 ferrite와 pearlite의 부식 민감도 차이로 인하여 pearlite 조직에서 부식이 활성화되기 때문인 것으로 풀이된다.[2,3]

Fig. 3에 나타난 SA516-70 강 의 경우에도 전체적인 부식 경향은 SA106 Gr. B와 유사하였다. 무용존산소 조건의 경우에는 부식시편 표면에 전체적으로 균일한 부식 반응이 일어났으나, 산소포화 조건에서는 선택적 국부부식이 발생하여 균일부식의 형태로 진전하고 있음을 알 수 있다. 육안 관찰로도 SA516-70 강이 SA106 Gr.B 강에 비하여 전체적으로 부식이 많이 되고 있음을 확인할 수 있으며, 산소포화 조건에서는 hematite (Fe_2O_3)가 주로 발생되어 붉은색의 산화철이 부식시편 표면에 부착되어 있는 것을 관찰할 수 있다.

각각의 재료에 대한 시간에 따른 부식물을 도식화하여 Fig. 4 와 Fig. 5에 실었다. 산소 포화 조건의 경우는 SA106 Gr.B 강에 비하여 SA516-70 강 의 초기 부식률은 2배 이상 높았으나, 시간이 경과함에 따라 표면에 부식생성물 피막이 형성되면서 부식률은 두 재료 모두 대폭 감소하였다.

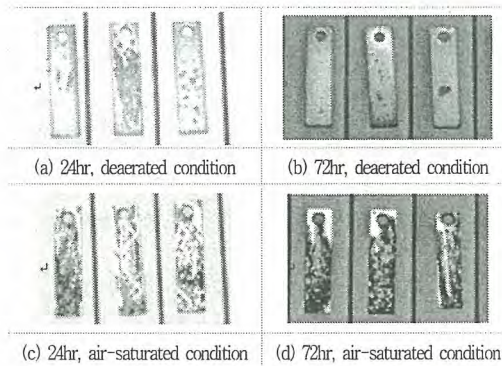


Fig. 2. Surface change of SA106 Gr.B carbon steel by general corrosion, 90°C

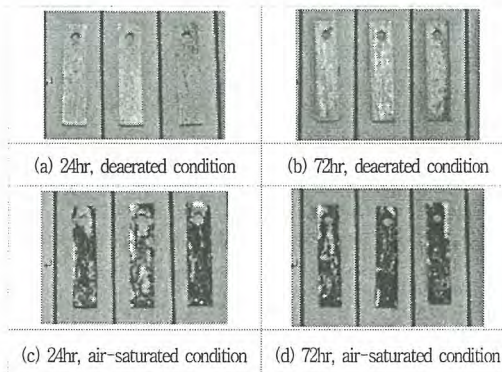


Fig. 3. Surface change of SA516-70 carbon steel by general corrosion, 90°C

무용존산소 조건의 경우에도 시간이 경과함에 따라 부식률이 감소하는 경향이 나타났으나, 산소 포화 조건에 비하여 초기 부식률은 현저하게 낮음을 알 수 있다. 현재까지의 분석 결과는 표면에 부착되어 있는 잔류 부식생성물 피막의 무게 영향이 포함되어 있으므로, 진행 중인 부식생성물 제거 시험이 완료된 후에는 무용존산소의 방식특성이 더욱 두드러지게 나타날 것으로

예상된다.

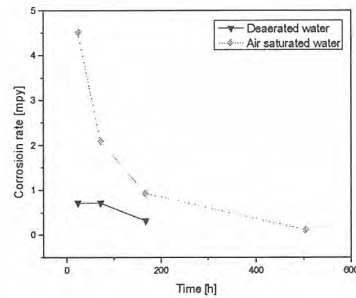


Fig. 4. Corrosion rate vs time (SA106 Gr.B carbon steel)

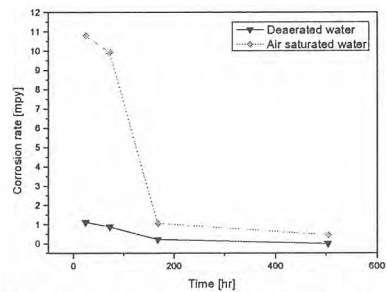


Fig. 5. Corrosion rate vs time (SA516-70 carbon steel)

4. 결론

폐순환기냉각계통 무용존산소 운전의 방식효과를 규명하기 위하여 냉각계통에 사용되는 탄소강 재료를 이용하여 부식특성 평가를 수행하였다. 부식특성 평가로서 전면부식시험을 수행된 결과 산소포화조건에서 보다 무용존산소 운전의 경우에 부식률이 저감됨을 확인하였다. 무용존산소 운전에 의한 방식효과는 부식률이 높은 SA516-70 강에서 더욱 뚜렷하게 나타났다.

5. 참고문헌

- [1] EPRI, TR1007820, closed cooling water chemistry Guideline, Revision 1, 2004.
- [2] EPRI, NP-2853, The general and localized corrosion of carbon steel and low-alloy steels in oxygenated high-temperature water, 1983.
- [3] V, V Kalmykov, et al., Influence of the structure of structural steel on its corrosion in acidic media, Material Science, Vol. 35, No.2. 1999.

무기합성복합체의 Al/Fe 조성변화에 따른 LiCl염폐기물의 고형화 특성

조인학, 박환서, 박현혜, 김인태, 조용준
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
choinhak@kaeri.re.kr

1. 서론

사용 후 핵연료의 우라늄을 회수하면서 동시에 부피감소와 처분 전처리 대안공정으로 개발되고 있는 건식처리(pyroprocessing)는 일련의 전해공정을 기반으로 하기 때문에 LiCl 또는 LiCl-KCl로 구성된 염화물계 방사선 폐기물이 발생된다. 금속염화물은 높은 휘발특성과 높은 용해특성으로 인하여 유리고화 공정이나 시멘트 고화공정과 같은 기존의 고화방법에 적용하기 어렵기 때문에, 금속염화물의 물리화학적 특성을 변화시켜 고화에 용이한 물질로 전환하는 것이 필요하다. 미국의 ANL에서는 제올라이트를 이용하여 염화물을 sodalite($\text{Na}_8\text{Al}_6\text{Si}_6\text{O}_{24}\text{Cl}_2$)로 전환하는 방법을 제안하였는데, 수화학적 안정성은 우수한 반면 최종처분부피가 10배 이상 증가하는 단점을 가지고 있다. 또한 인산염유리를 이용한 고화방법도 연구되었지만, 최종처분되는 부피는 상대적으로 낮으나 낮은 수화학적 안정성과 아울러 용융장치의 부식에 대한 문제가 발생된다. 이러한 직접 고화방법과 아울러 최종처분부피의 감소를 위해 공용용염내 핵종분리를 통하여 배출되는 폐기물을 최소화하는 방법이 연구되어 지고 있다. 이러한 공정을 통해 배출되는 폐기물은 여전히 공용용염이 잔존하여 배출되므로, 직접고화 및 핵종분리를 통한 고화를 고려할 때, 항상 공용용염의 안정화에 대한 고려가 필요하다. 이러한 특성을 고려하여, 공용용염이 가지는 열적 화학적 불안정성을 제거하는 방법으로, 무기합성복합체를 이용하여 탈염화 후, 고화매질을 이용하여 고화하는 방법이 연구, 개발되었다. 본 연구팀에서는 솔젤법을 이용하여 $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$ 로 이루어진 무기합성복합체에 FeCl_3 를 첨가하여 Al/Fe 조성변화에 따른 금속염화물계에 대한 탈염소화 반응특성을 살펴보았다. 무기합성복합체를 이용하여 금속염화물과 반응시켜 얻어진 생성물을 유리와 혼합하여 고온열처리함으로써 균질 고화체를 제조하였다. 본 연구에서는 이와 같은 방법으로 제조된 고화체의 물리화학적 특성을 조사

하고자 하였다.

2. 본론

$\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, H_3PO_4 , FeCl_3 및 TEOS(tetraethyl orthosilicate, Aldrich, Germany)를 원료로 하여, 표 1과 같이 상기의 원료의 물비를 변화시켜 sol-gel 법을 이용하여 무기합성복합체를 제조하였다.

Table 1. composition of $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$ (SAP)

	SAP1	SAP2	SAP3	SAP4	SAP5
H_3PO_4	1	1	1	1	1
TEOS	1	1	1	1	1
$\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	1	0.75	0.5	0.25	-
FeCl_3	-	0.25	0.5	0.75	1

사용된 모의 LiCl염폐기물은 90wt%의 LiCl, 6.8wt% CsCl 그리고 3.2wt%의 SrCl_2 로 이루어져 있으며, 이를 무기합성복합체 $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$ 와 무게비가 1:2가 되도록 하여 혼합하여 650°C에서 24시간 반응시켰다.

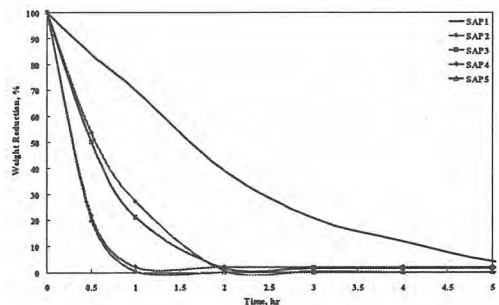


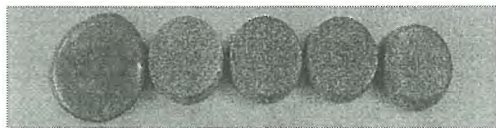
Fig. 1. Weight reduction after dechlorination of LiCl by using SAP series.

Fig. 1에서 볼 수 있듯이 무기합성복합체에서 Fe의 조성비가 증가할수록 무게감량이 효과적으로 발생되었으며 이를 통해 Fe의 조성비가 증가할수록 탈염소화 반응속도 또한 증가함을 알 수 있다. 또한, 반응이 종료되었을 때 감량된 무게는

금속염화물내 염소가 모두 제거되었을 때 나타나는 이론적인 무게감량 값에 근접하여 무기합성복합체를 이용한 금속염화물의 탈염소화가 효과적임을 알 수 있다. 탈염소화 반응 후 생성물을 유리와 혼합시켜 1150 °C에서 3시간 동안 열처리하여 균질 고화체를 제조하였다. 표 2에 나타낸 바와 같이, glass A는 일반적인 봉규산 유리의 조성이고, glass B는 열적 안정성을 높이고자, Fe 함량을 높였다.

Table 2. Composition of glasses (wt%)

	glass A	glass B
Al ₂ O ₃	8.84	11.54
B ₂ O ₃	22.84	5.77
CaO	1.6	15.38
Fe ₂ O ₃	0	11.54
Na ₂ O	7.74	5.77
SiO ₂	58.98	50



(a) SAP1 (Al/Fe=1/0)



(b) SAP2 (Al/Fe=0.75/0.25)



(c) SAP3 (Al/Fe=0.5/0.5)



(d) SAP4 (Al/Fe=0.25/0.75)



(e) SAP5 (Al/Fe=0/1)

Fig. 2. Photographs of solidified products containing LiCl waste salt with changing of Al/Fe mole fraction in SAP.

(Temperature : 1150 °C)

Fig. 2는 무기합성복합체에서 Al/Fe 함량에 따른 LiCl 염폐기물의 고화체의 사진을 나타낸 것이다. 사진의 왼쪽부터 순서대로 glass A를 25wt%, glass B를 25wt%, 30wt%, 35wt%, 40wt% 로 혼합시켜 제조하였다. 무기합성복합체에서 Fe의 함량이 높아질수록, 이를 이용해 얻어진 생성물과 유리를 혼합시켜 제조한 고화체의 형상이 불안정한 것을 알 수 있었다. 또한, 열적 안정성을 높이고자, Fe를 첨가한 glass B의 혼합비가 증가될수록, 제조한 고화체의 형상 역시 불안정한 것을 확인하였다.

3. 결론

이 실험의 결과로서 무기합성복합체에서 Fe의 조성비가 증가할수록 금속염화물에 대한 탈염소화 반응속도가 빨라짐을 알 수 있었다. 탈염소화 후 생성물을 유리와 혼합시켜 1150 °C에서 제조한 고화체의 경우 무기합성복합체에서 Fe의 함량이 높아질수록, 이를 이용해 얻어진 생성물과 유리를 혼합시켜 제조한 고화체의 형상이 불안정한 것을 알 수 있었다. 이를 통해서, 유리의 조성에서 Fe의 함량을 조절함으로써 열적 안정성이 높은 고화체를 제조할 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

- [1] Environmental Science & Technology, "Stabilization/solidification of radioactive molten salt waste via gel-route pretreatment", 41, 1345, 2007
- [2] Environmental Science & Technology, "Stabilization/Solidification of Radioactive Salt Waste by Using xSiO₂-yAl₂O₃-zP₂O₅ (SAP) Material at Molten Salt State", 42, 9357, 2008

LiCl-KCl 공용융염 폐기물과 무기복합체의 탈할로겐화 반응특성

박현해, 박환서 조인학, 김인태, 조용준
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
parkhh@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 핵연료내 U 및 TRU의 회수공정으로 연구되고 있는 pyrochemical process는 일련의 전기화학적 공정으로 이루어져 있으며, 각각의 공정에 따라 LiCl 또는 LiCl-KCl의 전해질을 사용하며 이 과정에서 방사성 핵종을 함유한 방사성 염 폐기물이 발생된다. 전해환원공정에서 배출되는 LiCl 염내에는 Cs 및 Sr이 주요 핵종으로 존재하며, 전해정련공정에서 배출되는 LiCl-KCl 공용염 내에는 희토류 핵종들이 주로 존재한다. 반면, 금속핵연료의 경우에는 전해환원공정 없이 전해정련공정만을 이용하여 배출되는 LiCl-KCl 공용염 내에 Cs과 Sr 및 희토류 핵종들을 포함한 대부분의 방사성 핵종들이 존재하게 된다.

미국의 Argonne National Laboratory(ANL)에서는 체올라이트를 이용하여 전해질로 사용되는 금속염화물을 sodalite로 상 전환시켜 부수적으로 핵종의 안정화를 유도하는 방법을 개발하여 실증실험 중에 있다. 고화체의 내구성은 우수한 반면에 안정화의 관점이 전해질인 Cl에 치우쳐 있기 때문에 최종 처분되어지는 고화체의 부피가 상대적으로 크다는 단점을 가진다.

본 연구에서는 Cl로 발생되는 고화체 부피증가 및 공정제한의 문제점을 해결하기 위한 방법으로, 적정온도에서 효과적으로 탈염화반응을 유도할 수 있는 무기합성복합체인 SAP(SiO₂-Al₂O₃-P₂O₅)를 기본 탈염화물질로 고려하여, Ag 및 B의 산화물이 첨가된 modified SAP의 탈할로겐화 반응특성을 평가하고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

공용융염의 안정화, 고형화를 위해 이용한 유기합성 매질인 SAP은 Aluminium(III) chloride hexahydrate, TEOS 그리고 phosphoric acid를 원료로 하였다. 또한 Ag의 합성을 위하여 AgNO₃을

사용하였으며, B의 합성을 위하여 H₃BO₃의 시약을 원료로 하였다. 이렇게 sol-gel 법으로 합성한 SAP gel을 oven에서 50℃로 24시간 gel을 형성시키고, 70℃의 oven에서 120시간 gel을 안정화시켰다. 이렇게 안정화시킨 SAP gel을 수분과 용매를 건조하기 위하여 110℃ oven에서 48시간 건조하였다. 이렇게 건조된 SAP를 전기로를 이용하여 650℃에서 약3시간 열처리한 후에 디스크밀을 이용하여 분쇄하여 분체상태로 생산하였다.

또한 본 연구에서 사용된 방사성 폐기물의 모의 시약으로 LiCl, KCl 그리고 MI(LiI, KI, NaI, CsI)를 사용하였다.

반응실험은 SAP와 LiCl-KCl 공용융염과 MI(이하 Li-K-MI라고 함)을 각각 3대 1의 무게 비율이 되도록 배합하였다. 이렇게 혼합된 SAP과 Li-K-MI를 전기로를 이용하여 산소분위기에서 각각 350℃, 450℃, 550℃, 650℃, 750℃온도에서 반응실험을 실시하였다. 이때, MI(LiI, KI, NaI, CsI)는 LiCl-KCl대비 10wt%가 되도록 하였다.

2.2 실험결과

SAP과 LI-K-MI의 혼합물의 온도별 무게 감량 측정 결과를 Fig.1., Fig 2. 그리고 Fig 3에 나타내었다.

Fig 1.에 나타낸 SAP 1071의 MI(LiI, KI, NaI, CsI)종류에 따른 온도별 무게 변화를 보면 LiI>KI>CsI>NaI 순으로 무게 감량이 일어난 것으로 나타났다. 특히 550도 이상에서는 LiI를 첨가한 SAP 1071의 경우 이론적 감량비에 약 98wt.%이상이 감량 되었으므로 나타났다. 또한 KI, NaI그리고 CsI의 경우 각각 약 80에서 83%이상이 감량되는 것으로 나타났다.

또한 Fig 2.에 나타낸 SAP-Ag의 MI(LiI, KI, NaI, CsI)종류에 따른 온도별 무게 변화를 보면 LiI>KI>CsI>NaI 순으로 무게 감량이 일어난 것으로 나타났다. 특히 550도 이상에서는 LiI를 첨가한 SAP-Ag의 경우 이론적 감량비에 약 86wt.%이상이 감량을 나타냈다. 또한 KI, NaI그

리고 CsI의 경우 각각 약 76에서 77%이상이 감량 되는 것으로 나타났다.

또한 Fig 3.에 나타낸 SAP-B의 MI(LiI, KI, NaI, CsI)종류에 따른 온도별 무게 변화를 보면 $LiI > KI > CsI > NaI$ 순으로 무게 감량이 일어난 것으로 나타났다. 특히 550도 이상에서는 LiI를 첨가한 SAP-B의 경우 이론적 감량비에 약 94wt.% 이상이 감량된 것으로 나타났다. 또한 KI, NaI 그리고 CsI의 경우 각각 약 86에서 91%이상이 감량 되는 것으로 나타났다.

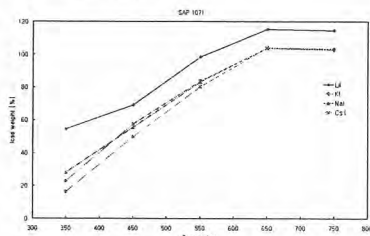


Fig. 1. Dechlorination rate with temperature for SAP 1071.

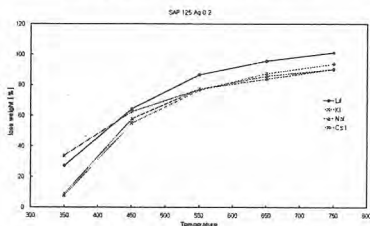


Fig. 2. Dechlorination rate with temperature for SAP125 Ag0.2

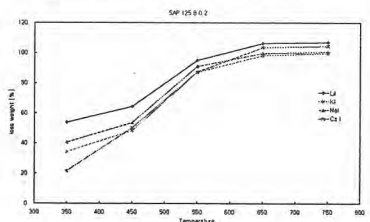


Fig. 3. Dechlorination rate with temperature for SAP 1071.125 B0.2

SAP 1071, SAP-Ag 그리고 SAP-B의 무게 감량 비교한 결과 550도에서 LiCl-KCl 공융염 LiI의 무게 감량 결과 $SAP\ 1071 > SAP\ 125\ -B0.2 > SAP\ 125\ -Ag\ 0.2$ 의 순으로 같은 온도조건에서 무게 감량을 나타낸 것으로 나타났다.

SAP 1071과 SAP125 B0.2는 750도 반응실험 후 KCl은 나타나지 않았으며 결정상 SiO_2 외에 금속

염화물의 특성피크는 확인되지 않았다. SAP 125 Ag0.2에서는 반응실험 후 결정상 SiO_2 외에 AgCl의 형성을 확인할 수 있었다.

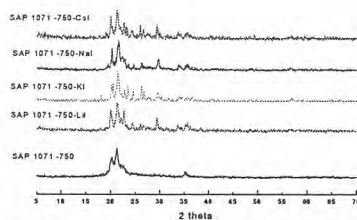


Fig. 4. XRD pattern of SAP 1071-750 after reaction at 750°C.

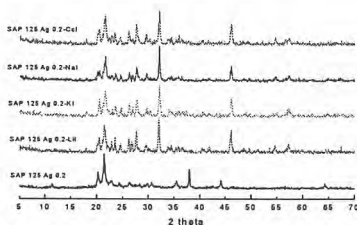


Fig. 5. XRD pattern of SAP125 Ag0.2 after reaction at 750°C

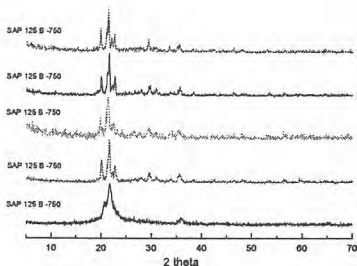


Fig. 6. XRD pattern of SAP125 B0.2 after reaction at 750°C.

3. 결론

공융용융내 존재하는 할로젠원소들은 SAP과 반응하여 가스상으로 방출되며, Ag나 B의 첨가된 SAP의 경우 탈할로겐화율이 낮게 나타났음을 확인하였다. 이는 SAP의 조성변화에 의해 탈염소화와 탈요오드화 반응특성이 변화되었음을 의미하며, 할로젠중 방사성 핵종인 요오드의 선택적 고정화의 가능성을 보여주는 결과이다. 이에 대한 분석시험이 현재 진행 중에 있다.

폐지르칼로이 피복관의 전해정련을 통한 지르코늄 회수 타당성 예비평가

박창제, 강영호, 이성재, 양재환, 나상호, 심희진, 강권호, 이정원

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

cipark@kaeri.re.kr

1. 서론

경수로 핵연료집합체 중에서 피복관은 약 16 wt%를 차지하며 약 98%의 지르코늄과 주석 1.6% 및 철, 크롬을 포함한 불순물을 포함한 지르칼로이 합금으로 구성되어 있다. 이러한 피복관은 금속폐기물로 분류되어 용융이나 압축되어 처분장으로 보내진다. 본 연구는 폐피복관을 전해정련 공정을 이용하여 지르코늄을 회수하는 기존 외국의 선례를 조사하고 폐피복관에 대해 방사화 특성 평가를 수행하여 전해정련시 영향을 줄 수 있는 원소에 대한 함유량 평가를 수행하였다.

2. 본론

2.1 전해정련을 통한 지르코늄 회수 외국 사례

1865년에 최초로 Troost 등은 용융 나트륨과 K_2ZrF_6 를 전기분해하는 것을 시도하였다고 보고하고 있다. 그 후 Wedekind와 Marden은 이 방법으로 다공성 지르코늄 분말을 회수하는데 성공하였다. 1932년경에 Driggs 등은 NaCl-KCl 용융염에 K_2ZrF_6 를 첨가하여 전기분해로 지르코늄을 회수하는데 성공하였다. 그 후 Kirichenko 등은 $AlCl_3$ -KCl-NaF 용융염에 $ZrCl_4$ 를 첨가하여 300 °C ~ 500 °C로 가열하여 전기분해를 성공하였다. 음극은 구리를 이용하였고 양극은 알루미늄이나 흑연을 사용하였다. 그 외에도 NaCl-KCl 및 KF 등의 혼합 용융염을 시험하였다. 이 방법을 이용하여 Stenberg 등은 약 99%의 순도의 지르코늄을 회수하는데 성공하였다. 1961년에 Baker 등은 NaCl 용융염에 K_2ZrF_6 를 약 6 wt% 추가하고 0.2 V ~ 0.7 V의 전압을 가하여 1103 K에서 지르코늄을 87% 회수하였다고 보고하였다.[1] 그리고 1987년에는 Chintamani와 Shehra 등은 NaCl에 32 wt%의 K_2ZrF_6 용융염을 추가하여 1123 K에서 8 V 이하로 가하여 60%정도의 지르코늄을 회수하였다.[2] NaCl 용융염에 NaF 및 $ZrCl_4$ 를 약 8 wt% 추가하여 1123 K에서 1.2 V의 전압을 가하

여 약 60%의 지르코늄을 회수하는데 성공하였다.[2] 최근 일본에서는 Fujita 등은 LiCl-KCl 용융염에 LiF를 약 10 mol%를 추가하여 923 K에서 0.1 A/cm²의 전류를 가하여 99% 이상의 지르코늄을 회수하는데 성공하였다.[3] 이용된 양극은 Stainless Steel 이며 음극은 Carbon Steel을 이용하였다. 그 외에도 미국과 인도 등에서 전해정련을 이용한 지르코늄회수에 대한 활발한 연구를 진행하고 있다.[4][5]

2.2 폐피복관의 방사화 평가

파이로 공정중 전해정련 공정에서 500 °C에서 염화물의 생성 자유에너지에 따라 사용후핵연료의 구성원소를 분리하게 된다. 이러한 원리로 우라늄이 대부분 고체 음극에서 회수하게 된다. 이러한 원리로 폐피복관내의 지르코늄을 회수하게 되는데 UCl_3 의 경우 232.4 kJ/g equiv.Cl의 생성 자유에너지를 가지며 $ZrCl_2$ 의 경우는 194.2 kJ/g equiv. Cl로 우라늄에 비해 낮은 자유생성에너지를 가진다. 따라서 적절한 전류를 가하면 충분히 지르코늄이 회수가 가능할 것이다. 그러나 망간과 베리륨이 지르코늄과 유사한 생성자유에너지를 가지기 때문에 폐피복관내에 이러한 원소가 어느 정도 존재한다면 같이 순수한 지르코늄은 분리하기 힘들 것이다. 이를 위해 ORIGEN-ARP 코드를 이용하여 초기 핵연료의 농축도 4.5 wt%, 연소도 55 GWD/tU, 10년 냉각조건에서 피복관의 방사화 특성평가를 수행하였다. Table 1은 256 kg 지르칼로이 기준 방사화 평가결과 주요 핵종과 무게를 나타내고 있다. 보통 경수로의 경우 1톤 우라늄 기준 약 256 kg의 지르칼로이가 원자로에 장전되는 것으로 알려져 있다. 이 표에서 보듯이 망간이나 베리륨의 경우 거의 발견할 수 없게 된다. 망간은 ppm 단위로 불순물이 함유되지만 그다지 붕괴되어 생성되거나 함유정도를 고려하더라도 큰 영향이 없는 것으로 나타났다. Table 2는 국내 중저준위 폐기물 처분 농도 제한치와 10년 냉각시 폐피복관내의 핵종의 방사능을 보여주고 있다.

모두 중저준위 처분농도 제한치를 만족하는 것으로 나타났다.

3. 결론

지르칼로이 폐피복관을 전해정련 공정을 이용하여 회수하는 것에 대한 외국 사례를 조사하였다. 이미 일본과 미국 등에서는 충분히 기술적으로 타당한 것으로 판단하여 연구를 진행하고 있는 것으로 나타났다. 하지만 피복관 내부에 핵분열생성물과 TRU 핵종이 침투되는 것으로 보고되고 있다. 미량이지만 이러한 핵종에 대한 영향평가 및 추후 예비 실험을 통해 전해정련을 통한 지르칼로 회수에 대한 타당성을 평가하고자 한다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력증강기사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] G.W. Mellors, S. Senderoff, "The Electrodeposition of Coherent Deposits of Refractory Metals", Journal of the Electrochemical Society, 113, 60, 1966.
- [2] Chintamani, N. Sarachandran, P. Pande, A.K. Taneja, J.C. Shera, "Recycling Off-Grade Zircaloy Scrap Using a Molten-Salt Electro-Refining Process", Zirconium in the Nuclear Industry: Seventh International Symposium, ASTM STP 939, 1987.
- [3] R. Fujita, H. Nakamura, K. Mizuguchi, M. Sato, T. Shinbano, Y. Ito, Y. Goto, T. Terai, S. Ogawa, "Zirconium Recovery Process for Spent Zircaloy Components from Light Water Reactor (LWR) by Electrorefining in Molten Salts", Electrochemistry, 73, 751, 2005.
- [4] G.F. Kessinger, Evaluation of the Electrorefining Technique for the Processing of Radioactive Scrap Metals, WINCO-1165, Westinghouse Idaho Nuclear Company, Inc. 1993.
- [5] S. Ghosh, S. Vandarkuzhali, P. Venkatesh,

G. Seenivasan, T. Subramanian, B. P. Reddy, K. Nagarajan, "Electrochemical Studies on the Redox Behavior of Zirconium in Molten LiCl-KCl Eutectic", Journal of Electroanalytical Chemistry, 627, 15, 2009.

Table 1. Isotopic inventory for irradiated Zircaloy-4 (256 kg base)

핵종	무게(g)
Zr-90	1.27E+05
Zr-94	4.49E+04
Zr-92	4.34E+04
Zr-91	2.78E+04
Zr-96	7.32E+03
Sn-120	1.34E+03
Sn-118	9.89E+02
Sn-116	5.80E+02
Fe-56	5.25E+02
Sn-119	3.62E+02
Sn-117	3.14E+02
Cr-52	2.67E+02

Table 2. Isotopic activity for intermediate waste disposal limit for irradiated Zircaloy-4 (10 yr cooling)

핵종	반감기	처분농도제한치 (Bq/g)	폐피복관내의 방사능 (Bq/g)
H-3	12.33 y	1.11E+6	3.90E+04
C-14	5730 y	2.22E+5	8.77E+04
Co-60	5.27 y	3.70E+7	2.02E+07
Ni-59	7.6E+4 y	7.40E+4	4.37E+02
Ni-63	100 y	1.11E+7	6.31E+04
Sr-90	28.8 y	7.40E+4	5.96E+02
Nb-94	2.03E+4 y	1.11E+2	-
Tc-99	2.11E+5 y	1.11E+2	7.45E-01
I-129	1.72E+7 y	3.70E+1	-
Cs-137	30.17 y	1.11E+6	-
전알파	-	3.70E+3	-

한국원자력연구원 KURT 황산염환원 미생물이 우라늄 거동에 미치는 영향

오종민, 이승엽, 백민훈

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

ohim@kaeri.re.kr

1. 서론

혐기성 환경 하에서 지구미생물들은 산소 대신에 철, 망간, 우라늄, 크롬 등의 여러 무기이온들을 전자수용체로 이용하여 신진대사작용을 진행한다. 또한, 탄소와 금속 원소의 생지화학적 순환에 있어서 중요한 역할을 할 뿐만 아니라 철과 망간과 같이 산화-환원에 민감한 전자를 금속에 전달하여 환원시키기도 한다. 이러한 작용들은 산화 상태에 있는 원소들의 환원 및 침전에 관여하므로 방사성 원소의 확산 방지에도 응용될 수 있다. 본 연구에서는 고준위 폐기물 지하처분연구시설인 KURT(KAERI Underground Research Tunnel) 지하수 내의 황산염환원 미생물이 우라늄 거동에 미치는 영향을 관찰하여 보았다.

2. 본론

황산염환원 미생물을 배양하기 위하여 KURT 지하 약 80 m 깊이에서 더블패커를 이용하여 지하수를 채취하였다. 황산염 환원미생물은 혐기성 미생물이기 때문에 현장에서 산소와의 접촉을 최소화하여 배양액(Table 1)내에 주입하였다. 실험실 내에서는 인큐베이터를 이용하여 30℃를 유지하여 주었으며, 27일 후 배양액에서는 미생물의 활동에 의해 생긴 검은색의 침전물을 관찰할 수 있었다.

실험을 위한 배양액의 조성은 우라늄과 망간이 공존할 때와 우라늄만 있을때의 차이를 알아보기 위해 망간의 유무를 달리한 시료(Uranium 5×10^{-5} M, Manganese Chloride 2 mM)와 100℃에서 30 분간 미생물을 죽인 시료로 구분하여 11일간 관찰하였다. 시간이 지남에 따라 침전물이 생겼으며 침전물의 동정을 위해 XRD 분석을, 침전물의 크기와 외형 관찰을 위해 SEM 분석을, 그리고 Fe, Mn, U의 농도변화를 알아보기 위하여 ICP 분석을 실시하였다.

Table 1. Media components

Component I	Component II	Component III
증류수 400 ml	증류수 200 ml	증류수 400 ml
MgSO ₄ 2.0 g	K ₂ HPO ₄ 0.5 g	Sodium lactate 3.5 g
Sodium citrate 5.0 g		Yeast extract 1.0 g
CaSO ₄ 1.0 g		
NH ₄ Cl 1.0 g		

관찰 결과 Fig. 1에서와 같이 이틀째 날부터 검은색의 침전물이 형성되어 육안상의 변화를 보여주었다.

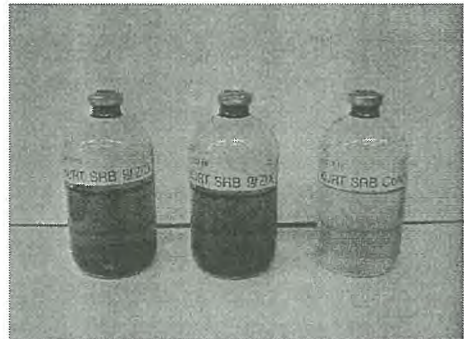


Fig. 1. Sulfide formation by KURT sulfate-reducing bacteria

미생물의 활동에 의해 생긴 침전물을 동정해 보기 위해 XRD 분석을 실시하였다. 망간을 넣어 준 시료와 망간을 넣어주지 않은 시료 모두 mackinawite(FeS)의 피크를 나타내었다.

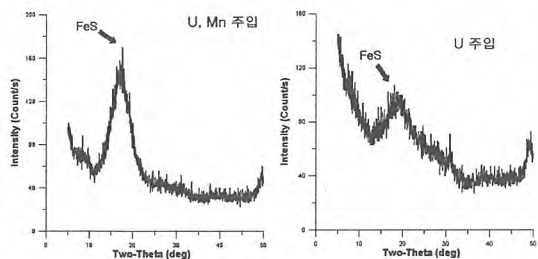


Fig. 2. XRD analyses for the microbial precipitates

철, 망간, 우라늄의 용존 농도를 알기위해 ICP 분석한 결과 U과 Mn을 동시에 주입한 배양액에서 Fe은 69.45 ppm에서 0.036 ppm으로, U만 주입한 배양액에서는 62.368 ppm에서 0.061 ppm으로 감소하였으며, U과 Mn을 동시에 주입하고 미생물을 주입하지 않은 배양액에서는 64.72 ppm에서 65.836 ppm으로 거의 변화가 없었다(Fig. 3). 또한 U과 Mn을 동시에 주입한 배양액에서 U은 5.645 ppm에서 0.301 ppm으로, U만 주입한 배양액에서는 5.474 ppm에서 1.191ppm으로, U과 Mn을 동시에 주입하고 미생물을 주입하지 않은 배양액에서는 4.221 ppm에서 2.469 ppm으로 감소하였다(Fig. 4). 초기에는 control에서의 U 농도가 나머지 시료에 비해 감소율이 더 크나 시간이 지날수록 나머지 시료의 U 농도가 작아지고 감소율도 훨씬 커짐을 알수 있다. 이는 미생물들이 mackinawite를 만들면서 U 농도를 감소시켰기 때문인 것으로 사료된다. 자세한 메카니즘을 알아 보기 위하여 현재 SEM 분석을 진행 중에 있다.

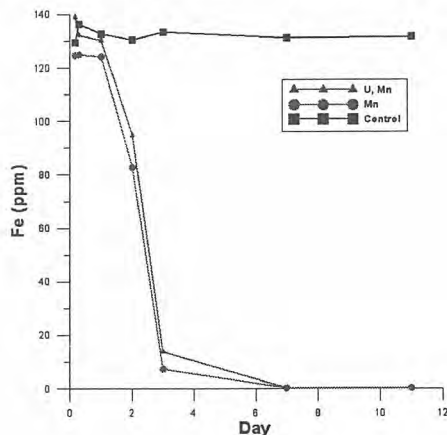


Fig. 3. ICP analyses for Fe variation by microbial activity

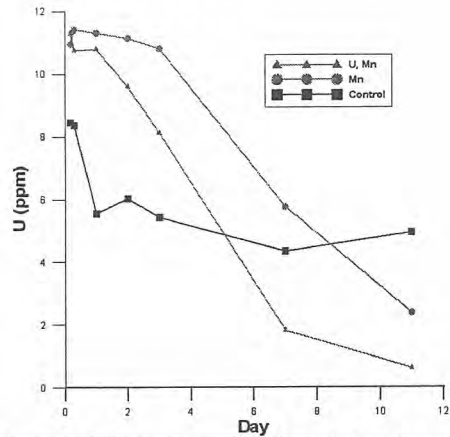


Fig. 4. ICP analyses for U variation by microbial activity

3. 결론

본 연구결과로 볼 때 고준위폐기물 지하처분연구시설인 KURT 지하수 내의 황산염환원 미생물들은 생광물화 작용을 통해 U 농도를 저감시킬 수 있는 가능성을 보여주었다. 이는 지하 심부의 환원 환경에서 핵물질 유출시 KURT 황산염환원 미생물을 응용하여 방사능 원소를 직간접적으로 고정화시키는 방안을 개발하고, 처분시스템의 장기안정성을 도모하는데 사용될 수 있을 것으로 사료된다.

알루미늄보레이트에 의한 염화리튬의 탈염소반응

김환영, 안병길, 조용준, 김인테, 박환서

한국원자력연구원

nhvkim@kaeri.re.kr

1. 서론

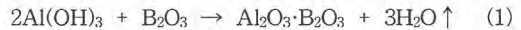
파이로공정에서 발생하는 폐염(LiCl, KCl)은 자신은 물론 여기에 포함된 핵종도 염화물상태로 있어 물에 대한 용해도가 커 그대로 고화하게 되면, 스며든 물에 의해 손쉽게 용해되어 고화체에서 누설될 수 있어 건전한 고화체가 얻어지지 않는다. 따라서 핵종은 물론 전해매질로 쓰인 염의 염소를 떼어내어 물에 용해도가 낮은 산화물이나 반응성이 높은 화합물로 바꾸어 주어야 한다. 이와 같은 목적으로 인산화물, 붕산화물 및 산소를 용융된 염에 첨가하는 방법들이 이용되고 있다. 특히 염에 붕산 또는 산화붕소 그리고 알루미늄이나 규사를 혼합하고 염의 용융온도에 가깝게 가온하여 탈염소반응을 시킨 바, 탈염소반응이 일어나 얻어진 반응물이 덩어리 형태여서 이를 이송하거나 유리매질과 균일하게 혼합하는 공정이 원활하지 않았다. 즉 붕산이나 산화붕소를 이용하여 염의 탈염소반응을 할 경우는 반응물을 용기에서 떼어내 이를 분쇄하는 공정이 필요하여 원격공정에 적합하지 못하다.[1] 그러므로 탈염소된 반응물은 탈염소반응이 완결되어 염소의 함량이 매우 적어야 할 뿐만 아니라 분말형태로 얻어져야 한다. 이를 위해 염을 붕산과 알루미늄 등을 첨가하여 탈염소반응을 시키지 않고, 산화붕소를 수산화알루미늄과 반응시켜 얻어진 알루미늄보레이트($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{B}_2\text{O}_3$)를 규사와 함께 넣어 염(LiCl)의 탈염소반응을 일으켜 쉽게 분말상이 되는 반응의 조건을 찾고자 하였다. 염화리튬의 탈염소반응에서 붕산화물뿐만 아니라 유사한 탈염소반응성을 나타내는 인산화물과의[2, 3] 반응성도 살피기 위하여 알루미늄포스페이트($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{P}_2\text{O}_5$)를 제조하여 비교실험도 실시하였다.

2. 본론

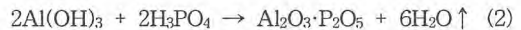
2.1 $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{B}_2\text{O}_3$ 및 $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{P}_2\text{O}_5$ 의 제조

$\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{B}_2\text{O}_3$ 는 수산화알루미늄에 산화붕소를 잘

혼합하고 450℃로 5시간, 그리고 650℃로 12시간 반응시켜 완전한 탈수반응이 이루지게 하여 알루미늄보레이트를 얻었다. 반응식은 다음과 같겠다.



그리고 $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{P}_2\text{O}_5$ 는 200℃로 4시간 반응시켜 1차 탈수를 하고, 그리고 450℃로 24시간 반응시켜 2차 탈수 및 반응을 완결시켰다. 이때의 반응은 다음과 같겠다.



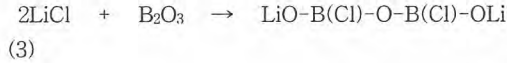
2.2 탈염소 반응

Li/Al/Si/B(또는 P)의 반응몰비는 모두 같으며(알루미늄보레이트와 알루미늄포스페이트를 함께 넣은 경우에는 Al의 몰수는 Li의 몰비와 같으나, 붕소와 인은 반반씩 하여 합계의 몰수는 Li의 몰수와 같게 함), 반응성분은 셋 또는 네 성분으로 하여 650℃에서 24시간 동안 반응시켰다.

2.3 탈염소반응물의 특성

탈염소반응을 시키고, 시약수저나 손으로 반응물의 응결특성을 살피고 또 반응물에 남아있는 염소의 양을 측정하여 표 1에 나타냈다. 표 1에서 탈염소반응을 이루기 위하여 염과 알루미늄보레이트나 알루미늄포스페이트를 반응시키게 되면 반응물이 잘 부스러져, 특별히 얻어진 생성물을 분쇄를 하여야 하는 공정이 필요가 없음을 알 수 있었다. 그리고 규사를 함께 넣어 반응을 하게 되면 분말화가 더 잘 일어나며, 반응 초기부터 규사를 넣어 반응시키므로 탈염소화 반응과 함께 불용성의 리튬알루미늄노실리케이트를 더 많이 만들어지게 될 것이므로[1] 이 반응이 보다 바람직함을 알 수 있었다. 한편으로 같은 몰수와 같은 반응조건으로 하고 단지 알루미늄보레이트와 알루미늄포스페이트를 달리 하여 반응시킬 때, 알루미늄

늄포스페이트로 반응시키는 것이 알루미늄보레이트로 반응시키는 것보다 탈염소반응이 잘 일어남을 알 수 있다. 이는 염화리튬이 붕산과 반응할 때, 아래의 (3)식과 같이 중간생성물로 염소가 붕소와 공유결합을 하고 있는 구조를 가지다가 이것이 600℃ 이상의 높은 온도에서 붕소에서 염소가 떨어져 탈염소반응을 할 것이라는 가정을 증명하는 것이 아닌가 한다.



왜냐면 붕소는 $1s^2 2s^2 2p^1$ 의 전자궤도를 가지나 인은 $1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^3$ 의 전자궤도를 가지므로 염소가 탈염소반응에서 1차적으로 붕소나 인과 공유결합을 하였다가 여기서 다시 떨어져 염소기체로 분리가 된다면 $2p^1$ 의 전자궤도에서 공유결합한 염소보다는 $3p^3$ 의 전자궤도에서 공유결합한 염소가 보다 적은 에너지로도 분리될 수가 있다고 볼 수 있기 때문이다.

그리고 표 1에서 AlPO_4 (수용성의 황산알루미늄과 인산소다를 수용액상에서 반응시키고 여과하여 얻은 것)로 표시되는 알루미늄포스페이트(I)는 $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{P}_2\text{O}_5$ 로 표시되는 알루미늄포스페이트보다 탈염소반응이 잘 일어나지 않음을 보인다. 이는 PO_4 의 산소-산소결합이 P_2O_5 의 산소-산소결합보다 잘 분리가 되지 못해 개환에 이어서 탈염소반응에 참여하는 순차적인 반응이 어렵기 때문으로 생각된다.

Table 1. 알루미늄보레이트나 알루미늄포스페이트로 탈염소한 경우 생성물의 특성

반응물과 다른 성분	생성물 중의 염소량(%)	생성물의 분말화 특성
$\text{AB}^* + \text{Li}$	1.60	덩어리, 시약수저로 깨짐 그리고 부스러짐
$\text{AB} + \text{Si} + \text{Li}$	0.67	흩어지지 않음, 수저로 손쉽게 부스러짐
$\text{AP}^{**} + \text{Li}$	0.05	잘 부스러짐
$\text{AP} + \text{Si} + \text{Li}$	0.06	아주 잘 부스러짐
$\text{AB} + \text{AP} + \text{Li}$	0.16	부스러짐, AP보다는 표면이 단단
$\text{AB} + \text{AP} + \text{Si} + \text{Li}$	0.32	잘 부스러짐
$\text{AP(I)}^{***} + \text{Li}$	9.60	아주 잘 부스러짐, 반응 후 부피가 2/3 이하로 줄어듦
$\text{AP(I)} + \text{Si} + \text{Li}$	6.70	표면도 덩어리 지지 않음, 반응 후도 부피가 큼

* : $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{B}_2\text{O}_3$, ** : $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{P}_2\text{O}_5$, *** : AlPO_4

3. 결론

염화리튬에 붕산이나 산화붕소 그리고 알루미늄이나 규사를 함께 넣어 650℃ 이상에서 반응을 하게 되면 염화리튬에서 높은 효율로 탈염소를 시키는 반응은 가능하였으나, 반응물이 덩어리짐을 없앨 수는 없었다. 물론 알루미늄이나 규사의 양을 증가하게 되면 단단하게 덩어리짐을 어느 정도 줄일 수는 있었으나 이는 감용성을 낮추는 단점을 나타낸다. 그런데 수산화알루미늄과 산화붕소를 반응시켜 얻어진 $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{B}_2\text{O}_3$ 는 반응물의 분말화와 반응물의 최소화할 이를 수 있는 반응의 특성을 나타냈다. 그리고 $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{P}_2\text{O}_5$ 도 반응물의 분말화도가 좋게 나타내는 특성을 보였고 또 탈염소반응의 반응성도 높아 염화리튬에서 탈염소반응을 시킬 때 쓰일 수 있는 좋은 화합물임을 알 수 있었다. 즉 줄-겔법의 다단계의 반응에 의하여 얻어지는 SAP을 대체하여 탈염소반응의 첨가물로 쓸 수가 있겠다.

4. 참고문헌

- [1] 김환영 외. 한국방사성폐기물학회, 2008년 춘계학술발표회 논문요약집, pp.124-125, 2008
- [2] 박환서 외. Journal of Korean Radioactive Waste Society, Vol.3 No.1 pp. 349-357. 2005
- [3] 박환서 외. Journal of Korean Radioactive Waste Society, Vol.5 No.3 pp. 171-177. 2007

액체폐기물 처리성능 향상을 위한 RO시스템 적용 사례

박경록, 조항래, 황태원

한국수력원자력(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1

krpark@khnp.co.kr

1. 서론

원자력발전소 운영 중에 발생하는 액체방사성 폐기물의 효율적인 처리를 위해 선택성이온교환설비가 운영중에 있다. 선택성이온교환설비는 울진1호기와 고리2호기를 시작으로 영광5,6, 울진5,6에 적용되었다. 선택성이온교환설비의 효율적인 운영을 위해서는 전처리가 필요하며 전처리설비로는 당초 원심분리가 고려되었으나 원심분리기 경우 입자성 물질의 제거가 용이하지 않아 이를 해결하기 위한 연구를 수행하였다. 본 연구에서는 선택성이온교환설비의 전처리 설비로 정밀여과막(MF, Microfiltration)과 역삼투막(RO, Reverse Osmosis)을 고려하였다. 정밀여과막은 Hollow Fiber형태의 침지형 모델을, 역삼투막은 Spiral-Wound 형태의 가압식 모델을 적용하였다. 본 논문에서는 울진5,6호기 선택성이온교환설비의 성능향상을 위한 MF-RO 전처리설비의 적용경험과 그 결과에 대하여 기술하고자 한다.

2. 본론

2.1 RO 시스템의 구성

울진5,6호기 방사성폐기물건물(RWB)에 설치된 액체폐기물처리계통의 전처리 설비인 RO시스템은 크게 정밀여과막(MF)과 역삼투막(RO)으로 구성되어 있다. RO 시스템의 처리대상 폐액은 화학폐액(Chemical Waste), 고용존고형물(High TDS) 및 저용존고형물(Low TDS)이며, 처리유량은 약 7 ton/hr이다. 그림1에는 전처리설비의 개략도를 나타내었다.

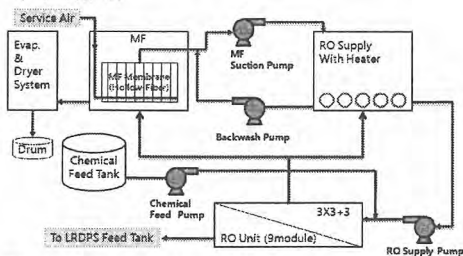


Fig. 1. Schematic diagram of pre-treatment system

MF막은 처리약품을 사용하지 않고 미세한 현탁 물질, 즉 폐액중의 입자를 1차적으로 제거하기 위한 목적으로 침지형을 고려하였다. 특히 장기간 사용에 따른 막 오염제거(역세)가 용이하도록 파울링(Fouling)경감을 위해 수조내에 공기를 주입하여 막 표면에 오염물질이 축적되는 것을 줄이는 방법을 고려하였다. RO막은 역삼투 현상을 이용한 분리막으로 공경(Pore Size)이 약 10 Å내의이며 제거할 입자크기는 평균적으로 $\sim 10^{-3} \mu\text{m}$ 로서 금속이온이나 염 제거를 목적으로, Spiral-Wound 형태의 가압식 모델을 적용하였으며 유효표면적은 $37 \text{ m}^2/\text{모듈}$ 이다.

2.2 성능입증 시험

상기와 같이 구성된 전처리설비의 성능입증을 위해서 3차에 걸쳐 실제 폐액을 대상으로 시험을 수행하였다. 처리성능을 확인하기 위해 RO 시스템에 유입되는 유입수와 처리수에 대한 방사능 농도 및 전도도를 분석하였다. 분석결과는 Fig.2, Table 1에 나타난 것과 같이 유입수에 대한 처리수의 방사능 제염계수는 약 21~39정도로 나타났으며, 전도도의 경우 평균 약 47% 정도의 감소효과를 보여주고 있다. 정밀여과막(MF)에서 $0.4 \mu\text{m}$ 이상의 입자가 제거되고 RO막에서 $0.4 \mu\text{m}$ 이하의 입자, 금속이온 및 염이 제거되면서 방사능 및 전도도가 감소된 것으로 판단된다. 또한 유입수에 존재하던 입자성 핵종인 ^{95}Nb , ^{124}Sb 등이 RO시스템을 통과한 후 제거된 것을 알 수 있다.[1] 코발트 핵종의 경우 원자로냉각수 중에 함유되어 있는 전체 코발트 중 50 % 이상이 $0.45 \mu\text{m}$ 여과기로 처리 가능한 상태로 존재하며 나머지는 용해된 이온 상태로 존재한다[2]. 용해된 코발트는 대부분 2가 양이온 상태로 존재하지만 조건에 따라 3가, 4가 또는 1가 양이온 상태가 되기도 하며 수용액 중에서 pH 8~9 이상이 되면 $\text{Co}(\text{OH})_2$ 침전물이 생성되어 입자 또는 콜로이드 형태로도 존재 가능하다고 보고되고 있다.[2] RO시스템 처리수에 ^{58}Co 이 제거되지 않고 검출되었는데 이는 입자상과 이온상이 양립 가능한 코발트 핵종 중 이

은상으로 존재하는 ^{58}Co 이 RO에서 완전 제거되지 않은 상태로 존재하고 있음을 보여준다. RO처리수 중의 전도도 감소율은 RO시스템 후단에 연결되어 있는 주처리설비인 선택성이온교환설비의 부하를 감소시켜 이온교환수지 사용수명이 증가시켜 폐이온교환수지 발생량을 줄일 수 있음을 보여준다. 실제 전처리설비로 RO시스템을 적용한 후 올진 5,6호기 이온교환수지의 사용수명이 최근 2년동안 평균약 50 %가 증가되었다.[3]

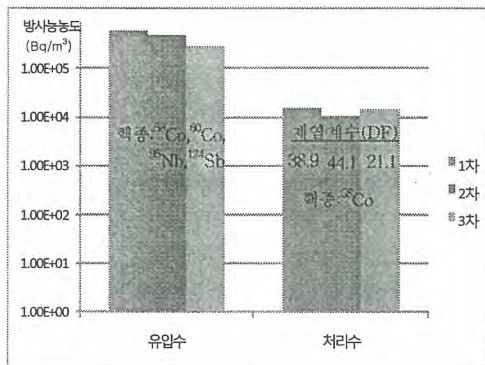


Fig. 2. Decontamination factor of pre-treatment system

Table 1. The change of conductivity in the processing water

No.	유입수 ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	처리수 ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	감소율(%)
1	26.8	12.2	54.5
2	32.2	14.3	55.6
3	28.7	19.9	30.7
AVG.	29.2	15.4	47.3

3. 결론

올진5,6호기의 액체방사성폐기물처리 주 설비인 선택성이온교환설비의 성능향상을 위해 MF막과 RO막으로 구성된 전처리설비를 적용하고 이에 대한 성능시험을 수행하였다. 적용결과 전처리설비의 제염계수는 우수한 것으로 나타났으며, 전도도 역시 약 50% 감소되는 효과를 보였다. 또한 선택성 이온교환설비에서 제거되지 않는 ^{95}Nb , ^{124}Sb 등이 RO시스템을 통과하면서 제거되었다. 이와 같은 전처리설비의 우수한 성능으로 선택성이온교환수지

의 교체 수명이 증가되었으며 이를 통해 폐이온교환수지의 발생량 저감은 물론 수지 교체시의 작업자 피폭량 저감에 기여하였다. 현재 전처리설비인 RO시스템의 파울링(Fouling) 최소화 등 운전성능향상은 물론 운전 편의성을 도모를 위한 노력이 진행 중에 있다.

4. 참고문헌

- [1] 양호연 외 5인, "방사성폐액 전처리 최적화 통한 액체방사성폐기물 처리시스템 성능개선 연구", 한국수력원자력(주) 원자력발전기술원
- [2] 문석규 외 2인, "선택성이온교환설비 기본설계서", KOPEC
- [3] 올진5,6호기 이온교환수지교체실적 DataSheet, 한국수력원자력(주) 올진원자력본부 제3발전소

우라늄금속 폐기물 특성 및 처리

최윤동, 최취경, 이규일, 황두성, 경운수

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

vdchoil@kaeri.re.kr

1. 서론

국내 원자력산업은 1959년 연구로가 도입되면서부터 시작되었으며, 그 이후 원자력 발전소가 가동되기 시작하면서 지금은 국내 에너지 생산에 중요한 부분을 차지하고 있다. 이러한 과정에서 필연적으로 핵물질 취급관련 연구 및 산업적 이용도 점차 증대되어 왔으며, 이에 따라 핵물질 취급 및 관리에 대한 중요성도 점차 부각되고 있다. 특히 연구 및 실험 또는 산업적 이용으로부터 발생하는 불필요한 핵물질은 안전한 형태로 변환되어서 저장 관리 되어야 한다. 본 연구원에서는, 그 동안 연구를 위하여 사용하였으나 향후 더 이상 필요하지 않은 우라늄을 함유한 핵물질에 대하여는 장기저장에 안전한 화학적 형태로 변환시켜서 관리되도록 하고 있다. 이는 안전한 화합물 형태만이 장기 저장에 따른 위험을 최소화 할 수 있으며, 최종 처분 시에도 별도의 처리가 필요하지 않기 때문이다.

우라늄 금속은 핵연료물질로 사용되는 물질로 일반 대기환경에서 보관하기에는 대기 중 산소와 반응으로 인한 화재 위험성이 따르기 때문에 특히 주의가 요하며, 장기저장을 위해서는 반드시 산화시켜서 안전한 화합물 형태로 변환시켜야 한다. 본 연구원에서는 우라늄금속폐기물에 대하여 산화처리를 수행한 바[1,2,3] 있으며, 이들 우라늄금속폐기물은 순수 우라늄 금속뿐만 아니라 우라늄과 합금형태의 물질을 포함하며 이에 대한 산화처리를 수행하였다.

일반적으로 우라늄 금속은 일반대기 중에서 산소와 서서히 반응하면서 발열반응에 의한 자연연소형태를 취하며 발화한다. 물론 이러한 반응은 우라늄 금속의 표면 활성도에 따라서 크게 좌우된다. 우라늄 금속은 산소와 반응하여 다양한 화학 양론적 형태를 취하며, 300-625℃ 온도 범위에서 우라늄 금속 산화가 진행된다[4]. 초기에는 UO_2 를 형성하며 계속하여 산화가 진행되어서 U_3O_8 까지 산화된다.

우라늄 금속을 산화시키기 위한 장치로는 공기 또는 분위기를 조절시키는 산화반응기를 이용하였으며, 두 가지 경우 모두 만족할 만한 성과를 이루었

다. 그러나 우라늄금속폐기물의 상태에 따라서 적절하게 장치를 수정하여야 하였으며, 초기 우라늄금속폐기물 상태 및 종류에 따라 필요시에는 세척 및 건조 등, 전처리가 필요하였다.

본 연구는 서울 연구용 원자로를 위한 연료제조와 관련한 연구 시 발생되었던 우라늄금속폐기물 633Kg을 처리하기 위한 것으로 우라늄금속폐기물에 대한 특성 파악과 분위기 조절식 산화처리 장치를 이용한 처리방안을 도출하는데 그 목적이 있다.

2. 본론

2.1 우라늄 금속폐기물

우라늄금속폐기물은 수용액 중에 보관되어 있으며 5개 드럼에 나뉘어 포장되어 있다. 시료는 물속에 분말형태로 있으며, 이 물질이 소량 혼재된 상태이다. 드럼에 보관 관리 해온지 매우 오랜 기간이 지나고 있으며, 조속히 산화처리가 이루어져 안정한 상태로 관리될 필요가 있다.

2.2 특성분석

우라늄금속폐기물을 물과 메탄올로 세척 후 실온에서 건조 시켰다. 분말 형태의 시료는 공기 중에서 안정한 것으로 나타났다. 시료에 대한 열분석을 실시하였으며 그림1에 나타내었다. 410℃부터 산화가 시작되며, TG 곡선은 500℃ 이후에는 더 이상의 무게 증가가 없는 것으로 나타나고 있다. 즉 500℃에서 산화반응이 완결됨을 의미한다. DTA 분석은 산화반응에 의한 발열 상승점을 나타내며 발열량은 약 20cal/mg의 크기를 보인다. 따라서 산화반응 시 산소량이 과다할 경우 반응열로 인한 과열 현상이 일어날 것으로 예상되며, 실제 처리를 위하여 분위기 조절이 필요한 것으로 나타나고 있다.

시료 및 시료에 대한 산화반응 후 생성물에 대한 X-선 회절 분석을 하였으며, 그 결과를 그림2에 나타내었다. 시료는(그림2 윗부분) U_3O_7 에 의한 것으로 나타났으며, 순수 우라늄 금속에 해당

하는 성분은 전혀 나타나지 않고 있다. 이는 우라늄금속폐기물이 미세한 입자로 물속에 장기간 존재하면서 용존 산소와 서서히 반응하여서 생성된 것으로 사료된다. 한편 산화반응 시킨 시료는(그림2 아랫부분) U_3O_8 으로 완전히 변환된 것을 보여주고 있다. 따라서 본 우라늄금속폐기물은 적어도 500℃까지 처리하면 산화반응을 완결시킬 수 있음을 보여주고 있다.

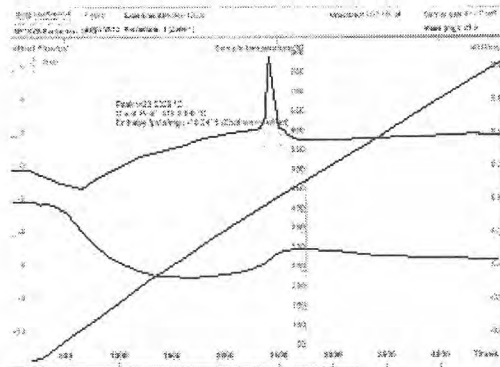


Fig. 1. Thermal analysis for the uranium chips.

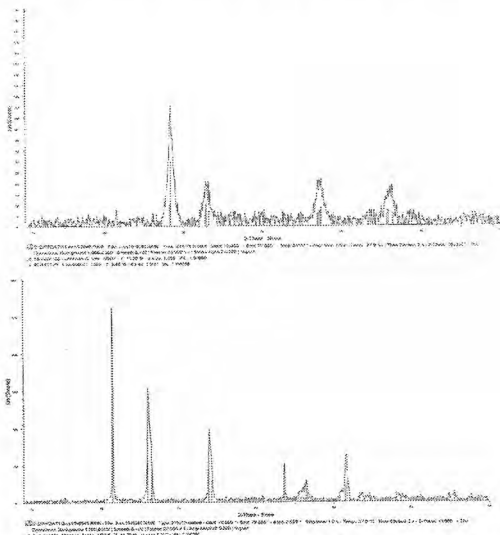


Fig. 2. X-ray diffraction analysis. upper: before thermal treatment, lower: after thermal treatment

2.3 우라늄금속폐기물 처리 계획

본 우라늄금속폐기물에 대한 특성 분석으로부터 아래와 같은 처리 공정을 도출하였으며, 기존에 사용하였던 분위기 조절에 의한 산화처리장치를 이용하여 남아 있는 우라늄금속폐기물을 처리할

예정이다.

현재 처리할 우라늄금속폐기물은 일차로 물로 세척 후, 건조를 용이토록 하기위하여 메탄올로 세척하여 실온에서 건조시킨다. 건조된 시료를 분위기 조절 식 산화장치에 일정량 시료를 넣고 산화시킨다. 이때 산화반응이 효율적으로 진행되도록 고정식 용기에 시료의 양이 너무 쌓이지 않도록 하고, 고정식 산화용기는 3~4단으로 장치될 예정이다.

3. 결론

처리 하여야 할 우라늄금속폐기물은 금속형태의 우라늄은 존재하지 않으며 U_3O_7 형태의 물질로서, 실온의 대기 중에서 비교적 안정한 화합물이다. 그러나 장기 저장 및 안전관리를 위해서는 산화시켜서 U_3O_8 으로 변환시켜야 한다. U_3O_7 형태의 물질이 U_3O_8 으로 산화반응 시 약20cal/mg의 발열반응을 수반하므로 산화반응은 분위기를 조절하는 등의 수단으로 제어되어야 한다. 또한 산화반응을 완결시키기 위해서는 반응기 내에서 500℃가 충분히 유지되도록 하여야한다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

- [1] 한국원자력학회, 1996년 춘계학술발표회 논문요약집, pp.491-496, 1996
- [2] 한국방사성폐기물학회, 2009년 추계학술발표회 논문요약집, pp.153-154, 2009
- [3] 한국에너지공학회, 1999년 춘계학술발표회 논문요약집, pp.103-106, 1999
- [4] Jerry L. Stakebake, The Ignitability Potential of Uranium "Roaster Oxide", CONF-9409181-9, 1994

사용후 핵연료 파이로공정발생 공융염폐기물내 희토류염화물 분리 및 염 회수공정

이태교, 조용준, 김인태, 이한수
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150-1
tklee@kaeri.re.kr

1. 서론

국내에서 개발하고 있는 사용후핵연료 파이로공정은 전해환원공정과 전해정련공정 그리고 전해제련공정으로 구성되어 있으며, 이러한 공정들은 통해 산화물의 사용후 핵연료에서 핵연료 물질을 대부분 회수할 수 있고 고준위 방사성 폐기물량을 크게 감소시킬 수 있다. 그러나 파이로 공정에서 발생되는 LiCl-KCl 공융염 폐기물내에는 방사능 또는 고방열성의 희토류과 소량의 악티나이드등의 염화물을 포함하고 있어 이를 처리하는 기술개발이 반드시 필요하다. 공융염폐기물에서 순수한 염을 회수하여 재활용하는 기술은 폐기물의 양을 최소화 할 수 있으며 또한 경제적 측면에서도 매우 중요하다. 공융염내 존재하는 희토류염화물은 산화물로 전환시켜 순수염층과 침전층으로 분리 할 수 있으며 회수된 순수한 염이 전해정련공정에 재활용되기 위해서는 순수한 염 이외에 다른 불순물이 존재하지 않아야 하며 일정한 공융조성이 변하지 않아야 한다. 많은 연구결과에서 침전제와 산화제를 사용하여 공융염 내의 희토류염화물을 침전하는 연구를 수행하여 효과적으로 희토류 핵종을 분리할 수 있음을 확인하였다. 하지만 높은 전환효율을 얻기 위해 과량의 침전제를 투입하여 미반응 상태의 침전제가 공융염내 잔류하고 있어 전해정련공정에 재활용되기 위해서는 추가공정이 필요하게 된다. 또한 부반응으로 인해 공융조성이 변화하여 전해정련공정에 재사용하는데 많은 제약이 발생된다. 따라서 본 연구에서는 공융염내 존재하는 희토류 염화물을 분리하는데 있어 공융염내 불순물이 존재하지 않고 공융조성 또한 변화시키지 않는 산소가스를 이용한 방법으로 희토류염화물을 산화/침전 시켰으며 산소분산 형태의 변화와 반응온도에 따른 산화를 특성파악 하였으며, 또한 침전반응 후 반응용기 내에 층분리 된 상태로 냉각되어 있는 냉각염을 분리하기 위한 장치를 고안하여 분리한 후 침전층과 순수염층을 분리하여 최종적인 재생염을 회수하는 연구를 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험 및 결과

본 연구에 사용한 lab-scale 산화/침전 장치는 산화/침전로, 산소분산장치, 고체염분리장치, 층분리장치로 구성되어 있다(Fig. 1). 산소를 이용한 공융염내 희토류염화물의 침전실험에서 산소분산관의 형태를 Fig. 2와 같이 수직형과 십자형의 형태로 달리하여 산소분산의 형태에 따른 희토류핵종의 전환효율을 비교하였다. 실험은 LiCl-KCl 공융염 2000g, 희토류염화물 8가지(Y /La /Ce /Pr / Nd/ Sm/ Eu/ GdCl₃)를 각각 6g씩 48g, 70℃와 800℃의 조건에서 수행하였다. 산소유량은 십자형분산관은 4 l/min, 수직분산관은 분산관 4개를 이용하여 각각 1.1 l/min씩 사용하였다. 반응시간에 따른 희토류염화물의 산화/침전 정도를 측정하기 위하여 일정시간 간격으로 석영관을 이용하여 침전반응 중 공융염을 약 9g정도 채취하였다. 채취한 염은 증류수에 용해하여 여과 후 ICP-AES를 이용하여 수용액내 존재하는 희토류이온의 농도를 분석하였다. 공융염내 존재하는 희토류염화물을 공융염에 불용성인 침전물로 전환시킨 후 침전물과 순수 공융염을 분리하는 것을 목표로 하고 있기 때문에 반응종결 후 완전한 층분리(순수염층, 침전물층)가 이루어지도록 하는 것은 매우 중요하다. 본 연구에서 완전침강을 위하여 공융염의 용융상태에서 7시간 정도의 침강시간이 소요되었다. 산화침전 반응 후 반응용기에서 냉각염을 분리해내기 위하여 Fig. 3과같이 용기를 고체염분리장치에 삽입한 후 외부를 가열하여 냉각염을 용기로부터 분리하였다. 냉각염을 층분리장치를 이용하여 순수염층과 침전층으로 분리였으며 Fig. 4에 나타내었다. 상부의 순수염층과 하부의 침전물층으로 깨끗한 층분리가 일어남을 알 수 있었으며 상부 순수염층에는 희토류침전물이 존재하지 않았다. Fig. 5에는 산소분산형태와 반응 온도에 따른 총괄전환효율을 나타내었다. 800℃의 반응조건에서는 큰 차이를 보이지 않았으며 700℃의 반응조건에서는 반응초기에 수

직분산관을 사용한 경우가 더 높은 전화율을 보임을 알 수 있다. 반응 중 십자형분산관의 경우 분산관의 막힘현상이 일어났으며 수직분산관의 경우 막힘현상이 전혀 발생하지 않았다. Fig. 6은 수직분산관을 사용한 경우 희토류 핵종별 전화효율을 나타내었다. 핵종별 전화효율은 $Ce > Y, Sm > Gd > Eu, Nd > Pr > La$ 을 보였으며 12시간의 반응 후에는 모든 희토류 핵종들의 전화효율이 99% 이상에 도달하였다.

3. 결론

본 연구에서는 공용염내 희토류염화물의 침전에 있어 불순물이 없고 공용조성이 변하지 않는 산소를 이용하여 희토류 핵종을 침전하였다. 산소분산관의 형태를 십자형과 수직형으로 달리하여 침전실험을 수행해 본 결과 수직형분산관이 더 나은 효율을 보였으며 분산관 막힘현상 또한 발생하지 않았다. 12시간의 침전반응으로 모든 희토류 핵종을 99%이상 침전시킬수 있었으며 고체염분리장치와 층분리 장치를 통하여 순수염층과 침전층을 완전히 분리하여 회수할 수 있었다.

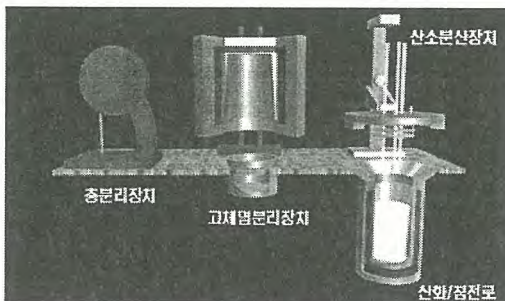


Fig. 1. Rare-earth separation apparatus.

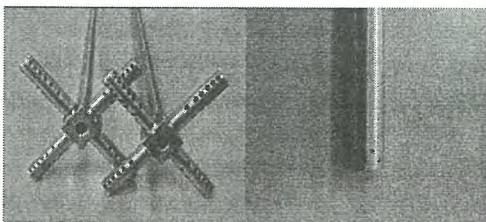


Fig. 2. Vertical and cross-type oxygen sparging unit.

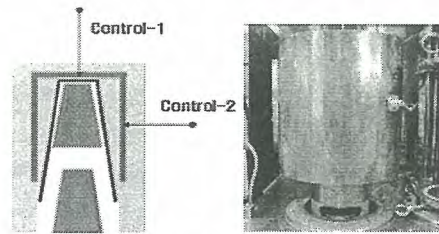


Fig. 3. Cooled salt separation apparatus.

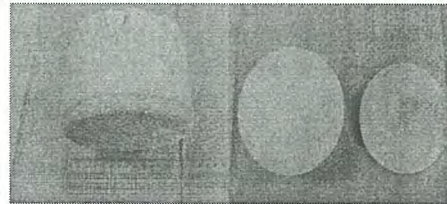


Fig. 4. Photo of pure salt and precipitation layer.

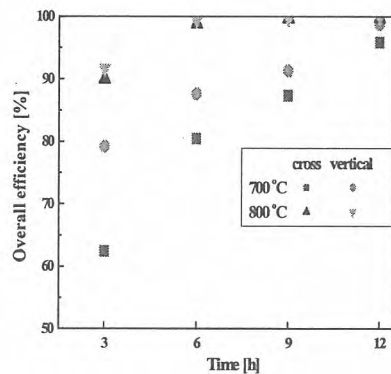


Fig. 5. Comparison of vertical and cross-type oxygen sparger on conversion efficiency.

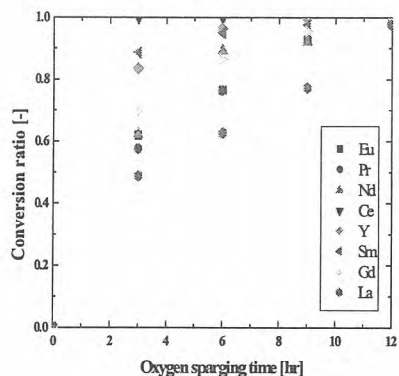


Fig. 6. Rare-earth conversion efficiency

폴리머시멘트고화체에서의 폴리머첨가가 압축강도에 미치는 영향

곽경길, 김태국, 지영용, 김동호*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

*한일원자력(주), 안양시 만안구 안양7동 202-4 동양 벤처스텔

nkklwak@kaeri.re.kr

요 약

방사성농축폐액처리를 위한 Polymer-Modified-portlandcement 고화체는 Polymer 및 시멘트, 물을 혼합매질로 제조되며 농축폐액처리를 위해 Emulsion Polymer를 사용하였으며 PMC 고화체의 물성을 평가하기 위한 고화체의 제조에서 이들 매질의 최적혼합비를 찾기 위해 Polymer 및 물, 시멘트의 혼합비를 1/1/2, 1/2/4, 1/3/9 등 혼합비에 따른 시편 및 Polymer 첨가량의 증가에 따라 함유비를 달리하는 시편을 제조하여 경화시간별 압축강도를 측정하였으며 매질의 최적혼합비 및 폴리머의 투입비를 구하고자 하였다. 특성평가시험을 위한 시편으로는 직경50, 높이100mm(L/D=2) 인시편을 제조하여 압축강도를 측정하였으며 폴리머와 시멘트의 결합상태를 확인하기 위해 SEM사진을 통한 미세구조를 관찰하였으며 시험결과 P/W/C의비가 1/3/9인 혼합비시편의 압축강도가 343.36 Kg/cm^2 로 가장 높았으며 폴리머의 함유량을 달리한 시험에서는 7%폴리머 함유시편은 397.24 Kg/cm^2 , 20% 폴리머함유시편은 175.36 Kg/cm^2 으로 폴리머의 함유량이 7~15%이내의 폴리머함유고화체가 적합한 것으로 판단되었으며 폴리머의 투입양이 증가할수록 압축강도가 감소하였으며 경화시간도 최소4주이상 되어야하는 것으로 판단되었다.

1. 서론

방사성농축폐액처리를 위한 Polymer-Modified-portlandcement 고화체는 포틀랜드시멘트 모르타르에 물성개질을 위해 Emulsion Polymer(열가소성수지)를 혼합하여 제조한 것으로 시멘트에 기초한 재료들은 도시기반시설에 광범위하게 사용되고 있으며 시멘트에 폴리머를 혼합하여 재료의 물성치를 향상시킬 수 있으며 특히 내수성(물흡수의 감소), 인성(Toughness) 및 침출특성을 증진시키며 시멘트의 결합강도를 향상시킨다.

2. 시험방법

Emulsion Polymer(열가소성수지)와 물, 시멘트의 최적혼합비도출을 위한시험과 적정 폴리머투입비를 확립하기위한시험을 수행하였으며 판정은 배합상태 및 경화정도와 압축강도로 판단하였다.

2.1 혼합비에 따른 압축강도측정

Table 1. 혼합비에 따른 시편제조

Type	W/C(%)	혼합 무게비(Mixing Ratio)		
		Polymer	Water	Cement
A	50	1	1	2
A1	50	0.6	1	2
B	50	1	2	4
C	33.33	1	3	9



2.2 Polymer 함유량증가에 따른 압축강도측정

Table 2. 폴리머증가에 따른 시편제조

Type	W/C(%)	P/T(%)	혼합 무게비(Mixing Ratio)		
			Polymer	Water	Cement
CT1	33.33	7.7	1	3	9
CT2	33.33	11.11	1.5	3	9
CT3	33.33	14.28	2	3	9
CT4	33.33	17.24	2.5	3	9
CT5	33.33	20	3	3	9



3. 시험결과 및 평가

3.1 압축강도 측정 결과

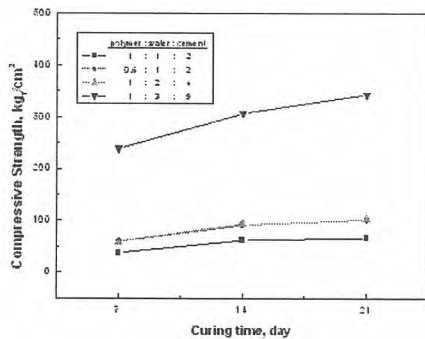


Fig. 1. 혼합비에 따른 압축강도

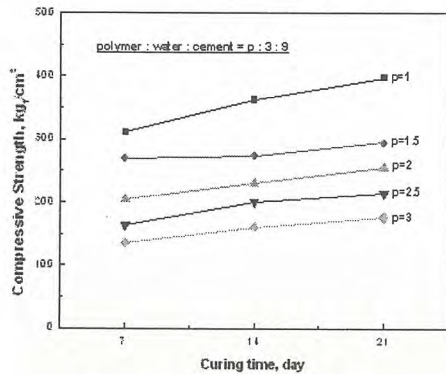
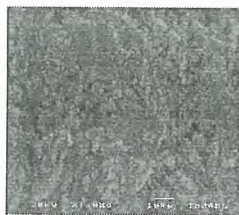
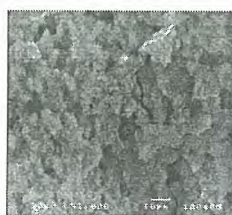


Fig. 2. 폴리머증가에 따른 압축강도

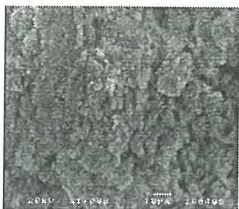
3.2 SEM 분석 결과



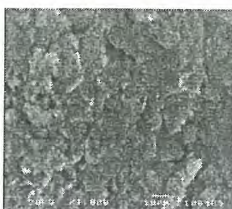
S, W/C=3/9



A, P/W/C=1/1/2



B, P/W/C=1/2/4



C, P/W/C=1/3/9

4. 결 론

본 시험에서는 방사성농축폐액처리를 위한 Polymer-Modified-portlandcement 고화체제조에 위한 시험으로 폴리머/물/시멘트의 최적혼합비의 도출과 최적폴리머함유량의 확립을 위한 시험으로 시편제조를 통해 압축강도를 측정하여 아래와 같은 결론을 얻었다.

1. 최적혼합비도출시험에서는 P/W/C의 비가1/3/9인혼합비시편의 압축강도가 343.36 Kg_t/cm^2 로 가장 높았으며 폴리머의 함유량을 달리한 시험에서는 7%폴리머 함유시편은 397.24 Kg_t/cm^2 , 20% 폴리머함유시편은 175.36 Kg_t/cm^2 으로 폴리머의 함유량이 7~15%이내의 폴리머함유고화체가 적합한 것으로 판단되었으며

2. 폴리머증가에 따른 압축강도측정은 폴리머의 투입양이 증가할수록 압축강도가 감소하였으며

3. 경화시간에 따른 압축강도의 변화는 시멘트고화체와 마찬가지로 경화시간이 증가함에 따라 증가하였으나 SEM 사진 판독결과 4주차에 도달하여 일정강도에 도달하는 것으로 보아 폴리머 배합에 따른 경화시간도 최소 4주 이상 되어야하는 것으로 판단되었다.

5. 참고문헌

- [1] 박헌희외, "고화체 특성규명연구", KAERI-NEMMAC/RR-65/92.
- [2] U.S. Nuclear Regulatory Commission, Low-Level Waste Licensing Branch Technical Position on Waste Form, Rev. 0. May 1983.

철제방사성폐기물의 자체처분을 위한 드라이아이스 제염장치 성능평가

김창환, 이상태, 조현태, 김효철, 이의동

하나검사기술(주), 부산광역시 기장군 장안읍 고리216번지

changihg@naver.com

1. 서론

월성1호기 대규모 설비개선 및 압력관 교체공사와 관련하여 발생된 철제 및 콘크리트 폐기물을 교육과학기술부 고시 2009-37호 “방사성폐기물의 자체처분에 관한 규정”에 적합하도록 콘크리트 약 45.4톤, 철재류 약 33.8톤을 한국원자력안전기술원에 각각 신고하여 승인을 받아 처분하였다.

다양한 계통 및 종류별로 발생된 방사성폐기물에 대해 면밀히 파악하여 방사선안전관리 기법, 방사성폐기물량, 제염방법 및 처리방안 등에 대한 계획을 구체적으로 수립해 발생 초기부터 자체처분 효율 향상에 역점을 두었으며, 자체처분 대상 폐기물에 대해 여러 가지 제염기법으로 접근하여 검증 및 평가를 수행하였다. 이중 월성1발전소에 보유하고 있는 드라이아이스 제염장치를 이용하여 압력관 교체 공사와 관련하여 발생된 각종 철제폐기물에 대해 제거성 표면오염 제염 여부를 확인하는데 초점을 맞추어 기술해 보고자 한다.

2. 본론

2.1 주요기능(사양) 및 제염공정

2.1.1 주요기능

제염장치의 주요기능으로는 Single-hose 및 중앙집중식 Control System이며, 이동 및 보관에 용이한 Compact Size로 장시간의 제염에 적합한 작고 가벼운 Gun을 사용한다. 특히 신속하고 편리한 원터치 방식의 노즐교체를 통해 작업효율의 향상에 기여하였으며, 사용시간 타이머를 장착하여 제염장치의 건전성 및 안전성을 확보하였다.

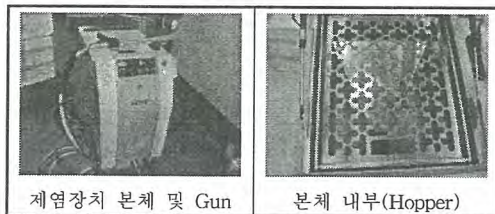


Fig. 1. 드라이아이스 제염 장치

- 크기 : 720L × 460W × 945H (mm)
- 무게 : 120 kg
- 펠릿 소모량 : 0 ~ 3 kg/min (미세조정가능)
- 공기 소모량 : 1 ~ 3 m³/min
- 공기 압력 : 최대 9.8 kg/cm² (고압용 20 kg/cm²)

2.1.2 제염공정

장치에 전원을 켜기 전 비상버튼이 켜져 있는지 확인하고 작업구역내 Service Air-line 및 전원을 연결한 후 드라이아이스 펠릿을 넣지 않은 상태로 Air만 수분간 분사하여 공기압 조절 및 이물질(수분) 등을 제거하여 장치 내부를 청결하게 유지한 상태에서 Hopper에 적당량의 펠릿을 넣고 오염 철제폐기물의 표면에 분사하여 제염을 수행하였다.

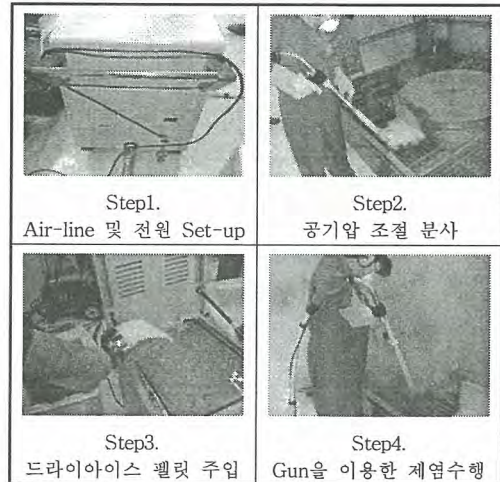


Fig. 2. 드라이아이스 제염 공정

2.2 제염장치 효율 극대화 방법

철재류 표면에 노즐을 가능한 수직으로 분사하여 펠릿이 제거성 오염물질에 가장 강한 충격을 줄 수 있도록 하며, 이 때 철재류의 형상에 따라 노즐을 교체하여 사용한다. 또한 철재류 표면과의 온도 편차가 클수록 이물질 제거 및 제염이 용이한 점을 고려하여야 하며, 장치 내부의 Hopper에 펠릿과 수분이 결합하게 되면 얼음이 생성되어

효율 저하 및 안전사고 위험을 초래할 수 있으므로 사용 전 수분을 모두 제거해야 된다. 드라이아이스 펠릿 보관 Box와 제염장치 Hopper의 뚜껑은 사용 후 항상 닫아두어 이물질 유입 방지 및 펠릿의 공기 중 자연 승화를 방지하여 경제적 손실을 줄이도록 한다.

2.3 제염 대상물별 성능 시험

월성1호기 압력관 교체 공사시 발생된 다양한 종류의 철재류 및 오염도에 따라 드라이아이스 제염 전·후의 방사능을 측정하여 제염성능을 평가하였다. 드라이아이스 제염은 대상 철재에 따라 5~10분 이상 펠릿을 분사하였다.

덕트류의 경우에는 펠릿의 공기압으로 인한 표면의 형상 변화가 나타났으며, 다른 철재류의 경우에는 기름때 제거, 녹이 있는 부위의 일부분이 떨어지거나, 표면의 페인트 도장부위가 벗겨지는 현상이 발생하여 오염제거에 일정 부분 효과가 있는 것으로 나타났다. 제염효과에 대한 비교는 아래와 같다.

Table 1. 철재류 제염성능 평가

	철재류 종류	제염전 (cpm)	제염후 (cpm)	효과 (평균)
1	덕트류	190	BKG	양호
		230	BKG	
		300	BKG	
2	중수 탱크류	1,200	500	53%
		500	300	
		850	400	
3	L-빔류 (T:2.0cm)	370	250	26%
		450	320	
		200	180	
4	L-빔류 (T:0.5cm)	300	120	58%
		360	130	
		470	230	
5	배관류 (Φ10)	400	180	51%
		300	170	
		350	160	
6	배관류 (Φ5)	220	110	45%
		230	130	
		300	170	
7	Frame류	180	100	23%
		300	250	
		250	210	

계측장비 : L200/PGM, S/N : 133576

차기교정일 : 2009.12.18, BKG : 60 cpm

3. 결론

드라이아이스 제염 장치로 각종 철재류의 제염을 수행하였을 때 다음과 같은 사항들을 검토하여 수행하였다.

○ 제염 효율(Decontamination Factor)은 덕트와 같은 아연도금 된 얇은 두께의 철재류에서는 탁월한 효과를 보였으며 그 밖의 다른 철재류에서도 평균 50%의 제염 효율을 보여 다른 제염방법(물리적/화학적 방법)과 같이 병행하여 처리하는 방법이 타당할 것이다.

○ 제염후의 건전성 측면에서는 덕트와 같은 얇은 철재는 공기압에 의한 펠릿의 강한 접촉으로 인한 표면이 울퉁불퉁한 모양으로 변화되며, 나머지 대부분의 철재류에서는 특별한 형상의 변형을 찾을 수 없었다.

○ 폐기물 처리 부분에서는 친환경적인 물질인 드라이아이스 펠릿은 오염표면에 분사됨과 동시에 공기 중으로 승화하므로 사용후 잔여물이 남지 않은 특성을 보였다.

○ 오염확산 측면에서는 초저온(-78.5℃)의 드라이아이스 펠릿을 분사하여 철재표면에 열쇼크를 주어 순간적 동결, 수축되고 균열이 발생되면서 제염되는 방식으로 오염물질이 주변으로 확산되지 않음을 확인 할 수 있었다.

○ 경제성 부분에서는 드라이아이스 제염설비 사용시 부수적 폐기물이 발생되지 않아 방사성폐기물 감용은 물론 폐기물 처리비용 절감에 기여할 것으로 판단되었다.

향후 원자력발전소에서 발생된 철재방사성폐기물의 자체처분을 위한 제염방법의 일환으로 활용할 수 있을 것으로 사료된다.

4. 참고문헌

- [1] 방사성폐기물의 자체처분에 관한 규정(교육과학기술부고시 제2009-37호)
- [2] 월성제1발전소 절차서 방0-6-220(처분제한치미만의 방사성폐기물자체처분절차)
- [2] 월성1호기 방사성폐기물 제염 및 자체처분용역 준공보고서(하나검사기술(주) 2010.01)

배기체 폐 필터 처리기술 개발을 위한 폐 필터의 특성평가

양재환, 박창제, 나상호, 심희진, 강권호, 이정원

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

yih98@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로 프로세스 전처리 공정을 통해 사용후핵연료에 포함된 핵분열생성물 중 세슘, 루테튬, 테크네튬, 아이오딘 등의 방사성 원소들이 배기체(off gas)의 형태로 휘발하게 되며, 이는 다공성의 세라믹 필터를 이용해 포집하게 된다. 휘발하는 배기체는 종류에 따라 fly ash, 칼슘, AgX 등으로 만들어진 필터에 선택적으로 포집되는데, 이로부터 발생한 배기체 포집 폐 필터를 안전하게 처리하는 기술개발이 처분장으로 보내지기 전에 추가적으로 요구된다. 그 기술은 주로 방사성 핵종을 포함한 폐기물이 처분장에 장기간 저장되었을 때 지하수와 반응하여 침출되지 않는 고건전성의 고화체를 제작하는 것에 귀결된다. 따라서 이번 연구는 배기체 폐 필터를 이용한 고화체를 제작하기 위한 첫 단계의 연구로서 배기체와 폐 필터의 특성조사를 통해 최적의 고화방안을 찾고자 하는데 목적이 있다.

2. 본론

2.1 배기체 및 포집 필터의 기본특성

10톤의 핵연료가 연소도 55,000 MTD/MTU으로 원자로에서 연소하고 10년 동안 냉각시켰을 때 발생하는 다양한 방사성 핵종의 반감기와 발생량, 그리고 이를 포집하기 위한 포집필터를 Table 1에 나타내었다. Table 1에 나와 있는 것처럼 대부분의 핵종은 반감기 30년 이상의 장반감기 핵종이기 때문에 최종 처분장에 처분하기 전 임시 저장소에 수십 년 혹은 수백 년 저장하는 것으로는 폐기물의 방사능을 처분장에서 요구하는 수준 이하로 떨어뜨리기 어려울 것이다. 결국 적절한 고화매질을 사용하여 고화체를 제작하는 것이 가장 합당한 처리 방안이라 여겨진다. 현재까지 시도된 대표적인 고화기술은 시멘트, 유리, 세라믹 고화 등을 꼽을 수 있으며, 시멘트 고화를 제외한 대부분의 고화공정은 수백에서 천 수백도에 이르는 고온 열처리를 요구한다[1]. 따라서

고온 가열을 했을 때 포집한 배기체가 휘발하는 정도가 고화공정을 선택을 좌우하는 주요 변수가 될 것이다. 그러므로 폐 필터의 고온 휘발성은 고화공정 선택을 위한 필수 단계라 할 수 있으며, 다음 절을 통해 각 폐 필터의 고온 휘발성을 알아 보았다.

2.2 배기체 폐 필터의 고온 휘발성

폐 필터의 고온 휘발성은 TGA 장비(Thermogravimetric Analysis)를 이용해 분석되었으며, 세 종류의 필터에 대한 고온 휘발성 결과는 다음과 같다. Fig. 1에서 보는 것처럼 세슘을 포집한 폐 필터는 1200 도에서 6시간 동안 가열했을 때에도 질량 감소가 1 % 정도에 지나지 않는다[2]. 이는 세슘이 fly ash에 흡착되며 열적으로 안정된 폴루사이트($\text{Cs}_2\text{Al}_2\text{Si}_4\text{O}_{12} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$)를 형성하기 때문인 것으로 파악되며, 이 결과에 근거할 때 fly ash 필터는 일반적인 유리화 공정이 가능할 것으로 판단된다. 칼슘 필터의 경우 Fig. 2에서 볼 수 있듯이 대략 900 도 이상의 온도에서 배기체가 휘발되고 있음을 알 수 있다. 따라서 칼슘 필터의 경우 유리화 공정이 적합하지 않으며, 시멘트를 이용한 고화 혹은 900 도 이하의 열처리를 요구하는 고화 공정 개발이 필요할 것임을 알 수 있다. Fig. 3은 아이오딘을 포집한 필터의 TG 결과로서 대략 200 도 이전에 대부분의 질량 손실이 이루어졌음을 볼 수 있다. 아이오딘을 포집하지 않은 필터의 경우에도 200 도 이전의 온도에서 질량 감소가 나타난 것을 미루어 볼 때, 질량 감소는 아이오딘에 의한 것이 아닌 수분이나 필터 구성물질의 휘발에 의한 것으로 생각된다. 향후 공업 분석 등의 추가적인 분석을 통해 AgX 필터의 고온 휘발성을 좀 더 정밀하게 파악할 필요가 있다.

3. 결론

배기체 포집 폐 필터에 대한 최적의 고화방안

을 선정하기 위해 배기체 및 폐 필터의 기본 특성과 고온에서의 휘발성을 조사하였다. 필터에 포집된 배기체의 결합 구조와 흡착 상태를 파악하기 위하여 향후 XRD 및 SEM을 이용한 추가적인 분석이 필요하다. 현 단계의 연구는 폐 필터별 최적의 고화방안을 선정하기 위한 기초자료의 역할을 수행할 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력중장기사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] M. I. Ojovan and W.E. Lee, An Introduction to Nuclear Waste Immobilization, Elsevier, 2005.
- [2] 신진명, 김광렬, 박장진, 신설우, 세습화합물별 석탄회 필터의 포집 특성, 한국폐기물학회, 제 22권, 제 1호, pp 27-39, 2005.

Table 1. Half-lives, masses, and trapping filters of radioactive isotopes(55,000 MTD/MTU, 10 yr cooling, 10 MTHM)

핵종	반감기	발생량 (kg)	포집필터
Cs-137	30.17 y	39.926	Fly ash
Rb-87	4.88E+10 y	5.483	
Cd-113	9.3E+15 y	2.141	
Tc-99	2.6E+6y	12.324	Calsium
Ru-106	1.02 y	36.843	
Rh-101	3.3 y	5.709	
Te-130	7.9E+20 y	4.092	
Mo-100	7.8E+18 y	34.096	
C-14	5730 y	1.067	
I-129	1.57E+7 y	3.661	AgX
Br-77	57 h	0.322	

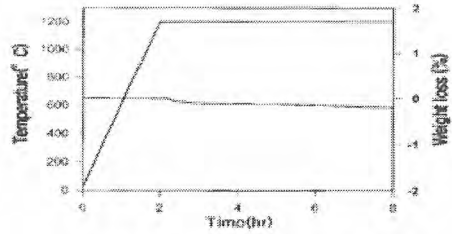


Fig. 1. TGA result of a Cs trapping filter during isothermal treatment of 1200 °C

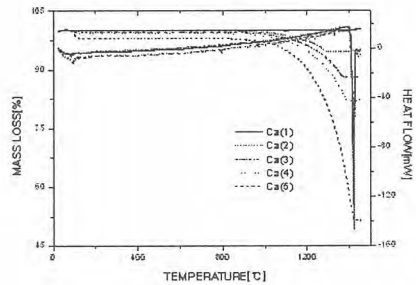


Fig. 2. TGA curves of rhenium trapping Ca-filters

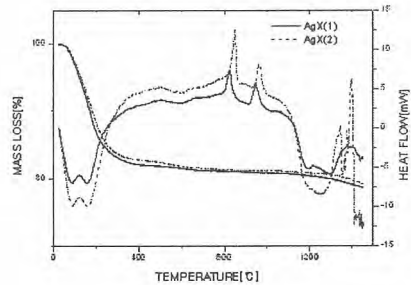


Fig. 3. TGA curves of iodine trapping AgX filters

연구로 및 우라늄변환시설 해체폐기물 처리계획

이기원, 홍상범, 조광훈, 박진호, 정운수
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
ngwlee@kaeri.re.kr

1. 서론

우리나라에서 최초로 수행된 연구로 1, 2호기 해체공사 및 우라늄변환시설 해체 공사 과정에서 다량의 자체처분 대상 폐기물과 방사성폐기물이 발생하였다. 공식적으로 2009년 12월 31일을 기준으로 하였을 때 방사성폐기물은 200리터 드럼을 기준으로 약 3,443드럼이 발생하였으며, 자체처분 대상 폐기물은 약 2,315톤이 발생하였다. 또한 우라늄변환시설 해체가 진행되고 있으며, 최종 마무리될 경우 다량의 토양폐기물 등이 발생할 것으로 예상된다. 그러나 해체과정에서 나온 자체처분 대상 폐기물 및 방사성폐기물을 감용처리하지 않고 그대로 경주 영구처분장으로 이송하여 처분할 경우 막대한 처분비용이 소요되므로 이를 감용처리하여 폐기물 양을 줄여 처분비용을 줄이는 것이 현실적인 요구가 되었으며, 본 논문에서는 연구로 및 우라늄변환시설 해체과정에서 발생한 폐기물을 가연성해체폐기물, 금속폐기물 및 콘크리트/토양폐기물로 분류하여 각각의 감용처리 방안을 제시하였다.

2. 본론

2.1 개요

연구로 1, 2호기의 해체사업은 1997년부터 시작되었으나 본격적인 해체공사는 2001년 6월부터 시작되었다. 당초에는 2008년 말까지 연구로 2호기와 동위원소생산을 위한 부속시설, 그리고 주변시설들의 해체를 수행하여 마무리할 예정이었으나 새로운 오염부위 발생과 이를 처리하기 위한 공사 등으로 2009년 3월말까지 연장하여 수행하였다. 현재는 연구로 1호기를 제외한 부지 및 건물을 규제해제 하기 위해 최종현황분석보고서를 작성하여 규제기관에 제출할 예정으로 있다. 연구로 1, 2호기 해체과정에서 발생한 폐기물은 자체처분 대상 폐기물의 경우 총 2,185톤이 발생하였으며, 이 중 금속 212.3톤, 콘크리트 1,855.6톤, 가

연성 32.3톤 및 비사연성 폐기물이 84.8톤 발생하였다. 자체처분 대상 폐기물로 분류된 폐기물 중 콘크리트 폐기물 1,734.5톤은 규제기관에 자체처분계획서를 제출하여 승인을 득한 후 도로 기반재로 재활용하였다. 콘크리트 폐기물의 자체처분은 시나리오의 설정이 그리 복잡하지 않아 자체처분이 가능하였으나 금속 및 가연성폐기물의 경우 시나리오 설정이 매우 복잡하여 현재 상태로 자체처분 하기 어려워 감용처리하여 처분비용을 줄이는 것이 필요하다. 또한 방사성폐기물의 경우에도 콘크리트 및 토양 폐기물의 경우 농도별 분리과정 및 원자력증장기개발과제에서 개발된 동진기 제염방식 등을 적용하여 제염처리하고, 가연성폐기물의 경우 소각방식을 이용하여 부피를 감용할 경우 다량의 폐기물을 줄일 수 있다.

또한 우라늄변환시설 해체과정에서 발생한 금속 폐기물과 다량의 오염된 콘크리트 및 토양폐기물을 제염, 감용처리할 경우 막대한 처분비용을 줄일 수 있다. Table 1에 연구로 1, 2호기 및 우라늄변환시설에서 발생한 폐기물의 현황과 Fig. 1에 실증 처리시설의 그림과 계약도를 타내었다.

2.2 처리방안

2.2.1 가연성폐기물

가연성폐기물의 처리는 한국원자력연구원에서 개발하여 발전기술원에 임대해주었던 방사성폐기물 소각시설을 반환받아 이를 알파폐기물을 포함한 연구로 및 우라늄변환시설 해체과정에서 발생한 폐기물 및 한전원자력연료(주)에서 발생한 폐기물을 소각처리 할 수 있도록 시설을 개선하여 인허가를 득할 예정이다. 당초 발전기술원에서 교과부에 인허가를 받은 범위는 알파폐기물을 제외한 베타 및 감마 폐기물만을 대상으로 하였기 때문에 작업자의 호흡기를 통한 방사성물질의 흡입 방지와 계량적인 측면에서 보완과정을 거쳐 국내 최초로 알파폐기물을 포함하여 소각할 수 있도록 시설을 개선하여 실증시설을 갖출 예정이

다. 가연성폐기물 처리시설의 처리 용량은 20kg/h, 40톤/년이다.

구분	자체처분대상폐기물 (<0.48g/g)		방사성폐기물		처리계획
	연구로	변형시설	연구로	연구로	
가연성	32.8톤	-	171드럼(10.7톤)	84드럼(7.5톤), 98드럼(5.0톤)	소각처리
금속	212.9톤	139.0톤	167드럼(40.2톤)	244드럼(52.3톤)	용융제염
콘크리트	1211톤	800.0톤	783드럼(268.9톤)	828드럼(181.3톤) 41드럼(16.7톤) 463드럼(155.3톤) 333드럼(15.9톤) 합계 1,630드럼	자체개발설비 · 자체처리
토양	-	-	177드럼(52.6톤)		

변형시설 가연성방사성폐기물 50% 소각처리 가능 ... 폐기물 미량특 상파

... 연구로 자체 방사성금속폐기물은 방사화도 인해 용융제염 불가

* 원연사 개발기술을 실용화한 연계하여 실증 ... 오염농도 5,000드럼은 연구시설에 임시 저장: KINS의 열외 원토

Table 1. The Status of Generated Waste from TRIGA Mark I, II Research Reactor and Uranium Conversion Plan

2.2.2 금속폐기물

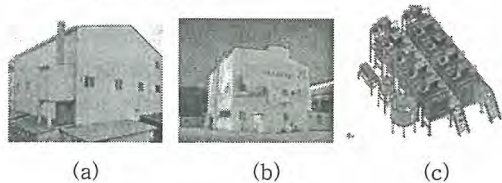
해체과정에서 발생한 금속폐기물의 용융처리를 위해 우라늄변환시설 해체과정에서 발생한 탄소강의 용융제염한 경험을 바탕으로 350kg/batch 규모의 고주파유도로를 설계, 제작하여 용융제염 처리할 예정이다. 고주파 유도로의 설치는 기존의 유리고화시험시설내의 플라즈마 용융로를 해체하여 이를 고주파 유도도로 교체할 예정이며, 여과계통 등은 기존의 설비를 개선하여 활용할 예정이다. 대상폐기물은 연구로 및 우라늄변환시설 해체과정에서 폐기물을 대상으로 하지만, 연구로 해체과정에서 발생한 방사화된 금속폐기물은 다양한 핵종이 존재 가능성을 고려하여 대상에서 제외할 예정이다.

2.2.3 콘크리트 및 토양폐기물

오염 콘크리트 및 토양에 대한 제염 처리시설은 원자력증강기연구개발사업에서 개발된 콘크리트 및 토양제염기술을 활용하여 콘크리트의 경우 1톤/day 및 180톤/년 처리용량을 갖춘 제염장치를 설계 제작하여 제염할 예정이며, 토양의 경우 600L/batch 규모의 제염장치를 설치하여 30드럼/10일, 540드럼/년 제염처리할 예정이다. 우라늄변환시설 해체과정에서 당초 예상보다 훨씬 많은 토양폐기물이 발생될 것으로 예상되어 당초 350kg/batch 용량의 장치를 10개 설치할 예정이나 이후 제염의 효과 등을 고려하여 추가 설치할 예정으로 있다.

3. 결론

연구로 1, 2호기 해체과정에서 발생한 가연성폐기물은 소각로를 사용하여 감용처리 한 후 소각재는 고형화하여 방사성폐기물로 처분하며, 금속폐기물은 고주파유도로를 사용하여 용융처리후 용융금속폐기물(Ingot)은 그 농도에 따라 자체처분하고, 슬래그의 경우는 방사성폐기물로 처분할 예정이다. 콘크리트의 경우 분리과정과 자체개발한 제염기기를 활용하여 처리할 예정이며, 토양의 경우 제염장치를 활용하여 자체처분 대상폐기물로 제염시키고, 폐액은 재활용한 후 최종 고형화하여 처리할 예정이다.



(a) Burnable Waste Treatment Facility

(b) Metal Waste Treatment Facility

(c) Concrete/Soil Decontamination Treatment Facility

Fig. 1. Waste Reduction Treatment Facilities

LiCl 염 재생을 및 핵종분리의 고효율을 위한 결정화기 모델링

정진석, 조용준, 김인태, 이한수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150-1

iins305@kaeri.re.kr

1. 서론

금속 또는 산화물 사용 후 핵연료의 pyro-processing을 통한 에너지 자원으로서의 이용성 또는 관리 안전성을 제고하는 연구가 전 세계적으로 활발하게 진행되고 있다. 우리나라가 개발하고 있는 산화물 사용 후 핵연료의 pyroprocessing 공정에서 발생이 예상되는 폐기물중 가장 문제가 되는 폐기물은 고준위 폐기물로 처리/처분 되어야 하는 염 폐기물이다. 사용 후 산화물 핵연료의 전해환원공정은 사용 후 핵연료를 고온용융 LiCl 계에서 산화물 핵연료를 금속으로 전환시킨다. 이때 U, TRU 및 희토류핵종들은 거의 대부분 산화물로 전환되지만 I족 및 II족 핵종들은 염화물형태로 염내에 존재하며 전해환원공정이 진행됨에 따라 I족 및 II족 핵종의 발열로 더 이상 LiCl 사용이 불가능해지므로 교체를 해주어야 하므로 최종 폐기물의 양이 증가하게 된다. 이러한 고방열성인 핵종들만을 분리하고 정제된 LiCl 염을 전해환원공정에 재사용하는 기술을 개발한다면 최종 처분되는 고준위 고화체의 양을 최소화 할 수 있을 뿐 아니라 염의 재생으로 인한 전해환원 공정의 경제성을 증대시킬 수 있다. 이를 위해 본 연구에서는 경막형 용융결정화 방법을 이용하여 LiCl 염 폐기물 내 포함되어 있는 핵종을 효율적으로 분리하기 위한 중요 요소인 냉각공기의 유량에 따른 결정화기의 온도의 변화를 유체유동 전산모사 프로그램인 CFX 를 이용하여 내부온도를 모사하였다.

2. 본론

2.1 실험 및 결과

본 연구에 사용한 lab-scale 경막결정화 장치의 결정화기를 나타내고 있다(Fig. 1). 결정을 생성시키며 분리효율에 영향을 미치는 결정판 내부는 최대한 균일한 온도분포를 나타낼 수 있도록 10mm 간격으로 baffle을 설치하였다.

또한 결정판 표면에서 내부 냉각공기와 결정판 외부에 생성된 결정과 액상으로 존재하는 계면을 Fig. 2 에 도식화하였고, 1차식의 heat transfer (1)(2) 와 mass transfer (3) 통해 결정판에 생성된 결정의 두께와 그에 따른 온도변화와 결정생성속도를 나타내었다.

$$\rho_i C_{pi} \frac{\partial T_i}{\partial t} = k_i \frac{\partial^2 T_i}{\partial Z^2}, (z \geq Lt) \quad (1)$$

$$\rho_s C_{ps} \frac{\partial T_s}{\partial t} = k_s \frac{\partial^2 T_s}{\partial Z^2}, (0 \leq z \leq Lt) \quad (2)$$

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C_i}{\partial Z^2} + v(t) \frac{\rho_s}{\rho_i} \frac{\partial C_i}{\partial Z}, (z \geq Lt) \quad (3)$$

I.C. : $T_i(Z,0)=T_s(Z,0)=T_w, Lt=0, C_i(Z,0)=C_s(Z,0)=C_0$ B.C. : when $t>0, T=T_w$ (at $Z=0$), $T=T_m$ (at $z \rightarrow \infty$)for interface of solid and melt ($Z=Lt$);

$$T_{li}(Lt,t)=T_{si}(Lt,t),$$

$$\rho_s \lambda_s \frac{\partial L_i}{\partial t} = k_s \left[\frac{\partial T_s}{\partial Z} \right] - k_i \left[\frac{\partial T_i}{\partial Z} \right], \frac{\partial L_i}{\partial t} = v(t) \quad (4)$$

위 1차식에 따라 결정화기의 표면으로부터 일정 거리에 대한 결정판 냉각시간에 따른 온도변화를 알아보았고 그에 따른 결정생성 여부를 알아보았다. 또한 시간에 따른 결정생성 두께와 결정생성속도와 결정판 온도가 500℃/550℃ 일 때 시간에 따른 solid 계면의 온도변화와 냉각공기를 통한 온도변화량을 알아보았고, 그리고 냉각시간과 결정두께에 따른 LiCl의 순도 측정해 하였으며, 냉각공기의 유량에 따른 결정화기의 온도변화를 알아보기 위해 유체유동 전산모사 프로그램인 CFX 를 이용하여 내부온도를 모사하였다.

3. 결론

염층온도 680℃일 때 결정판 온도 600℃ / 400℃

에서 결정화기로부터 결정생성 길이에 대한 냉각 공기 유입 시간 변화에 따른 온도 변화를 나타내었다(Fig. 3). Fig. 3 과 같이 결정화기의 온도제어가 600℃ 일 때는 낮은 냉각강도에 따라 결정이 형성되지 않았으며, 400℃ 일 때 너무 낮은 냉각 온도로 결정의 순도가 떨어지는걸 알 수 있다.

결정판 온도가 500℃/550℃ 일 때 냉각시간에 따른 결정생성 두께와 생성속도에서는 500℃에서 20mm 와 550℃에서는 14mm 의 두께로 결정두께는 500℃에서 더 높은 회수율을 나타내었고, 결정 생성속도 또한 500℃에서 더 빠른 결과를 나타내었으며(Fig. 4), 시간에 따른 solid 계면의 온도변화와 냉각공기를 통한 온도변화량은 $80 < \Delta T < 180$ 범위 내에서 이루어지는 것을 알 수 있었다(Fig. 5). 생성된 결정의 두께에 따른 LiCl 분리 효율을 보면, 염층온도 680℃, 결정판 온도 580℃의 조건에서 10 min에서 0.97의 순도를 나타내었고, 60 min에서 가장 높은 순도를 나타내었다(Fig. 6). 그리고 유체유동 전산모사 프로그램인 CFX 를 이용하여 냉각공기(10,20,30,40 l/min) 조건으로 내부 온도 모사를 Fig. 7 에 나타내었다.

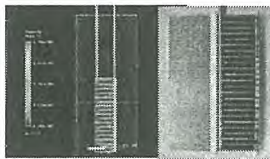


Fig. 1. Optimum crystallizer design and surface temperature with flowrate

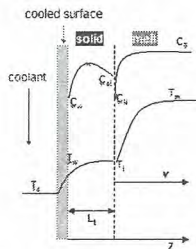


Fig. 2. Diagram of crystal generated on the crystallizer by cooling air

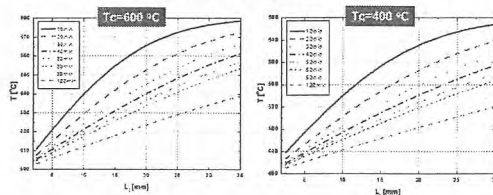


Fig. 3. Melt side temperature

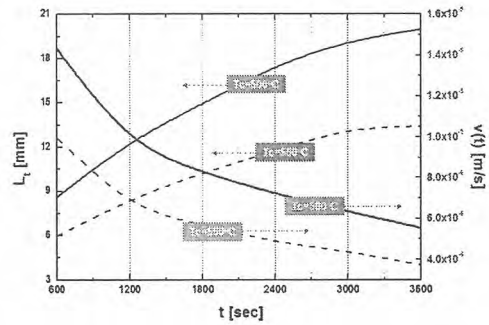


Fig. 4. Layer thickness(Lt) and crystal growth rate(v(t))

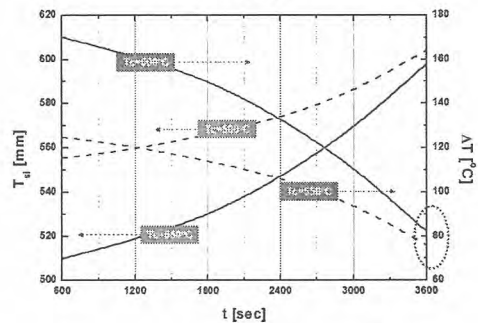


Fig. 5. Solid interface temperature(Tic) and supercooling(ΔT)

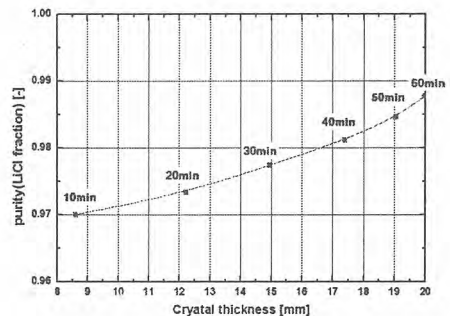


Fig. 6. Purity of LiCl crystal

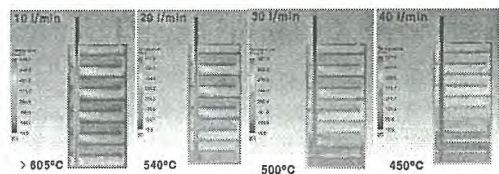


Fig. 7. Actual surface temperature with cooling air flowrate($T_{air}=25^{\circ}C$, $T_m=680^{\circ}C$)

10,000 Ci 삼중수소 저장용기의 수소저장특성

박대엽, 백승우, 이민수, 안도희, 손순환*, 송규민*

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

*한전전력연구원, 대전광역시 유성구 문지동 103-16

dypark@kaeri.re.kr

1. 서론

삼중수소는 반감기가 12.3년으로 베타입자방출에 의해 헬륨-3으로 붕괴되는 수소의 방사성 동위원소이다. 중수형 원자력 발전소(CANadian DeUterium Pressure Heavy Water Reactor)의 중수계통에 삼중수소가 존재하면 발전소 종사자의 방사선 피폭 및 발전소 전체의 방사선 준위가 상승한다. 월성 원자력 발전소에서는 삼중수소제거설비(WTRF: wolsong tritium removal facility)로 순도 99% 이상인 삼중수소를 회수하여 안정하게 저장 보관한다[1].

삼중수소 취급시설간의 삼중수소 이송과 계량/분배 시설에서의 삼중수소 공급을 위해서는 안전한 형태로 저장 및 운송할 수 있는 저장용기가 필요하다. 기체상태의 삼중수소는 액체상태에 비해 그 위험도가 낮으나, 기체상태 그대로 용기에 저장하면 누설의 위험성이 있다. 많은 양의 삼중수소를 저장하려면 금속 tritide 형태로 저장하는 것이 안정하다.

금속 tritide 형태로 삼중수소를 저장하는 금속 물질들의 삼중수소 저장특성은 대체적으로 잘 알려져 있으며, 현재 원자력 선진국에서는 ITER, 삼중수소산업, 삼중수소 취급시설 등 여러 가지 형태의 용도에 따라 다양한 형태의 저장용기를 사용하고 있다.

본 연구에서는 삼중수소 저장용기의 개발을 위하여 설계 제작된 시험용 10,000 Ci 저장용기의 수소저장특성을 알아보았다.

2. 본론

2.1 실험재료 및 장치

설계 제작된 10,000 Ci 삼중수소 저장용기는 Fig. 1과 같이 제작되었다. 저장용기는 316L 스테인리스 스틸로 제작되었으며 상단에 수소의 유입과 회수를 위한 3/8" 튜브가 존재하며 이 튜브 끝에 7 μ m의 다공성 스테인리스 스틸 필터가 부착

되어 저장용기로 부터의 ZrCo tritide 입자의 유출을 막는다. 이 저장용기의 저장용기에 충전된 저장금속 물질인 ZrCo는 SAES Getters (Milano, Italy)사의 시료 25.5 g을 사용하여 10,000 Ci의 삼중수소를 저장한다. 이 실험에서는 삼중수소를 대신하여 99.99 % 고순도 수소가스를 사용하여 저장특성을 알아보았다.

실험 장치는 Fig. 2와 같이 시스템 내부계통의 진공은 Turbo Molecular pump(TMP)와 rotary pump를 이용하여 유지하며, TMP는 10^{-6} torr 이하의 진공을 만들 수 있다. 저장용기에 thermocouple을 설치하여 온도 변화를 측정하였다. 압력변화는 MKS PR4000 Baratron gauge(1000 torr head, uncertainty ± 1 torr)로 측정하였다. 각 센서로부터 측정된 데이터는 Lab View를 통해서 수집하였다. 저장용기의 실험을 위해 10 L의 체적 탱크를 설치하였다. 실험 장치의 운전은 Paek 등[2]에 기술한 바와 유사하다.

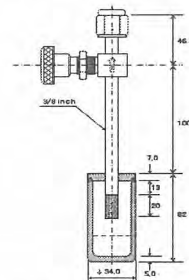


Fig. 1. Diagram of a 10,000 Ci tritium storage vessel.

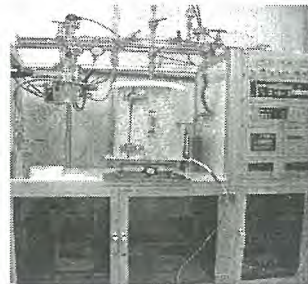


Fig. 2. Experimental apparatus

2.2 ZrCo의 활성화

저장용기를 상온에서 rotary pump와 TMP를 이용하여 압력이 10^{-6} torr이하인 진공상태로 만든다. ZrCo에 포함되어 있는 휘발성 불순물을 제거하기 위해 500℃로 저장용기를 가열한 후 5시간 동안 유지시켜 vacuum annealing을 수행한다. ZrCo와 수소와의 초기 흡장반응속도가 늦기 때문에 저장용기의 온도를 100℃로 맞춘 후 수소를 반응기로 주입한다. 수소가 시료에 모두 흡착이 될 때까지 온도를 유지한다. 주입된 수소가 시료에 모두 흡착되면 진공상태에서 반응기의 온도를 350℃로 올려 5시간동안 흡착된 수소를 탈착시킨다. Fig. 3는 100℃에서 시료에 수소를 흡착시킬 때의 압력변화를 나타내고 있다. 수소흡착은 70분 후에 완료되었다.

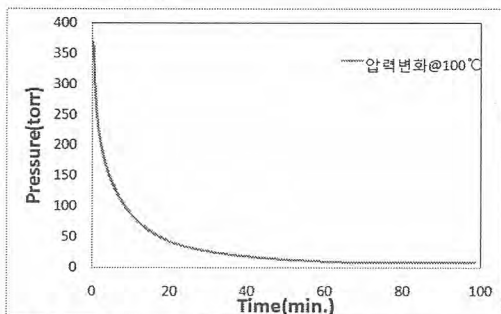
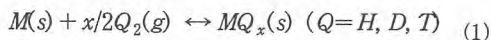


Fig. 3. The variation of the hydrogen pressure during the activation of ZrCo

2.3 삼중수소 저장용기의 수소저장반응

금속 수소화(Metal hydride)는 수소동위원소(hydrogen isotopes)를 저장하는데 있어서 가장 일반적인 방법이다. 특히 금속이 미세입자로 되어 있을 때 수소와의 반응이 가장 잘 일어난다. 금속 수소화반응은



과 같은 반응식을 따르며 이 반응은 발열반응이고 상온에서 자발적으로 일어난다. ZrCo와 H의 흡장비가 1:3이 되도록 이상기체상태방정식 PVT 법에 의해 ZrCo와 반응할 수소량을 결정하였다.

약 370 Torr의 수소를 상온에서 ZrCo와 반응을 시켰다. Fig. 4에 저장용기 내부의 압력변화를 나타내었다. 흡장이 완료되면 Fig. 5와 같은 온도 조건으로 흡장된 수소를 탈장시킨다. Fig. 5에서 50분 후에 수소흡장이 완료되는 것을 볼 수 있으며 10회의 흡탈장 과정이 반복되었을 때 저장능력의 저하됨이 보이지 않았고 최종 저장용기에

흡장된 수소의 양은 H/ZrCo=2.97이 되었다.

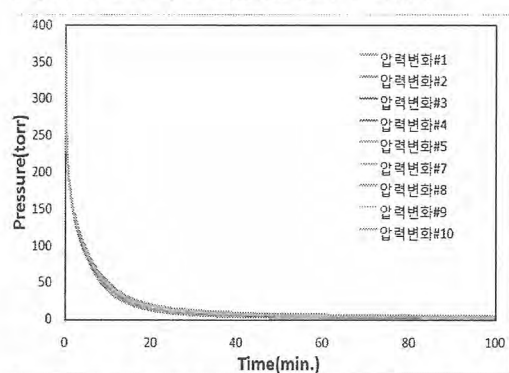


Fig. 4. rate variation according to the cycle of absorption and decomposition of the hydride

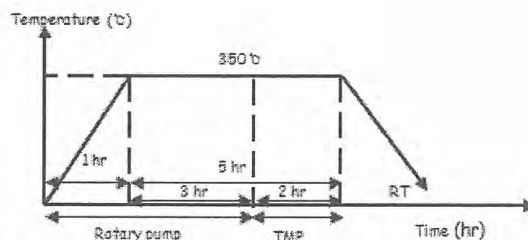


Fig. 5. the process of desorption of the hydrogen

3. 결론

삼중수소 저장용기의 개발을 위해 설계, 제작된 실험용 10,000 Ci 저장용기에는 25.5g의 ZrCo가 충전되었다. 매회 10,000 Ci의 삼중수소에 해당하는 수소를 ZrCo에 흡탈장시키는 실험을 10회 수행하였다. 10회 흡탈장 반응의 결과 수소의 양은 H/ZrCo=2.97임을 보였으며 흡탈장이 반복됨에 따른 수소저장능력의 저하가 보이지 않았다. 이 결과로 실험용 저장용기는 약 10,000 Ci의 삼중수소를 저장할 수 있을 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

- [1] Ahn, D. H., Paek S., Lee, H. and Chyng H., "Tritium Activativites in Korea", Fusion Sci. Tech, 41(3), 329-333(2002)
- [2] Paek, S., Ahn, D. H., Kim, K. R. and Chung, H., "Properties of Titanium Sponge Bed for Tritium Storage", Fusion Sci. Tech., 41(3), 788-792(200)

량계를 설치하였다. 또한 capillary tube 전 단계에는 고압의 소량 시료를 조절할 수 있는 고압펌프를 연결하여 극미량의 시료를 조절할 수 있게 하였다.

2.3 실험조건

원자로 냉각재 계통 내의 Li와 B의 농도를 고려하여 모의 시료 용액에 Li 농도 1, 2.2, 2.2 ppm, B 농도 50, 600, 1200 ppm으로 변경하면서 모의 시료를 제조하여 사용하였다. 또한 고압펌프를 사용하여 Capillary Tube를 통과하는 유량을 4.0~5.0 mL/min으로 설정하고 총 1 L씩 시료를 채취하였다. Capillary Tube 하단에는 지름 47mm의 Membrane Filter Holder를 장착하여 0.45 μ m Membrane Filter와 그 위에는 Cation Filter를 넣고 시료를 여과, 채취하였다. 채취된 시료는 건조기에서 수분을 없앤 후에 Microwave Digestion System을 이용하여 산 분해하였다. 용액화된 시료는 유도결합 플라즈마 원자방출 분광기(ICP-AES)를 이용하여 원소들을 분석하였다.

2.4 실험결과

위의 방사화 부식생성물 포집장치를 이용하여 채취한 시료들의 분석값을 Fig. 2에 나타내었다. 또한 Grab sampling에 의해 채취된 시료들의 분석값을 Fig. 3에 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 Li와 B 농도변화에 따른 원소들의 분석결과는 Li와 B의 농도가 커질수록 Grab sampling에서는 큰 변화 없이 측정되었으나, Capillary Sampling에서는 농도가 증가함에 따라 원소들의 측정값들이 상대적으로 증가하는 경향을 나타내었다.

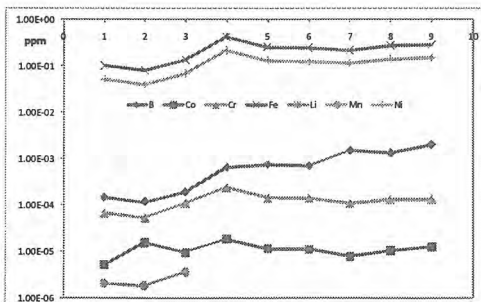


Fig. 2. Measurements of each elements(B, Co, Cr, Fe, Li, Mn, Ni) on Grab sampling

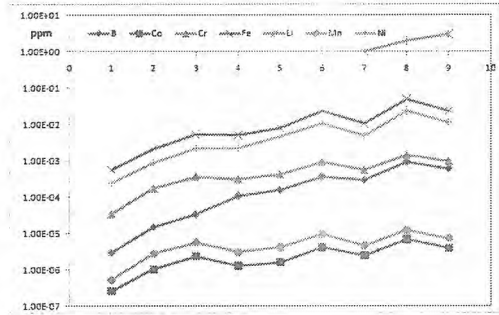


Fig. 3. Measurements of each elements(B, Co, Cr, Fe, Li, Mn, Ni) on Capillary sampling

3. 결론

본 논문에서는 Lab scale 방사화 부식생성물 포집장치를 제작, 설치하여 모의 시료를 이용한 Capillary Sampling에 대한 연구를 수행하였다. 원자력 발전소의 원자로 냉각재 계통내의 조건을 고려해 볼 때 실험조건이 정확하게 일치하지는 않지만, 실험값들을 비교해 본 결과 실험조건에서의 차이에 따른 Grab Sampling과의 차이점을 참고로 추후 실험서는 더 확실한 결과값을 얻을 수 있을 것으로 예상된다.

4. 참고문헌

- [1] P.Cake and J.Brunning, Elemental Radio-chemical and Particle Population Measurements Carried out on the Primary Coolant at Ringhals 2 During Steady Operation November-December 1992, AEA RS 2364, March(1993)
- [2] Pressurizes Water Reactor Primary Water Chemistry Guidelines, EPRI, 1014986, Volume 1, Revision 6, December (2007)

방사성폐기물 자체처분시 연마제염 개선에 대한 기술

신경옥, 박병목, 채경선, 정희성

세안기술주식회사, 서울특별시 금천구 가산동 481-10 벽산디지털밸리Ⅱ 910호

and9211@sae-an.co.kr

1. 서론

국내에 방사성동위원소(이하 "RI"라 한다.)의 사용은 매년 증가하고 있으며, 주 사용처는 의료기관, 산업체, 교육기관 및 연구기관등으로 크게 구분할 수 있다. RI사용에 따라 발생하는 방사성폐기물은 한국방사성폐기물관리공단에 위탁폐기를 하거나 일정기간 보관 또는 오염제거(제염) 후 자체처분을 실시하고 있다.

원자력발전소의 경우에도 발생된 폐기물은 방사선(능) 측정을 통하여 교육과학기술부고시 제 2009-37호(방사성폐기물의 자체처분에 관한 규정고시)에 명시된 기준치이하인 경우 자체처분을 실시하고 있으며, 만약 자체처분 기준치 이상이면 이를 제염하여 자체처분을 할 수 있도록 유도하여 방사성폐기물 저감에 기여하도록 하고 있다.

방사성 오염은 제거가 용이한 유리성오염과 오염의 제거가 어려운 고착성오염으로 나눌 수 있는데 제염기술은 그 목적과 적용대상에 따라 가장 적합한 것을 선택하는 것이 중요하며 제염효율, 제염후의 건전성 및 제염후 발생하는 폐기물 처리 등의 사항을 고려하여야 한다.

이러한 제염기술로는 크게 화학적 제염법, 기계·물리적 제염법 및 전기·화학적 제염법등으로 분류할 수 있고, 그 목적 및 적용대상에 따라 국내외에서 다양하게 연구, 개발되고 있고 상용화된 기술도 다양하다. 현재 대표적으로 발생하는 자체처분대상 폐기물 유형으로는 콘크리트, 금속류 및 플라스틱 등이 있다.

본 연구에서는 자체처분 시 적용하는 다양한 제염기술 중 물리적 제염 방법으로서 연마(Grinding) 제염방법에 대한 개선 방안을 제시하였다.

2. 본론

원자력발전소내에서 발생하는 폐기물의 자체처분시 대상물의 오염제거를 위해 상용화된 대표적인 제염기술을 Table. 1.에 나타내었다.

Table 1. The Decontamination technology

Physical Decontamination	
• Flushing with Water	• Vacuuming
• Steam Cleaning	• Co ₂ Blasting
• Grinding	
• Dusting/Wiping/Scrubbing	
Chemical Decontamination	
• Paint Removal	
• 세정제 사용(Commao Cleaner, Nabakem(MC-2), RUSH-OUT, Helotil 등)	

위와 같은 제염기술 중에서도 콘크리트, 금속류 및 플라스틱 등의 오염제거 방법 중 연마제를 사용하는 Grinding에 의한 제염방법은 손쉽게 적용할 수 있는 대표적인 제염기술이다.

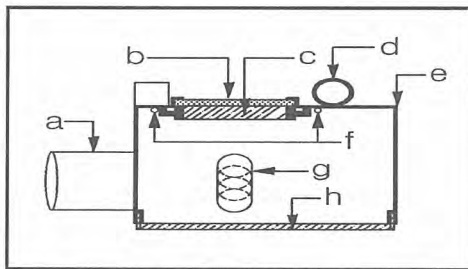
그러나 기존의 연마제염의 방식은 그라인더를 이용하여 대상물을 연마하는 방식으로서 필요시 그라인더 앞부분에 진공청소기를 연결 부산물을 흡입하는 방식이었다. 이러한 연마제염은 연마시 오염입자의 비산 및 오염 확산의 우려가 있어 작업자의 체내피폭 등을 방지하기 위해 방호마스크 등의 방호용품을 착용해야하며 또한 경우에 따라 작업장의 오염의 확산 방지를 위해 공조시스템이 설치된 작업텐트 안에서 작업을 실시해야 한다.

본 연구는 이러한 기존의 연마방식을 개선하여 오염입자의 비산등과 같은 오염확산을 최소화하고 보다 안전한 작업을 수행할 수 있도록 하우징을 설계 제작 하는데 그 목적을 두었으며, "오염 확산방지용 연마제염기"의 구조는 Fig. 1. 도면에 나타내었다.

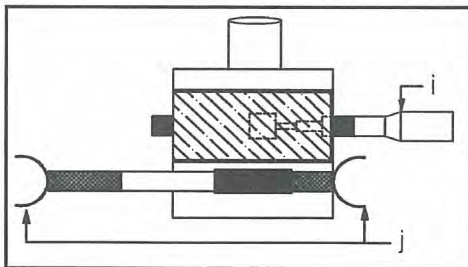
이번에 설계 제작하는 하우징의 외관은 스테인레스 재질을 사용 사각 박스형태로 제작하고 아랫면을 제외 한 다섯면은 최대한 밀폐될 수 있는 구조로 설계하였으며 하우징의 각 부위 특징은 다음과 같다.

외부의 양측면에 에어그라인더를 삽입하여 대상물을 연마할 수 있도록 하고, 이때 삽입구와 에어그라인더의 틈새는 고무재질로 밀폐함으로써 연

마시 발생되는 부산물 등은 연결된 진공청소기에 의해 흡입될 수 있도록 흡입구를 설계하였다. 또 하우징 상단에 오염제거 대상물의 제염부위와 연마상태를 육안으로 확인할 수 있도록 감시창을 설치하고 감시창 위에 내부를 비출수 있는 조명을 부착하였다. 그리고 내부에 감시창이 제염시 발생되는 작은 미립자 등에 의해 흐려질 경우를 대비해 하우징 내부에 감시창 와이퍼를 설치하였다. 이와 함께 상단에 손잡이를 설치하여 연마시 진동을 방지하는 동시에 손잡이는 연마기의 위치에 따라 좌우로 움직일 수 있도록 하였다. 또한 손잡이의 양끝단에는 진공청소기의 흡입관을 고정시킬 수 있는 거치대를 만들어 제염작업시 진공청소기의 흡입관이 움직이는 것을 방지함으로써 작업을 보다 용이하도록 하였다. 마지막으로 하우징의 밑단에는 고무패킹을 부착하여 연마시 발생되는 오염입자의 비산으로 인한 오염확산을 방지할 수 있도록 한다.



a : 진공흡입구 b : 감시창 c : 감시창 와이퍼
d : 손잡이 e : 하우징 f : 조명
g : 연마기삽입구 h : 고무패킹



i : 연마기 j : 거치대

Fig. 1. Modified design concept of the grinding decon. equipment

“오염확산방지용 연마제염기”의 하우징 제작모습과 사용공구는 Fig. 2와 Fig. 3에 나타내었다.

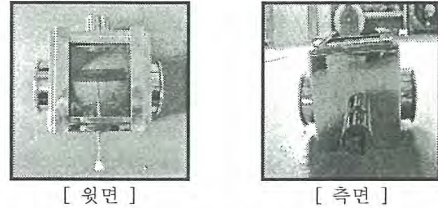


Fig. 2. Scheme of the housing parts

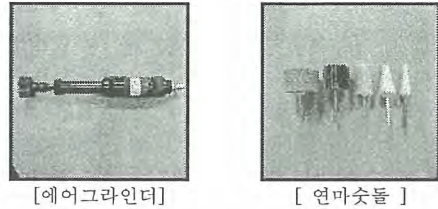


Fig. 3. Tip tools for grinding decon. equipment

3. 결론

이번에 개발한 오염확산방지용 연마제염기는 하우징을 제작하여 기존의 연마제염 방식을 개선한 것으로 하우징에 삽입될 에어그라인더의 경우 Fig. 3처럼 다양한 모양의 연마숫돌로 교체 할 수 있어 좁은 홀이나 틈새의 오염제거도 가능할 것으로 기대된다. 또한 “오염확산방지용 연마제염기” 사용으로 오염확산 방지에 따른 작업장의 바닥 제염시 발생되는 이차 폐기물량을 최소화 할 수 있을 뿐아니라 미립자 비산에 따른 작업자의 내부피폭 방지 효과도 얻을 수 있으며 보다 안전한 작업이 될수 있을 것으로 기대된다.

자체처분은 발생된 방사성폐기물을 저장하기 위한 것으로 자체처분시 발생되는 이차 폐기물량을 줄이는 것이 가장 중요할 것으로 판단되며, “오염확산방지용 연마제염기”는 이러한 이차폐기물을 저장하는데 기여할 것으로 사료된다.

4. 참고문헌

- [1] 한국수력원자력(주), 2009 방사선안전관리 Workshop, pp84-85, 2009
- [2] 미래방사선엔지니어링(주), 방사성물질 제염 최적화 방안연구, pp90-92, 2009

POLYMER SOLIDIFICATION TECHNOLOGY - Technical Issues and Challenges

CHARLES JENSEN, JUYOUL KIM*

Diversified Technologies Services, Inc., 2680 Westcott Blvd., Knoxville, TN 37931

*FNC Technology Co., Bldg.#135, Seoul National University, Gwanak-gu, Seoul

cjensen@dts9000.com

1. Introduction

Since 1992, Diversified Technologies has worked to improve and expand polymer solidification technology for processing of radioactive wastes to a stable waste form. The path to achieving an approved NRC 10CFR61.56 Branch Technical Position (BTP) waste form (or equivalent) is a long and arduous one. Many factors come into play, most of which are discovered and resolved only during full-scale solidification testing of each of the media commonly used in nuclear power plants (including anion, cation and mixed bed resins; activated carbon; zeolites; and specialty wastes such as dried concentrate from evaporators or reverse osmosis systems). Each waste stream is unique, and must be addressed accordingly. This testing process is so difficult that Diversified's Vinyl Ester Styrene (VESTM) and Advanced Polymer Solidification (APSTM) are the only two approved processes in the United States today. This paper summarizes a few of the key obstacles that must be overcome to achieve a reliable, repeatable process for producing an approved Stable Class B&C waste form.

2. Methods and Results

Several key factors come into play in producing a compliant NRC 10CFR61.56 Branch Technical Position (BTP) waste form. Each of the following is discussed in detail below.

A key parameter of the binder formulation is viscosity. If the binder is too viscous, it cannot be pulled through the waste beds. The problem of viscosity is not evident in small containers such as test cups or small drums, but is more evident in 60-, 80- or 100-cubic foot liners. When binder is introduced to large liners, it penetrates the top 1'-2' very rapidly, and then slows sharply. Some momentum can be maintained by increasing the vacuum on the liner, but the vacuum must be limited if the bed is organic resin. Wetting characteristics of the binder also play a role: it's important that the binder has very good wet-out behavior. If the binder does not wet-out, each bead or granule that it passes will create a small amount of resistance - much like what we feel when we try to push the same poles of two magnets together - as they get close, they repel each other. This creates "resistance" in the bed, which impedes binder flow through the bed, and increases the

challenge posed in solidifying large liners with viscous binder in cooler temperatures. Diversified devoted the better part of two years to running multiple full-scale tests until we developed a reliable combination of viscosity, wetting, vacuum pressures and liner internals. There simply are no shortcuts to full-scale testing to bound these parameters.

An important factor in repeated successful solidification is the type and configuration of the dewatering/solidification internals. If the internals are not properly configured and spaced, areas can be left unimpregnated with binder as the binder, drawn by the vacuum, advances toward the solidification internals, overrunning gaps between them, or not reaching the lower outside shoulder of the liner's perimeter. If the media being solidified is wet resin, unwanted pockets of water can be left. The configuration of the internals is less critical in smaller containers (e.g., drums) than in large liners, where there are greater gaps between internals and the advancing binder face can vary greatly over the area in the bottom of the liner. Once the appropriate internal configurations were determined, DTS conducted full-scale tests in 55-gallon drums and 15-, 60-, 80-, 120- and 200-cubic foot liners. The NRC required demonstration of these capabilities before the final qualifying solidification was allowed to go forward in the 200 cubic foot liner. NRC personnel observed that solidification, and it was the basis for our formal Topical Report submittal to the NRC.

During early testing, waste interference was a chronic problem. When one of the three resin types was not fully depleted or when carbon was present, one of the binder formulation components would be stripped from the binder as the binder passed down through the bed. This resulted in good solidification at the top of the liner, but partial or no solidification at the bottom. This behavior is not evident in cup or small drum testing, as the binder travels only a few inches or feet through the waste media. In larger liners, the binder has to slowly travel through as much as 4' of the waste bed, and is exposed to stripping for 1 to 1.25 hours. The NRC required full-scale testing of each of these media to demonstrate that there was not waste interference: anion, cation, mixed bed, cation, fine activated carbon and inorganic zeolitic media (used for cesium removal). Based on successful demonstration that these media (in their undepleted form, which would be more reactive with the

binder) did not interfere with proper gelation and solidification, the final 200- cubic foot qualification test was conducted with the required layers of each of these media in the liner.

Though the vacuum pressure applied can be varied across a small band, it's important that the vacuum be matched to the binder viscosity and temperature. The optimum band of vacuum pressures must be determined based on polymer formulation. If the vacuum is too low, the binder will be drawn too slowly through the liner, and the advancing binder face will start to gel before the liner is completely impregnated. If the vacuum is too high, the binder will advance too fast, resulting in a non-uniform binder face. This non-uniform advancement can create voids or holidays in the monolith as the polymer or overruns some regions of the liner, arriving at the solidification internals before other regions have been fully impregnated with polymer. An initial vacuum that is too high can cause bed compression, primarily an issue with organic resins. This compression can reduce the flow paths through the resin, slowing or stopping the flow of binder through the bed. While a higher viscosity formulation requires higher vacuum pressures, they cannot be so high as to compress the resin bed. Diversified developed it's optimum vacuum band for the three variations of the APS™ formulation, when used in ambient temperature range. Extensive testing and multiple full-scale solidifications were necessary to develop this banding.

To meet our testing needs and the preliminary requirements of the NRC, all of the full-scale liners had their skin removed and were cut into halves or quarters with a diamond wire saw to expose all regions of the interior for inspection for voids or water pockets. For the final 200- cubic foot test liner, the NRC required Diversified to bore 13 holes completely through the monolith from top to bottom in a pattern provided by the NRC. All the borings were then inspected for voids or areas not fully impregnated. Any suspect areas had to be cut out and compressive tested. That monolith has been retained and is to be inspected at intervals of every few years to confirm that the monolith is intact, even after going through rain, snow and numerous freeze-thaw cycles. Other full-scale monoliths or sections thereof have been saved for future inspection.

Though it was not a requirement of the NRC, Diversified was required by U.S. nuclear plant that we had the ability to recover from an upset condition that prevented all the polymer from being introduced before the polymer started to gel. This would leave a partially solidified liner with the top of the waste bed solidified and the bottom of the bed unsolidified with accumulated water (if wet resins are being solidified). A partially solidified liner cannot be buried as it does not meet the Class

B&C Stable requirement, so Diversified was required, by U.S. nuclear power plants, to demonstrate a means of recovery from this upset condition before the APS™ solidification process could be used. To meet this requirement, Diversified conducted a demonstration test in a 120 cubic foot liner of ion exchange resins. Polymer was introduced in accordance with normal solidification procedure until approximately 2/3rds of the top region of the waste bed will impregnated with binder, and then polymer transfer was secured, and the polymer was allowed to cure for two days. On the third day, Diversified changed its solidification equipment to the new configuration to apply the proprietary corrective action process. As can be seen in Fig. 1, the upset recovery was completely successful. There were no voids or unsolidified regions at the interface between the two polymer introductions campaigns and all resin in the lower region of bed, approximately 18"-24" above the bottom of the liner, were fully involved with binder. Though infrequent, eventually the loss of air, electrical power, emergency evacuation or accelerated gelation because of temperature or error in formula mixing, will result in a partially solidified liner. The solidification process supplier must be able to demonstrate, full scale, that they have a method of recovering from such upset conditions.



Fig. 1. Upset Recovery Test monolith after sectioning with a diamond wire saw.

3. Conclusions

Before other solidification and encapsulation technologies can be considered compliant with the requirements of a Stable waste form, the tests, calculations and reporting discussed above must be conducted for both the waste form and solidification process used to produce the waste form. Diversified's VERI™ and APS™ processes have gained acceptance in the UK. These processes have also been approved and gained acceptance in the U.S. because we have consistently overcome technical hurdles to produce a complaint product. Diversified Technologies' processes are protected intellectual property. In specific instances, we have patents pending on key parts of our process technology.

란단계 산화물의 세라믹 고화체 제조

안병길, 박환서, 김환영, 조용준, 김인태
한국원자력연구원, 대전시유성구덕진동 150번지
bgan@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 핵연료로부터 유용한 물질을 회수하여 고속로의 연료로 재활용하는 방법에 있어서 건식기술(Pyroprocessing technology)은 핵확산 저항성이 크며, 장치가 단순하고 폐기물 발생량이 적은 장점이 있다. 건식기술에 의한 처리과정 중 전해정련 및 전해제련 공정은 LiCl-KCl 용융염을 매질로 사용하여 전기화학적 방법으로 우라늄, TRU, minor actinide 등을 회수한다. 이들 공정에서 발생하는 LiCl-KCl 방사성 폐 용융염 내에 존재하는 란단계 원소를 제거한 후 재사용 가능한 용융염으로 재생하여 재순환 사용함으로써 폐기물 발생량을 크게 줄일 수 있다. 원자력연구원에서 개발된 폐 용융염 재생공정은 산소분산 방법에 의한 희토류 산화물을 침전 분리 및 잔류염 증류 공정으로 구성되어 있다. 재생공정에서 발생하는 방사성 란단계 산화물은 평균입경이 약 5 μm 인 미세 분말 상이므로 최종 처분에 적합하도록 monolithic한 고화체로 제조되어야 한다. 그러나 발생 폐기물이 방사성 희토류 산화물로만 구성된 고화체 제조에 관련 연구가 거의 전무한 상태이다. 유리 고화체 제조 방법의 적용성 연구로부터 희토류 산화물이 유리의 주요 구성물인 Si, Ca 등과 반응하여 결정질을 형성하여 유리 고화체를 구성하는 망목구조가 붕괴됨으로서 불안정한 고화체가 형성됨을 알 수 있었다.

본 연구에서는 상기와 같은 유리 매질의 문제점 해결을 위해서 zinc titanate를 주성분으로 하는 ZIT 고화 매질을 개발하여 단일 공정에 의해 1100 $^{\circ}\text{C}$ 저온 조건에서 안정한 세라믹 고화체를 제조하였다. 고화체 제조는 공정이 단순한 분말 소결에 의한 고화체 제조방법을 적용하였다. 이러한 세라믹 고화 매질을 이용하여 1100 $^{\circ}\text{C}$ 에서 6hr 동안 분말 소결하여 1kg 규모의 희토류 산화물 세라믹 고화체를 제조하였으며, 이에 대한 물리, 화학적 특성을 분석하였다. 또한 실험규모 고화체 제조에 대비하기 위해서 소결용기 및 소결 방법에 대해 고찰하였다.

2. 본론

2.1 실험 방법

monazite 계 세라믹 고화체 제조를 위해서 phosphate 화합물 원료는 CaHPO_4 를 합성하여 사용하였다. Binding matrix의 제조는 ZnO 와 TiO_2 를 기본물질로 하여 내구성이 우수한 zinc titanite 세라믹을 제조하였으며 XRD 분석으로 확인 하였다. 부가적 binding matrix로는 SiO_2 및 B_2O_3 를 사용하였다. 이러한 구성 물질들을 이용한 screen test로부터 ZIT 고화매질을 개발하였다. 재생공정에서 회수될 희토류 산화물의 모의 조성은 Origen code로부터 계산하였으며 조성은 Nd_2O_3 59 wt%, CeO_2 23 wt%, La_2O_3 12 wt% 및 Y_2O_3 6 wt%로 구성되어 있다. ZIT 고화체 제조에 있어서 소결용기, 소결 분위기 등에 대한 영향을 파악하기 위해서 20wt%의 희토류 산화물이 포함된 약 1.2 kg 규모의 고화체를 분말 소결공정에 의해 제작하였다. 소결용기는 Stainless steel (STS) 304 용기(내경 83 x 높이 150 x 두께 1mm)를 사용하였다. 고화체 소결공정은 N_2 및 Air 분위기에서 각각 수행하였으며, 승온속도를 10 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 로 하여 1100 $^{\circ}\text{C}$ 에서 6시간 동안 소결하여 고화체를 제조하였다.

2.2 실험 결과

제조된 ZIT 및 유리 고화체의 내침출성(PCT-A) 실험 결과를 그림 1에 나타내었다. 이 그림을 보면 희토류 원소의 경우 유리 매질로 구성된 고화체의 경우 약 $10^{-4} \text{ g}/\text{m}^2\text{-day}$ 의 침출속도를 나타내고 있는 반면, ZIT 세라믹 고화체는 분석 한계 값으로부터 $10^{-6} \text{ g}/\text{m}^2\text{-day}$ 이하의 값을 나타냄으로서 내침출 특성이 매우 우수함을 알 수 있다. 제조된 고화체에 대한 물리적 특성 분석 결과를 그림 2에 나타내었다. 유리 고화체의 밀도는 약 2.3 g/cm^3 이며, ZIT 세라믹 고화체는 4.6 g/cm^3 으로 약 2배의 큰 밀도를 나타내었다. 또한 열전도도는 유리 고화체의 경우 약 1.0, ZIT 세라믹

고화체는 $1.7 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 로서 우수한 열전도도 값을 나타내었다. 비열은 유리 고화체가 0.98, ZIT 세라믹 고화체는 $0.65 \text{ Jg}^{-1}\text{K}^{-1}$ 를 나타내었다. 이러한 결과들로부터 ZIT 세라믹 고화체는 우수한 특성을 나타내었으며, 특히 처분시 열전도도가 큼으로 고화체 내부 center line temperature를 저하시킬 수 있는 특성이 있으므로 발열성 핵종에 의한 열적 손상을 줄일 수 있다.

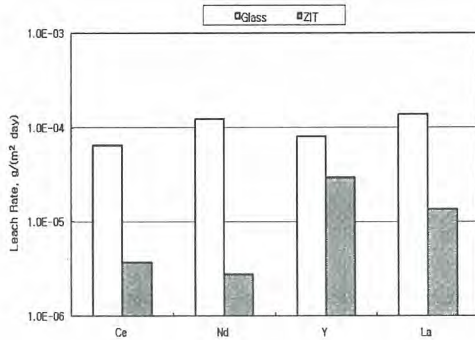


Fig. 1. Leach rate of rare-earth elements according to PCT-A leach test.

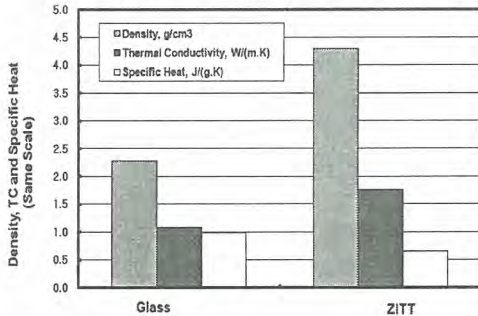


Fig. 2. Density, thermal conductivity and specific heat of wasteforms.

ZIT 고화 매질에 의한 고화체 제조에 있어서 재활용이 가능한 소결용기 도출에 대한 연구로서 희토류 산화물의 혼합 분말이 소결과정 중에 용기 하단부에서 소결체를 형성하고 소결용기 상단부에는 소결 물질이 존재하지 않음으로서 그림 3과 같이 상부가 재활용이 가능한 소결용기를 설계할 수 있으며, 하단부 고화체는 처분 용기에 적층 함으로써 폐기물 발생량을 줄일수 있는 방법을 도출하였다.

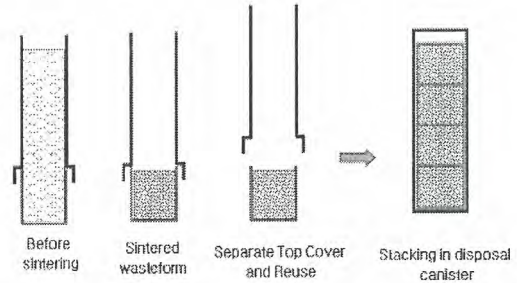


Fig. 3. Schematic drawing of re-usable crucible.

3. 결론

전해정련 공정에서 발생되는 폐 용융염의 재활용을 위해 분리 회수된 미 분말상의 방사성 희토류 산화물을 처분 환경에 적합한 고화체로 제조하기 위한 연구를 수행하였다. 그 결과 방사성 핵종의 휘발이 낮으며 공정을 단순화 할 수 있는 저온(1100°C) 조건에서 고상 반응에 의해 고화체를 제조할 수 있는 in-drum 분말 소결방법에 적합한 고화매질을 개발하였다. 유리 매질 자체의 문제점을 해결하기 위해서 zinc titanate를 주성분으로 하는 세라믹 고화 매질을 개발하여 단일 공정에 의해 1100°C 저온 조건에서 안정한 세라믹 고화체를 제조하였다. ZIT 세라믹 고화체의 희토류 원소의 침출 농도는 분석한계치(5ppb) 이하로 검출되지 않았으며 분석값에 의한 침출속도는 $10^{-6} \text{ g/m}^2\text{-day}$ 이하로서 매우 우수한 내 침출 특성을 나타내었다. 또한 고화체의 처분환경에서 중요한 물리적 인자인 열전도 값이 $1.7 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 로 큰 값을 나타내었다. 또한 실규모 고화체 제조에 대비한 상부 캡의 재 사용이 가능한 소결 용기를 도출할 수 있었다.

(Na₂CO₃-NaHCO₃)-H₂O₂ 혼합탄산염 용액에서 Cs 및 Tc의 침전 제거

이일희, 임재관, 이세윤, 최은경, 현준택, 정동용, 양한범, 김광욱

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

nehlee@kaeri.re.kr

1. 서론

본 연구는 (Na₂CO₃-NaHCO₃)의 혼합탄산염 용액에서 SF를 산화 용해할 시 U과 함께 공용해 되는 FP 중에서 각각 장수명 핵종으로 지하에서의 빠른 핵종 이동성과 고방열성 등으로 처분 환경을 저해하는 Tc 및 Cs를 선택적으로 침전하여 제거하는 것을 목적으로 수행하였다.

2. 침전 모의 FP 용액

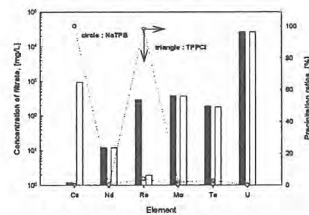
모의 FP 원소로는 (Na₂CO₃-NaHCO₃)-H₂O₂ 혼합탄산염 용액에서 용해되는 Cs, Re, Te, Mo, Nd 등이 함유된 5성분 계로 구성하였으며, Re은 Tc과 화학적 성질이 거의 유사하여 Tc의 대용물질로 이용하였다. 그리고 Cs은 산화물 형태의 시약을 구입할 수 없어 탄산염 화합물 형태의 시약을 사용하였다. 이는 Cs-탄산염 화합물이 Cs-산화물과 같이 탄산염 용액에서 높은 용해도를 가지고 있기 때문이며, 그밖에 나머지 Mo, Te, Nd 등은 모두 산화물 형태의 시약을 사용하였다.

3. 결과 및 토의

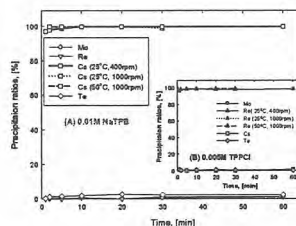
Fig. 1은 모의 FP 용액을 대상으로 각각 0.05 M의 NaTPB 및 TPPCI로 1시간 침전시킨 후 상등액 내 존재하고 있는 각 원소의 농도 및 침전율이다. 고농도 알칼리 용액에서 안정한 NaTPB의 경우 Cs은 침전 상등액 내 존재하지 않고 거의 100%가 침전되는 데 반하여 Re 등의 기타 원소는 3% 이하가 침전되어 Cs에 대한 선택성이 매우 우수함을 알 수 있다. 반면에 TPPCI은 상등액 내 Re의 농도가 약 2 mg/L 이하로 Re이 99%가 침전되고, Cs 등의 기타 원소는 약 4% 이하로 침전되어 Re에 대한 높은 선택성을 가짐을 알 수 있다. 한편 U은 NaTPB 및 TPPCI에 의한 침전 시 U이 거의 모두 상등액에 있어 침전이 일어나지 않고 있다. 이와 같이 NaTPB에 의한 Cs 침전과 TPPCI에 의한 Re 침전을 제외

하고 Nd, Mo, Te, U 등이 거의 침전되지 않은 것은 이들이 고 염기성 탄산염 용액에서 각각 Nd⁺³, TeO₂(OH)₄⁻², MoO₄⁻²로, U은 탄산염 용액에서 UO₂(CO₃)₃⁻⁴로, 탄산염-H₂O₂ 용액에서는 UO₂(O₂)_x(CO₃)_y^{2-2x-2y} 형태로 존재하여, 1가의 음이온과 양이온으로 각각 존재하는 NaTPB의 TPB⁻과 TPPCI의 TPP⁻와 반응이 일어나지 않아 이들의 침전이 발생하지 않은 것 같다. 이로부터 탄산염 용액에 의한 U의 산화용해 시 공용해 되는 Cs과 Tc은 선택적으로 U과 침전 분리할 수 있음을 알 수 있다.

Fig. 2A 및 2B는 각각 0.01 M NaTPB 및 0.005 M TPPCI에서 침전시간 변화에 따른 침전온도 및 교반속도가 미치는 Cs, Re, Te 및 Mo의 침전율이다. 이때 용액 내 pH는 각각 9.91±0.02로 거의 변화가 없었다. NaTPB-Cs 침전 및 TPPCI-Re 침전은 모두 5분 이내에 반응이 이루어지는 것 같으며 온도를 50℃까지, 교반속도를 최고 1,000 rpm까지 증가시켜도 침전속도 및 침전율에 거의 영향이 없었다.



(Fig.1)



(Fig. 2)

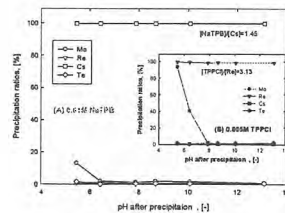
Fig. 3A 및 3B는 각각 침전 1시간, 0.01 M NaTPB 및 0.005 M TPPCI에 의한 침전 후 용액의 pH 변화에 따른 Cs, Re, Te 및 Mo의 침전율이다.

Cs 및 Re의 침전은 침전 용액의 pH 변화 (pH 5.6~13.2)에 무관하게 Cs는 NaTPB에 의해 99% 이상 이, Re는 TPPCI에 의해 98.5% 이상이 침전되었다. 반면에 Mo는 NaTPB 용액 내 pH 증가에 따라 침전율의 변화가 거의 없는데 반하여, TPPCI의 경우는 pH 증가에 따라 침전율이 급격히 감소하는 서로 상이한 거동을 보이고 있다. pH 5.6에서 Mo의 침전율은 NaTPB 침전 시 약 5% 이하가, TPPCI 침전 시 약 93%가 각각 Cs 및 Re와 공침되고 있으나, pH 8~9 이상에서는 NaTPB나 TPPCI 침전 모두 Mo가 전혀 침전되지 않았다. 한편 Te은 NaTPB 및 TPPCI에 의한 침전 모두 pH 변화에 무관하게 Cs이나 Re와 거의 공침되지 않았다. 이로부터 pH 9~10 정도에서 조업하면 NaTPB로는 Cs만을, TPPCI로는 Re만을 선택적으로 침전시켜 각각 제거할 수 있음을 알 수 있다.

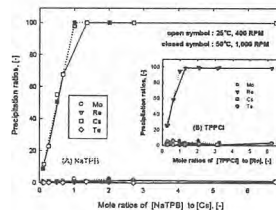
Fig. 4A 및 4B는 각각 침전 1시간에서 NaTPB 및 TPPCI의 농도를 0.005~0.05 M, Cs은 0.0025~0.05 M, Re은 0.0015~0.02 M로 변화시키면서, [NaTPB]/[Cs] 및 [TPPCI]/[Re]의 초기 물 농도 비에 따른 Cs, Re, Te 및 Mo의 침전율이다. 이때 용액 내 pH 변화는 9.88~9.94로 거의 변화가 없었으며, [NaTPB]/[Cs] 및 [TPPCI]/[Re]의 비가 1 이상에서 거의 100%의 Cs과 Re이 침전됨을 알 수 있었다. 한편 Te 및 Mo의 경우 NaTPB 및 TPPCI에 거의 침전이 일어나지 않고 있다. 이는 Te과 Mo가 탄산염 용액에서 MoO_4^{2-} , $\text{TeO}_2(\text{OH})_2^{2-}$ 의 2가 음이온으로 존재하여, TPB^- 나 TPP^+ 와는 침전 반응이 일어나지 않는데 기인한다. 그리고 50 °C, 1,000 rpm에서도 Cs 및 Re의 침전 거동이 거의 비슷하여 온도 및 교반속도에 대한 영향이 없음을 확인하였다.

Fig. 5A 및 5B에는 각각 침전 1시간에서 침전 모의 FP 용액 내 NaCl의 농도를 증가시키면서 0.01 M NaTPB 및 0.005 M TPPCI에 의해 침전되는 Cs과 Re의 침전율이 나타나 있다. NaTPB 침전의 경우 Na^+ 농도 증가에 따른 TPB^- 의 용해도 감소로, 1 M NaCl에서 99% 이상의 Cs이, 4 M NaCl에서는 약 95%의 Cs이 침전되어 다소 감소하였으나, 전반적으로 Cs의 침전에는 별 문제가 없는 것 같다. 그러나 2 M NaCl 이상에서부터 Re이 Cs과 공침되기 시작하여 4 M에서 약 17.8 %가 공침되어 NaTPB에 의한 Cs의 선택적 침전 시 적절한 Na^+ 이온 농도 조절이 요구된다. 한편 TPPCI의 경우 3 M NaCl에서 99% 이상의 Re이, 4 M NaCl에서는 다소 감소하지만 98.3%의 Re이 침전되어 Re의 침전에 별 영향

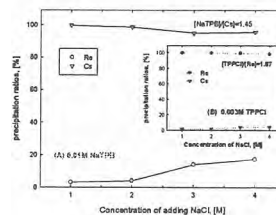
이 없는 것으로 나타났으며, Cs 또한 4 M NaCl에서 4% 이하가 침전되어 용액 내 Na^+ 나 Cl^- 이온이 과량 함유되어 있어도 TPPCI에 의한 Re의 선택적 제거에는 별 문제가 없을 것으로 판단된다.



(Fig. 3)



(Fig. 4)



(Fig. 5)

4. 결론

NaTPB에 의한 Cs 침전과 TPPCI에 의한 Re 침전은 각각 매우 빠르게 5분 이내에 이루어지고 있으며, 온도를 50°C, 교반속도를 1000 rpm 까지 증가시켜도 침전 속도에는 별 영향이 없었다. NaTPB 침전 및 TPPCI 침전에서 가장 큰 영향을 미치는 요인은 침전 용액의 pH이며, NaTPB 침전의 경우 Re이 Cs과 거의 공침되지 않아 Cs의 선택적 침전에 별 영향이 없으나, TPPCI 침전의 경우 상당량의 Mo가 Re과 공침되므로 이를 방지하면서 Re만을 선택적으로 침전하기 위해서는 pH 9 이상에서 수행하는 것이 효과적이며, [NaTPB]/[Cs] 및 [TPPCI]/[Re]의 물 농도 비 1 이상에서 Cs 및 Re을 각각 99% 이상 침전 제거할 수 있었다. 그리고 NaTPB에 의한 Cs의 선택적 침전 시 Na^+ 의 농도는 3 M 이하로 조정하는 것이 Re의 공침 없이 Cs만을 선택적으로 분리하는데 효율적이다.

탄산염계에서 금속산화물에 의한 과산화수소 분해

정동용, 최은경, 양한범, 이일희, 김광욱

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

ndvchung@kaeri.re.kr

1. 서론

본 연구실에서는 알카리 탄산염용액 계를 이용하여 사용후핵연료로부터 우라늄만을 선택적으로 회수할 수 있는 COL(Carbonate-based Oxidative Leaching) 공정을 개발하고 있다.[1] 이 공정은 고준위 폐기물 처분장 능력을 증대시킬 수 있고 핵확산저항성과 친환경성을 동시에 증진시킬 수 있는 공정이다. 사용후핵연료 중에 존재하는 우라늄은 U(IV)로 주로 존재하는데, 이는 탄산염 용액계에서 용해도도 크지 않고 용해속도가 매우 느려 사용후핵연료를 용해시키기가 매우 어렵다. 이런 경우 산화제를 사용하여 U(IV)를 U(VI)로 산화시킨다면 빠른 용해속도와 높은 용해도를 얻을 수 있다.[2] 여러 가지 산화제들 가운데 과산화수소를 사용하는 경우 uranyl peroxo-carbonato 착물이온 형태로 용해가 되며, 이 경우 매우 높은 용해도와 용해속도를 갖는다. 또한 폐기물을 추가적으로 발생시키지 않으므로 산화제로서 가장 효과적이라는 연구 결과를 얻은 바 있다.[3] 실제적으로 사용후핵연료 중에는 핵분열생성물로서 여러 가지의 금속들이 존재하고 있다. 이들은 일부 금속 형태로 존재하기도 하지만 대부분은 주로 산화물의 형태로 존재한다. 산화제로 사용되는 과산화수소는 탄산염 용액에서 금속산화물들에 의해 분해가 되기도 한다. 이는 용액 내에서 우라늄 용해에 영향을 미칠 수 있다. 본 연구에서는 탄산염 용액에서 11개 원소 (La, Nd, Ce, Pr, Gd, Sm, Zr, Mo, Sr, Pd, Ru)들의 금속산화물 존재에 따른 과산화수소의 분해 반응 특성을 실험을 통해 살펴보았다.

2. 본론

2.1 실험

실험을 위해 사용후핵연료 중에 존재하는 11개 원소들을 선정하였다. Table 1은 사용된 각 원소들의 산화물 형태와 부피평균입자크기를 나타낸

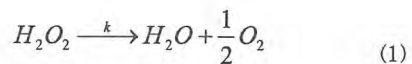
것이다. 실험은 비이커에 탄산염과 과산화수소 농도 각각 0.5 M과 1.0 M에서 각 금속산화물 0.05g을 투입하였다. 입자크기 분포는 Microtrac S3500 입도분석기를 사용하였고 과산화수소 농도는 Reflectoquant (Merck RQflex plus 10)를 사용하였다.

Table 1. Compound type and volume mean size of elements.

Elements	Compounds	volume mean size (μm)
Sm	Sm ₂ O ₃	3.16
La	La ₂ O ₃	3.05
Nd	Nd ₂ O ₃	3.11
Ce	CeO ₂	1.71
Pr	PrO ₂	12.38
Gd	Gd ₂ O ₃	5.29
Zr	ZrO ₂	2.16
Mo	MoO ₂	19.09
Sr	SrO ₂	-
Pd	PdO	1.95
Ru	RuO ₂	5.68

2.2 결과

일반적으로 용액에서 과산화수소는 아래의 반응식 (1)과 같이 물과 산소로 분해가 된다.



반응식 (1)에서 1차 반응인 경우 반응 속도상수 k는 아래와 같은 식에 의해 표현될 수 있다.

$$\ln \frac{[H_2O_2]}{[H_2O_2]_0} = -kt \quad (2)$$

따라서 시간에 따른 과산화수소 농도의 변화를 측정하면 속도상수 값 k를 구할 수 있을 것이다.

Fig. 1은 [Na₂CO₃]=0.5M, [H₂O₂]=1.0M일 때 용액 부피 100mL에 금속산화물들을 각각 0.05g 씩

넣은 후 시간에 따른 과산화수소 농도 값을 나타낸 것이다. 보는 바와 같이 Ru와 Pd의 경우는 과산화수소 분해에 매우 큰 영향을 보이는 것을 알 수 있다. 그러나 기타 원소들은 대체로 0.5M Na_2CO_3 용액에서 분해되는 것과 비교하여 큰 차이를 보이지 않고 있다. Table 2에는 각 원소들에 대해 얻어진 속도상수 값을 나타낸 것이다.

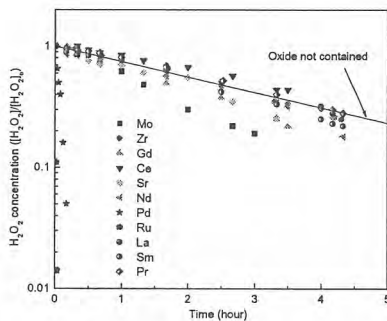


Fig. 1. First order plots for decomposition of hydrogen peroxide at initial pH=10.3, $[\text{Na}_2\text{CO}_3]=0.5\text{M}$, $[\text{H}_2\text{O}_2]=1.0\text{M}$ for addition of various metal oxides.

Table 2. Rate constants for the H_2O_2 decomposition.

Elements	Rate constant, $k \text{ (h}^{-1}\text{)}$
Sm	0.344
La	0.283
Nd	0.344
Ce	0.225
Pr	0.281
Gd	0.413
Zr	0.312
Mo	0.561
Sr	0.386
Pd	15.97
Ru	115.1

3. 결론

탄산염 용액에서 과산화수소는 여러 가지 금속 산화물들에 의해 분해된다. 금속산화물들 중 PdO, RuO_2 에 의해 가장 잘 분해가 일어남을 알 수 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 재원으로 시행하는

한국과학재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

5. 참고문헌

- [1] Kim, K. W., Chung, D. Y., Yang, H. B., Lim, J. K., Lee, E. H., Song, K. C. and Song, K. S.: *Nucl. Technol.* **166**, 170-179 (2009).
- [2] Peper, S.M. et al., *Ind. Eng. Chem. Res.*, **43**, 8188 (2004).
- [3] 정동용 등, 한국방사성폐기물학회, 2007년 춘계학술대회 논문요약집, 235, 2007.

제3분과

방사성폐기물 처분 및 부지특성 (Oral)

빈 면

단열 암반의 배경 단열을 고려한 지하수 유동 모의 및 평가

고낙열, 지성훈, 고용권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

nyko@kaeri.re.kr

1. 서론

단열 암반으로 이루어진 심부 지하 공간을 방사성 폐기물 등의 저장소로 이용하기 위해서는 여러 가지 사전 조사와 분석이 필요하며, 그 지역의 지하수 유동 양상도 매우 중요한 조사 항목이 된다. 지하수 유동 특성을 파악하기 위해 단열 암반에서 지하수의 주요 이동로가 되는 단열들이 조사되면, 해당 지역의 전체적인 지하수 유동계 분석을 위해 지하수 유동 모의가 이루어진다. 조사된 단열들의 정보를 이용해 수리전도도를 계산하여 입력하게 되는데, 비교적 대규모 단열의 정보만을 이용하게 될 경우, 전체적인 유동계는 현장과 유사하게 나타낼 수 있지만, 국지적인 지하수 유동을 표현하기에는 어려움이 있다.

이 연구에서는 비교적 작은 규모의 지하수계를 모의하는 경우에 대해서, 배경 단열의 영향을 고려한 단열 암반에서의 지하수 유동 모형을 작성하고 모의 결과를 분석하여 배경 단열을 통해 나타낼 수 있는 국지적인 지하수 흐름과 전체적인 지하수계 유동 모의에 영향을 주는 요소에 대한 분석을 시도하였다.

2. 배경 단열을 고려한 지하수 유동 모의 모형 구성

2.1 지하수 유동 모의 현장

지하수계 모의 영역은 핀란드의 Olkiluoto 섬 중앙부로, 지하저장소 건설예정지를 포함한 $500 \times 500 \times 500$ m 규모이다. Olkiluoto 섬은 순상지로 선캄브리아대의 암석이 기반암으로 존재하고, 운모질 편마암이 주로 나타난다. 남동 방향의 충상(thrust) 단층과 북동 방향의 주향이동(strike-slip) 단층이 주 단열대를 형성하고 있다(Vahtinen 등, 2003).

2.2 배경 단열의 영향을 고려한 수리전도도 분포 입력

관측정의 심도별 위치와 방향을 고려하여 모의

에 필요한 격자망(mesh)을 구성하고, 관측정의 공간 연결성을 구현하기 위해 DFE(discrete fracture element) 기법을 적용하였다(Derchowitz 등, 2000). 관측공 조사와 물리 탐사 등을 통해 조사된 단열대 자료를 바탕으로 불연속(discrete) 단열망을 구성하고, 구성된 단열망을 이용해 불균질, 이방성을 갖는 수리전도도 분포를 만들어 3차원의 연속체(continuum) 격자에 입력하는 혼합(hybrid) 모형을 적용하였다. 또한, 국지적 지하수 유동 특성 모의를 위해 배경 단열 자료를 분석하여 수리전도도 분포에 반영하였다. 배경 단열 자료의 특성으로 인해, 동일한 통계적 특성을 갖는 배경 단열을 다수 만들어 모의를 실행하고, 그 결과를 통계적으로 처리하여 분석하였다.

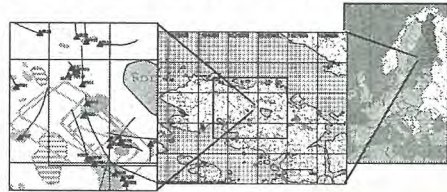


Fig. 1. Groundwater modeling site in Olkiluoto island

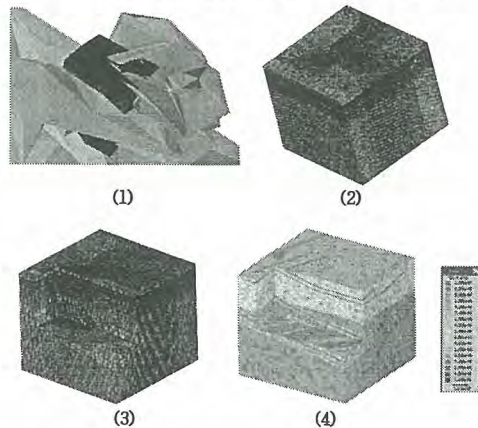


Fig. 2. (1) discrete fracture network, (2) 3-D continuum mesh, and hydraulic conductivity fields (3) without and (4) with background fracture

3. 지하수 유동 모의 결과

3.1 현장에서 측정된 지하수 수위, 수두와 모의 결과 비교

양수 시험 전, 후의 지하수 유동 모의를 수행하고 지하수위를 측정값과 비교하였다. 양수시험 전의 지하수위는 측정된 수위보다 대체적으로 큰 값을 보였으며, 양수시험시의 수위는 대체로 측정값과 유사하게 나타났다.

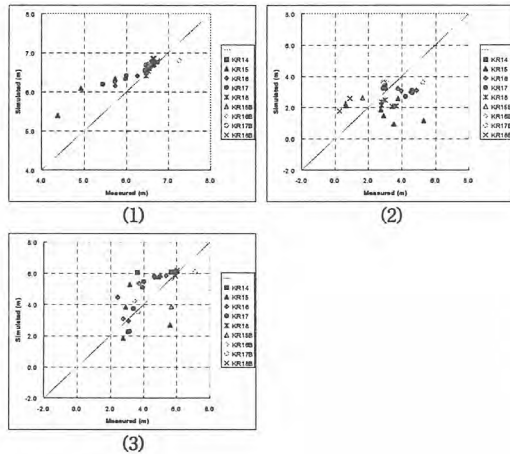


Fig. 3. Measurement vs. Simulation of hydraulic heads: (1) before pumping test, (2) after pumping at KR14, (3) after pumping at KR18

3.2 심부공 내에서 측정된 지하수 유출, 유입량의 비교

심부 관정으로의 지하수 유입, 유출량을 양수시험 전, 후로 나누어 비교하였다. 대체적으로 관측값과 비슷한 양상을 보이나, 지하수위의 경우보다는 모의값과의 차이가 크게 나타났다. 또한, 배경단열의 영향으로 국지적인 지하수 유동 흐름이 비교적 잘 나타났다. 이는 국지적 지하수 유동의 불확실성을 평가하는데 이용될 수 있을 것으로 보인다.

4. 결론

배경 단열 자료를 고려하여 국지적인 지하수 흐름을 고려해줄 수 있는 단열 암반에서의 지하수 유동 모형을 작성하고 모의 결과를 분석하였다. 대규모 단열만 고려할 때에 비해 국지적 흐름이 표현되었고, 실제 현장에서 측정되는 흐름을 보다

더 유사하게 나타낼 수 있는 것으로 나타났다. 지하 저장소의 안전성 평가를 위해서는 보다 작은 규모의 지질구조에 대한 고려가 필요할 것으로 생각한다.

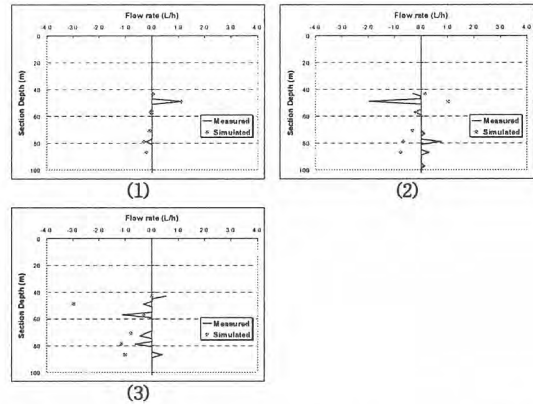


Fig. 4. Measurement vs. Simulation of flowrate in KR16: (1) before pumping test, (2) after pumping at KR14, (3) after pumping at KR18

5. 감사의 글

이 논문은 과학기술부 원자력연구개발 중장기계획사업과제의 지원을 받았음을 밝히며 이에 감사드립니다.

6. 참고문헌

- [1] W. Dershowitz, P. La Pointe, T. Eiben and L. Wei, "Integration of discrete feature network methods with conventional simulator approaches," SPE Reservoir Evaluation and Engineering, 3(2), pp. 405-408(2000)
- [2] T. Vaattinen, H. Ahokas, E. Heikkinen, P. Hellä, J. Nummela, P. Saksa, E. Tammisto, S. Paulamäki, K. Front and A. Kärki, Bedrock model of the Olkiluoto site (version 2003/1), Posiva Working report 2003-43(2003)

토륨의 용해에 미치는 탄산이온 농도의 영향

김승수, 민제호, 백민훈, 최종원

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

nsskim@kaeri.re.kr

1. 서론

토륨은 방사성폐기물 처분에서 주요 핵종으로 간주되진 않지만, 악티늄족 원소중 자연수에서 안정하게 4가로 존재하는 원소이다. 따라서 토륨은 고준위폐기물 처분에서 주요 관심 핵종인 우라늄, 넵투늄, 플루토늄에서 원자가 4가 상태의 성질을 연구하는데 많이 사용된다. 일반적으로 중성 혹은 알칼리성 용액에서 토륨의 용해도는 매우 매우 낮으나, 탄산이온이 존재할 경우 이들의 용해도가 증가할 수 있다고 한다. 그러나 탄산이온에 대한 토륨의 메카니즘 및 열역학 데이터 등 아직도 알려지지 않거나, 서로 크게 차이가 나는 경우가 많다. 예로서 $\text{Th}(\text{CO}_3)_5^{6-}$ 의 생성상수는 문헌에 따라 10^9 의 차이를 나타낸다. 최근에는 $\text{An}(\text{IV})\text{-OH-CO}_3$ 형태의 ternary 화합물이 자연수에 존재할 수 있는 주요 화학종으로 인식되고 있는데 수산이온과 탄산이온의 양에 따라 매우 복잡한 화학종을 형성한다.

본 연구는 토륨산화물을 서로 다른 농도의 탄산이온을 첨가한 용액들과 KURT 지하수에 용해하여 이들의 지화학 거동을 관찰하였으며, 측정된 농도에서 지화학코드를 이용하여 이들의 화학종을 계산하였다. 또한, 콘크리트 구조물이 지하 처분장에 존재할 경우 지하수의 pH 및 칼슘 이온이 증가할 것을 대비하여, 이들의 영향을 함께 실험하였다.

2. 실험 및 계산

표 1과 같이 탄산농도, 칼슘농도, pH에 따른 용액을 제조한 후, 약 0.1g의 ThO_2 를 각 용액에 첨가하였다. 15일과 45일간 상온에서 방치한 다음, 용액을 0.2 μm of poresize polyethersulfone (PES) micro-filter와 NMWL 10k ultrafiltration membrane로 연속해서 필터하였다. 또한, 필터에 의한 토륨의 흡착을 조사하기 위하여 여과 초기 5 mL은 따로 받아 동일필터로 나중에 여과한 용액과 비교하였다. 용액중 토륨의 농도는 ICP-MS로 분석하였다.

용액중 토륨 화학종의 조성과 용해도를 얻기 위

하여 국내의 열역학데이터, 용액조성, SLSP를 지화학코드 PHREEQC에 입력하여 계산하였다.

3. 결과 및 토의

3.1 콜로이드의 형성

15일과 45일 용해실험후 측정된 토륨 농도를 표 1에 나타내었다. 이 표에서 시료번호뒤 M, U글자는 micro-filter와 ultrafiltration을 나타내며, '-p'는 필터의 흡착여부를 알기 위해 초기여과한 5 mL의 시료를 나타낸다. 2M-p와 2M, 2U-p와 2U 등과 같이 초기여과 용액과 나중 여과한 용액중 토륨의 농도가 유사하므로 사용필터에 생성된 토륨화학종이 흡착되지 않음을 나타낸다. 그러나 지하수 (solution 10)중 토륨농도가 다른 용액과 달리 감소하였으므로 다른 화학종이 생성되었음을 간접적으로 증명되었다. 대부분의 용액에서 micro-filter로 여과한 용액을 ultra-filter하였을 경우 토륨농도가 크게 감소하였는데, 이는 콜로이드의 생성을 의미한다. 특히, 15일 실험결과 비교할 때, 45일 용해후 콜로이드의 농도는 증가한 반면, ultra-filter한 용액중 토륨의 농도는 감소하였다.

3.2 탄산이온, 칼슘, pH의 영향

표 1에서 보듯이 콜로이드를 제거한 토륨의 농도가 탄산농도가 증가함에 따라 증가하였는데, 총탄산농도(C_{total} , $C_{\text{total}} = [\text{HCO}_3^-] + [\text{CO}_3^{2-}]$)가 50 mM까지 증가하였을 경우 용해도가 약 100배 증가하였다. 그러나 용액의 이온강도에 따라서도 용해도가 증가할 수 있으므로, 이온강도를 일정하게 유지하기 위하여 용액매질을 0.2 M NaClO_4 에서 수행한 결과에서도 탄산이온영향이 나타났다. 따라서 이들 결과는 이온강도의 증가보다는 탄산이온의 영향에 의한 용해도 증가로 판명되었다.

처분장내 콘크리트 구조물에 의한 칼슘농도의 증가 및 pH의 증가를 예상할 수 있는데, 칼슘농도가 1.25 mM 증가하여도 용해도 차가 크게 나타나지 않은 반면, pH가 11.2로 증가한 경우 토륨 농도가 증류수에서 농도와 유사하게 감소하였다.

실제 지하수에서의 토륨의 농도는 증류수에 탄산이온을 첨가하여 유사한 탄산농도, 이온강도 및 pH 조건으로 조절한 용액에서보다 10배 이상 토륨의 농도가 증가하였는데, 이는 지하수에 존재하는 다른 이온들의 영향으로 수산화물과 탄산화물이 아닌 타 화학종이 존재함을 의미한다.

4. 결론

지하수중 토륨의 용해도에 미치는 탄산용도의 영향을 측정하기 위한 의한 실험에서 토륨의 용해도가 탄산이온 외에도 지하수에 존재하는 타 이온의 영향을 받아 용해도가 크게 증가함을 알 수 있었다.

Table 1. Solubility of ThO₂ in various carbonate, calcium concentrations and pH solutions

Solution name	Solution composition	pH	Sample name	Concentration (mol/L)	
				After 15 days	After 45 days
1	Distilled water	9.4	1M-p	3.9E-10	-
			1M	3.9E-10	3.6E-10
			1U-p	3.7E-10	-
			1U	3.0E-10	3.9E-11
			2M-p	1.5E-7	-
2	1 mM Na ₂ CO ₃	9.4	2M	2.2E-7	5.4E-8
			2U-p	1.0E-9	-
			2U	7.8E-10	1.0E-10
3	5 mM Na ₂ CO ₃	9.3	3M	3.4E-8	4.4E-8
			3U	2.2E-9	1.3E-10
4	10 mM Na ₂ CO ₃	9.4	4M	3.8E-8	9.2E-8
			4U	1.2E-9	3.2E-10
5	50 mM Na ₂ CO ₃	9.3	5M-p	1.6E-8	-
			5M	1.6E-8	4.0E-8
			5U	1.6E-8	4.1E-9
6	1 mM Na ₂ CO ₃ + 0.25 mM CaCl ₂	8.7	6M	2.6E-8	2.1E-8
			6P	2.2E-10	1.5E-10
7	1 mM Na ₂ CO ₃ + 1.25 mM CaCl ₂	8.7	7M-p	6.7E-9	-
			7M	5.7E-9	8.7E-9
			7U	1.7E-10	1.2E-10
8	1 mM Na ₂ CO ₃ + 0.25 mM CaCl ₂	11.2	8M	1.6E-8	1.2E-7
			8U	1.3E-10	3.9E-11
9	1 mM Na ₂ CO ₃	11.2	9M	3.4E-8	5.4E-7
			9U	1.7E-10	6.5E-11
10	KURT groundwater	8.6	10M-p	1.6E-7	3.6E-7
			10M	6.2E-7	5.9E-6
			10U-p	4.5E-9	4.3E-9
			10U	7.3E-9	5.3E-9
11	Distilled water + 0.2 M NaClO ₄	8.6	11M	<3E-10	
			11U	<3E-10	
12	10 mM Na ₂ CO ₃ + 0.2 M NaClO ₄	9.1	12M	6.8E-10	
			12U	5.0E-10	
13	50 mM Na ₂ CO ₃ + 0.2 M NaClO ₄	9.1	13M	1.6E-9	
			13U	1.5E-9	

지하처분연구시설의 광섬유센서 모니터링시스템 운영 결과 분석

배대석, 김경수, 고용권, 김중열*

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

*(주)소암건설터트, 대전시 유성구 관평동 760

ndsbae@kaeri.re.kr

1. 서론

모든 공학적 시설들은 자연환경 조건 하에서 다양한 외부의 자연 및 인위적 요인에 의한 변형·변질은 시설 성능의 저하 또는 상실에 이르게 한다. 이러한 극단적인 파국은 급속적 외력에 의한 파괴를 제외하고, 초기에는 조그마한 변형·변질로부터 출발하는 것이 일반적이다. 따라서 성능 상실이나 파괴될 경우 큰 피해가 예상되는 특정 시설이나 구조물에는 2차원, 3차원적 변형특성을 계측, 평가하기 위해 특정지점에 적절한 센서를 설치해서 운영하고 있다. 저준위방사성폐기물 지하처분 공동의 경우 매 50m 간격으로, 그리고 지반이 취약한 구역에는 보다 조밀한 간격으로 지반변위 감시관리를 시행하도록 SRP (Standard Review Plan)에 규정하고 있다. 하지만 여러 개소의 측정지점에서 동시측정의 필요성, 센서가 설치된 매 지점을 직접 확인하고 수치를 기록해야 하는 불편함, 개별 센서 사이 구간에 대한 변화특성 감시 불가능, 원격제어시스템으로 전환할 경우 개별 센서의 수에 해당하는 개수의 전원공급 및 측정자료 송수신용 연결선 등의 필요와 이에 따른 효율성 저하, 개별 센서의 수가 증가할 경우 유지관리의 비효율성 등 많은 문제점을 가지고 있다. 이러한 문제점을 해결하기 위해 본 연구에서는 통신용으로 사용하는 광섬유케이블 자체를 센서로 활용하여(optical fiber sensor cable: 광섬유센서케이블) 감시관리 대상 구조물전 구간을 감시할 수 있는 기술을 확보하였고 2년 간의 감시관리 결과를 통해 유용성을 확인하였다.

대상시설은 한국원자력연구원 내에 위치하는 방사성폐기물 지하처분연구시설 (KAERI Underground Research Tunnel: KURT)로서 시설의 안정적 운영을 위해 실시간 감시관리 가능한 시스템 구축하였다(2008년 1월). 이 시스템은 광섬유센서케이블을 KURT 터널 단면의 상부 좌우측 모서리 부분을 중심으로 입구에서 좌측으로부터 벽면을 따라서 터널 입구 우측벽면 지점까지 한 개의 광섬

유센서케이블로 연장 포설한 형태이다 [1]. 최초 설치 시점인 2008년 1월부터 2009년 11월까지 측정된 자료를 토대로 온도 및 변형률에 대한 감시관리 결과를 정리 및 분석하였다.

2. 본론

2.1 광섬유센서 계측 근본원리

광섬유센서케이블을 통하여 폭이 좁은 레이저파 신호(pulsed laser)를 보내면 케이블 내에 산란(scattering) 현상이 발생하며 광섬유케이블의 주변환경인 온도, 변형, 압력 등에 변화가 생기면 세가지 종류의 산란현상(Rayleigh scattering, Raman scattering, Brillouin scattering)이 나타난다[2] [3].

Rayleigh 산란은 큰 진폭을 갖고 케이블 주위 밀도변화와 연관되며 파장변화는 없으며 주로 통신용으로 활용되어 진다. Raman 산란은 레이저파의 진행 방향의 전·후방에서 케이블 주변의 온도 변화에 영향을 받으며 나타나며 후방산란(stokes) 범위에 후방-Raman 산란은 온도변화에 무관하지만 전방산란(anti-stokes) 범위의 전방-Raman 산란은 온도변화에 따라 진폭이 틀리게 나타나서 후방산란과 전방산란의 산란조도(intensities)를 분석함으로써 알 수 있다.

분포개념 온도 및 변형을 측정기법인 DTSS (Distributed Temperature and Strain Sensing) 시스템의 핵심이 되는 Brillouin 산란은 후방산란과 전방산란 범위의 파장으로 분리되기 때문에 이들은 각각 원래 광케이블을 통해 보낸 빛의 색과 다른 색을 띄고 온도, 변형률 및 압력과 같은 외부 영향에 따라 민감하게 반응하며, 케이블 주변의 온도가 변하면 후방산란과 전방산란 신호의 진폭이 변하고 변형률이 변하면 주파수 특성이 변하게 된다.

분석측면에서 이러한 현상은 새로운 분석기법 개발을 촉구하게 되었고 그 결과 Brillouin 산란 신호로부터 별도로 온도측정이 가능하게 되었다.

비록 그 분해능(약 0.5°C)이 Raman의 것(약 0.01°C)에 비해서 낮으나 온도변화에 따라 유동적인 변형률 값의 교정을 위해서는 유용한 자료가 되었다. 또 Brillouin 산란 신호 전체에 대한 주파수 분석을 통하여 변형률 분해능을 $10\mu\epsilon$ 까지 높일 수 있게 되었다.

이러한 독보적인 측정기법은 무엇보다 순간적으로 변화하는 구조물의 동적변형률 측정을 가능하게 하였다[3].

2.2 계측 결과

터널 내에서 온도 변화 특성은 대체로 투수성단열대 혹은 지하수누출 지점 부근에서 온도이상대가 확인된다. 터널입구 영역은 $13\sim 20^{\circ}\text{C}$ 범위를 보이며 터널 내측에서는 $15\sim 18^{\circ}\text{C}$ 의 변화를 나타낸다. 좌우대칭 특성을 나타내는 진입터널 구역은 전반적으로 진입방향 우측 압반이 상대적으로 $2\sim 3^{\circ}\text{C}$ 높은 경향을 나타낸다. 이는 지하수위가 터널 진행방향의 좌측이 우측보다 약간 높게 형성되어 나타나는 결과로 판단된다. 특히 진입터널 우측 지반이 포화 상태가 아니기 때문에 터널 벽면의 증발현상으로 좌측 벽면이 상대적으로 낮게 나타나는 것으로 판단된다. 온도 변화 특성을 크게 우기-하절기(5월~9월) 및 건기-동절기(10월~4월)로 구분하여 볼 때, 하절기는 $15\sim 20^{\circ}\text{C}$ 까지 범위를 보이나 높은 온도는 외부 영향을 받은 것으로 판단된다. 동절기는 $13\sim 17^{\circ}\text{C}$ 의 범위를 나타낸다.

2년여 동안 감시 관리한 결과 터널 벽면의 쇼크리트의 균열 등 벽면 변위와 관련 한 뚜렷한 징후는 발견되지 않았다. 다만, 시간이 경과함에 따라 터널 내에서는 지하수의 누출 지점을 중심으로 벽면에서 누출 변형의 크기가 완만하게 증대되어가는 경향을 보이나 그 크기는 미약하다.

3. 토의 및 결론

광섬유센서케이블의 센서 기능을 활용하는 분포개념의 온도 및 변형률 측정기법(DTSS)은 기존의 특정지점 계측방법(Point Sensor)과는 확연하게 차별된다. 광섬유센서케이블을 이용한 분포개념의 측정 및 분석기술은 구조물의 특성에 따라 선택적·탄력적 적용이 가능하며 변형률의 계측 범위는 $20\mu\epsilon(0.02\text{mm/m})\sim 28,000\mu\epsilon(28\text{mm/m})$ 크기까지 변위 계측이 가능하다. 또한, 변위 발생 위치뿐만 아니라

변위가 진행되는 방향까지 계측 가능하며, 최소 매 1m 간격으로 총연장 30km까지 하나의 운영체제로 감시 관리할 수 있는 기능을 가지고 있다. 온도는 0.01°C 해상도로, 계측 가능한 온도의 범위는 케이블 종류의 선택에 따라 $-160\sim 600^{\circ}\text{C}$ 범위까지 가능하다. 온도 계측 간격은 매 0.5m 간격으로 30km까지 하나의 운영체제로 감시 관리할 수 있다. 이러한 기능을 이용하여, 한국원자력연구원에 위치하는 KURT의 안정적인 운영을 위하여 터널 내 벽면과 주변 사면의 지반변위 및 온도변화를 실시간 감시관리시스템을 구축하였다. 2년여 동안 모니터링한 결과 터널 벽면의 쇼크리트 구간은 시간이 경과함에 따라 터널 내 지하수의 누출 지점을 중심으로 벽면에서 변형의 크기가 완만하게 증대되는 경향을 보이나 그 크기는 미약하다. 하지만 지속적인 지하수에 의한 포화-습윤-건조 등의 순환현상이 반복되는 구간이나 포화상태에 있는 구간은 점진적으로 영향이 커질 것으로 예상된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구기반확충사업-연구시설/장비구축운영분야 지원으로 수행되었으며, 원자력연구개발 중장기계획사업과제인 KURT 시설지원을 받았음을 밝히며 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

- [1] 한필수, 지하처분연구시설 확보 및 활용계획, 한국원자력연구원, KAERI/TR-2969, 2005
- [2] Paker, T.R., Farhadiroushan, M., Handrek, V.A. and Rogers, A.J., "A Fully Distributed Simultaneous Strain and temperature Sensor using Spontaneous Brillouin Backscatter", IEEE Photonics Technology Letters, Vol. 9, No. 7, pp979~981, (1997).
- [3] 김중열, 분포개념의 변형률 성분측정기법 개발을 통한 토목 구조물의 안전진단 연구, (주)소암컨설팅트, 중소기업청(2007).

장심도 정밀수리시험용 Straddle packer system 구축

김경수, 박경우, 지성훈, 고용권, 최종원
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
kskim@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물 처분부지의 수리지질학적 투수성은 처분시스템의 설계와 안전성 평가에 중요한 인자이기 때문에 신뢰성 있는 방법으로 평가하는 것이 무엇보다 중요하다. 현재 국내의 지반조사 현장에서 이루어지는 암반의 투수성 시험방법은 나공 상태에서의 간이 수리시험이나 양수시험, 또는 이중패커를 이용한 주입시험 등이 적용되고 있다. 현행의 이러한 시험법들은 시험조건 상의 문제점도 있지만 시험이론을 만족시키는 적절한 장비가 갖추어지지 않은 상태로 시행되고 있기 때문에 투수성 자료의 신뢰성은 그리 높다고 볼 수 없다.

고도의 정밀성을 요구하는 고준위폐기물의 처분기술개발을 위해서는 선진국 수준의 정밀한 장비가 마련되어야 한다는 필요성이 제기되었으며, 한국원자력연구원에서는 원자력연구기관확충사업을 통하여 장심도(1,000 m) 수리시험장비를 구축하였다.

2. 현행 수리시험장비의 문제점

현재 국내에서 일반적으로 적용되고 있는 수리시험장비의 문제점은 첫째, 지하의 패커 격리구간 내의 자연상태의 지하수압력 및 주입압력을 지표에서 계측한다는 것이다. 즉, 시험구간의 압력을 계측하기 위하여 시추공 내 시험구간에서부터 지표까지 연결된 호스 말단부에 shut-in 밸브를 설치하여 밸브를 폐쇄 상태에서는 시험구간의 압력을 얻고, 개방상태에서는 호스에 부하되는 압력을 계측하고 있다. 이러한 국내 시험장비가 갖는 지표 shut-in 밸브 시스템 하에서는 시험 구간의 저류효과 영향을 제거할 수 없다.

두 번째 문제점은 시험구간의 압력은 원위치 격리구간의 압력을 실시간으로 계측 가능하여야함에도 지표에서 계측하고 있다는 것이다. 세 번째 문제점은 상하부 패커와 암반에서 일어 날 수 있는 누수현상을 감시하기 위해 하부 패커 아래, 상부

패커 위 구간에 대한 압력도 동시에 계측되어야 한다는 것인데 현행의 장비로는 상기의 문제점을 해결할 수 없다. 문제 해결에 어려움을 주는 요인은 직경 3~4 인치 공경 내에 투입되어야 하는 장비에 압력센서와 신호를 전달하는 트랜스미터 등을 적절하게 장치하기가 쉽지 않기 때문이다.

3. 장비의 성능 및 적용성

본 연구를 통해서 현행 기술적인 문제점을 해결하기 위하여 Inflatable Packers International Co.와 계약 하에 다음과 같은 핵심 설계요건을 설정하였다.

- 최소 시험공 내경 및 최대 시험심도: 3~4 인치 / 1,000 m
- 이중패커시스템 및 3개 구간 (P1, P2, P3) 원위치 압력센서 설치, 실시간 자료 취득
- Downhole shut-in valve
- 원위치 지하수시료 채취 및 slug 시험을 위한 submersible pump
- 실시간 자료기록장치, 패커 inflator, 압력펌프, 연결호스 및 패커튜브, 압력게이지
- 적용 가능 수리시험: pulse test, slug test, 계측기 추가하는 경우 정압주입시험/수위강하시험

상기의 설계요건에 맞추어 제작된 수리시험 장비의 전체 어셈블리는 Fig. 1과 같다. 장비의 본체외에 1,000 m 물량의 2 인치 로드, 스테인레스 패커 압력튜브 및 shut-in valve 튜브, 데이터 케이블, 그리고 패커 팽창장치, 데이터 로거 등이 부대부품으로 구성되어 있다.

본 장비를 이용하여 수행할 수 있는 시험은 다음과 같다.



Fig. 1. Straddle packer system assembly

- 시험구간의 자연상태 지하수압 계측
- 불교란 상태의 지하수시료 채취
- 정압 및 정률 수리시험
- 순간충격시험 및 펄스시험
- 양수시험

시험자료는 실시간으로 현장에서 확인 가능하여 정상류 상태의 자료 취득에 필요한 시험 시간을 결정할 수 있다. 전체적인 시스템의 기능 점검과 현장 적용시험(Fig. 2)을 통하여 우리나라의 장심도 시추공에서 양질의 투수성 자료를 취득할 수 있는 발판을 구축하게 되었다.



Fig. 2. Field demonstration of straddle packer system

4. 결론

본 연구의 결과로 구축된 심부 시추공에서의 정밀수리시험 장비는 국내 현장조사 기술력의 획기적인 향상을 선도할 것이며, KURT에서 이루어지는 수리시험 및 방사성폐기물 처분부지 특성평가에 직접 적용될 것이다. 부분적으로 미흡한 기능, 즉, 정률계측장치, 정압주입장치, DAS 박스 등은 추후의 연구와 설계를 통하여 그 기능을 확장할 계획이다.

5. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구기반 확충사업-연구시설/장비구축운영분야(과제번호: 2009-0083259)으로 수행되었다.

방사성폐기물 처분장 운영 중 안전성 평가 체계 구축

정종태, 황미정, 최희주

한국원자력연구원, 대전시 유성구 덕진동 150번지

itieong@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물 관리를 위한 방사성폐기물 처분장의 건설 및 운영에 있어서 고려해야할 기본 철학으로는 환경건전성, 안전성, 국민 수용성이 있다. 이 중에서 최우선적으로 고려해야할 사항은 안전성이다. 처분장의 안전성 평가는 처분장의 폐쇄 이전과 이후 단계로 구분하여 각각 운영중과 폐쇄 후 안전성평가로 구분한다. 운영중 안전성평가는 시설의 건설이나 운영중 발생 가능한 어떤 위험요소에 대하여 그 위험요소의 존재 여부를 규명하고 위험요인을 제거하거나 그로부터 인체나 환경을 보호하기 위한 조치사항을 결정하는 특징을 가지고 있다.

본 연구에서는 운영중 안전성 평가를 위해 확률론적 안전성 평가(PSA; Probabilistic Safety Assessment) 방법론을 선정하였다[1]. 처분장의 안전성평가를 위한 방법론은 초기사건 선정, 사건수목 분석, 고장수목 분석, 결말분석이다. 이들 방법론에 대한 분석절차를 확립하고 필요한 도구를 선정하여 처분장의 운영중 안전성평가 체계를 구축하고 예제 평가를 통해 적용성을 확인하였다.

2. 본론

2.1 운영 안전성 평가체계 구축

안전성평가가 필요한 초기사건 선정을 위해 정성적 안전성 평가 방법인 위험도 및 운전성 분석(HAZOP; Hazard and Operability) 방법을 선정하였다. 선정된 초기사건에 대하여 정량적 안전성평가 방법을 적용하여 확인된 위험요소를 확률적으로 분석 평가하여 사고 시나리오를 구성하였다. 사고 시나리오에 대한 정량적 안전성평가 방법론으로는 고장수목 분석, 사건수목 분석 방법론을 채택하였다. 사고 시나리오중 외부로 방사성물질이 유출되는 사고에 대하여 피폭선량 방법론을 적용하여 피폭선량을 평가한다.

운영 안전성평가 체계 구축을 위해 현재 원전

의 확률론적 안전성평가를 위해 개발되어 활용되고 있는 AIMS PSA Manager[2] 내의 고장수목 및 사건수목 분석 도구와 피폭선량 평가를 위해서는 RSAC 코드[3]를 선정하였다. 각각의 메인 화면은 그림 1에 도시된 바와 같다.

사건수목 분석 도구로는 AIMS PSA Manager 내의 CONPAS ET Editor(ConEdit)를 선정하였다. 고장수목 분석 도구로는 AIMS PSA Manager 내의 KwTree를 선정하였다. 이들은 모두 Windows 환경하에서 작동되는 도구로 Windows의 장점인 다중창, 마우스를 이용한 선택, 메뉴를 이용한 명령수행 기능 등을 기본적으로 가지고 있다.

피폭선량 평가 코드로 선정한 RSAC-5는 방사성핵종의 대기 방출 결과를 계산하여 핵연료생성물의 선원향, 시설로부터 환경으로 이동하는 경로 중의 방사 붕괴 및 바람방향으로 확산시의 방사능량 그리고 피폭선량을 각각 계산하여 내부피폭과 외부피폭을 계산한다.

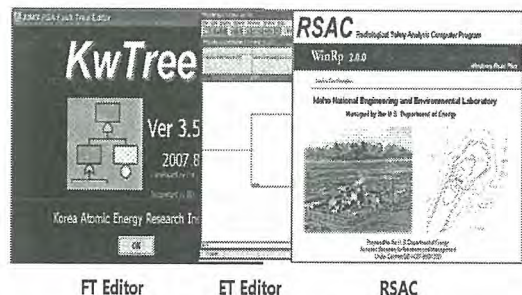


Fig. 1. Computational framework for the operational safety assessment

2.2 사용후핵연료 낙하사고에 대한 예제 평가

예제 평가를 위해 낙하가 발생한 이후에 핵연료 다발이 손상을 입어 방사성물질이 방출되고 사고영향의 완화를 위한 HVAC 계통과 HEPA 필터의 작동여부에 따른 사고경위를 개발하였으며 이는 그림 2에 도시된 바와 같다.

사고경위 1은 핵연료 다발이 손상을 입지 않아

서 사고 결과가 OK이다. 사고경위 2는 핵연료 다발의 손상이 발생하고 HVAC 시스템의 작동이 성공한 후 HEPA 필터가 성공하지만 희유기체가 방출되는 사고이다. 사고경위 3은 핵연료 다발의 손상이 발생하고 HVAC 시스템이 작동성공 후 HEPA 필터가 실패하여 일반 대중과 외부 작업자에게 희유기체와 입자상 방사성물질이 방출되는 사고이다. 사고경위 4는 핵연료 다발의 손상이 발생하고 HVAC 시스템이 작동 실패하여 시설 내부 작업자에게 희유기체와 입자상 방사성물질이 방출되는 사고이다.

낙하 사고시 완화를 위한 시스템인 HVAC 계통과 HEPA 필터의 고장확률은 고장수목 분석을 통하여 구하였다. 고장수목 분석 결과 고장 확률은 HVAC 시스템 고장 확률은 8.1×10^{-5} , HEPA 필터 고장 확률은 1.2×10^{-5} 로 평가되었다.

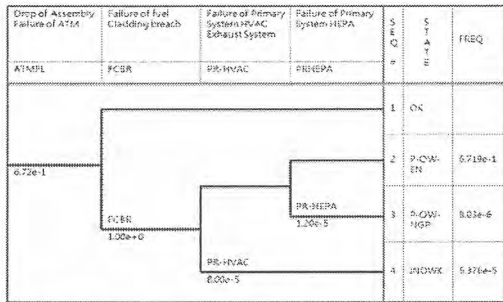


Fig. 2. Accident scenarios for drop accident

피폭선량 평가를 위해서 가압경수로형(PWR) 발전소의 기준 사용후핵연료에 대한 노심재고량을 이용하였다. 피폭선량 평가를 위해 처분장 부지는 월성으로 가정하였다. 평균 풍속은 월성 부지의 일 년간 기상자료를 토대로 평가된 값으로 2.87 m/sec이며 보수적인 결과를 얻기 위해 방출은 지상 1m에서 방출된다고 가정하였다. 강수에 의한 침적은 고려하지 않았다. 또한, 대기안정도는 중립으로 가정하였으며 플룸 상승은 고려하지 않았다.

지표면 침적에 의한 피폭선량 평가를 위한 침적 속도는 할로겐 원소의 경우에는 0.01 m/sec, 나머지 원소들은 0.001 m/sec로 가정하였으며 희유가스는 침적이 발생하지 않는다고 가정하였다. 호흡에 의한 내부피폭선량 평가를 위한 호흡률은 $3.34 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{sec}$ 로 가정하였으며 선량인자 (Dose Coefficient)는 RSAC-5에서 기본값으로 이용하고 있는 선량인자 값을 이용하였다.

사고경위 3인 핵연료 다발의 손상이 발생하고

HVAC 시스템이 작동성공 후 HEPA 필터가 실패하여 일반 대중과 외부 작업자에게 희유기체와 입자상 방사성물질이 방출되는 사고 시나리오에 대한 피폭선량 평가 결과는 표 1에 요약된 바와 같다.

Table 1. Exposure dose as a function of distance

피폭선량 거리 (m)	내부피폭 (Sv)	외부피폭 (Sv)	합 (Sv)
200	1.04E-03	5.40E-07	1.04E-03
300	5.09E-04	2.64E-07	5.09E-04
500	2.09E-04	1.08E-07	2.09E-04
700	1.16E-04	6.04E-08	1.17E-04
1,000	6.29E-05	3.27E-08	6.29E-05
2,000	1.99E-05	1.04E-08	1.99E-05

3. 결론

처분시설의 운영중 안전성을 평가하기 위한 방법론을 정립하고 평가체계를 구축하였다. 운영중 안전성평가 체계의 적용성을 확인하기 위하여 크레인 고장으로 인한 사용후핵연료 낙하 사고에 대하여 사고 시나리오를 구성하고 분석을 수행하였다. 이를 통하여 처분장의 운영중 안전성 평가 체계의 적용성을 확인하였으며 이는 처분장의 안전성 평가뿐만 아니라 설계 개선사항 도출을 위한 유용한 방법으로 활용될 수 있을 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부가 주관하는 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] PRA Procedure Guide, NUREG/CR-2300, ANS and IEEE, 1982
- [2] 한상훈, 김승환, 하재주, 양준언, "PSA 통합 분석 소프트웨어 AIMS," AIMS-EzASQ 1.0, 등록번호: 2005-01-129-2504, 2005
- [3] D. R. Wenzel, "The Radiological Safety Analysis Computer Program (RSAC-5) User's Manual", 1994

공학적 방벽에서의 구리의 장기부식연구

이민수, 최희주, 최종원, 이지현
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
minm@kaeri.re.kr

1. 서론

고준위 방사성 폐기물의 영구처분을 위한 Canister 재료로서 구리가 유망하다[1,2]. 구리 용기는 큰 크기로 제작이 힘들다는 단점이 있기 때문에, 직접 내부 용기 표면에 구리를 두껍게 코팅하고자 하는 연구가 원자력연구원과 RIST가 공동으로 진행하고 있다[3]. 코팅동이 일반동과 마찬가지로 우수한 내부식성을 가진다면 처분용기 재료로서 적용이 가능하리라 본다. 초기분석으로서 코팅동은 일반 동에 비해서 단단하고 연성이 없었다. 이러한 물리적 특성의 차이로 말미암아 코팅동이 다른 압출동 및 단조동과 부식거동에서 어떻게 다른지 직접적인 환경 부식시험으로 비교 분석할 필요성이 있다. 이에 본 연구에서는 코팅 조건을 달리한 세가지 코팅동과 함께 압출동, 단조동에 대해 실제 처분환경을 모방하여 장기부식 시험을 계획하였다.

2. 본론

2.1 장기부식 시스템

통상적인 사용후핵연료의 지하처분 방식은 지하 암반에 Borehole을 뚫고, 압축벤토나이트로 주위를 둘러싼 형태로 구리 처분용기를 밀봉하게 된다. 처분후에는 지하수가 암반으로부터 스며 나와 압축벤토나이트를 팽윤시키고, 구리처분용기에 도달하여 구리의 부식을 활성화 시킨다. 따라서 부식시험에서는 지하암반은 내부식성의 티타늄 용기로 하고, 그 내부에 압축벤토나이트로 둘러싸인 구리시편을 넣어 줌으로서 지하처분환경을 모사하였다(Fig. 1). 실험용액으로는 KURT 지하 borehole에서 채취한 것으로 사용하였다. 지하수에 의해 팽윤된 벤토나이트 입자들이 빠져나오지 못하도록 티타늄 필터를 금속용기 내부에 장착하였다.

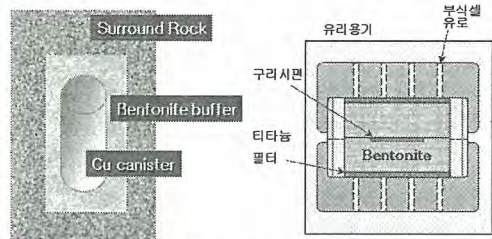


Fig. 1. Structure of a corrosion vessel modeling after an engineered barrier system

2.2 시편

시험에 사용된 구리시편을 Table 1에 수록하였다. 시험에 사용된 시편은 직경 15mm, 두께 1.0mm 크기의 동전형으로서, 무게는 14.1~14.2g 정도로서 표면적은 약 400 mm²인 것을 사용하였다. 각각의 시편은 Sandpaper #2,000으로 표면을 1차로 연마하고, 0.3 μm 알루미나 슬러리 입자로 최종 연마하였다. 연마된 시편은 에탄올로 세척하여 표면상의 이물질을 제거한 후 사용하였다.

Table 1. Copper specimen list

장기부식 시험용 시편의 종류	
#2	SUS에 고순도 Tafa구리 입자를 코팅
#3	주철 표면에 창성구리 입자를 코팅
#4	압출동,
#5	단조동
#6	6:4황동(Naval brass)
#7	Al 청동(Al bronze)

2.3 시험

시험에 사용된 용액은 직접 KURT(KAERI 연구용 처분 터널) 200 m 처분공에서 뽑아낸 용액을 채취하여 사용하였다. 지하수 용액은 Eh가 -384 mV로서 -100mV 부근에서 측정된 구리의 산화환원전위보다 낮았다. 부식시험 직전 측정된 pH가 7.7~8.1의 약 알칼리 상태를 확인하고, 시험에 사용하였다. 시험에 사용된 밀폐 유리병은 상

업적으로 판매하는 것으로서 실리콘 고무로 밀폐되는 500mL 용기였다. KURT 용액 약 350 mL를 부어넣어 부식용기가 충분히 잠길 정도로 하였으며, 밀폐전에 30분간 고순도 N_2 gas를 purging하여 작업 중, 산소의 침입을 최소화 하였다. 조립이 완료된 유리병은 70 °C로 조절된 항온챔버에서 장기간 보관하였다 (Fig. 2).



Fig. 2. Corrosion modules in a environmental chamber

시험이 끝난 부식용기를 밀봉용 유리병에서 집어낸 후, 1일 정도 110°C에 건조오븐에서 말린 후, 해체하였다. 압축벤토나이트 내부에서 제거된 구리시편은 먼저 에탄올 용액에 두고 1분간 초음파 세척기로 세척하여 표면의 점토 입자와 불순물을 제거하고, 표면의 부식상태를 광학현미경으로 관찰한 후, 2.5% HCl 용액에서 10~20초간 초음파 처리하여 산화막을 제거하고 10^{-4} g 수준으로 무게를 측정하였다.

측정된 감손량을 이용하여 아래 식과 같이 부식두께를 계산하였다. 여기서, W_{loss} 는 감손량, A_s 는 시편의 표면적, δ_d 는 시편의 밀도 및 D_c 는 부식 두께이다.

$$\frac{W_{loss}(g)}{A_s(mm^2) \times \delta_d(g/cm^3)} \times 1,000 = D_c(mm) \quad (1)$$

3. 결론

초기 2개월에서 12개월 사이의 구리 시편들의 부식두께는 0.1 ~ 0.3 μm 부근으로 더 이상 증가하지 않고 아주 낮은 일정한 값을 나타내었다. 이 동안 부식시편은 표면만 변색되었을 뿐, 초기 연마된 표면의 광택을 그대로 유지하였다. 이후 실

험실 화재로 인해 용기의 보관상태가 불량해지면서 이후 측정된 몇몇 시편들은 부식율이 갑자기 증가하는 패턴을 보였다. 하지만 2년간의 시험에도 부식 두께는 최대 1 μm 수준을 유지하고 있었다. 이는 1,000년의 기간으로 환산하면 1mm의 부식두께에 해당하는 것으로서 우리가 원하는 장기 부식 안전성을 확인할 수 있었다. 실험에 사용된 구리시편은 약간의 차이는 있었지만, 초기 부식 이후, 부식피막이 일단 형성되면 부식이 잘 진행되지 않았다. 하지만 산소가 유입되면 부식율이 높아진다는 평범한 사실을 재확인할 수 있다..

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 원자력연구개발사업 과제로 수행된 것으로서, 본 연구의 재정지원에 감사드립니다.

5. 참고문헌

- [1] W.H. Bowyer, "Design Basis for The Copper/Steel Canister", SKI Report 98:29, 1998
- [2] F. King, L. Ahonen, C. Taxen, U. Vuorinen, L. Werme, "Copper corrosion under expected conditions in a deep geologic repository", SKB TR-01-23, 2001
- [3] M.S. Lee, H.J. Choi, et al. "저온분사로 제조된 구리층의 부식특성" 춘계방사성폐기물학회논문집, pp.137-138, 2008

선진핵주기 고준위폐기물 처분 모듈 개발

최희주, 이종열, 이민수, 조동건, 국동학
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
hichoi@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력으로부터 발생하는 사용후핵연료에 포함된 핵분열성 물질을 재활용하며, 고준위폐기물 부피를 줄이기 위한 방안이 연구 중이다. 국내에서 유력한 방안으로서 개발 중인 파이로 공정을 통해서도 다양한 종류의 고준위폐기물이 발생될 것으로 예상된다. 저자들은 과거 국내에서 발생하는 사용후핵연료의 직접 처분을 대상으로 처분시스템을 개발하였으며[1], 이를 바탕으로 파이로 공정을 통해 예상되는 고준위폐기물을 대상으로 처분시스템을 개발하고 있다. 사용후핵연료의 직접 처분과는 달리 파이로 공정 폐기물의 경우, 그 특성조차 충분히 규명되지 않은 상태이며 따라서 처분시스템을 설계하는 것에는 많은 어려움이 있다. 본 논문에서는 파이로 공정 폐기물 특성 분석, 폐기물 저장 용기 및 처분용기 설계, 완충재 설계, 지하 처분시스템 단위 모듈 설계 결과를 소개하였다.

2. 본론

2.1 파이로 공정 고준위폐기물

본 논문에서 고려한 파이로 공정 폐기물은 PWR 사용후핵연료에 국한하였다. PWR 사용후핵연료 특성은 기준 사용후핵연료로서 초기 농축도 4.5 wt%, 연소도 55 GWD/MtU, 방출 후 10년 냉각을 고려하였다. 파이로 공정으로부터의 물질수지를 분석하여 10 톤의 PWR 기준 사용후핵연료로부터 예상되는 폐기물량을 평가하였으며, 그 결과를 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Amount of waste from pyro-processing of 10 tU PWR spent fuels.

Items	Long-Lived Waste			Interim decay Waste	
	Metal	Mortazite LiCl + KCl	Pitite Off-Gas	SAP LiCl	Flyash Off-Gas
Major Nuclides	U, TRU	RE, TRU	I, Tc	Sr, Cs	Cs
Mass (kg)	3,136.4	664.9	455.5	2,845.7	318.7
Heat (W) 40 years after disposal	-	297	0.06	2,597	3,253
Density (g/cm ³)	6.71	3.57	1.65	2.37	2.74
Volume (L)	467.4	186.2	276.0	1,200.7	116.3
Heat density (W/L)	-	1.59	0.0002	2.16	27.97
Classification	①	②	③	④	⑤

2.2 금속폐기물 처분 모듈

Table 1에 주어진 바와 같이 10 tU PWR 사용후핵연료를 처리하면, 약 3.14톤의 금속폐기물이 발생한다. ORIGIN-ARP 계산 결과에 의하면, 금속폐기물로부터의 열 발생은 거의 무시할 수준이다. 금속폐기물의 감용 방법으로서 용융과 압축을 고려할 수 있는데, 본 연구에서는 압축을 고려하였다. Table 1에 나타난 금속폐기물을 압축할 경우 직경 30 cm, 높이 10 cm의 금속폐기물이 약 77.8개 발생할 것으로 추정되었다. 압축된 폐기물은 직경 약 32 cm 높이 76 cm의 STS304L 용기(can)에 넣어 보관된다. 20,000 tU의 PWR 사용후핵연료로부터 약 22,200개의 용기가 발생될 것으로 예상된다.

2만 여개의 용기를 직접 처분하는 것은 매우 비효율적이다. 따라서 보다 효율적인 처분을 위하여 Metal Waste Disposal Package(MWDP)를 설계하였으며, 9개의 용기를 1개의 MWDP에 넣어 처분할 수 있도록 하였다. MWDP의 한 변의 크기는 대략 1.3 m 이다. 금속폐기물은 발생열이 무시될 수 있어, 일반 중저준위폐기물과 동일한 개념의 처분을 고려하였으며, 처분심도는 지하 200미터로 설정하였다. Fig. 1에 처분터널의 단면을 나타내었다. 이와 같은 터널 2개가 필요할 것으로 추정되었다.

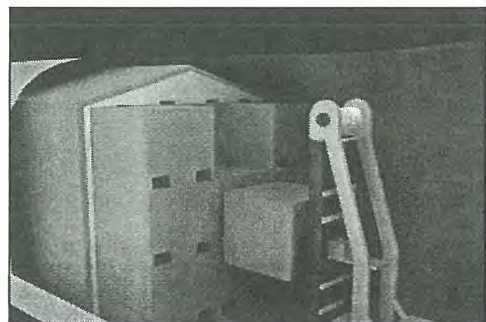


Fig. 1. Disposal tunnel for metal wastes.

2.3 세라믹 폐기물 처분 모듈

사용후핵연료의 파이로 공정으로부터 다양한 폐기물이 발생하나, 고준위폐기물로서 심지층 처분의 대상이 될 것으로 예상되는 폐기물은 전해제련 과정에서 발생하는 세라믹 폐기물이다. Table 1에 monozite로 표시되어 있으며, 10 tU의 사용후핵연료 처리에서 발생될 것으로 예상되는 폐기물 양은 약 665 kg이다. 본 논문에서는 세라믹 폐기물 고화체의 크기를 직경 26 cm, 높이 25 cm로 추정하였으며, 이와 같은 크기의 세라믹 고화체가 약 14.1개 발생할 것으로 예상되었다. 세라믹 고화체 2개를 1개의 캐니스터(canister)에 넣을 경우 20,000 tU PWR 사용후핵연료의 파이로 공정 처리로부터 약 14,100개의 캐니스터가 예상되었다.

세라믹 폐기물에는 장반감기 악티나이드 핵종들이 포함되어 있으며, 붕괴열이 발생하고 있어 심지층 처분을 하여야 한다. 즉, 이 폐기물의 처분을 위해서는 수명이 1,000년 이상인 처분용기[2]에 넣어 지하 500미터 심도에 처분하여야 한다. 처분용기 1개에 14개의 캐니스터를 넣을 수 있는 처분용기를 제안하였다. 처분공 1개에 이와 같은 처분용기 2개를 넣을 경우 예상되는 발열량이 PWR 사용후핵연료 4다발과 유사하다. 20,000 tU의 PWR 사용후핵연료 파이로 공정 처리로부터 약 1,000개의 처분용기가 예상되었다. 처분 개념으로서 수직공 처분과 수평 터널 처분 2가지를 개발하였으며, Fig. 2에 수평 처분 개념을 나타내었다.

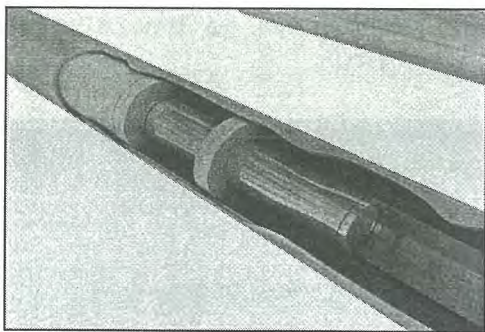


Fig. 2. Horizontal disposal of ceramic wastes.

완충재는 국내산 칼슘-벤토나이트를 대상으로

설계하였으며, 건조밀도 1.6 g/cm^3 로서 완충재 두께는 40 cm를 Fig. 2에 나타난 바와 같이 수평터널 처분을 할 경우 터널 직경은 190 cm 정도이며, 1개의 터널 내에 64개의 처분용기를 처분할 경우 예상되는 터널 길이는 약 320 m이다. 이와 같은 터널이 16개 소요되는 것으로 평가되었다.

3. 결론

PWR 사용후핵연료에 포함되어 있는 핵분열성 물질의 재활용을 위해 기술개발 중인 파이로 공정으로부터 예상되는 고준위폐기물을 대상으로 처분 모듈을 개발하였다. 대표적인 폐기물로서 금속폐기물과 세라믹 폐기물이 예상되며, 이들에 대한 물량 및 방사선원항 분석을 통해 저장용기, 처분용기를 설계하였다. 설계된 처분용기의 특성에 맞추어 각각의 단위 처분모듈을 개발하였다. 연구결과에 대한 성능평가, 안전성평가, 비용평가가 수행될 예정이며, 이를 바탕으로 처분시스템에 대한 종합 평가를 수행할 계획이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] Jong youl Lee, Dong keun Cho, Heui-Joo Choi, and Jongwon Choi, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 44(12), pp. 1565-1573 (2007).
- [2] Choi, Heui-Joo, Yang Lee, Jongwon Choi, and Young Joo Kwon, J. of the Korean Radioactive Waste Society, Vol. 4(3), pp.301 - 309 (2006).

Conceptual Modeling for Local Two-Dimensional Radionuclide Transport with Discrete Fracture Network in Wolsong LILW Disposal Center

Joo-Wan Park, Sung-Wook Hong, and Doo-Hyun Lim*

Korea Radioactive-waste Management Corporation, 848-2, Jung-dong, Giheung-gu, Yongin, Korea

*Golder Associates Inc, 18300 NE Union Hill Road, Suite 200, Redmond, WA 98052 USA

p5j9w@krmc.or.kr

1. Purpose and Background

According to the follow-up action program, which was officially requested by regulatory authority, as a licensing condition of Wolsong LILW Disposal Center(WLDC), safety re-assessment is needed to gain the safety margin of disposal facility by reflecting tunnel excavation data, concrete silo design and surrounding rock characteristics. In this respect, a new conceptual modeling which is different from the previous license application stage's radionuclide transport assessment is attempted. In the previous assessment, groundwater flow modeling with hybrid approach was used where hydraulic conductivities of the rock domain were determined from the discrete fracture network(DFN) method. Then the results of groundwater flow modeling were used as inputs to one-dimensional compartmental radionuclide transport model. New approach is to reflect the interference of radionuclide transport in multiple-silo configuration and the heterogeneity of the fractured rock in silo-scale two-dimensional domain[1,2].

2. Conceptual Modeling

The current model consists of six underground silos, engineered barrier systems(EBS), excavated damaged zone(EDZ), and host rock zone. Three EBS zones for each silo consist of waste zone comprising waste packages and disposal container, buffer zone, and concrete lining zone. Figure 1 illustrates model conceptualization. EDZ is the disturbed zone adjacent to silos and tunnels due to construction and emplacement EDZ has the potential to induce changes in flow and transport properties and therefore has the potential for a significant

effect on the long-term performance of radioactive repository. Primarily cause of EDZ effects is the stress redistribution due to the excavated tunnel i.e., man-made openings in geologic formations[3].

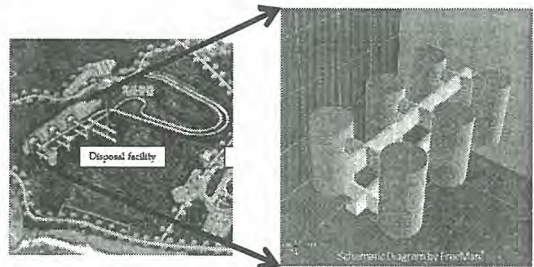


Fig. 1. Model conceptualization: Silos and Tunnels

Excavation processes induce EDZ effects, depending on the excavation method such as TBM, NATM, Drill, Blast, etc. The domain for groundwater flow and radionuclide transport can be subdivided into four different regions, i.e., waste, buffer, concrete, and host rock regions. Waste, buffer, and concrete zones are considered as homogeneous isotropic water-conducting medium with different hydraulic/material properties. Host rock is divided in two regions, rock matrix and DFN region. Rock matrix region does not contain any water-conducting fractures, while DFN region is considered to be an equivalent heterogeneous anisotropic continuum characterized by water-conducting fractures. The concept of two-dimensional flow and transport model is shown in Figure 2.

DFN fracture data analysis utilizing borehole data near silo region and multiple stochastic Monte Carlo realizations of DFN is to be performed. Groundwater flow is simulated for the steady-state, incompressible Darcy flow with space-dependent

hydraulic conductivity in two-dimensional Cartesian coordinates.

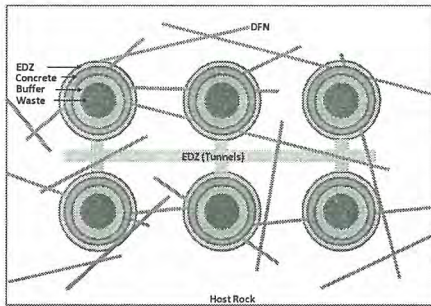


Fig. 2. Concept of two-dimensional flow and transport model

A heterogeneous flow field of the model domain with multiple silos is established over the entire model space by obtaining a space-dependent flow velocity field. Radionuclide migration is simulated based on the established groundwater flow velocity field. Radionuclides released from each of the waste zone inside of silo migrate through waste, buffer, concrete, and host rock zones by advection/dispersion(diffusion), sorption, and/or decay. Radionuclide transport can be simulated using the random-walk particle tracking method. Particle tracking will be used in the current model because it can be easily combined with any flow model and does not show the numerical dispersion.

3. Conclusion

An integrated model for groundwater flow and radionuclide migration analyses in the WLDC with a multiple-silo configuration is to be developed in the two-dimensional space by incorporating the heterogeneity of fractured host rock. For this purpose, more reliable conceptual modeling which is different from the previous approach in license application stage is attempted. This model is expected to gain the safety margin of the WLDC.

4. References

- [1] Doo-Hyun Lim, Masahiro Uchida, Koichiro Hatanaka, and Atsushi Sawada, "Modeling of

Radionuclide Migration through Fractured Rock in a HLW repository with Multiple Canisters", MRS Symp. Proc. 1107, 567-575, 2008.

- [2] Doo-Hyun Lim, "Numerical Study of Nuclide Migration in a Nonuniform Horizontal Flow Field of a High-level Radioactive Waste Repository with Multiple Canisters", Nuclear Technology, 156, 222-245, 2006.
- [3] Tsang et al, "Geohydromechanical Processes in the Excavation Damaged Zone in Crystalline Rock, Rock Salt, and Indurated and Plastic Clays in the Context of Radioactive Waste Disposal", International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences, 42(1), p109-125, 2005.

처분시설 폐쇄후 잠고체폐기물 기체발생량 비교평가

이선정, 정해룡, 박진백

한국방사성폐기물관리공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

silee@krmc.or.kr

1. 서론

우리나라를 비롯한 원자력발전소 운영국가들은 현재 원자력 이용에 따른 중저준위 방사성폐기물의 지층처분을 고려하거나 시행 중에 있으며 고준위 폐기물에 대해서도 최종적으로는 처분으로 해결할 수밖에 없는 상황에 있다.

방사성폐기물 처분 후 처분장 내에는 금속부식과 미생물의 유기물 분해에 의한 기체가 발생하게 되며 발생기체는 처분시설 내부의 압력을 증가시켜 처분구조물에 영향을 주거나 지하수 흐름에 영향을 미칠 수도 있다. 이로 인해, 방사성 기체가 유출되면 주변 환경에 방사선적 영향을 줄 수도 있으며 과도한 기체발생 시 화재 및 폭발의 위험성도 배제할 수 없다.

따라서 시간의 경과에 따라 처분장 내에 발생하는 기체의 종류와 양을 규명하고 나아가 발생한 기체가 처분장 및 주변 환경에 미치는 영향을 평가하여 안전한 관리 방안을 뒷받침할 수 있는 근거를 마련하는 것이 중요하다.

GAMMON[1] 모델은 중저준위 방사성폐기물 내에 포함된 유기물질의 미생물 분해 및 금속물질 부식에 의해 발생하는 기체양을 예측하는 도구로 개발되고 활용되어 왔으나 최근에는 이를 보다 단순화 한 SMOGG[2] 모델이 개발되었다. SMOGG 모델은 유기물질의 미생물 분해에 의한 기체발생량 예측에서, 미생물의 성장을 고려하지 않고 입력변수를 극히 단순화하였고 이와 같은 작업이 불확실성이 상존하는 조건에서는 실제 실험결과를 더욱 정확히 예측하는 것으로 보고되고 있다.

본 연구에서는 GAMMON 및 SMOGG 코드를 이용하여 월성원자력환경관리센터에 처분되는 잠고체 방사성폐기물로부터 폐쇄 후 발생하는 기체양을 예측하기 위한 기체발생 모델링을 수행하고 각각의 장단점 및 결과에 대해 비교분석 하여 국내 처분시설에 대한 적용성을 평가하고자 한다.

2. 본론

기체발생량 예측프로그램 각각에 대한 장단점을 Table 1에 기술하였다. Table 1에서는 GAMMON과 SMOGG 코드에 의한 기체발생량 예측을 위하여 일반잠고체(200L) 폐기물을 대상으로 하였고, 사용된 주요 입력 변수는 Table 2와 같으며 모든 패키지에 대한 공통자료는 “중저준위 방폐물 처분장 안전성분석보고서”를 근거로 하였다.

Table 1. Comparison between GAMMON and SMOGG

프로그램	장점	단점
GAMMON	- 셀룰로스의 혐기성 분해 반응을 자세히 반영함 - pH 조절 기능 (콘크리트의 영향 반영 가능) - 금속 형태에 따른 부식특성 반영	- Unix 기반의 프로그램으로 사용이 번거로움 - 방사분해에 의한 기체발생량 계산 못함 - 셀룰로즈 분해반응에 대한 입력변수 값 검증 불가능 - 금속 부식반응에서 Zircaloy, Uranium 반응 불가능
SMOGG	- 입력창이 엑셀형태로 되어 사용이 용이함 - 방사분해 계산 가능 - 알칼리 조건에서 셀룰로스의 분해정로 설정 - 다양한 금속의 부식 반응 설정 - 금속 형태에 따른 부식특성 반영 - 라돈가스 생성량 예측가능 - 반응초기의 CO₂와 시멘트의 반응 계산 - 사용후핵연료의 운반, 저장 시 기체발생량 예측가능 - 금속부식에 따른 방사성기체 발생량 예측가능 - 금속내에 존재하는 방사능기체 성분의 확산에 의한 배출 예측가능	- 셀룰로즈 혐기성 분해반응을 동력학모델을 이용하여 설명함 → 단순화 함 - CO₂와 시멘트 반응에 대한 불확실성 야기

일반 압고체 폐기물 드럼 당 발생하는 수소기체의 10,000년 누적 발생량은 Table 3과 같으며 발생량의 대부분을 차지하는 수소기체에 대한 누적 발생량 비교는 Fig. 1과 같다.

Table 2. Parameters in GAMMON and SMOGG calculations

입력 변수		단위	비고
water inflow rate	0.007	$\text{m}^3 \text{y}^{-1} \text{m}^{-3}$	
backfill mass	0	kg	
porosity	0.49	m^3	
initial plate thickness	0.0012	m	
corrosion rate	1.0E-05	my^{-1}	acute, chronic 동일 적용
initial nitrate	0.0	mol	
initial sulphate	7.832E-04	mol	

Table 3. Gas production cumulative amount (10,000years)

구분	H_2 (m^3)
GAMMON	3.48E+01
SMOGG	3.80E+01

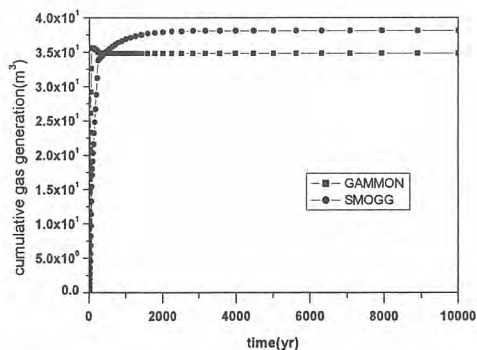


Fig. 1. Comparison gas generation for H_2 : GAMMON and SMOGG

3. 결론

본 연구는 월성원자력환경관리센터에 처분되는 압고체 방사성폐기물로부터 폐쇄 후 발생하는 기체양을 예측하기 위하여 GAMMON 및 SMOGG 코드를 이용하여 기체발생 모델링을 수행하였다.

두 코드를 사용하여 기체발생량을 평가한 결과,

발생량의 대부분을 차지하는 수소기체의 경우 10,000년을 기준으로 하였을 때 매우 유사한 발생량과 발생경향을 보였다. 그러나 GAMMON 모델에서는 유기물질의 미생물 분해에 관여할 것으로 예측되는 8가지 종류의 미생물에 대하여 수율, 성장계수, 사멸계수 등의 입력변수를 활용하여 유기물질 분해에 의해 발생하는 기체양을 예측하나, 미생물 성장과 관련한 모델링 입력자료를 배제한 SMOGG 모델 결과와 전체 기체발생량에는 큰 영향이 없음을 확인할 수 있었다. 이는 기체발생이 유기물질분해 및 방사분해 보다는 금속부식에 크게 의존하기 때문인 것으로 판단된다.

미생물 관련 입력변수를 단순화하여 코드활용이 용이하고, 또한 폐기물의 방사분해를 적용하기 위해서는 MAXH2와 같은 별도의 코드를 추가해야 하는 GAMMON 보다는 SMOGG를 처분시설 기체발생량 평가에 활용하는 것이 보다 효율적이다.

실제 처분시설에는 압고체 폐기물을 비롯하여 다양한 종류의 폐기물이 처분되게 되므로 향후에는 처분시설 안전성 평가에 SMOGG 코드를 이용한 신뢰성 있는 기체발생량 평가를 위해 폐쇄후 포화시점, 뒤채움재 양, 물질 및 방사선 형태에 따른 폐기물의 G값, 폐기물의 성분 등에 대한 정확한 자료를 확보하는 것이 중요하다.

4. 참고문헌

- [1] Nirex Science Report, GAMMON(Version 1A) : A computer programme addressing gas generation in radioactive waste repositories, 1997
- [2] Serco, SMOGG ver. 5 User Guide, 2009

제3분과

방사성폐기물 처분 및 부지특성 (Poster)

빈 면

방사성폐기물 처분장의 동적거동 모니터링을 위한 AE 적용과 Moment Tensor 기법을 활용한 파쇄위치 추적기술 현황

이경수, 김진섭, 권상기

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

zzangomar@hanmail.net

1. 서론

방사성폐기물 처분장은 지하 수백 m에 위치한 암반을 발파하여 건설하였기 때문에 발파로 인한 암반 손상대 및 지하수 발생과 방사성폐기물에서 발생하는 고열 등으로 암반이 가지고 있는 고유의 물성 및 체적에 변화가 발생하며 이로 인한 암반의 동적거동으로 방사성폐기물 처분장의 안정성에 대한 우려는 항시 제기되고 있다. 그러므로 방사성폐기물 처분장은 인간 생활권과 격리되어 건설되며 100년 이상의 모니터링이 실시되고 있다.

그러나 기존의 모니터링은 대상구조물의 위치, 규모, 기하학적 형태 등에 따라 많은 제약사항이 있으나 AE법의 경우 이러한 제약사항을 고려할 필요가 없으며 특히 구조물의 결합발생 예측 및 위치파악을 정량적으로 예측할 수 있는 장점이 있어 국내·외에서 널리 사용되고 있다.

그러므로 본 논문에서는 AE법의 일종인 SiGMA에 대한 소개와 SiGMA를 이용한 향후 수행할 연구에 대한 소개를 할 것이다.

2. 본론

2. 1 AE(Acoustic Emission)법이란

AE는 Fig 1과 같이 물체가 파괴 또는 변형 될 때 발생하는 미소음을 뜻하며 AE법은 물체 내부 균열에 의하여 발생되는 탄성파와 탄성파를 거출하는 수단 및 해석 등을 의미한다.

AE법을 활용한 모니터링은 대상 물체의 위치, 기하학적 형태와 상관없이 실시간 모니터링이 가능하며 결합 또는 손상 발생 예측 및 파괴 발생 시 발생 위치를 정량적으로 수행할 수 있는 장점이 있다.

AE음원을 추적하기 위해서는 균열 발생시각과 위치표정 좌표가 필요하며 이 좌표를 통하여 균열 발생위치를 계산하며 국내·외에서 널리 사용되고 있는 음원위치를 구하는 방법으로는 격자법, 차분근사법, 분할근사법, 최소자승법 등이 있다.

앞에서 언급한 바와 같이 앞에서 언급한 음원위치를 구하는 방법을 사용할 경우 균열 발생 시 균열 발생 위치를 예측할 수 있으나 콘크리트 또는 암석의 경우 내부에 존재하는 광물 입자의 조성 및 배열, 이방성, 불연속면, 공극 등으로 예측한 균열 발생 위치와 실제 발생 위치는 약간의 오차가 발생한다.

그리고 균열의 형태, 방향성 및 균열의 운동학적 특성에 대한 해석을 수행하기 어렵기 때문에 균열 발생 원인을 분석하기 위해서는 많은 시간과 노력이 필요하다.

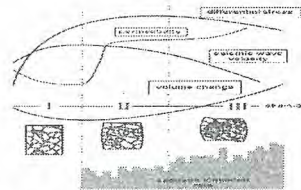


Fig. 1. Schematic illustrates volume change, AE rate, permeability, and seismic wave velocity

2. 2 SiGMA기법

Ohtsu가 제안한 SiGMA(Simplified Green's Functions for Moment Tensor Analysis)는 AE법의 일종으로 AE는 물체의 동적전위에 의한 탄성파이며 콘크리트는 균질하다고 가정하여 모멘트 텐서법을 그린함수에 적용하여 분석하는 AE법의 일종으로 3차원 시각화를 통한 결합의 위치, 형태, 방향성 등을 정량적 해석할 수 있는 장점이 있다.

Ohtsu는 우선 균열에 의하여 발생하는 AE파에 대한 변위를 식 1과 같이 나타내었다.

$$u_k(x, t) = G_{kp,q}(x, y, t) M_{pq} * S(t) \quad (1)$$

여기서, u_k 는 관측된 k 번째 변위요소, $G_{kp,q}$ 는 spatial derivatives of Green's function이며, M_{pq} 는 Moment tensor이다. 선형역산식을 이용하여 M_{pq} 에 대하여 구할 수 있다.

그러나 $G_{k,q}$ 는 수치해석을 위해서는 필요하나 많은 양의 AE파를 처리하기에는 적합하지 않기 때문에, 이를 고려하여 컴퓨터 연산 처리가 가능한 SiGMA code를 제안하였다. 식 2와 그림 2는 균열이 발생한 y지점과 AE센서가 있는 x지점에서의 AE파의 움직임에 대한 관계를 나타낸 것이다.

$$A(X) = Ref(t, r) \frac{(4\pi\rho Rv^3)}{DF} (r_1, r_2, r_3) \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} & m_{13} \\ m_{21} & m_{22} & m_{23} \\ m_{31} & m_{32} & m_{33} \end{pmatrix} \quad (2)$$

여기서, R은 균열이 발생한 y지점과 AE센서가 있는 x지점과의 거리, $R=(r_1, r_2, r_3)$ 는 cosine의 방향, t는 AE sensor의 방향, $Ref(t, r)$ 은 반사계수, DF는 균열면적, ρ 는 밀도를 의미한다.

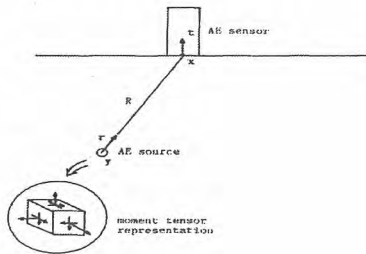


Fig. 2. relation between AE wave motion at x and the moment tensor representation of AE source at y

2. 3 SiGMA 적용사례

Fig 3~5는 Ohtsu가 철근콘크리트기둥에 휜실험을 수행할 때 발생한 AE파를 SiGMA를 활용하여 AE발생 위치 및 균열의 형태를 시각화 한 것으로 콘크리트기둥에 하중을 가함에 따라 균열의 위치가 시료 전체로 확산되며 균열의 형태 및 방향성 또한 변화하는 것을 확인하였다.



Fig. 3. Result of SiGMA - first stage

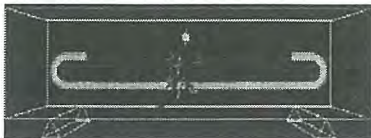


Fig. 4. Result of SiGMA - intermediate stage



Fig. 5. Result of SiGMA - final stage

3. 결론 및 향후 연구계획

Ohtsu가 수행한 SiGMA를 활용한 철근콘크리트 휜실험 결과를 검토해 보면, SiGMA는 균열발생 위치와 균열의 형태, 방향성 및 균열의 운동학적 특성에 대한 분석이 가능한 장점이 있다.

그러므로 SiGMA를 현장암반에 적용하여 암반의 동적 거동에 대한 모니터링을 수행할 계획이다.

본 연구를 성공적으로 수행하기 위해서는 우선 암석 내부에 존재하는 불연속면, 공극 및 암석의 열응력 등에 의한 AE파의 감쇠, 분산과 SiGMA와의 mechanism 연구가 수행되어야 하며 이를 토대로 방사선에 의한 열응력을 받으며 발파에 의한 암반 손상대, 불연속면과 공극 등이 존재하는 현장암반에 대한 동적거동 특성 연구에 SiGMA를 활용할 계획이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] Christian U. Grosse, Masayasu Ohtsu(2008). Acoustic emission Testing : Basics for Research-Applications in Civil Engineering
- [2] Ohtsu M(1991). Simplified moment tensor analysis and unified decomposition of acoustic emission source : application to in situ hydrofracturing test. J Geophy Res 1991;96:211-6221

Particle Flow Code 2D의 미시변수와 열전도도의 상관관계 분석

이창수, 전석원, 권상기*,

서울대학교, 서울특별시 관악구 대학동

*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

cslee@snu.ac.kr

1. 서론

계산식은 식(1)과 같다.

고준위 방사성 폐기물(High Level Radioactive Waste)의 처분에 있어서 처분지역 암반(심부결정질 암석)의 역학적인 특성뿐만 아니라 열적인 특성을 규명하는 것은 매우 중요하다. 이에 따라 암반의 열 특성에 관한 실험적, 해석적 연구가 많이 수행되어 왔으며, 수치해석적 방법으로는 개별요소법을 기반으로 하여 Itasca Consulting Group에서 개발한 상용 프로그램인 PFC2D를 사용한 다양한 실내시험에 대한 모사가 이루어진 바 있다. 따라서 본 연구에서는 기존의 역학적인 거동특성에 대한 연구를 토대로 암석의 열물성과 다양한 입력변수와의 상관관계를 분석하였다.

2. 본론

본 연구에서는 PFC2D에서 입력변수로 사용되는 미시변수가 암석의 열 물성과 어떠한 상관관계가 있는지에 대해 살펴보고자 하였다. PFC2D에서 사용되는 열 관련 미시변수는 입자들의 비열(C , J/kg $^{\circ}$ C), 열팽창계수(α , 1/ $^{\circ}$ C) 그리고 열저항계수(n , $^{\circ}$ C/Wm)가 있다. 하지만 미시변수 비열과 열팽창계수는 거시물성의 비열과 열팽창계수와 같으므로(PFC2D Manual, 2004) 미시변수인 열저항계수에 대해서 암석의 거시물성과의 상관관계를 살펴보기로 한다.

2.1 열전도도시험

PFC2D를 이용하여 정상 상태에서의 Divided bar test를 수치해석으로 모사하여 암석 시험편의 열전도도를 측정하였다. 수치해석에서 사용된 암석 시험편의 직경은 50 mm이고 길이는 100 mm이다.

상부와 하부의 온도를 100 $^{\circ}$ C와 40 $^{\circ}$ C로 일정하게 유지하면서 열평형 상태에 도달하였을 때, 열전도도를 직접 측정하여 보았다. 사용된 열전도도

$$q'' = K \frac{T_2 - T_1}{L} \quad (1)$$

여기서 q'' 는 heat flux(W/m 2)이고 K 는 열전도도(W/m $^{\circ}$ C)를 의미하며, L 은 시험편의 길이(m) 그리고 T 는 온도($^{\circ}$ C)를 이다.

수치해석에서 heat flux는 하부의 입자들에서 계산된 값을 이용하여 열전도도 K 를 구하기로 하였다.

2.2 열전도도에 미치는 미시변수의 영향성 평가

미시변수가 거시물성에 미치는 영향을 파악하기 위해서 각각의 미시변수들을 바꾸어 가면서 거시물성에 미치는 영향을 조사해야 한다. 미시변수가 거시 물성에 미치는 영향에 대한 민감도 분석과 각 인자들 사이의 영향을 분석하기 위해서 실험계획법의 하나인 부분배치법(FFD, Fractional Factorial Design)을 적용하였다. 또한 부분배치법에 의해 실행된 각각의 시험은 총 10회를 수행하여 구한 평균값을 시험의 결과값으로 사용하였다. 민감도 분석을 위해 사용한 미시변수와 각각의 입력값은 Table 1에 제시한 바와 같으며, 민감도 분석은 상용통계프로그램인 NCSS 2007을 이용하여 수행하였다.

Table 1. Micro-parameters used in the simulation

Micro-parameter	Levels	
	Low	High
A. Ball radius (mm)	0.3	0.7
B. Ball density (kg/m 3)	2300	3300
C. Specific heat (J/kg $^{\circ}$ C)	500	1500
D. Coefficient of linear thermal expansion (10 $^{-6}$ / $^{\circ}$ C)	1.0	10.0
E. Thermal resistance ($^{\circ}$ C/Wm)	100	500

민감도 분석과 분산분석을 실시한 결과, 열전도도는 최소 입자 반지름(A)과 입자간의 열 저항계

수(E)가 커질수록 감소하는 것으로 나타났다.

2.3 열전도도와 미시변수와의 상관관계 분석

열전도도에 영향을 미치는 것으로 판단되는 두 가지 미시변수들(최소 입자 반지름(A), 입자간의 열 저항계수(E))을 이용하여 열전도도와 상관관계를 좀 더 명확히 살펴보고자 두 가지 미시변수를 모두 3수준(-1, 0, 1)으로 하여 수치해석을 수행하고 회귀분석을 실시하였다. 사용된 미시변수들은 Table 2에 나타나있다.

Table 2. Micro-parameters used in sensitivity analysis

Micro-parameter	Factor Levels		
	-1	0	+1
A. Ball radius (mm)	0.3	0.5	0.7
E. Thermal resistance (°C/Wm)	500	1000	1500

상용통계 프로그램인 NCSS를 이용하여 미시변수와 열전도도사이의 상관관계를 비선형 회귀분석한 결과는 식(2)과 같이 나타났다.

$$y = \frac{22.821^2}{x_1 \cdot x_2} \quad (2)$$

여기서 x_1 은 최소 입자 반지름(A)이며, x_2 는 입자의 열 저항계수(E)이다. 열전도도에 대해 미시변수를 사용한 회귀분석식의 결정계수 R^2 은 0.99 이상으로 매우 큰 값을 보였다. 이는 추후에 열-역학 상호작용을 해석할 때 암석의 거시물성을 알고 해석영역에 적합한 입자의 최소반지름이 결정되면 나머지 미시변수인 입자의 열 저항계수가 자동으로 계산되어 질 수 있음을 의미한다.

Äspö Rock과 대전화강암의 열전도도는 SKB 보고서(2007)와 서울대에서 수행한 보고서(2002)에 각각 2.60과 2.66으로 보고된 바 있다. Äspö Rock과 대전화강암에 대해 열·역학적인 상호작용을 최소 입자 반지름이 0.5 mm로 수행하고자 한다면 결정된 미시변수인 최소입자 반지름(0.5 mm)과 구하고자 하는 거시물성인 열전도도(Äspö Rock: 2.60 W/m°C, 대전화강암: 2.66 W/m°C)를 회귀식에 대입하여 입자의 열 저항계수(Äspö Rock: 400.164 °C/Wm, 대전 화강암: 391.578 °C/Wm)를 계산할 수 있다.

결정된 최소 입자반지름(0.5 mm)과 계산된 입자의 열 저항계수(400.164 °C/Wm, 391.578 °C/Wm)를 이용하여 실제 수치해석을 수행하여 본 결과 Äspö Rock의 경우 수치해석 결과 2.65로 나

타나 목표치인 2.60과 약 1.76% 차이가 났으며 대전 화강암의 경우 2.70으로 나타나 목표치인 2.66과 약 1.54% 크게 나타났다.

3. 결 론

PFC2D를 이용하여 정상 상태의 열전도도 시험을 모사하였다. 또한 민감도 분석을 수행하여 열전도도에 영향을 미치는 미시변수인 최소입자 반지름(A)과 입자간의 열 저항계수(E)를 구하였다. 또한 회귀분석을 수행하여 열전도도와 두 미시변수의 상관관계를 분석하여 비선형 회귀식을 도출하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 한국원자력연구원의 위탁과제(20090062-294) “균열암반에서의 THM 거동 특성 연구”의 지원을 받아 수행하였습니다.

5. 참고문헌

- [1] PFC2D (Particle Flow Code in 2 Dimensions), 2004, Version 3.1, Minneapolis: Itasca Consulting Group.
- [2] SKB, 2007, Äspö Pillar Stability Experiment. Rock mass response to coupled mechanical thermal loading, SKB TR-07-01
- [3] 전석원 외, 2002, 암반의 수리인자에 미치는 열적·역학적 영향에 대한 실험적 검증, 기술보고서, KAERI/CM-494/2001, 서울대학교

처분 시설 운영자 자체 세부 인수기준 설정 방안

전태훈, 정성엽, 최진규, 정현철

(주)성우 E&T, 서울시 강동구 천호1동 34-2 화성빌딩8층

thieon@sungwoo.org

1. 서론

중·저준위 방사성폐기물의 처분을 위하여 처분 시설이 건설 중에 있으며 관련 규정 및 절차 수립을 위한 관련 업무들이 진행 중에 있다. 과학기술부 개정 고시 제2009-37호, ‘중·저준위 방사성폐기물 인도규정 고시’에 따르면 위탁자가 폐기시설 운영자에게 폐기물을 인도함에 있어 필요한 인도 방법·절차 및 기타 필요한 사항과 처분요건에 따라 폐기물이 갖추어야 하는 특성 등을 규정하도록 명시되어 있다. 그 일환으로 한국수력원자력 주식회사(한수원)는 2005년부터 ‘중·저준위 방사성폐기물 인증체계’[1]를 개발하여 신규 발생 폐기물에 대한 건전성 확보를 추진하였으며 인도규정 시행 이전(2005년) 발생 폐기물에 대해서는 특성평가 항목 설정 및 방법 정립을 위한 연구를 수행, 처분 방법을 모색하였다. 그러나 이러한 노력에도 불구하고 현재까지 처분사업자 자체 세부 인수기준(Specific Waste Acceptance Criteria)이 설정되지 않아 구체적인 처분방안을 모색하기 어려운 실정이다. 이에 본 연구에서는 처분 대상 중·저준위 방사성 폐기물 현황을 분석하고 대상에 따른 세부 인수기준 설정 방안을 모색하고자 한다.

2. 처분 대상 중·저준위 방사성 폐기물 현황

현재까지 한수원이 발생한 중·저준위 방사성 폐기물은 약 67,000 드럼으로 잡고체 약 56%, 농축 폐액 28%, 폐수지 14%, 그리고 폐필터 2% 으로 분류된다.[2] 그러나 인도규정 고시 시행 이전 발생 폐기물이 대부분을 차지하고 있으며 이러한 기발생 폐기물의 경우 이력이 불분명하고 인도규정 고시에 명시되어 있는 처분 안정성을 입증하기 어려운 것이 사실이다. 또한 폐기물 감용 방안의 일환으로 시행되었던 초고압 압축으로 발생한 재포장 드럼이 잡고체의 경우 전체 중 50%의 비중을 차지하고 있으나 처분안정성 입증 방안이 제시되고 있지 않다.

3. 세부 인수기준 주요 구성

국제 원자력 기구는 처분시설 운영자가 처분시설에서 인수할 수 있는 폐기물의 특성과 폐기물 인수절차에 관한 세부적인 지침을 수립하여 사전에 폐기물 발생자 또는 폐기물 처분을 위탁하고자 하는 자에게 제공하게 되어 있다. 세부적 내용으로는 처분폐기물의 특성기준, 폐기물 발생자가 해당 폐기물이 인수기준에 적합함을 입증하는 데 적용할 수 있는 방법과 운영자가 그 부합성을 확인하는데 적용할 방법, 그리고 폐기물 발생자가 운영자에게 폐기물을 인도할 때 제출해야 할 서류 등을 제시하도록 권고하고 있다. 또한 처분시설 운영자는 처분부지로 이송된 폐기물의 인수 검사 절차를 수립하고 검증하여야 한다. 구체적으로 인수 검사 절차에는 처분 대상 폐기물의 생산 및 운반 이력 확인 및 대조, 폐기물 포장물 건전성 및 형태 검사, 표면 선량 측정 및 오염도 평가, 폐기물 분류 검증, 세부 인수기준에서 제시한 적합성 및 안정성 요건 검사, 최종 처분 적합성 판단, 그리고 인허가 검토 사항 평가 항목이 포함되어야 한다.[3,4]

4. 국내 세부 인수기준 설정 방향

국내 여건에 부합하는 세부 인수기준 설정을 위해 중·저준위 처분시설 운영기준 수립 방안[5] 및 다음과 같은 항목을 처분사업자는 고려하여야 한다.

(1) 이력 유지

폐기물 이력은 생산, 임시 저장, 수송, 처분까지 각 단계의 이력이 명확하게 유지되어야 하며 이를 위한 DB를 구축하여야 한다. 폐기물 이력 DB에는 생산 일자, 생산 위치, 선량, 중량, 킬레이트 및 유리수 포함 여부, 내용물 및 충전물 등의 정확한 정보가 기입되어야 하며 초고압 압축 드럼과 같이 재포장을 한 드럼의 경우 재포장

전 드럼의 이력을 필히 함께 유지하여야 한다.

(2) 특성 평가 방법 검증

처분사업자는 발생자의 특성 평가 방법을 인가하고 주기적으로 검증하여 하며 폐기물 드럼 형태 및 특성에 따른 각각의 특성평가 방법을 설정하여야 한다. 현 대규모 폐기물 발생자인 한수원의 경우 인도규정 시행 시점 이전 발생한 폐기물의 처리 및 검사 절차가 시행 이후 절차와 다르므로 동일한 특성평가 방법을 설정하긴 힘든 상황이다. 또한 재포장 드럼의 경우, 압축 대상 폐기물 드럼의 이력에 따라 분류하고 각각에 적합한 특성평가 방법을 설정하여야 한다.

(3) 미적합 폐기물

처분사업자는 처분 미적합 폐기물 판정 기준을 제시하여야 한다. 처분 미적합 폐기물 판정은 이력 확인 절차에서부터 최종 인수 검사 이전까지 판정 가능하도록 설정되어야 하며 해당 폐기물 드럼에 대한 처리 소요 비용은 발생자가 책임을 지도록 설정하여야 한다.

(4) 재포장 기준 및 처리 방안

처분사업자는 발생 가능성이 있는 처분 미적합 폐기물에 대한 재포장 기준 및 처리 방안을 설정하여야 한다. 재포장 대상은 생산 시 발생한 미적합 폐기물에 적용되지 아니하며 생산 후 저장, 운송 등의 과정에서 발생 한 미적합 폐기물 드럼만을 대상으로 설정한다.

5. 결론 및 토의

중·저준위 방사성폐기물의 처분을 위해서는 처분 시설의 확보 및 관련 절차 수립이 최우선 과제이다. 그러나 현재 국내의 경우, 처분 시설이 건설 중임에도 불구하고 관련 세부 절차가 미흡한 상황이다. 처분 적합성이 확보된 폐기물 생산은 처분 미적합 대상 드럼의 양을 줄일 수 있고 그로 인한 소요비용의 감소 및 처분 검증 절차의 간소화 효과를 가져 올 수 있다. 따라서 처분사업자는 가능한 빠른 시간 내에 세부 인수기준을 설정 및 제시하여야만 하며 세부 인수기준에는 처분 적합성 검증 방법 이외에도 본 연구에서 제시한 바와 같이 처분 미적합 폐기물 판정 기준 및 처리 방안 등이 포함되어야 한다.

6. 참고문헌

- [1] 원자력 환경 기술원, '방사성 폐기물 인증체계 개발', 2005.8
- [2] M. Ahn, S. Lee, and K. Lee, 'Disposal concept for LILW in Korea: Characterization methodology and the disposal priority', Progress in Nuclear Energy, Vol 51, pp. 327-333, 2009
- [3] Technical report series No 402, 'Handling & Processing of Radioactive Waste from Nuclear Applications'
- [4] 이재민 외 6, '방사성폐기물 인증 프로그램 개발을 위한 검토', 한국방사성폐기물학회 학술논문집, 한국방사성폐기물 학회, 2004.6
- [5] 정찬우 외 5, '중·저준위 방사성폐기물 처분시설 운영기준 수립방안', 한국방사성폐기물학회 학술논문집, 한국방사성폐기물 학회, 2004.6

심지층 처분 방법 해석

장철웅, 이정성, 김신

제주대학교, 제주도 제주시 아라1동

cifdnd1125@nate.com

1. 서론

에너지경제연구원에서의 보고서에 따르면 2010년 국제유가는 상반기 \$70 초중반 수준 강보합세(襁褓合勢)를 보이고, 하반기 이후 본격적인 경기회복에 따라 추가 상승이 전망된다고 밝혔다.[1] 따라서 비교적 안정적인 동력원으로 고려하고 있는 원자력에너지에 대한 관심이 높아지고 있는 추세이며, 이러한 원자력 에너지의 활용과 이로부터 고준위 폐기물 관리에 있어서 안전성은 매우 중요하다.

고준위 폐기물은 일반적으로 지하 수백 미터의 건전한 암반에 처분하는 것이 가장 안전한 방법으로 고려되고 있다.

PWR에서 나오는 사용 후 핵연료가 HWR에서 나오는 사용 후 핵연료보다 많으면서 더 많은 열량을 방출한다. 따라서 본 연구는 PWR에 초점을 맞췄다.

본 연구에서는 사용 후 핵연료 즉, 고준위 폐기물의 처분 방식인 심지층 처분 방식에서 처분 공에 설치된 완충재의 성능 저하를 방지하기 위한 온도 제한치를 넘지 않는지 확인하고, 완충재의 열전도도에 따라 완충재 온도의 변화를 분석하였다. 또한 처분 후 냉각기간을 분석하여 안전성에 대해서 검토하였다.

2. 본론

2.1 다층방벽 개념

안전성에 대한 확고한 신뢰를 구축하기 위하여 공학적 방벽 개념을 도입하고 있으며, 이는 처분 대상이 되는 사용 후 핵연료 또는 고준위 폐기물, 처분용기, 완충재, 뒷채움재 등으로 구성된다.

공학적 방벽의 구성요소로 처분용기를 둘러싸고 있는 완충재는 처분용기를 보호하고 핵종의 이동을 지연시켜야 하는데, 이를 위해 완충재는 수리전도도와 핵종의 이동성이 암반보다 작아야 하며, 온도는 100℃ 이하로 유지되도록 열전도도가 커

야 한다. 이러한 완충재의 온도요건은 지하 처분 구역 배치에 있어서 주요한 제한요건이 된다.

2.2 지배 방정식

$$\nabla^2 T + \frac{\dot{q}}{k} = \frac{1}{\alpha} \frac{\partial T}{\partial \tau} \quad (1)$$

여기서,

$\dot{q}$ = 단위체적당 발생된 에너지 [W/m³]

c = 물질의 비열 [J/(kg×℃)]

ρ = 밀도 [kg/m³]

τ = 시간 [s]

T = 절대 온도 [K]

α = 열확산 계수 [k/pc]

k = 열전도 계수

이다.

시간의 변화에 따른 붕괴열량의 변화를 처분장의 열 분포 해석의 열원항으로 사용하기 위하여 C.M.Malbrain[2]이 사용한 식을 다음과 같은 추정식으로 변환하였다.

$$\dot{q}(t) = C_1 \times t^{-C_2} \quad (2)$$

$$(30 \leq t \leq 10^6 \text{ year})$$

상기 추정식을 기준으로 기준 사용후 핵연료의 시간에 따른 붕괴열 값을 SAS 통계 프로그램을 이용하였다. [Table 1]은 회귀분석을 수행한 결과 얻어진 추정식의 계수이다.[3]

Table 1. coefficient

	t [year]	C ₁	C ₂
PWR45	30~10 ⁶	14545.68	0.75756

본 연구에서 고려된 사용 후 핵연료는 가압형경수로(PWR)형 17 × 17 핵연료 봉이며, 방출열소도는 PWR45(45,000MWD/MTU)이다. 따라서 핵연료봉의 시간에 따른 열 발생률은 식 (4)와 같으며, 사용 후 핵연료는 40년간 냉각된 후 처분된다.

$$\dot{q} = 14,545.68 \times t^{-0.75758} [\text{Watt}/\text{m}^3] \quad (4)$$

여기서,

$$t = \text{시간} [\text{year}]$$

이다.

2.3 초기 조건, 물성치, 및 경계조건

처분장 열 해석을 위한 본 해석의 대칭적 모델에 따른 온도 분포는 지표 하 지하수대의 온도를 15℃로 가정하여 이를 기준으로 지하 100m 깊이마다 3℃씩 상승하는 것으로 초기조건을 설정하였다.[3] [Table 2]는 열적 거동 분석에 입력된 Canister, 완충재 블록, 뒷채움 물질 및 암반의 물성자료를 나타내고 있다. [Table 3]은 Boundary Condition을 나타내고 있다.

Table 2. Thermal properties for simulation

	Density [kg/m ³]	Thermal Conductivity [W/(m×℃)]	Specific Heat [J/(kg×℃)]
Fuel	2000	0.135	2640
Cast Insert	7200	52	504
Outer Shell	8900	386	383
Buffer	1970	1.7	1380
Rock	2650	3.2	815
Back fill	2270	2	1190

Table 3. Boundary Condition

	Boundary Condition
Fuel	$k_1 \nabla T_1 = k_2 \nabla T_2$
Cast Insert	$k_1 \nabla T_1 = k_2 \nabla T_2$
Outer Shell	$k_1 \nabla T_1 = k_2 \nabla T_2$
Buffer	$k_1 \nabla T_1 = k_2 \nabla T_2$
Rock	T=30℃
Back fill	T=30℃

3. 결론

본 연구 결과 다음과 같은 결과를 얻을 수 있었다.

- (1) 사용 후 핵연료는 약 300년까지는 급격하게 온도가 감소하지만 10000년 이후가 되면 심지층의 온도와 비슷해진다는 것을 알 수 있었다.

- (2) Canister와 심지층 표면의 초기 온도차를 보면 사용 후 핵연료의 온도보다 약 37.7% 감소한다는 것을 알 수 있었다. 따라서 완충재가 사용 후 핵연료에서 나오는 열의 대부분을 차폐한다는 것을 판단 할 수 있다.

- (3) 본 연구에서는 한국형 고준위 폐기물 심지층 수직처분시스템에서 사용되어진 완충재는 적절하다는 것을 판단 할 수 있었다.

- (4) 완충재의 Conductivity가 높을 수록 열전도가 증가하여 온도가 빨리 감소하는 것을 판단 할 수 있다. 완충재의 Conductivity가 50[W/(m×℃)] 이상이 되면 100년 이후에 바로 주변의 온도와 비슷하게 되는 것을 볼 수 있었다. 하지만, Conductivity가 50[W/(m×℃)] 이상이 되면 금속류에 속하기 때문에 시간이 지나면 지하수와 반응이 일어나 부식이 일어날 가능성이 있기 때문에 완충재로 사용 할 수 없다. 본 연구에서는 완충재의 Conductivity를 1.0[W/(m×degC)]으로 계산을 수행하였는데, 완충재의 능력을 잃지 않는 한에서 Conductivity를 증가 시켜 사용하면 더 나은 다중방호 시스템이 될 것이라고 예상된다.

원자력 발전으로 인하여 발생하고 있는 사용 후 핵연료의 영구처분은 현재와 미래의 인간과 자연을 보하는 유일한 방법으로 생각된다. 따라서, 사용 후 핵연료를 영구 처분할 수 있는 심지층 처분 방법을 연구를 지속적으로 하여 심지층 처분이 보다 안전하게 운영될 수 있도록 해야겠다.

4. 감사의 글

본 연구를 할 수 있도록 지원을 해주신 원자력 대학생논문연구회에 감사의 말을 전합니다.

5. 참고문헌

- [1] 2010년 국제 원유시황과 유가 전망(2010, 이문배, 이철용, 노남진)
- [2] Analytical Approximations for the Long-term Decay Behavior of Spent Fuel and High-level Waste, Nuclear Technology, Vol. 57 (1982, C.M. Malbrain and R.K.Lester)
- [3] 고준위 폐기물 처분기술개발 (2006, 한국원자력연구원)

파이로공정 금속폐기물 처분시스템의 예비선량평가

국동학, 조동진, 이민수, 이종열, 최희주
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
svskook@kaeri.re.kr

1. 서론

16기의 PWR 사용후핵연료를 Pyroprocess를 통한 건식재활용을 할 경우, 다양한 종류의 방사성 폐기물들이 필연적으로 발생하게 되고 이러한 방사성폐기물은 온전한 사용후핵연료도 아니면서 동시에 독특한 특징의 고준위폐기물로 구분되어 진다. 본 연구에서는 이 공정에서 발생하는 금속 폐기물을 처분하기 위한 시스템의 방사선량을 예비적으로 평가함으로써 방사선 안전성을 확인하고자 하였다.

2. 본론

2.1 공정 폐기물 분류

파이로 공정으로부터 발생할 것으로 예상되는 방사성폐기물은 크게 장반감기 폐기물과 단반감기 고방열폐기물로 분류할 수 있으며, 장반감기를 가지는 폐기물에는 TRU를 함유하고 있는 Metal 폐기물과 LiCl-KCl 공융용염에서 나온 Ceramic Waste, Off-gas에서 나온 (I, Tc) 고화체가 해당된다. 장반감기 폐기물 중 앞의 두가지 폐기물은 비교적 낮은 열량을 지니고 있다는 장점 때문에 나중에 지하 처분장을 설계할 경우에 열부하를 상당히 줄일 수 있는 장점이 있다. 따라서 금속폐기물과 Ceramic waste는 처분대상으로 분류된다.

2.2 금속폐기물

금속폐기물은 공정 초기에 Chopping /Decladding 단계에서 핵연료에서 벗겨낸 피복관(hull)이 금속폐기물의 대부분을 차지한다. Electrorefining 공정에서도 금속 폐기물이 발생된다. Uranium을 회수하기 위한 정련공정에서 용융염에 녹지 않는 불순물 (주로 Noble Metal)이 발생되며, 폐기불순물 (Anode sludge)은 Hull 폐기물과 마찬가지로 용융염 세척을 거친 후에 금속폐기물에 포함된다. 또한 최종 Metal waste에는 피복관 및 사용후핵

연료 해체시에 발생된 Stainless steel 격자 등이 포함된다. 최종 Metal waste에는 소량이지만 U, TRU 및 FP 등이 함유되어 있으므로 방사성폐기물로 분류된다. 금속 폐기물은 열발생은 적지만, TRU와 같은 장반감기 핵종이 있으므로 처분대상으로 분류된다.

2.3 기준 핵연료

금속폐기물의 방사능 계산을 수행하기 위하여 Pyroprocess를 수행하는 사용후핵연료는 초기농축도 4.5%, 방출연소도 55,000MWd/tU, 냉각기간 10년 연료를 기준으로 사용하였으며, 핵반응단면적 라이브러리는 17×17 KOFA XS Library와 구조물 각 구성품별로 생성한 Activation Library를 사용하였다.

2.4 금속폐기물 처분시스템

금속폐기물 처분시스템은 압축된 폐기물 블록, 폐기물을 직접 저장할 폐기물용기와 차폐 목적으로 폐기물용기를 저장할 처분용기, 그리고 처분용기 주변에 위치할 공학적 방벽으로 구성된다.

파이로 공정에서 발생한 금속폐기물은 압착된 디스크 형태(블록)로 만들어지며 스테인리스 재질로 제작되는 1개의 폐기물용기에는 7개의 금속폐기물 블록이 적재된다. 이후 콘크리트로 제작되는 MDP(Metal waste Disposal Package) 처분용기내에는 총 9개의 폐기물용기가 동일한 간격으로 저장되며, 9개의 폐기물용기를 저장하고 있는 MDP는 MDT(Metal waste Disposal Tunnel)에 3단으로 적재되게 된다.

2.5 선량평가

금속폐기물의 핵종별 구성을 결정하기 위하여 원자로로부터 방출된지 40년이 지난 시점에서의 금속폐기물 종류별 질량 및 전체 비율을 구하였다. 7개의 금속폐기물 블록(40.3 kg)을 담고 있는 1개의 폐기물용기(282.1 kg)에 대한 금속폐기물의 44개 에너지그룹별 총 광자생성을 및 중성자생성

율은 ORIGEN-ARP 5.0을 이용하여 계산 각각 5.11×10^{11} (photons/sec), 7.77×10^2 (neutrons/sec)값을 구하였다. 선량환산인자는 ICRP-74에서 권고하는 값을 사용하였다. 위에서 구한 금속폐기물의 핵종조성 및 방사선의 생성율을 바탕으로 MCNP를 이용하여 폐기물용기의 상·하부 및 측면에서의 선량평가를 수행하여 아래 표1에 나타내었다.

선량평가 결과 모든 방향에서 피폭선량이 10 rem/hr정도 계산되었다. 중성자의 경우에는 중성자를 방출할 수 있는 핵종인 우라늄 및 TRU들의 양이 전체 파이로 공정 중에서 금속폐기물쪽으로 물어나오는 양이 매우 적기 때문에 상대적으로 아주 작은 선량으로 계산되었다. 감마선의 경우에는 인코넬 718 그리드에 의한 선량이 지배적인 것으로 나타났다.

9개의 폐기물용기를 포함하고 있는 처분용기(MDP)에 대한 선량평가를 수행하여 역시 표1에 나타내었다. 평가결과 총 9개의 폐기물용기로부터 발생하는 방사선에 의해서 처분용기 콘크리트 표면 밖으로 방출되는 방사선은 1개의 폐기물용기 표면 선량과 비슷하며, 이는 콘크리트의 반가층(half value layer)이 약 4.5~6.0 cm 임을 감안하면 10 cm 두께를 갖는 처분용기에 대해서 납득할 만한 수치이다. 방사선 차폐 측면에서 처분용기에 대한 차폐를 더욱 보강하면 좋겠지만, 처분터널 내에서 처분용기를 3단으로 적재할 경우 작업장비가 견겨될 무게 증가를 고려하여 추가적인 차폐는 곤란할 것으로 판단된다.

마지막으로 처분용기를 3월 3단으로 적재한 후 주위를 벤토나이트와 콘크리트로 덮는 형태의 공학적 방벽에 대한 흡수선량평가를 수행하였다. 이 경우에 처분용기와 가장 가까운 위치에 있는 최내각 벤토나이트 1 cm 층이 받는 흡수선량을 계산하였으며 결과를 표1에 나타내었다. 계산결과 이 값은 벤토나이트의 방사화분해를 야기시킬 수 있는 1 Gy/hr [1]보다 훨씬 낮은 값이므로, 전체적인 금속폐기물 처분시스템이 방사선적 안전성을 갖고 있다고 판단된다.

Table 1. Dose evaluation result

대상	위치	감마선량	중성자 선량	합계	단위
폐기물 용기	상부	8.08E+00	3.67E-06	8.08E+00	rem/hr
	측면	1.11E+01	6.07E-06	1.11E+01	
	하부	9.39E+00	4.36E-06	9.39E+00	
처분 용기	상부	1.30E+01	3.04E-6	1.30E+01	rem/hr
	측면	2.20E+01	4.41E-6	2.20E+01	
	하부	1.62E+01	4.34E-6	1.62E+01	
완충재	측면	2.21E-02	5.09E-10	2.21E-02	Gy/hr

3. 결론

파이로공정에서 발생된 금속폐기물을 처분하기 위하여 새롭게 설계된 처분시스템에 대한 예비선량평가를 수행하였으며, 평가결과 공학적방벽인 완충재가 흡수하는 방사선량이 안전성 기준보다 훨씬 낮은 값을 나타내었으므로 이 시스템은 처분의 방사선적 안전성을 확보하고 있음을 알 수 있었다.

4. 참고문헌

- [1] SKB TR-99-06, 1999, Deep repository for spent nuclear fuel

하나로 폐기물의 주요 처분원가 분석

김성기

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

sgkim1@kaeri.re.kr

요 약

본 논문에서는 하나로폐기물을 처분 원가대상으로 설정하고 처분 단위모듈당 주요 원가를 추정하였다. 추정결과, 처분용기 직접재료비가 제일 많이 소요되며, 그 다음은 처분공 굴착비인 것으로 나타났다. 이러한 이유는 처분공 굴착은 발파공법이 아닌 그라인더로 굴착하는 정밀공법이기 때문에 굴착단가가 1,143,963원/m³으로 매우 비싸기 때문이다. 따라서 주요 원가동인의 비용 점유율은 처분용기 재료비가 44.7%, 처분공 굴착비가 27%로 나타났다. 그리고 처분터널 굴착비는 비교적 비용 점유율이 적은 2.3%로 계산되었다. 이러한 이유는 처분터널은 처분공과 달리 발파기법으로 굴착하기 때문에 굴착단가가 처분공 굴착단가에 비해 저렴하기 때문이다.

1. 서론

하나로폐기물은 60번들 바스켓(1단)으로 처분용기에 넣어 처분한다. 바스켓의 제원은 외경 1,067 mm, 높이 1,022 mm이다. 본 연구에서는 표 1과 같이 주요 원가동인에 대한 단위모듈의 비용을 산정하였다. 여기서 주요 원가동인이란 처분비용에 많은 영향을 미치는 5가지 비용요인으로써, 처분터널 굴착비, 완충체인 벤토나이트 비용, 처분용기 직접재료비, 뒷채움비 그리고 처분공 굴착비를 의미한다[1]. 또한 단위모듈 비용이란 지하처분장에서 처분용기 하나를 거치시키기 위한 처분터널과 처분공 및 처분용기에서 소요되는 비용을 의미한다.

2. 본론

2.1 비용산정 방법

처분시스템의 소요비용을 계산하는 방법은 주로 공학적인 방법을 사용한다[2]. 여기서 공학적인 방법이란 처분시스템의 개념설계에 근거하여 각 부

문별 소요물량에 단가를 곱한 것을 합하여 비용을 계산하는 것을 의미하며 수식으로 표현하면 식 (1)과 같다. 만약 계산된 비용이 미래원가인 경우는 적정할인율을 사용하여 현재가치로 환산하는 균등원가(Levelized Unit Cost) 산정방법을 적용할 수 있다[3]. 균등원가 산정방법은 평균원가의 개념으로써 비용발생이 다른 시간에 나타날 경우에 각 대안들의 총비용을 현재시점으로 할인하여 비교할 수 있는 방법이다[4].

$$C_d = \sum_i M_i U_i \dots\dots\dots (1)$$

여기서 M_i 는 i 부문의 소요물량을 의미하며, U_i 는 단위당 원가를 의미한다.

2.2 비용산정 결과

하나로 폐기물 처분에 소요되는 단위모듈당 주요 원가동인의 비용은 표 1과 같다. 비용산정에 필요한 단가는 2009년말 “한국물가정보”로부터 추출한 값이다. 처분용기 재료비는 주철과 구리비용을 합한 금액이다. 하나로폐기물 처분용기의 내부용기는 주철로써 측면 두께가 9.5 cm이며 상하 두께는 18 cm 이다. 또한 처분터널의 뒷채움 비용은 단가 196,080원을 적용하여 11,145,187원으로 산정되었다. 뒷채움 비용이 굴착비용보다 비싼 이유는 표 1에서와 같이 벤토나이트 가격이 톤당 571,900원으로 비싸기 때문이다.

Table 1. 단위모듈의 비용 산정 결과

처분터널		처분공	
간격[m]	40	간격[m]	4
규모[cm]	W 390 x H 410	규모[cm]	D 208 x H 799
단위모듈 부피[m ³]	57	단위모듈 부피[m ³]	27.1
단가[원/m ³]	46,334	단가 [원/m ³]	1,143,963
굴착비용 [원]	2,633,600	굴착비용 [원]	31,058,141
벤토나이트		처분용기	
부피[m ³]	16.64	규모[cm]	D 128 x H 144.5
		주철중량 [kg]	6,699
		주철단가 [원/kg]	2,700
물량 [ton]	33	주철비용	18,087,792
단가 [원/ton]	571,900	구리중량 [kg]	1,200
비용 [원]	18,747,340	구리비용 [원]	33,241,685
		직접재료비 [원]	51,329,477

3. 결론

하나로에서 발생되는 폐기물을 처분하기 위한 주요 원가는 그림 1에서와 같이 처분용기 직접재료비가 가장 많이 소요되는 것으로 나타났다. 이러한 이유는 외부용기의 재료비에 있다. 즉, 처분용기의 상하 두께 3 cm는 순동판으로 제작하지만 측면 두께 1 cm는 구리분말로 제작하기 때문이다. 비용 산정 결과, 구리분말과 순동판 비용은 각각 25,655,557원과 7,586,128원으로 계산되었다. 여기서 구리분말 비용이 많은 이유는 구리분말 가격이 50,000원/kg으로 비싸기 때문이다.

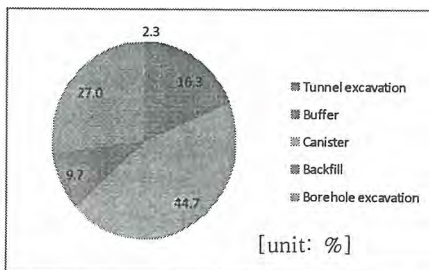


Fig. 1. 단위모듈의 주요 원가동인에 대한 비용 비율

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력증강기 연구

개발비의 지원으로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

- [1] S.K. Kim, M.S. Lee, H.J. Choi, J.W. Choi, Tai-Wan, Kwak, 2009. Progress of a cost optimization for an HLW repository in Korea, Progress in Nuclear Energy 51(2009), pp. 401-408.
- [2] E. S. Hwang, 2005. Accounting Theory and Concept, pp. 337-368.
- [3] Horngren C. T, Foster G. and Datar S. M, 1994. Cost A [unit: %] Volume 8, Prentice-Hall Press, USA, pp 49-55.
- [4] AACE, 2004. Skills & Knowledge of Cost Engineering- Section 6, AACE International Press, West Virginia, USA, pp. 27.1-7.

Cam-Clay Model을 적용한 벤토나이트 물성 해석

김현아, 이민수, 이종열, 최희주
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동
it-k2@hanmail.net

1. 서론

현재 개발중인 A-KRS의 공학적 방벽(EBS)이 단층작용을 받았을 경우 거동을 예측하기 위해, 일본 JAEA와의 상호공동연구의 일환으로 전단시험기(Fault Test Machine)를 활용하여 축소모델로 전단시험을 수행할 계획이다. 따라서 실제 전단시험을 수행한 결과와 전산모사를 통한 결과를 비교검토 함으로써 수치해석 결과의 신뢰성을 높일 수 있다. 또한 거동이 복잡한 벤토나이트의 경우 Model에 따른 비교를 통해 좀 더 정확하게 거동을 모사하는 Model을 선택함으로써 신뢰성을 더욱 향상시킬 수 있다. 그러나 현재 국내실정에 맞는 경주벤토나이트에 대한 실험이 미미하게 이루어지고 있어 충분한 검토는 이루어지지 못했다. 또한 실험방법 또한 검증되지 않은 상황에서 정확한 결과를 내기는 어려울 수 있다. 따라서 현재까지 진행되었던 국내실험결과를 바탕으로 Model에 따른 물리적 변수를 도출하고 간단한 해석을 통해 실험결과와 거동과 수치해석 결과를 비교해 보고자 하였다. 이미 재료에 대한 해석은 Drucker-Prager Model을 적용 중에 있으나, Cam-Clay Model에 대한 해석은 국내에서는 이루어진 적이 없다. 본 보고서에서는 Cam-Clay Model의 물리적 변수를 구하여 ABAQUS를 이용한 해석에 적용하는 방법에 대해서 기술하고자 한다.

2. 본론

2.1 Cam-Clay Model

Cam-Clay Model의 물리적 변수를 구하기 위해서는 최소한 두가지의 시험, 압밀시험과 삼축압축시험이 필요하다. 압밀시험은 참고문헌[1]의 압밀시험결과를 이용하였고, 삼축압축시험은 참고문헌[2]의 삼축압축시험 결과를 이용하였다. 그러나 압밀시험에 사용한 시편과 삼축압축시험에 사용한 시편의 밀도에 차이가 있어 이에 따른 신뢰

도가 떨어진다. 또한 시험조건은 배수압밀시험으로 공극압이 발생하지 않는 경우로 정의하였다.

2.1.1 압밀시험에 의한 변수

압밀시험에 사용된 벤토나이트는 건조밀도가 1.8 g/cm^3 , 초기간극비가 0.57이고, 초기화도가 98%이다.

Table 1. 경주벤토나이트의 압밀특성

Pressure (kN/m^2)	Settlement (mm)	Void ratio	Remarks
200	0.010	0.5658	Loading
400	0.046	0.5630	"
800	0.142	0.5555	"
1,600	0.475	0.5293	"
800	0.451	0.5313	Unloading
200	0.402	0.5351	"

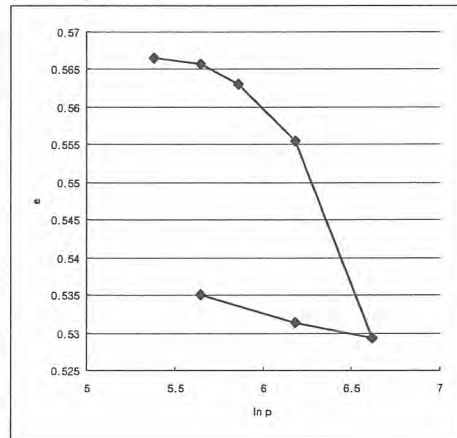


Fig. 1. 압축벤토나이트의 간극비와 압력사이의 관계

Cam-Clay모델의 항복면은 다음과 같이 정의된다.

$$\frac{1}{\beta^2} \left(\frac{p}{a} - 1 \right)^2 + \left(\frac{t}{Ma} \right)^2 - 1 = 0 \quad (1)$$

여기서, t 의 경우 $K=1$ 이고, $\sigma_2=\sigma_3$ 일 경우 q 와 같게 된다. 여기서 M , β , a 가 정의 되어져야 하

며, a_0 를 정의하기 위해서는 초기항복면의 크기 a_0 를 정의하여야 한다. a_0 는 다음과 같이 정의된다.

$$a_0 = \frac{1}{2} \exp\left(\frac{e_1 - e_0 - x \ln p_0}{\lambda - x}\right) \quad (2)$$

팽윤압 p_0 , λ , x , 초기공극율 e_0 , e_1 등이 필요하게 된다. 팽윤압은 0.217 MPa, 초기공극율은 0.5666으로 초기조건으로 적용된다. 압밀시험 중 적용된 압력과 체적변화의 관계, 공극율을 측정하여 logarithmic bulk moduli λ , x 를 구할 수 있다. 그림 1과 같이 $\ln p$ - e 선도로부터 소성영역 λ 탄성영역 x 와 e_1 을 구할 수 있다. 여기서 e_1 은 기울기 λ 에 의한 공극율 축의 절편으로 생각하면 된다. 이것은 변형경화를 고려하기 위해서 Exponential form을 이용할 때 필요하다. 진흙이나 벤토나이트 등은 항복용력이 잘 나타나지 않아 유용하다.

삼축압축시험을 통해 M 과 β 를 정의할 수 있다. 삼축압축시험에 사용된 시편은 밀도 1.6 g/cm^3 , 함수율은 20%이다. 압밀시험에 사용된 시편과는 차이가 있다. M 은 p - q 선도에서 파괴점들의 기울기로 구할 수 있으며, 그 값은 1.33이었다. β 는 높은 구속압에서의 삼축압축시험을 통해 구할 수 있으나 현재 실험결과가 없어 1.0으로 가정한다.

2.2 수치해석 결과

해석대상은 압밀시험에 사용된 시편으로 도출된 물리적 변수를 이용하여 ABAQUS를 이용하여 수행하였다. 시편의 크기는 직경 50mm, 높이 20mm인 원통형이다. 하중조건과 경계조건은 시험조건과 동일하도록 하였고, 1.6 MPa까지 압력을 가하여 해석결과를 그림 2와 그림 3에 나타내었다.

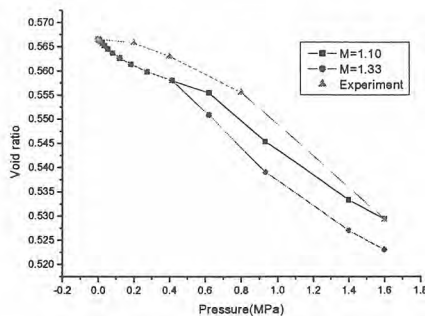


Fig. 2. 공극비 변화

현재 M 값을 1.33으로 하였을 경우 해석 중 경고 메시지가 나오며, 초기항복크기를 조정하여 해석이 진행된다. M 은 파괴면을 나타내는 값으로 초기항복면의 크기와 같이 초기 항복면을 결정하게 된다. 따라서 M 값을 조정하면 해석결과에 영향을 미치며, M 을 1.1로 하여 해석하였을 때 시험결과와 더 근접하게 되었다.

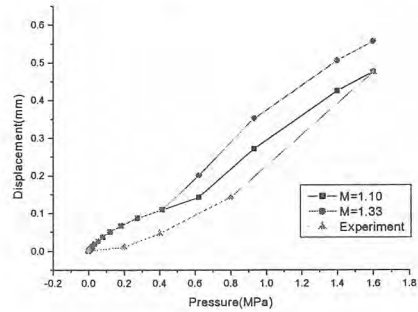


Fig. 3. 하중 방향 변위

참고로 M 을 SKB에서 사용하는 0.36으로 했을 때, 해석 중 초기항복크기를 조정하지 않았고 시험결과와는 차이를 보였다.

3. 결론

수치해석 결과가 입력변수에 따라 차이가 큰 것을 확인하였다. 특히 거동이 복잡한 경우는 입력변수를 얼마나 정확하게 도출하느냐에 따라 정확도가 달라질 수 있다. 그러므로 국내산 벤토나이트에 대한 정교한 물성 시험을 통한 정확한 입력변수의 확보가 요구되었다.

4. 참고문헌

- [1] 조원진 외 3인, “고준위폐기물처분장 완충재용 국산 벤토나이트 및 벤토나이트-모래 혼합물의 물리화학적, 광물학적 및 역학적 특성” KAERI/TR-1388/99.
- [2] 정상섭, 김도현, “A-KRS 공학적방벽 설계 입력변수 측정 기술 개발” 연세대학교 공과대학 사회환경시스템공학부 지반공학연구실, 2009.2.
- [3] ABAQUS Manual

지하처분연구시설(KURT) 운영 현황

박정화, 조원진, 권상기

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150

nihpark@kari.ac.kr

1. 서론

한국원자력연구원 내에 건설된 지하처분연구시설(KAERI Underground Research Tunnel, KURT)은 고준위폐기물 처분 기술의 현장실증 연구를 위한 국내 유일의 지하연구시설이다. KURT는 2004년 부지조사 및 설계를 거쳐 2005년 착공되었으며 2006년 11월 건설을 완료하고 시설운동을 시작하였다. 시설 운영 개시 이후에도 여러 부대시설을 지속적으로 보강하여 현장실험 기초 환경을 구축하는데 노력을 기울여왔다. 현재는 환기시스템, 지하수 배수시스템, 조명시스템, 보안 및 안전시스템, 통신설비 및 배전설비 등을 갖추어 현장실증 실험을 효율적이며 안전하게 수행할 수 있도록 하고 있다. KURT에서 공학적 방벽 성능 실증연구, 지하수 및 지하화학 특성평가, 핵종이동 특성규명 등의 연구가 원활히 진행되고 있다. 이를 통해 고준위폐기물 처분과 관련한 처분 시스템 및 안전성 평가에서 요구되는 안전성(safety), 안정성(stability), 기술적 타당성(technical feasibility) 등을 실증하고 있다. KURT는 현장 실험 외에도 고준위폐기물 기술 개발에 대한 홍보 역할도 수행하고 있다. 여기서는 지난 3년 동안의 KURT 시설 및 운영현황과 고준위 폐기물 처분 연구에 대한 홍보활동을 소개하고자 한다.

2. 본론

2.1. 시설 현황 및 운영

KURT는 길이 180m의 진입터널과 진입터널 끝 부분에 양쪽으로 위치한 45m, 30m의 연구 모듈(research module)로 구성된다. 발파에 의해 건설된 총길이 255m, 높이 6m, 넓이 6m의 마제형(horse-shoe shape) 터널은 하향경사도(-10%)를 가지고 터널 방향을 산정상부로 향하게 함으로써 효과적으로 심도를 확보할 수 있도록 설계되어 있다.

비교적 지하수 유입이 적은 45m 길이의 연구모듈 I에서는 고준위폐기물 처분장 근계영역(near-field) 암반에 대한 현장실험을 주로 수행하고 있

다. 구체적으로 1)현장 열실험 장치(single-hole heater test) 설계, 제작 및 설치(그림 1), 2)향후 완충재와 암반을 고려한 현장 열-수리-역학적 현장시험 준비와 이와 관련되는 DECOVALEX-2011 국제공동연구 참여, 3)KURT 내 시추공을 이용한 Goodman Jack, BIPS, 수압시험, Georadar을 이용한 손상대 규모 평가, 4)지표면 형상, 현지 응력, 터널 특성을 고려한 손상대 영향 평가를 위한 3차원 해석 기법 개발 등을 수행하고 있다.

지하수 유입이 상대적으로 많은 30m 길이의 연구 모듈 II에서는 KURT 시설부지의 수리·지화학 특성 규명 및 부지특성모델 최적화를 위하여 1)장심도 1,000m 시추조사 및 수리·지화학 특성자료 DB 구축, 2)수리·지화학·물리검층·탐사 결과를 종합한 geological model 구축, 3)다공성 연속체 및 분리 단열망 개념 지하수유동 시뮬레이션 등을 수행하고 있다(그림 2).

또한 KURT 현장 암반 단열을 통한 핵종 이동 및 지연특성 규명을 위해 암반 단열을 통한 용질 이동 특성 분석 및 광물/미생물 상호작용에 의한 미생물의 핵종 수착 영향 평가도 수행되고 있다.



Fig. 1. 연구모듈 I에서 수행되는 시추공히터시험

현장실험 수행에 필요한 부대시설들로는

1)환기시스템: 급기 및 배기가 독립적으로 운영될 수 있으며 직경 550mm의 Spiral steel Duct가 약 180m 길이로 설치되었다.

2)전기시설: 전력 300KVA를 공급할 수 있게 고압간선을 지중매설하고, 터널 내에는 케이블 트레이를 설치하여 220V를 공급하였다.

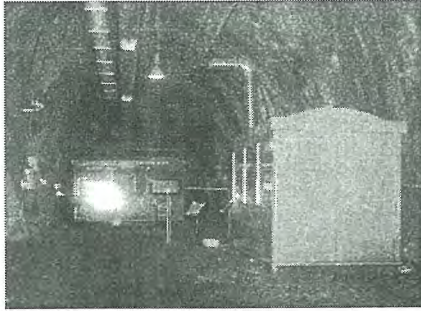


Fig. 2. 연구모듈 II에서 수행되는 지하수시험

3) 인터넷 및 통신: 인터넷 연결이 가능하도록 14개소에 인터넷 단자를 설치하였으며 6개소에 전화기를 설치하였다. 또한 KTF, SK, LG 핸드폰 증폭기를 설치하여 터널 내에서도 통화가 가능하도록 하였다.

4) 보안시스템: 출입문에 출입통제시스템을 설치하여 신분증으로 출입할 수 있도록 하였으며 CCTV를 설치하여 터널 내에서의 상황을 상시 관찰할 수 있도록 하였다.

5) 배수시설: 터널 벽면과 시추공을 통해 일일 평균 약 20-25톤의 지하수가 유입되고 있다. 유입된 지하수는 진입터널 끝에 설치된 수조(sump pit)에 모여지며 일정 수위에 도달하면 자동으로 작동되는 펌프에 의해 터널 밖으로 배수된다. 수조 옆에 펌프를 이중으로 설치하여 비상 상황에 대비하였으며 펌프 작동시 운영자 핸드폰에 자동으로 통보되도록 함으로써 펌프 고장에 따르는 사고에 대비할 수 있도록 하였다.

2.2. 홍보현황

지하처분연구시설을 준공한 후에 내외국인의 관심이 높아 각계각층에서 많은 방문자들이 왔기 때문에 KURT를 체계적으로 설명하여 고준위 폐기물 처분에 대한 국민적 이해를 증진시킬 기회로 만들 필요가 있었다. KURT 준공 후 2007년부터 2009년 12월 현재까지 3년 동안 총 2604명(외국인 포함)이 방문을 하였다. 이들은 국가기관 39명, 국가관련기관(위원회, 군인 등) 430명, 언론 32명, 전문직(교수포함) 141명, 학생(초.중.고등학교 포함) 930명, 시민단체 347명, 지역주민 623명 및 외국인 52명으로 그림 3과 같은 분포를 보이고 있다. 국가 정책 입안자 및 원자력분야 전문가들과 외국의 전문가들이 한국에 유일하게 존재하는 고준위폐기물 기술개발 현장실험시설에 관심

이 높았으며, 시민단체 및 지역주민과 학생들의 높은 관심을 이끌어 고준위 폐기물에 대한 국민적 이해 증진의 계기가 되었다. 한편 학술활동으로는 지하처분연구시설 활용에 관한 국내 워크샵을 2회 개최하였으며, 2009년 4월에는 지하연구시설 활용에 관한 국제 워크샵을 개최하여 국내외 전문가와 현장시험에 관한 경험을 공유하였다.

3. 결론

지하처분연구시설은 고준위폐기물 처분 기술의 현장실증연구를 할 수 있는 국내 유일의 시설이다. 2006년 11월 완공된 이 시설에서는 공학적 방벽성능실증연구, 심부 지하수 및 지화학 특성평가, 핵중이동특성규명 등의 현장 실증 연구가 진행되고 있다. 처분시스템의 개발 및 안전성 평가에서 요구되는 입력 자료 생산과 처분기술의 실증을 위해 필수적인 현장실험이 차질 없이 진행되고, 지하실험실 운영 중 안전 관리에 합당한 환경조건을 유지하기위해 터널 내부의 환경 및 안전점검에 필요한 장치들을 설치하여 운영하고 있다. 더불어 국내외의 각계각층의 방문자에게 KURT를 개방하여 현장시험 상황을 직접 관찰할 수 있도록 함으로써, 폐기물 처분에 대한 국민적 이해 증진과 공감대를 형성하는데 기여하고 있다.



Fig. 3. KURT 방문객 분포도



Fig. 4. KURT 국제 워크샵 개최

갈슘-벤토나이트의 팽윤거동: 염분의 영향

임진규, 이재완, 조원진, 권상기

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

odinlig@naver.com

1. 서론

고준위폐기물처분장에서 벤토나이트 완충재의 중요한 방벽기능 중 하나는 밀봉역할이다. 처분장 내 공극을 최소화하고 주위 암반의 균열을 메워 지하수나 유출 핵종의 이동을 최대한으로 지연시키는 역할을 한다. 벤토나이트 완충재가 방벽재로서 밀봉역할을 제대로 하기 위해서는 팽윤능(swelling capacity)이 커야 하는데, 완충재의 팽윤능은 벤토나이트의 광물학적 특성, 공극수의 물리·화학적 특성, 처분장 적용시 공학적 조건 등에 의해 좌우된다. 그러므로 처분장 완충재의 설계 및 성능평가를 위해서 벤토나이트의 팽윤거동에 대한 처분환경인자의 영향을 규명하는 것은 매우 중요하다.

우리나라는 고준위폐기물처분장을 임해지역에 건설할 가능성이 높으며, 이 경우 처분장으로 유입되는 지하수는 해수와 처분장 구조물과의 상호작용으로 인해 그 속에 다량의 염분을 함유하게 되고, 그 결과 완충재로 사용되는 벤토나이트의 팽윤능이 영향을 받을 가능성 있다. 문헌에 의하면, 벤토나이트완충재 공극수 중의 염분이 많아지면, 즉 염도가 증가하면 팽윤능이 떨어져 밀봉능이 크게 감소하는 것으로 알려져 있다.

이와 관련하여, 본 연구에서는 국산 벤토나이트를 대상으로 여러 가지 농도의 NaCl수용액, CaCl₂수용액, MgCl₂수용액, KCl수용액 및 우리나라 근해 해수에 대한 팽윤지수(Swell Index)의 변화를 규명하고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험

실험에 사용된 벤토나이트는 경주산 벤토나이트로 원광을 분쇄 한 후 200 메쉬(mesh) ASTM (American Society for Testing and Materials) 망체를 통과한 것을 사용하였다. 광물분석 결과, 벤토나이트는 Ca-벤토나이트로서 몬모릴로나이트

(montmorillonite, 70 %)와 장석(feldspars, 29%)을 주성분으로 하고, 소량의 석영(quartz, ~1%)을 포함하였다. 화학조성은 SiO₂ 56.8%, Al₂O₃ 20.0%, Fe₂O₃ 6.0% 및 기타 미량성분으로 되어 있다. 벤토나이트의 주요 교환가능 양이온은 Ca²⁺이고, 양이온교환능은 57.6 meq/100g이다.

벤토나이트의 팽윤지수는 KS K 0764와 ASTM D 5890에서 규정된 시험방법을 준수하여 실험하였으며 그 방법은 다음과 같다. 시료를 105±5℃에서 24시간 건조한 후 2±0.001g의 시료를 저울에 달고 100ml 실린더에 90ml의 수용액을 채운다. 시약 손가락을 사용하여 시료를 한번에 0.1g이 넘지 않게 떠서 실린더에 들어있는 수용액 표면 전체에 걸쳐 약 30초 이상의 간격으로 뿌린다. 최소 10분 이상 시간을 두어 시료가 젖은 후 충분히 수화되고 실린더의 바닥에 가라앉도록 방치한다. 전술한 바와 동일한 방법으로 2g의 시료를 단계적으로 실린더에 넣는다. 마지막 입자까지 가라앉으면 실린더에 10ml의 수용액을 더 채워서 100ml가 되도록 한다. 실린더를 교란되지 않게 24시간 동안 두었다가 팽윤지수를 측정한다. 본 연구에서는 탈염수와 NaCl 수용액, CaCl₂ 수용액, MgCl₂ 수용액, KCl 수용액, 해수를 실험용액으로 사용하였고, NaCl 수용액, CaCl₂ 수용액, MgCl₂ 수용액, KCl 수용액의 농도는 각각 0.04M과 0.4M 2종류로 조제하여 사용하였으며, 해수는 동해수를 사용하였다.

2.2 팽윤지수에 대한 염분 영향

본 연구를 통해 실험에서 측정된 팽윤지수는 Fig. 1과 같다. 그림에서 보는 바와 같이, 탈염수에서 국산벤토나이트의 팽윤지수는 10ml/2g의 값을 보였다. NaCl 수용액을 사용한 실험에서는 저농도의 경우 탈염수보다 높은 팽윤지수를 보였으며 고농도에서는 오히려 낮은 팽윤지수를 보였다. 반면에, CaCl₂ 수용액과 MgCl₂ 수용액을 사용한 경우에는 저·고농도 모두 탈염수보다 낮은 팽윤지수 값을 보였고, 저·고농도 간의 팽윤지수의 차

는 무시할 정도였다. KCl 수용액의 경우에는 저농도 수용액에서는 탈염수에서의 팽윤지수와 거의 비슷한 정도의 값을 보였으나, 고농도에서는 네 가지 염 수용액 중 가장 낮은 팽윤지수 값을 보였다. 동해수에 대한 국산벤토나이트의 팽윤지수는 평균 6.9mL/2g의 값으로, 해수 중 NaCl 수용액이 약 0.4M인 점을 고려하면 순 NaCl 수용액에서의 팽윤지수보다는 낮은 값을 나타내고 있다.

3. 결론

Ca-벤토나이트의 팽윤거동에서 염분에 따른 영향을 알아보기 위해 여러 수용액에 대한 벤토나이트 팽윤지수 시험을 실시한 결과 모든 수용액에서 농도가 높아질수록 팽윤지수는 감소하였다. 하지만 수용액의 염류에 따라 그 감소율은 각각 다른 값을 보였다. 1가인 Na와 K의 염류 경우에 저농도에서는 탈염수에서의 팽윤지수 값 보다 더 높은 값을 보이거나 유사한 값을 보이다가 고농도에서 크게 감소된 반면에 2가인 Ca나 Mg의 염류 경우에는 저농도에서도 탈염수에서의 팽윤지수 값 보다 현저하게 적은 값을 보여 농도에 따른 감소율이 작았다. 해수의 경우 주 성분은 NaCl이지만 다양한 염류를 함유하고 있어 NaCl 수용액의 팽윤지수와는 다른 값을 보였다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] Test methods for swell index of clay mineral component of geosynthetic clay liner, ASTM D 5890, 1995

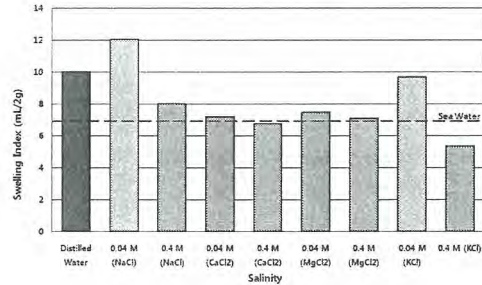


Fig. 1. Swell index Result

지하연구시설(KURT)에서 비수착성 추적자를 이용한 현장 용질이동 실험

이태엽, 이재광, 박정균, 백민훈

한국원자력연구원 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

tylee@kaeri.re.kr

1. 서론

현재 우리나라는 방사성폐기물을 내부식성 용기에 담아 심부 암반층에 처분하여 생태계로부터 안전하게 격리시키는 것을 처분방법으로 고려하고 있다. 심부 지하환경에 방사성폐기물을 처분할 경우 장시간 동안 지하수와 반응하여 방사성 핵종이 지하 환경으로 유출될 수 있다. 유출된 핵종은 암반 단열의 지하수 흐름을 따라 다양한 물리적 또는 화학적 자연과정에 영향을 받으며 생태계로 이동하게 된다. 심부 지하환경에서 핵종의 이동 및 지현현상을 규명하기 위하여 다양한 실험실 규모의 연구가 수행되어져 왔으나, 지하환경과 동일한 조건에 대한 이동 및 지현현상에 대한 정보를 얻기가 어려웠다[1]. 따라서, 본 연구에서는 복운모 화강암으로 이루어진 KURT(KAERI underground research tunnel)에 존재하는 단열을 대상으로 용질 이동의 특성을 규명하고자 하였다. 이를 위하여 화학적으로 암반 단열면과 반응성이 적은 비수착성 용질을 사용하여 현장 실험을 수행하였으며 용질이동 모델을 개발 및 적용하였다.

2. 본론

2.1. 실험 방법

현장 용질이동 실험은 KURT 시추공 중 단열의 연결성이 확인된 YH 3-1과 YH 3-2 시험공에서 수행되었다. 지하수위 구배에 따라 YH 3-1을 주입공으로 하고 YH 3-2를 회수공으로 설정하였다. 비수착성 용질인 eosin B와 fluorescein sodium을 추적자로 사용하였으며 일정한 시간 간격으로 회수한 지하수 시료 중 용질농도를 UV-vis 분광광도계로 측정하였다. 지속적으로 지하수의 특성변화를 측정하기 위하여 pH, 산화환원전위, 용존산소, 전기전도도, 온도 그리고, 지하수 수위 등을 실시간으로 모니터링 하였다. 지하매질에서 수리적 흐름장의 생성과 이류, 분산, 확산 등 이동 메커니즘을 반영하여 지하수 유동 및 오염물질 이동을

계산할 수 있도록 자체개발한 SIMIGF 프로그램을 이용하여 현장 실험 결과를 모사하였다.

2.2. 현장 용질 이동 실험

Eosin B를 추적자로 주입하였을 때, 초기농도에 대한 유출농도비인 C/C_0 의 최고값은 추적자 주입 후 약 1.7 시간 뒤에 4.6×10^{-4} 로 나타났으며, 총 회수율은 약 10%로 확인되었다(Fig. 1). Fluorescein sodium을 추적자로 이용한 용질 이동 실험은 초기농도에 대한 유출농도비인 C/C_0 의 최고값은 추적자 주입 후 약 1.8 시간 뒤에 4.8×10^{-4} 로 나타났으며, 회수율은 약 11%로 확인되었다(Fig. 2). Eosin B와 fluorescein sodium 등의 비수착성 용질은 암반 단열면과의 반응이 거의 없기 때문에 2 시간 이내에 거의 비슷한 농도로 빠르게 유출되었으며 이때의 총 회수율도 유사하게 나타난 것을 알 수 있다.

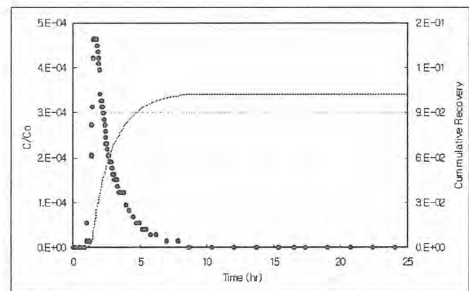


Fig. 1. Breakthrough and recovery curves of eosin B.

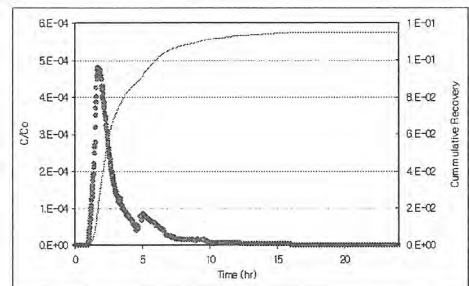


Fig. 2. Breakthrough and recovery curves of fluorescein sodium.

2.3. 용질 이동 모델

현장 용질이동 실험결과를 평가하기 위하여 SIMIGF 프로그램을 이용하여 KURT에서 비수착성 용질의 이동 실험결과를 모사하였다. Eosin B, fluorescein sodium 등의 비수착성 용질은 암반 단열면과 반응성이 매우 적기 때문에 이류작용만 있을 것이라 가정하였고, 이 때 유출곡선의 최고값은 약 1시간 정도 후에 $C/C_0=1.75 \times 10^{-3}$ 정도로 나타났다. 3시간 이후에는 작지만 정점들이 나타나고 있다. 이는 핵종 이동이 단일 경로만으로 이동하지 않고 미세절리와 같은 다른 경로를 통해 천천히 이동하는 것으로 생각할 수 있다. 용질이 이동 중에 암반매질내로 매질확산이 이동할 경우를 가정하여 이동메커니즘에 확산계수를 각각 $D_c=3 \times 10^{-11} \text{m}^2/\text{s}$, $D_c=3 \times 10^{-12} \text{m}^2/\text{s}$ 로 고려하여 계산하였을 때, 유출곡선의 최고값이 감소하였고, 분산효과도 커졌으며 다른 정점들은 나타나지 않았다(Fig. 3).

실험값으로부터 구한 비수착성 용질의 정점크기가 0.0017 이하 수준이고, 유출곡선의 꼬리가 길며 꼬리부분에 작은 정점들이 나타나는 경향을 보이는 것은 암반단열 흐름장에서 핵종들이 단일 경로를 따라 이동하지 않고, 일부는 먼 거리를 우회하여 천천히 유출 흐름영역에 진입하는 것으로 생각할 수 있다. 또한 일부 우회한 비수착성 용질이 유출흐름 영역에 들어오지 못하고 외부 흐름장 영역에 포섭된 가능성도 존재한다[2].

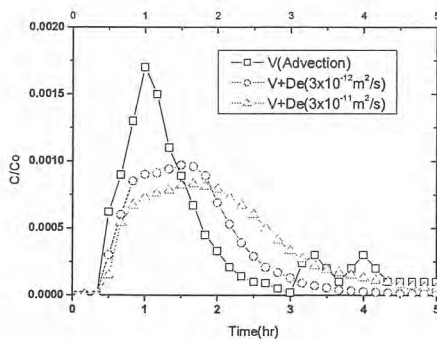


Fig. 3. Effect of diffusion on breakthrough curves simulated by SIMIGF program.

3. 결론

한국원자력연구원의 지하연구시설에서 비수착

성 용질을 추적자로 하여 암반단열을 통한 현장 용질이동 실험을 수행하였으며, 실험결과를 평가하기 위하여 용질이동 모델을 개발 및 적용하였다. 암반 단열과 반응성이 거의 없는 비수착성 용질인 eosin B와 fluorescein sodium은 용질주입 후 2시간 이내에 최고 농도 유출이 확인되었다. 현장 실험을 모사하기 위하여 자체개발한 SIMIGF 프로그램을 이용하여 실험결과를 모사한 결과 추적자들은 상당히 넓은 범위의 단열면에서 분산되어 이동하는 것으로 파악되며 일부는 먼 거리를 우회한 것으로 판단된다. 본 연구결과들은 향후 수착성 용질 및 콜로이드 이동 및 지연현상에 대한 현장실험의 기초자료로 활용될 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

- [1] C.K. Park, W.H.Cho, P.S. Hahn, Transport properties of sorbing contaminants in a fractured granite under oxidizing conditions, *Kor. J. of Chem. Eng.* 23, 741-746 (2006)
- [2] J. Hadermann, The Grimsel migration experiment : integrating field experiments, laboratory investigations and modelling, *J. Cont. Hydrol.* 21, 87-100 (1996)

KURT내 심부시추공(DB-1)의 주요 단열구간별 지하수의 지화학 특성

김건영, 박경우, 류지훈, 고용권, 최종원

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

kimgy@kaeri.re.kr

1. 서론

심지층 처분개념에 있어서 지질학적 방벽인 암반에 분포하는 단열대는 지하수 유동로로서의 잠재성을 지니고 있으며, 이 경우 지하수는 장기간에 걸쳐 공학적 방벽을 부식 또는 침투하여 핵종을 생물권으로 유출 및 유동시키는 주된 매개체가 된다. 따라서 이와 관련된 단열대의 모암 및 지하수의 지화학적 특성연구가 방사성폐기물 처분장 안정성 평가에 중요한 과제중의 하나이다. 이에 대하여 한국원자력연구원에서는 연구원 부지내에 지하처분연구시설(KURT)을 확보하여 각종 심지층 처분 관련 시험을 수행하고 있다. 특히 2007년 10월부터 KURT내의 200m 시추공(DB-1)에 대한 확장을 시작하여 2008년 2월에 KURT내에 500m 심도의 심부시추공을 설치, 완료하였으며 시추 중 혹은 시추 이후, 단열구간에 따른 다양한 수리시험과 지화학 원위추 측정 및 시료채취를 성공적으로 수행함으로써 심부 지하수에 대한 수리·지화학 조사기술을 확보하게 되었다. 이번 연구는 KURT내 심부시추공(DB-1)의 주요 단열구간별 지하수의 지화학적 특성을 규명하기 위해 수행하였으며, 특히 심부시추공의 지하수 시료채취 및 장기모니터링과 관련된 지화학 데이터의 신뢰도 확보를 위한 지속적인 기술개발의 일환으로 수행된 결과이다.

2. 본론

2.1 심부시추

KURT내 500m 심도의 시추공(DB-1)을 확보하는 목적은 전체적인 KURT의 심도가 실제 500m 이상으로 예상되는 처분환경을 충분히 반영하지 못하는 단점을 보완하고, 처분심도까지의 단열암반의 수리적 특성을 시험하며, 처분심도의 수리·지화학적 환경 예비조사 및 지하수체계 변화에 대한 장기 모니터링 목적의 시험공을 확보하는데 있다. 아울러 확장된 심부시추공에 대한 구간

별 수리시험과 지하수 시료채취 및 지화학적 분석을 수행하여 심지층 처분환경의 수리/지화학적 특성을 규명하는 것이다. 여기에는 심부지하수의 체류시간 및 KURT내 주요 지하수 유동로의 물-암석반응관계 규명을 포함하며, 아울러 현장에서의 지화학 조사기술에 대한 신뢰도 확보를 포함한다.

2.2 시료채취 및 분석

지하수의 수리화학적 성분분석을 위한 현장 측정 및 시료채취는 시추공의 특정 단열 구간에 대하여 패커시스템을 이용하여 구간을 격리시킨 후 수행하였다. 시료채취시 심도별로 격리된 단열 구간에 대해 외부공기와의 접촉을 차단한 상태에서 연속적인 측정 및 시료채취가 가능하도록 자체 제작된 지화학 모니터링 및 시료채취 챔버를 사용하였다. 시료채취는 현장 측정 지화학 파라미터들이 안정된 이후에 시료를 채취하였다. 지하수의 주요 양이온 및 미량원소 분석은 ICP-AES 및 ICP-MASS를 이용하여 한국기초과학지원연구원 에서 분석하였다. 음이온은 IC를 이용하여 한국원자력연구원에서 분석하였다.

시료채취 및 지화학 분석은 크게 두 단계로 수행되었다. 첫번째는 기존 200m 심도의 시추공(DB-1)을 500m 심도로 확장하는 동안에 수행된 quick test와 확장 이후 시추공에서 얻어진 단열 자료분석을 통해 구분된 주요단열구간에 대해 정밀한 수리시험과 함께 수행된 detailed test이다. quick test의 경우 시추 수행중 단열대를 만날 경우 시추를 중단하고 해당 단열대에 대한 수리시험을 수행하면서 동시에 지화학 모니터링 및 시료채취를 수행하였으며, 아울러 일정 심도 구간별로 시추를 중단하고 수리·지화학 모니터링 및 시료채취를 수행하였다. quick test에 대한 모니터링 및 시료채취 구간은 KURT내 지표하 150~159m, 194~213m, 201~219m, 345~400m, 400~442m의 총 5개 구간이었다. detailed test의 경우 시추가 완료된 이후 시추공에서 BIPS 및 BHTV자료로

부터 얻어진 단열분석, KURT에서 수행된 물리탐사 및 정밀 시추코아 로깅결과들을 종합 분석하여 주요 단열구간이 정해졌다. 그 결과 도출된 최종 수리지화학 모니터링 구간은 3~25m, 43.5~59.5m, 92~116m, 156~159m, 183~194m, 201~226m, 234~244m, 279~293m의 총 8개 구간이었다. 단열분석결과 KURT내에서 지표하 300m 이하의 심도에서는 단열대의 빈도가 급격히 감소하며 수리전도도 역시 매우 낮은 값을 보여 이 구간에 대한 심부지하수의 지화학 모니터링이 약한 달간에 걸쳐서 수행되었으며 모니터링 이후 시료채취가 수행되었다.

2.3 지화학 특성

현장 지화학 측정 결과시 온도, pH, EC 등의 지화학 파라미터들은 수분~수시간 내에 안정화되었으나, 용존산소(DO) 및 산화-환원전위(Eh)의 경우에는 단열구간의 지하수량 등의 수리특성에 따라 수일의 시간이 소요되었다. DB-1 지하수들의 화학분석결과들을 파이퍼도에 도시하여 보면 대부분 Ca-Na-HCO₃ 유형에 속하며 반면에 KURT내에 설치되어 있는 기존의 100m이하 심도의 관측공들에서 채취된 지하수들은 대부분 Ca-HCO₃ 유형에 속한다(Fig. 1). 300m이하 심도의 심부지하수의 경우도 Ca-Na-HCO₃ 유형에 속한다. 따라서 심도가 깊어질수록 지하수내 Na 함량이 높아지는 경향을 갖는다. 심도에 따라 지화학 분석결과를 도시해 보면 pH의 증가와 산화-환원전위의 감소경향을 보여준다. 심도별 용존이온 분포 특성은 대체로 심도가 증가하면서 주요이온의 용존함량이 증가하는 경향을 보이며 특정 단열구간에서 높은 Cl 및 F함량을 보여준다. F함량의 경우 최대 5.5mg/L의 값을 보인다(Fig. 2). KURT 지하수에 대한 산소-수소 안정동위원소분석결과를 살펴보면 이들이 모두 강수기원임을 지시한다. 300m 심도 이하의 심부지하수의 pH 및 산화-환원전위는 각각 8.5와 -256mV로서 환원환경 및 심부지하수의 특징을 잘 반영하고 있다. 300m 심도 이하의 심부지하수에 대한 C-14분석결과 약 8.620년의 지하수 연대를 나타낸다.

3. 결론

KURT내 500m 심도의 심부시추공(DB-1)의 수리지화학조사를 통하여 지하수 주유동로로 추측

되는 두 개의 대규모 투수성 단열대가 150-159m와 200-218m 심도 구간에서 확인되었다. 300m 심도 이하에서는 단열빈도가 급격히 감소된다. 전체적으로는 심도에 따르는 pH 및 용존이온함량의 증가와 산화-환원전위의 감소경향을 보여준다. 300m 심도 이하의 심부지하수의 pH 및 산화-환원전위는 각각 8.5와 -256mV로서 환원환경 및 심부지하수의 특징을 잘 반영하고 있으며, C-14분석결과 약 8.620년의 지하수 연대를 나타낸다.

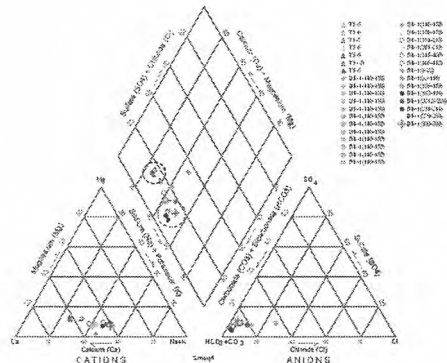


Fig. 1. Piper's diagram for the groundwater samples from the DB-1 borehole.

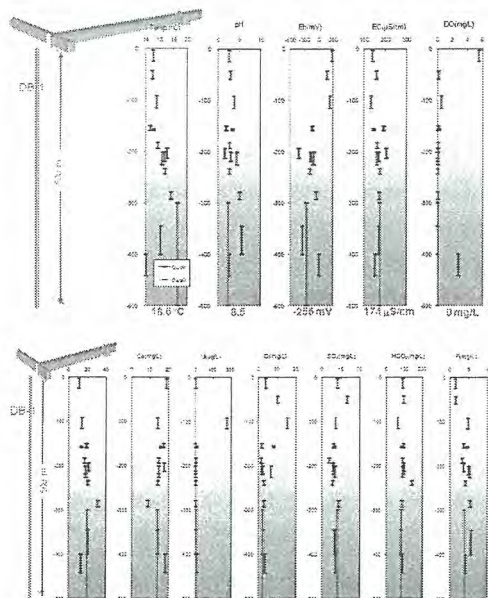


Fig. 2. Result of the hydrochemical monitoring during the quick test and detailed test.

Statistical properties of background fractures observed at the deep borehole in KAERI Underground Research Tunnel(KURT)

S.-H. Ji, D.H. Lee, K.W. Park

Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeokdaero, Yuseong, Daejeon, 305-353, Korea

shji@kaeri.re.kr

1. Introduction

According to the geological model of the KURT site, the hydrogeological units in the site were categorized to the hydraulic soil domains (HSDs), the hydraulic rock domains (HRDs) and the hydraulic conductor domains (HCDs). In this study, we analyzed the properties of background fractures observed at DB-1, which is a deep borehole located in KURT with the depth of 500 m, and characterized the HRDs in the site.

2. Methods

The boerehole log data from the acoustic televiwer logging was analyzed to characterize the properties on density and orientation of the background fractures. Based on the analyses, the HRDs of the site were defined. Then, the characteristics of fracture transmissivity of the background fractures in each HRD were analyzed.

3. Results

3.1. Characteristics of fracture density and orientation distribution

The open/semi-open background fractures, which are very likely to be water conductive fractures, were rare in the depth of 300 ~ 500 m, and P10 of that interval was below 0.01, where P10 is defined as the number of fractures crossed unit length of the borehole. However, they were about 0.05 and 0.20 in the depth of 0 ~ 45 m and 60 ~ 300 m, respectively (Fig. 1).

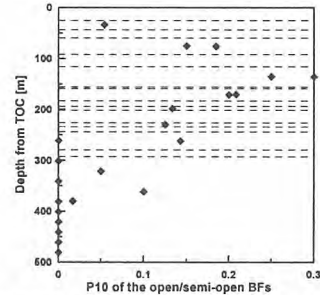


Fig. 1. P10 of the open or semi-open background fractures observed in DB-1 borehole.

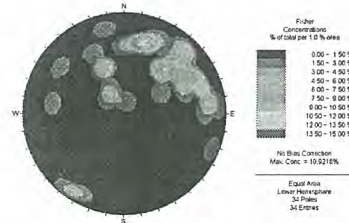


Fig. 2. Distribution of poles of the open or semi-open background fractures in DB-1

The orientations of the open/semi-open fractures had little correlation with depth, and showed N-W trends, which can be fitted to the Fisher distribution with the characteristic parameter of 8.62 and mean dip trend/plunge of 199.6/66.0 (Fig. 2). Based on the results of the analyses on fracture density and orientation, the region below 293 m from the bottom of KURT was defined as HRD-1 while the regions between 60 ~ 280 m and above 45 m HRD-2 and HRD-3, respectively.

3.2. Characteristics of fracture transmissivity distribution

To determine the P10 and the fracture

transmissivity distribution characteristics of the water conductive background fractures in each HRD, the fixed interval packer test results were analyzed using OxFilet code [1]. Under the assumptions that the transmissivity for a given interval is the sum of the transmissivities of the water conductive background fractures in it and the intervals whose transmissivities lower than a threshold have no measurable water conductive background fractures, the fracture transmissivity distribution was estimated. In this study, the threshold was assumed as $3.0 \times 10^{-8} \text{ m}^2/\text{sec}$, which was similar to the minimum measured transmissivity in the intervals without any fracture. The analysis results show that the suggested water conductive background fracture transmissivity distribution of HRD-1 followed the normal distribution of log with the mean and standard deviation of -7.48 and 0.08, respectively, while HRD-2 the normal distribution of log with the mean standard deviation of -7.88 and 0.50.

4. Summary

From the analyses of borehole logging and hydraulic test results, the statistical properties of background fractures were characterized, and the HRDs were defined.

5. Acknowledgement

This work was financially supported by the Korean Nuclear R&D program of the Ministry of Science and Education.

6. References

- [1] Dershowitz, W., Lee, G., Geier, J., Foxford, T., LaPointe, P., Thomas, A., 1998. FracMan Interactive Discrete Feature Data Analysis, Geometric Modeling, and Exploration Simulation, User Documentation, v 2.6, Golder Associate Inc., Seattle.

Lattice Boltzmann Model을 이용한 3차원 fractal 공극매질의 수리동역학적 특성 연구

김정우, Michael C. Sukop*, Edmund Perfect**, Yakov A. Pachepsky***

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

* Florida International University, Miami, FL 33199, USA

** University of Tennessee, Knoxville, TN 37996-1410, USA

*** USDA-ARS, 10300 Baltimore Ave., Beltsville, MD 20705, USA

iw_kim@kaeri.re.kr

1. 서론

Fractal 개념은 fractal dimension과 lacunarity와 같은 몇 가지 매개변수들을 이용하여 다양한 스케일에서 모양과 같은 공극매질의 복잡성 및 불균질성을 해석할 수 있는 장점으로 그동안 수리지질학에서 많이 사용되어 왔다[1]. Fractal 모델은 불균질 공극매질의 기하학적 매개변수와 흐름 및 이송 특성 간에 관계를 규명하는 데 이용되어질 수 있었다[2].

공극매질의 공극 스케일에서 수리동역학적 특성은 공극의 구조에 의해서 큰 영향을 받는데, 공극매질의 기하학적 특성 중 공극의 투과정도는 불균질 공극매질의 흐름 및 이송 특성에 영향을 주는 중요한 매개변수가 된다. 공극매질의 수리동역학적 매개변수로 본 연구에서 사용된 투수계수는 일반적으로 불균질 공극매질에서 그 값을 구하기가 어렵기 때문에, 그동안 Kozeny-Carman 식과 같은 공극률과의 관계식으로부터 간접적으로 계산되었다[3].

Lattice Boltzmann Model(LBM)은 복잡한 공극 구조를 가지는 공극매질에서 정상상태의 Stokes 식을 설명하는데 유한차분법보다도 우월한 것으로 알려졌다[4]. 따라서, 본 연구에서는 LBM을 이용하여 3차원 fractal 포화공극매질의 기하학적 및 수리동역학적 매개변수들을 계산하였다. 또한, 이러한 매개변수들 간의 관계를 다변량 통계분석을 통해 조사하였다.

2. 본론

2.1 3차원 fractal 공극매질

본 연구에서 사용된 fractal 공극매질은 mass prefractal(MF)과 pore-solid prefractal(PSF)이다. 3차원 MF는 Fig. 1(a)와 같이 초기 정육면체 고체를 scaling factor에 따라 세분된 정육면체의 제거 개수만큼 공극이 되는 과정을 되풀이하면서

임의로 만들어졌다. 3차원 PSF는 3차원 MF를 만드는 과정에서 되풀이되는 세분된 정육면체 제거를 일정 개수의 정육면체에서만 행함으로써 만들어졌다(Fig. 1(b)).

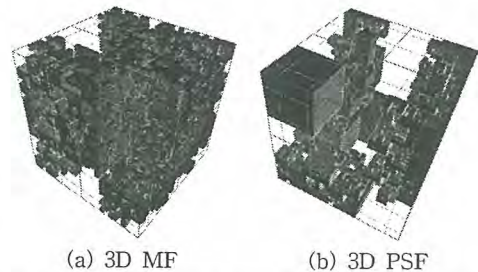


Fig. 1. Representative images of 3D fractal porous media.

2.2 Lattice Boltzmann Model

3차원 fractal 공극매질에서 유체의 흐름 및 오염물의 이송은 LBM을 이용하여 시뮬레이션 되었다. LBM에서 유체의 분포 함수는 다음과 같이 나타난다.

$$f_a(x+e_a\Delta t, t+\Delta t) = f_a(x, t) - \frac{[f_a(x, t) - f_a^{eq}(x, t)]\Delta t}{\tau} \quad (1)$$

여기서, f_a 는 a 방향으로의 유체 밀도분포, f_a^{eq} 는 균형상태에서의 유체 밀도분포, x 는 위치좌표, t 는 시간, e_a 는 a 방향으로의 단위유속, 그리고 τ 는 균형상태에 도달하는 속도를 조절하는 single relaxation time이다.

2.3 투수계수

투수계수(k)는 다음과 같이 Darcy 법칙을 이용하여 계산하였다.

$$k = \frac{q\phi\mu}{d\phi/l} \quad (2)$$

여기서, q = Darcy 유속), ρ = 유체의 평균 밀도), 그리고 μ = 동점성도)는 상수로 정의되었고, 공극 매질 양단에서 수두의 기울기를 나타내는 $d\phi/l$ 는 LBM 시뮬레이션 결과를 이용하여 계산되었다. 투수계수의 단위는 LBM의 거리 단위인 $h\epsilon$ 를 써서 $h\epsilon^2$ 이다.

2.4 3차원 fractal 공극매질의 투과경계

3차원 MF와 PSF 공극매질의 공극률에 따른 투과빈도를 Fig. 2에 나타내었다. 공극률이 약 0.45 이상에서는 MF와 PSF 모두 100% 투과되었다. 공극매질의 투과경계는 투과빈도가 50%에 해당하는 공극률을 의미하는데, 본 연구에서 3차원 MF의 투과경계는 0.36으로 0.30의 PSF 값보다 크게 나타났다. 특히, 3차원 MF의 투과경계 값은 Sukop 등[5]이 2차원 MF에서 계산한 투과경계 값($=0.708 \pm 0.060$)의 절반정도 되었다.

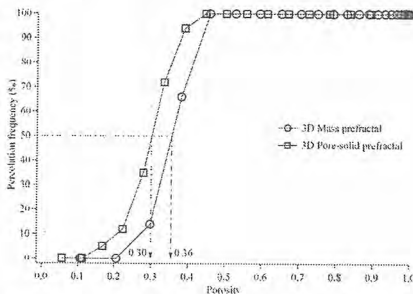


Fig. 2. Percolation frequencies of 3D MF and PSF.

2.5 3차원 fractal 공극매질의 투수계수

LBM을 이용하여 계산된, 3차원 MF와 PSF 공극매질의 공극률에 따른 투수계수를 Fig. 3에 나타내었다. 공극률이 약 0.5에서 약 0.7로 증가함에 따라, MF의 투수계수는 $0.124 h\epsilon^2$ 에서 $0.444 h\epsilon^2$ 로 증가하였고, PSF의 투수계수는 $0.263 h\epsilon^2$ 에서 $1.303 h\epsilon^2$ 로 증가하였다. MF보다는 PSF에서, 그리고 낮은 공극률보다는 높은 공극률에서 투수계수 값의 변화가 크게 나타났는데, 이는 공극의 크기가 커지면서 흐름 특성의 변화가 크게 나타난 결과로 사료된다. 본 연구의 결과는 Cihan 등[6]이 Probabilistic Capillary Connectivity(PCC) 모델과 Marshall's Probabilistic Approach(MPA) 모

델을 이용하여 계산한 3차원 MF의 투수계수 값과 일관성을 가지면서 검증되었다.

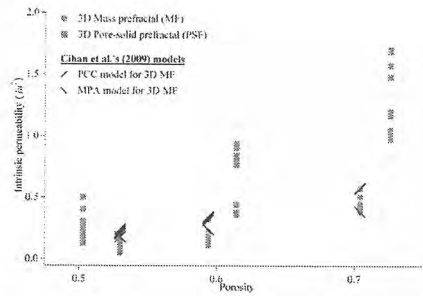


Fig. 3. Intrinsic permeability of 3D MF and PSF.

2.6 다변량 통계분석 결과

3차원 fractal 공극매질의 기하학적 매개변수와 투수계수간의 다변량 통계분석 결과, 공극률이 가장 높은 상관관계를 나타내었다.

3. 결론

본 연구에서 계산된 3차원 fractal 공극매질의 투과경계 값은 앞으로의 수리지질학 연구에서 유용한 자료가 될 것이며, 투수계수와 공극률의 높은 상관관계로 인해 공극매질의 투수계수 계산을 좀 더 용이하게 할 수 있는 계기가 될 것이다.

4. 참고문헌

- [1] Mandelbrot, B.B., The Fractal Geometry of Nature, Freeman, New York, NY, pp. 1-24, 131-144, 1982
- [2] Cihan, A.; Sukop, M.C.; Tyner, J.S.; Perfect, E.; Huang, H., Analytical predictions and lattice Boltzmann simulations of intrinsic permeability for mass fractal porous media. Vadose Zone Journal, 8(1): 187-196, 2009
- [3] Xu, P.; Yu, B., Developing a new form of permeability and Kozeny-Carman constant for homogeneous porous media by means of fractal geometry. Advances in Water Resources, 592 31: 74-81, 2008
- [4] Manwart, C.; Aaltosalmi, U.; Koponen, A.; Hilfer, R.; Timonen, J., Lattice-Boltzmann and finite-difference simulations for the permeability for three-dimensional porous media. Physical Review E, 66: 016702, 2002
- [5] Sukop, M.C.; van Dijk, G.J.; Perfect, E.; van Loon, W.K.P., Percolation thresholds in 2-dimensional prefactal models of porous media. Transport in Porous Media, 48(2): 187-208, 2002
- [6] Cihan, A.; Sukop, M.C.; Tyner, J.S.; Perfect, E.; Huang, H., Analytical predictions and lattice Boltzmann simulations of intrinsic permeability for mass fractal porous media. Vadose Zone Journal, 8(1): 187-196, 2009

황산염환원박테리아에 의한 핵종의 나노광물포획 특성 연구

이승엽, 오종민, 백민훈, 최종원

한국원자력연구원, 대전 유성구 대덕대로 1045

seungylee@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물을 지하처분장에 처분하였을 때, 핵종 누출을 대비한 용기, 벤토나이트 버퍼층, 시멘트 방벽, 그리고 자연방벽 등 다양한 요소들의 방벽들이 고려되고 있다. 하지만, 이러한 인공 및 자연방벽 외에도 지하에 서식하는 미생물들의 활동에 의해 누출된 핵종들의 이동이 억제될 수 있다는 사실이 최근 보고되고 있다[1, 2]. 지하미생물의 종류는 매우 다양하지만, 핵종 이동에 매우 밀접히 관련된 금속 환원미생물에 대한 연구가 최근 활발히 이뤄지고 있다. 본 연구에서는 금속환원미생물 중에서 지하수의 황산염을 환원시키는 황산염환원박테리아(SRB)에 대한 연구를 수행하였다. SRB는 황산염환원을 통해 황화광물을 쉽게 형성할 수 있는데, 이러한 생황화광물(biogenic sulfide)이 핵종거동에 미치는 영향에 대해 살펴 보았다.

2. 본론

2.1 실험방법

본 실험에 사용된 미생물은 SRB 미생물 중 *Desulfovibrio Vulgaris*와 *Deusulfovibrio Desulfuricans* 두 가지이다. 두 미생물은 *Desulfovibrio*라는 같은 속에 속해 있지만, 다른 종으로써 두 미생물의 차이점을 통해 SRB의 특성을 이해하고자 사용하였다.

두 미생물은 배양액을 통해 일정시간 동안 배양시킨 후, 실험에 사용하였다. 실험용 용액은 다음과 같은 조건으로 100 mL의 용액으로 제조하여 실험에 사용하였다. NaHCO_3 buffer (30 mM), Na-lactate (10 mM), Fe(II)-sulfate (2 mM). 이러한 배경용액에 우라늄을 50 μM 추가하였고, 일정량의 미생물도 같이 주입하여 우라늄의 흡착 및 제거를 관찰하였다. 실험은 glove box에서 수행하였으며, 대기조건은 $\text{N}_2:\text{CO}_2 = 80:20$ 이었다. 시료는 필요시 매 2 mL씩 채취하여 분석하였으며, 용액의 pH 및 ORP의 변화는 실험기간동안 계속 모니터링하였다. 실험은 약 2

주간 수행하였다.

2.2 결과

미생물에 의해 만들어진 황화광물은 mackinawite(FeS)라는 검은색을 띠는 판상광물 이었다(Fig. 1).

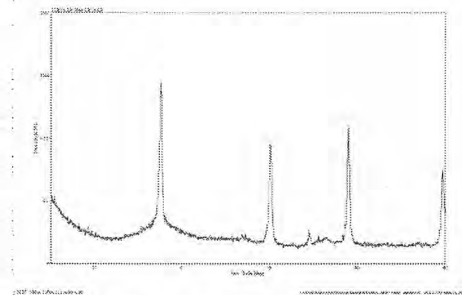
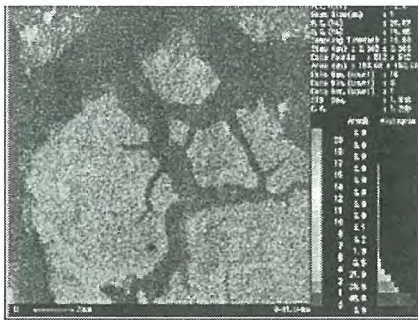


Fig. 1. X-ray diffraction pattern of mackinawite

이러한 mackinawite 광물은 실험시작 후 약 3일이 지난 후부터 생성되기 시작하였으며, 이 광물이 생성될과 동시에 용액의 Eh값은 약 -350 mV 이하로 떨어졌으며, *Desulfuricans*의 경우에는 약 -500 mV 가까이 감소하였다. 이러한 사실은 SRB 미생물에 의해 용액의 환원조건이 강화되고 핵종이동을 저지하는데 매우 특별히 작용될 수 있음을 암시한다.

용액상에 존재하는 우라늄은 황화광물이 형성되면서 일부 우라늄이 황화광물내로 포획(incorporation)되는 현상이 관찰되었다(Fig. 2). Fig. 2에서 보는 것처럼, *Vulgaris*와 *Desulfuricans*에 의해 형성된 mackinawite 광물에 우라늄이 포획된 사실이 전자현미분석에 의해 확인되고 있다. 주목할 만한 사실은 *Vulgaris*에 의해 포획된 우라늄의 양이 *Desulfuricans*에 비해 작다는 사실이다. 이는 미생물에 의해 환원되는 용액의 Eh 감소와 관련성이 있어 보이며, 용액의 환원능력이 우수한 미생물일수록 황화광물에 더 많은 핵종들을 포획할 수 있다는 사실을 알 수 있다.

(a)



(b)

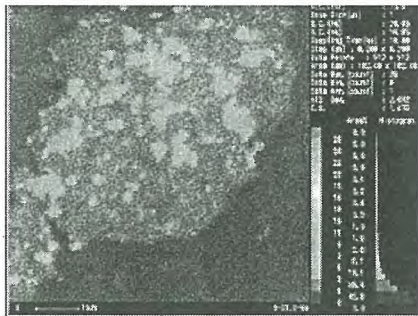


Fig. 2. Uranium distribution patterns onto mackinawite by (a) *Vulgaris* and (b) *Desulfuricans*.

3. 결론

지금까지는 황화광물에 대한 핵종들의 수착 연구가 상당히 진척되었고 황화광물의 핵종수착 능력이 탁월하다는 사실이 어느정도 알려졌다. 하지만, 황화광물에 의한 핵종포획 특성은 아직까지 관찰되거나 규명되지 못하였다. 본 실험은 SRB 미생물에 의해 핵종원소인 우라늄이 mackinawite라는 황화광물에 포획됨을 관찰하였으며, 보다 낮은 Eh 조건에서 더 많은 핵종들의 포획이 일어날 수 있다는 사실을 알게 되었다.

본 연구는 지하에서 용출되거나 누출되어 이동하는 핵종들을 미생물의 황화합물에 의한 포획과정에 의해 핵종들을 장기적으로 안정하게 이동저지함으로써 지하처분장의 핵종거동 장기안정성을 한층 더 강화하는데 큰 의의가 있는 것으로 사료된다.

4. 감사의 글

본 연구는 한국연구재단의 원자력연구개발사업의 기금을 지원받아 수행되었으며, 이에 감사를 드립니다.

5. 참고문헌

- [1] Suzuki, Y., Kelly, S.D., Kemner, K.M., Banfield, J.F., *Nature*, Vol. 419, pp. 134, 2002
- [2] Fredrickson, J.K., Zachara, J.M., Kennedy, D.W., Duff, M.C., Gorby, Y.A., Li, S.M.W., Krupka, K.M., *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Vol. 64, pp. 3085-3098, 2000

공학적방벽시스템 현장실증시험 개념설계

이재완, 조원진, 권상기

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

jolee@kaeri.re.kr

1. 서론

고준위폐기물처분장에서 폐기물고화체, 완충재, 뒷채움재를 포함하는 공학적방벽시스템은 방사성핵종이 처분폐기물로부터 처분장 밖으로 유출되는 것을 1차적으로 막아주며, 그 성능을 인위적으로 향상시킬 수 있는 중요한 처분장의 구성요소이다. 때문에 공학적방벽시스템이 처분환경 하에서 어떻게 거동하느냐는 처분안전성과 직결되는 중요한 부분이다. 공학적방벽시스템의 거동 실증시험은 실험장치의 구성이 복잡적이고 다양한 계측기능이 필요하기 때문에, 대부분의 원자력 선진국에서는 공학적규모의 실험을 통해 시스템의 동특성과 장치특성을 파악하고 계측시스템을 보정(calibration)한 후, 지하시험시설에서 현장시험(in-situ test)을 수행하는 단계적 접근 방법을 채택하고 있다. 한국원자력연구원에서는 이러한 공학적방벽시스템 실증시험의 특성을 고려하여, 우리나라 기준처분시스템 공학적방벽시스템에 대한 2단계(공학적규모→현장조건규모) 실증시험을 계획하고, 2003년부터 1단계 공학적규모의 실증시험을 수행해 오고 있다.

공학적방벽시스템에 대한 현장실증시험은 실험실 내 실험과는 달리 실제 처분장과 유사한 지하환경을 제공한다. 이러한 이유로 현장시험은 처분장의 성능에 영향을 미칠 수 있는 지질 및 지하수 환경을 조사하고, 현장조건에서의 시스템 구성요소 방벽 거동 및 성능을 실증하며, 처분장 설계에 필요한 관련 기술의 타당성과 현장 실험데이터를 확보하는데 중점을 두고 수행된다. 그러나 현장실증시험의 성공적 수행을 위해서는 많은 기술적 자료와 경험이 필요로 하며, 또한 예산과 시간이 많이 소요 되고 일단 설치가 끝난 장치는 재설치가 거의 불가능하기 때문에 사전에 철저한 준비가 필요하다.

이와 관련하여, 본 연구에서는 국의 현장시험 현황을 분석하고, 이를 바탕으로 KURT에서 수행될 공학적방벽시스템 현장시험에 대한 개념설계를 수행하고, 향후 수행할 실험계획을 수립하였다.

2. 본론

2.1 국의 현장시험 기술현황

고준위폐기물처분장 공학적방벽시스템의 현장실증시험과 관련하여, 원자력 선진국인 미국, 캐나다, 일본, 프랑스, 스위스, 스웨덴 등에서는 기존에 추진해 오던 실험실적 연구와 이론적 예측 연구에서 점차 실제 처분장이 위치할 지하환경과 유사한 조건에서 현장시험을 수행하는 쪽으로 연구방향을 전환하고 있는 추세이다(표 1). 이에 따라 지하연구시설을 건설하고 다양한 현장시험을 통해 처분시스템의 성능을 확인, 개선하는 데 많은 노력을 기울이고 있다. 현재 선진국의 현장시험기술은 실험실적 연구, 공학적 규모의 시험을 거쳐, 개발된 기술을 지하연구시설에서 현장시험을 하여 그 성능을 확인하는 단계이며, 일부 분야에 대해서는 원형(proto type) 현장시험이 착수되고 있는 단계이다.

2.2 현장시험장치 개념 및 실험계획

그림 1은 공학적방벽시스템의 현장시험장치의 개념도이다. 시험구역 터널 바닥에 직경 2.24 m, 깊이 5 m의 시험공을 굴착하고, 여기에 현장시험장치를 설치하게 된다. 공학적방벽시스템의 현장시험장치는 히터, 완충재, 플러그, 지지대를 포함한 핵심 시험부분과 히터 제어 및 측정센서로부터의 데이터 수집과 처리를 위한 HCS & DAS 시스템으로 구성된다. 히터는 직경 1.22 m, 길이 2 m의 원통형으로, 히터와 벤토나이트블록 경계면에서의 온도가 95 °C를 유지하는데 충분한 열량을 발생할 수 있도록 내부에 열용량 3 kW의 열원요소(heating element) 3개를 넣고 나머지 빈공간에는 산화마그네슘 분말로 채운다. 히터와 시험처분공 내벽 사이의 공간에는 초기 수분함량 13 %, 건조밀도 1.6 kg/m³ 인 고밀도 벤토나이트 블록을 제작하여 설치한다. 이 때 블록과 블록 사이의 틈새에는 벤토나이트 분말을 채우고, 히터와 블록, 블록과 시험처분공 사이 빈 공간에는 모래를 채운다. 블록 설치가 끝난 후 상부에는 플러그

를 설치하고, 벤토나이트블록이 지하수와 반응하여 생긴 팽윤압에 의해 시험처분공 위쪽 방향으로 솟아오르지 못하게 하고, 터널바닥으로부터 물이 플러그와의 틈새를 통하여 들어가지 못하도록 단단히 밀봉 한다. 그리고 플러그 위쪽은 고밀도 벤토나이트블록으로부터 작용하는 팽윤압을 충분히 견딜 수 있는 강도의 지지대를 천정까지 세운다. 현장시험에 사용될 센서는 벤토나이트블록과 주변암반에서의 온도, 습도, 압력, 변위 및 공극수압 변화를 측정할 센서들이며, 실험기간동안 정밀성, 내구성, 편의성 및 안정성이 충분히 확보될 수 있는 것들로 선정한다. 히터 제어 및 측정센서로부터의 데이터 수집과 처리를 위한 HCS & DAS 시스템은 공학적규모의 KENTEX 실증실험장치에 사용된 것과 기능적으로 유사한 시스템을 사용하며, 운영프로그램은 PRODASH-EN 2.0을 수정보완하여 사용한다. 그 밖의 구성요소 사양은 기준처분시스템의 설계요건과 KENTEX 실증실험에서 얻어진 데이터와 기술경험을 바탕으로 결정될 것이다. 본 공학적방벽시스템 현장실증시험의 장치설치 및 실험수행을 위한 주요 연구항목 및 추진일정은 그림2과 같다.

3. 결론

본 연구에서는 우리나라 고준위폐기물 기준처분장 공학적방벽시스템의 실증을 위해서 국외 현장시험 기술현황을 분석하고 현장실증실험장치의 개념 설계를 완료하였으며 세부 실험계획을 수립하였다. 향후 KURT에서 수행될 현장실증시험은 공학적방벽 구성요소의 제작,설치 기술 및 관련자료, 공학적방벽의 THM 성능 및 핵심기술에 대한 실증 자료, 고준위폐기물 처분장 건설을 위한 기반기술 및 자료를 제공하며, 한국형 기준처분시스템에 대한 국민 이해 및 신뢰도를 향상 시킬 것이다.

Table 1. 공학적방벽시스템 현장시험 현황

국가	실험시험 및 관련 시설	URL
Canada	Thermal Porosity Test (Ontario Hydro) (1986~)	Buffer/Conduker Experiment of single hole heater test (URNL) (1986~)
	Heat-induced Moisture Move (Chalk River Univ) (1986~)	
Japan	WQ-EPN (THM) (1988~1990) COUPLE (THM) (~1996)	JRC-ILR Exp. Korea-ILR Move of Trench water (1993~1998)
Sweden		Buffer Mass Test Stripa Mine (1983~1992) Long-term Test of Buffer (Aspo HRL) (1998~)
Spain	Mock-Up Test (CIBMT) (~1996)	FEESK (FIS) (1997~)
USA	Kentex Experiment Emeryville, CA (ORNL) (Elmeria State, Nevada) (1990s)	Full Water Migration/Heater Experiment (ORNL) (1990~1998) The Single Heater Test/Drift scale heater test (Korea JRC) (1996~)

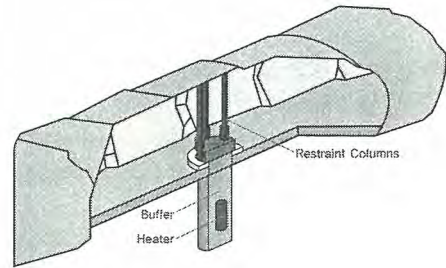


Fig. 1. 공학적방벽시스템 현장시험장치 개념도

Work	Year	1 st yr	2 nd yr	3 rd yr	4 th yr	5 th yr
Work Planning		■				
Test Zone Characterization		■	■			
Design and Excavation of a Test Pit		■				
Fabrication and Purchase of Test Components			■	■		
Installation and Test-run				■		
THM Test - Heating Phase - Cooling Phase - Core Sampling				■	■	■
Coupled THM Modeling		■	■	■	■	■

Fig. 2. 공학적방벽시스템 현장시험 연구내용 및 추진일정

처분공 내 완충재블록 배치 및 유동특성

이재완, 임진규, 조원진, 권상기

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

jolee@kaeri.re.kr

1. 서론

고준위폐기물처분장에서 완충재는 공학적방벽시스템의 중요한 구성요소 중 하나로서, 주위 암반으로부터의 지하수 유입을 최소화하고, 지하수에 의해 용해된 핵종이 폐기물로부터 유출되는 것을 저지하며, 외부의 역학적 충격으로부터 폐기물과 처분용기를 보호하는 역할을 한다.

우리나라는 2002년에 고준위폐기물 처분기술개발 2단계 연구결과로서 기준처분시스템을 제안한 바 있다. 이 기준처분시스템의 설계개념에 따르면, 처분폐기물은 처분용기 (disposal container)에 넣은 후 처분터널 바닥에 굴착하여 만든 처분공 (borehole)에 정치시키고, 처분용기와 처분공의 암반 벽 사이에는 완충재 (buffer)를 설치하도록 되어 있다. 완충재 물질로는 국산벤토나이트의 사용을 고려하고 있으며, 방벽성능 향상과 제작 및 설치 시 작업성을 감안하여 블록형태로 만들어 설치할 계획이다. 이와 관련하여, 한국원자력연구원은 공학적 규모의 완충재블록의 성형물대를 개발하고 최적 블록제작조건을 제안 한 바가 있다[1].

본 연구에서는 이전 연구에서 제안된 최적제작조건으로 만들어진 완충재블록을 이용하여 처분공 내 완충재블록 설치 시 문제점과 블록을 통한 유동특성을 분석하고자 하였다.

2. 본론

2.1 벤토나이트 완충재블록

본 연구에서 완충재블록 제작에 사용된 벤토나이트는 경주벤토나이트이다. 경주벤토나이트는 Ca-형 벤토나이트로서, 몬토릴로나이트 70%, 장석 29%, 석영 ~1%의 구성비율을 하고 있다. 화학조성은 대부분 SiO_2 와 Al_2O_3 가 차지하였고, CaO 는 NaO 보다 높은 구성비율을 나타내고 있다. 그리고 벤토나이트 완충재블록 제작을 위해서 원광은 건조분쇄 한 후 200 메쉬 ASTM 망체를 통과시킨 벤토나이트 분말을 사용하였다. 완충재블

록 제작에 사용된 벤토나이트의 수분함량은 15 wt.%였다. 완충재블록은 한국원자력연구원에서 개발된 성형물대와 최적제작조건 및 방법을 사용해서 3지 형태 (A-형, B-형, C-형)가 제작되었다.

2.2 완충재블록 배치모형

처분공 내 완충재블록의 배치는 그림 1와 같이 처분공 단면의 약 1/3크기 모형을 만들어 블록을 설치하였으며, 블록의 취급 및 설치방법 등을 점검하였다. 설치하는 안쪽에서 바깥쪽으로 C-형, B-형, A-형 순으로 진행되었다. 설치작업은 C-형과 B-형은 별 어려움이 없었으나, A-형은 남은 작업공간이 협소하여 다소 주의가 필요하였다. 블록 취급 시 파손 방지와 블록의 설치 작업의 편의성을 위해서 압착식의 블록 취급장비의 개발이 필요할 것으로 생각되었으며, 또한 각 블록은 가장 자리의 한쪽에 오목형 홈을 파고 그 반대쪽 가장 자리에 블록형 돌출부를 만들어 설치 시 블록과 블록 간의 위치 선정 및 연결을 손쉽게 할 수 있도록 설계할 필요가 있음을 확인할 수 있었다.

2.3 블록을 통한 유동특성

완충재블록의 유동특성실험은 그림 2의 실험장치를 이용해서 수행하였다. 이 실험장치는 내경 75 cm x 높이 4.25 cm SUS 실린더, 육안으로 유동흐름의 관찰이 가능한 폴리카보네이트판 (polycarbonate plate) 뚜껑, 습도 및 압력 측정 센서, 지하수 공급시스템 등으로 구성된다. 완충재블록은 안쪽에서 바깥쪽 순으로 설치하였으며, 블록과 실린더가 접하는 실린더 벽면에는 부직포 (두께 1.8 mm, 200g/m² geotextile)로 라이닝 (lining) 처리를 하고, 외부 저장탱크로부터 구멍을 통해 블록 안으로 들어오는 지하수가 실린더 둘레면에서 골고루 분산되게 하였다. 습도센서와 압력센서는 반경 12 cm, 25 cm의 위치에 2개씩 설치하되 서로 겹치지 않게 적당한 간격을 두었으며, 센서와 블록, 블록과 블록, 블록과 실린더 사이에 생긴 틈새에는 벤토나이트 분말을 넣고

다져서 공극을 최소화 하였다. 설치가 끝난 후 블록의 평균 수분함량과 건조밀도는 각각 13.5%, 1.54 kg/m³ 이었다. 그리고 실험실의 온도는 25℃를 유지하였다. 지금까지 블록 유동실험은 약 80일 동안 진행되었으며, 얻어진 실험결과 중 블록 내 습도변화와 압력변화의 일례를 각각 그림 3과 그림 4에 나타내었다. 실험결과를 분석한 결과, 완충재블록의 재포화와 그에 따른 블록 내 압력변화는 아주 느리게 진행되었으며, 최종적인 블록의 유동특성 결론을 얻기 위해서는 실험기간을 더 연장하여 추가적인 데이터의 확보가 필요할 것으로 생각되었다.

3. 결론

완충재블록의 취급 시 파손 방지와 설치 작업의 편의성을 위해서는 압착식의 블록 취급장비의 개발이 필요하고, 각 블록의 가장자리 한쪽에는 서로 짝을 이루도록 양.음극의 홈을 만들어 블록과 블록 간의 연결을 손쉽게 할 필요가 있었다. 처분공 모형의 완충재블록 유동시험에서 완충재블록의 재포화와 그에 따른 블록 내 압력변화는 아주 느리게 진행되었으며, 최종적인 블록의 유동특성 결론을 얻기 위해서는 실험기간을 더 연장하여 추가적인 데이터의 확보가 필요할 것으로 생각되었다.

4. 참고문헌

- [1] 이재완 등, “고준위폐기물처분장 완충재블록 연구: 공학적 규모 (I),” KAERI/TR-3981/2009, 한국원자력연구원 (2009).

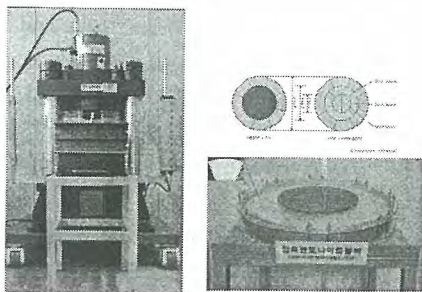


Fig. 1. 완충재블록 제작장치 및 처분공 단면 1/3크기의 블록 배치모형



Fig. 2. 완충재블록 유동특성 실험 장치

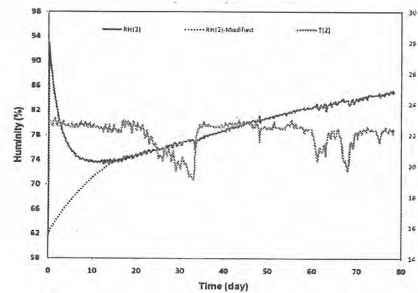


Fig. 3. 완충재블록 유동특성실험에서 바깥쪽 센서의 습도변화

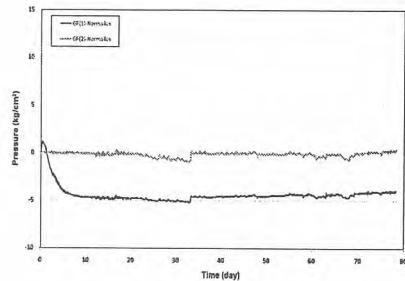


Fig. 4. 완충재블록 유동특성실험에서 안쪽과 바깥쪽 센서의 압력변화

GoldSim을 이용한 킬레이트 영향 평가방법

이성호, 이연명

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

shlee10@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물 처분장 건설 및 운영에 따른 안전성 여부는 해당 지역주민은 물론 모든 국민의 관심사이다. 미래 수십만 년 혹은 수백만 년 이후 처분 안전성이 보장될 수 있을 것인지 여부는 현재 안전성 평가에 의해 판단되고 있다. 처분장에 대한 안전성 평가는 기존에는 MASCOT를 이용하여 수행하여 왔으며 최근에는 GoldSim을 이용한 평가체제로 전환되고 있다. 미국 유카마운틴 처분장 인허가에 활용된 GoldSim은 User-friendly & Graphic Interface의 장점을 가진 코드이며, 본문에서는 GoldSim으로 킬레이트 영향을 평가하는 방법을 제시하자 한다.

2. 본론

2.1 기본 평가모델 개발

평가를 위해서는 먼저 GoldSim으로 기본 평가모델을 개발하여야 하며, 개발 중인 모델은 Silo 6개를 대상으로 하고 있다. 처분된 폐기물의 방사성 핵종들은 고화체-처분용기-분쇄석-Silo 콘크리트-천연방벽을 경유하여 바다로 유출되는 형태로 설계되었다. 기본 모델에 사용되는 주요 데이터로는 핵종재고량, 반감기, 확산속도, 고화체 및 방벽에서의 핵종별 분배계수, 공학적 방벽 두께, 천연방벽 거리, 인공방벽에서의 유속, 천연방벽에서의 유속 등이 적용된다. 특히 공학적 방벽을 통과한 핵종들은 EDZ를 통하여 천연방벽으로 유출되는 것으로 가정하고 있으며, 폐기물에 포함된 전알파는 우라늄으로 표기하였다.

2.2 킬레이트 영향 평가 방법

방사성폐기물처분장에서는 킬레이트 화합물의 경우 인공방벽 및 천연방벽에서의 지연기능과는 무관하게 빠른 속도로 생태계까지 이동할 가능성이 크다. 이는 핵종들이 중심 금속이온으로 작용하여 킬레이트제와 다배위결합을 하게 되어 안정

된 화합물을 형성하게 되고, 이는 공학적 방벽 및 천연방벽의 흡착에 의한 핵종이동 지연기능을 무력화하는 결과로 이어지게 된다. 이러한 킬레이트의 영향 평가에는 킬레이트 종류, 킬레이트 양, 핵종에 대한 선택성 등이 중요한 요소가 되지만, 이에 대한 상세한 자료를 구하기는 어려우므로 예전에 수행된 바 있는 방사성폐기물에 대한 Sampling 검사 결과인 Table 1을 이용하고자 한다.

Table 1. 방사성폐기물에 대한 sampling 검사결과

	시멘트 고화체	파라핀 고화체	잡고체
총 Sample 수	27	28	35
킬레이트 검출 Sample 수	5	28	23
킬레이트 미검출 Sample 수	22	0	12
총 킬레이트 양 (mg)	96	3407	2365.8
드럼당 킬레이트 양 (mg)	9.88E-06	3.38E-04	1.88E-04

이러한 sampling 검사결과로 나타난 킬레이트 양을 바탕으로 킬레이트 화합물의 양은 보수적인 관점에서 예측 가능하므로 안전성 평가는 가능하다. GoldSim으로 개발된 기본 평가모델의 선원항에 핵종재고량을 이원화하여 킬레이트 화합물로 존재할 수 있는 핵종의 양(킬레이트 유관 핵종 재고)과 킬레이트와 무관한 것으로 간주될 수 있는 핵종의 양(킬레이트 무관 핵종 재고)을 구분하는 방안을 생각해 볼 수 있다. 이러한 구분의 근거로는 킬레이트 화합물을 구성하는 킬레이트제와 중앙 금속이온은 대부분의 경우 1:1로 반응한다는 점에서 가능하며, Fig. 1과 같이 구분된 Kd값을 적용하여 평가하게 된다.

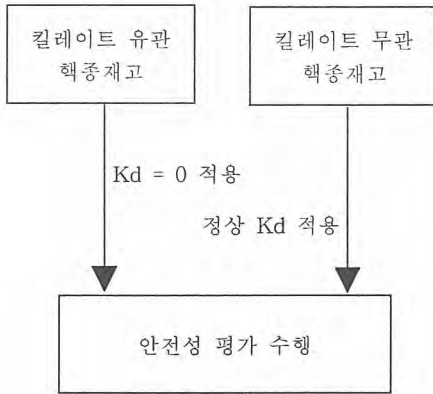


Fig. 1. 킬레이트 평가 방법

2.3 킬레이트 무관 해중에 대한 고려

평가대상 해중 중에는 킬레이트의 평가에서 크게 관련이 없는 해중이 존재할 수 있다. 즉 킬레이트 화합물을 형성하는 과정에서 중양 금속이온으로 작용할 수 없는 해중이 있다. 예를 들면, H, C, Cl 등의 원소는 킬레이트의 중양 금속이온으로 작용할 수 없으므로 그림 1의 킬레이트 평가방법에서 킬레이트 무관 해중재고에 포함되어야 한다. 이러한 판단의 기본은 해중이 전이금속 원소인가 여부가 가장 큰 근거가 될 수 있다.

3. 결론

GoldSim을 이용한 킬레이트 평가는 진행 중에 있다. 기존의 종합안전성평가코드인 MASCOT에서 적용하였던 개념과 유사하므로 GoldSim을 이용한 평가에도 충분히 적용할 수 있을 것으로 판단된다. 특히, 이번에 제시된 중양 금속이온으로 작용할 수 있는 해중과 작용할 수 없는 해중에 대한 구분은 기존의 평가방법에서는 적용하지 못하였던 방법으로 평가의 불확실성을 줄일 수 있는 진일보한 평가방법으로 판단된다.

4. 참고문헌

- [1] 한국원자력학회, Transactions of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting, pp.181-182, 2008
- [2] 한국원자력학회, Transactions of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting, 2007

장심도 시추공을 활용한 부지특성모델 연구

박경우, 고용권, 김진영, 박강섭

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

woosbest@kaeri.re.kr

1. 서론

부지특성모델로서 지질구조의 특성을 규명하기 위해서 조사영역의 차원에 따라 1차원 지질조사(지표면 지질조사), 2차원 지질조사(시추공 지질조사) 및 3차원 지질조사(터널 지질조사)로 구분 가능하다. 이 중 2차원 지질조사는 지표면 지질조사와 더불어 시추공을 굴착하여 조사 지역에 대한 단층이나 단열대, 광물·암석학적 특성, 지하수의 화학적 특성, 수리지질학적 특성을 분석하여 지질구조적 특성 및 진화 과정을 해석할 수 있는 방법이다.

본 연구는 방사성폐기물처분 연구를 위해 한국원자력연구원 내에 건설된 지하처분연구시설(KURT)에서 심부 시추공을 굴착하여 시추공 조사를 통해 해석된 심부 환경의 지질구조 특성을 제시하고자 수행하였다. 본 연구를 통해 기존에 수행된 지표면 지질조사 결과에 대해 검증하고 [1], 일부 수행된 터널 지질조사를 구체화하여 모델화 하는데 이용할 예정이다.

2. 본론

2.1. 연구 지역

심부 지하에 방사성처분연구의 일환으로 지하처분연구시설(KURT)을 건설하였다(Fig. 1). KURT의 굴착 길이는 총 255 m(본선 177 m, 회차구간 8 m, 좌측모듈 27 m, 우측모듈 43 m)이다. 터널의 갱구부는 산사면을 절도하여 EL. 100 m에서 단면 6(W) X 6(H) m(마제형), 굴착방향 N56°W, 하향 5.7°로 굴착되었다(Fig. 2).

본 연구에서 이용된 장심도 시추공(DB-01)은 하수 주요 흐름 경로 특성 및 구조 해석과 심부 수리지질 및 지하수 화학 특성 조사와 지하수 체계 변화에 대한 장기 모니터링 목적으로 굴착되었으며 KURT의 좌측 모듈에 위치해 있다.

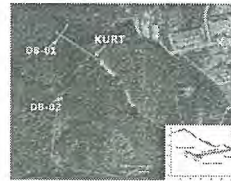


Fig. 1. Location of KURT and DB-01

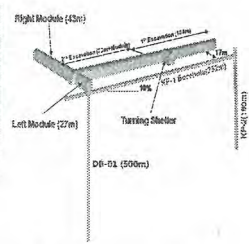


Fig. 2. Description of KURT and DB-01

2.2. 연구 방법

심부시추공(DB-01)에 대해 먼저 물리검층을 실시하였다. 물리검층으로는 시추공단열조사, 시추공영상촬영, SPS검층, 음파검층, 밀도검층, 전기비저항검층을 수행하였다. 물리검층 결과를 바탕으로 단열 공간분석을 통해 개개 단열들의 빈도분석을 수행하여 예비 단열대들의 위치, 방향성과 크기를 예측하였다. 또한, 예비적으로 도출된 단열대에 대해 코어로검층, 코어사진을 비교·종합하여 단열대들을 확정하였고 각 단열대의 방향성을 알아보았다.

2.3. 단열대

물리검층자료의 이상대를 분석하여 총 6개의 단열대를 도출하였으며(Table 1), 시추공 단열조사 결과를 활용하여 총 7개의 단열대를 도출하였다(Table 2).

Table 1. Fracture zones from geophysical anomalies

심도(m)	온도	EC	SPS	음파	전기비저항	밀도
4.2~29.5	○	○	○	○	○	○
37.8~66.6	○		○	○	○	○
83.5~116.0	○	○	○	○	○	○
144.3~163.8			○	○	○	○
196.0~230.0	○	○	○	○	○	○
234.5~249.0	△	△	자료없음	자료없음	○	○

Table 2. Fracture zones from the BHTV

단열대	단열구간	단열대 방향
# 1	16 ~ 23 m	Low angle
# 2	44 ~ 54 m	no
# 3	97 ~ 103 m	61/218
# 4	154 ~ 201 m	54/284, 41/181
# 5	209 ~ 226 m	39/184
# 6	237 ~ 247 m	26/226
# 7	290 ~ 295 m	64/256

이렇게 도출된 단열대는 단열 영상분석과 음파, 지하수의 온도, 공벽 상태 등의 물리적 특성을 통해서 도출된 간접적인 결과로서 실제 시추공에서 확인되는 단열대와와의 비교 분석이 반드시 요구된다.

따라서, DB-01 시추공 굴착시 수행된 시추코어 로깅 결과와 코어사진을 비교하여 도출된 단열대에 대한 크기를 검증하여 보았다(Table 3).

Table 3. Final fracture zones in DB-01

단열구간	물리검층결과와 단열분석을 비교	최종 단열대
DB-01-1	4.2 ~ 29.5 m	3.0 ~ 21.9 m
DB-01-2	37.8 ~ 66.6 m	43.5 ~ 59.5 m
DB-01-3	83.5 ~ 116.0 m	92.0 ~ 116.0 m
DB-01-4	144.3 ~ 163.8 m	156.0 ~ 159.0 m
DB-01-5		183.0 ~ 194.0 m
DB-01-6	196.0 ~ 230.0 m	201.5 ~ 226.0 m
DB-01-7	234.5 ~ 249.0 m	234.0 ~ 244.0 m

2.4. 단열대의 방향성

심부시추공(DB-01)의 500m에 대한 시추공 단열조사 결과, 1270개의 단열을 획득하였으며, 단열의 방향성은 NW의 주방향과, NS, EW의 방향을 갖는 단열이 존재하고 있다 (Fig. 3).

단열대 별로는 총 7구간 중 NW 방향이 2구간, EW 방향이 1구간, 저경사 단열 및 경향성을 확인할 수 없는 구간이 2구간으로 분석되었으며, 특히 DB-01-5와 6에서 현저한 방향성 차이가 나타나고 있다 (Table 4).

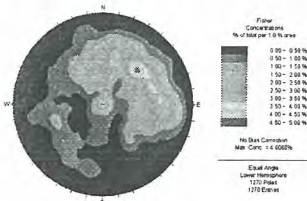


Fig. 3. Orientation of all fractures

Table 4. Orientation analysis of fracture zones

DB-01-1		DB-01-5	
	Low angle		NS trend
DB-01-2		DB-01-6	
	no trend		EW trend
DB-01-3		DB-01-7	
	NW trend		NW trend
DB-01-4			
	no trend		

3. 결론

장심도 시추공을 활용하여 KURT지역의 부지특성모델에 입력될 지질구조를 도출하여 보았다. 물리검층, 단열자료 분석, 시추코어분석을 통해 총 7개의 단열대가 도출되었으며, 이렇게 도출된 단열대는 수리지질특성 연구를 통해 지하수 유동에 대한 수리지질요소로 입력될 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] 박경우, 고용권, 김경수, 최종원, Journal of the Korean Radioactive Waste Society, Vol. 7, No. 4, pp.191-205, 2009

비정상 상태에서 고준위폐기물처분장 공학적방벽시스템의 열-역학적 거동 모사

조원진, 이재완, 권상기

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

wicho@kaeri.re.kr

1. 서론

현재 제안되고 있는 고준위폐기물 처분장의 설계개념에 따르면, 지하 수백 미터 깊이에 건설된 처분동굴 바닥에 수직으로 처분공을 굴착하고, 그 속에 방사성폐기물을 밀봉한 처분용기를 넣은 후 처분용기와 처분공의 암반 벽 사이의 공간은 완충재(buffer material)로 충전시킨다. 처분동굴 내의 처분공들이 모두 폐기물로 채워지면, 처분동굴과 연결터널들은 뒷채움재(backfill material)로 채운 후 폐쇄한다. 고준위폐기물 처분장이 폐쇄된 후, 처분된 고준위폐기물로부터 발생하는 붕괴열에 의해 완충재의 온도가 상승하며, 주위 암반으로부터 지하수가 처분장 내로 침투함에 따라 완충재의 포화가 일어난다. 완충재가 지하수로 포화되면, 완충재의 팽윤현상이 발생되며, 이로 인해 공학적방벽시스템 전반의 압력이 증가하게 된다. 이와 같이 공학적방벽시스템 내에서는 붕괴열에 의한 온도 상승, 지하수에 의한 완충재의 포화 및 이로 인한 압력 상승이 동시에 일어나며, 이 열-수리-역학적 복합거동(coupled thermal, hydrologic and mechanical behavior)은 고준위폐기물 처분장의 설계 및 장기 성능평가에 매우 중요하다. 처분장의 설계기준은 처분용기 외벽과 완충재 사이의 계면 온도가 90℃를 넘지 않도록 규정하고 있다 [1]. 그러나 처분장 폐쇄 후 예기치 못한 이유로 인해 공학적 방벽시스템이 국부적으로 과열되어 기준 온도를 초과할 가능성이 있다. 이 연구에서는 고준위폐기물 처분용기와 완충재 계면에서의 온도가 기준치를 초과한 비정상 상태 (abnormal condition)에서 일어나는 공학적방벽시스템 내의 온도와 압력 변화를 해석하였다.

2. 실험 및 해석

2.1 실험

공학적방벽시스템에서 일어나는 열-수리-역학적

거동을 규명하기 위해 한국원자력연구원에서는 공학적 규모 실증실험 시설인 KENTEX를 설치하고, 열-수리-역학적 거동 실증 실험을 수행하였다 [2]. KENTEX는 한국형 고준위폐기물처분장의 공학적방벽시스템을 1/3로 축소한 것이다. KENTEX는 고준위폐기물을 모사한 원통형 히터와 이를 둘러싼 벤토나이트 블록 완충재로 이루어진 원통형 본체, 지하수 공급시스템, 각종 계측 및 데이터 로깅 시스템, 제어시스템으로 구성되어 있다. 수직 원통형 탄소강 압력용기인 본체는 고준위폐기물처분장에서 처분터널 바닥에 굴착된 처분공을 모사한 것으로 내경과 높이는 각각 0.75 m와 1.36 m이다 (그림 1). 지하수 공급탱크에서 노즐을 통해 공급되는 지하수의 압력은 5 기압이며, 본체 내에 설치된 벤토나이트 블록의 건조밀도는 1.5 Mg/m³ 이다. 비정상 상태를 모사한 과열(over-heating) 실험에서는 원통형 히터와 벤토나이트 완충재 계면에서의 온도를 정상운전 온도인 90℃에서 120 ℃로 상승시킨 후 시간의 경과에 따라 일어나는 공학적방벽시스템 내의 온도 및 압력의 변화를 관찰하였다.

2.2 해석

과열 개시, 수 시간 경과 후에 완충재의 온도는 거의 120 ℃에 도달되어 정상상태를 유지하였다. 각 측정지점의 정상상태 온도는 히터에 가까울수록 높고 멀어질수록 낮은 값을 보였으며, 반경방향의 경우 안쪽이 바깥쪽보다 높은 온도분포를 보였다.

과열에 의해 KENTEX의 공학적방벽시스템 내에서 시간 경과에 따라 발생하는 온도 및 압력의 분포 변화를 TOUGH2 컴퓨터코드[2]를 이용하여 분석하였다. 이 코드에서 KENTEX의 상세 구조는 반경 방향으로 대칭인 2차원 메쉬로 모델링되었으며, 이것은 원통형 탄소강 압력용기 본체 내에서 벤토나이트 완충재 블록에 의해 둘러싸여 있는 원통형 히터를 모사한 것이다. 벤토나이트의 팽윤압을 계산하기 위해 서브루틴 SWELL을 개

발하여, TOUGH2 컴퓨터 코드에 추가하였다. 벤토나이트 완충재의 열, 수리 및 역학적 특성은 실험실 실험에서 측정하였으며, 벤토나이트-물 retention 관계[3]도 실험 데이터로부터 구하였다. 이러한 완충재의 특성들은 TOUGH2 컴퓨터 코드의 입력 자료로 사용되었다.

과열 조건에서 본체의 바닥에서 0.085 m 높이인 지점에서 측정된 온도 분포와 TOUGH2로부터 계산된 온도 분포의 비교 결과를 그림 2에 나타내었다. 이 그림에서 볼 수 있는 바와 같이, 완충재 내의 온도는 빠르게 증가하여, 약 5일 경과 시에는 새로운 정상상태(steady state)에 도달하였다. TOUGH2에 의해 계산된 온도 분포는 실험에서 측정된 온도보다 조금 낮았으며, 그 차이는 히터에 가까운 부분에서는 작고, 본체의 외벽에 가까운 부분에서는 상대적으로 컸다. 평균 차이는 약 2-3 °C이었으며, 온도 상승이 시작된 직후인 과도 상태(transient state)에서 8 °C의 최대차이를 보였다. 과열에 따른 완충재 내의 전압력 분포 변화 패턴은 온도의 변화 패턴과 유사한 경향을 보였다. 측정된 압력 값들이 TOUGH2에 의한 계산 값보다 약간 작았으며, 온도 상승 전후에는 거의 일정한 값을 보였다. 이러한 결과들로부터 TOUGH2가 비정상 상태에서 KENTEX 내에서 일어나는 시간에 따른 온도와 압력의 분포 변화를 잘 모사할 수 있음을 알 수 있다.

3. 결론

고준위폐기물처분장 공학적방벽시스템을 모사한 공학적 규모 실증실험 장치인 KENTEX에서 일어나는 비정상 상태에서의 온도 및 전압력의 시간에 따른 변화를 TOUGH2 컴퓨터 코드를 이용하여 해석하였다. 실험에서 측정된 온도와 전압력은 TOUGH2 코드에 의해 계산된 값과 차이가 크지 않고 상당히 잘 일치하였다. 이로부터 TOUGH2 코드가 고준위폐기물 처분장 공학적방벽시스템의 비정상 상태 열-역학적 거동을 해석하는데 유용하다는 것을 알 수 있다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

5. 참고문헌

- [1] J. Lee et al., "Concept of a Korean reference disposal system for spent fuels," J. of Nucl. Sci. Tech., 44, 1565-1573 (2007).
- [2] J. O. Lee, J. H. Park and W. J. Cho, "Engineering-scale test on the thermal-hydro-mechanical behaviors in the clay barrier of a HLW Repository," Annals of Nuclear Energy, 35, 1386-1396 (2008).
- [2] K. Pruess, C. Oldenburg and G. Moridis, "TOUGH2 User's Guide, Version 2.0, Lawrence Berkeley National Laboratory, LBNL-43134 (1990).
- [3] Y. Mualem, "A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media," Water Resour. Res., 12, 513 (1976).

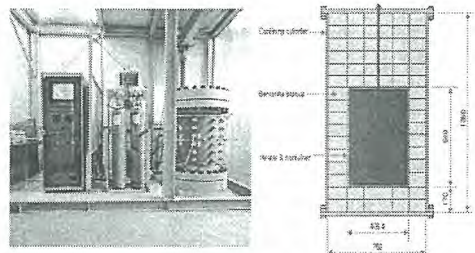


Fig. 1. KENTEX의 전경 및 본체 단면도

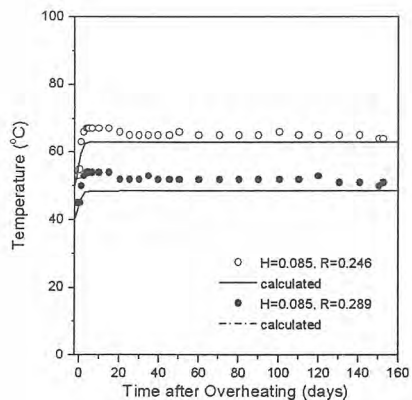


Fig. 2. 과열에 따른 온도 분포 변화

방사성폐기물 처분안전성 평가 활용을 위한 웹기반 핵종 수착데이터베이스 개발

이재광, 백민훈, 서민석*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

*(주)에네시스, 대전광역시 유성구 구암동 328

jkleel@kaeri.re.kr

1. 서론

전 세계적으로 원자력을 이용한 전력생산과 다양한 평화적 응용 및 연구 등의 원자력 관련 프로그램을 시행하는 나라들은 방사성폐기물 처분이라는 공통적인 당면과제를 갖고 있다. 원자력 관련 산업, 응용 및 연구 등의 과정에서 발생하는 방사성폐기물은 지하 환경에 최종처분하게 되는데, 이때 지하 환경에서 방사성핵종의 수착거동에 대한 자료는 방사성폐기물 처분안전성 평가 측면에서 매우 중요한 요소이다[1].

방사성핵종의 수착은 pH, 산화환원전위, 탄산염 농도, 이온강도, 그리고, 용존 유기물 등의 다양한 지화학적 조건에 따라 다양한 양상을 나타낸다[2]. 따라서 다양한 지화학적 조건에서 핵종의 수착자료를 실험적으로 얻어 내거나, 문헌을 통하여 자료를 추출해 내는데 많은 어려움이 수반되기도 한다. 다양한 조건에서 다양한 핵종의 수착분배계수를 추출하기 위하여 한국원자력연구원에서는 OECD/NEA의 수착자료 및 한국원자력연구원에서 자체 생산한 수착 자료를 검색하고 조건별로 추출할 수 있는 핵종 수착 데이터베이스(SDB-21C)를 개발하였다[3].

핵종 수착의 중요성을 인식하여 독일, 일본 등의 선진국 우리나라의 SDB-21C, 독일의 RES3-T, 그리고, 일본의 JAEA-SDB 등의 다양한 핵종 수착 데이터베이스(DB) 프로그램들이 개발되어왔다[4]. 그러나 방사성폐기물 처분 안전성 평가 측면에서 볼 때, 적절한 데이터를 선정하여 활용하기 위해서는 핵종 수착 DB에 접근이 용이해야 하고 관련 자료 검색이 가능해야 한다. 또한, 검색한 정보의 정확도를 확인 할 수 있는 통계정보가 수반되어야 한다. 그러나 아직까지 우리나라는 핵종 수착 DB의 접근 및 검색이나 통계정보는 현재 매우 취약한 상황이다. 따라서 핵종 수착 DB를 정확하고 효율적으로 관리할 수 있는 방법이 절실히 요구되고 있다.

따라서, 이러한 상황을 고려하여 기존 핵종 수착 DB 프로그램의 관리/검색 기능을 분석 및 보완하고 사용자들에게 보다 효율적인 방법으로 핵종 수

착 관련 정보를 제공하기 위해, 웹 기반으로 운용되는 DB 시스템을 갖추고 사용자들에게 서비스를 제공하도록 하였다.

2. 본론

2.1 웹기반 수착데이터베이스(KAERI-SDB) 개발

기존의 핵종 수착 DB 프로그램인 SDB-21C의 시스템의 클라이언트-서버 프로그램으로는 신규 추가 및 변경된 핵종 수착 자료를 사용자에게 전달하는데 어려움이 있었다. KAERI-SDB는 기존의 프로그램을 개선하여 사용자가 인터넷 브라우저를 이용하여 KAERI sorption database 시스템(<http://sdb.kaeri.re.kr>)에 접속하므로 사용자가 별도의 프로그램 설치 없이 핵종 수착자료의 검색 및 저장 가능하도록 구성되었다.

KAERI-SDB는 Fig. 1과 같이 네트워크에 연결되어 원자력 관련 종사자 및 일반인들에게 핵종 수착 DB 정보를 네트워크를 통해 제공하게 된다. 이로 인하여 핵종 수착 DB 관리자가 새로운 수착 자료를 DB에 추가하면 사용자는 웹상에서 변경된 정보를 실시간으로 확인할 수 있게 된다. 이러한 시스템은 종전의 시스템과 달리 사용자의 컴퓨터에 추가적인 프로그램을 설치하지 않아도 되고, 새로운 자료들을 사용자가 별도로 갱신하지 않아도 되는 장점을 가지고 있다.

2.2 핵종 수착자료

국내 처분환경에 부합되는 자료가 부족하고 사용상의 어려움으로 인하여 SDB-21C가 개발되었음에도 불구하고 그 사용이 미비하였다. 특히, SDB-21C에는 대부분 OECD/NEA의 자료가 수록되어 있으므로 국내 처분환경에 부합되는 수착자료를 제공하는 것이 어려웠다. 현재 KAERI-SDB에는 31개 핵종에 대하여 12,000 여 개의 국내의 수착자료를 수록하고 있다. 또한, KAERI-SDB에는 한국원자력연구원 지하연구시설(KURT)을 이용하여 심부 처분환경에서 부합하는 조건에서 측

정한 핵종 수착 자료를 다수 포함하고 있으며, 향후 꾸준히 국내 처분환경에 부합하는 수착자료를 추가 수록 할 예정이다.

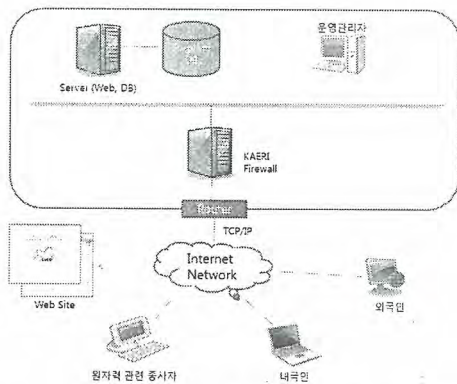


Fig. 1. Construction of web-based sorption database program

2.3 KAERI-SDB의 기능

웹기반 SDB는 검색기능, 사용자 편의, 차트, 자료다운로드, 그리고, 통계 기능 등을 포함한다. 각 기능별 상세설명을 Table 1에 정리하였다.

Table 1. Functions of web-based sorption database

Function	Description
Search	Basic search, Detail search
Manager	Registration of useful search results for general user
Chart	Scatter plot chart, index chart
Download	Download of search results
Statistics	Display of accuracy and error of sorption data using JfreeChart

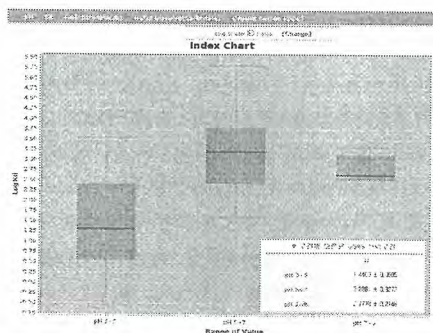


Fig. 2. Index chart for uranium sorption on goethite

2.4 KAERI-SDB의 활용

KAERI-SDB를 이용하여 KURT의 대표적인 단일충전광물인 침철석에 대한 우라늄 수착 자료를 추출하였다. 인덱스차트로 구현하였을 때, 침철석에 대한 우라늄 수착은 pH에 민감하게 반응하는 것을 확인할 수 있다 (Fig. 2).

3. 결론

기존에 개발된 핵종 수착 DB 프로그램인 SDB-21C를 분석하고 사용자의 요구사항을 반영하여 일반인이 쉽게 접근할 수 있는 웹기반 SDB를 개발하였다. 웹기반 SDB의 핵종 수착자료는 OECD/NEA 및 국내 생산 자료를 포함하고 있으며, 향후 지속적으로 국내외의 핵종 수착자료를 보완해 나갈 예정이다.

웹기반 SDB의 보급을 통하여 핵종 수착 관련자료에 대한 일반인의 접근성을 증대시킴으로써, 정부, 지자체, 그리고 인근 주민들에게 방사성 폐기물 처분에 대한 신뢰성을 증진시킬 수 있을 것으로 기대된다. 아울러, 더불어 국제 사회에도 국내 핵종 수착 DB 관리체제와 현황에 대한 근거자료를 제공함으로써 대외적인 신뢰도를 확보할 수 있을 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

- [1] N.A. Chapman et al., "The Geological Disposal of Nuclear Waste", John Wiley & Sons, Inc., Chichester (1987)
- [2] D.B. Kent et al., "Surface-Complexation Modeling of Radionuclide Adsorption in Sub-surface Environments", Stanford Civil Engineering Tech. Rept. #294, Stanford, CA / NUREG
- [3] J. Jung et al., *Waste Management*, 21, 363-369 (2001)
- [4] V. Brendler, et al., *J. Contam. Hydr.*, 61, 281-291 (2003)

방사성폐기물 처분용 고건전성 개발용기 재질의 이온확산 평가

전중선, 박상규, 김연화, 박종익*, 이재민

(주)에네시스, 대전 유성구 구암동 328 번지

*(주)계림폴리콘, 충남 부여군 임천면 군사리 516

nunkijs@gmail.com

1. 서론

중·저준위 방사성폐기물 처분 시, 처분요건에 적합한 폐기물 처리를 위하여 고건전성 용기가 필요한 폐기물이 있다. 이러한 폐기물의 안정적이고 장기적인 처분하기 위하여 폴리머 콘크리트 고건전성 용기를 개발하였다. 폴리머 콘크리트는 일반적인 시멘트 콘크리트에서 수화시멘트 결합체를 고분자 결합체로 대체하여 제작하며 골재와의 우수한 결합력으로 기존 시멘트 콘크리트의 기존 물성보다 크게 향상시켜 같은 물성으로 제작시 기존 콘크리트 중량의 1/3 이하만 사용하여 제작이 가능하였다. 이러한 물리적 특성을 가지는 폴리머 콘크리트가 방사성폐기물 처분시 용기 내 방사성물질의 외부확산방지에 적합한지 확인하기 위하여 이온확산 시험을 수행하였다.

2. 본론

2.1 이온확산 특성 평가

방사성폐기물 처분시 폴리머 콘크리트 용기의 방사성물질 외부확산 정도를 평가하기 위하여 염소이온확산 시험을 수행하였다. 염소이온확산 시험은 균열 등으로 인한 구조적인 내구성 평가도 가능하다. 콘크리트의 내구성 저하에 미치는 인자로는 크게 화학적 영향인자와 물리적 영향인자로 분류되면, 화학적 영향인자에서는 이온교환반응, 가수분해, 팽창성 반응 등이 있으며, 물리적 영향인자에서는 표면손상과 균열 등이 있다.

화학적 영향인자와 물리적 영향인자에 의한 투수성 증가와 균열발생은 산소, 물, 염화물 등과 같은 공격적인 영향인자의 침투를 더욱 용이하게 함으로써 콘크리트의 내구성 저하를 촉진시킨다. 염화물은 다양한 화학적 영향 인자들 중에서 가장 복잡한 인자이며 콘크리트 속으로 침투하는 염화물의 이동은 물리적인 관점에서 침투작용, 모세관 흡입, 확산으로 나눌 수 있다.

2.2 이온확산 시험

시멘트 콘크리트 및 폴리머 콘크리트 시편에 그림 1과 같이 시험장치를 설치하여 이온확산 시험을 수행하여 염소이온의 확산계수를 확인하였다. 폴리머 콘크리트 경우에는 이온확산시험 중에 전류의 흐름을 확인할 수 없었고 시험 종료 후 양극과 음극판의 표면은 깨끗하였다. 반면 시멘트 콘크리트 시험은 일정한 전류가 통과하였고 시험 종료 후 양극과 음극판의 표면에 많은 양의 금속 이온들이 흡착되었다.

콘크리트의 염소이온 침투에 대한 저항성을 빠른 시간에 알아내기 위한 목적으로 콘크리트의 전기 전도도를 결정하는 시험도 수행하였다. 그림 2와 같이 전기전도도 시험 방법에 의한 침투 저항성 평가 결과는 대부분 장기 침투에 의한 염소이온 침투 저항성 시험 결과와 상호 연관성을 확인하였다. 그러나 시험 결과 얻어지는 통과 전하량은 콘크리트의 염소이온 침투 저항성을 평가하는 참고 자료이다. 통과 전하량과 실제 콘크리트의 확산계수가 일부 상관관계를 갖는 것으로 나타났다으나, 그 상관 정도가 그다지 높지 않으며, 통과 전하량 측정의 오차가 상당히 크기 때문에 통과 전하량을 콘크리트의 품질평가나 적합성 판정에 적용할 수 없었다.

실제 콘크리트의 확산 평가를 위해서 염소이온 확산계수 시험 수행 후 시험시편을 할렬하여 할렬면에 0.1 N 질산은 용액과 페놀프탈레인 용액을 도포 후 색변화를 확인하였다. 할렬면의 중앙에서 하얗게 변한 부분의 평균깊이를 측정하였고 아래의 식을 사용하여 확산계수를 확인하였다.

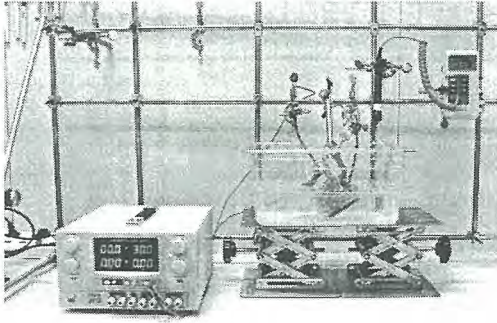


Fig. 1. Chloride ion diffusion experiment of polymer concrete by CTH law.

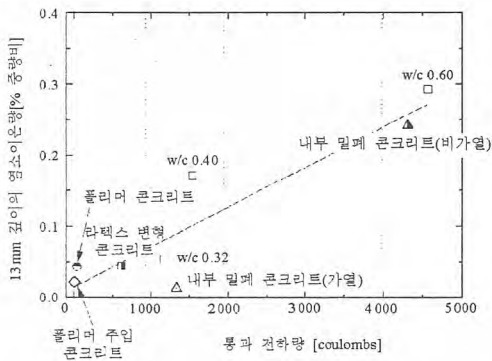


Fig. 2. Variation of coulombs and result of long term diffusion comparative experiment.

$$D = \frac{RTL}{zFU} \cdot \frac{x_d - \alpha \sqrt{x_d}}{t} \quad (1)$$

$$\alpha = 2\sqrt{\frac{RTL}{zFU}} \cdot \operatorname{erf}^{-1}\left(1 - \frac{2C_d}{C_0}\right) \quad (2)$$

D : 염화물 확산계수 ($\times 10^4 \text{ cm}^2/\text{sec}$)

z : 이온의 원자가

F : Faraday 상수 ($= 9.648 \times 10^4 \text{ J}/(\text{V} \cdot \text{mol})$)

U : 양극과 음극 사이의 전압차 (V)

R : 기체상수 ($8.314 \text{ J}/(\text{K} \cdot \text{mol})$)

T : 용액의 온도 (K)

L : 시편의 두께 (m)

x_d : 염소이온의 침투깊이 (m)

t : 실험 지속시간(sec)

erf : error function

C_d : 질산에 의해 변색된 부분의 염소이온 농도 (mole)

C_0 : 음극셀의 염소이온 농도(mole)

2.3 결과

시멘트 콘크리트의 시험결과, 염소이온이 6.6 mm 침투하여 시편이 변색되었고 침투 깊이를 위의 확산 계수 식에 대입하여 확산계수를 확인하였다. 폴리머 시멘트의 경우, 1차 8시간 시험에도 색변화 등의 결과 확인이 불가하였다. 2 차 시험에서는 110 시간동안 시험을 수행하였다. 시편 할렬 후 1 차와 2 차의 시험 결과가 동일함을 확인하였다. 폴리머 콘크리트의 염소이온 침투 깊이 확인이 불가능하였다. 육안으로 식별이 가능한 0.1 mm를 침투 깊이로 가정하여 염소이온 확산 계수를 비교하였다.

3. 결론

시멘트 콘크리트의 염소이온 확산계수는 $9.18 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{sec}$ 로 측정되었고 폴리머 콘크리트의 염소이온 확산계수는 $6.44 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{sec}$ 로 이하로 예측되었다. 폴리머 콘크리트는 시멘트 콘크리트에 비해 1000 배 이상 낮은 확산계수를 가지며 확산경향과 이온이동이 1000 배 이상 낮음을 확인하였다. 시험결과 염소이온 침투 깊이로 확인한 시험결과는 1000 배 이상의 높은 이온 침투 저항성을 가지고 있음을 확인하였다. 일반적인 5 cm 두께의 시멘트 콘크리트에 염소이온 확산은 최소 10여년이상 소요된다. 같은 조건에서 확산계수를 고려하면 폴리머 콘크리트의 이온 확산이 시작되는 시간은 10,000년 이상 걸리는 것으로 예측되었다. 일반적인 상황에서 중·저준위 방사성폐기물 내의 이온침투에 의한 방사성 물질의 확산은 고려하지 않아도 될 정도로 처분용기 재료의 이온 확산저지 성능은 우수하였다.

4. 참고문헌

- [1] 윤만현, 부경대학교, 2005년 2월, 혼화재 혼입 장기재령 재생골재 콘크리트의 염소이온 침투저항성 변화 연구
- [2] 이성규, 서울대학교, 2003년 8월, 복합열화 환경하에서 콘크리트의 염소이온 확산특성
- [3] 한국표준협회, KS F2711, 2002년 5월, 전기 전도도에 의한 콘크리트의 염소이온 침투 저항성
- [4] Cement and Concrete Research, Vol 25, No 5, pp 1133-1137, 1195

제4분과

사용후핵연료 및 핵연료 주기 (Oral)

빈 면

Safeguards-by-Design 프로세스에 관한 기술현황 분석

신희성, 송대용, 안성규, 한보영, 박세환, 정정환, 엄성호, 김호동

한국원자력연구원, 대전 유성구 대덕대로 1045

Shinhs@kaeri.re.kr

1. 배경

Safeguards-by-Design (SBD) 프로세스는 핵물질 취급시설의 설계단계에서부터 안전조치(Safeguards)를 비롯하여 안전(Safety), 보안(Security) 및 핵확산저항성 (Proliferation Resistance) 등을 반영하는 것을 의미한다. 미국에서는, 2008 년 6 월에 차세대안전조치구상(NGSI : Next Generation Safeguards Initiative)을 착수하고, IAEA는, 2008 년 10 월에 SBD 관련 워크숍(Facility Design and Plant Operation Features that Facilitate the Implementation of IAEA Safeguards)을 주최하고, 이어 2009 년 4 월에는 3S(safeguards, safety and security)에 대한 국제 워크숍을 개최함으로써, SBD 프로세스에 대한 연구가 세계적으로 활성화되었다[1-4].

현재 파이로시설을 설계/건설하고 있는 우리의 입장에서, SBD 프로세스가 국제 표준화되어 가는 경향에 대한 상황을 파악하여, 파이로시설 구축에 반영할 필요가 있다. 따라서, 본 연구에서는 문헌을 중심으로 SBD 프로세스의 기술현황을 분석하였다.

2. SBD 프로세스

2.1. 주요 특징

SBD 프로세스는 핵물질 취급시설 설계의 초기 단계부터 개입하여, 국제 안전조치, MC&A, 물리적 방호 요건을 설정하고, 물리적 방호 및 핵확산 저항성(안전조치성 포함)을 향상시킬 시설의 내부 특징을 초기에 공식화한다. 또한, 과제수행과 국제 안전조치, MC&A, 물리적 방호에 대해 긴밀히 협조할 수 있도록 설계의 각 단계마다 세부사항과 분석자료를 제공하고, 효과적인 협조를 위한 간단명료한 계획을 수립한다. 그리고 모든 규제 요건은 핵물질 취급시설의 설계와 협조하는 유연성을 갖는다.

2.2. 단계별 SBD 업무

Fig. 1에 핵물질 취급시설의 계획단계에서부터 건설 및 운영 단계까지의 SBD 프로세스를 분류하여 제시하였다. 각 단계에서 필요한 SBD의 업무를 아래에 정리하였다.

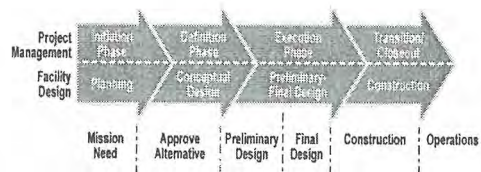


Fig. 1. SBD 적용을 위한 핵시설 구축단계 분류

2.2.1 계획단계에서의 SBD 업무

계획단계에서는, 안전조치 분류를 바탕으로, 등급별 접근방법을 이용한 적절한 안전조치 필요요건을 설정하고, 안전조치 분류 및 기본 안전조치 설계 접근법의 적용능력을 바탕으로 등급별 접근에 의한 SBD 프로세스의 공식 수준을 확립한다.

프로젝트 시스템 공학과정을 통하여 규정 요건을 설계 개념에 반영하고, 안전조치 수행 요건을 만족시키기 위한 개념적 전략을 개발하고, 부합여부를 분석/논증한다.

위험 요소 경감 전략을 포함하여 안전조치 수행 요건에 부합하기 위한 개념적 전략과 관련된 과제 위험요소를 예비 평가하고, 안전조치 분류의 문서화, 실행 요건에 부합하는 개념적 전략 및 과제 위험요소를 평가한다.

2.2.2 설계단계에서의 SBD 업무

설계가 진행됨에 따라 안전조치 분류 및 적절한 요건을 입증하고, 안전조치 수행 요건에 부합하기 위한 전략의 개선 및 관련 설계 요건을 수정한다. 그리고 완성된 설계, 안전조치 수단과 설계 세부사항과 관련된 불확실성을 감소시키고,

완성된 설계 및 연구 개발 활동의 결과를 바탕으로 위험요소 경감 전략의 개선을 포함한 안전조치 수행 요건에 부합하는 전략과 관련된 과제 위험요소의 개선에 대한 평가를 한다.

또한, 규정된 안전조치 요건 및 이에 부합하는 전략과 관련된 지속적인 시스템 공학과 설계 활동을 하고, 잠재적으로 IAEA 안전조치에 종속된 시설에 대해 본 단계에서는 설계 정보서(Design Information Questionnaire)에 제시된 정보에 관한 IAEA와의 협력 및 시설 부록에 대해 협상한다.

마지막으로, 다음 단계를 위해 허가의 일환으로 안전조치 설계 및 과제책임자와 관할 조정자에 의해 공식적으로 승인된 분석 서류를 개선한다.

2.2.3 건설단계에서의 SBD 업무

건설단계에서는 안전조치에 영향을 주는 분야의 현장 및 설계 변화를 검토하기 위한 안전조치 전문가들을 지속적으로 참여시키고, 안전조치 전략이 안전조치 수행 요건에 부합함을 입증하는 분석을 수행한다.

건설이 진행됨에 따라 준공설계가 안전조치 요건에 부합 여부 입증에 포함된 지속적인 시스템 공학과 품질 보증 확인 활동을 한다. 이는 또한 시설 또는 공정의 변화에 앞서 시공이 완료될 때 안전조치 수용 검토 및 실증을 포함한다.

공정 제약에 대한 부차적인 전략 수정을 포함하여 공정에 있어서 안전조치 실행 요건에 부합하는 전략을 이행하기 위한 절차, 방책, 계획을 개발한다. IAEA 안전조치에 종속되는 시설에 대해 IAEA 설계 정보 검증 활동이 시작되고 IAEA 안전조치장비의 배달 및 설치의 이 단계에서 완료된다. 건설이 완료될 때, IAEA 안전조치의 실행에 필요한 모든 장비가 설치되고, 테스트되며, 수용된다.

2.3 SBD 프로세스의 적용효과

SBD 프로세스의 적용을 통하여 얻을 수 있는 기대효과는 다음과 같다.

- 핵안전 위험요소 및 핵 확산 위험요소 감소, 운영 효율성의 증가와 더불어 경제적인 이득을 얻을 수 있음
- 국제 안전조치, 물리적 방호, MC&A와 안전을 위한 설계 과정의 효율성 및 효과성 증가
- 위험 관리 향상과 과제 비용 및 일정 차질 감소

3. 결론

본 연구에서는 핵물질 취급시설의 구축에 적용되는 SBD 프로세스의 기술현황을 분석하였다. 이들 결과는 현재 진행중인 파이로시설의 안전조치 기술개발의 연구방향 설정에 참고자료로 활용될 것이며, 앞으로 보다 세부적인 SBD 프로세스에 대한 분석과 전문가들과의 교류를 통하여 최적의 안전조치 시스템 구축방안을 도출할 계획이다.

4. 참고문헌

- [1] Robert S. Bean, John W. Hockert, and David J. Hebdict, "Intergrating Safeguards and Security with Safety into Design," 19th Annual EFCOG Safety Analysis Workshop (May 2009).
- [2] T. Bjornard, et al, "Improving the Safeguardability of Nuclear Facilities," INMM 50th Annual Meeting (July 2009).
- [3] Trond Bjornard, "Safeguards-by-Design Some Framing Considerations," IAEA workshop on the Facility Design and Plant Operation Features that Facilitate the Implementation of IAEA Safeguards (October 2008).
- [4] T. Bjornard, et al, "Safeguards-by-Design : Early Integration of Physical Protection and Safeguardability into Design of Nuclear Facilities," Proc. of Global 2009, Paris, France (Sept. 2009).

우라늄 산화 분말 내 ^{235}U 측정을 위한 Am-Li 중성자 선원을 이용한 능동형 중성자 계수

안성규, 엄성호, 신희성, 김호동

한국원자력연구원, 305-353 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

skahn76@kaeri.re.kr

1. 서론

진식처리 공정을 통해 다양한 종류의 핵물질 및 핵분열 생성물이 포함된 물질을 다루는 경우, 시설 혹은 공정의 안전조치 이행을 위해서는 우라늄 및 플루토늄 (^{235}U , Pu)의 양을 정확하게 측정하고 관리하는 것이 핵심 요소이다. 이를 위해 가장 널리 사용되는 핵물질 계량 방법은 중성자 계수를 통한 비파괴 분석이다. 하지만, 공정 물질 중 희수 우라늄은 자발핵분열에 의한 중성자 발생이 거의 없어, 포함된 핵분열성 물질인 ^{235}U 의 양을 측정하기 위해서는 일반적인 피동형 중성자계수 방법을 사용하는데 어려움이 있다. 이러한 경우 외부의 중성자 선원을 이용해 핵분열성 물질로부터 발생하는 유도핵분열 중성자를 계수하는 능동형 중성자 측정 시스템을 이용한 핵물질 계량장치를 적용할 수 있다 [1]. 본 연구에서는 외부 중성자선원으로서 아메리슘-리튬 중성자 선원($^{241}\text{Am-Li}$)을 이용한 능동형 비파괴분석 장비 개발을 위한 성능 테스트를 수행하였다.

2. 본론

2.1 Am-Li 선원 이용

중성자를 이용한 핵물질 측정은 측정된 중성자의 전체 계수량을 활용하는 방법과, 시간적으로 상관관계에 있는 중성자만을 선별하여 동시계수한 결과로 핵물질의 양을 측정하는 방법으로 나눌 수 있다. 핵물질에서 유도핵분열이 일어나는 경우, 시간적으로 동시에 여러 개의 중성자가 방출되므로, 동시계수 방법을 적용할 수 있다. 특이 이때 핵분열을 유도하는 외부 선원이 시간적으로 상관관계가 없는 중성자일수록 동시계수가 용이해진다. Am-Li 중성자 선원에서는 ^{241}Am 이 방출하는 알파입자가 리튬 원자핵에 흡수되는 반응을 통해 한 개의 중성자가 방출한다. 따라서 Am-Li 선원의 중성자는 서로 시간적으로 독립적이며, 동시계수를 통해 제거하면 핵물질의 유도핵

분열에 의한 중성자만을 측정할 수 있게 된다. Am-Li 선원은 ^{252}Cf 중성자 선원과 함께 능동형 중성자 동시계수에 널리 이용되고 있다 [2].

2.2 실험 조건

Fig. 1.1은 측정 실험을 위한 능동형중성자계수와 선원 및 샘플이 장착된 모습을 보여준다. 중성자 계수기는 16 개의 ^3He 튜브와 감속제 및 차폐체, 동시계수 신호를 처리하는 시프트레지스터와 신호획득 컴퓨터 구성되어 있다. 각 검출기 튜브는 PDT (Precision Data Technology Inc.) 앰프와 연결되고, 16개의 신호는 각 8개씩 2개의 그룹으로 분리되어 OR 신호회로에서 합쳐진다. 동시계수를 위한 시프트레지스터 (shift register)는 ORTEC 사의 AMSR 150 (Advanced Multiplicity Shift Register) 모델을 사용하였다. 검출기 튜브 인가 전압은 1680V, pre-delay와 gate width는 각각 4.5 μsec , 128 μsec 로 설정하였다. ^{252}Cf 선원에 대한 계수기의 계수효율은 23%이다.



Fig. 1. Active neutron counter loaded an Am-Li neutron source and natural uranium oxide powder sample

Am-Li 선원은 ^{241}Am 에서 나오는 59.5 keV 감마를 차폐하기 위해 직경 25mm, 높이 30mm의 텅스텐 차폐체로 쌓여 있는 밀봉 선원이며, 중성

자 방출율은 초당 6.9×10^4 개, 평균 에너지는 약 0.4 MeV 이다. 3개의 천연우라늄(NU) 시료를 대상으로 측정하였으며, 시료의 형태는 UO_2 분말로서 밀도는 약 2.9 g/cm^3 이다. UO_2 기준 1, 1.5, 2 kg인 각 분말시료는 알루미늄 용기에 담겨 있으며, 용기의 두께는 2 mm, 외경은 9.8 cm이다. 2.5 - 4.5 kg 범위의 측정치는 시료 2개 혹은 3개를 세로 방향으로 쌓은 형태로 위치시켰다. 15 cm 두께의 고밀도 폴리에틸렌(PE) 하부감속재를 중성자 선원 및 샘플 아래에 두었다.

2.3 실험 결과

Am-Li 선원에 대해 동시계수를 할 경우, 발생된 중성자는 시간상관 관계가 없으므로 이에 의한 동시계수 값은 이론적으로는 0 이어야 한다. 하지만 실제 측정 결과, 약 $7.1 \pm 1.5 \text{ cps}$ 로 측정되었고, 이는 샘플이 있을 경우 측정 결과를 보정할 때 추가적인 오차 요인으로 더해진다. Fig. 2는 산화우라늄 분말 내 ^{235}U 양에 따른 백그라운드 보정된 동시계수율의 변화량과 상대 오차의 변화를 나타낸다. 평균적으로 ^{235}U 단위 g 당 4.5 개의 동시계수율을 보였으며, 측정시간이 1,200초인 경우 동시계수의 통계적 오차로 인해 상대오차가 10 - 27%로 컸으며, 측정시간은 24,000초 20배 늘린 경우 3 - 6% 정도로 줄어들었다. 이때 핵물질 양에 대한 동시계수율 증가 경향은 점차 줄어들어 비선형적인 모양을 보인다. 이는 한 개의 Am-Li 선원만을 사용하여, 우라늄의 양이 증가함에 따라 자기차폐(shelf-shielding) 효과가 두드러져 나타나기 때문이다. 샘플의 상하에 각각 Am-Li 선원을 장착한다면 선형성 및 계수율의 증가를 기대할 수 있다.

3. 결론

본 연구에서는 능동형 비파괴분석 장비 개발을 위해, 외부 중성자선원으로서 Am-Li 중성자 선원을 이용한 측정 결과를 평가하였다. 오차의 주요 원인은 계수율의 통계적 특성이며, ^{235}U 양이 증가할수록 크게 감소한다. 실험에 사용한 대상 샘플의 농축도가 낮아 타 연구결과[2]와 직접 비교는 어렵지만, 샘플 내 ^{235}U 양이 적고 한 개의 Am-Li 선원만을 사용한 점을 감안하면 비슷한 수준의 결과를 보였다. 향후 추가로 Am-Li를 장착하여 동시계수율의 선형성 및 계수율 증가를

확인하여, 파이로 공정의 핵물질 계량관리 기술로 확립할 계획이다.

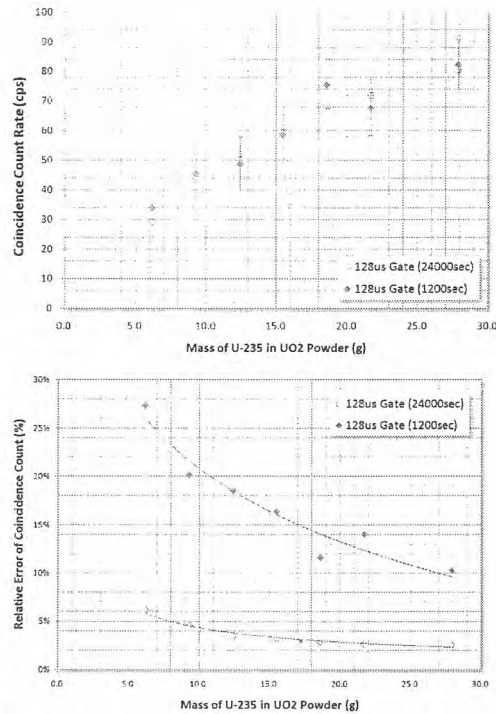


Fig. 2. Neutron coincidence count rates (top) and its relative error (bottom) as function of a mass of ^{235}U in natural uranium oxide powder samples

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었다.

5. 참고문헌

- [1] S. K. Ahn, et. al., "Simulation and preliminary experimental results for an active neutron counter using a neutron generator for a fissile material accounting," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 609, pp. 205-212, 2009
- [2] H. O. Menlove, et. al. "Description and Operation Manual for the Active Well Coincidence Counter," Los Alamos Scientific Laboratory Report LA-7823-M, 1979

기준 파이로 시설의 계량측정시스템 방안과 미계량 물질 측정 불확도

한보영, 송대용, 신희성, 안성규, 김호동

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 대덕대로 1045

byhan@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료를 이용한 미래 핵연료 주기 시설인 파이로 시설(Pyroprocessing facility)은 한국을 비롯한 세계의 많은 나라들이 관심을 가지고 연구하고 있다. 그 중 파이로 시설에 대한 가장 큰 이슈중 하나는 시설의 안전조치성(Safeguardability) 평가에 대한 접근방안이다. 현재 연구시설이외에 가동되고 있는 파이로 프로세스 시설이 존재하지 않기 때문에 안전조치에 대한 IAEA 뿐만 아니라 국제적인 경험이 부족한 상태이다. 한국원자력연구원은 기준 파이로 시설의 안전조치 접근방안 확립하기 위하여 다양한 연구가 진행 중이다[1]. 본 논문은 사용후핵연료와 파이로 프로세스 공정 중 이동하는 주요 핵물질(Pu)의 계량을 위한 가능한 측정방안과 측정시스템이 가질 수 있는 오차를 분석하여 미계량물질(Material Unaccounted For, MUF)의 불확도(Uncertainty)를 계산할 수 있는 방법을 제시한다.

2. 분석내용 및 결과

2.1 기준파이로시설의 가능한 계량측정시스템

한국원자력연구원에서 기준파이로시설의 안전조치 접근방안을 개발하기 위해 주요 파이로 프로세스 공정들과 공정 중 물질수지를 정확하게 확립할 수 있는 물질수지구역(Material Balance Areas, MBA), 그리고 물질수지구역내 각 단위 공정에서 핵물질 흐름 또는 재고를 결정하기 위한 핵물질 측정 가능한 위치로서 주요측정지점(Key Measurement Point, KMP)을 분석하는 개념적인 설계가 연구 진행 되고 있다. Fig. 1.에서는 기준파이로시설의 주요 공정들과 물질수지구역, 그리고 주요측정지점을 보여주고 있다. 현재의 개념설계안을 토대로 사용후핵연료를 사용하는 파이로 공정에서 주요 대상 핵물질(Pu)의 계량관리를 위한 중요 고려대상은 공급된 사용후핵연료 집합체안의 핵물질을 균질하게 분포시키는 것과 주요 대상 핵물질 성분비를 정확하게 측정

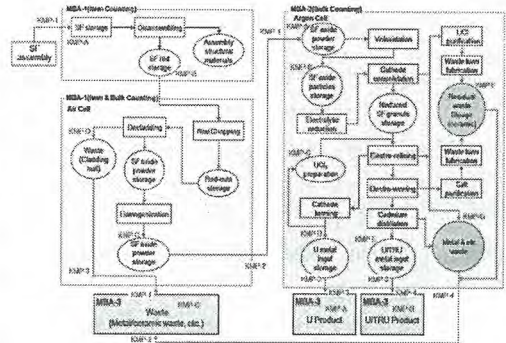


Fig. 1. MBA/KMP for Reference Pyro-processing Facility(REFP)

하는 것, 그리고 파이로 공정 처리 후 생산된 우라늄과 우라늄/TRU를 정확하게 계량하는 것이다. 또한 핵물질 포함량이 극미하지만 계량관리가 필요한 Hull, 염 폐기물, 금속 폐기물에 대한 계량측정도 필요하다. 이러한 고려사항을 반영하여 시설 운영자가 사용가능한 계량측정시스템 방안으로 현재 가능한 비파괴분석(Non-Destructive Assay, NDA) 기술을 적용하여 계량 시스템을 구성하고 그에 따른 불확도 예측 및 안전조치성 평가를 수행하는 것이다. 파이로 공정 핵물질흐름순서에 따라 공급된 사용후핵연료 집합체의 정량측정은 집합체의 총질량측정과 이후 공정인 사용후핵연료 균질화 분말로부터 측정된 주요 핵물질(Pu)의 성분비를 사용하여 결정된다. 다음은 파이로 공정전 사용후핵연료를 균질화시키고 나온 분말을 대상으로 감마분광을 통한 연소도(Burn-up)측정과 ORIGEN 모사로 주요 핵물질의 양을 결정하여 주요 핵물질(Pu)과 큐륨(Cm)의 비율(Pu/Cm)을 얻어진 양들로부터 계산한다. 이 Cm의 비율은 대부분의 주요측정지점(KMP)에서 NDA장비를 통한 Cm양을 직접 측정하고 식 (1)과 같이 주요 핵물질(Pu)양을 결정하는 데 사용된다.

$$Pu = \left(\frac{Pu}{Cm} \right)_{\text{균질화}} \times Cm_{KMP} \dots\dots\dots (1)$$

Table 1. The uncertainty of four analytic methods to measure Pu concentration

측정 방법	Cm 측정 오차		Pu/Cm 측정 오차		Pu 성분비 오차	
	랜덤	계통	랜덤	계통	랜덤	계통
1) SF 대상 : Pu 성분비 상수 사용	-	-	-	-	-	$\sqrt{\delta_{Re_2}^2 + \delta_{Se_2}^2 + \delta_{Rf_2}^2 + \delta_{Sf_2}^2}$
2) Cm양+Pu/Cm비 모두 측정	δ_{Re_2}	δ_{Se_2}	δ_{Rf_2}	δ_{Sf_2}	$\sqrt{\delta_{Re_2}^2 + \delta_{Rf_2}^2}$	$\sqrt{\delta_{Se_2}^2 + \delta_{Sf_2}^2}$
3) 핵물질 대상 : Cm양 측정 + Pu/Cm 상수 사용	δ_{Re_1}	δ_{Se_1}	-	$\sqrt{\delta_{Rf_2}^2 + \delta_{Sf_2}^2}$	δ_{Re_1}	$\sqrt{\delta_{Se_1}^2 + \delta_{Rf_2}^2 + \delta_{Sf_2}^2}$
4) 폐기물 대상 : Cm양 측정 + Pu/Cm 상수 사용	δ_{Re_1}	δ_{Se_1}	-	$\sqrt{\delta_{Rf_2}^2 + \delta_{Sf_2}^2}$	δ_{Re_1}	$\sqrt{\delta_{Se_1}^2 + \delta_{Rf_2}^2 + \delta_{Sf_2}^2}$

여기에서 Cm의 비율은 파이로 공정 안에서 핵물질이 이동하는 동안 변하지 않는다는 가정을 하고 있다. 이와 같이 제시된 측정방안은 핵물질의 계량관리를 위해 표 1에서 기준파이로시설에 적용될 수 있는 네 개의 계량측정방법으로 분류하고 NDA 장비를 통한 Cm측정오차와 Cm비율측정오차를 결정하고 오차전파(error propagation) 방법을 통해 해당하는 분석방법에 따른 Pu 성분비 측정오차를 결정하게 된다. 이 분석측정오차는 핵물질 계량관리에서 미계량물질을 통계적으로 평가하기 위해 불확도 계산에 사용된다.

2.2 미계량물질 측정과 불확도 계산

정량적인 의미로 미계량물질은 시설의 핵물질 input, output을 측정함과 동시에 실제 재고 측정을 실행함에 따라 한 기간의 물질수지를 계산하여 장부재고와 실재고의 차이를 말한다. 또한 측정된 미계량물질은 그 불확도의 범위에서 미계량물질이 있는지 없는지를 통계검정에 따라 평가하게 된다. 따라서 측정된 미계량물질에 대한 통계검정의 신뢰성은 미계량물질의 불확도값에 의존하며, 이 불확도값의 결정은 측정장비의 오차, 측정순서, 조작 및 물질수지등에 따른 오차전파의 정확한 처리와 개개의 측정에 따른 측정오차의 신뢰성이 중요한 요소가 된다. 미계량물질의 불확도를 구하기 위해 물질수지기간중에 대상 핵물질의 벌크측정, 샘플링 및 분석측정을 통계적 랜덤 오차(random error)와 계통오차(systematic error)로 상세히 추적하고 그 프로세스에서 발생한 오차의 전파를 고려하여, 각 핵물질형태별(stratum) 주요 대상 핵물질의 측정 오차분산을 구하고 그 총계를 계산하는 것이다[2, 3]. 기준파이로시설의 계량 측정을 위한 방안은 표 1에서 설명된 네 가지 분석측정방법들 가운데 핵물질형태별 한 가지

방법을 사용하게 되고 미계량물질의 불확도 계산은 IAEA 오차전파 모델을 기본으로 하여 사용된 분석측정방법의 해당오차를 적용하게 된다. 따라서 계량관리를 위해 사용된 모든 장비들의 오차와 분석을 위한 샘플링방법 오차들이 결정된다면 기준파이로시설에서 처리되는 사용후핵연료 처리양에 따른 미계량물질 측정과 그 불확도는 통계적으로 평가가 가능하게 될 것이다.

3. 결론

이 연구주제는 기준파이로시설에서 사용되어 질 수 있는 다양한 방안가운데 현재 가능한 계량측정 시스템 방안을 제시하고 제시된 방안을 바탕으로 미계량물질의 측정 불확도 결정식 제시하였다. 그러나 추후 계량시스템에 대한 방안은 최종 계량관리 시스템을 도출할 수 있도록 계속적으로 연구 보완 될 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었다.

5. 참고문헌

- [1] 신뢰성 의. 기준파이로시설 설정을 위한 파이로 시설 개념설계 현황 분석, KAERI/TR-3985/2009
- [2] IAEA Safeguards Technical Manual, IAEA-TECDOC-261, (1982).
- [3] Jaech, J. L., "Statistical Methods in Nuclear Material Control", TID-26298, U.S. Gov't Printing Office, Chpt. 6, (1973)

국내 사용후핵연료의 열·재료 및 구조적 특성

김용수

한양대학교, 서울시 성동구 행당동 17번지

Yongskim@hanyang.ac.kr

1. 서론

현재 발전소내 임시저장시설에 저장되고 있는 사용후핵연료는 2016년이면 포화 상태에 이를 것으로 예상되고 있다. 이러한 문제를 해결하기 위해 현재 사용후핵연료 건식저장 연구가 활발히 진행되고 있다.

건식저장에서는 사용후핵연료에서 발생하는 잠열로 인해 연료봉은 높은 온도를 가지게 된다. 이러한 고온과 긴 저장시간은 사용후핵연료의 건전성에 영향을 미치게 되는데, 그 주요한 요인들로는 지연수소화현상, Creep Rupture 그리고 SCC(stress corrosion cracking)가 있다[1].

위 세 가지 요인들은 모두 사용후핵연료의 잠열과 봉내압에 의해 직접적으로 영향을 받고 있으며 피복관에 용해되어있는 수소함유량과 산화막에 의해 간접적으로 영향을 받고 있다.

따라서 건식저장의 건전성 평가를 위해서는 이러한 사용후핵연료의 특성에 대한 분석이 선결적으로 요구된다. 본 연구에서는 국내 대표 사용후핵연료의 방사능 및 열·재료 및 구조적 특성을 Origen 코드와 Frapcon-3 코드를 통해 평가하였으며 이를 통해 건식저장을 위한 초기 조건을 제시하고자 한다.

2. 본론

2.1 국내 대표 사용후핵연료

사용후핵연료의 특성은 제원, 연소도, 연소이력 등에 의해 결정된다. 따라서 먼저 국내에서 방출된 사용후핵연료들에 대한 자료를 총망라 분석하여 가장 대표적인 사용후핵연료 세 그룹을 선정하였다.

국내 원자력발전소는 크게 4가지 형태(14×14 W.H 형, 16×16 W.H 형, 16×16 표준형, 17×17 W.H형)로 나눌 수 있다. 그 중 17×17 W.H형에서 발생한 사용후핵연료가 57%로 가장 많으며, V5H (Vantage 5H), OFA, 그리고 KOFA으로 각각 41.6 %, 17%, 29.5%이다[2]. 따라서 W.H형 발전소 사용후핵연료의 최소, 평균, 그리고 최대 연소도인 27,000,

42,000 55,600 MWd/MTU에서 3가지 핵연료에 대한 특성을 NDR을 통해 조사된 최대와 최소 선출력을 바탕으로 선정된 연소이력을 통해 평가하였다.

2.2 사용후핵연료의 방사능 및 열적특성

방사능 및 열적 특성은 연료의 종류와 연소이력에 따라 큰 영향을 받지 않으므로 연소도에 따라 서만 평가하였다. 붕괴열의 경우 발생 직후 집합체당 5,000 W에 달한다. 하지만 이후의 변화양상은 방사능의 경우와 비슷한데 10년, 100년, 100만 년 시점에서 초기 대비 각각 0.1%, 0.01%, 0.003% 수준으로 감소한다(Fig. 1-2).

건식저장 시행이 예상되는 2017년을 기준으로 하여 평가된 방사능과 붕괴열을 Table. 1에 정리하였다. 최대, 평균, 최소 연소도인 집합체를 선정하여 평가된 방사능과 붕괴열은 선형적이지는 않지만 그 경향은 연소도에 비례한다.

Table 1. Decay heat and Radioactivity in 2017

Fuel Type	Burnup (MWdMTU)	Radioactivity (Ci)	Decay Heat (W)
17x17	55,681	2.259E+05	7.993E+02
	42,951	1.824E+05	5.797E+02
	29,020	8.829E+04	2.886E+02

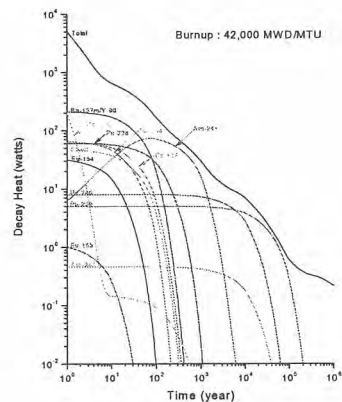


Fig. 1. Change of decay heat

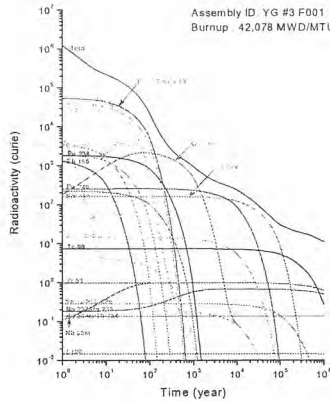


Fig. 2. Change of radioactivity

2.3 사용후핵연료의 재료 및 구조적 특성

수소함유량, 산화막두께, 그리고 봉내압은 연소도와 함께 증가한다(Table. 2). 하지만 동일한 연소도에서 연소이력에 따라 차이가 있는데(Fig. 3) 이러한 경향은 연소도가 높아질수록 더 크다(Fig. 4-5).

핵연료의 제원에 따라서도 사용후핵연료의 특성은 차이가 나는데 그 원인은 연료봉내 우라늄의 양과 clad-coolant film coefficient로 판단된다. 제원에 따른 차이는 연소이력에 비하여 크지 않다.

Table 2. W.H. type spent fuel characteristic

연소도(MWd/MTU)	27,000	42,000	55,600
봉내압(MPa)	2.86	3.51	7.41
산화막 두께(μm)	23.74	45.12	70.77
수소함유량(ppm)	204.63	353.09	553.03

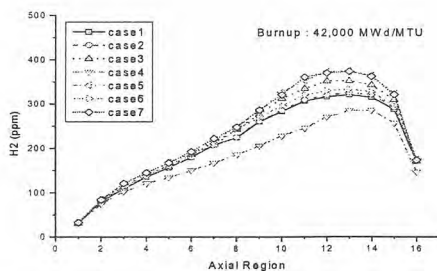


Fig. 3. Hydrogen concentration of OFA fuel (ppm)

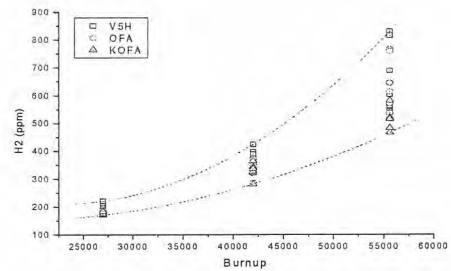


Fig. 4. Hydrogen concentration (ppm)

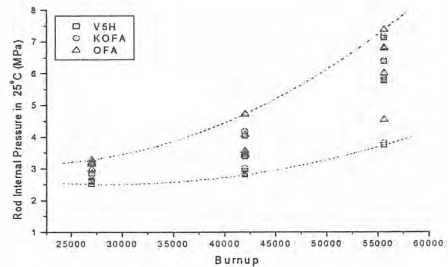


Fig. 5. Rod internal pressure in 25°C (MPa)

3. 결론

Origen 코드와 Frapcon-3 코드를 이용하여 국내에서 대표적인 사용후핵연료의 특성을 평가해보았다. 평가결과 연소도에 따라 열·재료 및 구조적 특성은 증가하는 것으로 나타났다. 그런데 재료·구조적 특성은 연료봉의 제원보다는 연소이력에 따라 큰 차이를 보였는데 그 경향은 연소도가 높아질수록 더 컸다. 따라서 고연소도일수록 연소이력에 따른 특성평가가 매우 중요하다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력연구원에서 시행한 방사성폐기물관리기술개발 사업에 참여하여 수행한 논문입니다.

5. 참고문헌

- [1] J. Kessler, Technical Bases for Extended Dry Storage of Spent Nuclear Fuel, EPRI-1003416, p. 3-4, 2002
- [2] Nuclear Design Report for Kori, Ulchin, and Yonggwang Nuclear Power Plant

미국 사용후핵연료 관리 정책: 2010년 현황과 전망

박병홍, 권은하, 이호희, 고원일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

bhpark@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료는 원자력 발전 과정에서 필연적으로 발생하고 있으며 지속적이며 안정적인 원자력 발전의 확대를 위해서는 이에 대한 관리 정책의 필요성 역시 중요한 문제로 대두되고 있다. 원전 운영 국가들은 자국의 상황에 따라 몇 가지로 구분될 수 있는 사용후핵연료 관리 정책을 견지하고 있으나 전체적으로 사용후핵연료 관리는 원전을 운영하는 국가들이 공동적으로 해결해야 할 과제이다.

현대 사회에서 전 세계에 대한 미국의 영향력은 언급할 필요가 없을 정도이며 원자력 분야에서도 예외는 아니다. 따라서 미국의 사용후핵연료 관리 정책 동향은 항상 주시할 필요가 있으며 우리나라 사용후핵연료 관리 정책의 참고를 위해 미국의 최근 의미 있는 움직임들에 대한 이해가 필요한 상황이다. 본 연구에서는 미국 사용후핵연료 관리 정책의 변화와 이후 전개될 방향성을 가늠하기 위해 최근 자료를 분석하여 우리나라 정책 수립에 도움을 주고자 한다.

2. 본론

2.1 미국 원자력 현황

2010년 4월 현재 미국은 Fig. 1[1]과 같이 4개의 권역에서 총 104기의 원전을 가동하고 있다. 그 중 약 2/3인 69기는 가압경수로이며 나머지 35기는 비등경수로이다. 매년 약 2,000t의 사용후핵연료가 발생하고 있어 현재 약 6만t의 사용후핵연료가 모두 원전 내에 보관되고 있다.

미국 원자력 행정체계는 크게 대통령 산하 기관, 연방정부 산하 기관, 주정부 산하 기관으로 구분될 수 있으며 사용후핵연료와 관련하여 중추적인 역할을 하는 기관은 원자력 안전규제를 담당하는 대통령 산하 원자력규제위원회(NRC)와 원자력 이용 개발 정책을 주도하는 연방정부 산하의 에너지부(DOE)이다.

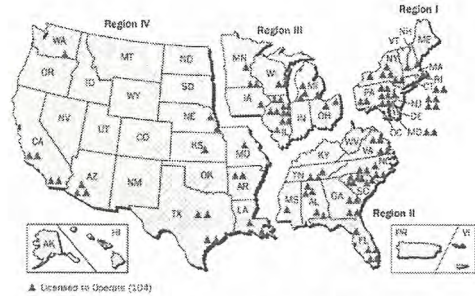


Fig. 1. Nuclear Reactors in the United States

2.2 미국 사용후핵연료 관리정책 변화

1970년대 후반까지 미국은 군사 프로그램으로 사용후핵연료 재처리 경험이 있었으며 건설 또는 운영되는 상업용 재처리 시설 3개를 보유하고 있었다. 그러나 1974년 인도의 핵실험과 이에 따른 정책 변화로 1977년 카티 행정부가 핵비확산을 명분으로 사용후핵연료 재처리 금지 정책을 발표하였다. 이어 1982년 방사성폐기물정책법(Nuclear Waste Policy Act: NWPA)을 확정하여 전력회사가 비용을 마련하고 DOE가 사용후핵연료 중앙집중식 처분장을 마련하여 1998년부터 처분을 시작하고 NRC가 처분장 인허가를 담당하는 역할을 의무화하였다. 그러나 DOE의 처분장 마련에 진전이 없었으며 전력회사들은 원전 내 저장조가 포화되는 상황을 타개하기 위하여 건식저장 기술을 개발하여 부지내 사용후핵연료 저장량을 늘려왔다.

2002년에 이르러서야 부시 대통령이 네바다주 유카마운틴을 처분장으로 승인하였으며 이후 DOE는 이 부지에 7만t의 사용후핵연료와 고준위 폐기물을 처분할 수 있는 심지층 처분장 건설을 추진하여 왔다. 그러나 건설은 계속 지연되었으며 결국 2009년 초 오바마 행정부의 DOE 장관은 유카마운틴은 더 이상 옵션이 아니라는 언급을 했다. 이어 정부는 2010 회계연도의 유카마운틴 건설 사업 예산을 대부분 삭감하여 사업을 실질적으로 중단시켰다. 그러나 전력회사로부터의 소송

에 대비하여 NRC의 인허가에 대한 취소 조치를 취하지는 않았다.

2.3 향후 정책 방향

2010년 1월 29일 DOE 장관은 해밀턴 전 상원의원과 스코우크로프트(전 국가안보자문)를 공동의장으로 15인의 “블루리본위원회”를 구성하였다. 위원회는 미국 사용후핵연료 관리정책을 전면 재검토하여 2011년 8월 중간보고서, 2012년 2월 최종보고서로 사용후핵연료 관리 전략을 제시하도록 되어있다.

블루리본위원회가 활동을 시작한 초기이기에 아직 어떠한 방향의 정책을 제안할 것인가를 쉽게 예단할 수는 없다. 그러나 위원회의 탄생 배경과 오바마 정부의 정책 성향을 고려하면 유카마운틴 프로젝트로 회귀하는 결론을 도출하지는 않을 것이다.

최근에는, 연방정부가 추진해왔던 과거 전략이 실효를 거두지 못한 상황에서 주정부로 사용후핵연료 관리 의무를 옮기려는 주장들이 제시되고 있다. 2009년 Midwestern 대학들의 교수들은 보고서[2]를 통하여 실질적인 방안을 제시하였다. ‘Plan D’로 명명된 이 방안은 사용후핵연료 관리 기술을 개발하기 위해 건식저장을 확대하여 시간을 확보하는 방안이다. 또한 사용후핵연료 저장 및 장기관리 책임을 연방정부에서 전력회사들이 속한 주정부로 이관하며 방사성폐기물 기금을 예약기금으로 전환하여 사용후핵연료 시설을 유치하는 주에 보상 재원으로 활용할 것을 제시하고 있다. 이와 유사한 방법으로 Ewing과 von Hippel[3]은 Fig. 1과 같은 권역을 기준으로 사용후핵연료 중간저장 시설을 도입하자는 등의 분산형 해결책을 제시하고 있다.

3. 결론

미국 사용후핵연료 관리 정책은 오바마 정부 이후 전면 재검토에 들어갔다. 기존 중앙집중식 직접처분 정책은 폐기될 가능성이 높으며 지방정부가 사용후핵연료 정책의 상당부분을 담당할 것이 예상된다. 이와 병행하여 처분/처리와 같은 사용후핵연료 관리 기술은 지속적으로 연방정부 주도로 개발하여 적절한 시기에 정책에 반영될 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

- [1] www.nrc.gov/info-finder/reactor/#USMap
- [2] R. Ewing et al., “‘Plan D’ for Spent Nuclear Fuel”, ACDIS (2009)
- [3] R. Ewing and F. N. von Hippel, “Nuclear Waste Management in the United States – Starting Over”, Science, vol.325 (2009) pp. 151-152.

Study of the Eu^{2+} and Eu^{3+} coexist in LiCl-KCl Eutectic Melt by Spectrophotometry and Electrochemistry Method

Tack-Jin Kim, Akihiro Uehara*, Toshiyuki Fujii*, Hajimu Yamana*, Do-Hee Ahn, Han-Soo Lee

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

*Research Reactor Institute, Kyoto University, Asashiro Nishi, Kumatori, Sennan, Osaka 590-0494, Japan

ktj@kaeri.re.kr

1. Introduction

Molten salt based pyrochemical process receives attention as a possible separation technique for future reprocessing of spent nuclear fuel [1-2]. In order to ensure the pyrochemical process, it is necessary to understand the chemical behavior of lanthanides in the molten salt. Though most of lanthanides in molten salts take trivalent states, Eu, Sm, and Yb are possible to take divalent states under reducing conditions, and Eu(II) is the most stable among them. The redox potential of the $\text{Eu}^{2+}|\text{Eu}^{3+}$ couple has been reported for various chloride melts [3-4]. Those reports suggest the existence of Eu(II) in the chloride systems. In electrochemical analysis with molten salts, yttria stabilized zirconia membrane electrodes (YSZME) are largely used as an activity indicator of oxide anion, O^{2-} [5]. In the present study, the effect of the coexisted Eu^{2+} on the potentiometric titration of Eu^{3+} was examined.

2. Experimental and Results

2.1 Sample Preparation

Anhydrous LiCl-KCl eutectic and EuCl_3 (99.99% purity) were purchased from Aldrich-APL LLC. Anhydrous EuCl_2 (99.99% purity) and Na_2CO_3 (99.999% purity) were products of Aldrich. The reference electrode and counter electrode were consisted of a closed-end Pyrex glass tube. As a working electrode, a pyro-graphite rod and Pt wire were used. Alumina crucible was used at the titration experiment. The pO^{2-} indicator electrode

was a tube of yttria-stabilized zirconia filled with LiCl-KCl containing Na_2CO_3 and AgCl. An Ar gas was ventilated through the melt during the titration experiments. The electrochemical study was performed with a measurement system, Hz-3000. Electronic absorption spectra were measured by using a spectrophotometer, JASCO V-570. The concentration of Eu was determined by ICP-AES. The chemical composition of precipitants was analyzed by X-ray diffraction analysis. All the sample preparations, absorption spectrometry, and electrochemistry, were carried out in a glove box under a purified argon atmosphere.

2.2 Determination of the ratio of concentrations $[\text{Eu}^{2+}]/[\text{Eu}^{3+}]$ in the LiCl-KCl eutectic

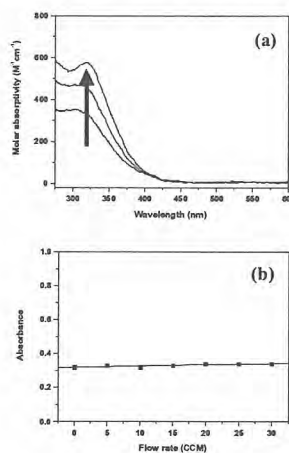
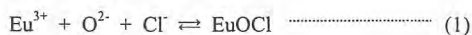


Fig. 1. (a) Change of absorption spectrum of europium ions with argon bubbling in the LiCl-KCl eutectic melt at 773K. (b) Plot of absorbance vs. argon flow rate in the LiCl-KCl eutectic melt at 773K.

The spectrum of Eu^{3+} was measured after oxidation Eu^{2+} completely to Eu^{3+} by controlled potential electrolysis. As the time passed, the spectrum of Eu^{3+} was increased. At last the intensity of absorption spectrum was same as initial absorption spectrum of EuCl_3 . It means that the same ratio of Eu^{2+} always coexisted with Eu^{3+} when EuCl_3 was dissolved in the LiCl-KCl eutectic melt at 773K. In order to confirm the relation of argon gas and ratio of $\text{Eu}^{2+}/\text{Eu}^{3+}$, argon gas was bubbled into the solution of Eu^{3+} . While argon gas passes through the melt, as shown in Figure 3-(a), there is the rapid increase of absorption spectrum intensity. When the intensity of absorption spectrum became constant, we did change argon gas flow rate to confirm the relation of argon gas flow rate and absorption spectrum intensity. As shown in Figure 3-(b), the intensity of absorption spectrum did not change. It means that the ratio of Eu^{2+} is not controlled by argon gas flow rate.

2.3 Potentiometric titration of Eu^{3+} with O^{2-} in LiCl-KCl eutectic melts at 773K

In order to determine $[\text{Eu}^{3+}]$ dissolved in the melt (the ratio of $[\text{Eu}^{2+}]/[\text{Eu}^{3+}]$), potentiometric titration of Eu in the LiCl-KCl eutectic at 773K was performed by adding Na_2CO_3 into the melt. The YSZ electrode was used after the calibration. As shown in Figure 2, it has only one equivalent point at $x < 1$ ($x = [\text{O}^{2-}]_{\text{added}}/[\text{Eu}^{3+}]_{\text{total}}$). Precipitations at the end of experiment were analyzed by X-ray diffraction spectrometry. EuOCl was confirmed in the XRD pattern. This result indicates that the Eu^{3+} was precipitated with O^{2-} according to the following reaction ;



The formation of EuOCl in the LiCl-KCl eutectic at 773K was observed at the theoretical equivalent point $x = 1$ [5]. Our result showed smaller equivalent point than the theoretical value. This difference could be explained based on the result for

ratio of $[\text{Eu}^{2+}]/[\text{Eu}^{3+}]$. Some percentage of Eu^{2+} always exists when EuCl_3 was dissolved in the LiCl-KCl eutectic at 773K under argon atmosphere.

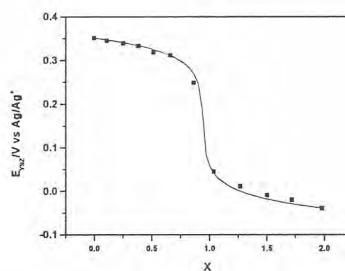


Fig. 2. Experimental potentiometric titration of a EuCl_3 in the LiCl-KCl eutectic with O^{2-} ions at 773K.

3. Conclusion

The spectrophotometry and electrochemistry method could be used to measure the ratio of $[\text{Eu}^{2+}]/[\text{Eu}^{3+}]$ efficiently. The existence of the europium divalent in the LiCl-KCl- EuCl_3 solution has been demonstrated by potentiometric titration method with YSZ electrode and Pt wire as a working electrode.

4. References

- [1] H.P. Nawada, K. Fukuda, J. Phys. Chem. Solids 66 (2005) 647
- [2] K. Uozumi, M. Iizuka, T. Kato, T. Inoue, O. Shirai, T. Iwai, Y. Arai, J. Nucl. Mater. 325 (2004) 34
- [3] A. Uehara, O. Shirai, T. Nagai, T. Fujii, H. Yamana, Z. Naturforsch. 62a (2007) 191-196.
- [4] S.A. Kuznetsov, L. Rycerz, M. Gaune-Escard, J. Nuclear Materials 344 (2005) 152-157
- [5] M.R. Bermejo, F. de la Rosa, Y. Castrillejo, E. Barrada, J. Electroanal. Chem. 603(2007) 81-95

고온 LiCl-KCl 용융염 내 Tb(III) 원소의 농도에 따른 형광분광 특성 분석

김봉영, 이동형, 윤종일

한국과학기술원, 대전시 유성구 과학로 335

rsyk@kaist.ac.kr

1. 서론

사용후 핵연료 건식 처리의 전해정련 공정과 전해 제련 공정은 LiCl-KCl 용융염을 전해매질로 하여 고온에서 진행되며 공정의 효율을 증대시키기 위해 실제 고온 전해매질 내 란타늄 및 악티늄 원소의 화학적 거동에 대한 연구가 필수적이다.

본 논문에서는 고온 LiCl-KCl 용융염 내 Tb(III)의 특성 연구를 위해 시간분해 레이저 유도 형광 분광기술(TRLFS, time-resolved laser-induced fluorescence spectroscopy)을 이용하여 Tb(III)의 농도에 따른 형광분광 특성을 분석하였다.

2. 본론

2.1 실험

TRLFS 실험은 글러브 박스 내 고순도 아르곤 가스 분위기(99.999 % Ar, H₂O and O₂ < 1ppm)에서 이루어졌으며 글러브 박스와 연결된 고온용광로를 작동하여 실험 온도를 540 °C로 일정하게 유지시켰다. 테르븀 시료는 LiCl-KCl 염(Sigma-Aldrich 99.99% purity, 44 wt.% LiCl)에 TbCl₃(Sigma-Aldrich 99.99% TbCl₃ powder)를 녹여 제조하였고 시료의 Tb(III) 이온 농도는 유도결합 플라즈마-원자 방출 분광법(ICP-AES)으로 분석하였다. 형광 스펙트럼은 266 nm 파장의 Nd:YAG 레이저 (Continuum, Surelite-20)를 광원으로 ICCD (intensified charge coupled device, Andor Technology, iStar)와 Czerny-Turner 분광계 (Andor Technology, shamrock sr-303i)를 결합한 시스템을 이용하여 광로 1 cm의 석영 셀에서 측정하였다.

2.2 결과 및 논의

고온(540 °C) LiCl-KCl 용융염내 Tb(III)의 형광 스펙트럼을 측정한 결과 ⁵D₃와 ⁵D₄에서 ⁷F_J (J = 0,...,6) 에너지 준위로의 복사전이에 의한 방출선이 측정되었다. 그림 1에 농도에 따른 형광스펙

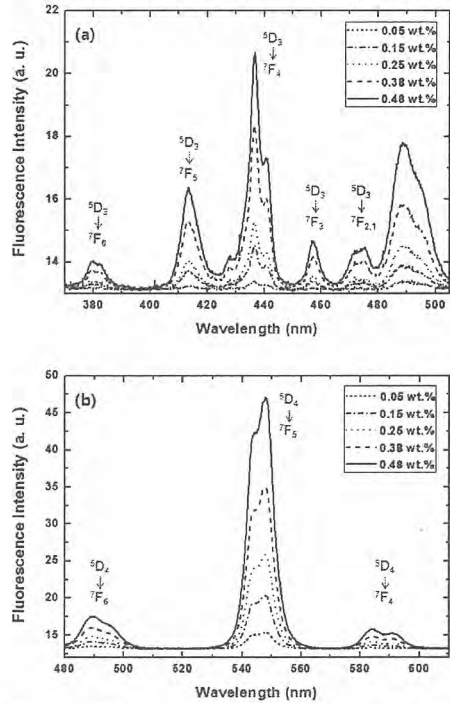


Fig. 1. Fluorescence spectra of Tb(III) in the concentration range from 0.05 wt.% to 0.48 wt.% by (a) ⁵D₃ → ⁷F_J (J = 1,...,6) and (b) ⁵D₄ → ⁷F_J (J = 4,...,6) transition at 540 °C

트럼을 비교하였다. Tb(III) 농도가 증가함에 따라 ⁵D₃와 ⁵D₄의 전이에 의한 형광스펙트럼의 세기는 강해진다. Tb(III) 농도 변화에 따라 복사전이 방출선들간의 형광세기 비율이 일정하여 가장 강한 세기를 갖는 ⁵D₃ → ⁷F_{4,5}와 ⁵D₄ → ⁷F₅ 복사전이 스펙트럼만을 이용하여 Tb(III) 농도에 따른 형광세기 곡선을 그렸다 (그림 2). 그러나 농도가 증가함에 따라 선형적으로 형광세기가 증가하는 일반적인 특성과는 달리 선형에서 크게 벗어난 결과를 얻었다. 이와 함께 Tb(III)의 형광수명이 고온의 LiCl-KCl 내에서는 농도가 증가함에 따라 증가하는 이상 현상이 나타났다. 형광수명의 증가는 형광세기 증가에 영향을 주므로 측정된 형광수명으로 보정된 형광세기는 Tb(III) 농도가 증가

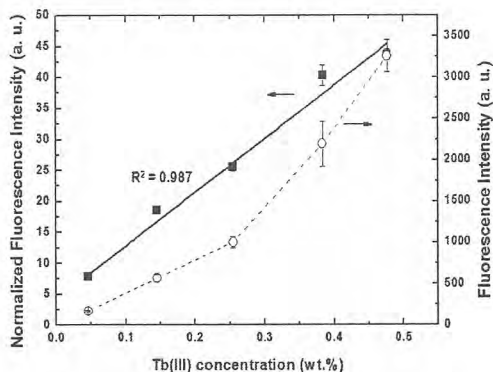
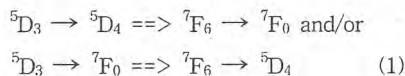


Fig. 2. Calibration curve with and without normalizing the fluorescence intensity ($^5D_3 \rightarrow ^7F_{4,5}$ and $^5D_4 \rightarrow ^7F_5$) to lifetime

함에 따라 선형적으로 증가하는 결과를 나타냈다. Tb(III)의 경우 높은 농도에서 Tb(III) 이온간의 여기상태와 바닥상태의 공명에 의해 교차완화(cross relaxation) 현상이 일어나며 기전은 다음 식으로 표현된다 [1,2].



낮은 농도에서는 5D_3 전이에 의한 방출선이 강하게 나타나고 농도가 높아질수록 교차완화에 의해 5D_3 에서 5D_4 전위로 완화된 비율이 높아져 5D_4 전이에 의한 방출선이 강해지게 된다 [3]. 그러나

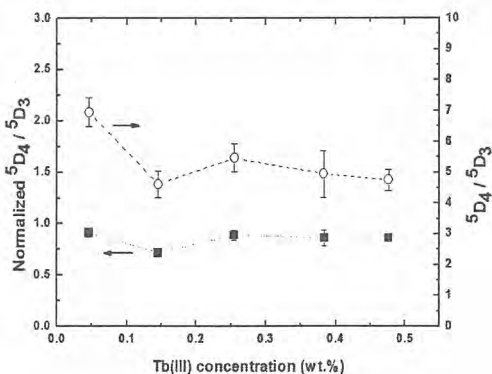


Fig. 3. Fluorescence intensity ratio of 5D_4 to 5D_3 with and without normalizing to lifetime as a function of Tb(III) concentrations

본 연구의 실험환경에서는 농도 증가에 따라 5D_4 과 5D_3 형광 세기의 비가 크게 변화되지 않아 교차완화현상이 관찰되지 않았다(그림 3). 이는 교차완화현상이 온도와 관련되어 일정 온도 이상에서는 더 이상 5D_4 와 5D_3 전이에 의한 형광 세기의 비가 변화되지 않는 실험결과와 관계된다 [4]. 이에 대한 정확한 분광기전의 이해를 위해 추가적인 실험이 진행되고 있다.

3. 결론

시간분해 레이저 유도 형광 분광법을 이용하여 고온 LiCl-KCl 용융염 내 녹아있는 Tb(III)의 형광특성 연구를 수행하였다. Tb(III) 형광수명은 농도가 증가함에 따라 증가되며 이를 보정한 형광 세기는 Tb(III) 농도와 선형적인 관계를 갖는다. 본 실험 조건에서는 Tb(III) 농도 증가에 따른 공명완화현상이 나타나지 않았으며 이는 온도에 의한 영향으로 추정된다. 이에 대한 정확한 기전을 알기 위해 추가적인 연구가 필요하다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부에서 주관하는 EEWS 사업의 일환으로 수행되었습니다. (EEWS: Energy, Environment, Water, and Sustainability)

5. 참고문헌

- [1] Progress in Solid State Chemistry, Vol. 18, No. 2, pp. 79-171, 1988
- [2] Physica B, Vol. 391, pp. 339-343, 2007
- [3] The Journal of Chemical Physics, Vol. 44, No. 9, pp.3514-3522, 1966
- [4] 한국방사성폐기물학회, 2010년 춘계학술발표회 논문요약집 수록 예정, 2010

레이저 유도 파열 분광법을 이용한 LiCl-KCl 용융염 시료 내 Na, Tb, Mo 원소 분석

이동형, 김봉영, 윤종일

한국과학기술원, 대전시 유성구 과학로 335

isaac_lee@kaist.ac.kr

1. 서론

레이저 유도 파열 분광기술 (LIBS, laser-induced breakdown spectroscopy)은 시료의 전처리 과정이 불필요하고 원거리 측정이 가능하여 방사성 폐기물 유리화 공정 중 유리용탕 성분 분석뿐만 아니라 고준위 액체 핵폐기물에 포함되어 있는 백금(platinum) 그룹 금속 원소들(Pd, Rh, Ru)의 정성·정량분석에도 응용되는 등 원자력 분야에서 그 활용도가 증가되고 있다 [1, 2].

본 연구에서는 사용후핵연료 건식처리공정 중 순환전압전류법(cyclic voltammetry)을 이용하여 고온 LiCl-KCl 용융염에서 Tb(III)의 환산계수 및 형식전위(formal standard potential) 측정실험에서 생성된 시료를 LIBS 기술을 이용하여 그 구성 원소들의 용융염 내 공간분포를 분석하였다.

2. 본론

2.1 실험

순환전압전류법실험은 글러브박스 내 아르곤 분위기 내에서 삼전극 시스템을 이용하여 진행되었으며 실험 온도는 610 °C로 유지되었다. 삼전극 중 작업전극(WE, working electrode)과 대전극(CE, counter electrode)은 Mo(순도 99.99%)를 사용하였고, 기준 전극(RE, reference electrode)으로는 Ag/AgCl(순도 99.99%)가 사용되었다. 시료는 LiCl-KCl 염(Sigma-Aldrich, 순도 99.99%, 44 wt.% LiCl)에 TbCl₃ (Sigma-Aldrich, 순도 99.99%)를 녹여 제조 되었다.

LIBS실험의 광원으로는 펄스폭이 약 4.8 ns, 파장이 532 nm 인 Nd:YAG 레이저(Brilliant B)를 사용하였으며 15 mJ의 에너지를 초점길이 7.4 cm 볼록렌즈를 이용하여 시료에 입사시켰다. 이때 발생하는 플라즈마의 원자발광스펙트럼은 에셀레(Echelle) 분광기 (LLA, ESA 3000)를 사용하여 분석하였다.

2.2 결과 및 논의

순환전압전류법실험으로 생성된 용융염 시료의 색 변화는 전극표면부식 등에 의해 연유됨을 추측할 수 있다. 그림 1은 고온에서 녹은 용융염 시료를 상온에서 식힌 후 석영 셀을 제거한 것이다. 고온에서는 용융염이 투명하지만 상온의 결정 상태에서는 흰색을 보인다. 하지만 전극부식으로 인해 생성된 시료의 색은 회색을 띄고 시료 아래 부분은 검은색으로 얇은 막이 형성된 것을 볼 수 있다. 이러한 용융염 내 형성된 부식물은 실시간으로 라만 혹은 형광스펙트럼을 측정하는데 영향을 준다. 용융염 시료 내 주요 원소들이 어떻게 분포하는지 확인하기위해 시료의 아랫면, 내부, 그리고 옆면을 20번의 레이저펄스를 통해 스펙트럼을 얻고, 각 위치마다 세 번의 측정을 반복하여 실험오차를 구하였다.

그림 2는 각 위치에서 측정된 스펙트럼 중 주요 원소가 존재하는 파장 영역에서의 스펙트럼을 보여준다. 그림 2(a)는 시료의 주성분인 K의 여기된 중성원자로부터 발광되는 404.41 nm, 404.72 nm, 그리고 주성분 원료에 불순물로 포함된 Na의 LIBS 신호(588.99 nm, 589.59 nm)를 보여준다. 그림 2(b)에서는 발광세기가 가장 강한 Tb 이온 발광선(350.91 nm)과 Mo 중성원자 발광선(379.82 nm)의 신호를 보여준다.

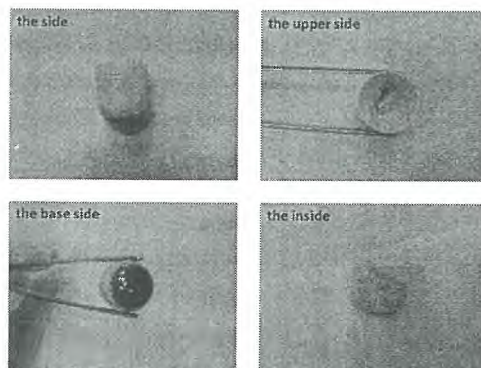


Fig. 1. Spatially different colors of the molten chloride salt sample

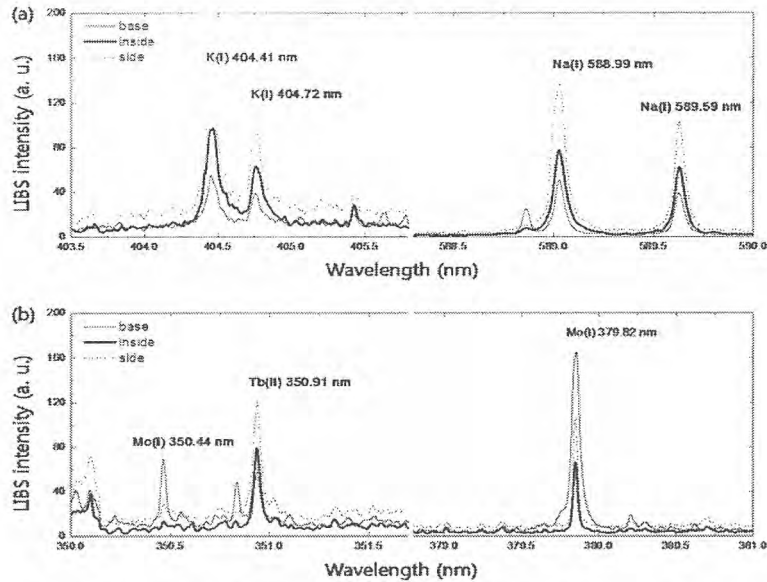


Fig. 2. LIBS spectra of molten salt sample in the different wavelength range

LIBS 신호세기는 입사 레이저 에너지, 초점 거리, 시료의 표면 상태 등 다양한 요인에 의해서 달라질 수 있다. 본 실험에서는 시료의 굴곡진 면과 거친 면을 바로 측정하였기 때문에 용융염 시료의 위치에 따라서 측정 환경이 다르다. 이러한 측정환경의 변화로 인해 야기되는 문제를 해결하기 위하여 시료의 주요 구성성분인 K의 신호(404.72 nm)를 기준으로 상대적인 Na, Tb, 그리고 Mo의 신호세기 비를 구하였다. 그리고 모든 신호세기는 농도가 높은 원소들의 자체흡수에 의한 스펙트럼선이 넓어지는 현상을 고려하기 위해 Lorentz 함수를 적용하여 피팅한 후 얻은 넓이 값을 사용하였다. K 신호세기에 대한 Na와 Tb 신호세기의 비는 시료의 세 위치에 대해 각각 4 %, 7 % 정도의 오차를 보여 시료 내에 고르게 분포되어 있음을 알 수 있었다. 하지만 Mo의 경우 시료의 아랫면이 다른 면에서 측정한 값 보다 11배 가량 큰 값을 보여 주었다. 이는 전극부식으로 형성된 Mo이 용융염 내에서 고르게 분포하지 못하며 많은 양이 침전되어있음을 보여준다.

3. 결론

레이저 유도 파열 분광 기술을 이용하여 용융염 시료 내 포함되어 있는 나트륨과 테르븀 그리고 몰리브덴의 위치에 따른 농도분포를 측정하였다. 본 실험을 통해 극미량 존재하는 불순물 Na

과 실제시료인 Tb은 시료 내에 균질적으로 분포되어있음을 확인하였다. 이와 달리 몰리브덴은 순환전압전류법실험으로 인한 전극부식으로 인해 용출현상을 보이며 이 결과 용융염 내에서 비균질적으로 분포됨을 본 연구를 통해서 알 수 있었다. 앞으로 용융염 내에서 란탄족 원소들의 정성 분석뿐만 아니라 정량분석을 위해서 검정곡선을 구하고 이를 통해 용융염 내에서 전극반응과 용해원소의 화학적인 거동에 대한 이해를 도모하고자 한다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부에서 주관하는 EEWS 사업의 일환으로 수행되었습니다. (EEWS: Energy, Environment, Water, and Sustainability)

5. 참고문헌

- [1] Applied Spectroscopy, Vol. 56, No. 4, pp. 437-448, 2002
- [2] Journal of Analytical Atomic Spectrometry, Vol. 24, pp. 1545-1550, 2009

LiCl-KCl 용융염 내 란탄족 원소(Tb^{3+} , Eu^{3+}) 형광신호의 온도 의존성 연구

정의창, 배상은, 차완식, 박용준, 배인애, 송규석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
eciung@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료의 재활용을 목적으로 하는 고온전해분리 공정(pyroprocessing)에서는 용융염 매질에 포함된 란탄족 및 악티늄족 원소의 실시간 정량분석이 필요하다. 현재에는 ICP-AES (Inductively Coupled Plasma-Atomic Emission Spectrometry), 또는 ICP-MS (Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry) 등의 기술을 이용하여 용융염 내에 포함된 미량 원소의 정량분석을 수행하고 있다. 상용화된 기기를 이용하는 이러한 기술은 정확한 정량분석이 가능하다는 장점이 있지만 고온의 용융염 매질을 대상으로 하는 실시간 정량분석에는 적합하지 않다. 한편 고온전해분리 공정의 효율을 증대시키기 위해서는 고온의 매질 조건에서 란탄족 및 악티늄족 원소의 거동을 이해하는 것이 필요하다. 현재에는 이 원소들의 거동을 실시간으로 조사하기 위해 전기화학적 기술이 주로 이용되고 있다.

최근 들어 고온전해분리 공정에서의 미량 란탄족 원소를 대상으로 정량분석 및 고온 조건에서의 거동을 동시에 조사하기 위해 흡수 분광학(absorption spectroscopy) 기술을 이용한 사례가 일본의 연구진을 비롯한 몇몇 연구진에 의해 지속적으로 보고되고 있다. 일반적으로 원자 및 분자 분광학 분야에서는 시간분해 레이저 형광 분광학(TRLFS, Time-Resolved Laser Fluorescence Spectroscopy) 기술을 이용하는 것이 흡수 분광기술을 이용하는 것에 비해 100배 이상 우수한 측정감도(detection sensitivity)를 얻을 수 있는 것으로 알려져 있다. 그럼에도 불구하고 현재까지 TRLFS 기술을 이용한 용융염 연구 사례는 보고된 바가 많지 않다.

이 논문에서는 고온 용융염 매질에 포함된 미량 란탄족 원소를 대상으로 TRLFS 기술을 이용하여 원소의 정량분석 및 거동을 조사한 결과를 보고한다. 다른 란탄족 원소보다 형광 세기가 센 Tb^{3+} , Eu^{3+} 이온을 대상 원소로 선정하였다.

2. 본론

2.1 실험

TRLFS 실험장치의 구성은 참고문헌 [1]에서 설명한 것과 유사하고, 용융염 실험을 수행하기 위한 glove box 및 고온 로(furnace) 장치는 참고문헌 [2]에서 설명한 것과 동일하다. Nd:YAG 레이저의 제 3 고조파 레이저빔(펄스 에너지 ~10 mJ, 펄스 폭 ~6 ns, 반복률 10 Hz)을 시료에 입사시켰을 때 발생하는 레이저 유도 형광을 그림 1에 보였다. 그림 1(a)는 LiCl/KCl 용융염 시료($EuCl_3$ 0.5% 포함)가 500 °C에서 녹아 액체 상태로 변한 상태를 보이고 있다. 그림 1(b)는 이 시료에 레이저빔이 입사되었을 때 Eu 화학종에서 발생하는 형광을 보이고 있다. 참고문헌 [1]에서 사용한 것과 동일한 광검류 다발을 이용해 형광을 모아 분광계에 전송함으로써 형광 스펙트럼을 기록하였고, 오실로스코프를 이용해 형광수명을 측정하여 고온 상태에서의 원소 거동을 조사하였다.

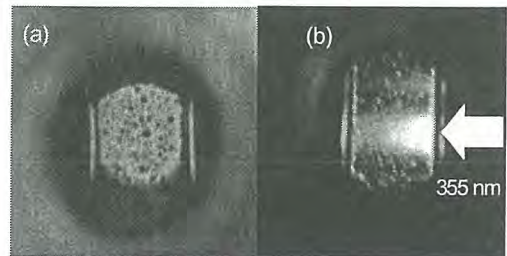


Fig. 1. (a) Liquid phase of molten LiCl/KCl eutectic containing 0.5% $EuCl_3$ at 500 °C, (b) laser-induced fluorescence of Eu species for the same sample.

2.2. 결과 및 논의

그림 2에 Tb^{3+} 화학종의 형광 스펙트럼을 나타내었다. 고온 용융염 매질에서 Tb^{3+} 화학종의 거동을 이해하기 위해 수용액 매질, 상온의 용융염 매질, 400 °C의 용융염 매질에서 측정된 형광 스

펙트럼을 그림 2의 (a), (b), (c)에 각각 비교하였다.

그림 2(a)에서는 Tb^{3+} 이온의 $^5D_3-^7F_J$ ($J=0-6$) 전이에 해당하는 자외선 및 청색 파장 영역에서의 형광이 거의 보이지 않고 $^5D_4-^7F_J$ ($J=0-6$) 전이에 해당하는 녹색 파장 영역의 형광이 주로 보인다. 이는 레이저빔에 의해 높은 에너지 상태로 들뜬 이온이 수용액의 O-H 진동과 연계되어 비복사 감쇠(nonradiative decay)하는 현상으로 해석할 수 있다. O-H 진동을 피할 수 있는 용융염 매질에서는 $^5D_3-^7F_J$ 전이에 해당하는 자외선 및 청색 파장 영역의 형광 스펙트럼이 나타난다. 그림 2(c)에서 원부호로 표시한 두 개의 봉우리(436 nm, 545 nm) 형광 세기 비가 용융염 온도(368-594 °C 범위)에 따라 달라지는 현상을 관측하였고, 이 현상을 이해하기 위해 각 온도에서의 형광수명을 측정, 비교하였다. 관측한 현상을 용융염 매질에서 발생하는 cross-relaxation 효과(5D_3 와 5D_4 , 7F_0 와 7F_6 에너지 준위 사이의 에너지 전달 효과)로 설명하였다. 그림 2(b)에 보인 상온에서의 특징적인 스펙트럼을 분석하기 위해 용융염에 포함된 란타늄 원소의 함량을 변화시키며 형광 특성을 측정하는 연구가 진행되고 있다.

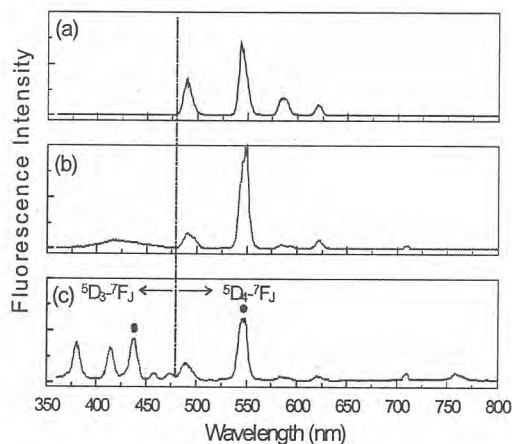


Fig. 2. Fluorescence spectra of Tb^{3+} (0.25%) species in H_2O (a), in LiCl/KCl salt at room temperature (b), and in molten LiCl/KCl salt at 400 °C.

3. 결론

고온 용융염 매질 내 란타늄 원소의 정량분석 및 고온 조건에서의 거동을 실시간으로 조사하기 위해 TRLFS 기술을 이용하였다. Tb^{3+} , Eu^{3+} 화학

종을 대상으로 고온 조건에서 온도에 따라 변화하는 형광신호의 특징적인 양상들을 정리하였다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

5. 참고문헌

- [1] 정의창, 조혜륜, 박경균, "시간분해 레이저 유도 형광 분광학을 이용한 U(VI) 가수분해 화학종 규명 연구", 방사성폐기물학회지, Vol. 7, No. 3, pp. 133-141, 2009
- [2] Y-H. Cho, T-J. Kim, Y-J. Park, H-J. Im, K. Song, "Electronic absorption spectra of Sm(II) and Yb(II) ions in a LiCl-KCl eutectic melt at 450 °C", J. Lumin. Vol. 130, pp. 280-282, 2010

제4분과

사용후핵연료 및 핵연료 주기 (Poster)

빈 면

고체-액체 통합형 음극 장치에 대한 연구

권상운, 박기민, 김정국, 심준보, 김광락, 백승우, 김시형, 안도희, 이한수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150

swkwon@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로프로세스의 여러 기술들 가운데 용융염 매질에서 전기화학적으로 분리하는 공정의 연구가 가장 활발하며, 전해환원, 전해정련 및 전해제련 등의 단위공정들로 구성된다. 파이로프로세스의 원리는 우라늄, 희토류 원소, TRU 원소 및 귀금속 등으로 구성된 ingot 양극으로부터 용융염으로 녹아나오는 원소들 중에서 우라늄을 고체음극에 전착시켜 제거하고(전해정련), 나머지 원소들 중에서 악티나이드 원소들을 액체음극에 전착시켜 회수하는(전해제련) 것이다[1,2].

전해정련 공정에서는 고체음극을 이용하여 순수한 우라늄을 분리하며, 이때 전착되는 우라늄의 순도를 고려하여 용융염중의 Pu/U의 비가 2.5~3 정도에 이를 때 까지만 회수하고, 나머지 우라늄과 TRU 원소들(악티나이드)은 액체음극을 이용하여 회수한다. 따라서, 용융염 중에는 많은 양의 우라늄이 남아 있고, 이는 후속공정인 전해제련 공정에서 액체음극을 이용하여 우라늄을 포함한 TRU 원소들의 회수시 우라늄이 덴드라이트를 형성하여 전해제련 조업에 어려움을 준다.

본 연구에서는 액체음극의 조업을 안정적으로 수행하기 위한 새로운 형태의 전극으로 고체-액체 통합형 음극을 제안하였다.

2. 본론

액체 음극 표면에 생성되는 우라늄 덴드라이트의 생성을 억제하고, 성장을 막는 장치를 개발하기 위하여 미국 및 일본 등의 국가에서 많은 연구가 진행되고 있다. 미국 알콘 연구소에서는 상하로 움직이면서 회전/교반하는 파운더(Pounder)라고 하는 기기를 이용하여 덴드라이트 상을 액체 카드뮴 음극으로 밀어 넣는 장치를 개발하였으며, 이는 용융염중의 Pu/U의 무게 비가 클 경우에 효과적이었다. 일본에서는 액체 카드뮴 음극 표면에 성장하는 우라늄 덴드라이트를 상하 한

쌍의 회전 날개에 의하여 파쇄, 전단하거나 혹은 상하 한 쌍의 이동판에 의하여 압축, 분쇄 후 카드뮴 음극 내부로 침강시키는 방법을 이용하였다. 또 일본의 전력중앙연구소(CRIEPI)에서는 카드뮴 액체음극 내부를 패들(paddle) 형태의 교반기로 교반해줌으로써 덴드라이트의 형성 없이 우라늄 전착량을 어느 정도 늘리는 방법을 개발하였다[3].

그러나, 이 방법들은 원칙적으로 용융염중의 초기 우라늄 농도가 높으면, 덴드라이트의 생성과 성장을 잘 막지 못하거나 제어가 어렵다는 문제점이 있다.

액체 음극 운전중 우라늄 덴드라이트가 음극 표면에 생성 혹은 성장되는 것을 막을 수 있는 다른 방법으로는 적절한 방법으로 액체음극 운전 전에 먼저 용융염중의 우라늄을 어느 정도 제거하여 Pu/U의 비를 크게 해주는 것이다. 그러나 이 경우 회수된 우라늄에는 용융염이 많이 함유되어 있어, 액체음극에서 악티나이드계 원소를 얻기 위해 증류하는 과정을 거치듯 용융염 제거 과정을 따로 거쳐야 하며, 전해정련을 위한 고체음극, 전해제련을 위한 고체음극과 액체음극 등 세 종류의 음극으로 인해 전해조 내부가 구조가 복잡해지는 문제가 있다.

본 연구에서 제안하는 고체-액체 통합형 음극은 액체 음극 상부에 생성되는 우라늄 덴드라이트의 생성과 성장을 억제하면서, 악티나이드계 원소를 회수하기 위한 방법이다. 즉 먼저 고체전극으로 용융염 중의 우라늄을 추가로 제거하여 용융염 중의 Pu/U의 비를 2.5~3 보다 크게 높인 후, 액체전극을 사용하여 악티나이드계 원소를 회수하면 액체전극 표면에 우라늄 덴드라이트의 생성 및 성장의 억제가 가능해져 액체음극의 조업 안정성이 커지므로 악티나이드계 원소를 효율적으로 회수할 수 있다.

고체-액체 통합형 음극은 그림 1에서처럼 고체 전극부와 액체 전극부로 구성되며, 고체 전극부는 고체 전극 지지대, 고체 전극 지지대 하부에 부착되는 고체 전극, 고체 전극 지지대 내부를 관통하

여 고체 전극과 연결되는 고체 전극 리드선 등으로 이루어지고, 액체 전극부는 고온에서 액체인 카드뮴(Cd)과 같은 액체 금속으로 이루어진 액체 전극, 액체금속조(crucible) 및 액체 전극 리드선 등으로 이루어진다.

3. 결론

액체음극 표면에 생성되는 우라늄 덴드라이트의 생성을 억제하고, 성장을 막아 액체음극의 조업을 안정적으로 수행하기 위한 새로운 형태의 전극으로 고체-액체 통합형 음극을 제안하였다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 원자력연구개발 사업의 지원으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] J. J. Laidler, J. E. Battles, W. E. Miller, J. P. Ackerman, and E. L. Carls, Progress in Nuclear Energy, 31, 131 (1997).
- [2] S. W. Kwon, D. H. Ahn, E. H. Kim, and H. G. Ahn, J. Ind. Eng. Chem., 15, 86 (2009).
- [3] Koyama., J. Nucl. Mater., 247, 227 (1997)

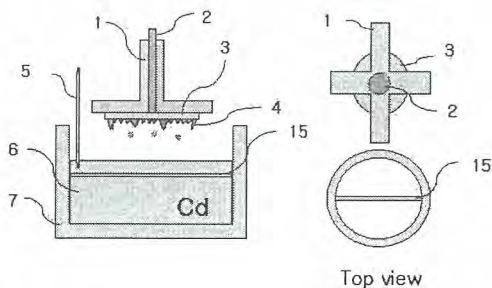


Fig. 1. Schematic diagram of the solid-liquid integrated cathode [1: 고체 전극 지지대, 2: 고체 전극 리드선, 3: 고체 전극, 4: 우라늄 전착물, 5: 액체 전극 리드선, 6: 액체전극, 7: 액체 전극 반응조, 8: 전해제련조, 9: 용융염 전해질, 10: 양극(anode), 11: 양극 리드선, 12: 전원]

LiCl-KCl 용융염에서 우라늄의 전기화학적 특성 연구

윤달성, 백승우, 김시형, 김광락, 심준보, 안도희
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 yds0127@kaeri.re.kr

1. 서론

전해제련공정은 액체카드뮴음극 (Liquid Cadmium Cathode)을 사용하여 용융염 중 악티늄족 원소를 동시에 회수함으로써 파이로프로세스의 핵 비확산성을 입증하는 중요한 공정이다. 한국원자력연구원에서는 LCC구조에 따라 우라늄의 회수 성능평가 연구가 진행되고 있으며, 이를 수행하기 위해 악티늄족 원소들의 전기화학적 특성 및 메커니즘을 파악하는 것이 중요하다. 이에 대한 많은 연구결과들이 보고되고 있지만, 전해질의 농도 및 조성, 온도, 그리고 전극의 상태 등 실험조건이 다르기 때문에 보고된 전기화학적 특성을 본 공정에 적용하기 매우 힘들다. 따라서 본 연구에서는 우라늄의 전해 실험을 수행하기 위하여 LiCl-KCl- UCl_3 용융염을 제조하였으며, 우라늄 전착 시 인가될 전류밀도와 음극전위의 관계를 확인하였다. 또한 voltammogram을 이용하여 50 $^{\circ}\text{C}$ 용융염에서 U^{3+}/U , U^{4+}/U 의 산화/환원 반응의 특성을 파악하고, 우라늄의 diffusion coefficient값을 계산하였다.

2. 실험 및 결과

LCC의 우라늄 전해 실험을 수행하기 위해 Fig.1의 실험 장치를 준비하였으며, 전해 실험은 수분, 산소 농도가 1 ppm 이하의 아르곤 분위기의 글러브박스에서 수행 되었다. LiCl-KCl-2wt% UCl_3 를 준비하기 위해 온도가 500 $^{\circ}\text{C}$ 인 LiCl-KCl 용융염 2.5 kg에 40 g CdCl_2 와 우라늄 덩어리를 넣어 식 (1)과 같이 반응시켰다.



Fig.2는 반응 단계에 따른 cyclic voltammogram을 보여준다. 음극과 양극전극의 재료로는 1mm와 3mm 폴리브덴 전극이 사용되었으며, 기준전극으로 Ag/LiCl-KCl-1wt%AgCl 전극을 사용하였다. 초기 LiCl-KCl 용융염의 CV(주사속도 : 50

mV/s) 측정결과 0~-2.0 V 사이에서는 깨끗한 potential window를 볼 수 있었으며, CdCl_2 를 첨가하면서 -0.3~-0.6 V 영역에 Cd^{2+}/Cd 의 산화/환원 peak이 나타났다. 약 15시간 반응이 진행 된 후에는 -1.4 V 부근에서 U의 산화/환원 peak를 볼 수 있었으며, Cd의 산화/환원 peak는 사라진 것을 확인할 수 있었다. UCl_3 반응이 완료된 용융염의 chronopotentiometry를 수행하기 위해 인가전류를 20 mA/cm^2 에서 200 mA/cm^2 로 단계별 증가 및 감소시키면서, 각 인가전류에서 20초 동안 유지하여 안정화된 전압을 구할 수 있었고, 이를 통하여 polarization curve를 Fig.3에 나타내었다.

LiCl-KCl-2wt% UCl_3 용융염의 CV (주사속도 : 0.1~0.6 V/s) 결과를 Fig.4에 나타내었다. CV는 0.5 V에서 -1.8 V의 전위범위에서 수행이 되었으며, -1.4 V 부근에서 peak I_{ac} 가 관찰 되었다. 이는 U^{3+}/U 의 산화/환원 반응에 해당하는 peak로 사료된다. 또한, 0.3 V에서 -0.5 V 범위에서는 I_{ac} 의 peak가 관찰 되었으며 보고된 연구에 의하면 $\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+}$ 의 산화/환원 반응에 해당하는 것으로 생각된다. 다른 연구의 우라늄 전해 실험에서 보고된 바와 같이 I_{ac} 에서 pre-peak (UPD, Under Potential Deposition)을 관찰 할 수 있었다[1]. 이 결과를 이용하여 주사속도에 따른 우라늄 환원 peak 전류를 구한 결과 Fig.5와 같이 직선관계를 나타내었다. 따라서 우라늄의 환원 반응의 속도는 우라늄의 확산속도에 의존하는 것을 알 수 있으며, Randles-Sevcik식 (2)로부터 우라늄의 diffusion coefficient를 $1.25 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$ 로 구하였다. 이 계산 값은 다른 저자들에 의해 보고된 $2.5 \times 10^{-6} \sim 5 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$ 값에 크게 벗어나지 않는 것을 확인하였다[2].

$$i_p = 0.61(nF)^{3/2} (RT)^{-1/2} AD^{1/2}Cov^{1/2} \quad (2)$$

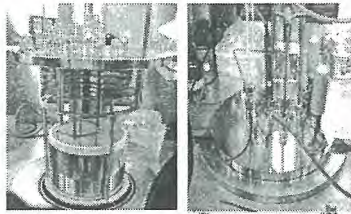


Fig. 1. Lab-scale electrowinner

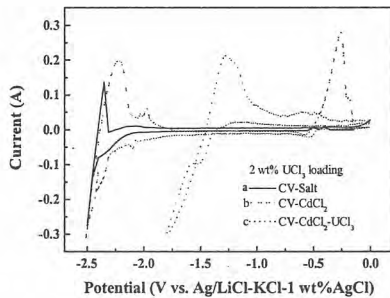


Fig. 2. CV curves of LiCl-KCl-UCl₃ at each reaction step

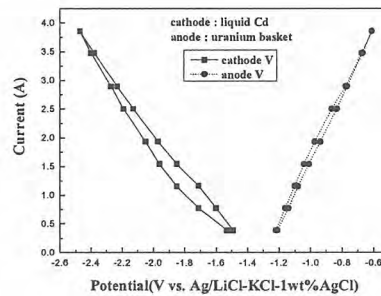


Fig. 3. Polarization curve/LiCl-KCl-2%UCl₃

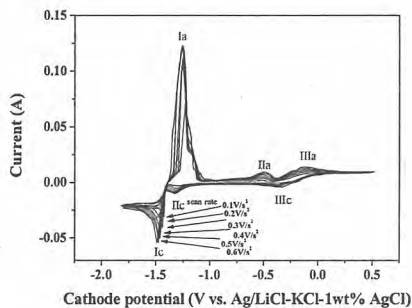


Fig. 4. CV of LiCl-KCl-2wt%UCl₃ at 0.1~0.6 V/s scan rate

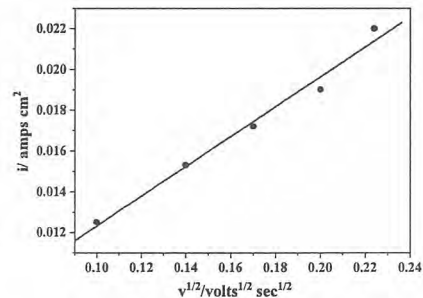


Fig. 5. Dependence of peak current (peak Ic) on square root of scan rate

3. 결론

본 연구에서는 전해제련 공정에서 우라늄 전해 실험을 수행하기 위해 LiCl-KCl-2wt%UCl₃ 용융염을 준비 하였으며, 이에 대한 LiCl-KCl-UCl₃ 계에서의 chronopotentiometry, polarization curve 및 cyclic voltmetry 에 대한 전기화학적 실험 자료를 제시하였다. Chronopotentiometry 분석방법을 통하여 전해실험에서 인가될 전류 범위에서 전류밀도와 전위의 관계를 알아보았으며, CV실험을 통하여 특정전위에서 U³⁺, U⁴⁺ 이온의 산화/환원 반응을 관찰 할 수 있었다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] O. Shirai, T. Iwai, et al., Journal of Alloys and Compounds, 271-273, 685-688 (1998).
- [2] B. Prabhakara Reddy, et al., Electrochimica Acta, 49, 2471-2478, (2004).

고온 LiCl-KCl 용융염 내 UCl_3 합성반응에서 일어나는 U 산화수 변화

배상은, 조영환, 박용준, 송규석

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

sks@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력 발전소에서 발생하는 사용후핵연료에는 방사성 폐기물을 포함하기 때문에, 원자력 발전량이 증가함에 따라 이의 관리 및 처리에 대한 관심이 현재 그 어느 때보다 높다. 그 폐기물의 처리법으로써 건식법과 습식법이 있으며 우리나라에서는 핵비확산성을 띠고 있는 건식법을 주로 연구하고 있다. 건식법은 선진 핵연료주기 (Advanced Fuel Cycle) 공정으로 불리기도 하며, 이 공정 중 전기화학적 기술이 핵심으로 사용되는 공정은 고온화학공정(Pyrochemical Processing)이다. 고온화학공정은 사용후핵연료를 전처리 후, LiCl-KCl 공융염을 약 500 °C의 고온에서 녹인 액체 전해질에 녹여 전기화학 셀을 구성하여, 우라늄, 초우라늄과 같은 원소를 작업전극에 전착 (electrochemical deposition)공정으로, 전해환원, 전해정련, 전해제련으로 나뉜다.[2, 3]. 전해정련공정에서 용융염 내 녹아있는 우라늄을 작업전극으로 환원전착 시키는데 용융염 전해질의 특성상 전착 반응을 초기화하는데 용융염 전해질 내 UCl_3 가 필요하다. 이 UCl_3 는 상업적으로 구입할 수 없으며 방사성을 띠는 화합물이기 때문에 합성 시 사용량의 정확한 개량과 합성 후 폐기물의 최소화가 요구된다.

이 논문에서는 UCl_3 를 합성하는 과정에서 일어나는 U 원소의 산화수 변화를 전기화학적, 분광학적 방법으로 조사하여 그 합성과정에서 일어나는 화학반응의 반응 메커니즘을 연구, 규명하여 결과를 발표하고자 한다.

2. 실험 및 결과

2.1 실험

본 연구에서는 LiCl-KCl 공융염을 500 °C에서 녹인 후 UCl_3 , $BiCl_3$, 또는 $CdCl_2$ 를 첨가하고 1.0 mol%의 AgCl을 함유한 LiCl-KCl 공융염이 담긴 파이렉스 유리관을 기준전극으로, 텅스텐을 상대전극 및 작업전극으로 사용하여 전기화학적

삼전극 셀을 구성하였다. 전압전류조절기는 Gamry사의 Reference 600을 사용하였으며 모든 실험은 산소와 습기가 1 ppm 이하로 유지되는 글로브 박스에서 수행하였다.

분광학 실험을 수행하기 위한 장치는 참고문헌 [4]에서 설명한 것과 동일하다.

2.2 결과

그림 1은 고온 용융염 내 UCl_3 를 녹인 후 텅스텐 전극을 작업전극으로 사용하여 측정한 순환전압전류 곡선이다. 이 결과에서 우라늄 +3가는 -1.45 V 영역에서 금속으로 환원전착되며 -1.4 V 영역에서 환원된 우라늄 금속의 산화 피크가 나타난다. 우라늄 +3/+4가 원소의 산화환원 반응은 -0.4 V 영역에서 일어나며 Cd 전착반응은 이보다 낮은 -0.6 V 영역에서 일어난다. 또한 Bi 환원 전착반응은 우라늄 +3/+4, Cd 0/2+ 산화환원반응 전위보다 높은 +0.1 V 영역에서 일어난다. 이러한 결과로부터 Bi^{3+} 이온이 가장 강한 환원력을 나타내며 U^{4+} , Cd^{2+} , U^{3+} 순으로 환원력이 감소함을 알 수 있다.

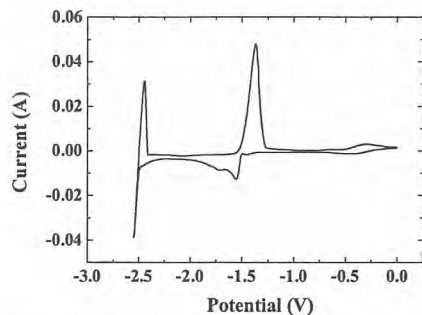


Fig. 1. Cyclic voltammograms at a tungsten electrode in LiCl-KCl containing 0.085 mol/kg U^{3+} . Scan rate: 100 mV/s.

그림 2는 CdCl_2 를 이용하여 우라늄을 금속으로부터 U^{3+} 를 제조하는 과정에서 측정된 UV-VIS 흡수 스펙트럼을 보여주고 있다. 초기 낮은 흡광도에서 시간이 지남에 따라 U^{3+} 의 특성 피크인 480 nm, 570 nm 영역에서 $5f^3-5f^26d^1$ 전이에 기인한 피크들이 나타나서 점차 커지고 있다.

이러한 전기화학적 분광학적 결과를 이용하여 UCl_3 의 합성 동안에 일어나는 반응 원소들의 산화수변화를 알 수 있으며 이 결과를 이용하여 화학반응 메커니즘을 조사하여 보고하고자 한다.

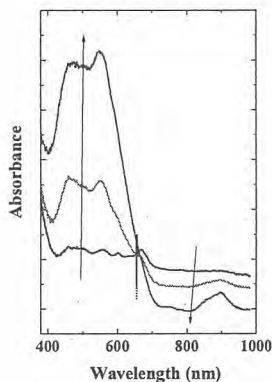


Fig. 2. UV-VIS absorption spectrum of LiCl-KCl containing 0.0028 mol/L Cd^{2+} and 0.00099 mol/L U during UCl_3 synthesis.

3. 결론

전기화학적, 분광학적 방법을 이용하여 고온 용융염 내에서 UCl_3 를 합성하는 과정을 연구하였다. 전기화학적 결과는 환원력의 세기가 $\text{Bi}^{3+} > \text{U}^{4+} > \text{Cd}^{2+} > \text{U}^{3+}$ 순임을 보여주었으며 분광학적 결과는 반응 과정상 나타나는 산화수 정보를 제공하였다. UV-VIS 측정 결과에 따르면 Cd^{2+} 에 의해 U^{3+} 가 바로 생성되거나 Bi^{3+} 를 이용한 합성은 다른 반응 과정을 거쳐서 일어난다는 것을 보여준다. 이러한 결과를 이용하여 UCl_3 합성과정 동안에 일어나는 화학반응의 메커니즘을 분석하였고 그 결과를 발표하고자 한다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받

았습니다.

5. 참고문헌

- [1] T. Inoue and L. Koch, *Nucl. Eng. & Technol.*, **40**, pp 183, 2008
- [2] J. H. Yoo, C. S. Seo, E. H. Kim and H. S. Lee, *Nucl. Eng. & Technol.*, **40**, pp 581, 2008
- [3] Y. I. Chang, *Nucl. Technol.*, **88**, pp 129, 1989
- [4] Y-H. Cho, T-J. Kim, Y-J. Park, H-J. Im, K. Song, *J. Lumin.* **130** pp 280, 2010

고온 구조 재료 분석 및 U 전착물과 eutectic 반응 특성

이성호, 조춘호, 박성빈, 강희석, 이성재, 전완기, 박기민, 이한수, 김정국

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

shlee6@kaeri.re.kr

1. 서 론

전해정련공정에서 회수되는 우라늄 전착물은 30~%정도의 Salt를 포함하고 있어 전해정련공정내 염증류 공정에서 염증류시킨 후 U의 재활용 및 중간 저장을 위해, 잉곳주조 공정에서 U 잉곳을 제조한다. 그러나, 염증류 장치에서 Distiller 및 Screw 재질로 Stainless steel 304를 사용할 경우 725°C 부근의 온도에서 재료 성분인 Fe와 U 전착물과 eutectic 반응이 일어나, Fe_2U 및 FeU_6 의 공용혼합물(Eutectics)이 형성되어 FeU_6 및 Fe_2U 의 공용융 온도는 각각 810°C 및 1231°C 이며, 비교적 낮은 온도에서 구조 재료에서 녹아 나와 구조 재료를 취약하게 한다. 일반적으로 700°C 이상의 고온에서 사용되는 장치의 구조 재료는 열 안정성을 고려하여 INCONEL 617 및 HATELLOY 등의 Ni를 주성분으로 하는 합금이 사용되어진다. 본 연구에서는 700°C 이상의 고온에서 운전되어지는 Screw type 연속식 염증류 장치 구조 재료 설계 및 U 전착물 염증류 운전 온도 범위 선정을 위한 기초 기술 자료를 구축하기 위하여, 먼저 일반적으로 고온에서 열안정성 및 내구성이 우수한 예비 고온 구조 재료들의 열화학적 특성에 대해 조사/분석하였다. 또한 U 석출물과 고온 구조 재료의 주요 성분인 Fe, Ni, Cr, Mo 등과의 eutectic 반응 특성에 대한 연구를 수행하였다.

2. 본 론

2.1 고온구조 재료 및 주요 구성 성분.

800°C 이상의 고온에서 운전되는 독일의 He 냉각 HTR 에서 구성기기들의 고온 구조 재료로 사용하기 위하여 고려되었던 고온 재료 및 재료의 주요구성 성분은 표 1 에 나타내었다. 표 1 에서와 같이 INCOLOY 800H, HASTELLOY X 및 INCONEL 617 등의 고온 재료들의 주요 성분은 Ni 및 Cr의 양이 많은 반면, TMZ 의 경우 Ni

및 Cr의 양에 비해 Mo의 양이 많아 고온에서의 재료강도는 우수하나, 구조재료로 사용하기에는 재료비가 고가이고 가공성이 나쁜 단점이 있다.

Table 1. Nominal composition of high temp. alloy

Alloy ^a	Nominal composition (wt%)						
	C	Fe	Ni	Cr	Co	Ti	Mo
INCOLOY 800 H (X 10 NiCrAlTi 32 20)	0.08	bal.	32.0	21.0	-	0.4	0.4
HASTELLOY X (NiCr 22 Fe 18 Mo)	0.07	18.0	bal.	22.0	1.5	-	9.0
INCONEL 617 (NiCr 22 Co 12 Mo)	0.07	-	bal.	22.0	12.5	0.4	9.0
NIMONIC 80 A	0.08	-	bal.	19.5	-	2.2	1.4
ALLOY 713 LC	0.05	-	bal.	12.0	-	0.6	6.0
TZM	0.02	-	-	-	-	-	bal.

2.2 U 과 고온 재료의 주요 성분과의 eutectic 반응 특성

U 석출물과 고온 구조 재료의 주요 성분인 Ni, Fe, Cr 및 Mo 등과의 eutectic 반응 특성에 대해 조사 분석하기 위하여 먼저 U-metals phase diagram 을 조사 분석하였다.

그림 1 에 나타낸 U 과 Ni와의 phase-diagram 분석 결과에서와 같이 740°C에서 U과 Ni와의 eutectic 반응이 일어나며, Ni이 rich한 영역에서는 Ni_2U 및 Ni_6U 형태의 공용융체가 각각 형성되어 공용융 온도는 985°C 및 1233°C이며, U이 rich한 영역에서는 NiU_6 형태의 공용융 혼합물이 형성되어 공용융 온도는 790 °C 이다.

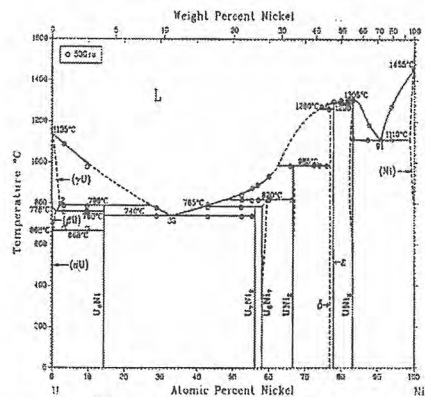


Fig. 1. U-Ni phase diagram

그림 2 에 나타난 U과 Fe와의 phase-diagram 분석 결과에서와 같이 725°C에서 U과 Fe과의 eutectic 반응이 일어나며, Fe가 rich 영역에서는 Fe_2U 형태의 공용융체가 형성되어 공용융 온도는 1231°C이며, U이 rich 한 영역에서는 FeU_6 형태의 공용융 혼합물이 형성되어 공용융 온도는 810°C 이다.

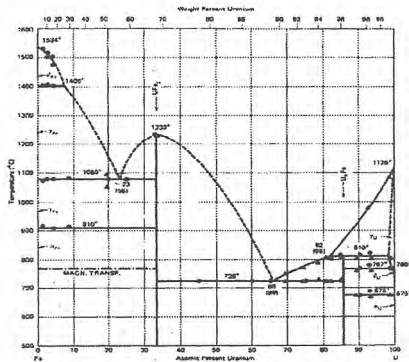


Fig. 2. U-Fe phase diagram

Table 2. Gibbs free energy Fe_2U formation.

Temperature (K)	Gibbs energy of Fe_2U formation (kJ per g-atom)				
998	-20.1	-17.9	-20.0	-13.0	-14.7
1504	-13.8	-18.4	-18.5	-13.4	-15.7
Method	Calc.	Exp.	Exp.	Est.	Calc.

Fe가 rich 영역에서는 Fe_2U 형태의 공용융 혼합물이 형성되는 eutectic 반응의 Gibbs free energy는 표 2 에 나타내었다. 표 2에서와 같이 725°C 및 1231°C에서 eutectic 반응시 Gibbs free energy 변화가 negative 값을 나타냄으로 이들 온도에서 Fe-U의 eutectic 반응은 자발적으로 일어남을 알 수 있다.

3. 결 론

700°C 이상의 고온에서 운전되는 Screw type 염증류 장치 구조 재료 선정을 위해, 먼저 고온에서 열안정성 및 내구성이 우수한 예비 고온 구조 재료들의 열화학적 특성 및 구성 성분에 대해 조사/분석 하였다. 또한 연속식 염증류 장치의 예상 고온 구조 재료들의 주요 성분인 Fe, Ni, Cr, Mo 와 U 전착물과의 eutectic 반응 특성 연구를 수행 함으로 연속식 염증류장치 고온 구조 재료 설계 및 U 전착물 염증류 운전 온도 범위 선정을 위한 기초 자료를 구축하였다.

우라늄 전해정련에서 우라늄 용해에 대한 전기화학적 특성평가

이성재, 강영호, 박성빈, 황성찬, 전완기, 이한수, 김정국
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

leesunigai@kaeri.re.kr

1. 서론

전식 전해정련 공정은 LiCl-KCl 공융염을 전해질로 이용한 전기분해 방법으로, 사용후핵연료로부터 순수한 우라늄을 회수하고자 이용하는 방법이다. 전해정련 반응은 크게 다음의 세 가지 단계에 의하여 일어난다; i) 애노드에서 일어나는 우라늄 용해, ii) 용해된 우라늄 이온이 캐소드 쪽으로 이동, iii) 캐소드에서 일어나는 우라늄 석출.

Li [1]의 최근 연구에 의하면 전해정련 반응의 속도는 애노드의 우라늄 용해에 의해 결정되고, 특히 우라늄 내의 이동 (internal diffusion)이 속도 결정 단계 (rate-determining step; RDS)라고 하였다. 그러나 이 결과에 대한 정량적인 분석 및 전기화학적 고찰이 충분히 이루어지지 않았다.

따라서 본 연구에서는 전해정련 중 애노드에서의 우라늄 용해에 대한 전기화학적 고찰로, 우라늄 용해과정 중 전기화학적 활성면적 변화 및 저항의 변화를 정전류 용해법과 순환전류전압법을 통하여 정량적으로 결정하고자 하였다.

2. 실험방법

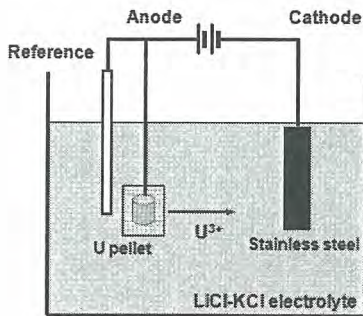


Fig. 1. Experimental apparatus.

본 실험에 사용된 전해정련 실험 장치는 Fig. 1에 도시하였다. 모든 실험 및 시약의 취급은 공기 및 수분의 접촉을 피하기 위하여 공기 및 수분이 약 10 ppm으로 유지되는 glove box 내에서 수행

하였다. 전해실험 중 전해질은 500 °C가 유지되도록 하였다 [2].

3. 결과 및 고찰

3.1 우라늄의 전기화학적 용해 특성

우라늄 pellet의 전기화학적 용해 특성을 확인하기 위하여 분극곡선을 Fig. 2와 같이 측정하였다. Fig. 2를 통해 전기화학적 용해와 관련된 개회로 전위 (open-circuit potential) 및 교환전류밀도 (exchange current density)를 결정하였다.

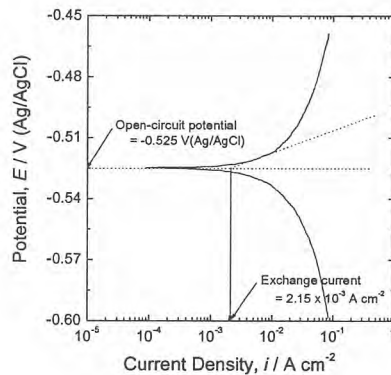


Fig. 2. Polarization curve for U dissolution.

3.2 우라늄 용해 중 면적 변화

용해 중 전기화학적 활성면적 변화를 정량적으로 측정하기 위하여 정전류 용해를 수행하는 중간에 순환전류전압 곡선을 측정하였다. 이때 전기화학적 활성면적은 전류가 0 근방에서 미분을 통하여 구한 기울기로부터 다음 관계식으로 정량적으로 결정하였다.

$$R_p = \frac{RT}{zFA_{act}i_o} \quad (1)$$

여기서, R_p 는 분극저항으로 전류가 0 근방에서 전류-전압 곡선을 미분한 값이다.

4. 결론

본 연구는 전해정련 중 애노드에서의 우라늄 용해에 대하여 전기화학적으로 분석하였다. 분극 곡선의 해석을 통하여 용해에 대한 개회로 전위 및 교환전류밀도를, 순환전류전압 곡선으로부터 용해중 전기화학적 활성면적 변화를 측정하였다.

5. 감사의 글

본 연구는 과학고과학기술부에서 주관하는 원자력중장기계획사업의 일환으로 수행하였습니다.

6. 참고문헌

- [1] S.X. Li, Proceeding of ICOM-8, ASME, Baltimore, MD, 2000
- [2] 강영호, 황성찬, 안병길, 김응호, 유재형, 한국공업화학회지, Vol.15, No.5, pp.513-517, 2004

용융염 전기화학 반응기의 모델기반 전기장 모사

김광락, 김지용*, 윤달성*, 백승우, 김시형, 심준보, 안도희, 이한수
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1450 (덕진동 150)

*과학기술연합대학원대학교, 대전광역시 유성구 과학로 어은동 52

krkim1@kaeri.re.kr

1. 서론

용융염 전기화학반응기의 전기화학적 전해거동을 예측하는 전산모델 개발이 파이로프로세싱 실험, 시스템 설계 그리고 운전개선을 위한 효율적인 접근방법으로 중요하다. 고온 및 고방사능 환경의 용융염 전해실험은 고비용이 불가피하다. 따라서 전해특성에 영향을 주는 여러 인자의 영향을 파악하기 위한 많은 실험을 수행하는 것은 경제적으로 그리고 시간적으로 비효율적이다. 이러한 모든 전기화학적 특성에 영향을 미치는 전해변수들의 거동과 운전조건 등을 실험으로 찾아낸다는 것은 많은 노력과 비용이 소요되어 사실상 불가능함으로 이를 수치적으로 모사하여 최적의 실험 범위를 예상하고, 이를 토대로 실험을 하는 방법이 보다 효과적이다. 그러므로 전해로내의 전해전위, 전기장, 전류밀도 분포 등을 전해셀 구조와 현상에 부합되는 모델기반 해석을 통하여 수치 모사 상으로 예측할 필요가 있다.

용융염 전기화학반응기 성능에 대한 수학적 모델의 목적은 전해 성능을 제한하는 문제점을 파악하며, 또한 작은 규모의 셀을 확장하여 크게 만들었을 때의 스케일업 성능을 예측하는 것이다. 이러한 목적으로 전해셀의 구조와 운전조건 등의 전해변수가 단위 전해셀의 성능에 미치는 영향과 예측을 위한 연구가 진행되어 왔다.

여러 가지 변수의 영향들을 직접 실험을 하지 않고 예측 가능한 방법으로 상용의 전산유체역학(이하 CFD) 소프트웨어 패키지에 전기화학모델을 연계하여 보다 눈에 띄는 가시적인 결과와 표현이 가능하다. 지금까지 다중물리해석을 기반으로 한 전지 및 부식분야의 전기화학 특성예측을 위한 모사연구가 활발히 진행되고 있으나 용융염 전해분리 분야에서의 연구사례는 제한적이다 [1].

본 연구에서는 주어진 단순형태의 용융염전해로 모형에서 전해질 유동장을 설정하고 CFD 기반의 전기화학모델을 커플링하였다.

정전류 인가조건인 전극계면에서의 이온의 물질 전달이 확산과 대류에 의해 제한되는 분극과 이로 인한 전극 과전압을 모사하였다. 수립된 모델로써 주어진 정전류 전해운전조건에서 공간 전해특성을 예측하고자 하였다.

2. 본론

2.1 이론

CFD 소프트웨어에서는 유동을 모사하는 모멘텀 및 연속방정식이 기본 전산모델의 체계로 되어있다. 3차원의 국부 유속(v)과 커플링된 비압축성 유체에서 이온의 전달방정식을 이온농도(C), 동적 확산계수(D_c) 그리고 질량소스(S_c)항으로 나타낼 수 있다.

$$\rho \frac{\partial C}{\partial t} + \rho \nabla \cdot (vC) = \rho \nabla \cdot (D_c \nabla C) + S_c \quad (1)$$

전극에서 전류인가(i_{app})에 의한 패러데이법칙에 의한 소스항은 (2)식으로 표현되며, 전극표면에서의 분극은 전극반응 속도식으로 일반화된 Butler-Volmer 방정식[2]에 의해 전극 과전압과 연관지을 수 있다.

$$S_c = \pm \frac{i_{app}}{nF} \quad (2)$$

원소 i 를 함유하는 용융염 전해질의 전도도(κ)는 다음 식으로 정의된다.

$$\kappa = F^2 \sum_i n_i^2 u_i C_{i, salt} \quad (3)$$

이 식에서 F 는 패러데이상수, n_i 는 원소 i 의 전자수, $C_{i, salt}$ 는 원소 i 의 농도, u_i 는 이온의 이동도를 나타내며, 희박 용액계에서는 다음 식과 같이 용융염 전해질에서 원소의 확산계수(D_i), 온도(T)

그리고 기체상수(R)와 관련지을 수 있다.

$$D_i = RTu_i \dots\dots\dots (4)$$

2.2 결과 및 토론

용융염 전해질의 유동장 영역을 격자화하고, 전극면을 포함한 유동마찰과 경계조건이 적용되는 면을 프리즘 격자로 처리하여 전기장 모사를 위한 도메인을 설정하였다. Ansys-CFX[3] 계산 체계(Fig. 1)에서 기본 유동 지배식 및 이온 전달방정식들로 구성되는 연립편미분방정식을 유한체적법으로 계수 루프를 통한 반복계산으로 해를 구하였다. 전해질의 유동과 이온확산 및 대류를 통한 이온의 플럭스를 전류 벡터로 연계하여 전기화학모델을 커플링할 수 있었다.

이온의 전극반응 속도식으로부터 전극계면의 Helmholtz 이중층 내부에서 정의한 활성화과전위를 도출하였으며, 벌크 전해질에서는 저항전위차를 고려하여 전체적인 전해질의 전위차를 예측할 수 있었다. 전극면에서의 국부 전류밀도 분포는 농도구배로부터 구할 수 있었으며, 전극면 형상에 따라 와류 유동에 의한 영향으로 수렴조건이 제한되는 경우도 있었다.

대상 전해셀을 단순화시켜 해석하였고, 앞으로 보완되고, 보다 다양한 조건에서의 전해로의 수치 모사를 실행하는 것이 목적이다. 수행한 전산 시뮬레이션 결과 각 중요 변수에 대한 영향을 미리 예측할 수 있기 때문에 셀의 치수나 전해조건들이 변화되었을 때의 전해분리의 성능을 예측할 수 있다. 실제 전해로를 설계하고 제작하는데 중요한 기초자료를 제공함은 물론 최적의 운전조건을 결정하는데 많은 도움이 될 것이다.

3. 결론

용융염 전해질을 사용하는 전기화학반응기를 대상으로 CFD 기반에서 전기화학모델을 커플링하여 전기장 해석을 위한 전산모델을 마련하였다. 수립된 모델로 주어진 정전류 전해운전조건에서 공간 전해특성을 예측할 수 있었다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 지원으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] 김광락 등, 한국방사성폐기물학회, 2009년 추계학술대회 논문요약집, pp.357-359, 2009
- [2] A. J. Bard and L. R. Faulkner, Electrochemical Methods, Fundamentals and Applications, John Wiley & Son, New York, p.87, 2001
- [3] ANSYS CFX-12.0 Solver 2008 (Cannonsburg: USA/ANSYS:www.ansys.com)

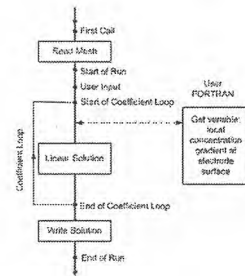


Fig. 1. Computational loop in CFX platform

우라늄-카드뮴 합금의 제조 및 증류거동조사

김지용, 안도희*, 권상운*, 김광락*, 백승우*, 김시형*

UST(University of Science & Technology), 대전광역시 유성구 과학로 113번지

*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

kjy82@kaeri.re.kr

1.서론

최근 세계적으로 에너지의 고갈, 환경오염 등과 관련된 문제점들이 대두되어지고 있으며 이 문제점을 해결하기 위한 가장 효율적인 에너지원으로써 원자력에너지가 각광받고 있다. 또한 에너지 자원부족문제의 해결과 지구의 온난화의 주범인 이산화탄소의 배출량을 감소시키기 위한 에너지원으로 원자력에너지의 사용이 향후 계속 증가할 것으로 예상된다.

원자력에너지는 이러한 장점을 통해 우리에게 필요한 전력을 공급해주지만 반면에 그에 따른 부산물인 사용후핵연료의 처리문제도 함께 발생하고 있다. 이러한 문제점을 해결하기 위한 사용후핵연료재활용기술의 하나로 각광받고 있는 파이로 프로세스공정은 기존의 처리기술에 비해 핵확산저항성이 상대적으로 높으며 경제적이란 이유로 사용후핵연료를 환경 친화적으로 관리하기에 적합한 기술로 인식되고 있다. 이러한 파이로 프로세스공정에서 전해환원(electroreduction)공정은 산화물 핵연료를 금속으로 전환시켜 후속공정인 전해정련에 금속연료를 제공하며 전해정련(electrorefining)공정은 500℃의 LiCl-KCl 용융염 매질에서 고체음극을 이용하여 우라늄을 선택적으로 회수한다. 전해제련(electrowinning)공정에서는 액체카드뮴음극(LCC, Liquid Cadmium Cathode)를 사용해 잔여우라늄과 TRU를 함께 회수하게 된다. 전해제련공정 중 카드뮴 증류공정은 LCC에서 회수된 actinide를 증기압 차이를 이용하여 분리하는 공정이다[1].

본 연구에서는 카드뮴 증류공정의 개발을 위해서 다양한 조건에서 카드뮴 증류속도를 측정하고 우라늄-카드뮴 합금을 제조한 후 이의 증류거동을 알아보았다.

2.본론

Fig. 1에는 본 연구에서 사용된 수직형 카드뮴 증류장치의 개략도를 나타내었다. 수직형 카드뮴 증류장치는 증류탑 본체, 진공펌프, 배가스 처리장치 및 제어시스템으로 구성되어 있으며, 증발조와 응축조의 crucible은 각각 알루미늄과 STS로 제작하였다[2].

우라늄-카드뮴 합금을 제조하기 위한 전해실험은 산소와 수분의 농도가 5ppm이하로 유지되는 글로브박스의 내부에서 수행되었으며 사용된 전해조는 열전대, 교반기, reference electrode(Ag/LiCl-KCl-1wt% AgCl), anode(uranium basket), cathode(liquid cadmium) 등으로 구성하였다. 또한 전해제련 용융염 전해조는 직경 15cm, LCC는 직경 5cm의 알루미늄 도가니를 사용하였으며 용융염의 온도는 500℃로 하였다. 실험 중에 발생하는 uranium dendrite를 제거하기 위해 mesh형 LCC구조를 사용하였으며 우라늄의 전착실험은 100mA/cm²의 전류밀도에서 4.25Ah까지 정전류 실험을 수행하였고 Faraday식에 의해 계산된 우라늄의 이론적 전착량은 3.8%로 추정된다.

우선적으로 수직형 카드뮴 증류장치에서 순수 카드뮴 금속을 증류온도 500~650℃의 범위에서, 증류압력은 0.1torr이하에서 실험을 수행하였다(Fig. 2). 이 조건에서 카드뮴의 증류속도는 12.3~40.8g/cm²h의 범위였으며 이 속도값은 아래의 Hertz-Langmuir 식과 비교한 결과 0.01이하의 증발계수 값을 나타내었다.

$$M = \frac{aP_i}{\sqrt{2\pi mRT}} \quad \text{..... (1)}$$

전해실험을 통해 제조된 U-Cd합금을 증류조 도가니에 넣어 600℃, 진공에서 동온조건으로 증류거동을 조사하였다. 그 결과 U-Cd합금의 증류속도는 동일조건인 순수한 카드뮴 금속의 증류속도에 비해 느리다는 것을 알수 있었다.

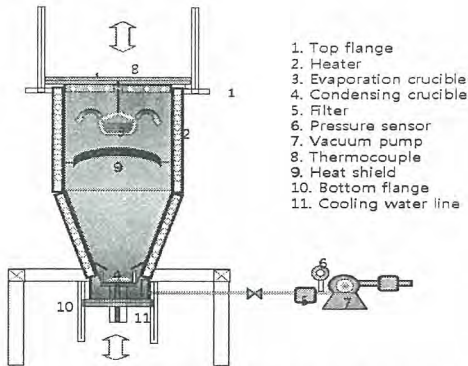


Fig. 1. Experimental set-up for cadmium distillation

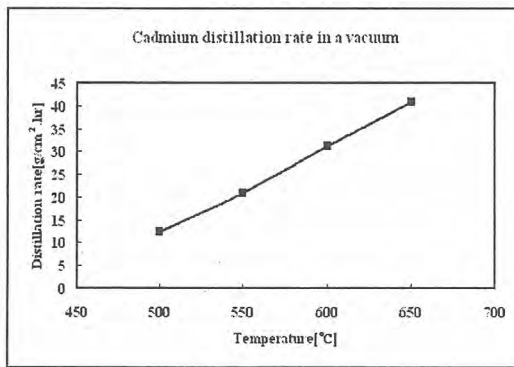


Fig. 2. Cadmium distillation rate in a vacuum

3. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 중장기계획사업의 지원으로 수행되었습니다.

4. 참고문헌

- [1] S. W. Kwon, J. Y. Kim, D. H. Ahn, H. S. Lee, H. G. Ahn, "A study on evaporation of cadmium for the recovery of actinides from a liquid cathode", J. Radioanal. Nucl Chem, 284, 143-149, 2010
- [2] 한국방사성폐기물학회, 2009년 추계학술발표회 논문요약집, pp. 331-332, 2009

가압을 이용한 LiCl-KCl-UCl_3 용융염 이송 및 펠렛제조 특성

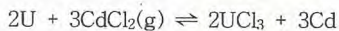
강희석, 우문식, 전완기, 김정국, 이한수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

hskang1@kaeri.re.kr

1. 서론

건설의 고온용융염 전해정련 방법은 사용후핵연료로부터 핵연료 원료인 U 및 TRU 금속의 회수를 위한 제한된 몇 가지 방법 중의 하나이다. 전해정련조에서 사용되는 전해액은 고온에서 액상으로 유지되는 LiCl-KCl 용융염이며, 이 용융염에는 U 및 TRU 금속과 여러 불순물이 포함된 양극에서 전기화학적으로 순수한 우라늄만 선택적으로 음극에 전착 분리시키기 위하여 초기 salt 용액에 충분한 양의 우라늄 이온이 존재해 있어야 한다. 상용의 UCl_3 확보가 곤란하므로 전해정련 반응을 위해서 직접 제조해야만 한다. 한국원자력연구원에서는 여러 가지 LiCl-KCl-UCl_3 용융염 제조 방법 중 우라늄 금속과 CdCl_2 산화제를 반응시켜 얻는 방법으로서



위 방법을 이용하여 LiCl-KCl-UCl_3 용융염을 제조한 바 있고, 이 반응에 사용된 산화제 CdCl_2 는 매우 가격이 높아 다량의 UCl_3 제조 시 경제성 문제가 있으며, UCl_3 를 제조하기 위해 사용된 산화제(CdCl_2)의 반응 후 잔유물로 남는 Cd 금속은 방사능 물질에 오염된 폐기물로 남게 되는 문제점이 있기 때문에 상대적으로 저렴한 Cd의 염소화반응을 거쳐 제조된 CdCl_2 를 산화제로 사용하는 제조장치를 제작하여 LiCl-KCl-UCl_3 용융염의 제조실험을 수행하였다. 이 공정에서 제조된 LiCl-KCl-UCl_3 용융염을 전해정련 공정에 공급하는 과정에서 LiCl-KCl-UCl_3 용융염 제조반응기에서 반응기 하부의 Cd 층을 제외하고 수작업으로 직접 용융염을 분리시켜야만 한다. 하지만 고화된 LiCl-KCl-UCl_3 용융염은 그 견고성으로 인하여 반응기로부터 분리 작업이 매우 힘들고 반응기 하부의 Cd 층과 명확한 분리가 용이하지 않으며, 용융염의 분리과정에서 다량의 분진이 발생될 뿐만 아니라 분리시킨 용융염의 형태도 일정하지 않아 여러 형태의 불편한 점이 야기되었다. 따라서 LiCl-KCl-UCl_3 용융염의 제조반응 직후 용융

온도에서 펠렛 제조 장치까지 액체 상태로 이송한 다음 펠렛 제조 장치에서 미리 크기와 모양이 정해진 몰드를 이용하여 펠렛 형태로 고화시킨 다음 전해정련 공정으로 공급할 필요가 대두되었다. 본 연구에서는 LiCl-KCl-UCl_3 용융염 제조반응 직후 용융온도에서의 용융염의 이송 및 펠렛 제조실험을 수행하였다.

2. 내용 및 결과

2.1 실험장치 제작

LiCl-KCl-UCl_3 용융염 이송 및 펠렛 제조실험을 위해 실험장치를 설계·제작하였다. 장치의 구조는 그림 1에 보인바와 같이 크게 용융염 수직 유도관, 용융염 수평 이송관, 펠렛제조장치 연결 수직 이송관, 그리고 펠렛 제조장치의 부분으로 구성되어 있다. LiCl-KCl-UCl_3 용융염 제조 시에 사용되는 염소가스의 강한 부식성과 용융염의 수분에 대한 강한 반응성 때문에 용융염의 이송 및 펠렛 제조장치의 내부 조작은 불활성 가스(알곤) 분위기에서 이루어져야 한다. 또한 염소의 강한 부식성과 400℃ 이상의 고온에서 수행되는 점을 고려하여 장치의 내부는 모두 내부식성을 갖는 스테인레스 스틸(STS-316L) 재질을 사용하였다. 이송관의 외부는 400℃ 이상의 고온을 유지하기 위해 반응기 및 펠렛제조장치 내부로 삽입되는 부분은 튜브히터로, 외부로 노출되는 부분은 처음부터 끝 부분까지 히터로 감아서 제작하였다. 용융염 펠렛 제조장치 내부는 그림 2에서 나타난 바와 같이 펠렛 제조용 몰드를 설치하였다. 몰드의 재질은 STS316, OD 90mm, T 3mm, H 250mm의 크기로 제작하였으며, 그림 3에서 보인 바와 같이 몰드 내부는 펠렛의 제조 크기를 조절하기 위한 격벽을 설치하였다. 격벽의 재질도 STS316을 사용하였고, T 3mm의 두께로 제작하였다. 격벽의 맨 위쪽 중앙 부분은 격벽의 전체 높이보다 약간 낮게 제작하여 이송된 용융염이 이송관에서 공급될 때 분사의 불균형으로 몰드의 격벽에 의해 나뉘어진

네 부분의 공간 중 어느 한쪽 공간이 먼저 채워지는 경우 인접한 공간으로 넘쳐 흘러들어가서 덜 채워진 부분을 순차적으로 채워질 수 있도록 유도하였다. 용융염 이송관의 내·외부 온도를 감시 및 조절하기 위해 elbow connector 내부 및 이송관 외벽에 그림 3과 같이 열전대를 설치하였다.

2.2 용융염 이송 및 펠렛 제조 실험

제작된 LiCl-KCl- UCl_3 용융염 이송 및 펠렛 제조장치를 LiCl-KCl- UCl_3 용융염 제조장치에 연결하고 용융염의 이송 및 펠렛 제조 실험을 수행하였다. 용융염의 이송 및 펠렛 제조실험은 고온에서 용융 및 용기 내 압력 조절에 의해 액체상태의 용융염을 고온에서 이송해야 하므로 실험장치 제작 직후의 초기 실험은 작업자의 안전을 위해 우라늄(UCl_3)을 제외한 LiCl-KCl 용융염을 사용하여 이송 및 펠렛 제조실험을 수행하였다. LiCl-KCl- UCl_3 용융염 제조반응기 내의 실험조건은 UCl_3 를 제외한 나머지 조건은 동일하게 조성하였다. Cd 787.4g 과 LiCl-KCl 537.3g을 UCl_3 용융염 제조 반응기에 넣고, LiCl-KCl 용융염의 용융점은 $372^{\circ}C$ 이지만 LiCl-KCl- UCl_3 용융염 제조 반응기의 온도는 용융염 제조 온도인 $600^{\circ}C$ 로 유지하였다. 펠렛 제조장치 내부는 $90^{\circ}C$ 로 유지하면서[1] UCl_3 제조반응기에 알곤 가스를 3~5bar로 가압하여 용융염의 이송실험을 수행하였다. LiCl-KCl 용융염의 이송이 확인된 후 펠렛 제조장치 내부의 온도를 상온으로 냉각시킨 다음 펠렛 제조장치의 플랜지를 해체하고 그림 4와 같은 용융염 펠렛의 제조결과를 확인할 수 있었다.

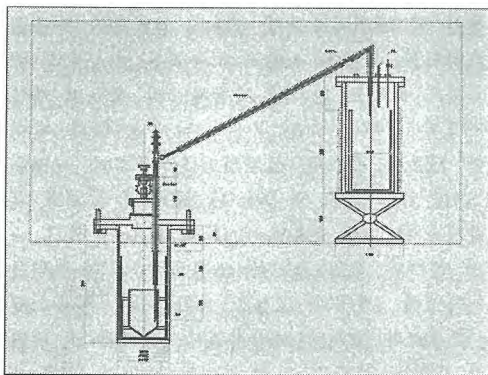


Fig. 1. Schematic diagram of LiCl-KCl- UCl_3 eutectic salt transfer and pelletizer

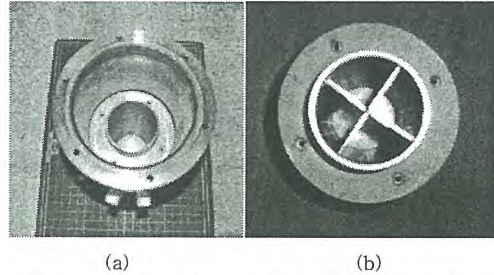


Fig. 2. LiCl-KCl- UCl_3 eutectic salt pelletizer; (a) the inner part (b) mold with a partition

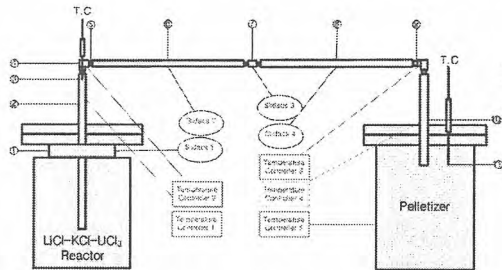


Fig. 3. Temperature control system of LiCl-KCl molten salt transfer and pelletizer

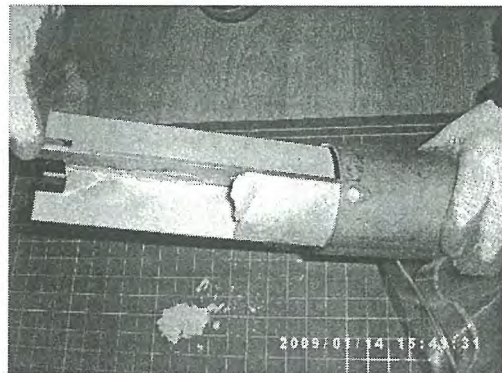


Fig. 4. Photography of the pellet and pellet mold of salt

3. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

4. 참고문헌

- [1] 서중석 외 "사용후핵연료 차세대관리공정 개발", KAERI/RR-2773/2006 (2006)

삼염화 우라늄 제조를 위한 염소 공급관 개선 연구

우문석, 강희석, 김정국, 이한수

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

mswoo@kaeri.re.kr

1. 서론

우라늄 전해정련을 위하여 삼염화 우라늄(UCl_3)이 필요하다. 아래 반응식처럼 삼염화 우라늄을 제조하기 위하여 먼저 카드뮴(Cd) 금속을 염소가스(Cl_2)와 반응시켜 이염화 카드뮴($CdCl_2$)을 제조하여 제조된 염화카드뮴을 우라늄금속과 반응시켜 삼염화 우라늄을 제조한다.[1] 이들 반응은 하나의 반응기 내에서 동시에 일어나며, 발생되는 카드뮴 금속은 다시 염소화반응을 거치게 된다. 반응기에서 염화 반응을 위하여 카드뮴 층에 공급관을 이용하여 염소를 공급시 공급관의 막힘 현상이 자주 발생하였다. 본 연구는 공급관 막힘에 대한 원인분석과 막힘 방지를 위한 장치 개선을 수행하였다.

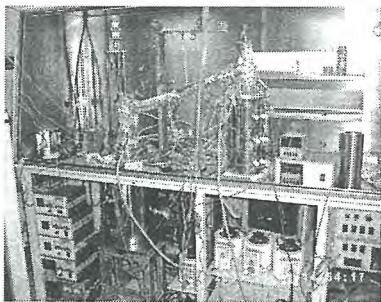
- Cd 염소화반응 : $Cd + Cl_2 \rightarrow CdCl_2$

- U 염소화반응 : $3CdCl_2 + 2U \rightarrow 3Cd + 2UCl_3$

2. 본론

2.1 실험 장치 및 실험

실험장치는 그림 1과 같고 장치의 주요 구성은 염소공급기, 반응기, 염이송장치, 펠렛제조장치, 배기체 흡수장치로 구성되어있다.

Fig. 1. UCl_3 production equipments

반응기는 내경이 80mm이고 높이는 250mm이고 반응기 내부 하단은 원추형으로 제작되어 용융된

카드뮴이 반응기 중앙하부로 모이도록 하였다. 시약은 Cd 금속 및 $LiCl-KCl$ salt 그리고 우라늄 금속을 각각 787g, 537g, 1,300g를 주입하여 60 $^{\circ}C$ 에서 제조하였다. 반응기 중앙에 위치하는 염소 공급관은 내경7mm, 길이 550mm인 STS관을 사용하였다. 염소가스 공급속도는 기체유량계를 사용하여 100~300ml/min으로 공급하였다.

2.2 실험 결과

염소 공급관으로 염소가스를 공급하며 염소화 반응을 수행한 결과 반응 시작 후 약 30분후에는 공급관 내부가 salt로 막혀 염소가스를 공급할 수 없었다. 막힘 원인은 염소가스 공급관 내부 온도가 염소가스 공급시 salt 용융점 이하로 냉각 그리고 염소가스에 포함된 산화제(주로 산소)에 의한 Cd 금속의 산화로 추정할 수 있다. 본 실험에서는 염소 공급관 내에 그림 2와 같이 염소가스 공급관 상부에 3-way 유니온을 설치하여 측면에서 염소가스를 공급하였다. 그리고 상부에서는 직경 3mm인 열전대를 삽입하여 O-링으로 염소가스가 새는 것을 방지하였다.

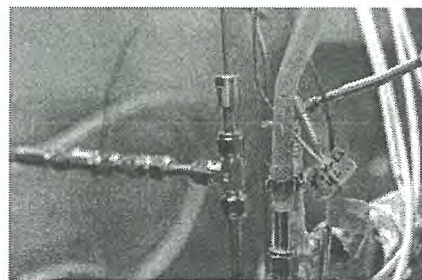


Fig. 2. Chlorine gas supplying tube improved

염소화 반응시 염소 공급관 내부가 막힐 경우 열전대를 이용하여 막힘을 물리적으로 뚫어 사용함으로써 염소화 반응을 지속적으로 수행 할 수 있었다. 그리고 염소 공급관 내부의 온도를 열전대를 이용하여 측정할 수 있었다.

3. 결론

삼염화 우라늄 제조를 위한 염소 공급관의 막힘 현상의 원인을 추후 더 많은 실험을 통하여 확인하고 문제를 해결할 예정이다. 그리고 현재와 같이 염소가스 공급장치의 개선을 통한 염소화 반응을 원활하게 수행할 수 있었다.

4. 참고문헌

[1] Miller et al , “Method for Making a Uranium Chloride Salt Product”, Patent No.: US 6,800,262B1, Date of Patent: Oct.5,2004.

LiCl-KCl 용융염의 점도 특성

안홍주, 연제원, 배상은, 조영환, 박용준, 송규석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
ahioo@kaeri.re.kr

1. 서론

2000년대 들어서 전 세계적으로 고유가 행진이 지속되고 있으며, 교토의정서가 발효되면서 이산화탄소 배출규제가 본격화되고 있다. 이에 따라 에너지의 안정적 공급 및 경제성 측면을 고려하여 전세계적으로 원자력발전이 그 대안으로써 주목을 끌고 있다. 원자력발전량이 증가함에 따라 사용후핵연료의 발생량도 점차 증가하고 있기 때문에 사용후핵연료에 대해 부피를 감용과 자원으로 재활용하기 위한 처리 공정 기술이 세계 여러나라에서 개발 중에 있다.

국내에서는 사용후핵연료 처리 방법으로 핵비확산성을 띠고 있는 건식, 파이로 공정이 연구되고 있다. 사용후핵연료 처리를 위한 파이로프로세스 공정은 전해환원, 전해정련, 전해제련의 건식과정을 거쳐게 된다. 이중 환원된 금속연료에서 고체 핵연료를 이용하는 하여 순수한 우라늄만 회수하려는 전해정련은 LiCl-KCl의 용융염 상태에서 전기화학적 반응을 통하여 수행된다. 전기화학반응은 일반적으로 전해질의 전하이동 능력에 따라 그 효율이 결정된다. 즉, 우라늄의 전해정련을 위하여 LiCl-KCl 용융염은 352℃에서 용해되기 시작하고 그 이상의 온도에서만 전하의 이동이 원활하여지므로 전기화학적 반응을 수행할 수 있다. 우라늄의 전해정련 온도를 너무 높이면, 전기화학반응 효율은 증가하지만, 고온가열에 따른 에너지 소비량비 뿐만 아니라 용융염이 기화되어 전해정련을 지속적으로 수행할 수 없게 될 수 있다. 따라서 우라늄 전해정련 효율은 용융염의 물성에 따라 상당히 달라질 수 있기 때문에 효율적인 전기화학적 반응을 위하여 선행적으로 물리적 특성 평가는 필수적으로 요구된다. 그러나 용융염은 약 400℃ 이상의 고온에서 수행되므로 물리적 특성 조사는 쉽지 않다. 본 연구는 고온 용융염의 물리적 특성을 조사하기 위하여 고온 점도 측정용 점도계를 고안하고 이를 이용하여 고온에서 LiCl-KCl 용융염의 점도를 조사하였다.

2. 실험 및 결과

2.1 점도 측정원리

그림 1은 점도 측정원리를 도식화하여 표현하였다. 그림 1에서 spindle를 시료 중에 넣고 일정한 속도로 회전시키면, 시료의 점성에 따라 spindle은 회전에 방해를 받는다. 회전속도가 정상 상태에 도달하면 시료의 점성에 의하여 회전 토크가 밸런스 되어 기기 내 스프링이 비틀리면서 변형이 오게 된다. 회전속도는 거의 전단 속도에 대응하므로 이것을 변경함으로써 비뉴턴 액체에서의 외전상 점도의 측정이 가능하다. 일반적으로 비틀림 각은 시료의 점도와 비례한다.

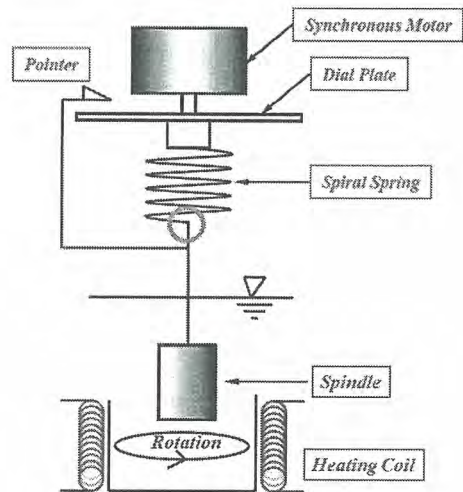


Fig. 1. Schematic diagram of the viscometer

2.2 용융염 점도측정

고온 전해정련의 효율을 극대화하고자 LiCl-KCl 용융염에 대해 viscosity meter (Brookfield Viscometer)을 이용하여 물리적 특성인 점도를 측정하였다. 고온에서 점도를 측정하기 위하여 용융

염 시료 용기는 stainless steel 316 재질로 용기 외관에 heating coil을 감아 온도가 600 °C까지 승온 유지될 수 있도록 특수한 장치를 제작하였다. LiCl-KCl은 공기중에 있는 습기와 반응성이 좋기 때문에 점도측정을 위한 모든 실험은 380 ~ 550 °C의 범위에서 Ar 분위기의 Glove box 내에서 수행되었다. LiCl-KCl 시료는 13 g을 취하여 용기에 넣고 각 측정 온도로 승온시켜 30분간 유지한 후 점도값을 읽었다. viscometer에 대한 점도 보정을 위하여 glycerin-water를 이용하여 온도 증가에 따라 점도를 측정하였고, 문헌에 보고된 점도 값과 비교 검토하였다. LiCl-KCl 용융염의 점도는 모두 5회 반복하여 측정하였다.

2.3 점도측정 결과

LiCl-KCl 용융염의 점도를 측정하고자 회전식 점도계를 이용하여 380 ~ 550 °C의 범위에서 점도를 측정하였다. 회전식 점도계는 액체의 어느 부분에서도 일정한 전단속도(전단응력)를 얻을 수 있으므로 각속도(또는 토크)를 바꾼 측정에서 비뉴턴 액체의 유동 곡선을 직접 구할 수 있다.

그림 2는 viscometer의 측정결과 보정을 위하여 Glycerin-Water를 대상으로 점도를 측정한 결과이다. 또한 측정결과는 문헌에 보고된 데이터와 비교 검토하였다. 그림에서 각 점들은 온도별 측정결과이며, 실선은 문헌에 보고된 점도결과들이다. 그림 2에서 glycerin-water 혼합량에 따라 각 점들과 실선은 잘 일치하고 있는 양상을 보였다. 이와 같은 결과는 viscometer를 이용한 LiCl-KCl 용융염의 점도 측정결과가 어느 정도 신뢰성을 갖는 것으로 판단할 수 있었다.

LiCl-KCl의 용융염에 대해 점도를 측정하기 위하여 일정량의 LiCl-KCl 용융염을 용기에 담고, heating coil의 온도를 서서히 올렸다. 측정하려는 온도가 일정하게 유지되고, viscometer에서 점도의 수치가 안정화 될 때 점도 값을 읽었다. 5회 반복을 통하여 점도 측정결과에 대해 신뢰도를 높였다. LiCl-KCl 점도는 Ar 분위기의 glove box 내에서 380 ~ 550 °C의 범위에서 측정되었으며, 용융염의 점도는 3 ~ 20 mPa·s의 범위에서 측정되었다.

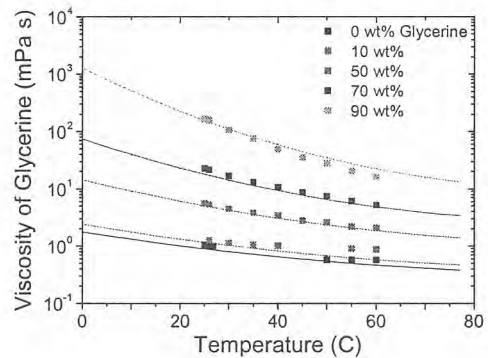


Fig. 2. Viscosity results of Glycerin-Water

3. 결론

고온 LiCl-KCl 용융염의 물리적 특성을 조사하기 위하여 고온 점도 측정용 viscometer를 특수하게 고안하여 점도를 측정하였다. 분석결과 380 ~ 550 °C의 온도범위에서 3 ~ 20 mPa·s의 범위로 점도가 측정되었다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다. 실험에 도움을 주신 김나영 연구원에게 감사드립니다.

5. 참고문헌

- [1] Y. Sato, "Viscosity of molten silicon and the factors affecting measurement", J. Crystal Growth, **249**, pp 404, 2003
- [2] Raja R. Roy, "Viscosity and density of molten salts based on equimolar NaCl-KCl", **38**, pp 566, 1997

전해정련장치 전기장 2D/3D 해석 비교 연구

김승현, 류홍열, 이종현, 박성빈*, 김정국*, 이한수*

충남대학교 녹색에너지기술전문대학원, 대전광역시 유성구 대학로79

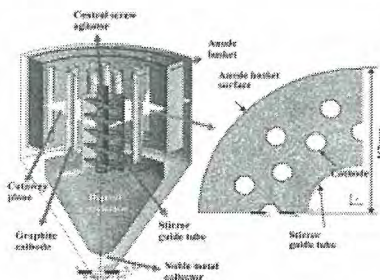
*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045번지

ksh@pyroprocessing.net

1. 서론

최근 사용후핵연료(spent fuel)에 포함되어 있는 우라늄을 회수하기 위한 방법으로 전해정련법을 통해 다량의 우라늄을 회수하기 위한 방법으로 많은 연구가 진행되어지고 있다. 전해정련기(electrorefiner)는 일반적으로 회전하는 양극 바스켓과 다중채널(multi-channel)의 음극으로 구성된다. 금속 우라늄을 분리하여 많은 양을 회수하기 위해서는 무엇보다 전해정련기의 효율성을 높이는 것이 필요한데 이를 위해 음극의 면적을 증가시키고 양극과의 간격을 좁힘으로 발생하는 물리적 저항을 줄이며 음극의 배열을 달리하여 최적의 전기장을 발생시켜 효율성을 높이는 방법이 있다. 이러한 효율성 향상을 위해 과거 Mark-IV와 Mark-V, 평면형의 전극 전해정련 반응기(Planar electrode electrorefiner, PEER)가 개발되었지만 상용화를 위해서는 많은 부분 개선이 필요하다.

따라서 본 연구에서는 상업적 유동해석 코드인 ANSYS CFX를(그림 1.) 이용하여 양극과 음극의 크기와 배열에 따른 전기장 비교 분석을 통해 음극의 우라늄 전착에 관한 최적화(optimization)에 대하여 알아보고자 하였다.



(a)

(b)



(c)

Fig. 1. (a)전해정련반응기 모델 (b)전기장 해석을 위한 2차원 모델 (c)전기장 해석을 위한 3차원 모델

2. 본론

전해정련반응기에서의 전기장 분포를 알알보기 위해 2차원, 3차원 모델로 나누어 비교분석하였다. 표1.에서와 같이 여러 변수를 고려하여 4가지 샘플에 대한 해석이 이루어졌다.

	anode	cathode	
		1열	2열
case1	26cm	15.5cm	20.5cm
case2	28cm	15.5cm	20.5cm
case3	30cm	15.5cm	20.5cm
case4	24.5cm	12cm	17cm

Table 1. 실험에 사용된 양극과 음극의 제원

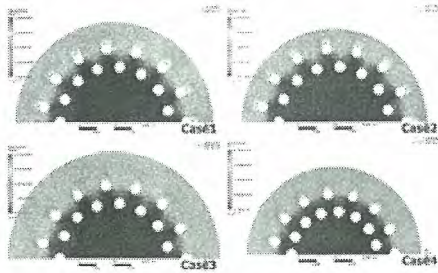
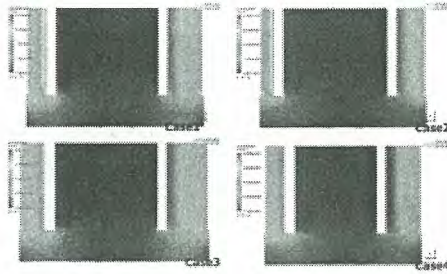


Fig. 2. (a) 2차원 해석모델



(b) 3차원 해석 모델

양극(-0.5V)과 음극에 (-1.5V) 전압을 가해 주었을 때 그림 2. 와 같은 전기장 분포를 나타내었다.

2열 음극의 경우 벽을 따라 높은 밀도의 전기장이 나타났고 끝부분에도 높은 수치의 전기장 분포를 보였다. 1열 음극은 2열에 비하여 벽 방향 보다는 끝 부분에 높은 전류밀도가 관찰되었다.

3. 결론

기존의 2차원 해석과 달리 3차원 해석을 병행하여 전해정련기의 음극에 대한 전기장 분포를 확보하였다. 음극의 경우 대부분의 전기장이 한쪽 면에서만 발생하여 뒤쪽에서의 우라늄 포집량은 극히 적을 것으로 예상되었다. 현재의 전해정련 공정은 상업화로는 어려운 배치 모드에서 공정만이 가능하기 때문에 사용후핵연료의 처리량을 늘리기 위하여 보다 심층적인 연구를 통해 금속우라늄의 전해정련 효율을 높이고 극의 배치를 최적화 한다면 반응기의 크기 또한 줄일 수 있을 것이라 기대한다.

4. 참고문헌

- [1] Assessment of a high throughput electrorefining concept for a spent metallic nuclear fuel(I.Computational fluid dynamic analysis), Nuclear Technology, 162 (2008)

107-116.

- [2] Electrorefining Characteristics of Uranium by Using a Graphite Cathode, J. of Korean Radioactive Waste Society, 5(1)(2007) 1-7

Czochralski 결정화법을 이용한 염폐기물 정제시 LiCl 결정 크기분석

류홍열, 김승현, 이종현, 박성빈*, 김정국*, 이한수*

충남대학교 녹색에너지기술전문대학원, 대전광역시 유성구 대학로79

*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045번지

rvu@pyroprocessing.net

1. 서론

사용후핵연료의 재활용 방법인 파이로 건식처리 공정은 핵연료물질을 회수하는 과정에서 많은 염폐기물을 발생한다. 핵연료의 파이로 건식처리 공정 중 Fig 1과 같이 전해환원공정은 Cs와 Sr과 같은 1, 2족 핵종을 포함하는 염폐기물이 발생한다. Cs와 Sr과 같은 고방열성 1, 2족 핵종은 전해 환원공정 과정에서 염내로 축적되면서 염의 온도를 상승시켜 전체적인 공정온도에 영향을 주기 때문에 일정 양이 축적되면 교체해 주어야 한다. 이 염폐기물에서 방열성 1, 2족 핵종을 분리하는 기술을 이용하면 순수한 LiCl을 재활용 할 수 있고, 처분 해야할 폐기물의 양을 줄일 수 있기 때문에 경제적인 면과 환경적인 측면에서 많은 이점을 줄 수 있다.

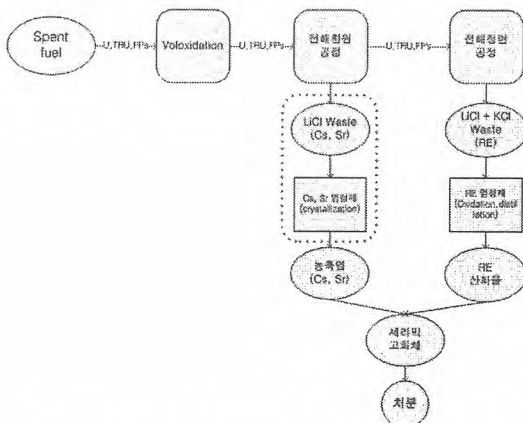


Fig. 1. 파이로 공정에서의 염폐기물 발생 과정

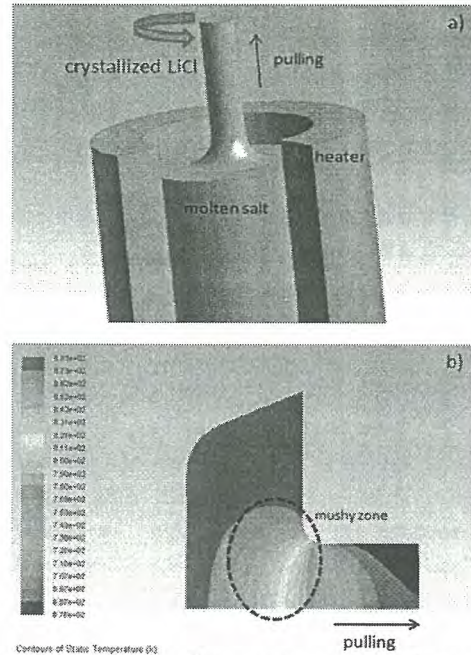


Fig. 2. (a) Czochralski crystallization에 의해 용융염으로부터 순수 LiCl을 얻을 수 있고, 응고시 고체 부분과 액체부분 사이에서 (b) mushy zone이 생성된다.

2. 본론

염폐기물의 주요성분인 LiCl은 응고시 다른 핵분열생성물을 고용하지 않고 순수 염으로 응고하기 때문에 이러한 특징을 이용하여 주로 단결정 생성에서 쓰이는 Czochralski 결정화 공정을 적용하면 염폐기물에서 순수한 LiCl을 분리할 수 있다.

따라서 본 연구에서는 초크랄스키결정화(Czochralski crystallization)방법을 이용하여 염폐기물로부터 LiCl과 CsCl, SrCl₂로 분리해 내는 공정에 대한 연구를 수행하였다.

전해환원에서 사용된 염폐기물을 Fig. 2.(a)와 같이 Heater안에 넣고 Pulling 반향을 축으로

10RPM의 속도로 회전시키면서 LiCl 결정을 생성시키면 Fig. 2.(b)와 같이 LiCl결정과 폐용융염이 만나는 곳에 Meniscus모양의 Mushy Zone이 형성되는데 이 Mushy Zone의 크기에 따라 생성되는 LiCl크기가 변화된다. 본 결정화 실험에서 주요변수는 Pulling rate였으며 이 변수에 따라 Mushy zone의 분포를 관찰하여 실제 결정화된 LiCl의 크기를 예측하는 실험을 수행하였다.

3. 결론

전산해석 수행 결과 Pulling rate가 Meniscus크기에 가장 큰 영향을 미쳤으며, 이는 인출 봉 접촉시 생성되는 Mushy zone의 크기와 밀접한 관계를 가지고 있는 것으로 밝혀졌다. 계산결과는 기존 실험결과로부터 얻어진 인상속도와 결정 크기와의 관계를 잘 설명하였다.

4. 참고문헌

- [1] Jong-Hyeon LEE, Gyu-Hwan OH, Han-Soo LEE, Yoon-Sang LEE, In-Tae KIM and Eung-Ho KIM, "Concentrations of CsCl and SrCl₂ from a Simulated LiCl Salt Waste Generated by Pyroprocessing by using Czochralski Method", J. Nuclear Science and Technology, 46 (4) (2009) 392-397

LiCl-KCl 및 액체 Cd 속에 있는 U의 CdCl₂에 의한 산화반응 특성

심준보, 김지용, 한광선, 윤달성, 김시형, 백승우, 권상운, 김광락, 이한수, 안도희

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

nibshim@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료의 감용 및 미래 원자력시스템에서 나트륨 냉각 고속로(SFR)와 연계시켜 활용하기 위해 파이로 공정(Pyroprocessing)의 연구 및 개발이 한국원자력연구원에서 진행되고 있다. 파이로 공정의 핵심기술의 하나인 전해제련은 전해정련 단계에서 U를 회수한 후 나오는 LiCl-KCl 용융염에 들어있는 U, 초우라늄(TRU) 및 일부의 희토류(RE) 금속을 카드뮴 액체금속(LCC)에 혼합물 상태로 전착시켜 회수한다. 파이로 공정의 경제성 제고 및 안전성을 확보하기 위해서 발생하는 고준위폐기물 및 처분장에 보내는 악티늄족 원소의 양은 가능하면 최소로 만들어 주는 기술의 확보가 중요하다. 이와 같은 관점에서 폐 용융염을 처리하여 고화체를 제조하기 전에 폐 용융염에 남아있는 악티늄족 원소를 회수(Residual Actinides Recovery; RAR)하여 악티늄족의 농도를 0.01 wt%까지 낮추어주는 효율적인 방법의 확립은 파이로 공정의 성공을 위해 필수적인 요건이다. 최근 KAERI에서는 LCC 전해 및 CdCl₂ 산화제를 활용하는 고유 개념의 RAR 공정을 개발하였으며 기술적인 타당성을 확인하는 실험을 다양하게 진행시켜 왔다.

본 논문에서는 LiCl-KCl 용융염/액체 Cd 계로 구성된 RAR 실험에서 LCC 전해회수 후 CdCl₂에 의한 산화 단계에서 일어나는 U-Cd 합금의 CdCl₂ 산화제와 반응특성에 초점을 맞추었다. 비교를 위해 이미 많이 활용되는 용융염 상에서 U 금속편과 CdCl₂의 반응을 UCl₃ 형성 측면에서 살펴보고, RAR 계에서 UCl₃ 형성 반응이 잘 일어나지 않는 현상을 RAR 반응기의 구조 특성에 원인이 있는 것으로 해석하였다.

2. 본론

2.1 실험 장치 및 방법

LiCl-KCl 용융염 시약 100 g을 300 °C 온도에서

아르곤 가스 흐름 상태로 충분히 건조시킨 후 500 °C까지 가열하여 용융시켰다. 먼저 용융염에서 UCl₃가 약 3 wt% 형성되도록 CdCl₂ 산화제를 계량하여 넣은 뒤 U 금속편을 용융염에 장입하여 산화반응을 진행시켜 UCl₃을 제조하였다. 이 때 용융염 상에서 Cyclic Voltammetry 방법으로 on-line 측정하여 생성되는 UCl₃과 감소되는 CdCl₂의 특성피크를 관찰하였다. UCl₃의 형성 반응이 종료되었음을 CV 그래프상의 CdCl₂ 피크의 소멸로부터 확인한 후, 용융염 속에 순도 5N의 Cd 잉곳을 100 g 넣어서 LCC를 준비한다. Glassy carbon(GC) 재료의 양극 및 LCC를 사용하여 전류밀도 30 mA/cm²에서 정전류 전해석출 실험을 진행하여 U 이온을 액체 Cd에 전착시켜 U-Cd 합금(U-3 wt%)을 만들었다. 이 때, 용융염에 존재하는 U 이온이 균일하게 분포되고 전해석출이 잘 진행되도록 용융염을 50 rpm 내외로 교반하였으며, LCC 용기 속에 담긴 액체 Cd도 동시에 교반되도록 하였다. 용융염에 들어있는 U 금속 염화물의 양과 인가 전류량에 따른 전해 석출 시간을 Faraday 법칙을 통해 계산하여 전해 종료 시간을 결정하였다. 또한 U-Cd 합금(U-3 wt%)이 형성된 LCC와 접촉하는 용융염 속에 CdCl₂ 산화제를 계량하여 넣은 뒤 산화반응을 진행시켜 UCl₃이 형성되는 것을 측정하였다. 전해 및 산화 반응이 진행되는 동안 일정시간 간격으로 용융염 내 잔류 UCl₃의 정성적인 확인은 on-line CV 측정을 이용하였다. 또한, 용융염 시료를 채취하여 ICP에 의한 정량분석도 하였다.

2.2 실험 결과 및 고찰

2.2.1 LiCl-KCl에서 U과 CdCl₂의 반응

용융염에서 U를 LCC에 전착시켜 U-Cd 합금을 제조하기 위해서는 UCl₃이 필요하다. CdCl₂ 산화제를 용융염 속에 넣고 U 금속편을 장입하면 아래와 같이 반응식에 의해 UCl₃이 생성된다.



UCl_3 가 생성되는 진행 상황을 CV에 의해 실시간으로 측정하여 반응 종료 여부를 판단하였다. 위의 반응식에 의해 시간 경과에 따라 UCl_3 가 생성되면서 이로 인해 $CdCl_2$ 는 소모되기 때문에 점차 $CdCl_2$ 의 피크 크기가 작아지며 궁극적으로 Fig. 1에서 볼 수 있듯이 반응종료 시점에서는 용융염 상에서 UCl_3 가 생성된 후 $CdCl_2$ 피크가 모두 사라졌음을 확인할 수 있다.

2.2.2 액체 Cd 속에 있는 U과 $CdCl_2$ 의 반응

RAR 공정 2단계인 U-Cd 합금의 $CdCl_2$ 에 의한 산화추출 실험에서 LCC에 전착된 U는 액체 Cd에서 포화농도, 1.14 at%[1] 이상으로 LCC에 전착된 경우에도 $CdCl_2$ 에 의한 산화 반응이 약간은 일어나지만, 용융염 속에 들어있는 U 금속에서 일어나는 반응에 비해 잘 진행되지 않는 것으로 나타났다. 산화반응 실험에서 용융염 상에 UCl_3 를 형성시키기 위해 U 금속편과 $CdCl_2$ 를 반응시킬 경우에 측정된 반응종료 시간(약 5시간)의 5 배(24시간 이상)까지 LCC에 전착시킨 U-Cd 합금의 $CdCl_2$ 에 의한 산화추출 반응을 진행시켜도 UCl_3 가 잘 형성되지 않았기 때문이다(Fig. 2).

이와 같은 현상은 두 가지 원인에 의한 것으로 유추하였다. 첫 째 LCC에 전착된 U이 Cd에서의 용해속도가 매우 느려서 포화 용해도보다 훨씬 적은 양이 Cd에 용해되어 있고, 두 번째 U이 Cd보다 밀도가 더 커서 대부분 U금속 상태로 Cd 아래에 가라앉아 LCC 도가니의 바닥위에 존재하기 때문에 U과 $CdCl_2$ 가 접촉이 원활하지 않아 U이 산화되어 UCl_3 이 형성되는 반응이 잘 일어나지 않는 것으로 판단된다.

U를 이용한 RAR 산화추출 실험 결과로부터 국내에서 취급이 불가능한 TRU의 회수 거동을 유추 및 예측할 수 있었다. 회수효율의 향상 측면에서 TRU는 U의 거동과 매우 유사할 것으로 예상된다. RAR 공정의 산화추출 단계에서 용융염 속에 첨가된 $CdCl_2$ 는 용융염/Cd 계면에 주로 존재하는 전착된 RE 금속과는 접촉이 잘 일어나지만, Cd 밑에 있는 가라앉아 있는 밀도가 큰 An 금속(U 또는 TRU)과는 접촉이 용이하지 않을 것으로 예상되며 이로 인해 RE에 비해 An이 산화될 가능성은 훨씬 더 낮아질 것이다. 이와 같은 추론의 타당성 여부는 앞으로 TRU를 사용하는 실험에 의해 밝혀질 수 있을 것으로 기대한다.

3. 결론

RAR 공정 2단계인 U-Cd 합금의 $CdCl_2$ 에 의한 산화추출 실험에서 LCC에 전착된 U는 액체 Cd에서 포화농도 이상으로 LCC에 전착된 경우에도 $CdCl_2$ 에 의한 산화 반응이 용융염 상의 U 금속에 비해 잘 진행되지 않는 것으로 나타났다. 이와 같은 현상은 LCC에 전착된 U이 Cd에서의 용해속도가 매우 느리고 Cd보다 밀도가 더 커서 대부분 U금속 상태로 Cd 아래에 가라앉아 LCC도가니의 바닥위에 있기 때문에 일어나는 것으로 판단된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] K. Kurata, et al., Thermodynamic studies on reductive extraction process of pyrometallurgical partitioning, CRIEPI Report, ET96001, p. 34, 1997

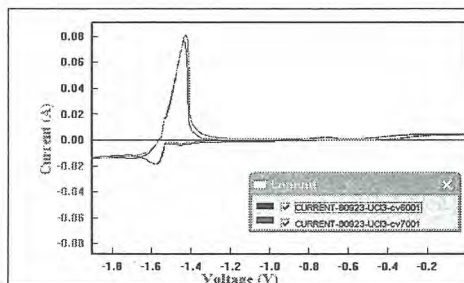


Fig. 1. CV results, oxidation of U in salt

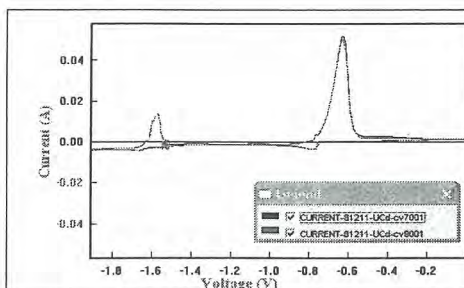


Fig. 2. CV results, oxidation of U-Cd alloy

고온용융염 전해환원 공정에서 백금 산화전극의 전기화학 반응 특성

정상문, 신호섭, 최은영, 홍순석, 허진목

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

smieong@kaeri.re.kr

1. 서론

고온 용융염을 이용한 금속산화물의 전기화학적 전해환원 반응은 다양한 응용분야에서 연구되고 있다. 특히, PWR 산화물 사용후핵연료의 효율적 관리 및 재활용을 위해 고온 건식공정(pyroprocessing)의 핵심 공정으로써 전해환원 공정은 산화물핵연료 주기와 금속핵연료 주기를 연결해주는 중요한 역할을 한다.

산화물 사용후핵연료의 전해환원 공정에서 환원전극에서 우라늄 및 TRU 산화물이 금속으로 환원되며, 산화전극에서는 산소이온의 산화반응에 의해 산소기체가 방출된다.

환원전극 : M_xO_y (metal oxide) + $2ye^- \rightarrow xM$ (metal) + yO^{2-}

산화전극 : $yO^{2-} \rightarrow y/2O_2(g) + 2ye^-$

1 wt%Li₂O/LiCl 용융염을 이용하는 전해환원 공정의 특성 상 내부식성이 강하고 화학적으로 안정한 물질이 산화전극으로 사용되어야 한다. 보통 CaCl₂ 용융염 계에서 산화전극으로 사용되고 있는 그라파이트 산화전극은 LiCl 용융염 계에서는 용융염에 탄소입자가 쌓이게 되거나 또는 카보네이트의 형성으로 인해 부적합한 것으로 알려져 있다. 따라서, 고온 건식공정의 전해환원 시스템에서는 보통 고가의 백금 산화전극이 이용되고 있다.

본 연구에서는 백금 산화전극의 전기화학적 거동 및 부식특성에 대해 관찰하고 전해환원 공정에 적합한 산화전극 운전 전위를 제시하고자 한다.

2. 본론

용융염 매질로 사용되는 LiCl의 흡습성이 매우 크기 때문에 전해환원 반응시스템은 고순도 아르곤 글로브박스에 설치되어 수분과의 접촉을

철저히 배제하였다. 본 전해환원 시스템은 1 wt%의 Li₂O가 용해된 LiCl 용융염 매질, Stainless steel 환원전극 바스켓, 백금 산화전극, Li-Pb 기준전극으로 구성되어 있다. 본 전해환원 반응시스템에서 백금산화전극의 전기화학적 거동을 관찰하기 위해 cyclic voltammetry 기법을 이용하였으며, 우라늄산화물의 전해환원 반응에서 백금 산화전극 전위관찰은 constant voltage electrolysis 방법을 이용하였다. 본 반응이 종료된 후 환원된 시료는 XRD, SEM 및 TGA와 같은 분석기기를 이용하여 특성분석을 수행하였다.

그림 1은 백금 wire(1mm dia)를 작업전극으로 사용하여 다양한 Li₂O 농도에서 cyclic voltammetry를 수행한 결과이다. 그림에서 알 수 있듯이 백금의 용해현상은 Li₂O 농도가 증가함에 따라 산소발생 반응에 의해 높은 전위로 이동하게 된다. 또한 Li₂O 농도가 증가함에 따라 Li₂PtO₃ 생성 (2.1 V vs LiPb)이 보다 활발해짐을 알 수 있다. 이상의 실험 조건에서 전해환원 공정에 적합한 산화전극 전위는 2.1 ~ 2.6 V 사이임을 알 수 있다.

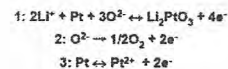
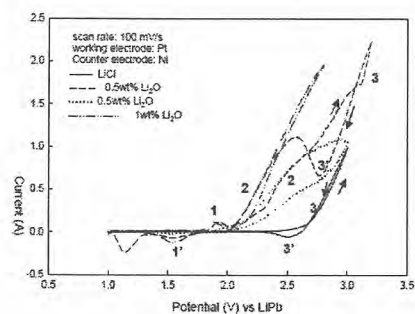
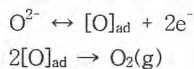


Fig. 1. Cyclic voltammetry of a platinum wire in LiCl molten salt

용융염 내에서 산소이온의 확산은 백금 산화전극에서 산소기체의 배출과 관련하여 매우 중요한 kinetic parameter로 알려져 있다. 본 연구에서는 cyclic voltammetry를 이용하여 산소이온의 확산 계수를 측정하였다. 산소이온의 전극반응에 대하여 다음과 같은 반응경로를 고려하여 가역반응으로 가정하였다.



상기와 같은 가역반응에 대하여 $i_p = 0.4463 \left(\frac{F^3}{RT} \right)^{1/2} n^{3/2} A D_0^{1/2} C^* \nu^{1/2}$ 의 식을 이용하여 확산계수 (D_0)를 계산할 수 있다. 즉, 스캔속도 (ν)를 달리하여 응답전류곡선을 얻은 후 i_p 값과 $\nu^{1/2}$ 을 fitting하면 선형관계를 얻게 되고 그 기울기로부터 확산계수를 계산한다. 산소이온 농도가 높을 경우 백금전극의 용해반응과 중첩되어 산소이온의 산화반응에 대한 i_p 값을 구할 수 없기 때문에 Li_2O 농도를 0.2 wt% (0.0253 mol O^{2-})로 조절하였다.

Fig. 2은 645 °C의 LiCl 용융염에서 스캔속도에 따른 CV 곡선을 보여주는 그림이다. 본 그림에서 알 수 있듯이 스캔속도를 증가시키면 응답전류도 함께 증가하게 된다. 2.1 V에서 보여주는 산화피크는 Li_2PtO_3 의 생성에 관련되는 피크로써 생성된 Li_2PtO_3 의 환원피크가 1.8 V에서 나타난다. 2.3 V에서 관찰되는 산소이온의 산화피크에 대한 환원피크가 2.1 V 정도에서 관찰됨으로써 산소이온의 전극반응은 앞서 제시한 산소원자의 흡착을 거쳐서 산소기체가 생성되는 과정으로 이해된다. 따라서 본 연구에서는 산소이온의 전극반응을 가역반응으로 고려하였다. 이는 CV scan에서 scan rate에 변화를 주더라도 산소이온의 산화반응의 peak maximum 전위가 변화하지 않는 데서도 확인할 수 있다.

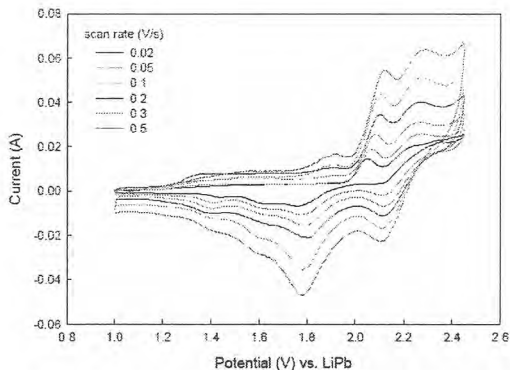


Fig. 2. Cyclic voltammogram of platinum wire as a function of scan rates.

3. 감사의 글

본 연구는 원자력 중장기연구개발사업의 일환으로 교육과학부의 지원을 받아 수행되었습니다.

다공성 고체 함침 LiCl 증발제거

박병홍, 정명수, 조수행, 허진목

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

bhpark@kaeri.re.kr

1. 서론

산화물 사용후핵연료를 파이로 공정에 도입 하기 위해서는 금속으로 전환하는 공정이 필수적이다. 한국원자력연구원에서 개발하고 있는 파이로 공정[1]은 금속전환을 위한 환원공정[2]의 매질로 LiCl을 채택하고 있으며 후속 공정인 전해정련 공정[3]에서는 LiCl-KCl 공융염을 전해질로 사용하고 있다. 따라서 두 공정간 연계성을 강화하기 위해서는 전해환원 공정에서 생산되는 금속전환체의 잔류염을 제거하여 전해정련 공정 매질의 공융염 조성을 벗어나지 않게 유지시켜주어야 한다. 금속전환체는 전해환원 공정에서 산소를 잃어 다공성이 증가되어 공극에 쉽게 LiCl이 포함된다. 금속전환체 잔류염 제거 기술 개발의 일환으로 본 연구에서는 다공성 고체(MgO)를 사용하여 다양한 공정조건에서 함침된 LiCl을 증발 제거하였다.

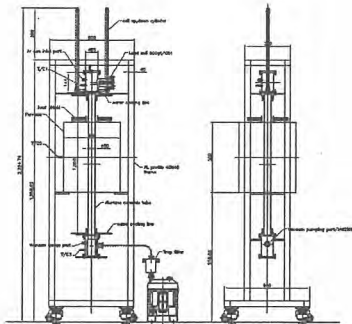


Fig. 1. Experimental Apparatus

2. 본론

2.1 실험장치 및 방법

감압 증발을 위하여 Fig. 1과 같은 형태로 수직형 증발 반응기를 제작하였다. 알루미늄 튜브를 수직으로 세워 중앙에 튜브형 가열로를 설치하여 온도 조건을 조절하였다. 알루미늄 튜브 상부로

증발 대상 물질을 삽입하여 진공 분위기를 유지시킨 후 가열시키며 알루미늄 튜브 위단에서 아랫단으로 아르곤 기체를 도입하여 증발된 LiCl의 흐름은 아랫 방향으로 유지시켰다. 증발 대상 물질은 알루미늄 튜브 상부에 위치한 무게 측정 센서(로드셀)에서 벗어난 고리에 걸려 반응기 중앙에 위치하며 시간에 따른 무게 변화는 센서에 의해 실시간으로 기록되었다.

2.2 시편 및 실험조건

금속전환체를 모사하기 위하여 고온 LiCl 함침 과정 중 형태를 유지하며 LiCl에 대해 반응성이 없으며 다양한 기공률을 지니도록 가공이 용이한 MgO를 재질로 선정하여 펠렛 형태의 시편을 제작하였다. 시편은 직경을 5 mm에서 15 mm까지 다양하게 준비했으며 길이는 6 cm에서 10 cm 공극률은 20%에서 32%까지 변화시켰다.

LiCl 증발을 위해 LiCl 용융점 이상의 온도인 660 °C (Run 2) 와 720 °C에서 실험을 수행하였으며 720 °C에서는 압력 조건을 다양화하여 약 20 mTorr 조건(Run 1)과 약 200 mTorr 조건(Run 3)으로 다른 압력에서 증발 실험 결과를 얻었다.

시간에 대한 시편의 무게변화를 측정하여 초기 시편 무게 등을 고려하여 공정 시간 동안 LiCl의 제거 거동을 계산할 수 있었으며 결과는 Fig. 2와 같다.

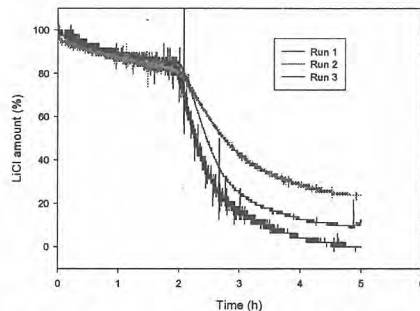


Fig. 2. Experimental Results for LiCl Removal

2.3 실험결과

Fig. 2에서 보인 바와 같이 LiCl은 720 °C, 20 mTorr 조건에서 3 시간 동안 제거 되었으나 온도가 낮은 Run 2와 압력이 높은 Run 3에서는 반응 시간 동안 모든 LiCl이 제거되지 않았으며 제거 속도 역시 급격히 감소하였다. 이와 같은 현상은 다른 시편에서도 동일하게 관찰 되었으며 Run 1 조건인 720 °C, 20 mTorr에서 LiCl은 다공성 MgO에서 제거될 수 있을 것으로 추정되었다.

3. 결론

산화물 사용후핵연료의 파이로 기술 적용을 위해 제시된 공정의 연계성 확대를 위해 금속전환체를 대상으로 LiCl 잔류염 제거 공정이 개발되고 있으며 본 연구에서는 기초 거동 확인을 위하여 다공성 MgO를 금속전환체 대체물질로 선정하여 함침 후 LiCl을 증발제거 하였다. LiCl은 낮은 증기압을 보이고 있기 때문에 펠렛 형태의 MgO에서 LiCl을 제거하기 위하여 고온 진공 분위기가 필수적이며 720 °C 20 mTorr 조건에서 3시간은 반응 시간으로 직경 15 mm의 펠렛에서 LiCl을 모두 제거할 수 있었다. 따라서, 본 실험 결과를 바탕으로 반응기를 설계 제작한다면 공학적으로 적용 가능한 장치를 개발 할 수 있을 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업의 지원으로 수행되었습니다. (연구과제 관리코드: 2010-0001121)

5. 참고문헌

- [1] H. Lee, H. H. Kim, S. W. Park, "Overview of KAERI research activities on pyroprocessing", 2008IPRC, Aug. 24-17, Jeju, 2008
- [2] B. H. Park, H.-H. Lee, W. M. Choung, J.-M. Hur, C.-S. Seo, "Development of an electrochemical reduction process in ACPF", 2008IPRC, Aug. 24-17, Jeju, 2008
- [3] J. H. Lee, K. H. Oh, Y. H. Kang, S. C.

Hwang, H. S. Lee, J. B. Shim, E. H. Kim, "Performance evaluation of a high throughput electrorefiner for a spent metallic nuclear fuel", 2008IPRC, Aug. 24-17, Jeju, 2008

우라늄산화물의 전해환원 특성 연구-Lab Scale Test

최은영, 정상문, 허진목, 최인규, 권선길, 강대승, 홍순석, 신호섭

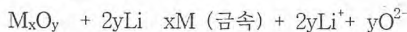
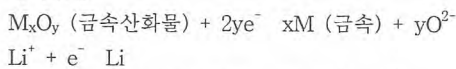
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

evchoi@kaeri.re.kr

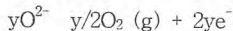
1. 서론

경수로 사용후핵연료로부터 다시 핵연료 물질로 재사용할 수 있는 우라늄을 분리/회수하기 위한 고온전해분리공정 (pyroprocessing)은 경제성, 환경친화성, 핵비확산성을 만족시키는 차세대 재처리 기술로 활발한 연구개발이 이루어지고 있다. 고온전해분리공정에서 산화물형태의 사용후연료를 금속으로 전환시키는 전해환원 공정은 일반적으로 LiCl에 염소가스 발생을 방지하기 위해 Li₂O를 포함한 혼합용융염을 매질로하여 양극을 basket형태로 만들어 금속산화물인 사용후연료를 담아 음극과 연결하여 전압을 가하면 다음 반응식과 같은 메커니즘을 통해 이루어진다.

양극반응 :



음극반응 :



한국원자력연구원의 전해환원 공정은 기존의 수~수십 그램 단위의 우라늄산화물을 이용하여 수행한 bench-scale test에서 얻은 실험조건을 기반으로 20 kg급 lab-scale test를 수행하고 그 전해환원 반응 특성에 대하여 고찰하였다.

2. 실험 및 결과

용융염 매질로 사용되는 LiCl은 흡습성이 매우 커 수분을 포함하고 있기 때문에 LiCl의 수분제거는 우라늄 산화물의 전해환원과 부식 방지를 위해 필수적이다. 본 실험에서는 효과적인 수분제거를 위해 대량 (20~30 kg)의 LiCl을 도가니에 넣고 고온로에서 진공을 유지하면서 원하는 온도에서 두어 LiCl의 수분이 효과적으로 제거되도록 전해환원 공정 전에 미리 처리하였다. 또한 처리된 LiCl에 수분의 재흡수를 막기 위하여 전해환원 반응시스템이 있는 고순도 아르곤 글로브 박스에 보관하였다 (Fig.1).

전해환원을 위하여 사용될 우라늄 산화물 연료는 U₃O₈ 파우더를 0.2 wt%의 윤활제와 섞고 pelletizer를 이용해 지름 6 mm, 높이 8 mm의 원통형 모양을 만든 후 700~1350 °C의 온도에서 소결하여 사용하였다.

17kg의 UO₂ 펠렛을 cathode basket (Fig.2)에 넣고 요구 전하량의 약 134 % (35,633,288 C)을 71.7시간 동안 정전압 (3.2~3.3 V)로 운전하여 전해환원하였으며 (Fig.3) 이에 따라 환원전극은 -0.8~-1.0 V 가량의 전위 변화를 보였다 (Fig.4). 전해환원 과정에 흐른 전류량은 120~150 A 정도였다 (Fig.5). 전해환원 중의 Li₂O 농도는 1.37 wt%에서 시작하여 요구 전하량의 18 % 정도를 가해주었을 때 0.9 wt% 까지 떨어져 670 g 을 추가로 투입하였으나 그 이후에는 크게 변화하지 않고 안정하여 1.8 wt% 정도를 유지하였다. 염 높이는 실험 전 후 모두 40.5 cm로 휘발로 인한 염의 손실은 거의 없었다.

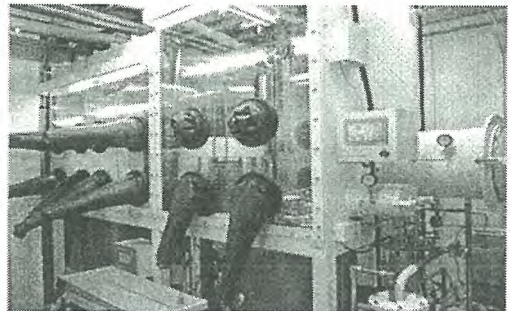


Fig. 1. Glove-box for lab-scale electrolytic reduction of uranium oxide experiment.

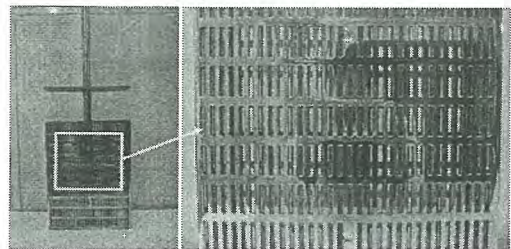


Fig. 2. Cathode basket used for lab-scale electrolytic reduction of uranium oxide experiment.

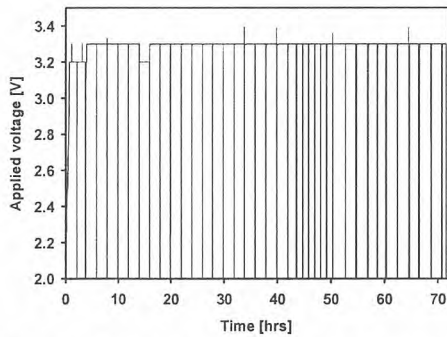


Fig. 3. Applied voltage-time plot during electrolysis of 17 kg-uranium oxide pellet in a $\text{Li}_2\text{O}/\text{LiCl}$ molten salt at 650 °C.

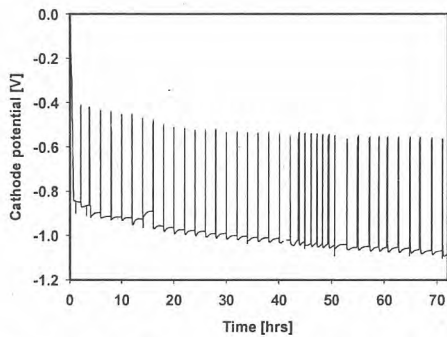


Fig. 4. Cathode potential-time plot during electrolysis of 17 kg-uranium oxide pellet in a $\text{Li}_2\text{O}/\text{LiCl}$ molten salt at 650 °C.

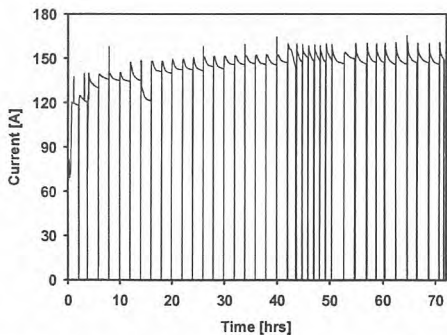


Fig. 5. Current-time plot during electrolysis of 17 kg-uranium oxide pellet in a $\text{Li}_2\text{O}/\text{LiCl}$ molten salt at 650 °C.

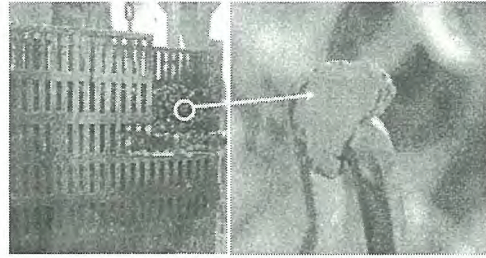


Fig. 6. Photograph of (a) cathode basket after electrolytic reduction of 17 kg-oxide pellet and (b) cross-section of a reduced uranium oxide pellet.

실험 종료 후 산화전극과 염에서 들어 올려 밖으로 빼낸 후 백금에 손상이 일어나지 않고 원래의 형태를 그대로 유지하고 있음을 확인하였으며 환원 전극의 경우 펠렛의 일부를 샘플링 하여 분석하였다. 육안으로 관찰한 결과 펠렛 전체적으로 균일하게 환원이 잘 일어났음을 확인할 수 있었고 (Fig.6) X-ray diffraction 분석을 통해서도 선명한 우라늄 peak를 관찰할 수 있었으나 일부 UO_2 도 남아있음이 확인되었다. thermal gravimetric analysis 결과 전환율은 약 90 % 정도임을 확인하였고 $\text{Li}+\text{Li}_2\text{O}$ 의 농도는 2 wt%, 세척 전에 펠렛에 남아 있는 염과 Li의 무게비는 10~15 wt% 였다. 이 실험을 통해 준비한 전해환원 시스템이 대량의 연료 사용에도 정상적으로 작동함을 확인할 수 있었으며 가해주는 전하의 양을 늘리면 100 %에 가까운 전해환원도 가능할 수 있음을 알 수 있었다.

3. 감사의 글

본 연구는 원자력 증강기연구개발사업의 일환으로 교육과학부의 지원을 받아 수행되었습니다.

우라늄제조 장치를 통한 잉곳시험

조춘호, 이윤상, 박성빈, 박기민, 이성호, 김정국
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
ex-kaeri@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 핵연료의 건식처리공정에서는 전해정련 과정을 거쳐서 생성된 우라늄 전착물을 잉곳 형태로 제조하는 주조공정이 있다.[1], [2] 본 잉곳제조 장치는 용해 도가니를 100도 기울여 주형에 잉곳을 제조하는 틸팅 방식으로 최대 20kg의 우라늄 용해가 가능하다. 따라서 본 실험실 규모의 잉곳제조 장치는 우라늄 전착물을 건전한 잉곳으로 만드는 것이 최대 목표이기 때문에 우선적으로 비우라늄 및 Du(Depleted Uranium)를 사용한 잉곳 제조 실험이 선행되었다.

2. 본론

2.1 장치 구성 및 특성

실험실 규모의 장치이지만 우라늄을 녹이기 위해서는 적어도 1300℃ 이상의 온도가 필요하기 때문에 고주파 유도가열 방식이 본 장비에 적용되었다. 미국의 INL에서는 Batch 형태로 전착물을 단일 도가니에 넣고 용해한 후, 도가니의 냉각공정을 거쳐서 한 번에 우라늄 잉곳이 1개 생산되도록 되었으며, 도가니에 잉곳이 용착되는 단점도 갖고 있다. 그러나 본 잉곳 주조장비는 생산효율의 목적도 갖고 있기 때문에 일단 염증류 장치가 분리 되었을 뿐만 아니라, 원료 컵을 사용한 주입과 틸팅에 의한 용해 도가니의 출탕이 주형 도가니를 통해서 반복 조업이 가능토록 제작되었다. 또한 이중 챔버를 사용하여 챔버내 온도 상승에 대비하였으며, 잉곳의 산화 및 오염 방지를 위하여 글로브 박스가 도가니 챔버에 장착되었다.

Fig. 1은 잉곳주조장치의 개념도로서 크게 진공챔버, 글로브박스, Antecamber, 흑연도가니, 주형, 원료 컵 등으로 구성되었다.

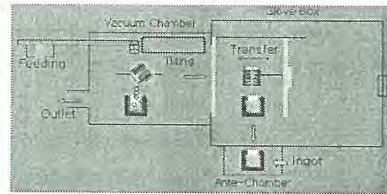


Fig. 1. Schematic diagram of an ingot casting equipment

2.2 잉곳제조 시험

Fig. 2는 비우라늄인 Cu의 온도 Profile로서 PID 제어에 의한 가열시험 결과이다. 목표온도인 1200℃까지 승온 시키기 위해서 350℃까지는 10분, 900℃까지는 20분, 1200℃까지는 10분으로 설정되어 실험이 수행되었다. 주형은 300℃까지 가열하였으며, Ar 가스를 분당 50L씩 주입하였을 때 챔버 내의 압력이 35 ~ 63 torr를 유지하였다. 이때 1200℃까지 승온시켜 Cu를 용해한 후 도가니를 기울여 용탕을 주형에 주입하였다.

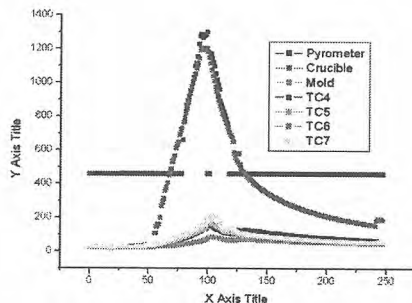


Fig. 2. Temperature profile of PID control with Cu

Fig. 3은 우라늄 전착물을 용해하기에 앞서 약 5kg의 Du를 1300℃까지 가열 및 용해한 후 잉곳이 제조되기까지의 온도 Profile을 나타낸 것이다. 챔버내 각각 4개의 TC들은 200℃미만의 온도를 유지하고 있을 뿐만 아니라, 제조된 주형의 형상대로 우라늄 잉곳이 잘 만들어졌다.

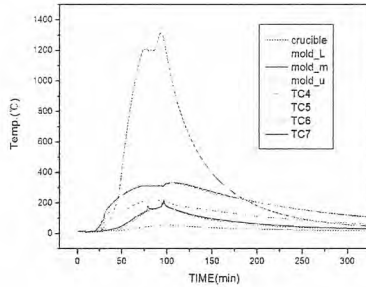


Fig. 3 Temperature profile of heating experiment with DU ingot

3. 결론

이와 같이 본 연구에서는 우라늄 전착물의 용해에 앞서 Cu용해를 통한 장치의 온도 Profile 등 성능 테스트가 수행되었으며, Du 용해를 통한 우라늄 전착물의 용해 가능성 및 잉곳제조 조건들도 확인할 수 있었다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부에서 주관하는 원자력 중장기개발 사업의 일환으로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

- [1] 유재형, 이병직, 이한수, 김웅호, “고온전해분리 기술의 개요 및 기존 핵연료주기 대체 기술로서의 적합성 검토”, 한국방사성폐기물 학회지, 5(4), pp. 283-295 (2007).
- [2] 유재형, 홍권표, 이한수, “사용후핵연료 파이프 처리공정 실증시설의 개념설계 연구”, 한국방사성폐기물 학회지, 6(3), pp. 233-244 (2008).

전해환원공정에서 Fe-Base 합금의 부식거동

조수행, 강대승, 홍순석, 정명수, 조해동, 허진목, 이한수

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

nshchol@kaeri.re.kr

1. 서론

산화물 사용후핵연료의 전해환원공정은 고온 용융염 $\text{LiCl-Li}_2\text{O}$ 계에서 우라늄산화물을 전해환원하는 공정으로 음극에서 우라늄메탈로 환원되며, 양극에서 산소가 발생된다. 이러한 전해환원공정의 반응기 등의 장치재료는 650°C 이상의 고온 및 산소가 발생하고 부식성이 강한 용융염상에 노출된다. 본 연구에서는 전해환원공정 장치재료의 부식에 영향을 미치는 주요인자인 Li_2O 농도 및 산소 분위기를 고찰하여 전해환원공정의 운전조건 및 용융염부식억제형 재료개발에 필요한 기초자료를 도출하고자 한다.

2. 본론

본 연구에서 사용한 Fe-Base 합금인 Type 304 S.S.(8.65Ni-18.08Cr-71.14Fe-1.06Mn-0.54Si), Type 316 S.S.(10.67Ni-16.76Cr-68.47Fe-2.12Mo-0.58Si) 및 Incoloy 800H (34.0Ni-21.0Cr-43.70Fe-0.6Ti-0.40Si)을 크기, 70mm(L)×15mm(W)×2mm(T)로 가공하여 사용하였다. 부식실험은 환경온도; 650°C , 부식시간; 24, 72시간, Li_2O 농도; 1, 3wt%, 혼합가스 농도; Ar-10% O_2 분위기하에서, 혼합용융염 $\text{LiCl-Li}_2\text{O}$ 를 MgO 도가니에 넣고 아르곤 분위기에서 가열하였으며, 용융염의 온도가 650°C 에 도달하면 시편을 용융염에 침지시킨 후 용융염 중에 알루미늄 튜브(6φ)를 통해 혼합가스를 공급하였다. 주어진 부식반응시간에 도달하면 시편을 용융염으로부터 분리시킨 후 아르곤 분위기에서 로딩하였다. 실험 종료 후 부식된 시편을 증류수에서 세척하여 용융염을 제거하였으며, 부식생성물의 분석, 미세조직 관찰을 위해 XRD, SEM과 EDS를 사용하여 분석하였다. Fig. 1은 $\text{LiCl-(1, 3)wt.\% Li}_2\text{O}$, 650°C , (24, 72)시간동안 부식실험 한 Type 304 S.S. 시편의 단면조직을 나타낸 것이며, Fig. 1에서 보는 바와 같이 1%- Li_2O 농도에서는 부식층이 연속적이고 조밀한 부

식층에서 반응시간이 증가하면서 전면부식형태를 보였으며, 3%- Li_2O 농도에서는 간헐적인 부식층에서 입계부식형태를 나타내었다[1]. Fig. 2에 $\text{LiCl-(1, 3)wt.\% Li}_2\text{O}$, 650°C , (24, 72)시간동안 부식실험 한 Type 316 S.S. 시편의 단면조직을 나타내었으며, Fig. 2에서 보는 바와 같이 1%- Li_2O 농도에서는 부식층이 연속적이고 조밀한 부식층에서 반응시간이 증가를 해도 부식층의 변화는 없으나 일부 균열을 보였으며, 3%- Li_2O 농도에서는 연속적이고 조밀하나 반응시간이 증가하면 부식층 직하에 균열현상을 나타내었다. Fig. 3은 $\text{LiCl-(1, 3)wt.\% Li}_2\text{O}$, 650°C , (24, 72)시간동안 부식실험 한 Incoloy 800H 시편의 단면조직을 나타낸 것이며, Fig. 3에서 보는 바와 같이 1%- Li_2O 농도에서는 반응시간이 증가하면 간헐적인 부식층에서 조밀한 전면부식 형태를 보였으며, 3%- Li_2O 농도에서 간헐적인 부식층의 형태는 유지되나 부식층 직하에 Cr, Fe의 고갈현상과 Ni-rich를 나타내었다[2].

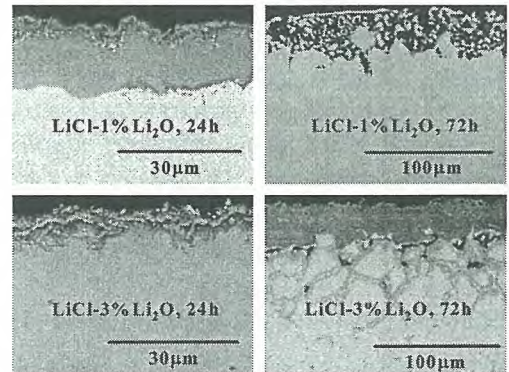
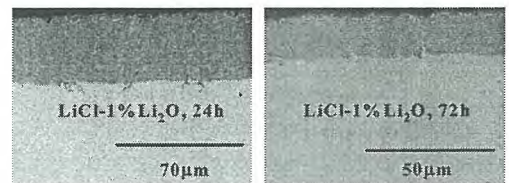


Fig. 1. Cross-sectional SEM image of Type 304 S.S specimen corroded at 650°C .



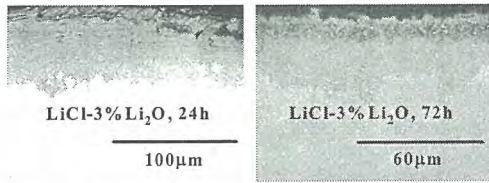


Fig. 2. Cross-sectional SEM image of Type 316 S.S specimen corroded at 650°C.

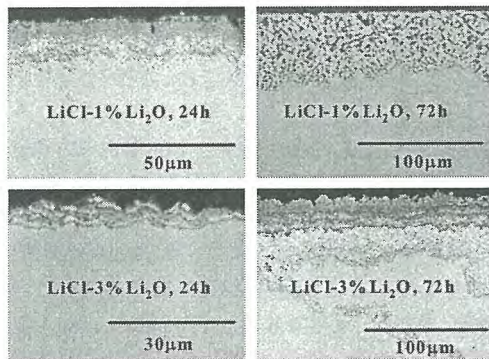


Fig. 3. Cross-sectional SEM image of Incoloy 800H specimen corroded at 650°C.

3. 결론

연구의 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

Type 304 S.S.는 Li_2O 농도의 증가로 인해 전면부식에서 입계부식 형태를 나타내었으며, Type 316S.S.는 부식층에 간헐적인 균열을 보이나 연속적이고 조밀한 부식층을 보였으며, Li_2O 농도의 증가에 따라 부식층 직하에 균열현상을 나타내었다. Incoloy 800H의 부식층은 1%- Li_2O 농도에서는 반응시간이 증가하면 간헐적인 부식층에서 조밀한 전면부식 형태를 보였으며, 3%- Li_2O 농도에서 간헐적인 부식층의 형태는 유지되나 부식층 직하에 Cr, Fe의 고갈현상과 Ni-rich를 나타내었다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

[1] S. Ling, T. A. Rahmel and R. Petkovic-

Luton, Oxid. Met., 40, 180(1993).

[2] A. Joshi and D. F. Stein, Corrosion, 28, 321(1972).

SQS방법을 이용한 사용후 금속핵연료 전해정련 공정발생 공용염폐기물 처리

조용준, 김인태, 이한수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150-1

chovj@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 산화물핵연료를 이용한 전해정련 공정에서는 회토류를 포함하고 LiCl-KCl 공용염폐기물 발생하지만, 하용후 금속핵연료의 전해정련 공정에서는 Cs 및 Sr과 같은 1,2족 핵종과 다량의 회토류핵종을 모두 포함하고 있는 LiCl-KCl 공용염폐기물이 발생한다. 이러한 공용염폐기물은 모두 안정된 형태로 고화처리되어 영구처분 되어야 하므로 공용염폐기물의 양을 줄이는 것은 전체적인 파이로공정의 경제성 뿐만 아니라 환경친화성을 높여 파이로공정에 대한 국민적수용성을 증대시킬 수 있다.

발생하는 공용염폐기물의 양을 줄이기 위해서는 공용염폐기물내 포함되어 있는 핵종만을 분리하여 분리된 핵종만을 고화처리하고 나머지 정제된 공용염은 전해정련 공정에 재사용하는 방법을 사용할 수 있다. 공용염폐기물 내 포함되어 있는 회토류 핵종의 경우 산소와의 반응으로 산화/침전시켜 99%이상 분리할 수 있으나 1, 2족 핵종의 경우 회토류와 같이 회토류만을 분리하는 기술은 현재까지 개발된 것이 없다. 다만, 제올라이트를 이용하여 이온교환을 통해 분리하는 연구가 미국의 INL을 중심으로 이루어지고 있으나 높은 핵종 분리효율을 나타내고 있지 않다.

따라서, 본 연구에서는 공용염폐기물 내 존재하는 1,2족 핵종의 경우 zone freezing 공정을 이용하여 농축분리하는 연구와 산소분산 및 zone freezing 공정의 순차적으로 이용하는 SQS (SeQuential Separation)방법을 이용하여 모든 핵종을 분리하는 공정에 대한 연구를 수행하였다.

2. 실험 및 결과

SQS공정은 공용염폐기물 내 존재하는 1/2족 핵종과 회토류 핵종을 하나의 반응기에서 모두 분리해 내기 위하여 산소분산 공정과 결정화(zone freezing)공정을 순차적으로 사용하는 기술로 우

선 산소분산법을 이용하여 공용염폐기물내 존재하는 회토류핵종들을 모두 공용염에 불용성이 산화물 또는 옥시염화물 형태로 전환시킨다. 이때 공용염내 존재하는 1족 및 2족 핵종은 산화물로 전환되지 않는다. 회토류들의 산화공정 후에 zone freezing 공정을 수행하고 1/2족 핵종들의 농축과 생성된 회토류 산화물들의 침전을 동시에 수행하게 된다.

일반적으로 산소분산 공정으로 생성된 회토류 산화물들의 침전을 위해서는 많은 시간(7시간 이상)이 소요되지만 본 SQS방법을 이용하면 산화물들의 침전과 1/2족 핵종들의 농축을 동시에 수행할 수 있다는 장점이 있다. SQS공정이 종결되면 최종 결정체는 상부의 정제된 공용염층과 하부의 회토류침전물 및 1/2족 핵종들이 농축되어 있는 혼합물층으로 분리된다. 혼합물 층에는 공용염과 회토류침전물 그리고 높은 농도의 1/2족 핵종들이 포함되어 있기 때문에 물리적인 방법으로 상부의 정제염층과 분리한 후 하부의 혼합물층 전체를 고화처리 할 수 도 있고 휘발/응축공정을 통하여 회토류 침전물들을 분리하여 각각 처리하는 공정을 수행할 수 도 있다.

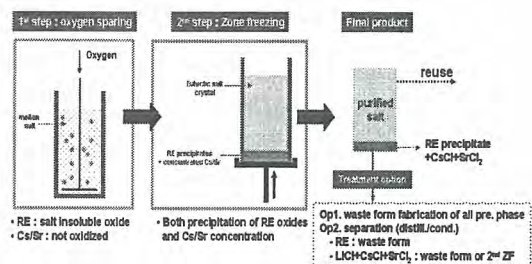


Fig. 1. Operation procedure of SQS process

본 연구에서 사용한 SQS 공정장치의 실제모습을 Fig. 2에 나타내었다. 본 장치는 장치의 부식 및 포함핵종의 산화를 방지하기 위하여 glove box내에 설치되어 있으며 산소분산 공정과 zone freezing 공정을 동시에 수행할 있도록 설계/제작되어 있다. 즉, 반응로는 상부의 산화/침전 반응부

와 하부의 zone freezing부로 나뉘어져 있으며 특히 Fig.2에서 볼 수 있듯이 결정이 이루어지는 부분의 세밀한 온도제어를 위하여 상부와 하부의 온도를 각각 제어할 수 있도록 하였고 축방향으로 4개의 TC를 설치하여 적정 온도에서 결정이 생성되도록 조절하였다. Fig. 3에 zone freezing 공정에 따른 축방향 온도분포의 예를 나타내었다.

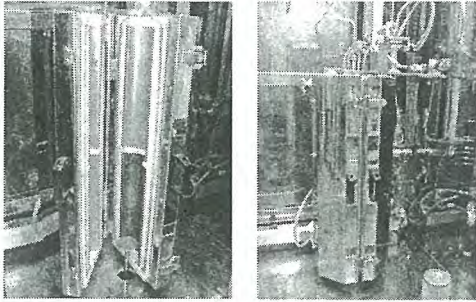


Fig. 2. Photo of SQS experimental apparatus

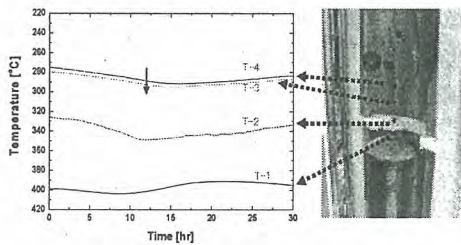


Fig. 3. Axial temperature distribution during zone freezing process

Table 1에 실험조건을 정리하여 나타내었는데 직경이 65mm이고 높이가 300mm인 알루미늄용기를 사용하였고 1, 2족 핵종으로 각각 CsCl 및 SrCl₃를 희토류핵종으로는 Y, Cs, Pr, NdCl₃를 사용하였다. 실험은 우선 1000g의 LiCl-KCl 공융염 (KCl=53.8%)에 1/2족 및 희토류 핵종을 넣은 후 모두 용해시키고 산소분산 공정을 수행한다. 산소분산 공정이 종결되었으면(6시간) 용기 하강장치를 이용하여 일정속도로 결정화공정을 수행한다. 이때 실험변수로는 냉각부로의 하강속도(3.2-5.3 mm/hr)를 선정하여 하강속도에 따른 1/2족 핵종 분리특성을 파악하였다. Fig. 4에 SQS공정의 운전 순서를 도식적으로 나타내었다.

Fig. 5는 SQS 공정이 종결된 후 알루미늄 용기에서 분리한 고체 공융염을 나타낸 것인데 그림에서 볼 수 있듯이 상부의 순수염층과 하부의

순수염층으로의 깨끗한 층분리 현상을 얻을 수 있었으며 상부의 순수염층에서 산화와의 반응으로 형성된 희토류입자가 존재하지 않았다.

Table 1. Detailed experimental conditions

Crucible size [mm]	eutectic salt [g]	Amount of FPs addition			Oxygen sparging process			Zone freezing process Vel. [mm/hr]
		Group I/II	Lanthanide		Oxidation temp. [°C]	sparging rate [L/min]	sparging Time [hr]	
		CsCl [g]	SrCl ₂ [g]	Y/Ce/Pr/NdCl ₃ [g]				
65 LD 300 H	1,000 (KCl=548)	10 (1.5wt%)	5 (1.5wt%)	48 (12 each) (5.2wt%)	800	1.5	6	3.2-5.3

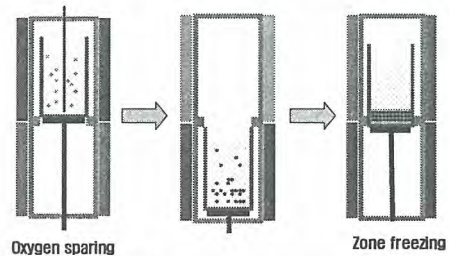


Fig. 4. Experimental procedure

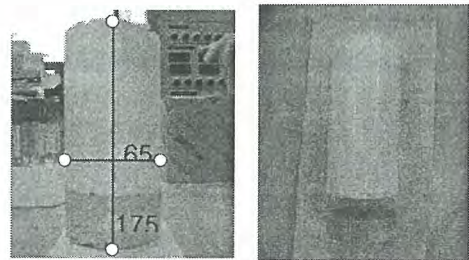


Fig. 5. Phase separation after SQS process

SQS공정 후 생성된 결정체에서는 형성된 결정체의 외부에 희토류염화물을 볼 수 가 없었고 상분리가 완벽하게 발생하였으며 전 결정체내에서 희토류핵종의 농도는 500 ppm 미만이었다. 즉, 산소분산 공정을 통해 희토류염화물들은 대부분 공융염에 불용성인 산화물로 전환되어 침전되었다는 것을 의미한다. 1/2족 핵종의 경우는 80wt%의 공융염 재생율을 가정하였을 경우 약 20%의 분리효율을 나타내었으며 알루미늄 용기의 하강속도(즉, 결정속도)가 증가할 수록 1/2족 분리효율을 감소하였으나 3.7-4.7 mm/hr의 하강속도 범위에서는 거의 일정한 값을 나타냄을 알 수 있었다.

회전형 휘발성 산화장치 제작 및 그레놀형 원료입자 제조 기초 실험

이재원, 윤여완, 신진명, 박근일, 박장진, 이정원
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
niwlee@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로공정의 전처리공정인 휘발성 산화공정에서는 파이로공정의 부하 저감을 위해 휘발성 및 준휘발성 핵분열생성물의 휘발제거와 동시에 전해환원공정의 처리효율 증대를 위한 원료입자의 입도제어 관점에서 연구가 수행되고 있다. 전해환원공정의 처리효율을 증대시키기 위한 원료입자 조건으로는 전해질의 침투가 용이한 다공성 구조, 충전율을 높일 수 있는 형태, 그리고 mm 단위 정도의 크기가 요구되고 있다[1]. 현재 연구중인 원료입자의 형태는 그레놀형 및 펠렛형[2]으로 구분된다. 본 연구에서는 그레놀형 원료입자를 제조하기 위해서 1.5 kgHM/batch 규모의 회전형 휘발성 산화장치를 제작하였으며, SIMUEL을 이용하여 그레놀형 원료입자 제조실험을 수행하였다.

2. 회전형 휘발성 산화장치 제작

2.1 장치 설계 성능

휘발성 산화장치의 성능 설계기준 및 제작도면은 Table 1 및 Fig. 1과 같다. 배기체 처리장치와의 연결부는 특수 Rotary Joint를 설계하여 제작하였다. Tilting 시스템은 SIMFUEL 소결체 또는 분말을 장입하고 그레놀을 회수하기 위한 것으로 장입시는 +30°, 회수시에는 -40°로 하였다. 반응기 내벽에 Lifter와 Tumbler는 설치하지 않았다.

Table 1. Performance of Rotary Voloxidizer

Type	Cylinder
Material	INCONEL Alloy 601
Dimension of Reaction Cylinder	Φ200x200L mm
Max. Temperature	1200°C
Rotational Velocity	~12 rpm
Rotation System	Geared Motor, Sprocket and Chain, Double Roller
Tilting Angle	+30°, -40°

2.2 장치 성능시험

성능시험은 회전속도를 12 rpm으로 하여, Ar 분위기하에서 1200°C에서 5시간동안 수행하였으며, 설계사양에 적합한 성능을 보였다.

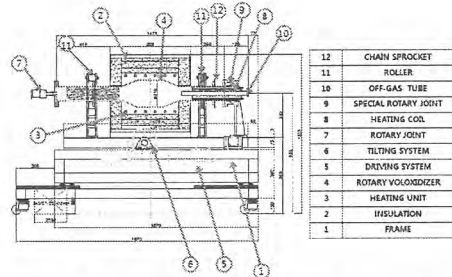


Fig. 1. General drawing of rotary voloxidizer

3. 그레놀형 원료입자 제조 기초 실험

3.1 실험

연소도 30,000 MWd/tU의 SIMFUEL을 이용하여 U_3O_8 SIMFUEL 분말을 제조하여 실험에 사용하였다. Table 2에는 그레놀 제조 조건을 나타내었다. 실험 1 및 2에서의 U_3O_8 분말량을 200g 및 1000g로 하여 분말 충전량에 따른 그레놀 제조 특성을 조사하였다. CCTV 카메라로 상온에서 분말층의 운동모드를 관찰하였으며 Slumping 운동형상을 보이는 조건에서 그레놀을 제조하였다.

Table 2. Fabrication Conditions of Granules

Test No.	Charged Volume (%)	Atmosphere	Temp(°C)/Time(hrs)	Rotational Velocity (rpm)	Powder Bed Motion Mode
1	2	Ar	1150/5	2	Slumping
2	10	Ar	1150/5	3	Slumping

3.2 그레놀 특성

Tilting 시스템을 이용하여 열처리한 SIMFUEL 분말을 전량 회수할 수 있었다. SIMFUEL 분말 전량을 회전운동형 Sieve Shaker를 이용하여 입도분석을 하였으며, 그 결과를 Fig. 2 및 3에 나타내었다.

입자들은 실험 1에서는 대부분 0.5~5 mm, 실험 2에서는 1~10 mm 사이에 분포하였다(Fig. 2). 0.5 mm 이상이 되는 입자는 실험 1 및 2에서는 거의 동일하며 90%였으며, 1 mm 이상의 입자는 실험 1에서는 70%였으며 실험 2에서는 84%로 증가하였다.

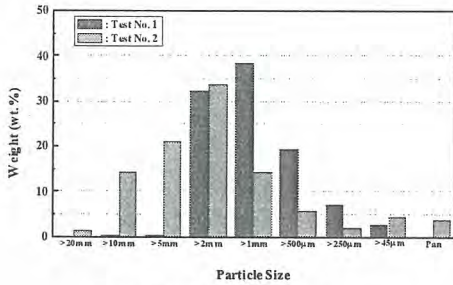


Fig. 2. Particle size distribution

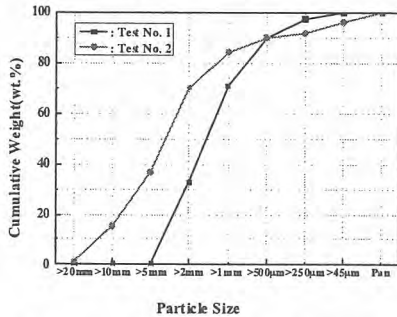


Fig. 3. Cumulative particle size distribution

그레놀의 원형도를 Stereoscopic Microscope을 이용하여 측정하였으며 그 결과를 Table 3에 나타내었다.

Table 3. Circularity of Granules with Particle Size(P_s)

Test No.	$2 \leq P_s < 1 \text{ mm}$	$5 \leq P_s < 2 \text{ mm}$
1	0.63~0.95	0.57~0.90
2	0.80~0.93	0.70~0.85

4. 결론

회전형 휘발성 산화장치를 이용하여 Ar 분위기, 1150℃, 5시간 운전조건에서 1 mm이상의 입자를 84%까지 제조할 수 있었다. 1 mm이상의 그레놀 제조율을 높이기 위해서는 제조변수의 최적화가 요구된다.

5. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.(연구과제 고유번호: 2009-0062283)

6. 참고문헌

- [1] J.J. Park, J.M. Shin, G.I. Park, Jae W. Lee, J.W. Lee and K.C. Song, "An Advanced Voloxidation Process at KAERI", Global 2009, Paris, 2009
- [2] Y. Sakamura, et al., "Development of Oxide Reduction Process to Bridge Oxide Fuel Cycle and Metal Fuel Cycle", Global 2009, Paris, 2009

SIMFUEL 이용 고온 산화열처리 분말의 소결 특성

이재원, 김청한, 박장진, 박근일, 이정원
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 niwlee@kaeri.re.kr

1. 서론

고온 산화 공정법은 $UO_{2.00}$ 이상에서 금속상태로 존재하는 Cs와 같은 저융점의 핵분열생성물 원소와 Ru, Tc와 같은 고융점의 핵분열생성물을 산화에 의해서 휘발성 산화물로 전환시켜 제어하는 방법이다. 특히 캐나다 AECL에서는 1100~1600℃의 산화 조건에서 Ru와 같은 고융점의 금속석출물 형태로 존재하는 핵분열생성물을 제어함과 동시에 UO_2 에 고용되어 있는 희토류계 핵분열생성물의 제어 가능성을 제시하였다[1]. 본 연구에서는 고온 산화에 의해 상분리되는 희토류 원소(RE)를 기계적으로 분리하지 않고 상분리 분말의 소결특성을 SIMFUEL을 이용하여 조사하였다.

2. 실험

2.1 SIMFUEL 제조

순수한 UO_2 , 연소도 30 GWd/tU 및 60 GWd/tU 상당하는 SIMFUEL을 제조하였다. 연소도 30 및 60 GWd/tU SIMFUEL의 RE/(U+RE) 비율은 각각 1.463 및 2.849 wt.%이다.

2.2 모의 DUPIC 소결체 제조 공정

분말 제조공정은 Fig. 1과 같이 2개의 공정으로 하였다. 고온 산화처리를 제외하고 DUPIC 공정과 동일하게 3회 산화·처리를 하여 분말을 제조하였다. AP공정에서는 산화분말을 볼밀링하는 단계를 추가하였다. Attrition 밀링은 1회 및 3회 반복하였으며, 윤활제로는 Zn-stearate를 사용하여 밀링분말과 혼합하여 300 MPa의 압력으로 성형체를 제조하였다. 소결체는 4% H_2 -Ar가스를 사용하여 800℃에서 1시간동안 탈락스 후에 1700℃에서 6시간동안 소결하여 제조하였다. 분말제조 공정단계별로 생성된 분말의 입도는 Laser Particle Size Analyzer(Malvern) 이용하여 측정하였으며, 비표면적은 BET법을 이용하여 측정하였다. 소결체 밀도는 수침법으로 측정

하였다.

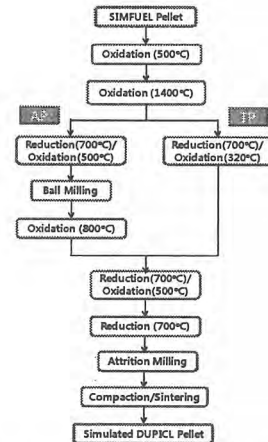


Fig. 1. Simulated DUPIC fuel fabrication process flow sheet

3. 결과 및 토의

3.1 분말특성

분말의 평균입도를 측정한 결과를 Fig. 2에 나타내었다. AP공정에서의 2차 산화분말의 평균입도는 약 5 μm 인데 이는 500℃에서의 산화, Ball 밀링, 그리고 800℃에서의 산화 후에 측정한 것으로 Ball 밀링에 의해서 입도가 크게 감소한 것으로 여겨진다. 3차 산화처리에 의해서도 입도는 감소하며, RE/(U+RE)=2.849를 제외하고 3차 환원처리 시에는 입도가 증가하였다. TP공정에서는 3차 산화처리시까지 입도는 감소하며, 3차 환원처리 시에는 AP공정과 동일하게 RE/(U+RE)=2.849를 제외하고 평균입도는 모두 증가하였다. 공정과 상관없이 Attrition 밀링에 의해서 분말은 1 μm 이하의 미세한 분말이 됨을 알 수 있었다.

분말의 비표면적을 측정한 결과를 Fig. 3에 나타내었다. AP공정에 의해서 얻은 분말의 비표면적이 TP공정 분말보다 높음을 알 수 있었다. 3차 산화처리까지는 3종류 분말의 비표면적은 모두

증가하며, 환원처리시에는 $RE/(U+RE)=0$ 을 제외하고 모두 증가하였다. Attrition 밀링에 의해서 분말의 비표면적은 급격히 증가함을 알 수 있었다. AP공정에 의해서 제조된 분말의 소결성이 높음을 알 수 있었다.

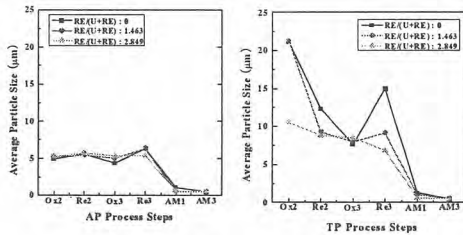


Fig. 2. Average particle size

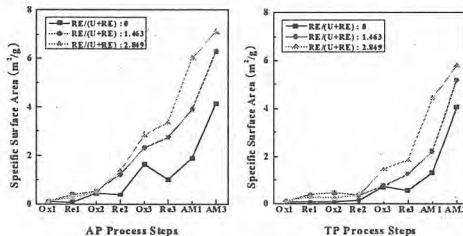


Fig. 3. Specific surface area

3.2 소결특성

성형체 및 소결체는 모두 균열 및 파쇄 없이 건전한 형상을 유지하였다. 소결밀도를 측정한 결과를 이론밀도의 백분율로 Fig. 4에 나타내었다. 소결성은 AP 공정에서 얻은 분말이 보다 좋음을 알 수 있었다. Attrition 밀링을 3회(AM3) 하였을 경우에 AP공정 및 TP공정에 의해서 생성된 분말의 소결체는 모두 이론밀도의 95%이상을 만족하였다. 따라서 $RE/(U+RE)$ 함량은 소결밀도에 영향을 미치지 않은 것으로 여겨진다. 고온 산화 상 분리 분말도 환원·산화처리 및 밀링에 의해서 소결성이 좋은 분말이 얻어짐을 알 수 있었다.

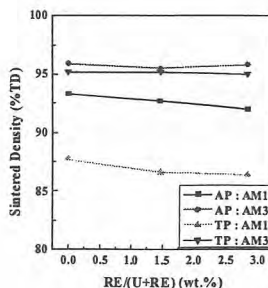


Fig. 4. Sintered density

4. 결론

고온 산화 상 분리 분말도 환원·산화처리 및 밀링에 의해서 소결성이 좋은 분말로 전환됨을 알 수 있었다.

5. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.(연구과제 고유번호: 2009-0062282)

6. 참고문헌

- [1] Z. Liu, D.D. Semeniuk, R.F. O'Connor and T. Kunkel, R.S. Dickson, "Report in the HOX2 Experiment : Fission-Product Release and Trapping During the OREOX and Sintering Processes", DUPIC-AE-022, AECL, 1998

모의 금속연료의 압축 크리프 거동

나상호, 주윤정, 박창제, 강권호

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

shna@kaeri.re.kr

1. 서론

일반적으로 우라늄 합금금속 연료는 세라믹 연료에 비해, 연료밀도가 높고, 열전도도도 우수한 장점이 있지만, 연료의 용융점이 낮으므로 냉각재 출구 온도를 높일 수 없어 원자로 효율의 저하 가능성이 있으며, 조사시키면 연료의 부피팽창이 크고, 피복관과의 공정(eutectic) 등의 단점으로 인하여 현재의 원자력연료의 중심에서 벗어나 있었다. 그러나 파이로프로세싱을 거친 금속연료는 기존의 고속증식로의 금속연료인 우라늄-플루토늄-지르코늄의 3원계 성분 외에 넵튬, 아메리슘, 퀴륨 등의 마이너 액티나이드와 희토류 성분이 기본적으로 함유되어 있어, 핵확산 저항성이 강한 새로운 연료주기로 각광을 받고 있다.

금속연료의 노내 사용온도는 전형적인 설계에서는 700 K~1200 K($T/T_m > 0.5$, T_m : 용융점)으로, 이와 같은 고온에서는 가스에 의한 부피팽창(swelling) 외에 크리프 변형이 중요하다. 크리프 변형속도는 일정 하중을 크리프 시험시편에 걸고 장시간에 걸쳐 시험시편의 연신량을 직접 측정하여 구하는 것으로, 일반적으로 금속 시료인 경우에는 인장시험으로, 세라믹 시료인 경우에는 압축 시험을 많이 이용한다. 그러나 우라늄 금속인 경우, 수십 mm의 시험시편을 제조하는 것이 용이하지 않으며, 불활성 분위기의 조건에서도 장시간의 고온에서 유지하는 동안 현저한 산화가 예상되는 등의 제약조건으로 인해 압축시험이 사용되기도 한다.

여기에서는 모의 금속연료를 사용하여 기계적 물성의 하나인 크리프 거동을 조사하였다.

2. 본론

2.1 시편 준비 및 실험 방법

시편의 조성(wt%)은 96.9U-0.1Pd-1.1Nd-0.5Zr-1.4Ce이며, 시편은 원통형으로 직경은 8.6 ± 0.4 mm, 길이는 10.5 ± 0.3 mm이다. 희토류를 대표하는 Nd와 TRU의 아메리슘 대신에 Ce를 첨가하여

제조하였으며, 첨가함량은 55,000 MWd/tU 정도 연소시켰을 때를 모사한 함량이다. 크리프 시험은 압축시험으로 수행하였으며, Fig. 1에 개략적인 크리프 시험장치를 나타내었다. 아르곤(Ar) 가스 분위기 하에서 온도는 2 조건(873 K & 973 K), 응력은 15~150 MPa로 변화시켜 크리프 변형속도를 구하였다. 순간변형을 제하고 크리프 변형량은 5%로 하였다.

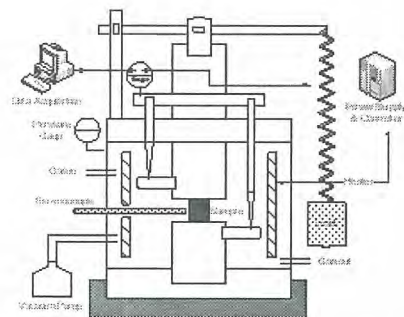


Fig. 1. Schematic diagram of creep apparatus

2.2 실험 결과

Fig. 2와 Fig. 3에 각각 온도 873 K와 973 K에서의 응력에 따른 시료(96.9U-0.1Pd-1.1Nd-0.5Zr-1.4Ce)의 크리프 변형속도를 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이, 온도와 응력이 증가할수록 크리프 변형속도는 증가함을 보여준다. 다만 일정 응력 이상에서는 크리프 변형속도가 급격히 증가함을 보여준다. 천이응력의 경우, 온도가 증가할수록 감소하는 경향을 보여준다. 크리프 변형속도가 급격히 변하기 시작하는 응력을 천이응력, 이라 하며, 천이응력보다 작은 구간($\sigma < \sigma_t$)과 큰 구간($\sigma > \sigma_t$)에서 작용하는 메커니즘은 다르다.

Fig. 2의 온도 873 K에서 천이응력, σ_t 은 75.3 MPa로 나타났으며, 천이응력보다 작은 구간($\sigma < \sigma_t$)에서는 응력지수, n 이 1.71, 천이응력보다 큰 구간($\sigma > \sigma_t$)에서 응력지수, n 은 5.07로 나타났다.

또한 Fig. 3의 온도 973 K에서 천이응력, σ_t 은 30.2 MPa로 나타났으며, 천이응력보다 작은 구간 ($\sigma < \sigma_t$)에서는 응력지수, n 이 0.68, 천이응력보다 큰 구간 ($\sigma > \sigma_t$)에서 응력지수, n 은 4.61로 나타났다. 일반적으로 응력지수가 2보다 작은 값에서 작용하는 메커니즘은 일반적으로 확산 크리프가, 그리고 응력지수가 4~5인 값에서는 전위상승 크리프가 유효기구인 것으로 보고되고 있다. 결과적으로 천이응력 미만의 응력 구간에서의 크리프 유효 메커니즘은 확산 크리프가, 그리고 천이응력보다 큰 응력 구간에서의 크리프 유효 메커니즘은 전위상승에 의한 크리프인 것으로 사료되었다.

경향을 보여주었다.

- 천이응력보다 작은 응력구간에서의 유효 메커니즘은 확산 크리프가, 천이응력보다 큰 응력 구간에서는 전위상승이 유효 메커니즘으로 나타났다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력중장기과제의 일환으로 수행되었습니다.

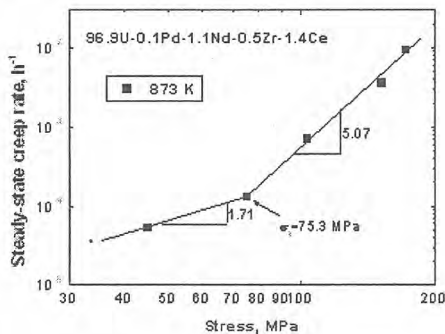


Fig. 2. Steady-state creep rate of sim fuel at the temperature of 873 K

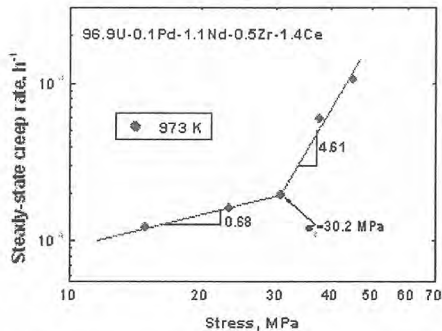


Fig. 3. Steady-state creep rate of sim fuel at the temperature of 973 K

3. 결론

모의 금속연료를 제조하여 온도 및 응력에 따른 크리프 변형거동을 압축시험으로 측정하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

- 시험온도가 증가할수록 천이응력은 감소하는

차폐셀과 근접구역의 부압조건 및 여과장치 개요

황용화, 이형권, 서항석, 권형문, 장정남, 전용범, 민덕기
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)
hvh@kaeri.re.kr

1. 서론

조사후연료시험시설의 핫셀에는 고준위 방사능 오염물질을 취급하는 콘크리트 벽 및 납 블럭 차폐셀이 공존하고 있다. 차폐셀의 공기는 인터벤션(Intervention)을 통해 차폐셀에 공급되며, 시간당 28~38회의 횟수를 갖도록 설계되어 있다. 셀의 상단에서 하단으로 수직층류의 공기흐름을 유도하여 미립본진이 자중에 의해 벤치바닥에 가라앉게 되어 오염이 확산되는 것을 방지하고, 제염작업도 용이하다. 또, 원통필터의 포트는 실험벤치에 연결되어 있어 원격조종기(manipulator)에 의해 교체가 순조롭고 피폭의 우려로부터 작업 안전성이 보장된다.

2. 본론

2.1 구역설정 분류

차폐셀을 중심으로 한 해당구역은 색상 및 번호로 분류되며 표 2.1에서와 같이 첫 번째 자리수의 번호가 클수록 고방사능구역으로 표기되어있다.

- 청색(청정구역) : 사무실, 제어실 및 workshop 등이 포함되며, 시간당 3회 정도의 환기횟수를 가진다.
- 녹색(관리구역) : 운전 및 실험실 등 일반 작업 구역으로 시간당 3~5회의 환기횟수를 적용된다.
- 호박색(제한구역) : 차폐셀에 근접하여 실험 작업구역, 인터벤션 등이 위치하고 있으며, 시간당

6~8회의 환기횟수가 적용된다.

- 적색(금지구역) : 차폐셀, 글로브박스 및 폐액탱크 등의 process장비 등이 위치해 있으며, 환기횟수가 가장 높다.

2.2 제한, 금지구역의 부압조건

시설 내 관리, 제한 및 금지구역(차폐셀) 등은 방사능구역으로 부압유지가 요구되는 존이므로 저방사능 구역에서 고방사능 구역으로 공기흐름이 이어지도록 되어있다. 차폐셀을 제외한 관리 및 제한구역에서의 풍량과 환기횟수는 정압 급기구를 통해 직접 공급되는 공기량과 사무 공간 및 저방사능 구역을 통해 유입된 공기량으로 조절되고 있다. 공기유동에 의한 방사능오염을 최소화하기 위해서 공기 재순환을 배제하고, 전 공기흐름을 취하도록 하였다. 각 구역분류는 표 2.1에 따라 환기회수 및 부압 설정값을 달리하였으며, 고방사능구역(금지구역)에서 저방사능구역(제한구역, 관리구역) 등으로 오염물질이 역류되지 않도록 점검, 관리되고 있다. 또한, 금지구역의 배기는 송풍량 변속 콘트롤러에 의해 요구되는 속도변화를 얻을 수 있도록 설계하여 제한구역 보다 50mmH₂O 이상의 배기동압을 높임으로 셀 내의 오염을 줄이고 셀 외로 공기의 역통풍을 방지하게 되었다. 구역별 부압조건은 Druck사의 DPI-141로 절대압을 측정하여 기준값과 비교한 결과 표2.2와 같이 조건에 만족한 결과를 보였다.

Table 2.1 구역별 정, 부압상태

구역분류	구역설정별 정압 및 부압상태	출입접근성
청정구역(청색, 6000존)	정압	일반실험 및 사무공간
관리구역(녹색, 7000존)	부압(-3~-5mmWg)	작업종사자의 실험 및 작업공간
제한구역(호박색, 8000존)	부압(-6~-8mmWg)	관리구역보다 높은 준위의 실험공간
금지구역(적색, 9000존)	부압(-15~-25mmWg)	차폐셀, 글러브박스 등 출입금지 구역

Table 2.2 관리, 제한 및 금지구역의 측정값

room number	standard (mmH ₂ O)	measured value (mmH ₂ O)	room number	standard (mmH ₂ O)	measured value (mmH ₂ O)
7201	-3~-5	- 3.4	9201	-15 ≤	- 22
7402A	"	- 3.5	9203	"	- 22
7438	"	- 3.5	9205	"	- 20
7429	"	- 3.7	9206	"	- 20
8204	-6~-8	- 6.9	9404	"	- 18
8301	"	- 6.8	9406	"	- 19
8302	"	- 6.7	9407	"	- 19
8401	"	- 7.1	9409	"	- 19

2.3 차폐셀 및 금지구역의 급·배기필터

차폐셀 상단에 설치된 트랜스퍼(transfer) 필터에서 급기공기의 분진이 여과되며, 셀 내의 원통형 배기필터에서 고농도 오염입자를 1차적으로 제거하나 효율시험은 수행하기가 어렵다. 그러나 셀 외부에 조밀표면적을 가진 2단 직렬로 내장된 V-pleats 타입의 DUP 해파필터에서 효율시험을 실시한 결과(표2.3), 0.01% 이내의 누설율로 ANSI에 적합한 성능을 보였으며, 가스켓 손상 등도 나타나지 않았다.

3. 결론

조사후연료시험시설에는 4개의 구역을 설정하고 핫셀을 중심으로 이상적인 부압유지와 환기회수가 필요하다. 시설 내는 수직층류 공기흐름으로 오염저하를 최소화하여 각 구역의 측정값을 조사한 결과 설계값에 적절함을 알 수 있었다. 차폐셀의 배기필터 누설시험에서도 고효율 값을 얻을 수 있었고, 필터를 다중으로 설치하여 안전성을 확보하는 동시에 압력 저하를 줄이는 동시에 기기의 수명연장과 지속적인 유지관리도 요구되었다. 적절한 공기용량과 필터 유니트의 선정이 안전운영과도 밀접한 관계가 있다고 생각된다.

Table 2.3 차폐셀 배기필터 누설시험 List

system	differential pressure		DOP test efficiency(%)			
	standard (mmH ₂ O)	measured value (mmH ₂ O)	upstream	downstream (x0.01)	penetration (%)	efficiency (%)
AF 25	50	22/15	55	12	0.002	99.99
AF 26	50	22/15	53	16	0.003	99.99

Sensitivity Analysis of the Criticality Evaluation Concerning Pyroprocess

Fanxing GAO, Won Il KO, Chang Je PARK and Ho Hee Lee

Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daeduk-daero, Yuseong-gu, Daejeon, Korea

nwiko@kaeri.re.kr

1. Introduction

In regard to the specific neutron characteristics of the nuclear fuel treated by the pyroprocess, criticality evaluation plays a promising role not only in offering the key data on determination of the size of each of those apparatus but also in the fulfillment of the security requirements of the operating regulations. Criticality evaluation of the materials concerning the pyroprocess has been performed employing Monte Carlo techniques. Fresh UO_2 fuel and spent PWR fuel have been employed as the evaluation objects, respectively. It is proposed that there is no criticality risk in the voloxidation process, electro-reduce process and electro-refining in dealing with fresh UO_2 or PWR spent fuel without water intrusion. However, if water mixes with the fuels, the subcritical could be obtained. In the water intrusion cases, it is difficult to determine the exact contribution of each component nuclide to the multiplication factors because there are many nuclides involved and every nuclide influences each other; however, it is meaningful to compare the importance of each nuclide in affecting the criticality and to determine the relationship between water concentration and multiplication factors as well, which could be realized by sensitivity analysis employing TSUNAMI code of SCALE 6. In this paper, the sensitivity of the system criticality to the nuclide compositions of the evaluation object has therefore been carried out to determine quantitatively the importance of each element on the criticality.

2. Evaluation Method

2.1. Sensitivity analysis method

TSUNAMI is a SCALE control module that facilitates the application of sensitivity and uncertainty analysis theory to criticality safety analysis. TSUNAMI predicts the change in k_{eff} due to perturbations in cross-sections or densities by the following Eq. (1). These values of the TSUNAMI outcome are equivalent to the sensitivity of k_{eff} to the number density of each nuclide.

$$S_{k,\alpha} = \frac{dk/k}{d\alpha/\alpha} = \frac{\alpha}{k} \times \frac{k_{\alpha^+} - k_{\alpha^-}}{\alpha^+ - \alpha^-} \quad (1)$$

Where α^+ and α^- represent the increased and decreased values, respectively, of the input quantity α and k_{α^+} and k_{α^-} represent the corresponding values of k_{eff} . The values obtained therefore represent the percentage change in k_{eff} that would be observed by making a 1% increase or decrease in the atom density of each nuclide. These values of the TSUNAMI outcome are equivalent to the sensitivity of k_{eff} to the number density of each nuclide.

2.2. Evaluation objects

PWR spent fuel with the initial enrichment of 4.5 w% ^{235}U and a burnup of 55GWd was adopted as the evaluation object, and the cooling time is 10 years. The irradiation and decay calculations of the PWR fuel were carried out by employing ORIGEN-ARP. The library used in this paper is 27GrpENDF4 of the SCALE 6 system for uranium enriched PWR fuel. The density of the fuel water mixture was calculated and listed in table 1.

Table 1. Calculated density data used in the input of TSUNAMI

	H2O w	Mixture mass density
	%	(g/cm ³)
The homogeneous mixture of UO_2 & H_2O	35	2.445
	40	2.201
	45	2.001
	50	1.834
The homogeneous mixture of SF & H_2O	20	3.656
	25	3.136
	30	2.745
	35	2.441

2.3. Geometry of evaluation objects

The practical geometries of pyroprocessing facilities are complicated. However, for the criticality evaluations, conservative geometries are usually preferred. Cylindrical geometry is widely applied in the pyroprocessing facilities such as the reducer cathode, refiner anode, and winner cathode etc. In this paper the evaluation geometry therefore employs a cylinder with diameter equal to height. Cylinder geometry also applies to the reflectors.

3. Results and discussion

3.1. Sensitivity of nuclides composition to the criticality

As shown in Figure 1, ^{235}U , ^1H and ^{16}O show positive values; however, ^{238}U shows negative values. ^{235}U is fissile so exhibits positive values. ^1H acts as moderation so the values are positive. The increase of ^{16}O density contributes to the increase of k_{eff} . However, ^{238}U exhibits negative effects due to its high amount present in the fuel and the neutron capture. The sensitivity coefficient of ^{235}U increases with the increase of water content in the mixture and surpass the sensitivity coefficient of ^1H due to the improved performance in capture thermal neutrons. However, the sensitivity coefficient of ^1H decreases with the decrease of fissile concentration, which indicates that at the low hydrogen concentration scale hydrogen plays more important role in k_{eff} due to its moderation effect with high fissile concentration. As shown in Figure 9, actinides ^{239}Pu , ^{235}U , ^{241}Pu , and ^{243}Cm exhibit positive values. The moderator ^1H exhibit positive value due to moderation effect before the mass fraction of spent fuel is bigger than 70% and the dilution effect of ^1H surpass its moderation effect after the mass fraction of spent fuel is less than 70%. The other neutron poisons shows negative effect due to the high thermal cross section for neutron capture.

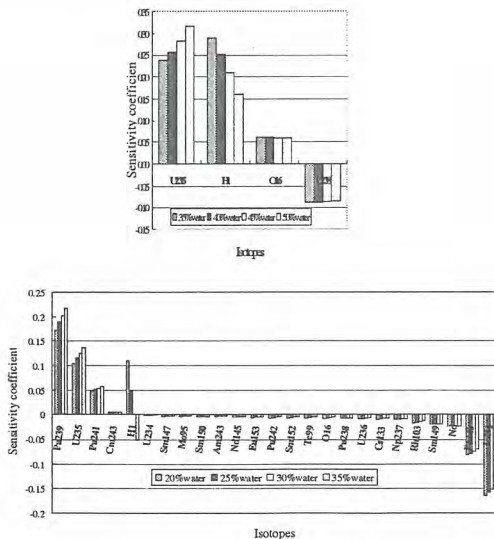


Fig. 1. Dependence of sensitivity coefficient of $\text{UO}_2\&\text{H}_2\text{O}$ and $\text{SF}\&\text{H}_2\text{O}$ on the H_2O weight percent.

3.2. Sensitivity analyses of water concentration to criticality

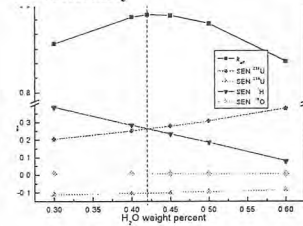


Fig. 2. Dependence of k_{eff} & sensitivity of $\text{U}\&\text{H}_2\text{O}$ on the H_2O weight percent.

There is a crosspoint between the sensitivity plots of ^{235}U and ^1H near 42w% of water as shown in Fig.2. k_{eff} increases before the concentration of water reaches approximately 42w%, due to the contribution of ^1H is more than that of ^{235}U indicated by higher sensitivity values. Near the 42w% of water point, the importance of ^{235}U in determining the k_{eff} is seemingly equal to that of ^1H indicated by the crosspoint of sensitivity of ^{235}U and that of ^1H . After the crosspoint k_{eff} therefore begins to decrease, because at this region main contribution comes from the ^{235}U , however, the concentration of ^{235}U decreases leading to the decline of the k_{eff} plot.

4. Summary

Sensitivity analysis by TSUNAMI clarifies the complex effects of key nuclides on the criticality probability quantitatively. As discussed above, the k_{eff} of UO_2 fuel reaches the maximum value with 42w% concentration of intrusion water. The concentration of hydrogen affects the complexity of reaching criticality by its competition between the concentrations of ^{235}U . Approximately if the weight percent of H_2O in the mixture is less than 42%, the moderation effect of hydrogen surpasses its dilution effect on ^{235}U . However, the importance of ^{235}U increases dramatically when the weight percent of water is bigger than 42%. In the sensitivity evaluation of UO_2 fuel employing TSUNAMI, there is a similar crosspoint of the sensitivity of ^{235}U and the sensitivity of ^1H where the criticality reaches summit. And the optimal water weight percent is determined to be 50%.

5. Reference

- 1) B. T. Rearden, *TSUNAMI-3D: Control Module for Three-dimensional Cross-section Sensitivity and Uncertainty Analysis for Criticality*. ORNL/TM-2005/39 Version 6 Vol. I, Sect. C9. (2009).

파이로 시설의 핵물질 흐름 분석 및 MUF 불확도 계산 프로그램 개발

서지선, 임혜인*, 한보영, 송대용, 신희성, 김호동
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

* UST, 대전 유성구 과학로 113

sis2004@kaeri.re.kr

1. 서론

본 연구에서는 파이로 시설에서의 핵물질 흐름을 분석하고, MUF 불확도를 계산하는 프로그램을 개발하였다. 본 프로그램은 공정당 핵종별 질량(gram), 붕괴율(curie), 발열량(watt), 방사능 선량(mSv) 및 핵임계도를 계산하며, 시설에서 사용될 사용후집합체의 핵종별 조성비는 ORIGEN Code[1]를, 핵임계도는 MCNPX Code[2]를 이용하여 연결하여 계산되도록 하였다. 공정별 물질 흐름 변화에 대한 계산식은 각 핵종별 질량에 적용되며, 핵종별 질량에 따른 붕괴율, 발열량, 방사능 선량은 DB를 이용하여 계산된다. 또한, 물질 흐름 계산시, 공정의 특성에 따른 계산 외에도 실제 운전시 발생할 수 있는 공정장치 내 Hold-up 및 측정 오차를 추정하여 적용시켰다. 추정된 측정오차는 MUF 불확도를 예측하여 파이로 시설에 대한 설계 검증에도 활용할 수 있도록 하였다.

2. 본론

2.1 ORIGEN code 연결 모듈 개발

DB에 저장된 사용후핵연료 집합체의 정보(ID, Fuel Type, 초기 농축도, 연소주기, 운전기간, 냉각기간, 평균 연소도, Moderator 농도, 집합체 총 질량)를 이용하여 ORIGEN Code[1]를 실행시킬 수 있는 input 파일을 생성한 후, 코드를 실행하여 output 파일을 생성하는 모듈을 개발하였다.

여기서 생성된 output 파일에서 핵종별 질량을 추출하여 시설로 입력되는 사용후핵연료의 핵종별 조성비를 결정한다.

2.2 파이로 공정당 핵물질 흐름 계산 모듈 개발

ORIGEN code 연결 모듈의 실행 결과로 얻은 핵종별 조성비를 이용하여 시설에 들어오는 사용후핵연료 집합체의 총 질량에 따른 핵종별 질량을 계산한다. 하나의 집합체가 모두 처리될 때까지 핵종별 조성비는 동일하게 적용되며, 처리되고

남은 집합체의 질량이 배치단위 질량보다 적을 경우, 2 가지 처리 방법 중 선택할 수 있다.

- 방법 1 : 바로 다음 집합체와 섞는 방법.
- 방법 2 : 따로 모아서 처리하는 방법.

공정별 물질 흐름은 공정의 특성을 저장한 Parameter DB를 이용하여 핵종별로 구분된 계산식에 의해서 계산된다. 핵종의 계산식은 핵종이 속한 Group에 따라서 구분되며, 핵종별 Group은 Table 1과 같다.

Table 1. Group of Nuclides

Group	Nuclide
U	U
TRU	Ac, Th, Pa, Np, Pu, Am, Cm, Bk, Cf, Es, S
NM	Tl, Pb, Bi, B, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, Ge, Zr, Nb, Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In, Sn, Sb, Hf
REFP	Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu
AMPF	Fr, Ra, Li, Be, Cs
AEPF	Sr
FP	Po, At, Rn, H, He, C, N, Ne, As, Se, Br, Kr, N _e , Te, I, Xe, Ba, Eu

공정은 배치단위로 진행되며, 전해정련 공정과 같은 경우에는 10 배치를 처리한 후 전해제련 공정이 진행되도록 설정되어 있다. 이와 같은 기능은 모든 공정에 적용될 수 있으며, 다음 공정으로 넘어가는 기준은 사용자 임의로 설정할 수 있다.

물질 흐름 계산에 사용되는 공정별 Parameter는 사용자가 수정할 수 있도록 별도의 인터페이스를 구현하였다. 계산된 배치당 공정당 핵종별 물질흐름 계산 결과값은 DB에 자동 저장되며, 사용자 필요시 엑셀파일로도 저장이 가능하다.

2.3 파이로 공정당 핵물질 상태 분석 모듈 개발

핵종별 그림당 붕괴율, 발열량, 방사능 선량이 저장되어 있는 Isotope DB를 이용하여 핵종별 질량 값에 따른 배치당 공정당 핵종별 붕괴율 및 발열량, 방사능 선량을 계산하는 모듈을 개발하였다.

또한 전해환원 공정과 전해정련 공정에서는 핵종별 질량값을 이용하여 MCNPX Code[2]의 input file을 생성한 후, MCNPX Code[2]를 실행하여 생성된 output file에서 해당 공정에서의 핵임계도를 추출하도록 하였다.

이러한 정보를 이용하여 공정당 핵물질의 상태를 분석할 수 있으며, 공정의 안전성을 입증하는데에도 활용할 수 있다.

2.4 MUF 불확도 계산 모듈 개발

배치당 공정당 핵물질 흐름 계산 결과 값에 측정오차를 추정하여 적용하였다.

배치당 공정당 핵종별 물질흐름 계산 결과 값에 MUF Parameter DB(KMP 설정정보(KMP별 지정 위치, 측정 Method 종류, KMP별 Batch size, Container size, 샘플당 analysis 수 등), Method별 랜덤/시스템 오차 등)를 이용하여 MUF 불확도 계산식[3]을 적용하여 시설의 랜덤 불확도, 시스템 불확도, 총 MUF 불확도를 계산하였다.

계산된 MUF 불확도는 프로그램 실행화면 상단에 항상 표시되며, 물질 이동이 발생할 때마다 MUF 불확도를 다시 계산하여 값을 업데이트시킨다. MUF 불확도는 파이로 시설의 안전조치성을 분석하는 데에 사용된다.

2.5 Visualization 모듈 개발

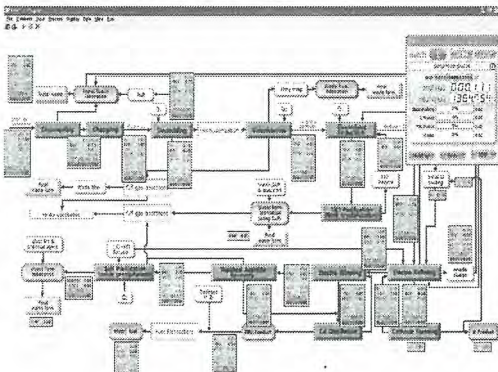


Fig. 1. Flow-Diagram

배치당 공정당 Group별 질량 값과 방사능 선량,

핵임계도는 Fig. 1과 같이 파이로 공정의 Flow-Diagram에 표시된다.

MUF 불확도 계산 결과값이 Flow-Diagram 위에 항상 표시되며, 배치당 공정당 핵종별 질량값 및 붕괴율, 발열량은 Flow-Diagram 상에 나타나 있는 Group별 질량값을 선택하면 자세하게 확인할 수 있다.

사각형으로 표시된 공정을 선택할 경우, Fig. 2와 같이 해당 공정에서의 입력 및 출력되는 물질에 대한 정보가 나타난다.

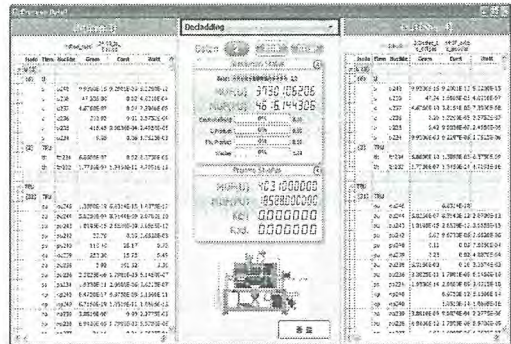


Fig. 2. Process Status Information

이 외에 데이터 분석을 위하여 배치별 Product의 변화, 공정별 질량 변화, 배치별 질량 변화에 대한 그래프를 출력하는 기능을 구현하였다.

3. 결론

본 연구에서는 파이로 시설에서의 배치당 공정당 핵종별 질량을 계산하고 그에 따른 붕괴율, 발열량, 방사능 선량, 핵임계도, MUF 불확도를 계산하는 프로그램을 개발하였다.

향후 본 프로그램의 공정별 물질 흐름 계산 모듈을 개선하여 각 공정이 독립적으로 동작하도록 하여 공정의 추가 및 삭제를 사용자가 제어할 수 있도록 할 계획이다.

4. 참고문헌

- [1] I.C. Gaauld, O.W. Hermann, "ORIGEN-S", 2005
- [2] D.B. Pelowitz et., "MCNPX Users' Manual, Version 2.5.0," LANL Report, 2005
- [3] 한국방사성폐기물학회, 2010년 춘계학술발표회 논문요약집, pp.390-391, 2009

PRIDE 디지털 목업을 이용한 원격장비의 공간 및 취급성 분석

김성현, 김창희, 김기호, 김호동

한국원자력연구원 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

hyun@kaeri.re.kr

1. 서론

공학규모의 pyroprocess 공정을 일괄공정으로 실험하기 위한 파이로 종합시험시설(Pyroprocess Integrated Demonstration)시설을 설계 중에 있다. 이 시설에는 pyroprocess 공정을 위한 공정 장치 및 이를 운전/유지보수를 위해 설치되는 원격취급장비(크레인, 원격조정기 및 서보메니플데이터 등)와 같은 원격취급 장비가 설치된다. 현재 설계되는 파이로 종합시험시설은 기존의 건물의 안에 PRIDE 목업이 설치되는 구조로 공간이 매우 한정되어 있다. 이러한 공간을 분석하기 위해 3차원 데이터를 이용한 가상시제(Virtual Prototyping) 기술을 사용하고 있다. 원자력분야에서도 3차원 설계기술을 활용하여 가상환경기반에서 시설의 건설, 장비의 설치 및 유지보수를 최적화하는 연구를 수행하고 있다. 이와 관련하여 일본 JNC는 FBR(Fast Breed Reactor) 연료의 재처리 공정을 원격으로 수행할 목적으로 RETF(Recycle Equipment Test Facility)의 건설에 3차원 설계기술을 이용하여 공정장치들의 최적배치, 원격유지보수 방안, 및 감시카메라의 시야범위 분석 등에 활용하였다. 본 논문에서는 PRIDE시설 및 장치들의 3차원 데이터를 이용하여 디지털 목업을 구축하였다. 원격취급장비의 작업영역 및 공간분석을 수행하여 시설의 목적에 맞는 장비의 선정하고 셀내에 설치될 공정장치는 원격취급장비의 원격 운전/유지보수에 적합한 설계로 제작될 수 있도록 원격 접근성 분석을 수행하고자 한다. 이런 절차를 수행함으로써 완공된 PRIDE 시설에 장치가 설치되기 전에 분석이 이루어져 실제 장치가 설치되어 원격운전이 원활하게 이루어질 수 있다.

2. 본론

2.1 PRIDE 시설

에너지 자원의 활용을 극대화 할 수 있는 파이로 프로세스는 고온에서 전기화학적인 방법으로 사용후핵연료 속의 각종 핵물질을 분리 및 정제

하는 기술로, 이 기술은 4 개의 주요 공정(전해환원, 전해정련, 전해 제련, 염 폐기물)으로 이루어져 있다. 파이로 종합시험시설은 단일 셀로 구성된 목업으로 현재 상세 설계 중에 있다. 파이로 종합시험시설의 셀은 아르곤 분위기를 갖으며, 내부크기는 40(L) x 4.8(W) x 6.4(H)m 의 크기를 갖는다. 크레인, 17조의 원격조정기 및 천정이동형 양팔형 서보조작기가 설치될 예정이다.

2.2 3차원 모델링

PRIDE 디지털 목업을 구성하는 3차원 데이터는 일반적인 저작도구인 3차원 CAD를 이용한 공정장치 제작을 위한 모델링과 차이점을 갖고 있다. 제작을 위한 모델은 기하학적 형상데이터가 중요하지만 디지털 목업의 구성에 사용되는 모델은 시뮬레이션을 목적이다. 따라서 시뮬레이션을 위한 모델은 장치의 기하학적 형상 정보 및 관절정보 등이 요구되는 특징을 갖고 있다. 파트모델을 조립하여 하나의 장치모델을 구성하는데 모델 데이터의 구조를 보면 계층 구조로 파트모델의 조립 형태를 보여주는 특징을 갖는다. 이렇게 구성된 모델들은 축에 대한 회전, 이동 등에 기구학적인 특성 및 움직임의 제한치라는 속성을 부여함으로써 장치들이 움직임을 제어하는 장치 모델을 완성하였다. 이렇게 완성된 장치모델을 한 작업공간에 배치를 함으로써 그림 1과 같이 PRIDE 디지털 목업을 구성하였다.

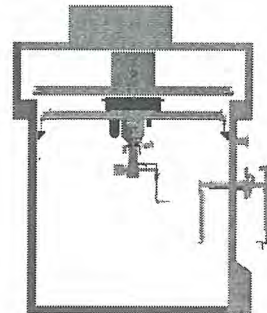


Fig. 1. PRIDE 디지털 목업

2.3 원격장비의 분석

2.3.1 원격장비의 설계요건 분석

파이로 공정에 사용될 원격 조정기는 셀안에 설치될 공정장치를 원격으로 취급한다. 이러한 이유로 셀의 크기와 설치될 공정장치가 작업영역안에 있는지가 원격조정기의 규격을 결정하는 주요 요건이 된다. 공정장치를 조작할 수 있는 높이는 원격조정기의 작업영역과 작업자의 시야에 따른 밀접한 관계를 갖는다. 원격조정기의 설계요건은 작업높이(operating height)에 따라 셀 내의 작업가능 요건을 만족하여야 한다. 원격조정기 제작업체(Central Research Laboratory)가 제작한 두가지 규격의 원격조정기를 대상으로 파이로 종합시험시설에서 원격조정기의 작업영역을 분석하여, 파이로 종합시험시설에 설치되는 원격조정기는 설치위치가 3.05m이고, 통(tong)이 셀 바닥까지 도달하는 설계요건을 도출하였다. 이 설계요건을 만족한 장비를 선정하여 시설설계에 적용하였다.

2.3.2 원격장비의 공간 분석

기존의 건물에 PRIDE 목업이 설치되는 이유로 최대한의 공간을 이용하기 위해 시설이 설계되고 있다. 설계된 목업 내부의 분석뿐만 아니라 목업 외부에 원격조정기의 마스터와 천정이동형 서보조작기의 마스터가 외부벽면에 설치되기 때문에 이 공간에서 원격장비의 작업가능성을 분석하였다. 목업의 운전은 운전구역의 폭이 약 1.5m이고 거리 40 m 정도를 양팔형 서보조작기의 마스터가 이동하면서 운전 및 유지보수를 수행하고, 이동공간에는 원격조정기와 서보조작기의 마스터가 충돌하지 않고 이동할 수 있는 조건을 분석하였다. 원격조정기와 마스터 서보조작기는 두 장비의 home position 에서는 충돌가능성이 존재함을 확인하였고 장비의 위치이동으로 이동가능성을 확인하였다.

2.4 공정장치의 접근성 분석

핫셀에 설치되는 대부분의 공정장치들은 원격으로 운전과 유지보수를 할 수 있는 공정장치로 제작되어 설치된다. 공정장치는 모듈화 및 원격취급장비의 작업영역안에 조작지점이 존재하는 등의 설계요건으로 반영하여 설계한다. 설계된 공정장치는 디지털 목업의 원격취급장비로 접근성을 검증하여 장치의 재설계에 반영할 수 있다. 본 연구

에서는 일체형 탈피복/분말화장치를 대상으로 운전 시나리오에 따라 원격 취급이 필요한 지점에 대한 취급성 분석 및 작업자의 시야 확보성 분석을 수행하였다. 이 장치는 pyroprocess의 핫셀내에 설치할 경우를 대비하여 분석결과를 반영할 예정이다.

3. 결론

파이로 종합시험시설의 개념설계를 이용하여 3차원 가상공간의 PRIDE 디지털 목업을 구축하였다. 가상의 원격조정기의 작업영역분석을 통한 원격조정기의 설계요건을 도출하였고 설치공간에 대한 공간분석을 수행하였다. PRIDE 목업에 설치된 실제 원격조정기의 모델링을 수행하여 가상공간상의 디지털 목업에 배치하고 일체형 탈피복/분말화 장치를 대상으로 운전 시나리오에 따른 원격장비의 접근성 분석을 수행하였다. 이와 같이 디지털 목업을 활용하여 실제 공정장치가 제작되기 전에 검증을 수행하여 오류를 설계에 반영에 활용하고자 한다.

4. 감사의 글

본 연구는 정부가 지원하는 한국과학기술재단의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] G. Gray Wang, "Definition and review of virtual prototyping," *Journal of Computing and Information Science in Engineering*, Volume 2, Issue 3, 232-236, 2002.
- [2] 森田 英司, 外, "核燃料再處理施設へのCAD活用技術開発," *動燃技術*, 64-73, No. 92, 1994.
- [3] Y. Ohmura, and et al., "Robot Simulator Aided Design System for Remote Handling and Maintenance," *Proc. of 45th Japan Congress for Applied Mechanics*, pp. 173-176, 1996.
- [4] 이종광 외 4인, "PRIDE시설 원격 운전/유지보수용 양팔 서보조작기 제작," *한국방사성폐기물학회*, 209년 춘계학술대회 논문요약집, pp.261-262, 2009.

수증기증류를 이용한 모의사용후핵연료 중 브롬 및 요오드 동시분리 및 정량

김정식, 김현정, 박순달, 전영신, 한선호, 송규석
 한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
niskim1@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 핵연료 중의 총 요오드 및 요오드 동위원소 분석은 사용후 핵연료 중에 함유된 핵분열 생성물의 관리, 방사성 요오드의 회수, 핵연료처분 및 환경으로의 방출, 배기체 처리시설의 설계와 관련된 폐기물처리와 흡착제사용에 대한 중요한 기초자료로 활용된다. 요오드는 주요 핵분열 생성물로서 핵연료 피복관의 스트레스 부식균열을 일으키고 CsI 등 핵연료 성분원소와 휘발성 화합물을 형성하는 것으로 알려졌다. 핵연료 중의 요오드는 화학적 조건에 따라 휘발 및 비휘발성 특성을 가지며, iodide와 iodate 등 여러 산화상태 혹은 유기성 요오드로 존재하기 때문에 요오드의 거동은 매우 복잡하다. 핵연료 중에 함유된 여러 할로젠원소(F, Cl, Br, I)들의 정량에는 먼저 수증기증류(steam distillation) 및 열가수분해(pyrohydrolysis) 방법으로 이들 원소들을 분리한 후 원소별 여러 분석방법(이온 크로마토그래피, 중성자방사화 분석, 유도방출 플라스마 질량분석, 감마선 분광분석, X선 형광분광법, 분광 광도법 및 이온선택 전극 등)으로 정량하고 있다.

본 연구에서는 핵연료 중에 함유된 할로젠원소들의 분리 및 정량법을 개발하기 위하여 브롬 및 요오드를 포함한 표준시료 및 모의사용후핵연료 시료를 준비하였다. 원격작업으로 설치 및 운전이 용이하도록 조립식의 수증기증류장치를 제작 설치하였다. 본 장치를 이용한 최적의 증류조건[1]으로 표준시료 및 모의사용후핵연료 시료로부터 브롬 및 요오드를 순수하게 분리하였으며 이온 크로마토그래피 및 적정법으로 각각을 정량하여 회수율을 측정하고 증류거동을 조사하였다.

2. 실험 및 결과

2.1 시료 준비

모의사용후핵연료는 주요 핵분열생성물원소 화합물을 혼합하여 준비하였으며 여기에 브롬(706 μ

g/mL) 및 요오드(200 μ g/mL) 표준용액을 일정량을 혼합 첨가하여 시료로 이용하였다. 비교실험을 위하여 제조한 2종의 표준용액 일정량을 혼합하여 표준시료로 이용하였다.

2.2 수증기 증류장치 설치

표준시료 및 모의사용후핵연료시료로부터 브롬 및 요오드 분리를 위해 제작 설치한 수증기증류장치의 모형은 아래 Fig. 1과 같다. 증류장치는 수증기 발생장치, 증류플라스크 및 가열장치, 와그너 밸브, 냉각기 및 수집용기로 구성되었다.

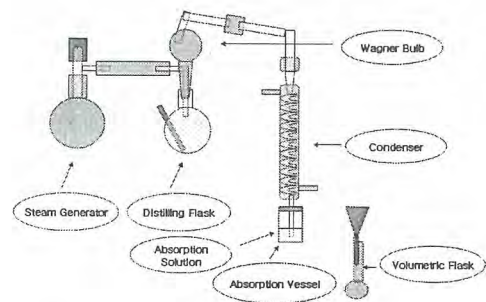


Fig. 1. Steam distillation apparatus for separation of halogen.

2.3 수증기증류에 의한 브롬 및 요오드 회수

증류플라스크에 모의사용후핵연료시료 혹은 브롬 및 요오드 표준용액 일정량을 넣고 혼합산용액 24 mL, 즉, 0.2 M ferrous ammonium sulfate-0.5 M sulfamic acid 용액 3 mL, 진한 인산(85%) 6 mL 및 진한 황산(sp gr 1.84) 15 mL를 순차적으로 가한다. 0.2 M ferrous ammonium sulfate-0.5 M sulfamic acid 용액은 ASTM C 799-99에 제시된 방법에 준하여 제조하였다[2].

2.4 증류에 따른 브롬 및 요오드 회수거동 조사

수증기증류에 따른 휘발 브롬 및 요오드의 회수거동을 조사하기 위하여 준비한 표준시료를 이용하여 수증기증류를 수행하였다. 10 mL 용량플라

스크 8 개를 준비하여 냉각기를 거쳐 수집되는 증류용액을 각각 10 mL씩 총 80 mL를 수집하였다. 각각의 시료에 대해 함유된 브롬 및 요오드 이온 크로마토그래피로 정량하여 증류에 따른 각 원소의 회수거동을 조사하였다.

2.5 증류에 따른 브롬 및 요오드 순수분리 조사

매질 및 타원소의 간섭없이 수증기증류에 의하여 브롬 및 요오드가 순수하게 분리되는 것을 확인하기 위하여 표준시료 및 모의사용후핵연료 시료로부터의 증류용액 일정량에 AgNO_3 를 가하여 침전물로 만든 다음 여과 및 건조 후 미세탐침분석(EPMA)을 수행하였다(Fig. 2).

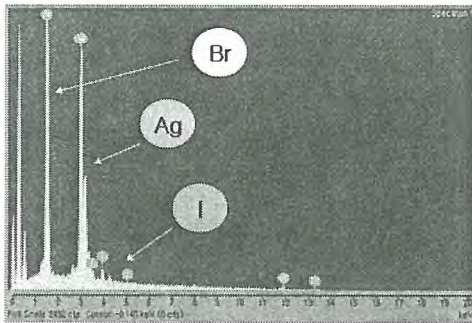


Fig. 2. X-ray spectrum for a precipitate produced after AgNO_3 addition into distillate.

2.6 분리용액 중 브롬 및 요오드 정량

수증기증류에 의하여 표준시료 및 모의사용후핵연료시료로부터 분리한 브롬 및 요오드는 일정 부피로 조정한 후 정량 및 회수율을 측정하였다. 브롬 및 요오드의 개별정량은 이온 크로마토그래피를 이용하였으며 비교분석을 위한 총 할로젠농도(bromide + iodide) 정량은 fluorescein 지시약과 0.1 M AgNO_3 용액을 이용한 적정법으로 수행하였다.

3. 결론

조사핵연료의 주요 핵분열생성물이면서 휘발성의 특성을 갖고 용액 중에서는 여러 산화상태로 존재하는 요오드 및 핵연료 내에 미량 함유되어 있는 브롬은 일반 화학적 방법으로 분리 및 정량이 매우 어렵다. 본 수증기증류 방법을 이용할 경우 할로젠원소를 휘발시켜 묶은 산용액으로 회수

하여 정량하므로 화학적 진척리가 간결하고 매우 효과적인 것으로 판단된다. 분리용액을 직접 이온 크로마토그래피로 정량하거나 침전분리 후 방사능계측 혹은 X선 형광분광법으로 정량할 수 있으므로 조사전 후 핵연료시료 및 방사성폐기물시료 중의 브롬 및 요오드 정량에 효과적으로 응용할 수 있을 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

- [1] J. S. Kim et al., Analytical Science & Technology, Vol. 23, No. 1, pp. 45-53, 2010
- [2] ASTM C 799-99, Annal Book of ASTM Standards, Vol. 12.01, pp. 196-209, 1999

국내 PWR 사용후핵연료의 방사능 및 열적 특성

심지형, 김용수

한양대학교, 서울시 성동구 행당동 17

yongskim@hanyang.ac.kr

1. 서론

현재 국내에는 16 기의 PWR 원자로가 가동되고 있으며 건설 중인 것과 계획 중인 것이 각각 2기, 6기로 향후 총 28 기의 PWR이 운전될 예정이다. 2020년까지 이들 원자로에서 예상되는 사용후핵연료의 양은 29,000 ton에 이르며 2016년이면 발전소내 임시저장 시설이 포화 상태에 이를 것으로 예상되고 있다. 이러한 문제를 해결하기 위해 현재 사용후핵연료 건식저장 연구가 활발히 진행되고 있으며 건식저장의 건전성 평가를 위해서는 사용후핵연료의 특성에 대한 분석이 선결적으로 요구된다. 따라서 본 연구에서는 국내 대표 사용후핵연료의 방사능 및 열적 특성을 분석하였으며 건식저장을 위한 초기 조건을 제시하고자 하였다.

2. 본론

2.1 연소도와 농축도

건식저장 시 사용후핵연료가 집합체 단위로 저장되는 점을 고려하여 14x14, 16x16, 17x17 등 집합체 형태별로 구분지어 연소도와 농축도를 조사하였다. (Fig. 1) 연소도와 농축도 모두 과거로부터 현재까지 꾸준히 증가하여 왔다. 특히 농축도의 경우 그 분포가 단조로워지면서 4.5%에 포화되고 있는데 이를 통해 향후 발생하는 사용후핵연료는 고연소도 장주기 운전된 것으로써 저장조건이 더 까다로워질 것임을 예상할 수 있다.

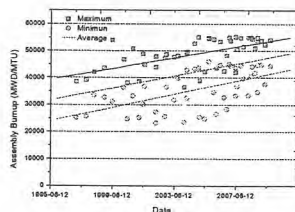


Fig. 1.(a) Burnup of 16x16 spent fuel

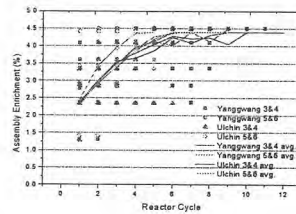


Fig. 1.(b) Enrichment of 16x16 spent fuel

2.2 시간에 따른 방사능과 붕괴열 변화

앞서 설명한 집합체 중 16x16형은 현재 가장 많은 수의 원자로에서 사용되고 있으며 향후 발생량이 가장 많을 것으로 예상되기 때문에 국내 사용후핵연료를 대표한다고 할 수 있다. 따라서 이 형태의 핵연료집합체에 대하여 100만년 동안의 방사능 및 열적 특성을 ORIGEN 코드를 이용하여 분석해 보았다. (Fig 2와3)

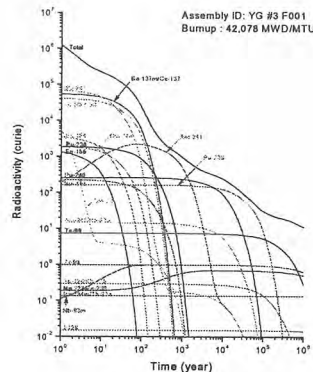


Fig. 2. Change of radioactivity

방사능은 운전 종료 직후 10^6 Ci에 달하지만 10^6 년마다 평균 86%씩 감소하여 100만년이 지나면 10 Ci($\sim 0.001\%$) 정도로 낮아진다. 건식저장 시 중요시되는 10년, 100년 시점에서는 초기 대비 각각 0.1%와 0.01% 수준으로 감소했을 것이라고 예상할 수 있다.

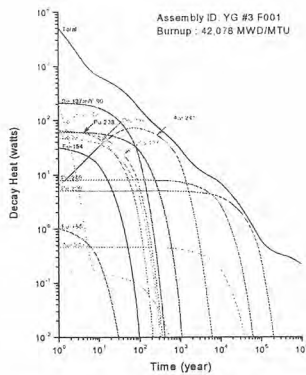


Fig. 3. Change of decay heat

봉괴열의 경우 발생 직후 5,000 W 달한다. 하지만 이후의 변화양상은 방사능의 경우와 비슷하게 나타나 10년, 100년, 100만년 시점에서는 초기 대비 각각 0.1%, 0.01%, 0.003% 수준으로 감소했을 것이라고 예상할 수 있다.

특이한 점은 1,000년을 기준으로 하여 방사능과 봉괴열에 크게 기여하는 핵종에 차이를 보이고 있다는 것이다. 수백년 기간까지는 Ba-137m, Cs-137, Sr-90, Y-90 등과 같은 단반감기, 고발열성 핵종과 몇몇 악티나이드 계열의 핵종들이 높은 방사능과 열의 주원인 핵종이지만 천 년이 지나면서 이들 핵종은 봉괴에 의해 사라지고 Am-243, Np-239, Pu-239 등의 악티나이드 계열의 핵종과 Tc-99, Zr-93 등의 장반감기 핵종들이 비록 낮지만 그 자리를 대체하게 된다.

2.3 주요 사용후핵연료의 방사능과 봉괴열

건식저장 시행이 예상되는 2017년을 기준으로 하여 국내 주요 사용후핵연료에 대한 방사능과 봉괴열을 계산하여 Table. 1에 정리하였다. 각 형태별로 최대, 평균, 최소 연소도인 집합체를 선정하여 계산하였는데 예상했던대로 선형적이지는 않지만 연소도의 차이에 비례하여 방사능과 봉괴열에도 차이가 나타났다. 만약 다른 조건이 동일하다면 집합체 형태에 따른 방사능과 봉괴열의 차이는 크게 나타나지 않는다. 하지만 Fig. 2와3에서 확인할 수 있듯이 decay 후 100년 동안 초기 대비 1% 수준까지 빠른 속도로 감소하기 때문에 습식 저장 기간에 따라 차이를 보이고 있다. 결론적으로 국내 사용후핵연료는 연소도와 습식 저장 기간의 차이에 따라 방사능은 10만~23만 Ci, 봉괴열은 280~800 W 사이에 있을 것으로 예상되며 이는 사용후

핵연료 건식저장의 초기 조건이 될 것이다. 또한 최근 또는 향후 발생하는 집합체는 고연소도 핵연료이기 때문에 적어도 10년 이상은 습식 저장 기간을 거친 후에 건식저장 되어야 할 것이라고 예상할 수 있다.

Table 1. Radioactivity and decay heat

Fuel Type	Burnup (MWd/MTU)	Radioactivity (Ci)	Decay Heat (W)
14x14	51,348	1.403E+05	4.847E+02
	38,066	1.286E+05	4.069E+02
	24,965	8.809E+04	2.613E+02
16x16	55,162	1.969E+05	6.980E+02
	42,078	1.713E+05	5.372E+02
	25,195	9.599E+04	2.871E+02
17x17	55,681	2.259E+05	7.993E+02
	42,951	1.824E+05	5.797E+02
	29,020	8.829E+04	2.886E+02

3. 결론

ORIGEN 코드를 이용하여 국내 대표 사용후핵연료의 방사능과 봉괴열을 계산하여 보았다. 위 특성에 큰 영향을 미치는 인자로는 농축도와 연소도, 습식저장 기간 등이 있음을 확인할 수 있었으며 그 조건에 따라 건식저장 시 초기조건이 결정된다고 할 수 있다.

4. 감사의 글

본 논문의 내용은 '사용후 핵연료 건식저장 건설성 주요 열화기구 현황 분석 및 종합 평가' 연구 결과의 일환으로 수행한 것입니다.

5. 참고문헌

- [1] H. J. Choi, J. W. Choi, et al, Proposal of a Roadmap for a Long-term Management of High-level Radioactive Wastes, KAERI/TR-3750/2009, KAERI, 2009
- [2] J. W. Choi, H. J. Choi, et al, High-Level Radwaste Disposal Technology Development, KAERI/RR-2765/2006, KAERI, 2006.
- [3] H. J. Choi, D. G. Jo, D. H. Kook, Radioactivity and Decay Heat Calculation of CANDU Spent Fuel for High Level Waste Disposal, KAERI/TR-3802/2009, KAERI, 2009

SFR 핵연료 하나로 조사시험 캡슐 제조 공차에 따른 영향 평가

천진식, 이병운, 양용식, 서철교, 김준환, 이종탁, 이찬복
 한국원자력연구원, 대전시 유성구 덕진동 대덕대로 1045
 jscheon@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서는 2007년부터 소듐 냉각 고속로 (SFR) 노심에 사용할 U-Pu-Zr 핵연료를 개발 중이다. 현재는 U와 Zr으로 이루어진 U-Zr 금속 합금 제조 기술을 개발하고 있으며, 2010년에 하나로에서 연소 시험을 시작할 예정이다.

금속 핵연료봉은 핵연료와 피복관 사이에 소듐이 충전되어 있으므로 하나로 안전성에 유념하여 설계해야만 한다. 또한 SFR 핵연료의 연소특성을 하나로 시험에서 실현하기 위해서는 표면온도를 높여서 핵연료봉 온도를 SFR 핵연료와 유사하게 유지하는 것이 필수적이다. 이를 위하여 핵연료봉을 밀봉튜브에 넣어 연료심을 이중으로 밀봉하였으며 온도도 높였다.

그러나 연료봉과 밀봉튜브의 간극이 작으므로 제조 가공 공차에 따른 온도 변화를 평가하여 캡슐의 안전성에 미치는 영향을 확인하여야만 한다. 본 논문에서는 캡슐 부품의 제조 현황과 제조 공차에 따른 온도 변화 평가 결과를 기술하였다.

2. SFR 금속연료 하나로 조사시험

2.1 조사시험 개요

U-Zr 금속 핵연료의 하나로 조사시험은 OR5 조사 시험공에서 수행할 예정이다. 상세한 하나로 조사 조건은 다음과 같다.

- 시험 핵연료봉 선출력
 - 보수적 예상 최대 국부 선출력 : 352 W/cm
- 냉각수 유량 : 6.2 kg/sec at $\Delta P=209$ kPa
- 냉각수 압력 : 0.4 MPa
- 목표 연소도 : 약 3 at%

피복관 재질로는 페라이트/마르텐사이트 강 환봉을 관으로 가공하여 사용하였다. 하나로로 열중성자속이 높아 LEU를 핵연료에 사용할 경우 출력력이 매우 높아지므로 Hf 열중성자 차폐체를 사

용하여 핵연료봉의 선출력을 조절한다.

2.2 캡슐 구조

조사시험 캡슐의 구조는 참고문헌 [1]에서 확인할 수 있으며, 상단 및 하단에 각각 6 개씩 연료봉이 위치한다. 연료심의 직경은 3.7 mm이고 길이는 50 mm 이다. 피복관과 밀봉 튜브의 치수는 표 1과 같다. 피복관과 밀봉 튜브 사이의 겹은 60 μ m 정도이다. 또한 밀봉 튜브를 냉각하는 냉각수 채널의 직경은 12 mm이다. Hf 차폐체의 길이는 120 mm이고, 두께는 상단이 1.4 mm, 하단이 1.6 mm이다.

Table 1. Dimensions of cladding and sealing tubes

피복관		밀봉 튜브	
외경	내경	외경	내경
5.5	4.6	8.62	5.62

3. 밀봉튜브-피복관의 편심도 영향 평가

3.1 평가 방법

밀봉튜브-피복관의 편심도가 온도에 미치는 영향은 경수로 핵연료의 소결체와 피복관 편심도가 온도에 미치는 영향 분석 자료[2]에 기반하여 평가할 수 있다. 그림 1에 편심도 평가를 위한 개략도를 나타내었다. 여기서 소결체 대신에 밀봉튜브로 대체하여 참고문헌[2]에서 유도된 식을 사용한다. 편심도 ϵ 는 다음과 같이 정의된다.

$$\epsilon = e / (R_i - R) \quad (1)$$

여기서 e 는 밀봉튜브와 피복관의 중심의 벗어난 정도이며, R_i 는 밀봉튜브의 내경, R 은 피복관의 외경이다.

참고문헌[2]에 주어진 특성방정식에서 고유값을 4번째 항까지 구하여 밀봉튜브 내면 온도와 평균 출력에 대한 상대 선출력을 계산하였다.

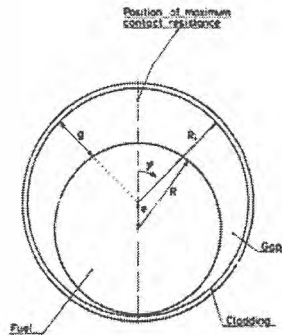


Fig. 1. Eccentricity of the fuel pellet with respect to the cladding[2]

3.2 밀봉튜브 내경 측정

밀봉튜브와 피복관은 KEPIC-QAP의 품질보증요건에 따라 제조하였다. 제조한 피복관의 외경 공차는 $5\ \mu\text{m}$ 이내이었다. 밀봉튜브의 내경은 3차원 측정기로 측정하였으며 최대 반경 방향 제조 공차는 $10.5\ \mu\text{m}$ 이었다.

3.3 평가 결과

보수적인 선출력 $352\ \text{W/cm}$ 와 제조된 부품의 치수로부터 편심도 ϵ 로 0.15 를 계산에 사용하였다. 여기서 부품의 열팽창은 무시하였다.

그림 2에 밀봉튜브와 피복관의 편심도가 연료봉 열속에 미치는 영향을 나타내었다. 그림과 같이 최소 간극인 $60\ \mu\text{m}$ 인 쪽에서 최대 열속이 최대 간극인 $82\ \mu\text{m}$ 인 쪽에서 최소 열속이 발생하며, 각각 평균값에 비하여 5% 정도 차이가 난다.

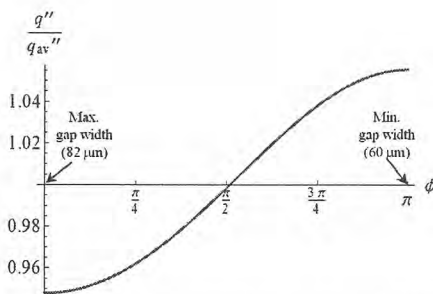


Fig. 2. Effect of eccentricity between cladding and sealing tubes on heat flux

그림 2에 밀봉튜브와 피복관의 편심도가 연료봉 온도에 미치는 영향을 나타내었다. 그림과 같이 최소 간극 부위에서 온도가 낮고 최대 간극 부위에서 온도가 높다. 온도 차이는 각각 평균값에 비

하여 $-19\ ^\circ\text{C}$ 에서 $28\ ^\circ\text{C}$ 차이가 난다. 이러한 온도 차이가 피복관의 건전성에 미치는 영향은 미미한 것으로 평가되었다.

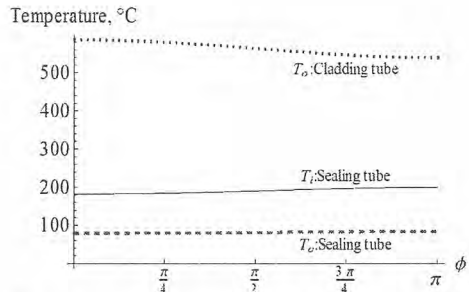


Fig. 3. Effect of eccentricity between cladding and sealing tubes on temperatures

4. 결론

SFR 노심용 U-Pu-Zr 핵연료를 개발 중이다. 2010년에 하나로에서 U-Zr 연소 시험을 시작할 예정이다. 조사 시험 캡슐은 핵연료봉이 밀봉튜브 들어 있는 구조이다. 본 논문에서는 캡슐 부품의 제조 현황과 제조 공차에 따른 온도 변화 평가 결과를 기술하였다. 밀봉튜브와 피복관의 제조 공차에 의하여 열속은 평균값에 비하여 5% 정도 차이가 있었으며, 온도는 약 $30\ ^\circ\text{C}$ 차이가 발생하였다.

5. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력증강기연구 과제 중의 일부로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

6. 참고문헌

- [1] 천진식, SFR 금속핵연료 1차 하나로 조사시험 캡슐 설계 보고서, SFR-FD340-WR-02-2009Rev.00, 2009.
- [2] R. Nijssing, Nuclear Engineering and Design, Vol.4, 1-20, 1966
- [3] 천진식 등, "U-Zr 금속 핵연료 하나로 시험을 위한 소듐-물 반응 평가 및 캡슐 설계" 한국방사성폐기물학회, 2009년 춘계학술발표회 논문요약집, pp.322-323, 2009

사용후핵연료의 재료 및 기계구조적 특성 평가

윤학규, 김용수

한양대학교, 서울시 성동구 행당동 17번지

yoong0462@hanyang.ac.kr

1. 서론

원자력발전소에서 연소된 사용후핵연료는 현재 수중저장조에서 5~10년 동안 저장되고 있다. 하지만 발전소내의 수중저장조는 저장용량의 한계가 있어 그 대안으로 건식저장방식이 고려되고 있다. 건식저장에서는 사용후핵연료에서 발생하는 잠열로 인해 연료봉은 높은 온도를 가지게 된다. 이러한 고온과 긴 저장시간은 사용후핵연료의 건전성에 영향을 미치게 되는데, 그 주요한 요인들로는 지연수소화현상, Creep Rupture 그리고 SCC(stress corrosion cracking)가 있다[1].

위 세 가지 요인들은 모두 원자로내 연소에 따른 기체상/휘발성 핵분열 생성물의 방출에 기인하는 사용후핵연료의 봉내압에 의해 직접적으로 영향을 받고 있다. 또한 피복관에 용해되어 있는 수소는 수소화물을 형성하고 피복관의 산화는 피복관의 두께를 감소시켜 간접적인 영향을 미친다[1].

그러므로 사용후핵연료의 건전성 열화 정도를 평가하기 위해서는 봉내압, 산화, 그리고 수소함유량을 평가하는 것이 중요하다. 그런데 이러한 사용후핵연료의 특성은 연소이력에 따라 변화할 수 있으므로 본 연구에서는 국내 발전소에서 발생한 여러 형태의 사용후핵연료를 선정하여 다양한 연소이력을 토대로 frapcon-3 코드를 통하여 그 특성을 평가하였다.

본 연구를 통하여 향후 수행될 건식저장에서 핵연료 열화기구를 예측하는데 필요한 기초 자료를 확보 할 수 있다.

2. 본론

2.1 Frapcon-3를 이용한 연소이력 묘사

사용후핵연료의 재료적, 기계구조적 특성은 사용후핵연료의 연소 전 특성, 연소도, 연소이력 등에 의해 결정된다. 따라서 먼저 국내에서 방출된 사용후핵연료들에 대한 자료를 총망라 분석하여 가장 대표적인 사용후핵연료 세 그룹을 선정하였다. 국내 원자력발전소는 크게 4가지 형태(14×14

W.H형, 16×16 W.H 형, 16×16 표준형, 17×17 W.H형)로 나눌 수 있다. 그 중 17×17 W.H형에서 발생한 사용후핵연료가 57%로 가장 많으며, V5H (Vantage 5H), OFA, 그리고 KOFA로 각각 41.6 %, 17%, 29.5%이다. 따라서 W.H.형 발전소 사용후핵연료의 최소, 평균, 그리고 최대 연소도인 27,000, 42,000 55,600 MWd/MTU에서 3가지 핵연료에 대한 재료 및 기계구조적 특성을 평가하였다.

이들 자료를 바탕으로 연소 이력은 각 case가 동일한 EFPD와 연소도를 갖고, 주기내에서 출력은 변하지 않으며, 최대, 최소 선출력은 NDR[2]을 통해 조사한 범위(그림 1)내에 있도록 조합하였다.

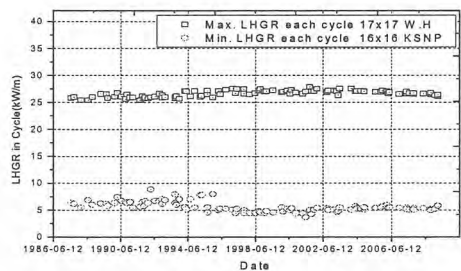


Fig. 1. LHGR of W.H. of type PWR[2]

2.2 국내 대표 사용후핵연료의 특성

먼저 설정된 각 연소이력에 따라 평가된 사용후핵연료의 피복관 산화막 두께, 수소침투량, 그리고 봉내압을 Fig. 2-5에 도시하였다.

주목할 점은 연소이력에 따라 사용후핵연료의 특성이 크게 차이가 나며(Fig. 2) 그 경향은 연소도가 높아질수록 더 크게 나타난다는 것이다(Fig. 3-5).

동일한 연소도에서 봉내압은 KOFA가 가장 높고 V5H와 OFA는 서로 비슷한데 이는 KOFA의 경우 초기 주입된 He 봉내압이 높고(2.15 MPa) 상대적으로 플레넘의 부피가 작기 때문으로 판단된다(6.4cc). 연소도 55,600 MWd/MTU에서 최대 출력으로 3주기를 연

소된 case는 높은 봉내압으로 인해 손상이 발생했다. 산화막 두께와 수소함유량은 그 경향이 유사한데 V5H의 두께가 가장 두껍고 그 뒤로 OFA, KOFA 순이다. 이는 V5H의 연료봉당 우라늄양이 1.76kg인데 반해 OFA와 KOFA의 양은 각각 1.6 kg, 1.67 kg 으로 상대적으로 적어 동일한 연소도를 내기위한 선출력 또는 EFPD(effective full power day)가 더 작기 때문이며 더 작은 선출력에도 OFA의 산화막 두께가 KOFA의 그것보다 더 두꺼운 것은 연료봉의 제원차이로 인해 clad-coolant film coefficient가 다른 두 핵연료봉에 비해 더 낮기 때문인 것으로 판단된다.

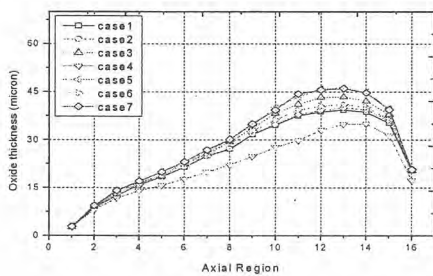


Fig. 2. Oxide thickness of OFA fuel(42,000 MWd/MTU)

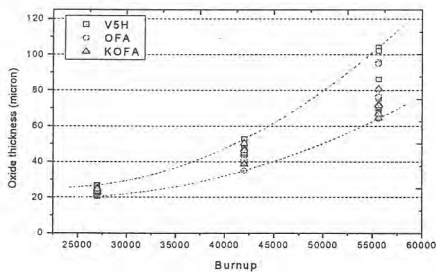


Fig. 3. Oxide thickness (micron)

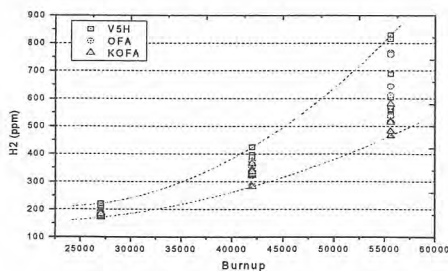


Fig. 4. Hydrogen concentration (ppm)

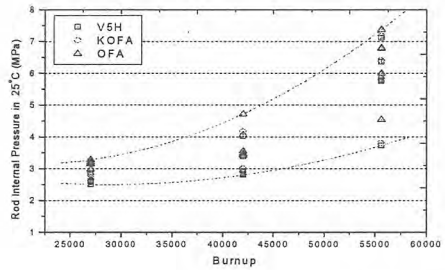


Fig. 5. Rod internal pressure in 25°C (MPa)

Table 1. W.H. type spent fuel characteristic

연소도(MWd/MTU)	27,000	42,000	55,600
봉내압(MPa)	2.86	3.51	7.41
산화막 두께(μm)	23.74	45.12	70.77
수소함유량(ppm)	204.63	353.09	553.03

3. 결론

본 연구에서는 사용후핵연료의 재료적·기계구조적 특성의 대표값을 frapcon-3를 통해 평가해보았다(Table 1). 연소이력과 연료봉의 제원은 사용후핵연료의 특성에 큰 영향을 미친다. 특히 높은 연소도를 가진 사용후핵연료에서 연소이력이 특성에 미치는 영향이 크기 때문에 연소이력에 따른 특성평가가 매우 중요하다.

향후 위 결과를 기초자료로 하여 피복관의 Creep, 지연수소화현상에 대한 건전성 열화기구 평가를 수행할 계획에 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력연구원에서 시행한 방사성폐기물관리기술개발 사업에 참여하여 수행한 논문입니다.

5. 참고문헌

- [1] J. Kessler, Technical Bases for Extended Dry Storage of Spent Nuclear Fuel, EPRI-1003416, p. 3-4, 2002
- [2] Nuclear Design Report for Kori, Ulchin, and Yonggwang Nuclear Power Plant

안전조치 적용을 위한 핵물질계량 LIBS 개발 장치구축

정정환, 양정하, 정의창, 신희성

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045번지

iwieong@kaeri.re.kr

1. 서론

핵물질 계량관리 기술들에는 크게 비파괴측정법, 열량계법, 화학분석법 등이 있다. 그중 적은 시간과 폐기물이 발생하지 않는 비파괴측정법(NDA)의 적용이 가장 효율적이라는 판단 아래, 사용후핵연료를 대상으로 하는 NDA기술 중, 중성자 측정이 KAERI의 핵물질계량안전조치과제에서 개발되어 수행 중이다. 중성자 측정법은 Cm-244의 자발핵분열에서 방출되는 중성자를 He-3 중성자 검출기로 측정한 후, 미리 수행된 화학분석을 통한 함량 비(U/Cm, Pu/Cm ratio)를 이용하여 핵물질의 함량을 평가하는 기법으로서, 현재는 ORIGEN 코드를 이용한 연소 시뮬레이션으로 결정된 Cm ratio에 의존하고 있다. 하지만 이 방법은 사용후핵연료의 처리 공정 물질 내에서, U, Pu, Cm 함량 비가 일정하다는 전제 조건하에 적용이 가능하다는 제약점이 있다. 따라서 대안으로 차세대관리공정 핵물질 측정방안으로서 레이저 유도 파쇄분광법(Laser Induced Breakdown Spectroscopy - LIBS, Fig. 1 참조)의 활용이 주목을 받고 있으며 이 측정 방안은 과거 20년간 여러 분야의 산업적 과학적으로 많은 발전이 있어 왔다.

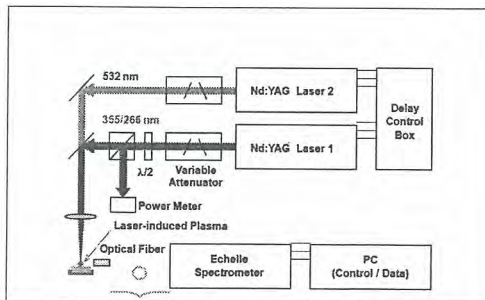


Fig. 1. Schematic of components of a LIBS system

2. 본론

LIBS는 광학을 바탕으로 한 레이저로, 이는 액체, 고체, 기체의 원소구성비를 측정하는데 사용할 수 있고, 몇몇의 경우 작은 분자 또한 분석할 수 있으며, 플루토늄과 우라늄을 포함한 악티나이드에 대해 동위원소를 구분할 수 있을 뿐만 아니라 Pu/Cm, U/Cm, Pu/U, U/Pu 등 성분 비율 분석을 수행할 수 있다.

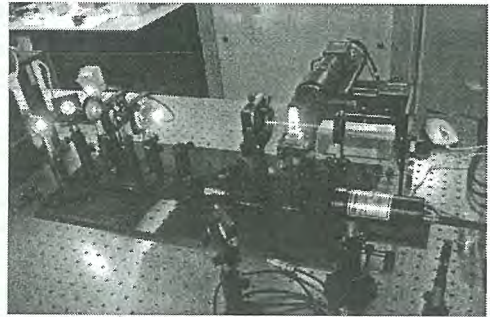


Fig. 2. Experimental setup for LIBS

LIBS 기술은 몇 가지 이점을 제공한다. 바로, 설정이 가능하다는 것인데 이는 다른 모양, 크기, 환경설정이 설계되고, 만들어지며, 다양한 수준의 감도, 정확성, 배치 구성에 따라 테스트될 수 있다는 것을 의미한다. 원소 주기표에 있는 모든 원소를 다양한 수준의 감도로 분석하는 데 사용할 수 있으며 시료를 전처리 과정 없이 빠른 속도로 신속하게 정확히 분석할 수 있는 분석법이기도 하다. 본 실험실에서는 기 보유하고 있는 LIBS 장비(Nd: YAG LASER 모델명: LIPPA 3001, Fig. 2 참조)를 이용하여 진공 상태에서 란타나이드 계열의 실험을 하여 안전조치 적용가능성을 타진하고 이에 따라 방향을 설정하였다. 또한 미국의 LANL(Los Alamos National Laboratory)과 KAERI 간 공동연구로 LIBS에 대한 PCG 협력연구를 2009년부터 수행하여 왔는데, 금년에는 핵물질계량의 안전조치 장비 개발에 의한 논의 및

상호협력을 장비구축(Fig. 3 참조)을 중심으로 하기로 하고 매년 공식적인 회의도 하기로 하였다. 따라서 다음 실험 목표인 악티나이드계열의 실험을 수행하기 위하여 먼저 본 과제 내 기 보유하고 있던 핵물질을 사용 할 수 있는 실험실을 선정하였다.

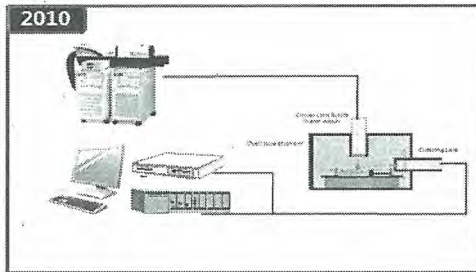


Fig. 3. The LIBS for safeguards

이 실험실은 각종 란타나이드 및 악티나이드 원소의 혼합시료로부터 잉곳을 주조하던 실험실로서, 향후 LIBS 측정시료의 주조를 위한 ARC Furnace 활용도 기대할 수 있다. 이후 실험실의 핵물질 및 장비사용 변경신청서(DIQ)를 제출하고 보관중인 핵물질 및 기존에 사용하던 장비를 제염해체하고 배치하고자 하는 각각의 장비를 구성하여 청정구역으로 확보 하기위한 작업을 진행 중이며, 앞으로 약 60일 가량 소요 될 것으로 예상된다. 또한, 한편으로는 실험의 신중함과 신속성을 기하기 위하여 기존의 실험 장비의 재정비 및 악티나이드 원소 측정에 적합하고 감도와 분해능이 우수한 Spectrometer (ESA 4000 191~420 nm 제조사 : Eschelle) 구성이 완료되기 전까지는 KAERI 내 화학분석부에 보유하고 있는 LIBS 장비를 활용하고, 본과제의 장비보강을 통하여 프레임 내 마운팅 된 시료를 제조하여 대기 상태에서 무독성 대응물질에 대한 측정실험을 병행하며 안전조치 적용에 가능한 장치구축에 중점을 두고 개발 중이다.

3. 결론

안전조치 적용을 위한 핵물질 계량을 하기 위한 장비구축을 하기 위하여서는 핫셀이나 글로브 박스와 같은 좋지 않은 환경에서도 원격 분석을 지원할 수 있는 장비개발이 본연구의최종 목표이

다. 따라서 공정 현장 내 시료 및 그 외의 시료의 검사와 분석을 위한 장비는 이동식 시스템으로 (Fig. 4 참조), 플루토늄과 우라늄의 동위원소를 측정할 수 있는 장비는 고 해상도 분광기를 겸비한 카트 탑재(cart-mounted) 시스템으로, 실험실 및 격납시설에 고정되어 대량으로 공정 처리하는 시설에서는 공정 해법의 근 실시간 측정이 가능한 시설 내 시스템으로 구성하는 기본적인 장비 개발의 접근 방법이 필요 하겠으며, 열거한 것 중 안전조치 적용에 가장 원활하고 효율적인 LIBS 장비구축 개발은 은 이 세 가지를 혼합한 장비의 개발이 가장 이상적이라 하겠다.

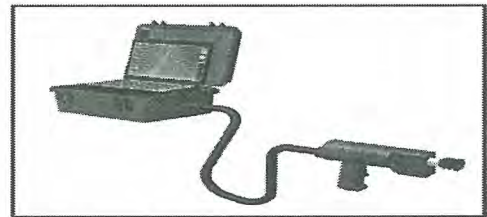


Fig. 4. Portable LIBS System (conceptual figure)

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었다.

핵연료주기 동적 시뮬레이션 분석

정창준, 고원일

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

cijeong@kaeri.re.kr

1. 서론

핵연료주기 동적 해석 코드인 DANESS [1] 코드를 한국 핵연료주기 해석에 적합하도록 수정하여 DANESS-K 버전을 작성하고 이를 이용하여 핵연료주기 동적 시뮬레이션 분석을 수행하였다. 즉, 직접처분 주기와 고속로-파이로 연계 주기에 대해 물질 흐름을 분석하였다.

2. 핵연료주기 분석

2.1 직접 처분 주기

직접처분 주기에 대한 물질 흐름을 분석 하였다. 먼저 국내 원자력 수요를 국가 에너지 기본 계획에 [2] 따라 2030년까지 27.3 GWe으로 증가하고 이후 전력 증가량이 서서히 감소하여 2100년도에 증가율이 0이 되도록 가정 하여 원자력 용량이 약 70 GWe이 되도록 하였다. 이러한 원자력 요구량을 만족시키기 위해 도입되는 원자로 형태는 그림 1에 나타내었다. CANDU 원자로는 2040년경 운전이 정지되고, 기존 경수로로는 2070년경 모두 운전 정지되며, 이후 APR-1400 원자로만 운전 되게 된다.

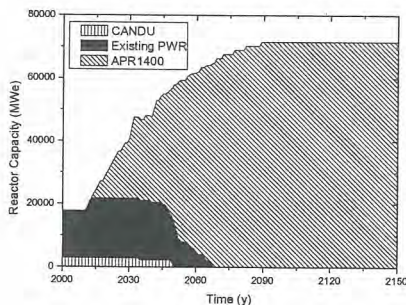


Fig. 1. Nuclear Reactor Capacity

그림 1의 원자로 도입 용량에 따라 발생되는

사용후 핵연료는 2150년도에 약 186500 t이 될 것으로 예측되며, 이에 따른 노의 Pu 및 MA 재고량은 2150년도에 각각 1940 및 160 ton이 되어, 총 TRU 재고량은 2100 ton이 될 것으로 예측된다. 사용후 핵연료를 10년 냉각, 50년 중간 저장 후 직접 처분 할 때 원자로 부지 내 냉각조, 중간 저장 시설 및 처분장에서의 사용후 양을 그림 2에 나타내었다. 각 시설별 사용후 핵연료 재고량을 보면, 원자로 사이트 내 저장조에서의 사용후 핵연료 양은 2040년 이후 약 1400 ton으로 일정하게 유지되며, 중간 저장 시설에서의 양은 계속 증가하고 처분이 시작되는 2060년 이후 증가율이 약간 둔화됨을 알 수 있다. 따라서 이 시나리오에 의하면, 2150년도에 10,400 ton 용량 저장조 시설, 100,100 ton 용량 중간저장 시설, 72,000 ton용량 처분장 시설이 필요한 것으로 나타났다. 이 값들은 냉각기간 및 중간저장 기간에 따라 변하게 된다.

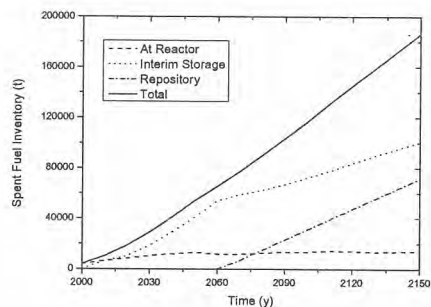


Fig. 2. Spent Fuel Inventory in Facility

2.2 완전 재순환 핵연료 주기

완전 재순환 시나리오로서 KALIMER-600 원자로를 도입하고 사용후 핵연료는 파이로 건식 처리하는 핵연료 주기에 대한 계산을 수행하였다. 이 시나리오 분석을 위해 고속로는 2030년도부터 도입되는 것으로 가정하였다. 고속로 전환비 1.0, 0.61, 0.3 등 세 가지 경우에 대해 분석을 수행하

였는데, 이는 KALIMER 설계 및 분석이 전환비 1.0인 전환 노심과 전환비 0.61인 연소로가 고려되고 있고, 이보다 낮은 전환비의 영향을 분석할 필요가 있기 때문이다.

그림 3은 각 전환비에 대해 천연 우라늄 누적 소비량을 비교하여 나타낸 것이다. 우라늄 사용량은 전환비가 증가함에 따라 감소하는데 이는 우라늄 산화물 핵연료가 고속로 핵연료로 대체되기 때문이다. 전환비 0.3 및 0.61에 대해 천연 우라늄 사용량은 직접 처분 주기에 비해 각각 10.6%, 18.7% 감소한다. 전환비 1.0의 경우에는 천연 우라늄 사용량이 약 50% 감소하였는데 이는 전환비 1.0 고속로의 도입율이 매우 높기 때문이다. 핵연료 농축량도 이와 비슷한 경향을 보이는데 전환비 0.3 및 0.61의 경우 각각 10.7%, 19.7% 감소한다. 전환비 1.0의 경우 천연 우라늄 사용량과 마찬가지로 매우 크게 감소하였는데 이는 전환비 1.0 고속로 도입의 경우 핵연료 농축의 필요성이 매우 낮기 때문이다.

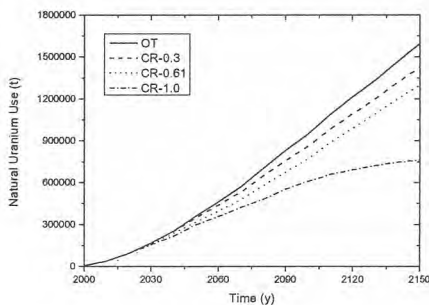


Fig. 3. Amount of Natural Uranium Use

후행 핵연료주기 인자로서 사용후 핵연료 발생량은 그림 4에 나타난 바와 같이 직접 처분 주기에 비해 약 85% 감소한다. 이 결과에 보듯이 모든 경우에 대해 사용후 핵연료 재고량이 유사한 것은 고속로 도입 용량이 경수로 사용후 핵연료 양을 최소화 하도록 도입되기 때문이다. 한편, 경수로 핵연료 누적 재처리량은 전환비가 증가할수록 감소하고, 고속로 사용후 핵연료 재처리량은 전환비가 증가할수록 증가하여 각 전환비에서 누적 재처리량은 2150년도에 각각 3930 t, 10010 t, and 40280 t이 된다.

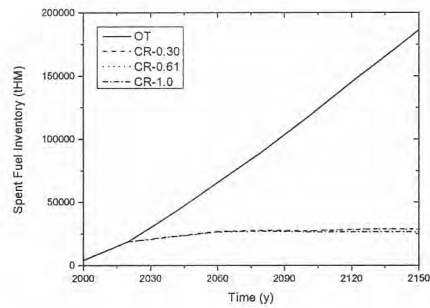


Fig. 4. Spent Fuel Inventory in Fast Reactor Cycle

고속로 주기에서의 TRU 노외 재고량은 각 전환비에서 각각 2150년도에 1280 t, 1100 t, and 970 t이며, 이는 직접 처분 주기에 비해 각각 34%, 44%, and 50% 감소한 값이다. 여기서 TRU 노외 재고량은 고속로에 사용되기 전 대기 파이로 처리를 위해 대기하는 상태의 양도 포함하므로 실제 관리하여야 하는 노외 재고량은 이에 비해 낮은 것으로 예상된다.

3. 결론

DANESS 코드를 사용한 핵연료주기 동적 시뮬레이션 분석을 수행하였다. 직접처분 주기 분석 결과 2150년도에 사용후 핵연료 누적량은 약 186500 t이 될 것으로 예측된다. 파이로-고속로 핵연료 주기는 사용후 핵연료 재고량을 효과적으로 줄일 수 있을 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 원자력 기술 개발 사업으로 수행되었음.

5. 참고문헌

- [1] L. V. D. Durpel et al., "DANESS- Dynamic Analysis of Nuclear Energy System Strategies," Global 2003, New Orleans, November 16-20, 2003.
- [2] 지식경제부, 국가 에너지 기본 계획, 2008.

사용후핵연료 안전성 평가를 위한 수소장입 지르코늄 피복관의 크립거동

정양일, 김현길, 최병권, 박동준, 박상운, 박정용, 정용환

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

yjiung@kaeri.re.kr

1. 서론

국내 경수로에서 배출되는 사용후핵연료는 전량 원전부지 내의 수조에 임시 보관되고 있으며, 고준위 폐기물처분장의 완공 후에 영구 처분될 것이다. 현재 저장 수조의 용량은 한계에 다다르고 있으며, 빠른 시일 안에 선진국에서와 같이 건식저장에 대한 방안이 마련되어야 한다. 건식저장은 오염원의 배출, 대테러 안전성, 사용후핵연료 관리, 소요부지 측면에서 습식저장에 비하여 장점이 있다. 그러나 사용후핵연료의 건식저장 중에 핵연료 피복관은 핵분열 열에너지와 반응가스에 의한 온도와 압력에 지속적으로 노출된다. 따라서 피복관의 크립파단, 응력부식균열, 수소지연파괴 등과 같은 안전성 저해요소에 대한 연구가 수행되어야 한다.

본 연구에서는 핵연료 피복관의 연소도를 모사할 목적으로 수소를 장입한 Zircaloy-4 피복관을 이용하여 크립시험을 수행하였다. 크립시험은 피복관이 건식저장 환경에서 받는 최대 온도조건인 400℃를 기준으로 하였고, 피복관 내 수소화물은 부식시험을 통하여 산화막 형성의 부산물로서 장입되도록 하였다. 장입된 수소흡수량과 크립거동의 연관성을 확인하고, 크립시험 중 발생하는 수소화물의 재배열에 대해서 분석하였다.

2. 본론

2.1 실험 방법

실험에 사용된 합금은 상용 Zircaloy-4 튜브로 조성은 $Zr-1.26Sn-0.23Fe-0.12Cr$ 이었다. 집합도는 Kearn 지수로 반경방향으로의 값이 0.6547이었다 [1]. 튜브의 제원은 바깥지름이 9.5 mm이고, 두께가 0.57 mm이었으며, 길이방향으로 5 mm이었다. 또한 크립시편으로의 제작은 정면에서 바라볼 때 도그본(dog-bone) 형태가 되도록 폭 2 mm, 표점거리 2 mm로 와이어 가공하였다. 수소가 장입된 시편은 시편가공 이전에 부식시험을 수행하였다.

부식시험은 400℃ 수증기 분위기에서 30일, 60일간 수행하였다. 부식시험 전 피복관의 수소농도는 약 20 ppm이었으며, 부식시험 후에 약 70 ppm 이상으로 증가하였다.

크립시험은 400℃에서 120 MPa의 응력으로 10일간 수행하였으며, 10분 간격으로 크립에 의한 변위를 컴퓨터로 수집하였다. 크립시험된 시편은 최종적으로 단면의 미세구조를 분석하였다.

2.2 크립 변형률

그림 1은 크립시험 전후의 시편 형상을 보여준다. 그림과 같이 시편은 링 형태에서 도그본 형상으로 가공하였고, 시험 후에 표점거리 부분이 상하로 연신된 모양을 하였다. 그림 2는 400℃와 120 MPa의 원주방향 응력에서 크립시험된 결과를 보여준다. 10일간의 크립시험에서 시편은 초기 크립(primary creep) 거동을 거쳐 정상상태 크립(steady-state creep)으로 진행하였다. 수소가 장입되지 않은 시편은 크립변형 속도가 가장 빨랐으며, 200시간(12000 min)에서 0.346 mm의 변형이 유발되었다. 반면에 부식시험을 통해 수소가 장입된 시편은 부식시험 일수가 증가함에 따라 크립변형 속도가 더 느려졌다. 수증기 분위기에서 30일 부식시험된 시편은 200시간에서 크립 변형량이 0.268 ~ 0.292 mm이었다. 또한, 수증기 분위기에서 60일 부식시험된 시편은 200시간에서 크립 변형량이 0.212 mm이었다.

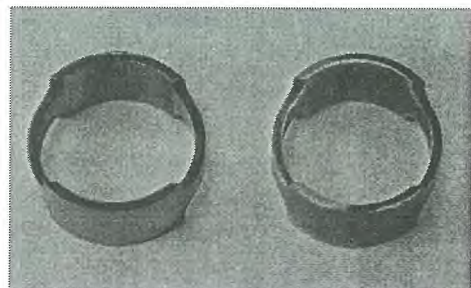


Fig. 1. Appearance of specimens before and after a creep test

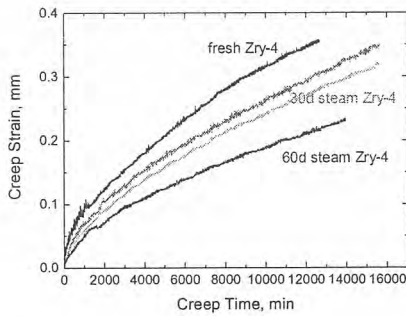


Fig. 2. Variation in creep strains of Zircaloy-4 samples with respect to the oxidation and corresponding hydrogen absorption

2.3 수소화물 재배열

수소화물은 일반적으로 지르코늄 합금의 취화를 유발하는 것으로 알려져 있으며, 특히 수소화물 배열의 방향성은 재료의 기계적 특성에 크게 영향을 미치는 것으로 알려져 있다 [2,3]. 수소화물은 지르코늄의 저면(basal plane)을 따라 석출이 용이하기 때문에, 초기에는 피복관의 원주방향을 따라 형성된다. 그러나 응력조건에 따라 수소화물은 재배열되며, 인장응력에 수직한 방향으로 배열한다.

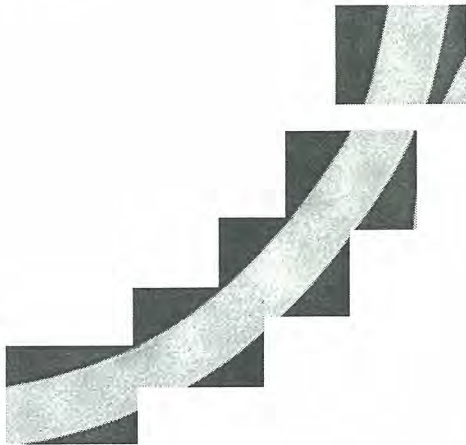


Fig. 3. Morphology of hydrides after a creep in Zircaloy-4 samples which had been steam corroded for 60 days

그림 3은 크립시험 후에 얻어진 수소화물의 배열을 보여주는 미세조직 사진이다. 사진의 상하 방향으로 크립 인장응력이 가해졌다. 시편의 하단에는 수소화물이 크립시편의 원주방향과 평행하게 형성되어 있는 것을 볼 수 있으나, 시편의 좌상단으로 가면서 수소화물의 배열이 원주방향에서 반경방향으로 변화되는 것을 확인할 수 있다. 이는 크립에 의한 인장응력이 수소화물의 배열을 변화시키는 것으로 해석된다. 크립시편의 표점거리 부분에서는 인장응력이 시편의 원주방향과 동일하게 걸리게 되어, 수소화물은 반경방향으로 재배열하게 된다. 원주방향의 수소화물은 피복관 파손에 큰 영향을 미치지 못하는 것으로 알려져 있으나, 반경방향의 수소화물은 크랙의 선단으로 작용하여 취성파괴를 크게 유발하는 것으로 보고되었다 [3]. 따라서 이러한 수소화물의 재배열은 크립파단이나 인장하중에 의한 피복관 파손에 크게 우려되는 현상이다.

3. 결론

수소가 장입된 Zircaloy-4 지르코늄 피복관으로 건식저장 조건의 실험환경에서 피복관의 크립거동을 관찰하였다. 수소화물이 형성된 피복관은 그렇지 않은 피복관에 비해 크립변형이 적게 나타났다. 반면에 수소화물이 존재하는 경우에는 크립응력에 의해서 원주방향의 수소화물이 반경방향으로 재배열되었으며, 이로 인한 피복관 파손의 가능성이 우려된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] M.H. Lee, J.H. Kim, S.Y. Park, B.K. Choi, Y.H. Jeong, *Met. Mater. Int.*, Vol. 15, No. 4 (2009), pp. 539~546.
- [2] L.G. Bell, R.G. Duncan, *AECL Report*, 1975, AECL-5110.
- [3] K.W. Lee, S.I. Hong, *J. Alloy. Compd.*, Vol. 346 (2002), pp. 302~307.

이산사건기반 파이로 핵물질흐름분석 모델 (PyroFlow v1.0)

이효직, 김기호, 김호동

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

hyojik@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로공정(Pyroprocess)은 많은 단위공정으로 이루어져 있고, 단위공정의 입/출력 핵물질 양을 알기 위해서는 물질수지(mass balance) 정보가 필수적이다. 한국원자력연구원에서는 파이로공정의 물질수지를 구하기 위해 현재까지 실험결과로 부터 또는 앞으로 예측될 수 있는 단위공정의 목표량으로부터 물질수지를 구하고 있으며, 계속적으로 물질수지를 수정, 업데이트하고 있다. 그러나, 현재까지 개발된 물질수지는 정적 물질수지(static mass balance)여서 공정의 운전흐름에 따른 물질수지 변화, 즉, 공정의 입력 및 출력 물질 양의 변화를 한눈에 알기 어렵다. 정적 물질수지를 통하여 파이로공정의 개략적인 물질흐름을 이해할 수 있고, 특정 배치 후 물질수지 계산시 근거 자료로 사용할 수 있으나 시간이나 운전흐름에 따른 물질수지 변화를 동적으로 계산할 수 없다는 단점이 있다. 이러한 점에 착안하여 기존의 정적물질수지를 시간이나 운전흐름의 변화에 따라 동적물질수지로 계산해낼 수 있는 핵물질흐름분석 모델을 개발하게 되었다[1].

2. 동적물질수지

정적 물질수지의 단점을 개선하기 위하여 운전흐름에 따라 실시간(real time)으로 물질수지를 구할 수 있는 방안을 고안하였고, 이를 기존의 정적 물질수지에 상대적인 개념으로 동적 물질수지(dynamic mass balance)라고 명명하였다. 파이로공정에 대해 동적 물질수지를 구현함으로써 얻을 수 있는 정보는 정적 물질수지에 비해 상당히 다양하다. 아래에 동적 물질수지 정보를 알아냄으로써 기대되는 효과를 간단히 기술하였다.

- 실시간으로 각 단위공정에서 발생하는 공정물질의 양을 예측
- 공정의 운전 시뮬레이션을 통한 운전계획 수립

- 병목현상 원인 파악
- 공정 설계 변수(공정시간, 공정장치 개수 등) 제시
- 시설 설계변수(버퍼용량) 제시

3. 파이로 핵물질흐름분석 모델

3.1 이산사건시스템

파이로공정의 단위공정은 대부분 일관공정(batch process) 또는 일부의 반일관공정(semi-batch process)으로 이루어져 있기 때문에 하나의 단위공정이 끝난 후 그 다음 공정이 시작되는 운전 구조를 갖고 있다. 따라서 파이로공정을 하나의 시스템으로 보았을 때, 연속시스템보다는 이산사건시스템으로 모델링하는 것이 훨씬 더 적합하다.

3.2 운전모델

이산사건시스템으로 본 파이로공정 운전모델은 전체 공정의 운전현황을 실시간으로 보면서 병목현상의 원인 등을 쉽게 살펴볼 수 있도록 하기 위해 개발된 것이다. 따라서 운전모델에는 다양한 방법으로 출력결과를 나타낼 수 있도록 데이터를 처리하는 부분이 모델링되어 있다. 또한 각 단위 공정장치의 고장율을 확률론적으로 분석할 수 있도록 추가하여 전체 파이로공정의 운전에 단위 공정장치의 고장이 어떤 영향을 미치는지도 분석할 수 있도록 하였다.

3.3 핵물질흐름분석모델

이산사건시스템 기반의 파이로공정 운전모델은 각종 운전 사건들(event)이 발생하는 시점을 내부적으로 알 수 있어서 이 시점에서 물질수지를 계산하여 업데이트할 수 있다. 이러한 점에 착안하여 운전모델을 기본 프레임으로 시작하여 파이로공정의 핵물질흐름분석 모델을 만들 수 있다. 본 연구에서는 ExtendSim을 이용하여 이산사건시스템 기반 운전모델을 구축하고 여기에 추가하여 정적 핵물질수지를 기본 데이터베이스로 하는 동적 핵

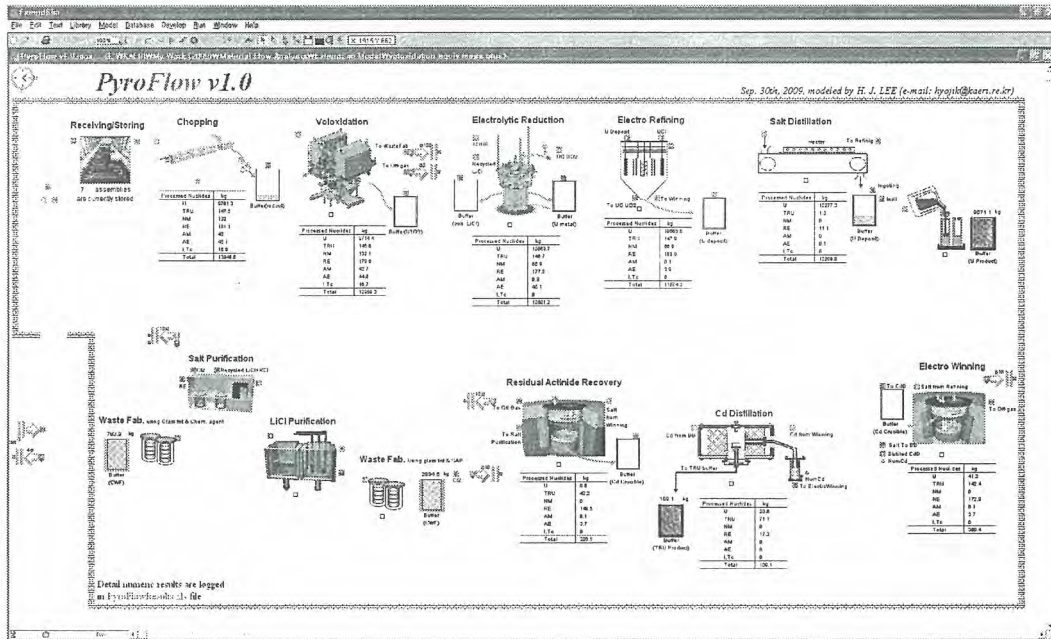


Fig. 1. Top window of PyroFlow v1.0

물질흐름분석 모델을 개발하였다. Fig. 1에 개발된 파이로 핵물질흐름분석 모델(PyroFlow v1.0[2])의 첫화면을 보여주고 있다. 첫화면에는 주요 단위공정이 아이콘 형태로 표현되어 있고, 시뮬레이션을 실행하면 실시간으로 핵종별 핵물질수치를 계산하여 아이콘 아래 위치한 테이블로 출력한다. 또한 단위공정에서 생성된 공정물질의 버퍼능적 양을 애니메이션으로 표현하며, 공정장치의 상태(휴지, 운전, 고장)를 나타내준다. 모든 운전사건들마다 계산된 데이터는 EXCEL로 출력하는 기능도 갖추어 시뮬레이션이 끝난 후에 결과를 면밀히 분석 가능하도록 하였다.

4. 시뮬레이션 결과 예

그림 2는 파이로 핵물질흐름분석 모델을 이용하여 얻은 결과의 일부인 단위공정의 운전상태를 나타낸다. 연간 4회의 고장이 발생하여 공정의 지연이 발생함을 보여준다.

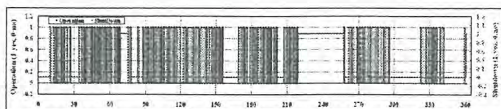


Fig. 2. Operational status of electrolytic reducer

그림 4는 다른 결과 예로서 단위공정별로 연간 처리한 HM의 양을 나타내고 있다. 이처럼 PyroFlow를 통해 다양한 결과를 한눈에 알 수 있어 파이로공정 설계시 다양한 운전 시나리오에 대한 평가가 가능하다.

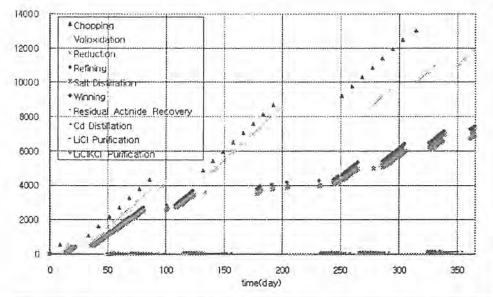


Fig. 3. Processed heavy metal (kg) during a year

5. 참고문헌

- [1] H. J. Lee, B. S. Park, K. Kim and H. D. Kim, "A modeling and simulation for analysis of dynamic material flow in a pyroprocess," NUPYRO 2009, Jeju, Korea, pp. 18-21, May 19-20, 2009.
- [2] 이효직 외, PyroFlow v1.0, 프로그램등록, 2009-01-121-007353, 2009.

사용후핵연료 집합체에 대한 내·외부의 연소도 측정

엄성호, 박세환, 안성규, 임혜인, 손영준, 권인찬, 주준식, 신희성, 김효동
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
eom@kaeri.re.kr

1. 서론

조사후시험시설의 수조(pool)에 저장된 사용후핵연료 집합체의 연소도는 핵연료의 연소상태를 추정하는 가장 기본적인 인자이며, 특히 사용후핵연료에 내재한 핵종들의 성분비를 추정할 때 필수적인 인자이다 [1]. 이러한 이유 때문에 사용후핵연료의 연소도 측정에 대해 많은 연구가 있으며, 크게 비파괴적인 방법과 파괴적인 방법으로 나눌 수 있다. 본 실험은 감마선 분광분석 실험을 비파괴적인 방법으로 연소분포 [2~3], 방사성 핵종의 종류 및 특성을 파악하고 또 집합체내의 분포된 감마선 스펙트럼을 분석하기 위하여 측정 방법에 있어서, 장치의 차이에 따른 측정방법의 종류 및 이들의 장단점을 파악하여 측정법을 수행하였다.

2. 실험 및 결과

본 측정실험을 수행한 집합체는 주로 고리 1호기의 사용후핵연료인 14 x 14 타입 집합체이다. 이러한 집합체에 대한 감마선 분광분석 외부 측정시, 측정방법으로는 면측정법(side measurement method)으로 핵연료 집합체의 4 면에 대한 특성을 서로 비교할 수 있는 장점을 가지고 있으나 시험에 소요되는 시간이 길어지는 단점이 있다. 이 측정방법은 핵분열생성물의 분포를 확인하는 장치로서 고순도 게르마늄(HPGe) 검출기와 같은 적합한 다중과도 분석기(multi-channel analyzer)를 사용하여 우선적으로 감마스캐닝을 수행하였다. 이 감마스캐닝으로부터 측정대상 집합체가 갖는 대략적인 연소도분포, 방사능 세기등을 평가하고 측정점등을 결정 짓는다. 집합체 외부 4 면에 대한 측정 결과 [그림 1]에 제시한 바와 같이 집합체의 그리드에 해당하는 부분은 Co-60으로 인하여 총 계수율은 높으며 감마선 분광분석 측정시의 측정 위치로는 선택될 수 없다. 감마스캐닝을 행한 후 핵연료 집합체의 전체 길이중 감마선 분광분석 측정 위치로 한 면에 대하여 보통 7 ~ 10 지점을 정한 후 측정면의 각 지점에 대한

감마스펙트럼을 일정시간 동안 수집하여 이 스펙트럼으로부터 필요한 핵종의 에너지가 갖는 감마선 세기를 구하였다. 그리고 집합체에 대한 감마 및 중성자 내부 측정시, 측정방법으로는 집합체의 제어봉 가이드 튜브에 감마선 검출기(ion chamber)와 중성자 검출기(fission chamber)를 각각 삽입하여 측방향으로 스캐닝하므로써 중성자 선속분포의 측정결과와 감마 세기의 연소도분포 결과 그리고 C15 집합체의 B12 핵연료봉에 대한 감마스캐닝 결과를 [그림 2]에 제시하여 비교하였다. 전체적인 경향이 유사한 것을 알 수 있으며, 또한 집합체내 가이드 튜브 위치에 따라 또는 핵연료봉이 한 위치에 집중적으로 제거된 부분에서 연소도 차이가 났으며, 몇 개의 지지격자(grid)가 위치한 지점에서는 다른 지점보다 상대적으로 핵연료 연소도가 낮아 선속밀도는 주위보다 낮게

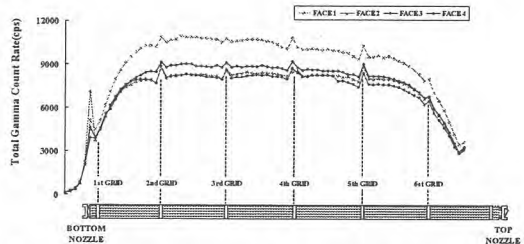


Fig. 1. Gamma-ray Scanning of Spent Fuel Assembly 14 by 14 (Outside Measurement Method).

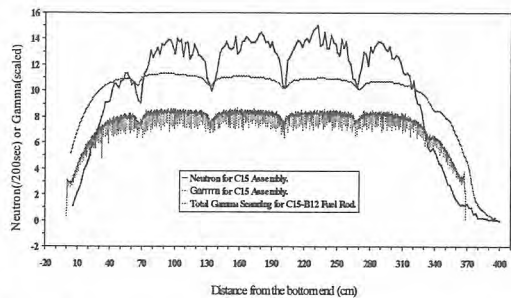


Fig. 2. A Comparison of Neutron and Gamma Counts for Assembly 14 by 14 (Inside Measurement Method).

나타난 것을 알 수 있었다. 따라서 조사후시험시설의 수조에 장전된 핵연료 집합체에 대한 감마선 분광분석 시험 및 기술개발을 하기 위하여 지금까지 조사 분석한 감마선분광분석법에 의한 조사후 핵연료 집합체의 연소도측정 평가를 통하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

3. 결론

첫째, 핵연료 집합체에 대한 감마선 분광분석에 있어서, 각 스펙트럼을 수집하는데 소요되는 시간이 길고 스펙트럼의 수 및 스펙트럼상에 나타나는 에너지 피크의 수가 상당히 많으므로 이들을 신속하게 처리 보관하기 위해서는 측정 및 분석이 자동화되어야 한다. 그러므로 당 시설 및 장치에 적합한 프로그램의 개발등 시스템 자동화에 대한 연구가 수행되어야 한다.

둘째, 감마선 분광분석의 결과분석에 있어서, 외부 측정시, 핵연료 체의 강한 차폐효과로 인하여 집합체의 가장자리에 있는 연료봉들에 대해서만 실질적인 해석이 가능하다는 것을 알았으며, 한 집합체의 4 면으로부터 얻은 결과들로부터 내부에 있는 연료봉들에 대해 해석할 수 있는 방법을 모색하였다.

셋째, 감마선 분광분석을 수행한 집합체에 대한 보다 정확한 분석을 위해서는 이 집합체를 해체한 후 취출한 연료봉 또는 시편등을 대상으로 수행하는 파괴 및 비파괴 시험의 결과 그리고 화학 분석법에 의한 결과등과 함께 분석을 하여야 한다. 그러므로 이런 파괴 및 비파괴 방법등에 의한 결과들을 종합적으로 분석할 수 있는 능력을 배양하여야 한다.

넷째, 감마 및 중성자 스캐닝을 이용한 연소도 측정의 가능성을 확인하였다. 앞으로 다양한 사용후 핵연료봉을 대상으로 많은 실험을 수행하여 측정데이터의 경향을 파악하고 이를 근거로 측정기술을 개선할 나날 계획이며 궁극적으로 감마 및 중성자 스캐닝에 의한 연소도 측정기술의 기술적 안전성을 입증할 계획이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력증장기과제의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] Y. G. Lee, J. S. Jun, Gamma-Ray Spectrometric Determination of Burnup Distribution and Cooling Time of Spent PWR Fuel Assemblies, Journal of Korean Nuclear Society, Vol. 17, No. 1, 1985.
- [2] 엄성호의 6인, “조사핵연료에 대한 집합체의 연소도측정”, 한국방사성폐기물학회, 춘계학술발표회 논문요약집, pp.208-209, 2006.
- [3] 신희성의 5인, “지수실험장치의 구성 및 성능시험”, pp.49-52, KAERI/TR-2199. 2002.

PRIDE 시설 계통설비 설계

정원명, 조일제, 유길성, 이은표, 홍동희, 구정희, 이원경, 김호동

한국원자력연구원, 대전시 유성구 덕진동 150

wmchoung@kaeri.re.kr

1. 서론

현재 국내에서 연구개발 중에 있는 파이로공정(Pyroprocess)은 원자력발전소에서 연소된 후 인출되는 사용후핵연료의 안전하고 효율적인 관리를 목적으로 개발에 착수하였으며, 누적되는 사용후핵연료의 재고량을 감축하고, 처분대상 폐기물량을 최소화하여 처분장의 활용을 극대화함으로써 처분장의 규모를 줄일 있도록 Cs, Sr 등 관리대상 핵종을 분리 관리하고, 회수된 우라늄과 장반감기 핵종인 TRU 원소는 제4세대 원자로(SFR) 재순환하여 핵변환을 통하여 처분장의 관리기간을 획기적으로 단축할 수 있는 혁신적인 공정으로 기대를 갖고 있다. 또한 민감한 핵종인 Pu의 전용가능성을 원천적으로 배제함으로써 핵확산저항성 측면에서도 유리한 사용후핵연료 건식처리공정이다. 제255차 원자력위원회에서 의결된 '미래 원자력시스템개발 장기 추진계획'에 의해 2016년까지 공학규모 파이로공정 실증을 위한 핫셀시설인 ESPF(Engineering Scale Pyroprocess Facility)의 구축을 목표로 설정하였다. ESPF 구축에 앞서 현재 단위공정별로 개발되는 파이로공정 전체를 연계한 일관공정시험을 통하여 개발되는 공정기술의 신뢰성을 확보하기 위하여 파이로종합공정 Mock-up 시설인 PRIDE(Pyroprocess Integrated DEMonstration facility) 시설을 구축하기로 결정하였으며, 현재 PRIDE 시설의 설계를 완료하고, 건설에 착수하여 건설공사가 진행 중에 있다. 본 연구에서는 건설되는 PRIDE 시설의 설비별 계통설계 및 배치설계 내용을 중심으로 기술하였다.

2. 본론

2.1 PRIDE 시설 개요

PRIDE 시설은 공학규모 실증시설인 ESPF와 동일한 규모의 Cold 시험시설로서, 수천억이 소요되는 ESPF의 건설에 앞서 필수 설계자료 생산 및 설계 최적화를 위한 필수시설로서 운영하기 위하

여 건설되고 있다. PRIDE 시설 내에 설치되는 파이로공정의 처리용량은 연간 최대 10 톤의 우라늄을 처리할 수 있는 규모로 건설되며, 천연우라늄 또는 감손우라늄을 사용하여 국내에서 개발되는 파이로공정의 Cold 시험을 수행하게 된다.

현재 건설 중에 있는 PRIDE 시설에서 공정시험을 수행하게 되는 파이로 일관공정은 모의핵연료 탈피복 및 분말화, 전해환원, 전해정련, 전해제련, 염폐기물 정제/회수 및 고화처리 등 단위공정으로 구성된다. 이 가운데 탈피복 및 분말화공정은 Air 분위기 하에서 처리되며, 대부분의 공정은 산소나 수분이 거의 없는(≤ 50 ppm 이하) Inert 분위기를 요구하므로 아르곤가스 분위기 모의셀 내에서 공정시험을 수행하게 된다.

PRIDE 시설은 파이로공정에서 취급하는 고온의 공정물질의 특성을 고려하여 엄격한 Inert 분위기가 유지되는 핫셀을 모사한 글로브 박스 형태의 대형 모의셀, 원격운전개념과 기밀성이 유지되는 셀장비, 아르곤가스 및 환기 계통설비, 냉각수 계통설비, 전원공급 설비 등으로 구성되며, PRIDE 시설 내에서 비록 조사되지 않은 핵원료 물질만이 취급되지만 원자력시설로서 원자력법에서 규정하는 방사성물질을 안전하게 취급할 수 있는 시설로서 구축된다.

2.2 PRIDE 시설 계통설비

PRIDE 시설에 설치되는 주요 계통설비는 아르곤가스 공급설비, 냉각수 공급설비, 압축공기 공급설비와 전력공급설비 등으로 구성된다.

2.2.1 아르곤가스 시스템

아르곤가스 시스템은 PRIDE 시설의 모의셀 내부에 설치되는 공정장치 특성으로 인해 불활성 분위기를 유지하여야 한다. 이를 위해 아르곤가스 시스템이 설치된다. 아르곤가스 시스템은 액체아르곤 저장(3.5m³) 및 기화설비(300Nm³/hr), 냉각(15RTx2) 및 순환설비(6000m³/hr), 정제설비(200Nm³/hr, DF 99), 배출설비 등으로 계통을 구성하고, 각 설비 용량을 산정하였다.

2.2.2 냉각수 공급계통

PRIDE 시설의 냉각수는 파이로공정 반응기에 사용하는 가열기로 인한 열과 반응열을 냉각, 제어하기 위해 반응기의 외부 Jacket 또는 기화되는 배기체 중 염을 포집하는 Trap 등에 공급된다. 냉각수 공급계통은 Fig. 2에 표기된 것과 같이 모의셀 내부 냉각수 공급계통과 외부 냉각수 공급계통으로 분리되어 구성되며, 모의셀 내부 냉각수 공급계통은 자흡식 펌프를 사용하여 누설시 냉각수 배관 외부로 물이 누출되어 모의셀의 Inert 분위기를 저해하지 않도록 설계되었다. 냉각수 공급계통은 순환루프(Close Loop)로 구성되며, 냉각기는 용량 20RT Chiller 2기가 설치된다.

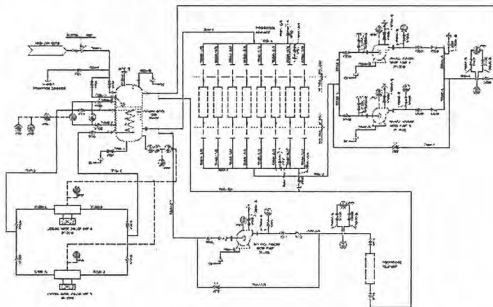


Fig. 1. P&I Diagram for Cooling Water System

2.2.3 전력공급계통

전력공급계통은 고압배전반, 저압배전반, 모터제어반 및 UPS 등으로 구성되며, 전력공급용량은 1150KVA 이다. 고압배전반은 주변전실에서 공급되는 6.6kV 고압전류를 수전하기 고압반과 PRIDE 시설에 설치되는 장비들이 요구하는 전압(440, 220V)으로 변환하기 위한 2개 고압 변압기반으로 구성된다. 저압배전반은 고압배전반에서 PRIDE 시설에 설치되는 장비들이 요구하는 전압(440, 220V)으로 변환된 전원을 용도별로 배전하기 위하여 설치되며, 440V 전원 배전반 1기와 220V 배전반 4기, 그리고 정류기반과 UPS반으로 구성된다. 모터제어반(MCC)은 PRIDE 시설에 설치되는 장비들에 전원을 안전하게 공급하기 위해 설치되는 동력 제어반으로 장비들의 요구하는 전압인 440V, 220V으로 구성되어 용도별로 제어할 수 있도록 설계되었다.

2.3 PRIDE 시설 배치설계

PRIDE 시설은 관리구역과 비관리구역으로 구분되며, 1층 관리구역에는 장비 및 방사성물질의 주

출입구, Ar 시스템, 냉각수와 압축공기 등 유틸리티 공급설비, 모의셀 내에 설치되지 못하는 일부 공정장치가 배치되도록 하였다. 그리고 비관리구역에는 전기실과 일반사무실, 옥외에는 Ar 가스 공급설비가 설치되도록 하는 기본 배치도를 확정하였다. PRIDE 시설 2층은 공정시험 주관구역으로 관리구역 내에 모의셀 및 공정장치와 공정시험을 위한 제어반들이 배치되어 모의셀 내 공정시험이 효율적으로 수행되도록 기존 벽을 2 m 정도 후면으로 이동 배치하였고, 비관리구역에는 출입관리실과 주요 사무실이 배치되어 전반적인 시설 운영, 관리를 위한 인력들을 위한 공간으로 활용될 수 있도록 기본 배치도를 확정하였다. 3층은 대부분의 관리구역은 2층과 연계된 Open 공간이며, 환기설비와 창고를 위한 공간으로 일부 활용되고, 일부 비관리구역은 별도로 옥외 계단을 추가로 설치하여 주로 홍보를 위한 전시실 공간으로 활용하도록 배치설계를 확정하였으며, Fig. 2는 PRIDE 시설 내부 설비 배치를 보여주고 있다.

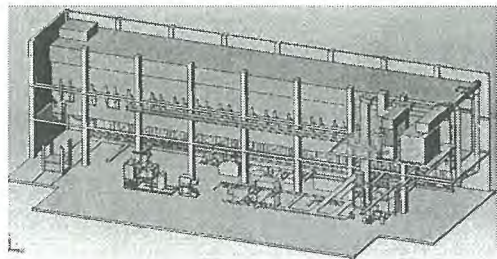


Fig. 2. Cutaway View of PRIDE Facility

3. 결론

파이로공정 Cold Test를 위한 시설로서 PRIDE 시설이 설계를 완료하고, 현재 건설 중에 있으며, 주요 시설로서 핫셀을 모사한 Inert 분위기 대형 모의셀(내부 체적 약 1200m³)과 셀장비, 공정시험 및 시설운영을 위한 계통설비들이 2011년까지 구축될 예정이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

- [1] 파이로 일관공정 시험시설 (PRIDE) 개념설계보고서, KAERI/TR-3885/2009

PRIDE시설 아르곤 정제장치 설계 및 설치 방안

홍동희, 조일제, 유길성, 정원명, 이은표, 문성인, 이원경, 구정희.

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150

ndhhong@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로 종합시험시설(PRIDE)의 아르곤셀에서 수행하는 공정은 특성상 불활성(아르곤) 분위기에서 수행하여야 하며, 방사성물질의 외부 확산을 방지하기 위하여 셀은 항상 일정한 부압을 유지하여야 한다.

셀의 일정한 압력유지를 위하여 우선적으로 고려하여야 할 사항은 셀 내부에서 발생하는 열량을 제거하여 부피 팽창에 의한 압력의 증가나 감소를 방지하여야 하며, 아르곤셀에 연결된 차폐창, 전선이나 배관의 연결구 등을 통하여 유입되는 외부공기를 차단하여야 한다. 아르곤셀에 외부공기가 유입 될 경우에 산소량이 증가하여 셀 내부의 아르곤가스 순도가 떨어지게 된다.

아르곤가스의 오염도를 관리하는 방법으로 아르곤가스를 공급라인을 통하여 지속적으로 공급하고 배출구를 통하여 배출하면서 셀 내부의 오염도를 유지할 수도 있다. 이렇게 할 경우 아르곤가스 소모에 따른 비용이 과다 할 뿐만 아니라 방사성 물질이 외부에 누출 되는 문제점이 발생할 수도 있다. 따라서 아르곤가스의 경제적인 활용과 방사성물질의 효율적인 관리 측면에서 고려할 수 있는 방안이 아르곤가스를 순환하고 정제하여 사용하는 방식이다.

본 연구에서는 파이로 종합시험시설의 아르곤가스를 효율적이고 경제적으로 관리하기 위하여, 아르곤가스를 순환하고 정제하여 셀의 오염도를 일정하게 유지하는 정제장치 설치 방안에 대하여 기술 하였다.

2. 본론

2.1 정제장치 설계 요건

정제장치를 설치하는 아르곤셀은 체적이 약 1200 m³(가로 40.3 m, 세로 4.8 m, 높이 6.4 m)이며, 운전시의 셀 내부의 압력은 -10 ~ -200 mmAq, 셀 구조물의 설계압력은 +75 ~ -300 mmAq, 셀 내부 온도는 25 ~ 40 °C이다.

파이로 종합시험시설에서 정제장치의 설계를

위하여 고려한 설계 요건은 다음과 같다.

- 아르곤셀의 공기 유입률(Leak Rate)은 셀 체적의 0.02 %/day 로 한다.
- 아르곤셀에 아르곤을 최초로 Purging 할 때에, 정제장치를 가동하여 2일 이내에 셀 내부 아르곤 가스 순도(Impurity level)가 산소 50 ppm, 수분 농도 50 ppm 이하가 되어야 한다.
- 그러나 최종적으로 아르곤셀 운전은 산소 15 ppm, 수분 40 ppm 이하로 유지 하여야 한다.

2.2 아르곤 정제원리

아르곤가스의 정제 및 순환을 위한 정제장치의 원리는 흡착과 촉매반응을 이용하고 있다.

아르곤셀 내에 존재하는 O₂ 불순물은 Pd-촉매탑 안에서 유량이 조절되어 공급되는 H₂와 반응하여 H₂O로 변환되며 이는 흡착Tower에서 제거된다. Dual로 구성된 흡착Tower는 정제(Purify)와 재생(Regeneration)을 반복하면서 지속적으로 고순도 아르곤가스를 공급한다.

정제된 Ar Gas는 내부로 순환하여 사용되며 반복 및 교체주기는 PLC로 프로그램 되어져 장치 상부에 부착되어 있다.

장치는 정제용 Towers, Pneumatic Valves, Manual Valves, Sensor 와 Control Part로 구성되며 PLC에 의해 전 자동으로 동작한다.

2.3 정제장치 구성

셀에 아르곤을 초기 충전 할 경우에는 잔류 불순물(Air+Moisture)이 200 ppm 정도가 될 때까지 아르곤저장 탱크에서 고순도 아르곤을 지속적으로 공급하고, 셀의 아르곤 오염도가 200 ppm 이하가 되면 정제장치를 가동 한다.

이때 제염계수(Decontamination Factor)가 99 %인 200 m³/h의 정화기를 사용할 경우의 정제 소요시간은 아래의 식으로 구할 수 있다.

$$\frac{dc}{dt} = -\frac{0.99 \times Q}{V_R} \times C$$

$$\frac{dc}{dt} = -\frac{0.99 \times Q}{V_R} \times C$$

$$t = -\frac{V_R}{0.99 \times Q} \times \ln \frac{C}{C_0} \quad \text{-----(1)}$$

여기서, Q = 정화유량

V_R = Ar Cell의 체적(1,200 m³)

C = 정화후의 Ar Cell의 오염도(55 ppm)

C_0 = 초기 충전시 Ar Cell의 오염도(200 ppm)

식 (1)을 이용하여 200 m³/h의 정화기를 사용할 경우 정화 소요 시간을 계산하면 7시간50분이 걸린다.

이때의 정화유량에 따른 배관 크기는

$$Q = A \times V \text{에서 } Q = \frac{\pi \times d^2}{4} \times V \quad \text{-----(2)}$$

에서 유효직경을 계산하면 65 mm(2-1/2 ") 이다. 이러한 결과를 바탕으로 구성한 정제장치 Mechanism은 그림 1과 같으며 이를 바탕으로 제작한 장치는 그림 2와 같다.

제작되는 장치는 캐비넷 형태로 크기는 가로 2 m X 세로 1.2 m X 높이 2.8 m로 원하는 위치에 설치 할 수 있다.

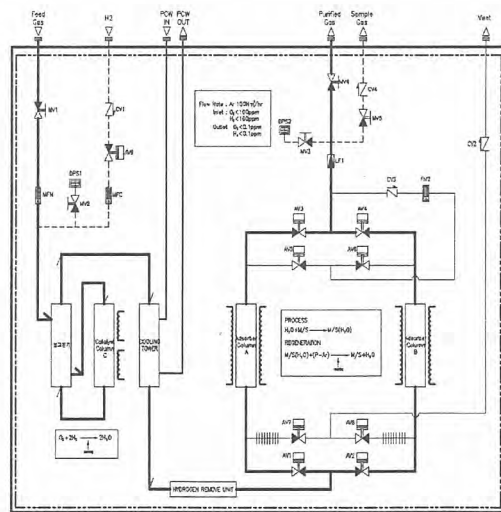


Fig. 1. Purification Mechanism

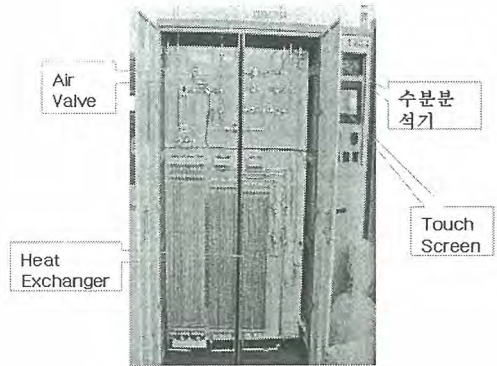


Fig. 2. Argon Purifier

3. 결론

본 과제에서 수행하는 아르곤셀 정제장치는 국내 최초의 불활성분위기 셀에서 오염된 아르곤 가스를 순환하여 재사용하는 장치이다.

아르곤을 정제하여 사용할 경우 아르곤가스 소모에 따른 비용을 줄일 수 있을 뿐만 아니라, 아르곤의 방출에 따른 방사성 물질의 외부 누출을 사전에 예방 할 수 있는 장점이 있다.

향후 파이로 종합시험시설 시설을 구축하고 정제장치 및 아르곤시스템에 관련되는 장치를 설치하여 시운전을 완료 한 후에, 운영에 관련되는 추가적인 연구를 수행하여 많은 데이터가 확보되면 국내의 불활성 분위기에서 셀에서 수행하는 공정 시스템에 매우 유용하게 활용될 것으로 예상된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부에서 지원하는 원자력연구개발 중.장기 기금으로 수행되었음

5. 참고문헌

- [1] ANL-7959 Hot Fuel Examination Facility /North Facility Safety Report, February 1975, Argonne National Laboratory pp 42-53
- [2] The EBR-II Fuel Cycle Story, Charles E. Stevenson, American Nuclear Society pp16-25

핫셀용 거시시편 표면분석을 위한 영상장치 개발

서항석, 전용범, 이형권, 권형문, 황용화, 장정남
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nhsseo@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원내 조사후연료시험시설 콘크리트 핫셀(9407cell)에는 조사후 핵연료 시편의 거시조직영상을 투영하는 시험장치가 설치되어 있다. 콘크리트 핫셀은 사용후연료의 금속조직시험 시편을 준비 하는 셀로써, 내부에 설치된 기존 거시조직영상 장치는 습기, 화학약품 및 고준위방사선 등의 환경에 지속적으로 노출되어, 렌즈 및 부품이 열화 되었고 선예도와 해상도가 저하되었다. 또한 이 시스템은 시편의 직경이 9.5mm이하만 투영이 가능하도록 배율이 저배율(7X)로 고정되어 있어, 직경이 16 mm에 이르는 이중냉각환형핵연료의 거시조직 분석에는 적합하지 않다. 이러한 문제점을 보완하기 위해, 배율 조절이 가능하도록 거시조직영상 장치를 개발하였으며 장비의 유지보수 시 방사선피폭을 최소화하기 위해 분리형으로 제작하고, 9409핫셀 내부에 설치하였다.

2. 본론

Fig.1은 핫셀 내, 외부에 설치가 완료된 영상장치 사진이다. 사용자의 방사선 피폭을 방지하고 CCD 센서의 손상을 막기 위해 렌즈부분 및 광원부분을 핫셀 내부에 설치하고, 카메라는 핫셀 외부에 설치하였다. Fig.1의 가운데 그림이 핫셀 내부에 설치된 렌즈부분 사진이다. 렌즈군은 4군8매로 제작되었으며 코팅처리를 하여 렌즈를 보호하였다. Surface mirror의 반사율은 95 % 이상을 유지시켜 선명한 영상을 얻게 하였다. 렌즈 하단부분은 LED 특수조명장치로서 난반사 방지를 위하여 적색 LED를 사용하였다. Fig.1의 왼쪽그림은 핫셀 외부에 설치되어 영상장치와 연결 장착된 Cool-Snap CCD 카메라이다. Cool-Snap CCD 카메라 해상도는 1.392×1.040 pixel이고, 각 pixel의 크기는 $4.65 \mu\text{m} \times 4.64 \mu\text{m}$ 이다. Output Image size는 1.376×1.024 , 1.280×960 pixel이며 pixel Depth는 8bit mono이다. 이미지 포착 및

분석을 위해 Image-Pro Plus 5.1 프로그램이 사용되었다. 카메라는 PC에 의해 제어된다. Fig.1의 오른쪽그림은 시편이송테이블 사진이다. 몸체는 핫셀 내부에 설치하였으며 제어반은 핫셀 외부에 설치하였다. 본 테이블은 시편의 높낮이 조절과 X,Y,Z축 및 Tilting까지 가능 하도록 제작되었다.

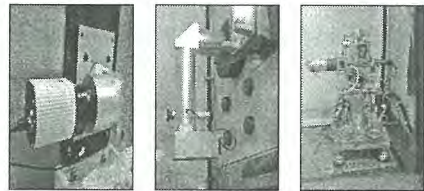


Fig. 1. Macroscopic visual examination system and Specimen table.

- 거시조직 사진 비교

Fig.2 사진은 거시시편표면 분석 영상장치를 통해 PWR 사용후연료 및 이중냉각환형핵연료의 시편 표면 조직의 영상을 획득한 배율 7X와 4X의 사진이다. Fig.2의 왼쪽사진은 7X 배율로 투영된 PWR 사용후연료 시편의 거시조직사진으로 미세한 크랙도 잘 나타나 있다. 오른쪽사진은 4X 배율로 투영된 이중냉각환형핵연료의 거시조직사진이다. 배율은 시편이송테이블이 고정된 상태에서 원격조종기를 이용하여 렌즈부분 노브만 반대 방향으로 밀어주면 변환된다. PWR 사용후핵연료의 직경은 9.5 mm이고 이중냉각환형핵연료 직경은 16 mm이다.

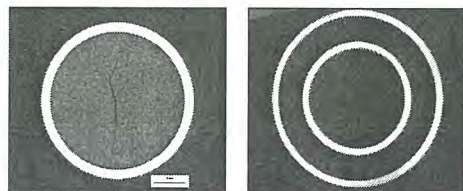


Fig. 2. Macroscopic inspection for PWR fuel sample and fuel cooled annular pellet fuel sample

3. 결론

조사후연료시험시설 콘크리트셀에 설치된 페리스코프는 배율 고정형으로 마운팅된 시편만 분석이 가능하고 시편의 파단면 및 결함부위에 대한 분석에는 한계가 있다. 이번에 개발된 거시시편표면 분석을 위한 영상장치는 페리스코프 거시조직사진 투영장치에 비해 뛰어난 선예도와 해상도를 갖추었으며 배율을 7X에서 4X로 변환할 수 있어, 이중냉각환형핵연료를 포함한 다양한 연구개발 분야에서 요구하는 고준위 시편의 거시조직 분석이 가능해졌다. 기존 시스템은 이미지 분석에 의한 시편의 제원 측정시 표준자에 의한 보정과 더불어 전자파일로의 전환을 위해 스캔과정을 거쳐야만 하였으나 핫셀용 거시시편표면 분석을 위한 영상장치는 이러한 과정이 불필요하며 CCD 카메라에 직접 이미지 분석 장치를 연결하여 시편의 제원을 측정할 수 있다. 본 시스템은 사용후핵연료 시편뿐만 아니라 마운팅이 어렵고 부피가 큰 시료 표면에 대한 조직시험에도 활용될 예정이다.

PWR 사용후핵연료봉 내압 및 공간체적 측정시험 평가

이형권, 서항석, 전용범, 민덕기, 권형문, 황용화
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nhkleel@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료봉 내압 측정시험 자료는 핵연료 설계에서 열적·기계적 특성을 분석하는데 필요하다. 특히 핵연료의 경제성을 확보하기 위하여 수명을 연장하는 고연소 핵연료에서는 더욱 더 중요하다. 핵분열기체는 연소도 증가함에 따라 생성량이 증가되며, 이로 인하여 연료봉내의 압력을 증가시키고 한계점에 도달하면 피복관이 파손되어 핵연료의 기능이 상실된다. 또한 핵분열기체의 누출은 원자로 안전성에도 영향을 미치게 된다. 그러므로 핵연료의 수명을 연장시키고 안전성을 확보하기 위해서는 핵연료봉 내압측정시험 평가 자료가 필요하게 된다. 그리고 조사된 핵연료의 건전성 평가와 저장·관리를 위해서도 필요하게 된다.

2. 본론

2.1 실험

실험은 시험장치에 연료봉을 장전한 후 연료봉의 공간체적을 결정하기 위한 선행조건으로 질소가스를 이용하여 천공용기체적을 측정하여야 한다. 그 이유는 연료봉의 공간체적은 천공전과 천공후의 천공용기체적의 차로 구하기 때문이다. 천공용기 체적 측정이 완료된 후에서 실험에 적합한 진공도까지 도달하면 핵연료봉을 유압식핀치로 천공한다. 이때 천공된 핵연료봉에서는 핵분열기체가 천공용기로 방출되어 팽창하게 되며, 어느 정도의 시간이 경과되면 천공용기내의 압력이 평형을 이룬다. 그리고 다음단계로 표준용기에 핵분열기체를 팽창시키며 어느 정도의 시간이 경과되었을 때 표준용기내의 핵분열기체 압력은 안정화를 이루게 된다. 이러한 과정에서 측정된 데이터로부터 사용후핵연료봉의 봉내압, 공간체적 및 핵분열기체량을 결정할 수 있다.^[1]

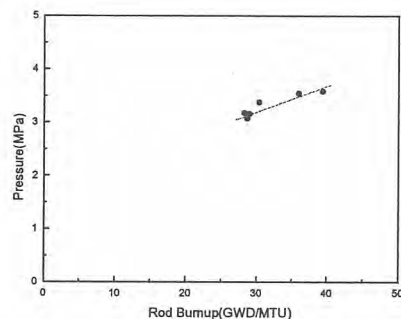
2.2 실험결과 및 고찰

사용후핵연료봉에 대한 내압측정시험과 핵분열기체의 성분분석시험을 수행하였다. 표1은 시험 연료봉에 대한 봉내압, 공간체적, 기체량 및 핵분열기체의 성분을 나타낸다.

Table 1. Results of puncturing test and mass spectrometric analysis.

연료봉 No.	봉내압 (kPa)	공간체적 (cm ³)	기체량 (cc)	Xe (cc)	Kr (cc)	FFGR (%)
1	3,582	17.62	581.4	7.84	3.19	0.42
2	3,544	20.17	657.3	11.47	5.15	0.70
3	3,072	22.88	654.8	12.97	2.22	0.81
4	3,174	22.55	658.2	-	-	-
5	3,157	21.49	623.9	8.6	0.75	0.49
6	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. Fig. 1은 연소도에 따른 사용후핵연료봉의 내압과 공간체적의 변화를 나타내었다. 핵연료봉의 내압은 연소도가 비슷한 값을 갖는 연료봉에서 거의 비슷하였으며, 연소도가 증가하면 봉내압은 증가하나 연소도가 증가한 만큼 직선적으로는 변화되지 않았다.



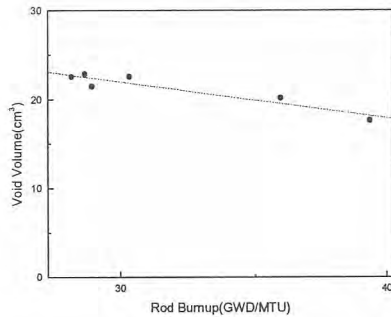


Fig. 1. Internal pressure and void volume of fuel rods as a function of rod burn-up.

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. Fig. 1의 결과에서 핵연료봉의 연소도가 증가함에 따라 공간체적은 거의 직선적으로 감소하는 것으로 나타났다.

3. 결론

가압경수로형 핵연료봉에 대한 봉내압, 공간체적 및 핵분열기체량 측정시험과 기체 성분분석시험을 수행하였다. 시험결과, 핵연료봉 내압은 연소도가 증가하였을 때 증가하였으며, 공간체적은 연소도가 증가할수록 직선적으로 감소하는 것으로 나타났다. 핵분열기체 성분분석결과 Xe과 Kr의 비가 2.2 ~ 11.5배로 나타났으며, 핵분열기체 누출율은 0.42~1.87%로 나타났다.

4. 참고문헌

- [1] 이형권 외, “가압경수로 사용후핵연료봉의 핵분열기체포집장치 개발 및 모의핵연료봉을 이용한 시험평가”, 한국원자력학회 춘계학술발표회 논문집, 2000.

원격성을 고려한 고효율 탈피복/분말화 일체형 장치개발

김영환, 정재후, 김기호, 박근일, 이정원, 이영순, 이도연

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

vhkim3@kaeri.re.kr

1. 서론

탈피복/분말화 일체형 장치의 기능은 파이로 프로세스 공정의 일부인 전기 금속환원 장치에 U_3O_8 의 균질화 된 미세 분말을 만들어 공급하는 로드컷(펠릿+연료봉)의 산화 및 탈피복 장치이다. 장치의 개발 목적은 투입된 로드컷을 공기와 열을 이용하여 분말화 하고 운전 및 유지·보수가 용이한 모듈구조를 가지는 사용후핵연료 50 kgHM/batch 규모의 탈피복/분말화 일체형 장치를 제작하는데 있다. 또한 고방사선 환경의 핫셀 안에서 원격운전 및 유지보수가 용이하게 할 수 있는 모듈화 설계기술을 확보하는데 있다. 장치개발을 위해서 기계적 및 화학적 탈피복 방법들을 분석하였으며, 핵의 수량과 크기에 따른 반응기크기를 예측하는 식을 도출하여 반영하였다. 또한 3D프로그램 분석과 산화핵심메커니즘과 회수핵심메커니즘을 개발하고, 기초성능시험자료를 설계에 반영하였다. 또한 원격안전성과 유지·보수성을 고려하여 모듈 및 반자동화 대상을 분석하고, 결정하였으며, 장치를 제작하였다. 장치의 주요 구성은 크게 히터 모듈부, 반응 모듈부, 지지 모듈부, 그리고 전기/센서부 등으로 되어 있다.

2. 본론

2.1 설계 조건

펠릿 처리 용량 50 kgHM/batch, 분말 회수율 99 % 이상, 최종 분말 입도 2-100 μm 이내, 사용 온도 500도, U_3O_8 분말화 시간 12 시간/1회, 전기용량 30 kw, 100 A, 220 V, 3상 등 이다.

2.2 모듈/반자동화 대상 결정 및 분석

탈피복/분말화 일체형 장치의 원격 안전성과 유지·보수성 확보를 위하여 작업환경과 장치구조, 접근성 분석 등을 고려하였다. 또한 설계도면을 검토, 보완하고, 모듈식 및 반자동화 대상을 결정하여, 분석하였으며, 그림 1과 같다.

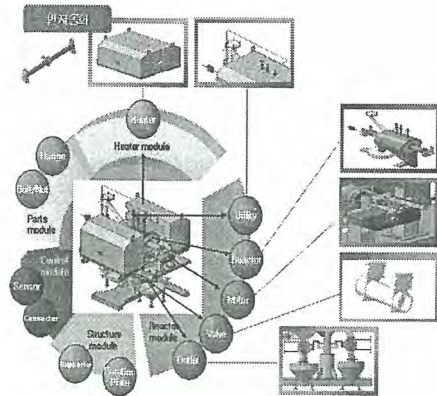


Fig. 1. Modular designs for remotely operated vol-oxidizer

2.3 유지·보수성을 고려한 모듈식 탈피복/분말화 일체형 장치 3D

탈피복/분말화 일체형 장치 시제품 개발을 위해 산화장치의 장치 용량과 크기를 반영하고, 원격장비 및 유지·보수 관련 등을 고려하여 모듈화 요건 설정 및 상세 설계를 수행하였고, 표 1, 그림 2와 같다.

2.3.1 반응기부

반응기 구동 모듈부의 착·탈 부분은 베벨기어와 5°의 경사 플레이트 구조를 반영하여 인양 고리에 의한 모터 모듈의 슬라이딩 운동으로 쉽게 유지 보수가 가능하게 설계하였다. 반응기 모듈은 SF 용량 50 kgHM/batch 규모로, 직경(D)은 350 x 길이(L) 400 mm로 결정하였고, 핵/분말 이송 경사각(transfer slop angle)을 45°로 하였다.

2.3.2 배출부

나이프게이트 밸브(knife-gate valve) 모듈은 공기 냉각장치(air cooling system)를 고려하였으며, 클램프 탈착 방식의 모듈화 개념 고려하였다. 배출부 모듈에서 분말용기(30 L)와 혈용기(20 L)의 용량을 결정하였으며, 배출부 모듈은 플렉시블 및 용접방법을 적용한 모듈형태로 하였고, 또한 배출

부 모듈의 엔드캡 탈착은 전후슬라이드 방법을 적용하였다. 유지·보수를 위하여 회전 플레이트 모듈은 장치 전체가 하단부의 50 cm 위치에서 180도 회전하는 판(plate)을 고려하였다. 또한 장치 회전 위치 제어용 스톱퍼를 설치하였다.

Table 1. Specifications of the high throughput vol-oxidizer

처리용량	50 khHM/batch
사용온도	500 °C
반응기 회전	3 - 5 rpm
장치크기	(L) 1,400 x (H) 2,000 x (W) 1,500 mm
유지·보수	180° 회전, 반자동
모듈기능	모듈별 분리 기능

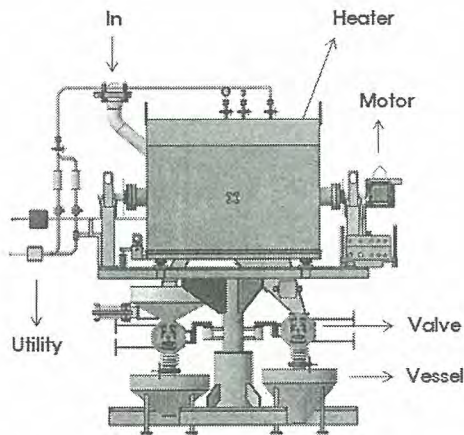


Fig. 2. 3D of the high throughput vol-oxidizer

2.4 탈피복/분말화 장치 제작

High-throughput 탈피복/분말화 장치제작은 핵심장치 개발과 열적, 기계적 프로그램분석 등을 토대로 장치를 제작하였다. 이 장치는 처리용량이 50 kgHM/batch이며, 장치의 안전성을 고려한 원격운전 및 유지·보수성을 고려하고, 모듈화 요건을 설정하였으며, 장치의 부품별 모듈 및 반자동화 특성을 분석하고, 모듈 대상 및 반자동화 대상(히터 모듈)을 선정하였다. 또한 유지·보수를 위하여 장치 전체가 180도 회전하는 회전 플레이트 모듈 등, 모듈별 유지·보수를 고려하고, 이를 반영하여 탈피복/분말화 일체형 장치의 3D를 구축하고, 장치를 제작하였으며, 그림 3과 같다.

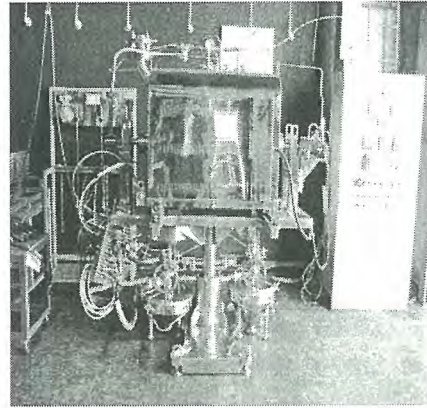


Fig. 3. High throughput vol-oxidizer

3. 결론

SF 절단연료봉을 동시에 탈피복 및 분말화 할 수 있는 모듈식 고효율 탈피복/분말화 장치가 개발되었다. 장치개발을 위해서 기계적 및 화학적 탈피복 방법들을 분석하여, 로터리 켈른(Rotary kiln)방식을 선정하였다. 또한 열의 수량과 크기에 따른 반응기크기를 예측하는 식을 도출하여 반영하였다. 또한 3D프로그램 분석과 열적, 구조적 해석을 통하여 산화핵심메커니즘과 회수핵심메커니즘을 개발하고, 기초성능시험자료를 설계에 반영하였다. 또한 원격운전 및 유지·보수성을 고려하여 모듈 및 반자동화 대상을 분석하고, 결정하였다. 모듈화 설계를 위하여 원격운전 및 유지·보수 지침에 근거한 모듈화요건을 설정하고, 3D를 구축하였다. 원격성 취급을 위해서 제시된 모듈화 방법들은 핫셀 내 공정장치의 모듈화 설계에 적용될 수 있고, 설계 및 특성 파악을 위한 재활용 가치로 역할을 할 수 있다. 또한 고효율 탈피복 분말화 일체형 장치의 설계기술은 PRIDE 시설 및 ESPF 시설에 활용될 수 있다.

4. 참고문헌

- [1] G. Uchiyama, M. Kitamura, K. Yamazaki, "Development of vol-oxidation process for tritium control in reprocessing," JAERI-M, 91-199, Nov., 1991.
- [2] K. Okada, "Separation method for a spent fuel rod", Japanese Patent No. 84140163, July 5, 1984.

국산 고연소도 사용후 핵연료의 HBS 고온 가열시험 특성(1)

김대호, 방제건, 임익성, 김선기, 양용식, 구양현
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
kdh@kacri.re.kr

1. 서 론

상용 경수로 UO_2 핵연료의 경우 35,000 MWd/MTU에서 gap closure가 시작되어 pellet-clad bonding이 시작된다. 이러한 접촉압력과 화학적 특성에 따라 연소도 50,000 MWd/MTU에 이르면 소결체 외곽에서 rim이 형성되고 핵분열생성물의 침착과 기계적 영향을 미치게 된다. 이러한 rim 영역의 고온 가열시험을 통하여 반응도사고나 LOCA 사고 등의 과도상태시 거동을 분석하였으며 미세조직을 관찰하였다. 국산 고연소도 사용후 UO_2 핵연료(울진 2호기 K23 고연소도 핵연료 (65,000 MWd/MTU.rod. local))의 1700℃ 고온 가열시험을 실시하여 결정립계와 결정립 내의 핵분열기체의 방출거동 및 미세조직의 거동변화를 분석하고 사고시 방출되는 메커니즘을 확인하였다.

2. 본 론

2.1 외곽부 고온 가열시험 조건

국산 고연소도 UO_2 사용후 핵연료의 외곽부(rim)영역의 1700℃ 가열시험을 통하여 온도에 따른 실시간 핵분열기체 방출거동을 분석하여 과도 조건에서의 고연소도 핵연료 특성자료 생산을 생산하였다. 1차 고온 가열시험은 온도에 따른 Kr-85의 방출거동을 확인하였다. 500℃, 800℃, 1000℃, 1200℃, 1500℃ 및 1700℃에서 각각 30분씩의 온도유지를 통하여 특정온도대에서 나타나는 핵분열기체의 방출거동을 확인하였으며, 2차 고온 가열시험은 시간에 따른 핵분열기체의 방출거동을 평가하기 위해 1700℃까지 연속적인 가열 조건에서 시험이 수행되었다.

1차 고온 가열시험은 160mg의 고형체 시편을 이용하고 승온조건은 분당 20℃/min씩 올려 각 특정 온도대에서 30분간 온도유지를 통해 1700℃까지 상승시켰다. 이때의 분위기는 헬륨을 150ml/min을 공급하였다. 2차 고온가열시험은 가열시험 조건은 약 120 mg의 고형체를 사용하였고 승온 조건은 분당 10℃/min씩 올려 특정 온도대가 없

이 연속으로 1700℃까지 상승시켰다. 이때의 분위기는 헬륨을 150ml/min을 공급하였다. 시험은 고연소도 핵연료의 안전성 시험을 위해 PIEF 9405 Cell에 설치 시험 중인 사용후 핵연료 고온가열시험장비(PIA)에서 시행되었다.

2.2 외곽부 고온 가열시험 결과

2.2.1 핵분열기체 Kr-85의 방출거동

국산 고연소도 사용후 UO_2 핵연료는 울진 2호기 K23 고연소도 핵연료로 B2620 위치의 국부 평균연소도가 65 MWd/kgU.rod. local로 외곽부시편의 경우 대략 130 MWd/kgU 정도의 연소도를 갖게 된다. 1차 고온가열 시험의 경우 시험결과 그림 1.과 같이 핵분열기체의 방출은 500℃, 800℃, 1000℃, 1200℃ 및 1500℃에서 각각 뚜렷한 방출거동을 보이나, 1500℃와 1700℃사이에서는 Kr-85의 방출은 미미하게 나타났다. 고연소도 핵연료 소결체의 외곽부이기는 하지만 10μm 내외의 결정립크기와 미소크기의 rim이 분포하고 있으며, 가열초기의 500℃에서 결정립경계의 Kr-85들이 방출되고 이후 800℃에서 가열에 의한 결정립표면에서의 Kr-85 방출 시작된다. 1000℃에서 1500℃까지 고온에 따른 결정립 표면과 얇은 층의 내면에서 고온에 의한 확산으로 Kr-85가 방출하는 거동을 보인다. 반면 1700℃에서는 Kr-85의 방출은 보이지 않았다.

2차 고온시험의 경우 1700℃까지 연속적으로 승온시킨 후 1700℃에서 약 10분씩 온도유지를 통하여 Kr-85의 시간에 따른 방출거동을 확인하였다. 2차 시험시편은 1차 시험시편에 비해 미세 크기의 rim 영역이 상대적으로 많이 분포하고 있었다. 그림 2.와 같이 가열초기의 450℃에서 시편의 표면에서 Kr-85 방출이 있었고, 약 900℃쯤에서 Kr-85의 반응이 시작되어 1200℃경에서 급격한 방출이 시작되었다. 이러한 Kr-85의 방출은 1350℃에서 약간 주춤하다가 1500℃에서 다시 급격하게 방출하여 1600℃에서 최대고점의 방출이 완료되어 이후 지속적인 감소를 보였다. 반면 1700℃에서는 Kr-85의 방출은 보이지 않는다.

시편의 외곽부의 특성상 전체 시편이 rim의 영역으로 구성되어 있지 않고 건전한 결정립이 존재하기 때문에 부위별 Kr-85의 특성을 면밀히 확인하는 것이 중요하다. rim의 경우 열적확산이 발생되지 않으며 결정립내에 pore의 압력이 높아지고 내부에 모여 밖으로의 방출을 제어하기 때문에 온도상승에 따라 Kr-85의 방출거동은 평탄한 거동을 보이지 않고 돌발적인 방출거동이 나타나는 것으로 보인다.

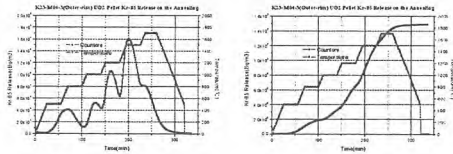


Fig. 1. 1st PIA experimental Kr-85 release behavior

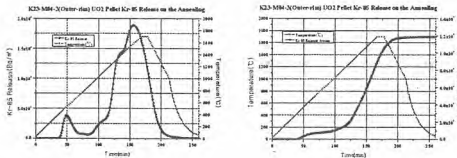


Fig. 2. 2nd PIA experimental Kr-85 release behavior

2.2.2 고온 가열시험후 미세조직 관찰

시편의 외곽부 특성상 전체 시편이 일반적인 결정립과 rim의 영역이 동시에 존재하고 있어 가열시험 후 SEM 시편 미세조직을 관찰결과 다양한 크기의 결정립이 분포하는 것을 확인하였다. 외곽부의 특성상 작은 결정립크기의 입자들이 가열에 의하여 상당부분 roundish하게 변형이 되었고 고온가열에 따른 내부에 있는 intragranular bubble들이 상당부분 커져 있는 상태이다. 입자가 작아지고 작아진 입자들의 표면적이 넓게 분포됨으로써 가열에 의한 핵분열기체의 방출량은 온도에 따라 급속하게 방출되는 것으로 판단된다. 외곽부에 존재한 rim영역부분은 가열에 의해 대부분 표면이 둥글게 변형되었지만 rim 내부로의 열적 확산은 일어나지 않은 것으로 관찰되었다. 이는 rim의 형성에 따라 pore의 높은 압력의 구조가 고온가열에 의해 변형되지 않는 것으로 판단된다.

1차 및 2차 고온 가열시험 후 미세조직 관찰결과 유사한 패턴의 조직변화를 알 수 있었다. 그림 3은 1차 고온가열시험 후 미세조직사진이며, 그림 4는 2차 고온가열시험 후 미세조직 사진이다.

미세조직에 아주 작은 미립자들은 핵분열에 의해 발생된 침전물로 EDS를 통해 핵분열생성물 중 주요감마핵종인 Ru이 포함되어 있는 것을 확인하였다.[1]

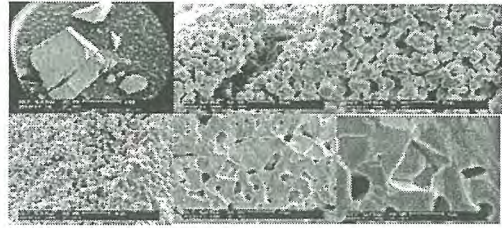


Fig. 3. Morphology after 1st PIA experiment

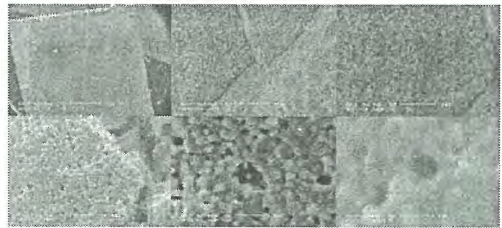


Fig. 4. Morphology after 2nd PIA experiment

3. 결 론

외곽부 소결체의 1700℃ 가열시험을 통하여 Kr-85의 온도에 따른 연속적인 방출거동은 명료하고 급격한 방출거동을 확인할 수 있었다. 외곽부의 특성상 rim이 존재하고 Kr-85의 방출 저항성으로 나타난다. rim과 같은 HBS의 조직에서 핵분열기체는 열적확산이 발생되지 않으며, rim의 안쪽pore에 모인 핵분열기체는 pore의 높은 압력에 의해 외부로의 방출을 제어하는 것으로 보인다. 이는 온도상승에 따라 UO₂ 기지 내에서의 확산계수가 틀러지게 되고, 핵분열기체 및 핵분열생성물의 위치변화를 갖게 된다. 미세조직의 관찰결과 가열에 의하여 상당부분 roundish하게 변형이 되었고 고온가열에 따른 내부에 있는 intragranular bubble들이 상당부분 커져 있는 상태이며 rim의 전형적인 미세조직을 확인하였다.

4. 참고문헌

- [1] 김대호 외., 고연소도 UO₂ 사용후 핵연료의 고온가열시험특성, 한국방사성폐기물학회 2007년 추계학술발표회.

MA 함유 SFR 금속연료 헬륨방출 모델링

이병운, 천진식, 김준환, 이찬복

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

boleee@kaeri.re.kr

1. 서론

소듐냉각고속로 (SFR)의 핵연료는 파이로프로세싱과 연계된 U-TRU-Zr 금속연료가 선정되어 개발되고 있다. 파이로프로세싱에서 공급된 TRU에는 MA(Minor Actinide)가 함유되어 있으며, 이 중에서 Am은 노내에서 He(헬륨) 기체를 방출하게 된다. 이와 같은 He 방출은 금속연료봉의 건전성에 큰 영향을 미칠 수 있다. 본 논문에서는 SFR용 MA 함유 U-TRU-Zr 금속연료에서 MA에 의해 발생하는 핵분열기체 방출 프로그램을 개발하고, 금속연료의 핵분열기체 방출 거동을 예측하였다.

2. MA 함유 SFR 금속연료 헬륨방출 모델개발

2.1 개요

MA에 의한 핵분열기체 방출 모델을 개발하기 위하여 미국 INL의 X501자료[1]를 분석한 결과, 핵분열기체방출 거동은 MA가 첨가되더라도 U-Pu-Zr과 전체적인 거동은 유사하지만, Am에 의한 He 방출을 고려하여야 하는 것으로 평가되었다. 이에 따라 MACSIS 코드[2]내에 MA 첨가에 의한 He방출을 모델링하고 부프로그램을 개발하였다.

2.2 MA에 의한 He 생성

기존의 핵연료성능평가 모델에서는 Am을 고려하지 않았기 때문에 MA에 의한 He 방출 프로그램을 설치하기 위하여, ^{241}Am 에 의한 He의 생성량을 고려하는 것이 필요하다. 데이터 (Table 1)에 의하면 ^{241}Am 1g당 165일마다 약 50ml의 He를 방출하므로 [1], 금속연료봉에 함유되는 ^{241}Am 의 양을 고려하여 He 생성량을 삽입하였다.

Table 1. X501 gas production and release

^{241}Am 연소시 He 생성량 (ml/g)	He 방출률 (%)	핵분열 생성가스 방출률 (%)
39-45	90	79

2.3 He 방출 모델링

MACSIS 코드내에 MA 첨가에 의한 He방출 효과를 모델링하고 부프로그램 HeRel을 설치하였다. (Fig. 1).

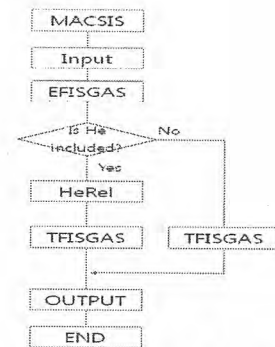


Fig. 1. Flow chart for He Release

결정입계 내부의 He 확산거동 및 기포생성/이동에 의한 방출모델에 대해서는 Booth[3]의 고전적 확산이론이 적용되었다. 핵연료 결정에 임의의 구를 가정하고 구 표면에 핵분열 생성물이 확산되어 나왔을 때 모두 방출한다는 가정에서 출발한 확산방정식을 사용하여 정상상태 핵분열 생성물 방출비를 계산하였다.

핵연료봉내 자유공간으로의 He 방출을 계산하기 위해서는 먼저, 결정입계에서의 핵분열생성 기체 원자들에 의해 형성되는 기포 생성/성장, 기체방출, 축적된 기포크기 분포도를 계산하고 여기서 입계면에서의 임계조건을 고려하여 He방출을 계산하였다.

본 모형에서는 금속연료의 반경방향 온도 구배는 100~200 °C로 낮아 대부분의 기포들의 합체 현상은 기포들의 자유이동에 의하여 충돌할 때 일어난다고 가정하였다. [4].

결정입에서 핵분열에 의해서 생성된 원자는 기체원자 자체의 확산 또는 기체기포의 이동에 의하여 결정입계로 도달하며, 주어진 시간구간에 결정입계에 도달되는 He기체원자들의 총 수는 다음

과 같이 세 가지 항의 합으로 산출된다.

$$TOTDIFHe(I) = C_g + G_r(1 - f_s) + G_g \quad (1)$$

여기서,

$C_g = f_r \times VFGHe(J) \times 6.025E23 / 22.4E3 \times VOL(I) / TVOL$, (축 및 반경 방향구간 J, I 에서 이전 구간까지 결정 입계에 도달되는 기체원자들의 수), f_r = 핵분열 생성기체원자 확산에 의한 방출율, $VFGHe(J)$ = 축 및 반경 방향구간 J, I 에서 방출된 He 부피(cc), $TVOL$ = 연료심의 J 축 방향구간에서의 부피(cc), $(1 - f_s)$ = 이전 구간까지 기체원자들의 수에 대한 결정입의 unswept 된 부피분율, $G_r = P_i \times G \times V_i$, 현재 시간구간동안에 기체확산에 의한 결정입계에 도달되는 기체원자들의 수, $P_i = I$ 반경환구간에서의 핵분열생성기체 생성율, G = 확산방정식으로부터 구해지는 방출분율, $V_i = I$ 반경환의 부피(cc).

식 (1)으로부터 산출된 결정입계에 도달되는 기체원자들의 총 수를 사용하여 결정입자 경계상에 다중크기 기포 분포를 구하고, 이후 단위 부피당 기포 평균수에서 주어진 i 기포 크기 범위를 산출한 후 입계면에서의 임계조건을 고려하여 He 방출율을 계산하였다.

2.4 He 및 핵분열가스 방출 계산

Fig. 2는 MACSIS 코드에 의해 계산된 at.% 연소도에 따른 핵분열기체 방출을 나타낸다. 고속로 연료심인 U-TRU-10Zr의 경우, 핵분열기체는 연소도 1-2%에서 급격한 방출율을 나타내며 약 10at%에서 79%의 방출율을 나타낸다.

또한 Fig. 2에 MACSIS 코드내에 설치된 HeRel에 의해 계산된 He 방출율을 나타내었다. X501에 의해 예측된 바와 같이 기존의 핵분열기체 방출율보다 높은 90%정도의 방출율을 나타내는 것으로 계산되어, 개발된 He 방출모델은 He 방출율을 잘 모사하는 것으로 평가되었다.

이는 다중 기포크기를 기존의 핵분열기체 방출 모델보다 약간 크게 조절한 결과이다. 향후 실험자료가 충분히 확보되면 다중기포 크기, 확산 계수 등의 핵분열방출에 영향을 미치는 인자들의 민감도 분석이 수행될 예정이다.

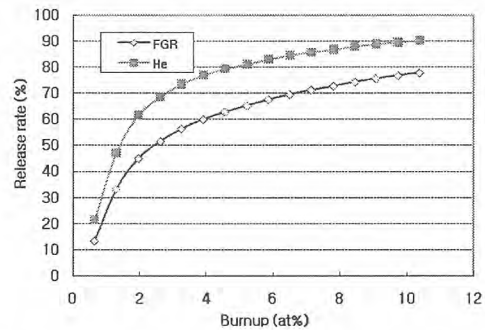


Fig. 2. Calculation of He Release and FG release rates

3. 결론

MA에 의한 핵분열기체 방출 모델을 개발하기 위하여 미국 INL의 X501자료를 분석한 결과, 핵분열기체방출 거동은 MA가 첨가되더라도 U-Pu-Zr과 전체적인 거동은 유사하지만, Am에 의한 He 방출을 고려하여야 하는 것으로 평가되었다. MACSIS에 HeRel 부프로그램을 설치하여 He 방출량을 계산하도록 하였다. He 기체 방출을 계산결과 MACSIS내에 설치된 HeRel 부프로그램은 He 방출을 실험자료를 유사하게 예측하는 것으로 평가되었다.

이와 같이 개발된 He 방출 모델을 활용하여, MA가 함유된 핵연료의 건전성에 영향을 미치는 설계인자를 평가할 예정이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발사업의 일환으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

- [1] M.K. MEYER, et al., Nuclear Applications In The New Millenium (AccAPP-ADTTA'01), Reno, Nevada, Nov 2001
- [2] W. Hwang, et al., Nucl. Tech. Vol.123, Aug. 1998
- [3] A.H. Booth, CRDC-721, 1957
- [4] W. Hwang, et al., KALIMER/FD100-WR-02/1999, July 1999

금속연료-피복관 상호반응 방지를 위한 Barrier 피복관 기술개발

김준환, 천진식, 이병운, 이찬복, 지승현*, 윤영수*
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 *연세대학교, 서울특별시 서대문구 성산로 262
 junhkim@kaeri.re.kr

1. 서론

소듐냉각고속로(Sodium-cooled Fast Reactor, 이하 SFR)는 고속중성자를 이용하여 핵분열을 일으키는 원자로로 경수로에서 발생한 사용 후 핵연료의 재활용이 가능하여 사용후 핵연료의 처분이 시급한 한국에서 차세대 원자로로 중요하게 고려하고 있는 원자로다. 금속연료는 높은 열전도도 및 핵확산 저항성, 냉각재인 소듐과의 우수한 양립성으로 인하여 SFR의 핵연료로 유력하게 고려되고 있다. 그러나 금속연료의 주요 성분인 우라늄과 플루토늄이 핵연료 피복재인 스테인리스강과 반응하여 원자로 가동 온도 (650°C 이상)에서 공융하여 피복관 두께가 얇아지는 현상이 발생하여 이것이 핵연료의 건전성을 약화시키는 원인으로 작용한다. 이러한 공융현상을 방지하고자 핵연료와 피복재간 상호반응 현상을 방지할 확산방지 Barrier를 핵연료와 피복관 사이에 적용하는 방안이 연구되었으며, 금속 박편(Metallic Foil) 및 물리적 진공증착법(Physical Vapor Deposition, 이하 PVD)을 이용한 타당성 연구 결과, Zr, Cr 및 V이 최적 Barrier 물질로 선정되었다[1,2]. 이에 선정된 최적 Barrier 물질을 피복관 내면에 적용하기 위한 방법 중 하나로 화학적 진공증착법(Chemical Vapor Deposition, 이하 CVD) 및 전해도금법(Electrochemical Plating)을 이용하여 Barrier 피복관 제조 기술을 개발하였다.

2. 실험 과정

2.1 전해도금 장치 구축

전해도금을 이용하여 tube 내면을 도금할 장치를 Fig. 1과 같이 제작하였다. Pb-Sn wire를 anode로 cathode인 tube 중앙에 위치시켜 tube 내면에 균일한 도금층이 형성되도록 하였다. 순환장치에 Sargent solution(250g/l CrO_3 , $2.5\text{g/l H}_2\text{SO}_4$)을 채운 후 유량을 조절할 수 있게 하였다. 순환장치에 solenoid valve를 장착하여 정/역 순환을 유도하

여 길이방향을 따라 tube 내 균일한 도금층이 형성되도록 제작하였다.

2.2 CVD 장치 구축

Tube 내면에 barrier 물질을 증착시킬 CVD 장치를 Fig. 2와 같이 제작하였다. Target 재료는 tetrakis zirconium ($\text{Zr}(\text{N}(\text{C}_2\text{H}_5)(\text{CH}_3))_4$)을 사용하여 최대 600°C 조건에서 Ar과 수소를 적정량 혼합한 기체를 carrier gas로 사용하였다.

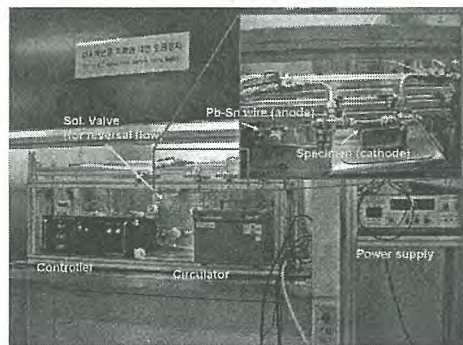
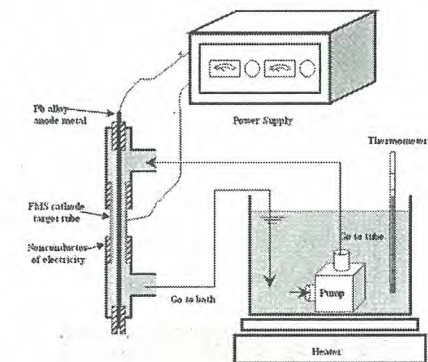


Fig. 1. Illustration of electroplating device for fabricating barrier at the inner surface of the tube.

3. 결과

3.1 Barrier 시제품 제조

Fig. 3은 전해도금 및 CVD를 이용하여 제조한

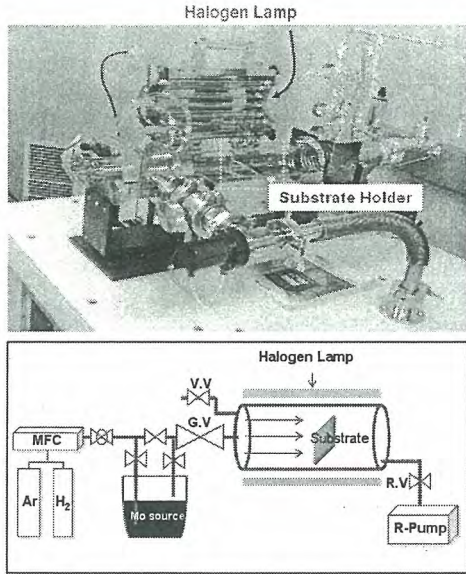


Fig. 2. Illustration of CVD device for fabricating barrier at the inner surface of the tube.

Barrier의 미세조직을 나타낸 그림이다. 전해도금 시편의 경우 Cr이 약 $20\mu\text{m}$ 두께로 tube 내면에 균일하게 발달함이 관찰되었으며 CVD 시편의 경우 Zr이 약 $0.3\mu\text{m}$ 두께로 시편 표면에 균일하게 발달함이 확인되었다.

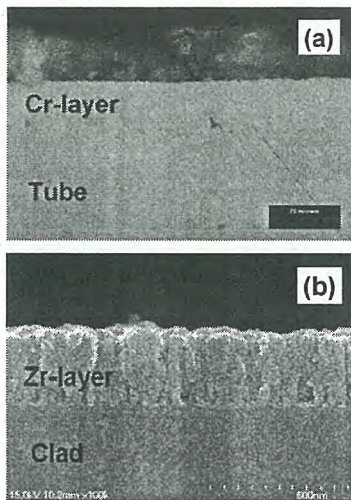


Fig. 3. Microstructure of the barrier coating on the clad surface (a) Cr electroplating, (b) Zr CVD

3.2 Barrier 피복관 성능평가

제작한 Barrier 피복재와 U-10Zr 금속연료에 대하여 800°C , 25시간 상호반응 시험 결과, Fig. 4와 같이 핵연료-피복재 간 상호반응층 형성을 억제하는 우수한 성능을 보였다.

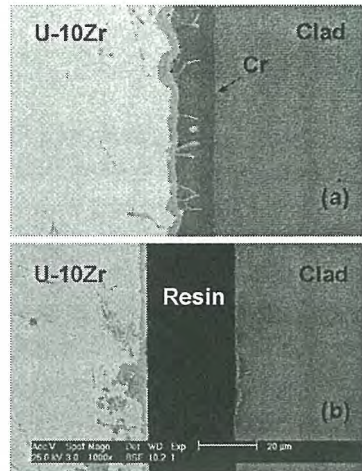


Fig. 4. Result of the diffusion couple test (a) Cr electroplating, (b) Zr CVD

4. 결론 및 향후 계획

금속연료-피복관 상호반응을 억제할 Barrier 피복관 제조기술을 개발하였다. 전해도금 및 CVD 기술을 이용하여 Cr과 Zr층을 tube 내면에 적용할 기술을 개발하고 있으며 성능평가 결과, 우수한 상호반응 저항성을 보였다. 향후 Barrier 층 최적화 및 Barrier 표면 개질 연구를 진행할 계획이다.

5. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발사업의 일환으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

6. 참고문헌

- [1] H. J. Ryu, et al., Journal of Nuclear Materials, 392, pp. 206-212, 2009
- [2] J. H. Kim, et al., Journal of Nuclear Materials, 394, pp. 144-150, 2009

방사성 환경 적응을 위한 원격 취급시스템

김기호, 이종광, 이효직, 김성현, 김창희, 박병석, 김호동

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

khkim5@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료와 같은 고방사성 물질을 취급하는 특수시험시설 또는 아르곤 가스로 채워진 특수시험시설은 셀 가동 중에 셀 안쪽으로 작업자의 직접 접근이 극히 제한되거나 불가능하기 때문에 셀 안에서 수행되는 모든 작업은 원격 취급수단을 이용하여 이루어진다. 본 논문에서는 한국원자력연구원 DFDF(DUPIC Fuel Demonstration Facility)와 ACPF(Advanced spent fuel Conditioning Process Facility)에서 활용하고 있는 주요 원격 취급시스템과 PRIDE(Pyroprocess integrated Inactive Demonstration facility) 용도로 개발 중인 원격 취급시스템에 대해서 논한다.

2. 본론

2.1 DFDF 원격 취급시스템

DFDF는 한국원자력연구원 조사제시험시설 M6 핫셀로서 사용후핵연료를 재가공하여 DUPIC핵연료를 제조하는 시설이다. M6핫셀은 두께가 약 1m인 고하중 콘크리트로 만들어진 직사각형의 밀폐된 공간으로서 전면에는 10개의 차폐창이 설치되어 있다. 각 차폐창 양 측면에 2쌍의 기계식 주/종 조작기(master-slave manipulator)와 원격 청소로봇 등의 원격 취급시스템이 설치되어 있다. 기계식 주/종 조작기(상용화 제품)는 셀 안쪽에 설치된 핵연료 제조공정장치의 운전 및 유지보수 작업을 수행하는 유일한 원격 취급수단으로서, 핫셀 외부에서 조작자(operator)는 주 조작기(핫셀 외측에 설치)를 통하여 종 조작기(핫셀 내측에 설치)를 조작하면서 필요한 작업을 원격으로 수행한다. 원격 청소로봇은 핵연료 제조·공정 과정에서 발생하여 핫셀 바닥에 산재해 있는 사용후핵연료 분진 및 오염분진 폐기물을 진공 흡입식으로 제거하는 원격 청소장치이다(Fig. 1).

또한, 개발이 완료되어 필요시 활용 예정인 원격 닦기로봇 시스템과 자율주행 원격 청소로봇이 있다[1]. 원격 닦기로봇 시스템은 진공흡입식 원격

청소로봇으로 핫셀 바닥을 청소한 후에 남아 있는 미세 분진과 얼룩 또는 고착되어 있는 오염폐기물을 제거할 수 있는 장치로서, 닦기 마스터(핫셀 바깥에 설치)와 닦기 슬레이브(핫셀 안쪽에 설치)로 구성되어 있다. 조작자는 핫셀 바깥에서 닦기 마스터를 통하여 물걸레와 유사한 기능을 가진 특수공구를 장착한 닦기 슬레이브를 제어하면서 닦기 슬레이브가 오염된 바닥면을 닦을 때 발생하는 닦기 힘을 느끼면서 제염작업을 수행할 수 있어 조작자에게 현장감을 부여할 수 있다. 자율주행 원격 청소로봇은 M6핫셀 위에 위치한 격리실에서 활용할 예정이며, 초음파 센서를 이용하여 격리실 안에서 스스로 장애물을 감지하면서 자율적으로 바닥 청소작업을 수행할 수 있는 진공흡입식 오염제거 시스템이다.

2.2 ACPF 원격 취급시스템

ACPF는 사용후핵연료 차세대관리 종합공정을 실험하기 위한 시설로서 조사제시험시설 지하에 위치해 있다[2]. ACPF의 전면에는 5개의 차폐창이 설치되어 있으며, 각 차폐창 양 측면에 2쌍의 기계식 주/종 조작기(상용화 제품)가 설치되어 있다. 또한 셀 안쪽의 천정에는 길이 방향으로 가로지를 수 있는 천정이동 외팔 서보조작기가 설치되어 있다(Fig. 2). 셀 안쪽에서의 모든 공정작업은 기계식 주/종 조작기와 전동식 외팔 서보조작기의 협업에 의하여 이루어진다. 외팔 서보조작기는 전동식 주/종 조작기로서 기계식 주/종 조작기에 비해서 취급하중(15kgf)이 크며, 힘반영 기능이 있어 조작자에게 육체적, 정신적 피로도를 줄일 수 있는 장점이 있다.

2.3 PRIDE 원격 취급시스템

PRIDE는 아르곤 분위기에서 파이로 일관공정을 실험하기 시설로서 한국원자력연구원 변환시설 내에 건설 중에 있다. PRIDE의 전면에는 17개의 창이 설치되며, 각 창의 양 측면에는 2쌍의 대용량 기밀형 기계식 주/종 조작기(상용화 제품)가 설치된다. PRIDE에서는 사용후핵연료를 취급하지

않으므로 사용후핵연료를 취급하는 DFDF와 ACPF(취급예정)와 달리 벽의 두께(208mm)와 재료(스테인리스 스틸)가 다르다. 따라서 PRIDE에 설치되는 기계식 주/종 조작기는 PRIDE 벽에 적합하게 설계·제작된다. 또한 셀 안쪽의 천정에는 길이 방향으로 가로지를 수 있는 천정이동 힘반영 양팔 서보조작기[3]를 설치하여 기계식 조작기와 협업으로 파이프 공정장치의 운전 및 유지보수 작업을 원격으로 수행할 수 있도록 계획되어 있다. 현재 천정이동 힘반영 양팔 서보조작기 프로타입(외팔 취급하중 : 50kgf)(Fig. 3)은 개발이 완료되어 신뢰성 시험 중에 있다.

3. 결론

사용후핵연료를 취급하는 특수시험시설에서 원격 취급장치의 사용은 필수적이며, 원격 취급대상물과 원격 취급장치는 서로 밀접한 상관관계를 갖는다. 원격 작업의 생산성은 원격 취급장치를 다루는 조작자의 숙련도에 많이 의존하므로, 가능한 조작자의 역할을 줄이고, 원격 취급장치의 사용을 최소화할 수 있도록 취급대상물의 자동 및 반자동화를 꾀할 필요가 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 정부가 지원하는 한국과학기술재단의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] K. Kim, et al., "Remote decontamination systems for a highly radioactive environment application", Proc. of 10th Int'l Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management, 2005.
- [2] 박병석 외, "사용후핵연료 원격 취급 실증장치 개발", KAERI/RR-2754/2006, 2007.
- [3] K. Kim, et al., "Development of remote handling systems for use in the PRIDE facility", Proc. of the 8th Korea-China Joint Workshop on Nuclear Waste Management and Fast Reactor Technologies, pp.58-65, 2005.

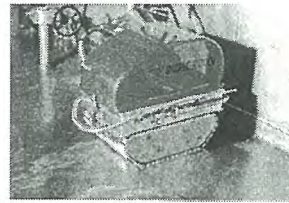


Fig. 1. Remote cleaning robot

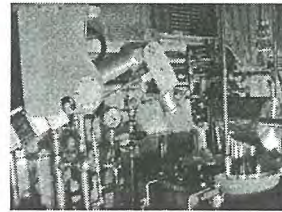


Fig. 2. Bridge Transported Servo-manipulator

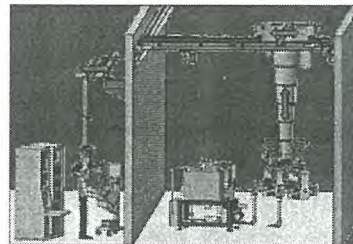


Fig. 3. Schematic of Bridge Transported Dual arm Servo-manipulator

모듈식 원격 다발 용접장치 설계 및 성능시험

김수성, 이도연, 박근일, 이정원

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045, 305-353

sskim7@kaeri.re.kr

1. 서론

본 연구는 고방사성 차폐 핫셀 내에서 듀픽 핵연료 다발 원격 제조를 위하여 모듈식 용접장치 설계 및 성능 시험에 관한 것으로, 듀픽 기술의 완성 측면에서 궁극적으로 제조된 핵연료를 이용한 다발 원격 제조기술 개발은 핵연료의 안전성과 성능 향상을 고려할 때 반드시 필요하다. 또한 모듈식 다발 용접장치는 핫셀 내에서 핵연료 다발을 제조하는데 사용되며, 이때 다발조립은 연료봉을 조립치구에 고정한 다음 원격으로 상단용접의 헤드부로 이송하면서 연료봉이 장착된 상단 end-plate의 A면을 장착한 후 상단용접이 이루어지고, 마지막 공정인 하단 end-plate를 장착한 후 180°회전하여 B면의 하단용접이 수행된다.⁽¹⁾ 이와 같이 모든 작업공정이 원격으로 이루어지기 때문에 원격 조작기(manipulator)로 취급이 용이하도록 특수구조로 된 다발 용접장치의 설계가 필요하다. 따라서 본 연구에서는 모듈식 다발제조장치의 기본설계 자료를 제공하였으며, 실제로 핫셀 내에서 다발조립 및 end-plate용접 시 원격 조작기를 이용한 작업조건을 선정하여 모의실험을 수행하면서 이에 따른 다발 용접장치의 원격성 및 운용성을 비교 분석하였다.

2. 본론

2.1 상·하단 다발용접장치 설계 및 분석

Fig. 1은 모듈식 원격 다발 용접장치의 기본 구성을 보여주고 있다. 기존의 집합체 연구용⁽²⁾으로 개발된 장비에 비해 조작과 크기 면에서 간결하게 설계하였고, 특히 핫셀 내에서 다발조립 및 원격운용이 개선되어 모듈화 개념으로 설계하였다. 여기서 Fig. 2는 모듈식 원격 다발용접장치의 설계 개념도를 보여주고 있으며, 또한 Fig. 3은 원격 다발 용접장치의 part별 분해, 교체 및 조립될 수 있는 모의형상으로 보여주고 있다. 모듈식

상하단 다발 용접장치의 조립설계는 기본적으로 원격 제조공정의 완벽을 기하기 위하여 전체 부품설계의 단순화 및 보수 운용 면에서 핫셀 내의 원격 조작기 작업이 용이하게 이루어져야 한다. 상단 용접헤드 part의 설계내용은 x-y 테이블에 부착된 서보모터의 직접 전달하는 방식에서 belt를 이용한 구동 방식과 x-y 테이블의 ball screw 사이즈를 교체하여 개선된 것이며, 기존보다 충분한 유효공간을 확보하였다. Mock-up시험용 상하단의 메인 프레임 part에서 개선된 설계 내용은 핫셀 내에 loop door를 이용하여 설치할 경우 메인 프레임을 4단 조립 형태로 구성하였으며, 여기서 메인 프레임의 크기는 직경 450mm이며, 각각의 부품은 상단헤드 조립부, 집합판 공급이송 조립부 및 밀판(bottom plate) 조립부로 핫셀 내에서 분리 및 결합이 가능하도록 설계하였다.

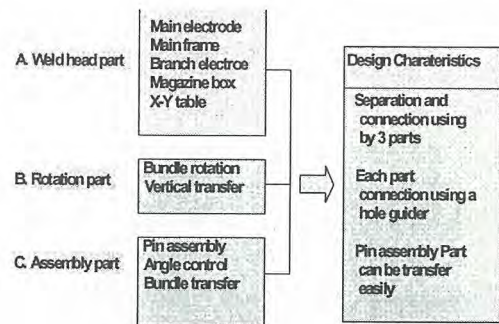


Fig.1 원격 다발용접장치의 기본 구성

2.2 원격 다발용접장치 성능시험 및 분석

모듈식 다발 용접장치의 모델링 설계는 PTC사의 Pro/E Wildfire 3.0 프로그램을 이용하여 3차원 형상화 작업을 진행하였으며, 전체적으로 3차원 형상을 구성하여 조립장치의 분해 및 조립 구조 형상을 분석하였다. Fig 4는 완성된 원격 다발 용접장치의 사진을 보여주며, mock-up 실험실을 이용하여 주요 핵심부분인 single 전극헤드와 가지전극의 조립 과정, 교체 방법의 성능시험이 수

행되었고, 작업의 원격성과 공정순서에 따른 부분 요소 그리고 운용성 분석 등이 검토되었다.

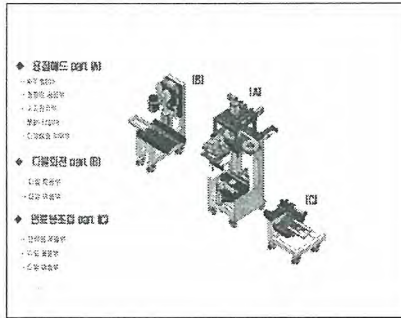


Fig. 2. 원격 다발 용접장치 설계 구성

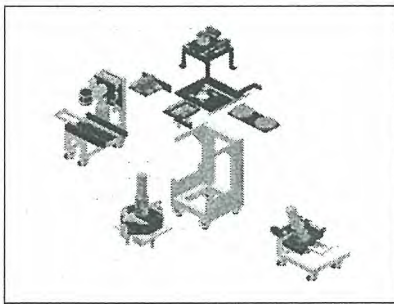
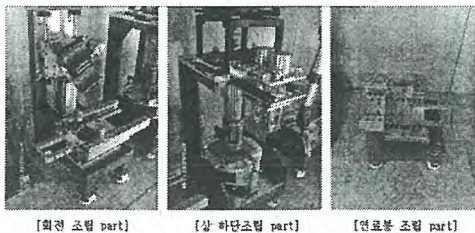


Fig. 3. 원격 용접장치 분해/결합 모형도



[회전 조립 part] [상 하단조립 part] [원료봉 조립 part]

Fig. 4. 완성된 원격 상·하단 용접장치 사진

3. 결론

본 연구에서는 듀피 핵연료 다발 제조를 위한 원격 용접장치 설계 및 모듈식 조립방법의 모의 시험을 통하여 원격 작업과정을 상세하게 여러 공정순서 및 mock-up시험 등을 수행하였다. 향후 IMEF 핫셀 내에서 원격 다발 용접장치의 제작 시 유효한 설계 자료가 제시될 것으로 판단된다.

4. 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업에서 사용후핵연료 이용 재가공핵심기술개발과제의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

- [1] Trunt P.T., 1983, "CANDU Fuel Performance," Power Reactor Experience, AECL-MISE-250-3 rev.1
- [2] GE Canada Nuclear Products, 1995, "Bundle Assembly Welder Manual," KNFC Equipment Data Book, April.

파이로 공정 운전과 유지보수 절차서 검증을 위한 디지털 목업 설계 및 제작

박희성, 김성현, 박병석, 김기호, 김호동
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
parkhs@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료를 취급하는 파이로프로세스 시설(이후부터 “파이로 시설”이라 호칭 함)은 작업자가 접근할 수 없는 핫셀에서 공정이 이루어지기 때문에 모든 공정이 원격으로 이루어지게 된다. 고방사성 물질을 원격으로 처리하는 환경에서 안전성을 확보하기 위해서는 원격 운전 및 유지보수와 관련한 절차서가 갖추어져야 한다. 공정장치의 운전 및 유지보수 작업 시 원격 조작기와 원격 취급 장비들의 거동을 사전에 파악하여 정비상의 문제점을 사전에 제거해야 하기 때문이다. 원격 운전 및 유지보수 절차서를 생산하기 위해서는 다양한 운전 유형과 사고들에 대한 전산모사가 필요한데, 이를 물리적인 목업에서 해결한다는 것은 현실적으로 불가능하기 때문에 컴퓨터 그래픽스와 가상현실을 응용한 디지털 목업과 시뮬레이션 기술로 그 해결책을 찾을 수 있다. 힘반향 장치인 햅틱을 이용한 기술로는 미국 Boeing 사의 VPS(Voxmap PointShell) 기술과 프랑스 CEA LIST의 가상의 물입 환경에서 기차의 유지보수 작업을 실시간으로 모사할 수 있는 시뮬레이터[1], 그리고 일본 기계 기술 연구소[2]의 유지보수 작업을 원격으로 처리하기 위해 인터넷과 로봇틱스 기술을 이용한 연구 등에서 찾아볼 수 있다. 본 보고서에서는 물리적 목업이 아닌 디지털 목업 환경에서 3D 가상공학과 햅틱 기술을 이용하여 파이로 공정의 전산모사와 원격 취급성 및 운전성을 분석할 수 있고, 원격 조작기의 원격 취급성/접근성 등을 사전에 검증할 수 있는 원격 시뮬레이터 설계 및 제작 기술을 소개한다.

2. 본론

2.1 시뮬레이터 시스템 아키텍처

원격 시뮬레이터의 주 목적은 파이로 시설/공정의 개발 기간 단축 및 비용 절감을 위해 개념설

계 단계에서 공정장치의 원격 취급/운전/유지보수성 및 배치 분석 등을 통해 파이로 시설 및 장치의 설계를 검증하고, 전산모사 결과를 분석하며, 공학적 해석 결과와 공정 데이터 등을 가시화 시키는데 있다. 이러한 복잡한 모듈들로 구성된 시뮬레이터를 구축하기 위해서 통합된 환경에서의 시뮬레이터 아키텍처를 설계하였다. 시뮬레이터는 시설의 3차원 가상환경을 모델링하는 모듈, 가상 환경에서 작업자와 매니플레이터를 이용한 상호작용 기반 원격작업을 분석하는 모듈, 이산사건(discrete events)시뮬레이션을 기반으로 한 시설/공정 운전 분석 모듈, 그리고 시뮬레이션 분석 및 공학적 해석 결과와 공정 데이터를 가시화하는 모듈로 구성된다. 본 아키텍처는 공학규모 파이로 일괄공정 cold 연구시설(PRIDE)뿐만 아니라 공학규모 시설(ESPF)에 사용될 수 있도록 모듈들을 추가할 계획이다.

2.2 힘반향 상호작용 기술

기존의 시뮬레이터에서 사용되어 오던 그래픽 렌더링은 시각 기반의 일방적 시뮬레이터로서 작업자가 프로그램에서 지정한 기능만 수행할 수 있는데 반해 본 원격 시뮬레이터는 작업자와 상호작용이 가능하여 작업 내용이 실시간으로 그래픽에 반영되며, 반응 결과를 시각 및 촉각으로 알려 주는 상호작용 기반 시뮬레이터라고 할 수 있다. 그래픽 렌더링은 시설 및 공정장치/유지보수 장치의 그래픽 데이터를 가지고 있는 Scene graph를 기준으로 그래픽을 그려 모니터에 출력하고, 햅틱 렌더링은 힘반향 정보를 계산하여 햅틱 입력 장치로 출력하여 정보를 알려 주게 된다. 인간의 시각과 관련된 그래픽 렌더링의 경우 30Hz이상이면 충분하지만 촉각의 경우 1kHz이상의 대역폭을 가져야 인간이 차이를 감지할 수 없기 때문에 이와 같은 대역폭을 만족시켜야 한다.

2.3 디지털 목업 설계 및 제작

파이로 시설 및 공정장치들을 디지털 목업 환경에서 공정장치들의 배치와 원격 접근성 등을 3차원으로 검증하기 위해서는 가장 먼저 시설과 공정장치 그리고 도구들의 2차원 설계 도면을 3차원으로 모델링이 제작되어야 한다. 시뮬레이터에서 디지털 목업을 설계하고 제작하기 위해서는 통일된 형태의 CAD 데이터가 절대적으로 필요하다. 파이로 시설과 공정장치 그리고 원격 취급 장비들에 대한 디지털 목업은 파이로 시설의 설계도면, 유지보수 장비의 설계도면, 공학규모 공정장치의 개념 설계도면 및 3D 모델링 표준안을 토대로 설계/제작된다. 시뮬레이터에서의 디지털 목업 제작은 가장 먼저 SolidWork로 제작된 3D CAD 데이터를 VRML 형식으로 변환 시킨 뒤 시뮬레이터에서 *.fac(파이로 시설)와 *.mec(파이로 공정장치) 파일로 불러들인다. 그림 1은 PRIDE(PyRoprocess Integrated inactive Demonstration)의 설계 도면과 이를 바탕으로 제작된 디지털 목업을 보여주고 있다

3. 결론

파이로 디지털 목업 내에 배치된 공정장치들의 운전 및 유지보수 작업 시 원격 조작기의 접근성을 실험하기 위해 디지털 목업이 성공적으로 완료되었다. 이 실험을 통해 매니플레이터 운전자와 입력장치(햅틱)간 상호작용을 실시간으로 실행할 수 있는 기초 기술을 확립하게 되었다. 이 기술이 도입됨으로써 본 시뮬레이터는 앞으로 작업자의 훈련 시스템으로도 활용이 가능하다는 것을 시사하고 있다. 따라서 본 시뮬레이터는 운전자의 조작기 훈련도구가 될 수 있도록 시뮬레이션 기능을 더 추가시켜야 할 것이며, 공정장치 유지보수와 관련한 시뮬레이션을 수행할 수 있도록 공학적 기능을 더 확장시킬 계획이다.

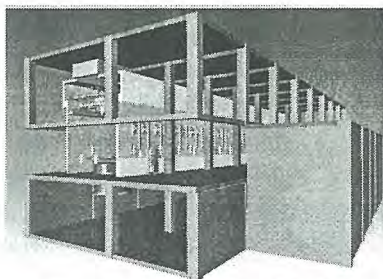


Fig. 1. PRIDE 디지털 목업 시설

4. 감사의 글

본 연구는 정부가 지원하는 한국과학기술재단의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] Caroline Chabal, et al., "EMM-3D: A Virtual Environment for Evaluating Maintainability from CAD Models", Laval Virtual 2005.
- [2] Nak young Chong, et al., "Development of a Multi-telerobot System for Remote Collaboration", Proceedings of the 2000 IEEE/RSJ, Int. Conf. on Intelligent Robots and Systems.

사용후핵연료 특성 데이터 분석 프로그램 개발

조동건, 국동학, 최희주

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 1045

dkcho@kaeri.re.kr

1. 서론

선진 핵연료주기 고준위폐기물 처분시스템 설계에 필요한 방사선원향을 도출하기 위해서는 국내에서 발생한 사용후핵연료의 현황과 향후 발생할 사용후핵연료의 현황을 타당하게 분석해 내야 한다. 각 원전에서 발생하는 사용후핵연료는 장전시 핵연료의 초기농축도 및 방출연소가 다르고, 노심 설계 특성이 다르므로 악티나이드 핵종 같은 경우는 핵연료가 원자로 내에서 조사됨에 따라 생성되는 특성도 다르다. 즉, 2008년말 기준으로 11,129개의 경수로 사용후핵연료가 방출되었지만, 같은 방사선원향을 같은 사용후핵연료는 없다. 이처럼 다양한 사용후핵연료에 대해 각각의 사용후핵연료 선원향을 고려하여 처분시스템 설계에 반영하는 것은 사실상 불가능한 일이며, 따라서, 핵임계 해석과 같이 중대사고와 관련될 수 있는 경우에는 보수적 측면에서의 극한 값(bounding value)을 사용하고 열해석과 같이 성능과 관련된 경우에는 설계자가 공학적 판단(engineering judgement) 하에 평균값을 기준으로 타당한 값을 선정하여 설계에 적용한다. 이와 같은 기준 값을 결정하기 위해서는 국내발생 사용후핵연료의 농축도, 연소이력 등의 특성 데이터를 모두 수집하여 분석해야 하며 이는 많은 인력 및 시간을 필요로 한다. 따라서 본 연구에서는 가압경수로 사용후핵연료에 대해 신뢰도를 일관되게 유지하면서도 실시간으로 데이터를 분석할 수 있는 전용 프로그램을 개발하였다.

2. 본론

2.1 특성데이터 자료수집

가압경수로 원전인 영광, 고리, 울진, 원전에서 발생한 사용후핵연료 자료를 2008년도 말 기준으로 수집하여 데이터베이스에 입력하였다. 입력된 자료는 핵연료집합체 고유 번호, 핵연료타입, 집합체 배열, 초기농축도, 초기 우라늄장전량, 핵연료의 최초 장전주기, 핵연료 최초 장전일, 방출연

소도, 최종방출일, 핵연료내 총 연소 거주기간, 피복재 종류 등이다. 2008년 말 기준으로 총 11,129개의 사용후핵연료가 발생한 상태이며, 이에 대한 약 20만개의 정보를 데이터베이스화하였다.

2.2 분석전용 프로그램 개발

개발된 프로그램은 각 호기 및 부지에서 발생한 사용후핵연료에 대해 데이터베이스 자료를 분석하여 핵연료 제원, 발생량, 농축도, 냉각시간, 방출연소도, 초기농축도와 방출연소도와의 관계 등의 정보를 발생 시간에 따라 분석할 수 있다. 그림 1은 사용후핵연료 현황을 분석하기 위한 입출력창을 나타낸다. 입력창의 왼쪽 영역에서는 검색범주(category)를 지정할 수 있으며, 오른쪽 영역에서는 결과 값을 볼 수 있다. 분석하고자 하는 원자로 호기를 선택할 수 있으며, 연고자 하는 결과 값에서 초기농축도와 연소도 간격을 지정할 수 있다. 또한 'Set Conditions' 체크 박스 안에서는 초기농축도, 방출연소도, 방출일에 대해 분석하고자 하는 상한 값 및 하한값을 지정할 수 있다. 예를 들어 고리 1호기에서 최근 10년 동안 발생한 사용후핵연료 중에서 30~50GWD/tU에 해당하는 것을 대상으로 농축도 별 물량을 산출하고 싶다면, 'Select Unit'에서는 고리 1호기만을 체크하고, 'Set Conditions'를 체크한 후 'Discharge Date'란에는 0~10을 입력하고, Discharge Burnup란에 30,000 ~ 50,000을 입력한 후, 'Get Data' 버튼을 클릭하면 해당하는 데이터만을 분석하여 농축도별 물량을 산출할 수 있다. 농축도별 물량을 산출할 때, 농축도 간격을 default 값이 0.5보다 좀 더 세밀하게 연고 싶다면 Enrichment Step에서 원하는 숫자를 지정하여 원하는 결과를 얻을 수 있다. 입력창을 보면 원자로 호기, 초기 농축도, 방출연소도, 냉각기간을 사용자가 임의로 지정할 수 있으므로 상당히 자유도가 높고 광범위하게 결과 값을 도출할 수 있다. 화면에서 오른쪽 Result 영역에 사용자가 연고자 하는 현황분석 결과가 표기되며, 그림에서 보는

바와 같이 오른쪽 창에 기본적으로 그래프로 표기되며, 이 그래프는 인쇄출력(Print 버튼), 파일로 저장(Save 버튼), 클립보로 저장(Copy 버튼), 데이터 파일로 저장(Data 버튼) 될 수 있다. 특히 데이터 파일로 저장(Save 버튼) 기능은 텍스트 형식의 데이터를 직접 얻을 수 있으므로 실제 값을 확인하는데 유용하며, 다른 그래퍼(grapher) 프로그램을 이용하여 그래프를 생성하는데 유용하게 사용할 수 있다. 데이터 파일로 저장(Data 버튼) 기능을 실행하면 텍스트 형식의 파일을 직접 확인할 수도 있다.

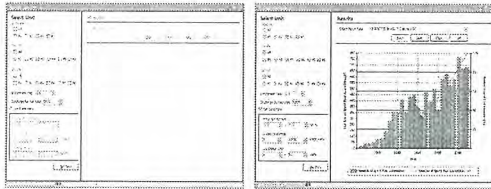


Fig. 1. 사용후핵연료 입/출력창 화면

결과 값의 추출 범위는 표 1에서 보는 바와 같이, 일곱 개의 분류목록(category)을 지정하여 데이터 분석을 수행할 수 있으며, 결과 값 역시 일곱 개의 분류목록으로 도출할 수 있다.

Table 1. 결과값 도출을 위한 조합목록 및 결과목록

분류1	분류2	분류3	분류4	분류5	분류6	분류7	출력 목록
부처 (고리, 영광, 울진)	초기 (고리1~4, 영광1~6, 울진1~6)	농축도 (0~5%)	방출연소 도 (0~70 CWD/tU)	냉각기간 (0~50년)	물량 (절량, 다발)	연도 (강전일, 방출일)	핵연료 타입 핵연료 배열 발생량 초기농축도 방출연소도 냉각시간 초기농축도 vs. 방출연소도 vs. 발생량

그림 2~5는 이 프로그램을 이용하여 분석한 사용후핵연료 발생량, 연소도분포, 초기농축도 분포, 각 핵연료 설계안별 물량분포, 초기농축도 vs. 방출연소도 vs. 물량과의 관계 등을 보여준다. 모든 출력값은 절량기준 또는 다발 수 기준으로 추출될 수 있다.

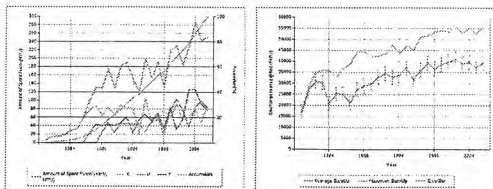


Fig. 2. 사용후핵연료 발생량 및 연소도 분포

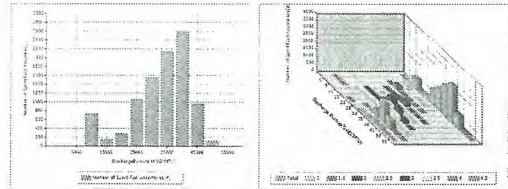


Fig. 3. 연소도 vs. 초기농축도 vs. 물량 분포

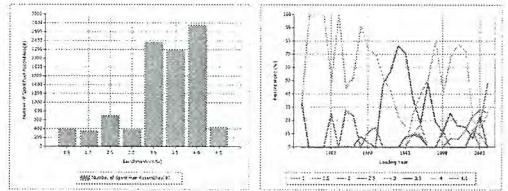


Fig. 4. 초기농축도 분포

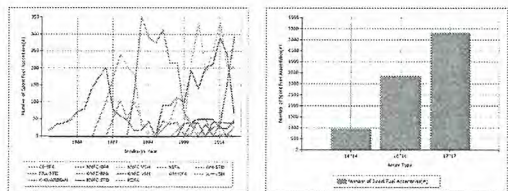


Fig. 5. 핵연료제원별 물량 분포

3. 결론

과거 이 프로그램이 개발되기 전까지는 사용후 핵연료에 대한 특성치 분포를 얻어내기까지는 기존에 사용후핵연료 정보가 존재하더라도 추가적인 사용후핵연료 정보 입력부터 결과를 얻어내기까지는 약 2~4주 정도의 시간이 소요되었다. 이 프로그램이 개발됨으로써 1년에 한번만 사용후핵연료 특성 정보를 업데이트하면, 언제라도 원하는 값을 실시간으로 뽑아 낼 수 있고, 프로그램이 검증되었으므로 데이터만 정확히 입력되면 결과 값에 실수가 존재할 확률이 없으므로 신뢰도 또한 상당히 향상되었다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 원자력연구개발사업으로 수행되었음을 알려드립니다.

5. 참고문헌

- [1] 핵설계보고서, 한전원자력연료.
- [2] 사용후핵연료 특성자료, (주)한국수력원자력

제5분과

방사선 안전 및 환경 (Oral)

빈 면

고리 원자력발전소 주변 환경방사선(능) 장기 추세 및 축적경향 평가

이갑복, 정양근, 양양희, 김주열*

한국전력공사 전력연구원, 대전시 유성구 문지로 65

*(주)미래와도전, 서울시 관악구 신림동 산56-1 서울대학교 135동 306호

gblee@kepco.co.kr

1. 서론

고리1호기가 가동되기 시작한 1978년 이후 원자력발전소 주변에서 측정된 환경방사선(능)의 자료가 축적되고 있다. 장기적으로 축적된 환경감시 자료를 토대로 원전 주변에서의 장기적인 방사선(능) 경향을 분석하여 원전의 환경영향을 평가하고 향후 발전적인 환경감시 프로그램 개선방안을 모색할 수 있을 것이다.

고리 2호기 PSR 심사시 규제기관에 의해 '가동 전부터 최근까지의 환경방사선(능) 자료를 이용하여 원전 주변에서의 방사성물질의 축적경향을 평가'할 것이 안전성 개선사항으로 제기되었다.

고리 1호기 가동 전인 1974년부터 측정된 환경방사선(능) 자료를 전산 DB화하고, 장기적인 변화 추이를 분석할 수 있을 정도로 최소검출가능농도 이상의 방사선(능)이 측정되는 핵종에 대해 장기적인 경향에 대한 추세분석을 수행하였다[1].

추세분석 결과는 '증가', '감소' 또는 '추세 없음'으로 나타나는데, '감소' 및 '추세 없음'일 경우에는 해당 방사성 핵종에 대한 장기적 축적경향이 나타나지 않는다고 쉽게 판단할 수 있을 것이다. 그러나 '증가' 추세로 분석되는 경우에는 방사능 준위의 증가원인이 원전 가동에 의한 것인지, 자연적인 변동에 의한 것인지를 구별하여야 하는데, 이를 판단할 수 있는 과학적 근거가 충분치 않은 경우가 있다. 이런 경우에는 우리나라 전국토 환경방사선 조사결과, 교육과학기술부의 배출관리기준, 그리고 측정된 농도로 추정한 선량평가 결과 등과 비교하여 환경영향에 대한 유의성을 검토하였다.

2. 본론

2.1 분석방법 및 항목

비모수 분석(nonparametric test)은 환경감시 자료와 같이 모집단의 분포를 모르거나, 모집단이 정규분포가 아닌 경우에 적합하다. 환경방사선

(능)의 장기적인 추세분석을 위해 일반화된 방법론이 정립되어 있지 않아, 표층수 수질의 연도별 추이, 지하수 수위, 전기전도도 및 수온의 경향 분석, 수문 및 기상 시계열 자료 분석, 장기 기후 변화 분석, 지구물리 장기경향 분석 등 다양한 분야에 널리 쓰이고 있는[2,3] Mann-Kendall 검정법을 이용하여 추세분석을 수행하였다.

Mann-Kendall 검정법은 이전 값과 이후 값의 증감을 부호로 표시하여 부호의 개수의 합의 분포를 파악하여 추세를 평가하는 방법으로서, 관측값을 직접 사용하는 것이 아니라 관측값의 서열 혹은 변동 기울기 등을 이용하기 때문에 결측값과 이상값을 적절히 다룰 수 있고 그 영향에도 민감하지 않다.

장기적 추세분석은 환경감시 결과, 최소검출가능농도 이상의 농도가 지속적으로 검출되는 핵종에 대해 수행하였다. 우유, 농산물, 지표생물, 계란 등의 시료에서는 대부분의 핵종이 최소검출가능농도 미만을 나타내고 있어 추세분석에서 제외하였다.

또한 공간감마선량율(ERMS 및 휴대용계측기)과 같이 단기적인 변동을 감시하기 위한 항목은 제외하였다.

2.2 분석결과

공간집적선량(TLD)

체외방사선으로 인한 외부 적산피폭선량을 추정하기 위해 감시하고 있으며, 모든 지점에서 감소 추세 혹은 추세 없음을 나타내고 있다.

공기중 방사능(^{7}Be 및 전베타)

2발소내의 ^{7}Be 를 제외하고 모든 지점에서 증가 추세를 보이고 있으나, 발전소 주변에서 측정된 ^{7}Be 의 농도는 대부분 10 mBq/m^3 미만으로, 전국토 최근 5년간 평상변동 범위인 $0.639 \sim 16.2 \text{ mBq/m}^3$ 에 비하여 상대적으로 낮은 준위이다. 상기의 10 mBq/m^3 의 ^{7}Be 농도는 교과부고시의 배출관리기준인 $1 \times 10^6 \text{ mBq/m}^3$ 의 0.1%에도 한참 못

미치는 준위이다.

전베타의 경우도 ^7Be 추세 분석결과와 비슷하게 나타나고 있다. 발전소 주변의 전베타 농도는 2 mBq/m^3 로, 전국토 최근 5년간 연평균 변동 범위인 $2.1 \sim 11.5 \text{ mBq/m}^3$ 에 비해 매우 낮은 준위를 보이고 있다.

지표수, 식수, 지하수(삼중수소)

모든 지점에서 추세 없음을 보이고 있다.

빗물(삼중수소 및 전베타)

1발전소 내에서 증가추세를 보였고, 그 외 지점에서는 감소 혹은 추세 없음을 보이고 있다. 증가추세로 분석된 1발전소내의 삼중수소 농도는 2000년도에 일시적으로 300 Bq/l 이상의 값을 보인 것을 제외하고는 최근 5년 이내에는 100 Bq/l 이내의 값을 보이고 있다.

증가추세인 1발전소의 최근의 삼중수소 농도값 100 Bq/l 는 교육과학기술부고시 배수중의 배출관리기준인 $40,000 \text{ Bq/l}$ 의 1%에도 미치지 못하는 매우 낮은 준위이며, 이를 선량으로 환산하면 성인기준으로 일반인에 대한 선량제한치 1 mSv/yr 의 0.1% 정도에 해당되는 약 $1.3 \times 10^{-3} \text{ mSv/yr}$ 로 추정된다.

하천토양, 표층토양, 해수, 해저퇴적물(전베타, ^{137}Cs , ^{90}Sr)

모든 지점에서 감소추세 또는 추세없음을 나타내고 있다.

해조류(^{131}I 및 ^{137}Cs)

1,2호기 배수구에서 ^{131}I 이, 3,4호기 배수구에서 ^{137}Cs 이 증가 추세를 보이는 것으로 분석되었다.

^{131}I 의 검출농도는 부지 내부 및 인근에서는 약 1 Bq/kg-fresh 또는 그 이하를 보이고 있으나, 상대적으로 부지에서 멀리 떨어진 송정에서는 약 3 Bq/kg-fresh 까지 검출되고 있어, 부지 내부 및 인근에서의 방사능 검출이 원전의 영향이라고 단정하기 어려운 측면이 있다.

상기의 ^{131}I 1 Bq/kg-fresh 농도의 해조류를 5세 유아가 연간 섭취하였을 경우에 연간 유효선량이 $1.06 \times 10^{-3} \text{ mSv/yr}$ 로 추정되며, 이는 일반인에 대한 선량제한치 1 mSv/yr 의 0.1% 정도에 해당되는 매우 낮은 준위이다.

^{137}Cs 은 다른 지점과 비슷한 농도인 0.15

Bq/kg-fresh 이내에서의 증가 추세이고, 2007년도를 제외하고는 우리나라 해양의 최근 3년간 변동 범위인 $<0.016 \sim 0.11 \text{ Bq/kg-fresh}$ 와 유사한 값을 보여주고 있다.

농산물, 지표생물, 우유, 계란

일시적인 사건에 의한 검출을 제외하고 방사능이 지속적으로 검출되지 않아 장기적인 축적경향이 없는 것으로 판단되어 추세분석을 수행하지 않았다.

3. 결론

결론적으로 일부 시료가 일부지점에서 통계적으로 유효한 증가 추세를 보이는 것으로 분석되었으나, 전국토 연평균 변동범위 내, 교과부 배출관리기준의 1% 미만의 농도, 그리고 감소 또는 추세없음을 보이는 지역과 유사한 농도를 보여주고 있다. 따라서 전반적으로 방사선(능)이 주변주민의 방사선 안전을 저해할 수 있을 정도의 축적경향이 나타나지 않는 것으로 평가되었다.

비록 고리원전 주변에서 환경방사선(능)이 장기적으로 주민에게 방사선학적인 영향을 줄 정도의 축적경향은 보이지 않는 것으로 분석되었으나, 빗물 중 삼중수소 농도와 같이 주변 일반 환경에서의 농도에 비해 다소 높은 상태에서 장기적인 증가추세를 보이는 환경시료에 대해서는 본 분석결과를 고려하여 환경감시 계획을 개선할 예정이다.

4. 참고문헌

- [1] 한국수력원자력(주), “고리 원자력발전소 주변 환경방사선(능) 장기경향 분석,” 전력연구원, (2008).
- [2] 이진용, 이명재, 이재명, 안경환, 원종호, 문상호, 조민조, “국가 지하수관측소 지하수위, 전기전도도 및 수온자료에 대한 모수적 및 비모수적 변동 경향성 분석,” 한국지하수토양환경학회지, 11(2), pp. 56-67, (2006).
- [3] Coen, M.C., E. Weingartner, S. Nyeki, J. Cozic, S. Henning, B. Verheggen, R. Gehrig, U. Baltensperger, “Long-term trend analysis of aerosol variables at the high-alpine site Jungfraujoch,” *Journal of Geophysical Research*, Vol. 112, (2007).

고온연소로와 액체섬광계수기를 이용한 해조류중의 요오드-129 방사능 분석

강문자, 김희령, 조영현, 정근호, 이완로, 이창우, 최근식

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

munkang@kaeri.re.kr

1. 서론

요오드-129는 핵분열물질로 원자력발전이나 핵연료 재처리 과정에서 요오드-125, 요오드-131과 함께 발생하는 주요 핵종이다. 원자력발전소에서 발생하는 중·저준위 방사성폐기물을 처분할 때 요오드는 테크네튬과 함께 유동성이 매우 큰 핵종으로 알려져 처분장 부지 주변 방사선환경 모니터링에 포함되어야 하는 핵종이다. 처분장 주변 지하수와 해조류가 요오드-129 방사능 분석 대상이 되고 있다. 요오드-129는 반감기가 1.57×10^7 년으로 매우 길며 39.6 keV 이하의 낮은 감마선이나 X-선 영역의 에너지와 154keV의 베타선 에너지를 가지고 있다. 그러므로 다른 핵종들과 함께 존재하거나 분석시 LOD를 낮추기 위해서는 요오드-129를 화학적 방법으로 순수 분리해야 한다. 본 연구에서는 해조류 시료중의 요오드-129를 고온에서 연소 및 산화시켜 화학적으로 분리하고 분리된 요오드-129를 액체섬광계수기를 측정하는 방법을 설명하고자 한다.

2. 본론

2.1 고온연소 조건

해조류의 연소조건을 설정하기 위해 고온연소로의 온도를 상온에서 800 °C까지 3 °C/min 또는 5 °C/min 조건으로 상승시키면서 100 °C 간격으로 포집기를 교체하고 온도 간격별로 포집 용액에 포집되는 요오드-129 방사능 농도를 측정하였다. 연소 및 포집 조건에 대한 실험은 국내에서 채취한 미역을 건조하여 분쇄한 시료를 사용하였고 알고 있는 농도의 요오드-129 추적자 (약 100 Bq/g)를 건조한 미역 시료에 혼합하여 사용하였다. 이들 결과로부터 상온에서 700 °C까지는 포집된 방사능이 시료의 초기 방사능의 4%로 거의 포집되지 않았음을 알 수 있었고 700 ~ 800 °C까지 30%가, 800 °C에서 5시간 유지되는 나머지 66%가 포집되었다. 해조류중 요오드-129 방사능 분석에 사용된 고온연소로와 포집기의 도식은 Fig. 1.과 같다.

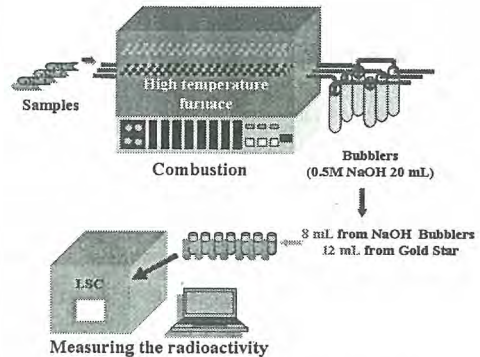


Fig. 1. 요오드-129 방사능 분석을 위한 고온연소로와 포집 장치

2.2 포집 용액 조건

고온에서 연소 및 산화된 해조류의 요오드는 해 요오드분자(I_2) 형태로 존재할 가능성이 높으며 이를 포집하기 위해 포집용액으로 NaOH를 사용하였다. 포집용액은 0.5 M NaOH와 1 M NaOH, 2 M NaOH 용액을 시험하였는데, 0.5 M NaOH와 1 M NaOH용액에서는 시료중의 요오드-129의 95%가 포집되었고 2 M NaOH 용액을 사용한 경우는 58%가 포집되었다. 그리고 포집된 요오드분자를 요오드 음이온으로 고정시키기 위해 포집 용액에는 환원제를 첨가하였는데 이때 환원제는 sodium sulfite를 사용하였고 환원제는 포집용액 10 ml당 0.15 ~ 0.2 g이 적절하였다. 해조류중에는 안정 요오드 원소가 다량 함유되어 있어 포집 용액의 요오드 원소의 포집율이 매우 중요하다. 이런 이유로 요오드 포집 용액의 부피를 변화시키면서 요오드-129의 포집율을 살펴봤는데 포집 용액을 20 ml 사용한 경우는 포집율 94%이며 40 ml 사용한 경우 96%로 큰 차이가 없음을 알 수 있었다. 그리고 포집기를 연달아 두 개 설치한 경우도 첫 번째 포집기에서 94%가 포집되었고 두 번째 포집기에서 1% 이하가 포집되었다.

2.3 방해 핵종의 분리

해조류중의 요오드 포집을 위해 사용된 NaOH 용액은 시료의 고온연소 후 생성되는 요오드 분자 뿐만 아니라 이산화탄소도 함께 포집할 수 있다. 해조류의 경우 H-3과 C-14 방사능을 분석해보면 H-3은 MDA 이하의 값이 얻어지지만 C-14의 경우 미량 존재한다. 포집용액에 포함된 CO₂를 분리하기 위해 최종적으로 얻어진 포집용액에 BaCl₂ 용액을 첨가하여 탄산이온을 제거하고 윗물에 남은 요오드 음이온만으로 계측용 시료를 제조하였다.

2.4 액체섬광계수법

액체섬광계수기를 이용한 요오드-129 방사능 계측은 high energy 영역에서 채널 70 ~ 500 범위에서 하였다. 액체섬광계수기의 효율은 정확한 농도의 요오드-129 추적자 14 Bq 정도에 NaOH용액의 부피를 3 ~ 10 ml 변화시켜 섬광정도를 달리하여 교정용 시료 8개를 제조하였다. 교정용 시료를 같은 조건에서 계측하여 알고 있는 요오드-129 추적자의 농도로부터 효율을 계산한다. 교정용 시료로부터 얻은 섬광정도 (SQPE)와 효율에 대한 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 이때 얻어진 섬광정도와 효율과의 상관관계식은 $y = -0.0008351x^2 + 1.4850x - 576.89$ ($R^2=0.9931$) 이었다.

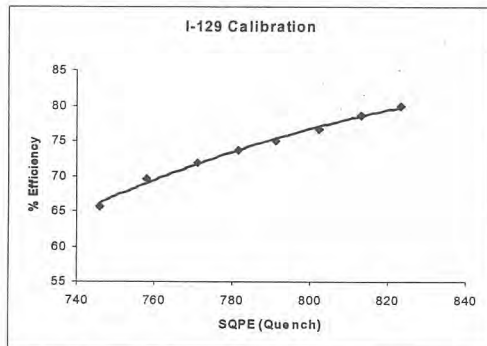


Fig. 2. 요오드-129에 대한 섬광정도에 따른 계측 효율

2.5 방사능 농도와 MDA의 계산

해조류 시료를 고온연소로를 이용하여 연소 및 산화시키고 포집용액에 포집한 후 액체섬광계수기를 이용하여 계측한 후 다음의 식으로 방사능 농도를 계산한다.

포집용기에 포집된 요오드-129의 방사능 농도

A_B (Bq/g)은

$$A_B = \frac{C-B}{60} \times \frac{100}{E} \times \frac{1}{m} \quad \text{..... (1)}$$

여기서 C는 시료의 count rate, B는 바탕시료의 count rate, E는 액체섬광계수기의 계측효율, m은 계측에 사용된 포집용액의 무게이다.

시료중 요오드-129 방사능 농도 A_s (Bq/g)은

$$A_s = A_B \times \left(\frac{m_f - m_t}{m_s} \right) \times \frac{100}{R} \quad \text{..... (2)}$$

여기서 m_t 는 연소후 포집용액의 최종무게, m_t 는 연소전 포집용액의 무게, m_s 는 시료무게, R은 회수율이다.

요오드-129 방사능 계측시 MDA(Minimum Detectable Activity) (Bq/g)은 다음 식으로 계산한다.

$$MDA = \frac{2.71 + 4.65 \times \sqrt{B + T_B}}{T_B \times \frac{E}{100} \times \frac{R}{100} \times \left(\frac{m_s}{m_f - m_t} \right) \times m} \quad \text{.... (3)}$$

2.6 미역 시료중의 요오드-129 방사능 분석

국내에서 채취한 미역 3종류를 건조한 후 분쇄하여 시료로 준비한다. 건조한 무게로 7.5 g 고온연소로 연소시켜 미역에 포함된 요오드-129를 측정하였다. 같은 시료에 대해 요오드-129 추적자를 spiking하여 분석한 결과 회수율은 91 ~ 97 % 사이 값이었고 연소후 LOI 는 시료 종류에 따라 19 ~ 36 % 사이의 값이었다. 국내산 미역중의 요오드-129 측정값은 모두 MDA이하의 값이었고 이때 MDA는 0.6 Bq/kg-fresh로 계산되었다.

3. 결론

해조류중의 요오드-129는 분석이 어려운 핵종이었으나 고온연소로를 이용하여 연소 및 산화시키고 NaOH 용액으로 포집하여 액체섬광계수기를 이용하여 분석하는 방법을 확립하였다. 이 방법은 원자력발전소나 방사성폐기물 부지 주변에서 채취되는 해조류 시료의 분석에 적용가능하다.

4. 참고문헌

- [1] X, Hou 외, Analytica Chimica Acta, 632 (2009) 181-196
- [2] J.A. Suarez 외, Nucl. Instr. Meth. A 369 (1996) 407-410

경주 처분장의 중·저준위 방사성폐기물 인수검사설비 구성 및 운영

임석남, 김생기, 정기진

한국방사성폐기물관리공단, 경기도 용인시 기흥구 중동 848-2

snlim@krmc.or.kr

1. 서론

원전 등에서 인수한 중·저준위 방사성폐기물을 최종적으로 처분하기 전에 경주 처분장에서 인수 방폐물의 인수기준 만족여부를 확인한다. 인수 방폐물은 인수기준에 따라 포장되어 있어 파괴적으로 분석하기에는 비용과 종사자 피폭측면에서 사실상 수행하기 어렵다. 따라서 한국방사성폐기물관리공단은 비파괴적 검사기술, 원격제어 기술 및 데이터 자동화를 설계 개념으로 하는 인수검사설비를 2010년 하반기부터 운영할 계획이다. 인수 방사성폐기물은 포장물의 특성이 다양하기 때문에 인수검사시설을 구성 및 운영하기 위하여 많은 고려와 노력이 요구된다.

인수검사는 전수검사와 표본검사로 구분된다. 전수검사는 모든 방폐물에 대하여 실시하는 검사로 외관 건전성, 중량, 표면 방사선량률로 구성되고 표본검사는 표면오염도, 채움률, 유리수, 핵종농도 및 압축강도로 구성된다.

모든 측정된 인수검사자료는 자동으로 전송되어 데이터베이스 파일에 저장하게 된다.

경주 처분장은 1년에 약 13,000 드럼의 방폐물을 처분할 계획이다. 이러한 연간 처분량을 고려하여 인수검사설비의 검사속도가 결정된다. 전수검사는 드럼 당 8분, 표본검사는 드럼 당 120분이 소요된다. 표본 검사는 전수검사 16 드럼 당 1 드럼이 실시된다.

2. 인수검사설비 구성 및 운영계획

2.1. 인수검사설비 구성

인수검사설비는 규격 포장물(200리터/320리터 철제 드럼)과 비규격 포장물(콘크리트 용기 등) 인수검사설비로 나누어 배치되고 이들은 다시 전수검사 지역과 표본검사 지역으로 구성된다.

인수검사설비는 크게 인수검사장비, 바코드 장치, 컨베이어, 크레인, 운반대차, X-ray 차폐실 및 주체어실로 구성된다. 인수검사장비는 외관건전성검사기, 표면방사선량률 측정기, 표면오염도 측정기, 중량측정기, 핵종농도분석기, X-ray 검사기 및 압축강도 측정기로 구성된다. X-ray 검사기는 유리수, 채움률 등을 검사한다.

2.2. 인수검사설비 운영

2.2.1. 규격 포장물 검사설비 운영

전수검사설비는 다음과 같이 운영된다. 규격 포장물은 운반용기에 담겨져 인수검사실에 도착한다. 운반용기는 운반대차를 이용하여 인수검사실로 옮긴 후 크레인을 이용하여 뚜껑을 개방한다. 크레인은 운반용기 내의 포장물을 인양한다. 포장물이 크레인에 의해 들려 있는 동안 크레

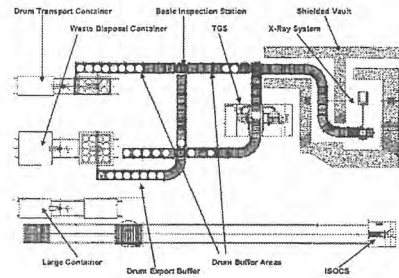


Fig. 1. 인수검사설비 구성도

인과 연결 설치된 중량측정기로 포장물의 중량을 측정한다. 그리고 CCTV 카메라로 포장물의 하부에 대하여 외관건전성검사를 실시한다. 외관건전성검사가 종료되면 포장물은 컨베이어에 올려진다.

포장물이 컨베이어에 올려지면 포장물에 바코드를 부착한다. 바코드가 부착된 포장물은 컨베이어 상의 분석대기지역으로 이동되며 이 공정이 반복되어 총 8개 포장물이 분석대기지역에 위치하게 된다.

포장물은 순서대로 회전탁자로 이동하고 회전탁자가 회전되면서 바코드를 읽는다. 포장물의 외관건전성검사는 CCTV 카메라로 실시한다. CCTV 카메라는 포장물이 회전하는 동안 포장물의 상부와 측면을 검사한다. 외관건전성검사 프로그램은 CCTV 카메라로 촬영된 이미지를 처리하고 표준 이미지와의 차이를 이용하여 포장물의 결함을 확인한다.

표면감마방사선량률은 외관검사를 하는 동안 3개의 방사선량 감시기로 실시한다. 방사선량감시기의 하나는 상부를 하나는 하부를 하나는 측면을 측정한다. 전수검사가 완료된 포장물은 처분용기에 넣거나 표본검사 대기지역으로 이동한다. 전수검사 포장물 중에서 인수검사기준을 충족하지 못하는 포장물은 포장물의 회수대기지역으로 이동한다. 첫 번째 표본검사는 포장물의 표면오염도측정이다.

원격 조작기는 포장물의 표면을 스미어 천으로 훑쳐낸다. 원격 조작기는 스미어 천을 오염도 측정기에 올려놓는다. 오염도 측정이 완료되면 원격 조작기는 스미어 천을 폐기물 수집용기에 넣는다. 포장물은 이제 엑스레이 검사실로 이동하여 엑스레이 검사를 받는다. 엑스레이 검사 이미지는 1cm 간격으로 판독자에 의해 검토되어 포장물중의 빈 공간과 유리수 존재 여부를 확인한다. 유리수의 확인은 2개의 DR(Digital Radiography) 이미지를 이용한다. 이미지 하나는 포장물이 정상적인 상태로 위치시켜 측정하고 다른 하나는 포장물을 기울인 상태에서 측정한다. 이 두 개의 이미지를 이용하면 유리수의 움직임을 찾아 낼 수 있어

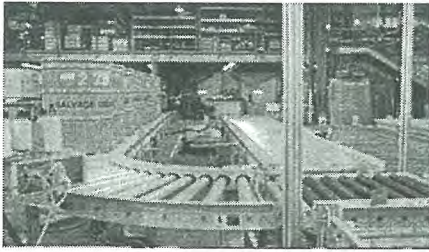


Fig. 2. 포장물 회수대지역(오른쪽)

빈공간과 유리수를 구별할 수 있다.

포장물은 핵중량도분석기로 이동되고 TGS (Tomographic Gamma Scanner) 또는 SGS (Segmented Gamma Scanning) 모드를 이용하여 핵중량도분석을 하게 된다. 전송선원을 이용하여 포장물의 밀도지도도를 만든다. 이 밀도지도도는 고화체에 의한 포장물 내의 감마방출 감쇄상수를 교정하는데 사용된다. 핵중량도 분석기는 고해상도 감마검출기를 기반으로 하며 포장물의 밀도와 표면 선량률에 따라 콜리메이터의 개도가 결정된다. 동위원소 전송선원은 감마선 질량 감쇄를 결정하는데 사용된다. TGS 모드에서 한번은 전송선원 없이 한번은 전송선원과 함께 방사능 세기를 측정함으로써 감마 방사선 방출지도와 상관관계를 이루고 있는 질량 감쇄 이미지 지도를 생성하는데 이용한다. 이 두 가지의 상관관계 정보는 정확한 포장물의 방사능량을 구하는데 이용된다. 고화체의 밀도가 1.5 g/cc 이상일 경우 핵중량도분석기는 자동으로 SGS 모드로 바뀐다. SGS는 여러 층으로 나누어 측정된 각 층에 대한 평균 방사능을 결정한다.

포장물은 포장물의 압축강도 측정기로 이동하게 된다. 콘크리트 또는 철재 표면의 기계적 충격은 저 주파수 압축 파동 (20~ 80 kHz)을 생성하게 된다.

저 주파수 압축 파동은 물질을 통하여 전파된다. 이러한 압축 파동의 파장은 모래, 자갈 등의 혼합재, 공기방울, 미세균열 등의 콘크리트내의 자연적인 비균질 지역의 지름 보다 긴 50mm ~ 2,000mm의 길이를 가진다. 따라서 균질한 탄성체와 거의 같이 콘크리트를 통하여 전달하게 된다. 이러한 구조물 내의 파장의 반사는 진동을 일으킨다. 그 결과로 생성되는 포장물 표면의 변위가 가속도계에 의해 기록된다. 가속도계는 변위에 비례하는 전압을 생성한다. 그 결과로써 발생하는 전압 대 시간 신호는 디지털 신호화 되어 컴퓨터의 저장장치에 전송된다. 저장된 신호는 수학적으로 진폭 대 주파수의 스펙트럼으로 변형된다. 파동 형태와 스펙트럼을 컴퓨터 스크린 상에 표시하면 스펙트럼 내의 피크로 나타나는 주파수들은 구조물 내의 압축 파동의 다양한 반응과 관련되어 있다. 포장물은 처분용기에 포장하기 전에 바코드 회전탁자에서 다시 바코드를 붙이게 된다.

2.2.2 비규격 포장물 검사설비 운영

비규격 포장물은 레도위의 대차위에 놓이게 된다. 비규격 포장물은 전수검사지역으로 이동되어 중량과 육안검사를 받는다. CCTV 카메라라가 포장물이 회전하는 동안 포장물의 상부와 측면을 검사하고 자동적으로 손상부위를 찾아낸다.

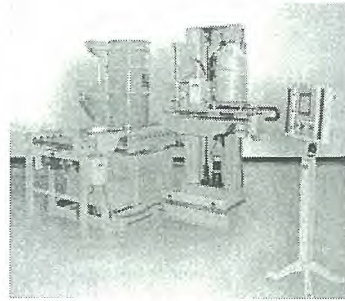


Fig. 3. 방사성핵종분석장치

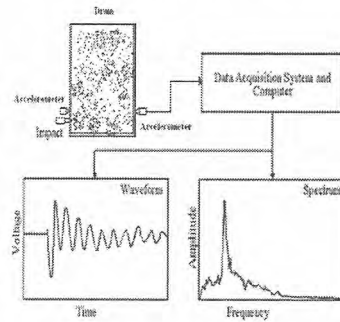


Fig. 4. 콘크리트 압축강도 측정 원리도

포장물이 회전하는 동안 포장물 상부, 측면 및 하부의 표면 감마 방사선량률이 측정된다. 표면검사를 실시할 포장물은 표면 검사 지역으로 이동된다.

감마분석기술을 기반으로 하는 ISOCs(In Situ Object Counting System)의 핵중량분석기가 포장물의 핵중량도를 분석한다. ISOCs는 고정형 콜리메이터와 고해상도 감마검출기를 사용한다. 포장물은 표면 방사선량률에 따라 1.7 ~ 4.7m 의 어느 곳에 위치하게 된다. 추가적으로 높은 방사능 농도를 가지는 포장물의 핵중량도 분석을 위하여 검출기가 측정하기에 적절한 준위의 방사선이 입사되도록 세기를 조절하는 자동 콜리메이터를 갖추고 있다.

포장물은 다음에 표면오염측정 위치로 이동한다. 표면오염검사는 자동 스메어에 의하여 오염도를 측정한다. 비규격 포장물은 바코드를 새로 붙이게 된다.

3. 결론

경주 처분장에 설치, 운영되는 중·저준위 방사성폐기물 특성 평가 설비는 종합적인 비파괴 기술을 적용하고 종사자의 출입을 필요로 하지 않도록 원격 자동제어 되도록 설계되어 종사자의 피폭을 최소화 할 수 있고 종사자의 안전을 증가시킬 수 있다. 또한 인수검사설비 운영과정에서 발생하는 2차 방사성폐기물의 발생을 최소화 할 수 있다.

그리고 방폐물 특성평가에 소요되는 시간과 비용을 줄일 수 있다. 자동자료처리시스템은 자료의 보관 기간 동안 자료의 품질과 완결성을 유지할 수 있다. 그리고 필요한 자료는 필요한 시기에 신뢰도 있게 접근하여 이용할 수 있다.

방사성동위원소 생산시설이 주변 환경에 미치는 영향 평가

최근식, 박두원, 김희령, 강문자, 이완로, 이창우, 정근호, 조영현, 최상도, 박효국

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

gschoi@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서 운영하는 방사성동위원소 생산시설(RIPF)에서는 연간 1,000 Ci 정도의 방사성옥소(^{131}I)를 취급한다. 환경에서 인공핵종인 ^{131}I 이 검출될 시 방사성동위원소 시설에서 방출된 것으로 인식하는 경우가 많다. ^{131}I 은 진단 치료용의 사용 증가로 하수처리장 등을 통해 하천으로 유입되어 환경에서도 검출되고 있다. 이 논문에서는 방사성동위원소 생산시설(RIPF)이 주변 환경에 미치는 영향을 파악하기 위해 연구원 부지 주변을 거쳐 갑천으로 유입되는 동화울과 갑천의 환경시료(하천토, 지표수, 수초, 물고기)에 대해 ^{131}I 농도를 12개월(2008.8~2009.7) 동안 10회에 걸쳐 조사하였다.

2. 본론

2.1 환경시료의 채취

환경시료는 덕진소류지에서 출발해 갑천으로 유입되는 동화울 수계(水系)중 연구원 정문앞과 동화교, 갑천에서는 대전하수처리장 배수구, 동화울과 합류되는 용신교에서 하천토, 수초, 지표수를 채취하였다. 비교 시료는 하수처리장 상류에 있는 원촌교에서 채취하였으며 시료채취 지점은 그림 1과 같다. 물고기의 경우는 갑천과 공주 지역의 저수지에서 낚시로 포획했다. 갑천에서는 하수처리장 하류에서 누치 2마리(185 g~210 g), 붕어 7마리(355 g~495 g), 잉어 2마리(1,855 g~2,355 g)를 포획하였고, 저수지에서는 붕어 3마리(255 g~395 g), 잉어 1마리(1,025 g), 향어 2마리(720 g~975 g)를 포획했다.

2.2 시료 전처리

하천토의 시료는 Stainless steel tray 에 담아 Drying oven 에서 완전히 건조시켜 분쇄하여 1 mm의 Sieve 를 이용하여 미세한 가루로 만든다. 수초는 건조기에서 완전히 건조시켜 분쇄기로 미세하게 분쇄하였다. 지표수는 20 L 정도의 시료를

증발 농축하여 1 L 되게 한다. 물고기의 경우는 종류별로 한 마리씩 분쇄기를 이용하여 미세하게 분쇄하였다.

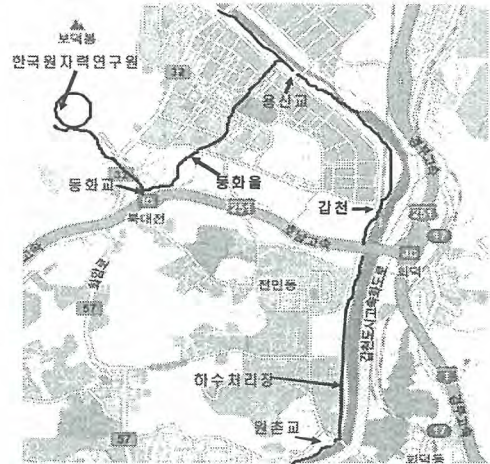


Fig. 1. Sampling points

2.3 방사성옥소(^{131}I) 분석

전 처리된 모든 시료의 ^{131}I 방사능 분석은 규격화된 용기에 담아 Gamma-spectrometer (HPGe detector with MCA, ORTEC Co.)로 측정 하였으며 시료별 ^{131}I 농도는 표 1과 표 2에 나타내었다.

2.3.1 하천토중의 ^{131}I 농도

연구원정문과 동화교에서는 10회 모두 ^{131}I 이 검출되지 않았다. 하수처리장 배수구와 동화울과 합류하는 지점의 용신교에서는 8회 ^{131}I 이 검출되었다. 하수처리장 배수구의 최대 농도는 10.1 Bq/kg, 용신교는 4.7 Bq/kg 이었다. 비교지점인 하수처리장 상류의 원촌교에서는 두 차례 ^{131}I 이 미량 검출(1.53 Bq/kg, 3.00 Bq/kg)되었다.

2.3.2 수초중의 ^{131}I 농도

하수처리장 배수구 앞에서 채취된 수초중의 ^{131}I 농도는 최저 27.9 Bq/kg, 최대 627.6 Bq/kg 이,

용신교에서는 최저 1.6 Bq/kg, 최대 69.9 Bq/kg 이 검출되었다. 연구원 정문 앞과 동화교에서는 미량이지만 7차례 검출되었다.(평균 2.2 Bq/kg, 4.6 Bq/kg) 비교지점인 원촌교에서는 10회 모두 검출되었다.(평균 3.9 Bq/kg)

2.3.3 지표수중의 ^{131}I 농도

지표수의 경우도 연구원정문과 동화교에서 10회 모두 검출되지 않았다. 하수처리장 배수구와 동화울과 합류한 지점의 용신교에서는 10회 모두 ^{131}I 이 검출되었다. 하수처리장 배수구의 최대 농도는 3.21 Bq/L, 용신교는 1.28 Bq/L 이었다. 비교지점인 원촌교에서는 검출되지 않았다.

Table 1. ^{131}I Concentration of sediment, water grass, surface water

	^{131}I 농도(Bq/kg-dry, Bq/L)		
	하천토(평균)	수초(평균)	지표수(평균)
연구원정문	<MDA	<MDA~5.6(2.2)	<MDA
동화교	<MDA	<MDA~18.7(4.6)	<MDA
원촌교	<MDA~3.0(2.27)	1.1~14.4(3.9)	<MDA
하수처리장	0.43~10.1(6.09)	27.9~627.6(282)	0.34~3.21(1.07)
용신교	<MDA~4.7(2.16)	1.6~69.9(26.2)	0.07~1.28(0.52)

2.3.4 물고기중의 ^{131}I 농도

갑천에서 포획한 모든 물고기에서 ^{131}I 이 검출되었다. 최대 농도는 2009년 9월에 포획한 2,355 g 짜리의 잉어에서 11.35 Bq/kg, 붕어의 경우는 평균 3.93 Bq/kg 이 검출되었다. 반면에 비교지역인 공주의 저수지에서 포획한 물고기에서는 ^{131}I 이 검출되지 않았다.

Table 2. ^{131}I Concentration of fresh-water fish

	^{131}I 농도(Bq/kg-fresh)	
	갑천하류(평균)	공주지역 저수지
누치	0.86~1.19(1.03)	-
붕어	2.38~5.61(3.93)	<MDA
잉어	8.26~11.35(9.81)	<MDA
향어	-	<MDA

2.4 결과 및 토의

이번 조사의 결과를 살펴보면 하수처리장의 처리수에서 ^{131}I 이 검출되고 있음을 알 수 있다. 하수처리장 보다 상류에 위치한 원촌교에서는 검출

되지 않았다. 하수처리장에는 대전시의 오펜수가 집하되는 곳으로 방사성염소로 진단치료를 받은 환자의 배설물이 유입되고 있음을 짐작 할 수 있다. 또한 물고기의 경우 갑천 하류에서 포획된 모든 어류에서 ^{131}I 이 검출되었으나 공주지역의 저수지에서 포획된 어류에서는 검출되지 않아 방사성염소로 오염된 하천수의 영향을 받고 있음을 알 수 있었다.

하수처리장 배수구와 용신교의 하천토, 하천수에서는 10회 모두 ^{131}I 이 검출되었으나 동일시기의 연구원 정문, 동화울에서 채취된 시료에서는 검출되지 않았다. 이는 방사성동위원소 생산시설(RIPF)과는 무관함을 시사한다. 수초의 경우는 연구원 정문, 동화울, 원촌교에서도 미량이지만 ^{131}I 이 검출되었다. 이는 방사성염소 진단치료 환자가 배설물을 환경으로 직접 배출한 경우라고 판단되며 ^{131}I 의 해조류나 수초 등에 축적되는 특성에 기인한 것으로 보인다.

3. 결론

8.05일의 짧은 반감기를 가진 ^{131}I 은 의료용 사용의 증가로 하수처리장 등을 통해 대도시의 하천으로 유입되어 하천수 및 생물체에서 검출되고 있는 핵종이다. 이번 조사를 통하여 갑천의 환경시료에서도 인공핵종인 ^{131}I 이 검출되고 있음을 확인하였다. 이 논문을 통하여 환경에서 ^{131}I 검출시 방사성동위원소시설에서 방출된 것이라는 고정 관념이 다소 해소되기를 기원한다.

4. 참고문헌

- [1] IEC, 61452, 'Measurement of Gamma-Ray Emission Rates of Radionuclides-Calibration and Use of Germanium Spec., 1995
- [2] X. Hou, et al, 'Chemical species of iodine in some seaweeds', J. of Radioanalytical and nuclear chemistry, 245(3), p461(2000)
- [3] 한국원자력연구원, 원자력시설 주변 환경방사선평가(2008년보), KAERI/RR-2979/2008

PWR의 증기발생기 교체시 경제성을 고려한 작업자 피폭선량 저감화 방안 제시

최수원, 신상화, 황주호

경희대학교, 경기도 용인시 기흥구 서천동

2875pnooh@hanmail.net

1. 서론

원자력발전소가 다른 발전소의 가장 다른 점은 방사성물질을 사용한다는 것이다. 따라서 원자력발전소의 운전기간, 예방정비기간 및 해체기간에 방사성물질에 의한 작업자 피폭선량은 원자력발전소의 안전에 관한 중요한 인자가 된다.

현재까지 50개 국가의 원자력발전소에서 약 150기의 증기발생기가 교체되었으며, 한국에서는 1998년 고리 1호기의 증기발생기가 교체되었다. 증기발생기의 수명은 30~40년이며, 1978년 고리 1호기의 상업운전을 시작으로 한국에서는 20기의 원자력발전소가 상업운전 중에 있다. 향후 한국에서 증기발생기 교체 작업이 단기간에 활발히 이루어질 것으로 판단되므로 증기발생기 교체시 작업자의 피폭선량 저감화 방안에 대한 연구가 필요하다. 본 논문에서는 RESRAD-BUILD Code를 이용하여 PWR의 증기발생기 교체시 차폐체의 두께에 따라 작업자의 피폭선량의 변화를 계산하여 경제성을 고려한 최적의 납 차폐체 두께를 제시하고자 한다.

2. 본론

2.1 RESRAD-BUILD Code

RESRAD-BUILD Code는 Argonne National Laboratory에서 1989년부터 보급을 시작한 7개의 RESRAD Code 중 하나이며, 건물 내에서 건물의 방사성오염원으로부터 거주자가 받는 피폭선량을 계산하는 코드이다. RESRAD-BUILD Code의 입력인자와 입력값은 Table 1과 같다.[1]

실제값과 큰 차이가 없고 작업자 피폭선량에 큰 영향을 미치지 않는 Deposition Velocity, Resuspension Rate, Building Exchange, Breathing Rate, Ingestion Rate 등은 Default Value를 사용하였으며, 격납용기의 부피는 영광 3, 4호기의 설계도를 이용하여 계산하였다. 증기발생기는 한쪽면만 작업자에 영향을 준다고 가정하여 전체 면적의 50%를 적용하였으며, 차폐체의 경우 고리 1호기 증기발생기 교체시 사용한 것과

같은 0.4 cm 두께의 납 차폐체로 설정하였다.

Table 1. RESRAD-BUILD Code Input Factor

Input Factor	Value
Deposition Velocity	0.01 m/s
Resuspension	0.0000005 1/s
Building Exchange	0.8 1/h
Breathing Rate	18 m ³ /d
Ingestion Rate	0.0001 m ² /h
surface area of Steam Generator	174.72 m ²
Containment Building Volume	44345.17 m ³

2.2 작업자 피폭선량

증기발생기 교체 작업에 필요한 작업은 총 113가지이며, RESRAD-BUILD Code를 이용하여 각 작업별로 작업자 피폭선량을 계산하였다. 계산 결과는 Fig. 1과 같다.

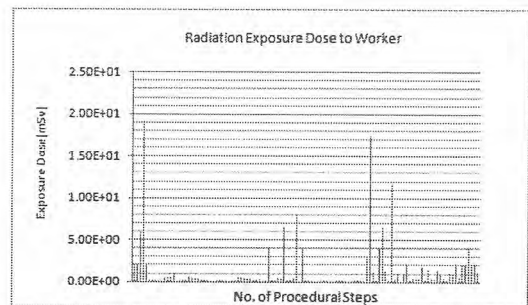


Fig. 1. The Radiation Exposure Dose to Worker by Each Procedural Steps

각 작업별 작업자 피폭선량은 RCS(Reactor Coolant System) Pipe 외부용접이 1.92×10^1 mSv로 가장 크게 나왔으며, 그라우팅 작업이 1.21×10^{-2} mSv로 가장 적게 나왔다. 원자력법 시행령에 따르면 방사선 작업종사자의 경우 유효선량한도는 연간 50 mSv를 넘지 아니하는 범위에서 5년간 100 mSv이다. 즉 증기발생기에 투입되는 작업자의 경우 피폭선량이 년평균 20 mSv를 넘지 말아야 한다. 계산결과 RCS Pipe 외부용접작업과 SG보온재 제거 및 설치 작업의 경우

1.92×10^1 mSv, 1.74×10^1 mSv로 년평균 선량 한도에 근접한 값이 나왔다. 이 자료를 토대로 납 차폐체의 두께를 변화시켜가면서 작업자의 피폭 선량을 계산하였다.

2.3 차폐체 두께에 따른 작업자 피폭선량

RESRAD-BUILD Code를 이용하여 차폐체의 두께를 0.1 cm부터 1 cm까지 0.1 cm씩 조정하여 총 작업자 피폭선량을 계산하였다. 차폐체는 납으로 설정하였으며 밀도는 상온에서의 납의 밀도인 11.36 g/cc를 사용하였다. 차폐체의 두께에 따른 총 작업자 피폭선량은 Fig. 2에 나타내었다.

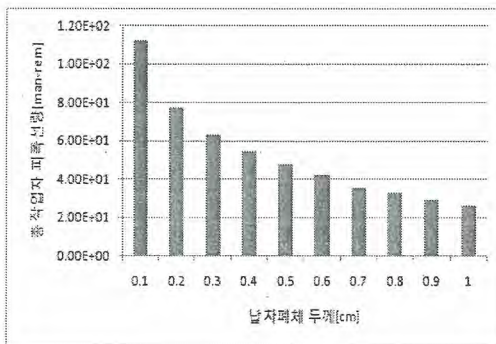


Fig. 2. The Radiation Exposure Dose to Workers by Thickness of Lead

차폐체 두께가 증가함에 따라 작업자의 총 피폭선량은 꾸준히 감소한다. 하지만 작업자의 피폭선량 감소를 위해 차폐체의 두께를 무한정 늘릴 수는 없다. 따라서 경제성을 고려하여 최적 차폐체 두께를 계산하였다.

2.4 납 차폐체 두께 변화에 따른 비용 계산

납 차폐체의 비용을 계산하는 식은 다음과 같다.

$$\frac{\text{가로[cm]} \times \text{세로[cm]} \times \text{두께[cm]} \times \text{비중[g/cc]}}{\times ((\text{자재비} + \text{시공비}) + (\text{자재비} + \text{시공비}) \times 10\%)} \dots\dots\dots (1)$$

납 차폐체의 1 cm³당 자재비는 2,900원이며 시공비는 600원이다.[2] 납 차폐체가 필요한 면적은 증기발생기의 면적으로 하였으며 349.44 m²이다.

한국 원자력관련 종사자들을 대상으로 조사한 결과 방사선 피폭선량 금전환산 계수는 203만원/man-rem이다.[3] 납 차폐체의 두께에 따라 소요되는 비용과 작업자 피폭선량 감소에 따른 이득은 Table 2와 같다.

Table 2. Benefit to Thickness of Lead

thickness [cm]	price of material [1000 won]	benefit [1,000 won]
0.1	15,283	.
0.2	30,566	71,659
0.3	45,849	29,435
0.4	61,132	17,864
0.5	76,415	13,601
0.6	91,699	11,368
0.7	106,982	13,601
0.8	122,265	4,466
0.9	137,548	7,308
1.0	152,831	6,496

납 차폐체 두께 0.1 cm 증가시키는데 필요한 비용은 약 15,283,000원이다. 피폭선량 감소에 따른 이득이 재료비보다 큰 납 차폐체의 두께 중 0.4 cm가 최적 납 차폐체 두께로 판단된다.

3. 결론

증기발생기 교체시 납 차폐체 두께 변화에 따른 작업자 피폭선량 감소와 경제적 이득을 계산하였다. 계산결과 작업자 피폭선량감소와 경제성을 만족하는 최적 납 차폐체 두께는 0.4 cm인 것으로 판단된다. 향후 교체 증기발생기의 재원을 토대로 최적의 납 차폐체 두께 설정에 도움이 될 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

- [1] C. Yu, D.J. LePore, J.J. Cheng, E. Gnanapragasam, S. Kamboj, J. Arnish, B.M. Biwer, A.J. Zielen, W.A. Williams, A. Wallo III, H.T. Peterson, User's Manual for RESRAD-BUILD Version 3, Argonne National Laboratory, 2003
- [2] 사단법인 한국물가협회
- [3] 최광식, 최영성, 이진재, 이병희, 가상가치평가법에 의한 방사선피폭선량 금전환산계수 산정에 관한 연구, 한국원자력학회, 2001

건식저장을 위한 사용후핵연료 구조건전성 평가 수행체계 정립에 관한 연구

이성기, 남윤석, 김용환, 전상윤, 최기성, 조창석
한전원자력연료, 대전광역시 유성구 대덕대로 1047
skillee@knfc.co.kr

1. 서론

사용후핵연료 건전성 평가 분야는 크게 핵분열 물질인 우라늄 펠렛을 함유하고 있는 핵연료봉과 이를 제외한 핵연료 구조부품들로 구성된 집합체 구조물에 대한 평가로 구분될 수 있다. 이 중 집합체 구조건전성 분야의 경우는 현재 국내에서 평가 및 연구의 방법론, 방향성 등이 정립되지 않음에 따라 본 연구에서는 국외 선행 연구 사례 및 규제현황, 핵연료집합체의 거동분석 등을 통한 사용후핵연료 건식저장을 위한 구조건전성 기본 평가 수행체계에 대한 방향성을 정립하고자 한다.

2. 본론

2.1 사용후핵연료 구조 건전성 평가 국외 사례

핵연료집합체 구조물의 건전성은 저장용기와외 구조적 양립성, 용기 개발시 제한 핵연료 선형, 건식 저장후 사용후핵연료를 최종 목적에 맞게 처리하기 위한 회수시의 건전성 유지 측면, 임계 및 열전달에 관한 냉각 가능 구조 유지 여부, 손상 분류 체계에 대한 근거 제공 등 사용후핵연료 건식저장 관련 건전성평가를 위한 여러 가지 필수 기술 요소로 자리매김하고 있는 것으로 파악되었으며 관련 사항은 다음과 같다.

2.1.1 구조변형 평가 규제 요건[1], [2]

사용후핵연료의 구조건전성 평가 근거로 미국 규제 기관의 사례를 조사 및 분석하여 다음과 같이 관련 항목들을 도출하였다. 즉, 사용후핵연료는 반드시 회수가능(10CFR72. 122[i]) 해야 하고, 총체적 파손으로부터 보호되어야 하며(10CFR72. 122[h]), 관련 시스템과 양립성(10CFR72. 236[h]) 유지되어야 한다고 기술되어 있다. 아울러 정상 및 가상사고 조건에서 사용후핵연료의 구조건전성, 형상에 관한 사항(10CFR71.55[d]) 및 사용후핵연료 관련 용기 내부구조물에 대한 기하학적 형상은 심하게 변형 되서는 안 된다고 명시되어

있다 (10CFR71.71). 사용후핵연료 용기 개발시, 이 사항들을 평가 및 검증하기 위하여 핵연료집합체 구조적 골격을 이루는 안내관과 지지격자에 대한 구조 건전성 평가 등을 수행한다.

2.1.2 사용후핵연료 손상 범주 정의[1]

사용후핵연료의 손상에 관한 정의는 관련공정에 대한 정상적 또는 지속적 수행 가능성에 대한 주요 판단기준이 되며, 비정상적 수단을 강구할시 기본 정보가 되는 중요한 사항이다. 따라서 세계 원자력관련 주요국들은 자국의 사용후핵연료 처리 정책 및 관련 인프라에 따라 사용후핵연료 손상에 대한 정의를 달리하고 있다. 미국의 경우는 운송이나 수송과 같은 사용후핵연료 사업목적 및 인허가 규제사항 요건을 충족시키면 정상 핵연료로 간주될 수 있다고 유권해석을 내리고 있으므로 구조건전성 평가측면에서 손상 체계 분류는 관련 시스템, 규제 요건, 여러 시나리오 또는 시스템 요건에 따라 가변적일 수 있다.

2.1.3 사용후핵연료 구조건전성 평가 적용 사례[2]

사용후핵연료 구조건전성 평가 적용 주요 사례로는 용기 개발시 시간과 비용 저감뿐만 아니라 보수적 평가를 위하여 사용후핵연료 기계적 특성 평가를 통한 제한 핵연료를 선정하여 관련 해석 및 시험 등을 수행한다. 또한 핵연료집합체의 뒤틀림, 휨, 연료봉 휨 등의 핵연료 형상적 열화 상태 정보 들도 사용후핵연료 건식저장 관련 임계, 열, 차폐, 기타 구조 평가 분야에 모사되어 용기와 일체화된 평가 및 상호 피드백을 통한 최적 설계를 수행하는 데 활용된다.

2.2 국내 사용후 핵연료 설계 특성

국내 가압경수로형 원전에 사용되어 온 핵연료는 원전의 형태(예: 웨스팅하우스형 14x14, 16x16, 17x17 및 한국표준형 16x16), 공급사(예: Westinghouse, Framatome, ABB-CE, KNFC), 핵연료 모델(예: OFA, V5H, RFA, ACE7, KSFA,

Guardian, PLUS7 등) 및 핵심부품인 피복재의 제질에 따라 다양한 특성 분석 및 평가를 통하여 건식저장을 위한 평가범위, 방법론 개발 등에 활용 할 수 있다. 한편, 국내 경수로 원전에서 발생한 손상 현상은 한전원자력연료가 손상 원인분석을 포함하여 별도 관리하고 있다. 이러한 핵연료의 유형 및 설계특성 분석 결과는 제한 핵연료 및 손상 분류체계 정립 등에 적용될 수 있다.

2.3 핵연료집합체 구조변형 메카니즘

사용후핵연료는 제조, 이동, 취급 및 장전, 노심 내 연소중 상단고정체 누름력, 연소 또는 노심 냉각수 흐름 등의 불균일 성 등 일련의 여러 외력들의 결합하여 구조변형이 내재 되어있다. 이 변형은 공정 및 시간에 따라 특정 외력이 지배적이며, 이에 따른 인장, 압축, 굽힘 모멘트 등 여러 하중 모드들이 발생할 수 있으나 구조변형을 지배하는 것은 압축하중 모드이며, 단지 여러 상황에 따라 응력 강도에 다소 변화가 있을 수 있다. 이에 대한 사항은 다음과 같이 응력 개념식과 자유물체도로 표현할 수 있으며, 각 요소들에 대한 상세 분석을 통하여 사용후핵연료에 대한 유사 거동 출현시 각각에 세부거동에 대한 평가 방법론을 정립할 수 있다.

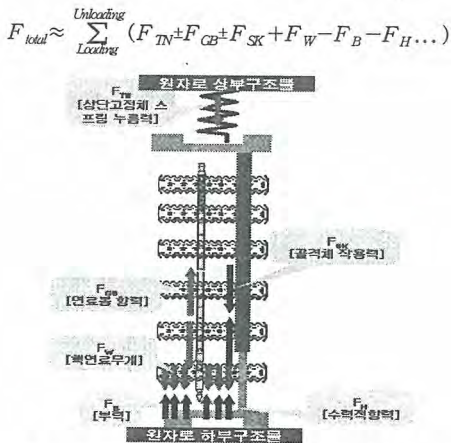


Fig. 1. Free body diagram of fuel behavior

2.4 구조건전성 평가 요건

사용후핵연료의 구조건전성에 대하여 체계적인 평가를 수행하기 위하여 장기건식저장에 대한 평가 기준, 방법 등과 같은 기본적인 평가 요건을 정립하였다. 이는 크게 응력, 기하형상, 재료 열화 분야로 분류하였으며, 각 평가 요건은 다음과 같

다. 사용후핵연료 응력에 대한 평가 기준은 ASME 코드 NB, NG 등을 적용할 수 있으며, 기타 등가 변위 또는 가속도 수준으로 설정 평가를 수행할 수 있다. 한편 기하 변형은 사용후핵연료의 기본 외관 치수 정보를 타 평가항목으로 제공 목적으로 이용되며, 특히 용기와 양립성 평가 등에 필요한 주요 정보가 된다. 이에 대한 평가는 핫셀 시험 및 기존 핵연료집합체 평가기술을 이용할 수 있으나, 세부사항은 건식저장 시스템에 종속적이다. 보수적인 구조강도 평가 결과를 산출하기 위해서는 재료 열화정보가 관련 해석의 초기조건으로 반영되어야 하며, 건식저장 전후의 회수성 등과 같은 여러 평가항목을 하기 위한 부식 제한치 등의 기준 설정이 필요하다.

3. 결론

사용후핵연료 집합체 건전성평가 수행체계 정립을 위하여 미 규제요건 등 다양한 사항을 검토, 분석하여 관련 기본 수행체계를 정립하였으며, Fig.2와 같이 수행 흐름도로 나타내었다.

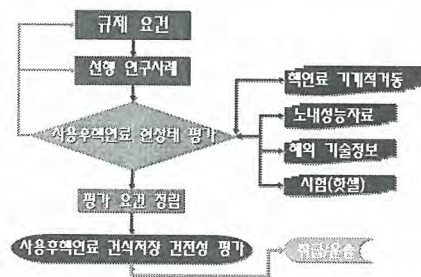


Fig. 2. Work flow of SNF evaluation procedure

4. 감사의 글

본 연구는 지식경제부 방폐물관리기술개발 사업비 후원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

- [1] Spent fuel performance assessment and research, IAEA-TECDOC-1343, IAEA, 2003.
- [2] Fuel-Assembly Behavior under Dynamic Impact Loads Due to Dry-Storage Cask Mishandling, 2008.

사용후핵연료 수송/저장시스템 설계시 연소도이득효과 적용을 위한 동위원소 함량 보정계수 도출

김경오, 김순영, 이우교, 박제호*, 김태만**, 윤정현**, 김중경***

(주)레드코어, 서울시 성동구 행당동 17

*(주)코네스코퍼레이션, 서울시 서초구 양재동 210-2

**방사성폐기물관리공단, 경기도 용인시 기흥구 중동 848-2

***한양대학교, 서울특별시 성동구 행당동 17

svkim@radcore.co.kr

1. 서론

국내에서 운영 중인 20기의 원자력발전소에서는 매년 700톤 정도의 사용후핵연료가 발생되며 현재까지 발생된 사용후핵연료는 대략 9420톤(2007년 12월 기준)에 이른다. 이로 인해, 장기적으로 운영된 일부 원전에서는 소내 저장고의 용량이 포화 상태에 이르러 여분의 저장능력을 보유한 인근 발전소의 저장고로 핵연료를 이동시켜야 하는 문제가 발생되고 있다. 따라서 대량의 사용후핵연료를 저장할 수 있는 별도의 저장고나 처분장 건설이 필수적이며, 동시에, 핵연료를 안전하게 운반할 수 있는 대용량 수송/저장시스템의 설계와 제작 또한 필요한 상황이다.

최근에는 IAEA와 OECD/NEA에서도 이 같은 문제의 심각성을 인식하고 해결을 위한 방안연구를 추진 중에 있으며 특히, 수송/저장시스템의 장전용량 향상을 통해 방사선 위험도와 경제적인 부담을 감소시키기 위한 연구, 즉 연소도이득효과(Burnup Credit, BUC)에 대한 연구를 집중적으로 수행하고 있다. 연소도이득효과는, 핵연료가 연소되면서 발생하는 액티나이드 동위원소들과 핵분열생성물들을 핵연료 취급시설(수송/저장시스템 포함)의 임계도 분석과정에 포함시킴으로써 발생하는 중성자증배계수 이득을 의미하며 해당효과를 수송/저장시스템에 실 적용 하기 위해서는 화학분석자료를 기준으로 연소계산의 정확성을 필수적으로 검증해야 한다. 이에, 본 연구에서는 5개 원전에서 확보된 37개 화학분석자료를 바탕으로 동위원소 함량 계산의 정확성 검증과 임계안전성 확보를 위한 동위원소별 보정계수를 도출하였다.

2. 실험자료 및 방법

사용후핵연료에는 대략 1300개 핵종들이 존재하고 있으나 임계도 분석과정에서 이 원소들을 모두 고려하는 것은 현실적으로 불가능하다. 따라서 대부분의 연구들에서는 임계도에 미치는 영향이 상대적으로 큰 액티나이드 원소들만을 고려하고 있으며 특히, U^{234} , U^{235} , U^{238} , Pu^{238} , Pu^{239} , Pu^{240} , Pu^{241} , Pu^{242} , Am^{241} 핵종들을 대상으로 하고 있다. 미국 에너지국

(Department of Energy)과 원자력규제위원회(Nuclear Regulatory Commission)에서도 연소도이득효과가 적용된 수송/저장시스템의 인허가 신청시 해당 원소들을 고려하도록 하고 있으며 본 연구에서 수행한 다양한 분석/검증들 역시 이들을 대상으로 진행되었다^[1]. 그리고 동위원소 검증을 위한 실험자료는 Calvert Cliffs, H. B. Robinson, Obrigheim, Mihama, Takahama-3 원전에서 확보된 37개 화학분석자료들을 사용하였다.

동위원소 함량을 예측하기 위해 수행된 연소계산의 정확성은 실험결과와의 비교를 통해 분석되었으며 측정 자료를 계산 결과로 나눈 값을 “편향(Bias)”으로 정의하였다. 일반적으로, 계산결과와 편향은 비출력, 초기농축도, 연소도 등의 다양한 인자들과 관련되어 임의의 경향성을 가지고 있다고 알려져 있다. 하지만, 현재까지 수행된 연구들을 분석한 결과, 편향은 연소도와 타 인자들과는 관련성이 적은 것으로 확인되었으며 연소도와의 경향성은 식 (1)과 (2)를 통해 분석되었다^[1].

$$x_{fit} = 1 + b_1 \times B \quad \text{..... (1)}$$

$$b_1 = \frac{\sum_{i=1}^n B_i \times x_i - \sum_{i=1}^n B_i}{\sum_{i=1}^n B_i^2} \quad \text{..... (2)}$$

n = 데이터 개수

x_{fit} = 특정 인자에 따른 편향

x_i = i번째 데이터의 편향

b_1 = 연소도에 따른 기울기

B_i = i번째 데이터의 연소도

또한, 계산결과와 편향의 특정 인자에 대해 분명한 경향성을 가지고 있는지를 식 (3)을 통해 정량적으로 평가해보았다.

$$v = |b_1| \sqrt{\frac{(n-1) \sum_{i=1}^n B_i^2}{SS_R}} \quad \text{..... (3)}$$

여기에서, $SS_R = \sum_{i=1}^n (x_i - 1 - b_1 \times B_i)^2$

다음에 나타난 식들은 보다 높은 임계안전성을 확보할 수 있도록 연소계산으로부터 구해진 동위원소 함량의 보정계수를 도출하기 위해 사용되었다. 식 (4)는 위에서 수행된 분석에서 편향이 특정 인자에 대해 경향성이 확인되지 않을 경우에 적용되었으며 식 (5)는 경향성이 분명한 경우에 사용되었다. 특히, $t_{95, n-1}$ 은 $n-1$ 데이터 개수와 95% 신뢰구간에 대한 Student-t value를 나타내고 있으며 정반응도가를 나타내는 원소들에 대해서는 식 중간의 부호를 (+)로 부반응도가를 나타내는 원소들에 대해서는 (-)로 적용시켜 보수적인 임계값이 도출될 수 있도록 하였다.

$$f = 1.0 \pm t_{95, n-1} \sqrt{1 + \frac{1}{n}} \quad (4)$$

$$\text{여기에서, } \sigma = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (x_i - 1)^2}$$

$$f = \text{Max or Min} \left[1.0 + b_1 \times B_i \pm t_{95, n-1} \sqrt{\left(1 + \frac{B_i^2}{\sum_{i=1}^n B_i^2}\right) \frac{SS_R}{n-1}}, 1.0 \right] \quad (5)$$

3. 결과 및 고찰

그림 1에서는, 각 원전별 운전이력을 바탕으로 도출된 동위원소별 함량의 편향을 나타내고 있다. 상당수 동위원소들의 편향은 1.0 ± 0.1 이내에서 실험결과와 일치하고 있었으나 U^{234} 와 Pu^{238} 원소는 1.0 ± 0.3 범위에서 편향이 넓게 분포하는 특성을 나타내고 있었다.

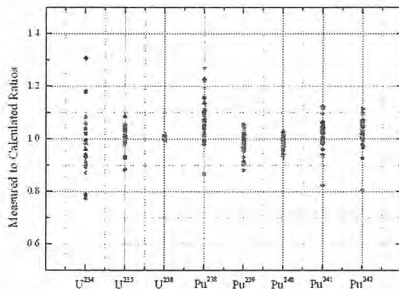


Fig. 1. Each Isotope Bias Produced by Using Origen-ARP Code

또한, Origen-ARP 코드로부터 도출된 편향이 연소도에 대해 임의의 경향성을 가지고 있는지를 평가한 결과, 표 1에서와 같이 U^{234} 를 제외하고는 모든 동위원소들이 경향성을 가지고 있는 것으로 확인되었다. 특히, Pu^{238} 원소에 대한 계산결과의 편향은 연소도에 대해 변화율이 매우 큰 것으로 확인된 반면, U^{238} 원소에 대한 계산결과는 상대적으로 매우 안정적인 것으로 평가되었다. 표 2에서는 각 동위원소별 평균 편향과 식 (4)와 (5)로부터 도출된 보정계수를 나타내고 있다. 부반응도가를 삽

입하는 원소들중에서 Pu^{238} 원소에 대한 보정율이 29%로 가장 높았으며 정반응도가를 삽입하는 원소들은 최대 8%의 보정이 필요한 것으로 확인되었다. 특히, Am^{241} 원소는 Pu^{241} 의 붕괴로부터 발생되기 때문에 연소에 대한 경향성 및 편향은 모원소와 동일하다고 가정하였으나 부반응도가를 삽입하는 원소이기 때문에 보정계수는 모원소와 차이가 있음을 알 수 있다.

Table 1. Trend Analysis on the Bias of Calculation Results

	샘플수	b_1	SS_R	v	경향성
U^{234}	22	-1.13E-3	3.16E-1	1.49	×
U^{235}	37	3.73E-4	5.30E-2	1.85	O
U^{238}	31	8.00E-5	7.90E-4	2.77	O
Pu^{238}	37	1.56E-3	1.10	1.70	O
Pu^{239}	37	-5.94E-4	7.13E-2	2.54	O
Pu^{240}	37	-4.33E-4	1.49E-2	4.05	O
Pu^{241}	37	9.46E-4	1.08E-1	3.29	O
Pu^{242}	33	9.83E-4	9.02E-2	3.40	O

Table 2. Biases and Correction Factors for Each Isotope

	샘플수	평균 편향	불확실도	보정계수
U^{234}	22	0.97	0.13	0.78
U^{235}	37	1.01	0.04	1.08
U^{238}	31	1.00	0.01	1.00
Pu^{238}	37	1.07	0.18	0.71
Pu^{239}	37	0.98	0.05	1.02
Pu^{240}	37	0.99	0.02	0.97
Pu^{241}	37	1.03	0.06	1.08
Pu^{242}	33	1.02	0.06	0.95
Am^{241}	-	1.03	0.06	0.96

4. 결론

본 연구에서는 수송/저장시스템에 연소도이득효과를 적용하기 위해 필수적으로 수행되어야 하는 동위원소 검증 및 보정계수를 도출하였다. 실험자료는 5개 원전에서 확보된 37개의 화학분석자료를 이용하였으며 Origen-ARP 코드를 이용하여 동위원소들의 함량을 예측하였다. U^{234} 원소를 제외한 나머지 8개 원소들은 연소도에 대해 임의의 경향성을 가지고 있는 것으로 확인되었으며 임계안전성을 확보하기 위해서는 Pu^{238} 원소의 보정이 상대적으로 가장 높게 필요함을 확인할 수 있었다.

5. 감사의 글

이 연구는 지식경제부의 고급인력양성사업과 방사성폐기물관리 기술개발 사업의 지원에 의해 수행되었음.

6. 참고문헌

- [1] DOE, "Topical Report on Actinide-Only Burnup Credit for PWR Spent Nuclear Fuel Packages," DOE/RW-0472

중수로 사용후연료 전용운반용기 성능검사를 위한 선원항 평가

김민철, 최보열, 맹성준

한국수력원자력|주| 원자력발전기술원, 대전시 유성구 금병로 508번지

mchkim@khnp.co.kr

1. 서론

원자력발전소 운영을 통해 발생하는 사용후연료는 고준위 방사성물질로서 운반시 방사선 위험으로부터 작업자와 주변환경의 안전을 확보해야 한다. 월성원전 사용후연료의 부지내 안전운반을 위하여 제작된 전용운반용기의 차폐성능 입증을 위해 선원항을 평가하였다.

2. 본론

2.1 평가대상 연료

중수로 사용후연료의 선원항 평가를 위하여 핵연료 제원[1]을 Table 1에 제시하였다. 사용후연료 전용운반용기는 Fig. 1과 같이 2개의 바스켓에 총 120다발의 사용후연료를 장전한다. 전용운반용기 설계시[2] 선원항 평가는 단일 평균연소도와 단일 냉각기간의 사용후연료를 기준으로 하였으나, 본 연구에서는 성능검사에서 사용할 실제연료의 정확한 선원항 계산을 위하여 사용후연료 120다발 각각에 대한 실제연소도와 냉각기간을 적용하였다(Table 2)[3]. 설계시 적용한 평균연소도는 7,800 MWD/MTU, 냉각기간은 6년이었으나, 실제로 장전한 사용후연료 120다발의 평균연소도는 7,014 MWD/MTU, 평균냉각기간은 6.4년이다.

2.2 평가 방법

운반용기의 설계에서 선원항 평가는 SCALE 4.4 코드의 SAS2H 모듈을 이용하였으나, 제작검사를 위한 본 연구에서는 SCALE 5.0[4]의 GUI (Graphic User Interface)인 ORIGEN-ARP를 이용하여 사용후연료 선원항을 평가하였다.

Table 1. Characteristics of fuel and operating data

Item	Design
Enrichments(wt % ^{235}U)	0.711
No. rods per assembly	37
Rod pitch (cm)	1.506 (sq)*
Assembly pitch (cm)	28.6
Fuel type	UO ₂
Fuel density (g/cm ³)	10.6
Pellet outside diameter (cm)	1.22
Clad material	Zirc4
Clad OD (cm)	1.31
Fuel temperature (K)	960
Average density (g/cm ³)	1.083
Moderator temperature (K)	346

*Equivalent square lattice pitch

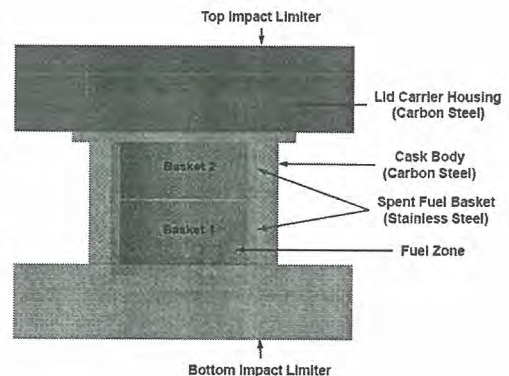


Fig. 1. Description of an exclusive package for PHWR spent fuel

Table 2. Comparison of burn-up and cooling time

Item	Design	Performance test	
		Basket 1	Basket 2
Burn-up [MWD/MTU]	7,800	6,034~9,086	5,634~9,140
Cooling time [Years]	6.00	6.41~6.43	6.40~6.41

2.3 선원항 평가

중수로 사용후연료 전용운반용기의 설계시 적용한 방법과 동일하게 감마선원의 경우 0.45MeV~3.00MeV, 중성자선원의 경우, 0.1MeV~20MeV에 대하여 각각 6개 및 7개의 에너지 구간을 설정하였다. 120다발 개별연료에 대한 방출 연소도, 냉각기간 등의 특성자료에 따라 선원항 계산 후, 에너지 구간별로 결과를 합산하였다.

2.4 평가 결과

중수로 핵연료에 대한 중성자선원 및 감마선원의 에너지 구간별 방출률의 합산결과를 설계치와 비교하여 Table 3에 제시하였다.

Table 3. Calculated fuel neutron and gamma source

Fluence rate	Design	Performance test
Neutrons/s	8.57E+06	6.17E+06
Photons/s	2.45E+15	2.06E+15

3. 결론

중수로 사용후연료 전용운반용기 제작에 대한 차폐성능 검사를 위하여 운반용기에 적재되는 사용후연료 120다발에 대한 선원항을 평가하였다. 감마선 방출률이 2.06E+15/s로 중성자 방출률 6.17E+06/s 에 비해 선원항 기여도가 상대적으로 크다는 것을 확인하였다. 한편, 본 평가의 중성자 및 감마선 방출률을 설계치와 비교하였을 때, 각각 약 28% 및 16% 낮은 값을 나타냈다. 이는 본 연구와 설계시 적용한 연소도 차이(약 11%)가 주요 영향인자 중 하나로 작용 했을 것이라 추정되나, 명확한 규명을 위하여 향후 추가적인 연구가 필요하다.

4. 참고문헌

- [1] 월성원자력 제2발전소 최종안전성분석보고서(ZPM-LD-0007) revision 3, 4.3장 pp.56~61, 4.5장 pp.23~24, 한국수력원자력|주|, 1997
- [2] Safety analysis report on the HI-STAR 63 package revision 4, Holtec International, pp.302~338, 2009
- [3] 중수로연료통합관리시스템, 월성2발전소 연료, 2009. ([www.10.135.1.96:8021 /khnpfuel/main.jsp](http://www.10.135.1.96:8021/khnpfuel/main.jsp))
- [4] SCALE, a modular code system for performing standardized computer analyses for licensing evaluation version 5, Oak Ridge National Laboratory, 2005

사용후핵연료 수송/저장 연소도 적용용기 설계특성 분석

윤정현, 이강욱*, 박제호*, 최윤지, 이은용, 이상인

한국방사성폐기물관리공단, 대전시 유성구 대덕대로 1045

* (주)코네스코퍼레이션, 대전시 유성구 장대동 341-4

jhyoon@krmc.or.kr

1. 서론

현재 국내에서 운영 중인 20기(PWR 원전 16기, CANDU 원전 4기)의 원자력발전소(이하 원전)에서 방출되는 사용후핵연료는 원전 내 임시저장시설에 저장되어 있으며, 저장량은 저장용량의 약 85%에 이르고 있다. 또한 최근 핵연료 경제성을 높이기 위해 고농축/고연소도의 핵연료 사용이 실용화됨에 따라, 현재 건식 저장시설 운영에 사용되는 수송·저장용기 설계의 과도한 책임계 안전 여유도는 비효율적이고 비경제적이라는 지적들을 받고 있다. 이와 같은 문제점을 개선하기 위해, 일부 선진국들에서는 사용후핵연료 특성(엑티나이드 및 핵분열생성물)이 반영된 책임계 해석기법(연소도 이득(Burnup Credit, BUC)을 수송, 저장 심지어 처분시설에 적용하는 연구가 이루어지고 있다. 또한 건식 저장시설의 저장밀도 증가를 위한 원전사업자의 요구에 편승하여, 수송·저장용기 제조사별 연소도이득이 반영된 수송·저장용기의 설계 및 제작이 이루어지고 있으며, 인허가를 진행하고 있는 단계이다. 그러나 국내의 경우, 원전내 습식저장조의 조밀랙 설계에 연소도이득(BUC)이 일부 반영된 수준이며, 향후 중간저장시설에 사용될 수송·저장용기의 연소도이득(BUC) 적용에 관한 연구는 현재 국외 책임계 해석기법의 습득단계에 머물러 있다. 따라서 본 논문에서는 향후 국내 중간저장시설 운영에 사용될 수송·저장용기의 연소도이득(BUC) 적용 타당성 검증에 사용될 평가모델의 표본모델 선정 목적을, 현재 개발되었거나 개발단계에 있는 국외 연소도이득(BUC) 적용 수송·저장용기의 설계특성을 분석하여 활용하고자 한다.

2. 용기 설계특성(책임계측면)

본 장에서는 국내 수송·저장용기의 연소도이득(BUC) 적용 타당성 검증에 사용될 평가모델의 표본모델 선정과 국외 연소도이득(BUC) 적용 용기의 국내 직접 적용성 유무를 판단하는 기초자료 도출을 위해, NRC로부터 CoC(CERTIFICATE OF COMPLIANCE)를 받은 HOLTEC사의 HI-STAR100 MPC32 수송용기와 현재

인허가 중이거나 개발단계에 있는 HOLTEC사의 HI-STAR180, Transnuclear 사의 TN-40 및 NUHOMS System MP197HB 수송용기 중 SAR(Safety Analysis Report)가 확보된 HI-STAR100 MPC32와 TN-40에 대한 설계특성을 분석하였다.[1][2]

2.1 HOLTEC MPC32

미국 Holtec Int.사는 연소도 이득이 적용된 32다발의 PWR 사용후핵연료를 장전 할 수 있는 새로운 다목적 캐니스터인 MPC32를 개발하였으며, 관련규정에 따라 2006년 10월 MPC32가 장착된 HI-STAR100에 대한 B(U)형 수송용기 인허가(Docket No. 71-9261)를 취득하였다. 책임계측면의 사용후핵연료 장전 제한치와 관련하여, Table 1에 핵연료 타입과 특성을 나타냈다. 각각의 장전 제한치중 보수적 제한치를 기초로 MPC32의 통합 장전곡선 및 장전가능영역을 Fig. 1에 제시하였다.

Table 1. Design basis Fuels of MPC32

	15×15 Fuel			17×17 Fuel		
.U.max(kg/assy)	475	475	475	467	467	467
.Fuel Rod No.	208	208	208	264	264	264
.Fuel Pellet Dia. max(mm)	9.49	9.42	9.52	7.84	8.21	8.26
.Fuel Rod Pitch. min(mm)	14.43	14.43	14.43	12.60	12.6	12.8
.Active Fuel. max (mm)	3810	3810	3810	3810	3810	3810
.G T/I T Thick. mi(mm)	0.38	0.36	0.36	0.41	0.36	0.51

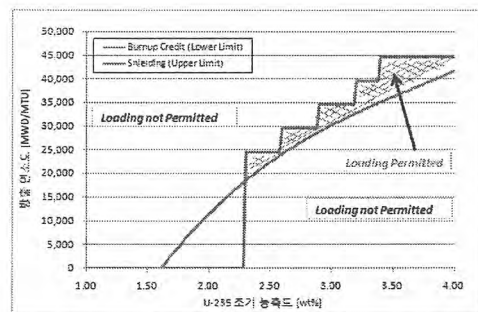


Fig. 1. MPC-32 Loading Curve over Burnup

2.2 TN-40 Dual Purpose Cask

Transnuclear사에서 개발된 TN-40 Dual Purpose Cask는 PWR 핵연료집합체 40개를 장전하여 수송 및 저장에 가능하도록 설계된 금속용기로서, 1993년에 Xcel Energy사에서 운영하는 Prairie Island 건식저장시설의 인허가 취득을 통해 미국 NRC로부터 저장에 관한 사용허가를 승인 받았으며, 현재 24개의 TN-40 금속용기가 Prairie Island 건식저장시설에서 운영되고 있다. TN-40 금속용기는 사용후핵연료가 장전되는 바스켓과 용기본체(셀, 바닥, 뚜껑) 및 보호용 덮개대(protective cover)와 같은 기타 구성품으로 이루어져 있다. 일반적으로 TN 계열의 금속용기는 구조재 및 감마선 차폐재로 사용되는 탄소강과 중성자 차폐재인 폴리에스테르 수지로 구성되며, 용기내부의 격납용기 내부 셀과 바닥 마감부에 의해 감마선 차폐가 이루어진다. 사용후핵연료가 장전되는 용기본체 내부의 바스켓은 탄소강 재질로서, 알루미늄 격자구조 판별 내부에 삽입된 중성자 흡수체(BoralTM, B10=4.43w%)가 샌드위치 방식으로 위치하고 격납용기의 배수 및 배기를 위해 2개의 관통부가 설치되어 있는 특징을 갖는다(Fig. 2 참조).

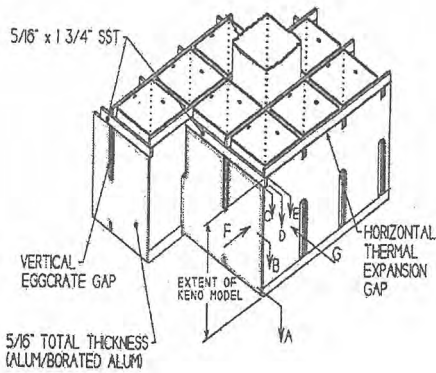


Fig. 2. TN-40 Basket Structure

최근 Transnuclear사는 향후 Prairie Island 건식저장시설의 사용후핵연료 수송에 대비하여, ISG-8에 제시된 연소도 이득효과 적용 설계기준에 따라 기존의 TN-40 Dual Purpose Cask에 대한 수송용기 설계요건 충족여부를 평가하였으며, 그 결과를 토대로 2006년 8월 미국 NRC에 수송용기 인허가를 신청하여 현재(2009년) 수송용기 사용에 관한 인허가가 진행 중에 있다. 연소도이득이 적용된 TN-40 수송용기의 통합 장전곡선을 Fig. 3에 나타냈다.

Table 2. Design basis Fuels of TN-40

	Exxon/ANF14x14			WH14x14	
	Std	H. BU	Top Rod	Std	OFA
.Fuel Rod No.	179	179	179	179	179
.Cladding O.D.(mm)	10.8	10.8	10.6	10.7	10.2
.Cladding Thick.(mm)	0.76	0.79	0.75	0.62	0.62
.Pellet O.D.(mm)	9.06	9.06	8.90	9.30	8.75
.Active Fuel Len.(mm)	3658	3658	3658	3658	3658
.G.T O.D.(mm)	13.7	13.7	13.7	13.7	13.4
.G.T I.D.(mm)	12.9	12.9	12.9	12.8	12.4

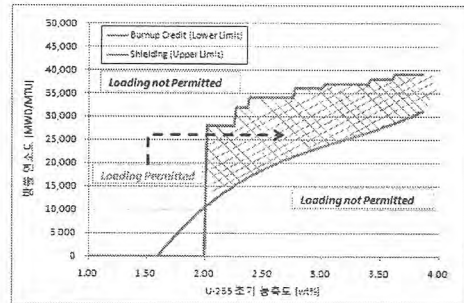


Fig. 3. TN-40 Loading Curve over Burnup

3. 결론

최근 고농축/고연소도의 핵연료 사용이 실용화됨에 따라 현 건식저장시설의 설계방식에 의한 과도한 핵임계 안전 여유도 적용이 문제시되고 있다. 본 논문에서는 현재 설계 및 인허가 진행 중인 HOLTEC사의 HI-STAR100 MPC32와 Transnuclear사의 TN-40에 대한 설계특성을 분석하였다. 따라서 향후 국외 연소도이득(BUC) 적용 용기의 국내 직접 적용은 취급성, 사용후핵연료 수송성 측면에서 분석이 이루어져야하며 국내 사용후핵연료 연소이력 및 설계특성이 반영되는 개발로써 이루어져야 한다.

4. 참고문헌

- [1] Holtec International, "Safety Analysis Report: Storage, Transport, and Repository Cask System, DOCKET No. 71-9261" (2006)
- [2] Transnuclear, "TN-40 Transportation Packaging Safety Analysis Report, DOCKET No. 9313"(2006)

사용후핵연료 수송방안 평가기술 개발

백창열, 성기열, 윤정현, 신상원*

한국방사성폐기물관리공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

* (주)에네시스, 대전광역시 유성구 구암동 328

baegcy@krmc.or.kr

1. 서론

원전에서 발생한 사용후핵연료를 중간저장시설 등으로 수송하기 위해서는 안전성, 경제성뿐만 아니라, 대국민 신뢰도 확보가 무엇보다 중요하다. 사용후핵연료의 수송은 IAEA 및 국내의 운반안전규정을 엄격하게 적용하여 이루어지고 있다. 사용후핵연료 수송시스템은 원전의 기존설비, 수송용기, 차량/선박, 물량장의 선하역계통, 중간저장시설의 저장계통 등으로 구성되며, 수송시나리오는 수송물량, 수송경로, 수송용기/선박의 적재용량 등에 영향을 받는다. 따라서 수송시스템과 수송시나리오는 상호 연계되며 이를 전산 모사하여 안전성, 경제성 등을 종합적으로 분석평가한 후 적용 가능한 최적의 수송방안을 도출하여야 한다. 본 수송방안 평가기술 개발은 국내외의 수송방안 평가관련 프로그램을 참조하고 우리나라의 지리적 여건 등 제반사항을 충분히 반영하여 우리 고유의 사용후핵연료 수송방안 평가기술을 개발 (Fig. 1. 프로그램 구성안 참조)하는데 있다.

2. 본론

원전에 임시 저장된 사용후핵연료는 많은 열과 방사선을 방출하므로 이를 적정 수준까지 낮춘 후에 특수하게 설계/제작된 수송용기에 적재하여 중간저장시설로 운반하여야 한다. 현재 사용후핵연료 수송은 각국의 지리적 특성에 따라 도로, 철도, 선박 등을 이용하고 있으며, 우리나라에서도 90년대 초부터 사용후핵연료를 원전 내 인근 호기간 차량을 이용하여 안전하게 수송하여 오고 있다[1]. 이 연구에서는 최적의 수송방안 분석/평가를 위한 기초자료 확보 및 평가기법 정립을 위해 국내의 사용후핵연료 관리정책 및 현황을 알아보고, 사용후핵연료 수송현황 등도 조사분석하였다. 또한, 수송방안 평가 절차 및 방법론 조사를 위해 미국의 Yucca 산 처분장의 수송평가에 사용된 환경영향평가서와 영국의 방사성폐기물관리보고서 등도 분석하였다.

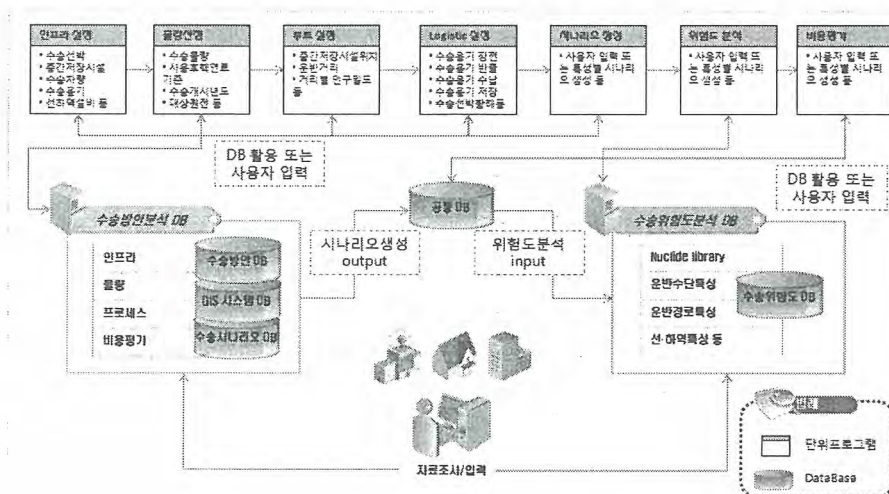


Fig. 1. 사용후핵연료 수송방안평가 프로그램 구성(안)

2.1 국내 현황

국내의 경우 사용후핵연료의 수송비용 및 물량 산정을 위한 프로그램을 개발한 경험은 있으나 수송시스템, 수송위험도, 비용평가 등을 고려한 종합적 수송방안 평가기술을 개발한 실적은 없었다. 최적의 사용후핵연료 수송방안 평가를 위해서는 다양한 가정 및 조건에 대해 수송시스템, 수송물량 산정, 수송위험도 평가, 수송경로/GIS 연계 분석 및 비용평가를 통한 최적의 수송방안을 도출할 수 있어야 한다. 그러므로 사용후핵연료 수송방안평가 기술의 효과적인 적용을 위해서는 우선 적용 대상 및 범위를 먼저 결정하고 관련 프로그램을 개발하여야 할 것이다.

2.2 국외 현황

2.2.1 미국

미국의 사용후핵연료 수송방안 절차와 방법론 분석을 위해 상업용 원전과 DOE의 5개 연구용 원자로의 사용후핵연료 또는 고준위폐기물을 Yucca 산 처분장으로 수송하기 위해 사용된 환경영향평가서를 분석하였다. DOE는 철도, 트럭, 바지선 등을 이용하여 전국의 사용후핵연료를 수송할 계획이나 대부분 철도나 트럭에 의해 수송되는 시나리오를 설정하고 있다. 사용후핵연료 수송으로 인한 정상수송 및 사고시의 일반 및 종사자에 대한 영향평가를 수행하기 위해 단계적 입력방법을 사용하였다. 각 사이트별 사용후핵연료 인벤토리 및 위치 자료를 바탕으로 HIGHWAY 및 INTER-LINE을 이용하여 루트 모델링을 하고 그 결과로 거리와 루트들은이 일반인과 작업자의 방사선영향 평가를 위한 RISKIND와 RADTRAN 프로그램의 입력자료로 활용된다. CALVIN 프로그램은 상업용 원전으로부터 사용후핵연료 수송물량 평가를 위해 사용되었으며, 각 사이트에 저장된 사용후핵연료 수량, 각 사이트로부터 사용후핵연료를 선적하기 위한 시나리오 정보 및 사용가능한 수송용기 정보를 입력자료로 사용하고 있다[2].

2.2.2 영국

영국은 2001년 방사성폐기물 인벤토리에 근거한 수송물량분석 등을 바탕으로 수송, 운영, 폐쇄에 대한 안전성 평가를 수행하였다. 안전성 평가를 수행하기 위한 기본 가정으로 영국 본토를 거의 동일한 크기인 10개 구역으로 분할하였다. 3개

구역은 스코틀랜드를 포함하고, 1개 구역은 웨일즈 구역을, 나머지 6개 구역은 대부분의 영국본토를 포함한다. 각 구역의 중앙부에는 처분시설이 존재하며, 철도 및 도로와 철도를 혼합한 2개의 루트가 각 구역 내에 존재한다. 해상수송은 가상의 항구에서 연안근처의 가상의 섬으로 설정하였으며 수송시나리오에는 1) 모든 폐기물은 철도를 사용, 2) 중량물 폐기물은 철도로 수송하고 경량폐기물은 도로 이용, 3) 모든 폐기물은 가상의 섬에 위치한 처분장까지 선박으로 수송하는 3가지 시나리오로 구성되어있다[3].

3. 결론

현재 수행중인 사용후핵연료 수송방안 평가기술 개발은 국내외의 수송현황, 수송위험도 평가 등 관련 프로그램을 참조하고 우리나라의 원전현황, 지리적 여건 등 제반사항을 충분히 반영하여 안전성, 경제성뿐만 아니라 대국민 신뢰도 증진에도 기여할 수 있는 우리 고유의 수송방안 평가기술을 개발하고자 한다.

4. 감사의 글

본 연구는 지식경제부의 방사성폐기물관리기술 개발 중장기기획과제의 일환으로 수행중에 있습니다.

5. 참고문헌

- [1] <http://www.krmmc.or.kr> 사용후핵연료기술현황
- [2] DOE Transportation Risk Assessment DOE/EM/NTP/HB-01, July 2002
- [3] Generic Transport Safety Assessment, Nirex Report no. N/078, July 2003

제5분과

방사선 안전 및 환경 (Poster)

빈 면

중수로 사용후연료 전용운반용기 방사선차폐 성능평가

김민철, 정성환, 고재훈*

한국수력원자력|주| 원자력발전기술원, 대전시 유성구 금병로 508번지

*|주|코네스코퍼레이션, 대전시 유성구 장대동 341-4 현대프라자 402호

mchkim@khnp.co.kr

1. 서론

한국수력원자력|주|에서는 월성원전 사용후연료를 부지내 건식저장시설로 안전하게 운반하기 위해 사용후연료 전용운반용기를 제작하였으며, 국내 원자력법의 기술기준에 따른 방사선 차폐성능 검사를 위하여 운반용기의 선량률을 평가하였고 실제 연료를 장전하여 측정한 결과와 비교 분석하였다.

2. 본론

2.1 선원항 평가

중수로 사용후연료 운반용기는 2개의 연료 바스켓으로 구성되며, 각각의 바스켓에는 60다발의 핵연료가 장전된다. 차폐성능 검사를 위해 실제 사용후연료 120다발을 선정하였으며, 이를 바탕으로 중성자선원 및 감마선원에 대하여 에너지 구간별로 선원항을 계산하였고, Table 1 및 Table 2에 결과를 나타내었다.

2.2 선량률 평가지점 선정

차폐해석을 위하여 운반용기 제작시 사용된 기하학적 형태를 적용하였으며[1], 계산된 선원항이 운반용기 내에 균일하게 분포되어 있는 것으로 가정하였다. 선량률 평가지점은 Fig.1과 같이 바스켓 높이에 따라 3개의 구역(I, II, III)으로 나누고, Fig. 2와 같이 각 구역별 단면의 6개 방향(A~F)에 대한 표면 및 2m 이격지점과 운반용기 상부의 표면 등 총 37개 지점으로 선정하였다.

2.3 차폐 해석

MCNP 5.0 코드의 F2 tally를 사용하여 표면 및 2m 이격지점의 선량률을 계산하였다. History cutoff는 감마선, 중성자 및 (n,γ)반응에 대하여 각각 6.00E+08, 4.00E+07 및 5.00E+07을 적용하였으며, ICRP 74[2]의 선량환산인자를 이용하였다.

Table 1. Calculated fuel neutron source

Energy (MeV)		Neutrons/s
Lower	Upper	
1.00E-01	4.00E-01	4.29E+05
4.00E-01	9.00E-01	9.19E+05
9.00E-01	1.40E+00	9.33E+05
1.40E+00	1.85E+00	7.94E+05
1.85E+00	3.00E+00	1.74E+06
3.00E+00	6.43E+00	1.27E+06
6.43E+00	20.0E+00	8.86E+04
Total		6.17E+06

Table 2. Calculated fuel gamma source

Energy (MeV)		Photons/s
Lower	Upper	
4.50E-01	7.00E-01	1.90E+15
7.00E-01	1.00E+00	1.25E+14
1.00E+00	1.50E+00	2.84E+13
1.50E+00	2.00E+00	2.52E+12
2.00E+00	2.50E+00	1.31E+12
2.50E+00	3.00E+00	4.53E+10
Total		2.06E+15

2.4 해석결과

37개 지점에 대한 선량률 해석결과, 신뢰할 수 있는 수준의 상대오차(R<5%)로 표면 및 2m 이격지점에 대한 기술기준[3]을 만족하는 것으로 나타났으며, 최대선량률 계산결과와 기술기준을 Table 3에 제시하였다.

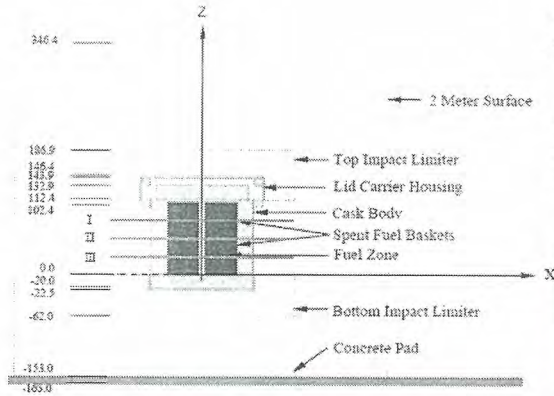


Fig. 1. Dose point location (XZ axis view)

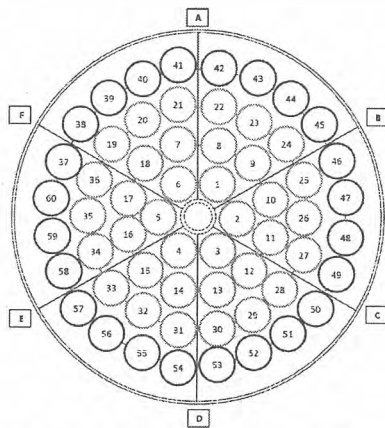


Fig. 2. Dose point location (XY axis view)

Table 3. Comparison of calculated and measured maximum dose rate

Location	Maximum dose rates [mSv/hr]			MEST limit [mSv/hr]
	Gammas	Neutrons	Totals	
Surface	0.401	0.050	0.451	2
	(0.170)	(0.040)	(0.210)	
	0.036	0.003	0.039	0.1
	(0.022)	(0.004)	(0.026)	
2 m	0.464	0.048	0.512	2
	(0.250)	(0.040)	(0.290)	
	0.056	0.003	0.059	0.1
	(0.015)	(0.002)	(0.017)	

() : measured data

2.5 차폐선량 측정

Fig 3과 같이 선량률 평가지점(Fig 1, Fig 2)과 동일한 위치에서 Pancake GM 계측기와 BF₃ 계수관을 이용하여 감마선과 중성자를 측정하였고, 그 결과를 Table 3에 나타내었다



Fig. 3. Dose rate measurement

3. 결론

중수로 사용후연료 전용운반용기의 차폐해석 및 실측결과 모두 관련규정의 기술기준을 만족하는 것으로 평가되었다. 한편, 해석결과가 측정결과에 비해 보수적으로 평가된 것은, 운반용기 내 선원항이 균일하게 분포되어 있다는 가정에 기반한 것으로 분석되었다.

해석 및 실측을 통하여 중수로 사용후연료 전용운반용기의 방사선 차폐성능을 입증하였고, 규제기관의 방사선 차폐성능 제작검사에 최종 합격하였다. 이를 통하여 월성원전의 부지내 사용후연료 운반시, 방사선 위해로부터 작업자 및 주변환경에 대한 안전성을 확보하였다.

4. 참고문헌

- [1] Safety analysis report on the HI-STAR 63 package revision 4, Holtec International, pp.302-338, 2009
- [2] ICRP publication 74 : Conversion coefficients for use in radiological protection against external radiation, 74, 1997
- [3] 교육과학기술부고시 제2008-69호, 방사성물질 등의 포장 및 운반에 관한 규정, 2008

사용후핵연료 연소도에 따른 주요 핵종의 함량 변화 분석

임혜인, 엄성호*, 서지선*, 박세환*, 신희성*

UST, 대전 유성구 과학로 113

*한국원자력연구원, 대전 유성구 대덕대로 1045

hvein_lim@kaeri.re.kr

1. 서론

핵임계 안전성 분석은 핵임계 안전의 보수성을 확보하기 위하여 핵연료가 연소되지 않은 상태, 즉 신핵연료로 가정하여 수행하는 것이 일반적이다.

그러나 연소도에 의한 핵연료의 반응도의 감소를 고려하는 연소도 효과(burnup credit)를 적용한다면 사용후핵연료의 저장 및 수송 용량을 30% 이상 증대시킬 수 있다. 현재, 한국에서는 발전소 사용후핵연료 저장조에, 미국과 유럽에서는 수송용기 중 일부에 연소도 효과를 적용하고 있으며, 일본에서도 연소도 효과적용과 관련하여 활발한 연구가 진행되고 있다.

Burnup Credit을 효과적으로 활용하기 위해서는 사용후핵연료에 포함된 핵종량을 정확히 파악해야 하는데, 특히 사용후핵연료 집합체의 축방향 연소도 분포를 정확히 측정하는 것이 중요하다. 30GWd/MTU 이상의 연소도에서는 집합체 평균 연소도 값을 기준으로 계산한 핵임계도 값이 축방향 연소도 분포를 고려한 핵임계도 값보다 낮기 때문에 핵임계도 관점에서 보수성을 확보할 수 없기 때문이다(End Effect). 따라서 사용후핵연료 집합체의 축방향 연소도 분포자료가 필수적이다.

지난 추계 방폐학회에서 발표한 '사용후핵연료 축방향연소도 분포의 그룹화에 따른 핵종량 변화 분석' 논문에서는 사용후핵연료봉 축방향 연소도 분포를 그룹화한 후, ORIGEN계산을 통해 얻은 데이터를 분석하였다[1]. 그룹화는 울진 2호기의 K23 집합체를 길이방향으로 3등분한 것을 초기 데이터로 정하여 그 것을 기준으로 연소도가 급격히 변하는 양 끝부분의 간격을 보다 더 세밀하게 설정하였다. 핵임계도 값에 크게 영향을 미치는 U-235와 Pu-239의 핵종량 변화를 관찰하였는데, 그룹화에 따른 최대 핵종량의 차이는 U-235의 경우엔 7.8%, Pu-239의 경우엔 3.5%의 차이를

보였다.

현재, KAERI에서는 사용후핵연료의 정확한 연소도 및 핵종 분포 파악을 위하여 '사용후핵연료 연소도 효과적용을 위한 연소도분포 측정기술 개발 과제'를 수행하고 있다. 과제의 일환으로 수행된 본 연구는 연소도에 따른 핵종량 변화 분석을 목적으로 핵임계도 값에 크게 영향을 미치는 주요 Actinide 원소와 Fission Product의 핵종량 변화 및 Cs-134, Cs-137, Ru-106의 핵종량과 연소도의 관계를 관찰하였다. 또한 이 결과는 그룹화에 따른 연소도 차이의 원인을 심층적으로 분석하기 위해 사용되었다.

2. 본론

2.1 원자로 연소코드 계산-ORIGEN

계산에 사용된 울진 2호기의 K23 집합체는 17X17 배열, 4.2wt%의 초기 농축도를 가지고 있으며, 1316일의 연소일과 44.410GWd/MTU의 연소도, 냉각기간 1730일의 연소이력을 포함하고 있다. 이러한 사용후핵연료 집합체의 정보를 바탕으로 ORIGEN 계산을 수행하였다.

2.2 데이터 분석

사용후핵연료 축방향 연소도 분포의 그룹화에 따른 핵종량 변화분석에서 사용한 정보를 이용하여 6.318GWd/tU부터 50.756GWd/tU까지의 연소도에서 핵종량 변화 분석연구를 수행하였다.

본 연구에서는 Actinide 원소인 U-235, U-236, U-238, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Pu-242와 Fission Product인 Cm-242, Cm-244, Ru-106, Cs-134, Cs-137, Eu-154를 분석 데이터로 사용하였다.

2.2.1 Actinide와 Fission Product의 핵종량 변화
연소도와 핵종량의 관계를 살펴보면, 예상했던 대로 연소도가 높을수록 핵분열을 일으키는

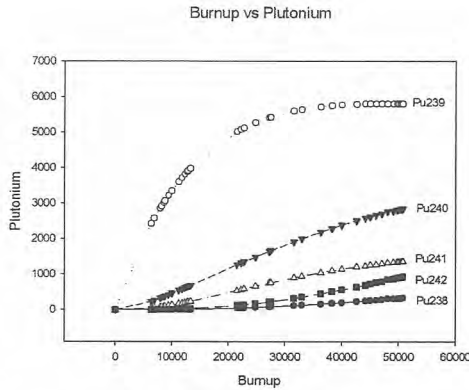


Fig. 1. Plutonium vs Burnup

U-235, 핵연료의 대부분을 차지하는 U-238의 양은 감소하였고, 나머지 핵종들을 모두 증가하였다. 특히 U-236과 Pu-239, Pu-241은 완만한 기울기를 보이며 증가한 반면, Pu-238, Pu-240, Pu-242, Cm-242, Cm-244, Ru-106, Cs-134, Eu-154는 고연소도에 근접할수록 급격하게 증가하는 것을 볼 수 있었다. 또한, Cs-137은 연소도와 선형적으로 증가함을 볼 수 있었다.

Table. 1. Regression result

	y0	a*	b	c	R ²
U-235	41888.6	-1.176	1.20E-5	-4.81E-11	1.0000
U-236	84.2	0.239	-3.37E-6	1.78E-11	0.9998
U-238	957792.8	-0.607	-6.19E-7	-2.80E-11	0.9999
Pu-238	4.40	-0.002	1.73E-7	-2.81E-13	0.9998
Pu-239	198.94	0.402	-9.92E-6	8.27E-11	0.9982
Pu-240	-70.98	0.045	1.12E-6	-1.72E-11	0.9996
Pu-241	-44.95	0.008	1.19E-6	-1.61E-11	0.9992
Pu-242	15.23	-0.006	5.36E-7	-1.19E-12	0.9998
Cm-242	0.0002	-1.3E-7	1.71E-11	-1.56E-16	0.9999
Cm-244	-1.91	0.0007	-5.97E-8	1.59E-12	0.9993
Ru-106	-0.02	4.95E-5	3.25E-9	-1.23E-14	1.0000
Cs-134	0.07	-1.60E-5	1.83E-8	-3.19E-14	0.9999
Cs-137	0.31	0.033	-9.99E-11	-2.26E-14	1.0000
Eu-154	0.21	-8.45E-5	1.90E-8	-1.34E-13	0.9999

$$* f=y_0+ax+bx^2+cx^3$$

2.2.2 핵종비율과 연소도의 관계

핵종비율과 연소도의 관계를 파악하기 위하여 Cs134와 Cs137의 비율, Ru106과 Cs137의 비율 및 (Cs134/137)²과 (Ru106/Cs137)의 비율을 계산하였는데, 세 비율 모두 연소도와 선형적인 그래프로 나타났다[2].

2.2.3 연료봉 그룹화에 따른 핵종량 비교 분석

연료봉을 등분했을 때, 각 등분한 핵종량 차이의

원인을 파악하기 위해 같은 조건에서 그룹화한 후 각 그룹의 핵종을 분석하였다. 평균연소도 20GWd/tU의 등분하지 않은 한 개의 연료봉과 각각 10GWd/tU, 30GWd/tU의 연소도를 가지는 경우를 고려해 보았다. 두 연료봉의 평균연소도는 20GWd/tU로 동일하지만 그 안에 포함되어 있는 핵종량의 차이는 U-235의 경우 3.67%, Pu-239는 9.64%였다. 이는 사용후핵연료에 포함된 핵종의 함량이 선형적으로 증가하지 않기 때문인 것으로 고려된다. 참고문헌 [1]에서 핵종의 함량 차이가 나타난 것 역시 이러한 이유에 기인한 것으로 추정된다.

3. 결론

본 연구는 현재 KAERI에서 수행하고 있는 사용후핵연료 연소도 분포 측정과제에서 사용후핵연료의 연소도의 변화와 핵종량의 관계를 파악하기 위하여 수행되었다. 연소코드인 ORIGEN-S 계산 결과를 바탕으로 사용후핵연료의 연소도를 변화시키며 핵임계도값에 크게 영향을 미치는 주요 Actinide, Fission Product 핵종량을 확인하였다.

그룹화에 따른 U-235, Pu-239의 핵종량 차이가 3.67%, 9.64%로 나타난 이유는 연소도와 핵종함량을 나타낸 그래프에서 확인할 수 있었다. 연소도와 선형적인 관계를 보이는 Cs-137의 경우 그룹화에 따른 차이가 0.05%로, 그룹화 경향에 관계없이 거의 일정한 양을 나타낸 것과는 달리, U-235, Pu-239는 고연소도로 갈수록 급격한 기울기 변화를 보이기 때문에 그룹화의 영향이 상대적으로 큰 것으로 생각된다.

앞으로 보다 다양한 핵종분석을 통해 연소도와 핵종 함량의 관계를 파악할 것이며, 사용후핵연료 집합체 감마/중성자 측정 데이터를 본 연구결과와 연계하여 사용후핵연료의 연소도 분포측정 과제에 기여해 나갈 계획이다.

4. 참고문헌

- [1] 임혜인 외 5인, "사용후핵연료 축방향 연소도 분포의 그룹화에 따른 핵종량 변화분석", 한국방사성폐기물학회 학술논문요약 (2009).
- [2] H.S. Shin 외 4인, "Non-destructive Burnup Determination of PWR Spent Fuel Using Activity Ratio Cs-134/Cs-137", ISRS (2001).

사용후핵연료 수송방안분석 프로그램 개발 시나리오 예비 구성 및 DB 예비설계

신상원, 이수홍, 이재민, 백창열*, 윤정현*

에네시스, 대전광역시 유성구 구암동 328

*한국방사성폐기물관리공단, 대전광역시 유성구 덕진동 1045

swshin@enesys.co.kr

1. 서론

사용후핵연료의 소의수송은 안전성에 대한 대국민 신뢰도를 확보해야할 뿐만 아니라, 방사성폐기물기금의 효율적인 운용을 위하여 기술성, 안전성, 경제성을 고려한 최적의 수송방안 수립이 필수적이다. 이를 위한 사용후핵연료 수송 방안 분석 프로그램은 요구사항분석-설계-프로그래밍-테스트-검증-유지보수 등의 단계를 통해 개발된다. 요구사항 및 업무 분석을 위해 사용후핵연료 수송 현황, 규정 및 법규 조사를 수행하였고, 국내외 수송방안분석 절차 및 방법론 분석을 통해 수송방안 프로그램 개발을 위한 소프트웨어 기능적 요구사항을 도출하였다.

본 연구에서는 사용후핵연료 수송방안분석 프로그램 설계단계에서 기능적 요구사항을 구체화하는 수송관련 시나리오 예비 구성 및 DB 예비 설계 업무에 대해 소개하고자 한다.

2. 본론

2.1 수송시나리오 예비 구성

수송방안분석을 위해서는 다양한 구성요소와 영향인자들이 변수로 작용하여 시나리오를 생성하고, 이에 대한 비교·평가가 수반되어야 한다. 제조/유통기업의 운송 관련 업무의 비효율성을 극복하고 물류혁신을 이루기 위해서는 가장 먼저 해당기업의 정확한 수준과 현실을 파악하는 것이 중요하다. 이를 위해서는 크게 4가지 구성요소-인프라, 프로세스, 시스템, 물동량-에서 분석이 이루어져야 한다고 한다.[1] 사용후핵연료의 특수성(위험도, 중량 등)을 고려한다면 물류혁신을 위한 진단체계를 사용후핵연료 수송방안분석에 충분히 활용할 수 있다고 판단한다. 이에 4가지 측면에서의 구성요소별 인자들을 분석하고 영향인자를 도출하였다.

인프라의 경우, 중간저장시설에 대한 저장방식,

저장방식별 저장용량 및 시설수명, 위치, 수송선박의 제원, 적재 및 하역방식, 수송차량의 방식 및 소요수량, 선하역장비의 종류, 취급 크레인 용량, 수송용기의 적재용량 및 평가대상 수송용기에 대해 주요 가정 및 결정사항을 도출하였다.

수송 물량의 경우, 수송대상 사용후핵연료 기준으로서 최대연소도, 최대 농축도, 최소 냉각기간에 대해 설정하고, 1단계 물량으로서 전체물량, 연간 수송량 및 수송 기간과 수송개시/종료년도, 대상원전, 원전 수명 기간, 수송선박의 수송용기 최대저장량에 대한 주요 가정 및 결정사항을 도출하였다.

프로세스의 경우, 수송관련 작업특성에 따라 중간작업과 연속작업으로 분류하고, 작업시간에 대해서는 연간작업시간, 수송용기 장전/반출시간, 중간저장시설에서의 수송용기 수납/저장시간, 선·하역시간, 수송선박 최대 항해일수를 가정하고, 선박항해시간은 부지위치별 발전소간의 거리와 시간을 설정하였다.

시스템의 경우, 비용평가를 위한 주요항목으로 초기투자비, 연간운영비에 대해서 항목을 도출하고, 수송선박 연간 운영비 상세항목을 선정하였다. 인건비에 대한 비용평가 항목과 주요작업을 위한 소요인력을 선정하였다. 수송관련 영향인자는 구성요소 중 인프라분야의 수송선박 최대 수송용기 적재량, 중간저장시설 위치, 수송용기 운용수량으로 나타났으며, DB 개념설계 및 소프트웨어 요구사항 명세서 작성에 국한하여 중간저장시설이 울진이북 지역과 영광 이북지역에 위치한다고 가정하고, 각 부지에 대한 수송선박의 최대 적재용량을 10개, 15개, 20개로 가정한 6개의 시나리오를 도출하였다.

2.2 수송방안 DB 예비 설계

사용후핵연료 수송방안 분석 프로그램 개발을 위해서는 어떤 데이터가 존재하는지 또는 구축에 필요한 정보는 무엇인지 분석할 필요가 있다. 이

데이터를 시스템 구축 방법론을 적용하여 분석하고 설계하여 정보시스템을 구축하는 것을 Data Modeling이라고 할 수 있다. 이러한 과정은 일반적으로 계획수립, 요구사항분석, 개념설계, 논리설계, 데이터베이스 구축, 입출력 프로그램 구현 등의 절차를 거친다. [2]

2.2.1 ERwin Data Modeler를 이용한 논리/물리적 DB 모델링

ERwin Data Modeler는 데이터간의 관계와 비즈니스 룰을 분석 / 설계하는 논리모델링 작업, 퍼포먼스를 고려한 테이블 구조를 분석 / 설계하는 물리모델링 작업을 할 수 있으며, 간단한 조작으로 ERD (Entity Relationship Diagram) 작성이 가능하다.[3] Fig 1은 수송시나리오 예비 구성 데이터를 기반으로 실제 ERwin에서 작성한 ERD 화면이다. 인프라, 물량, 프로세스, 시스템에 대한 구성 요소는 DB 모델링상에서 엔티티로 도출되고, 각각의 속성들이 정의되며, 그 관계를 설정하였다. 이 과정에서 개념설계와 논리설계가 완료된다.

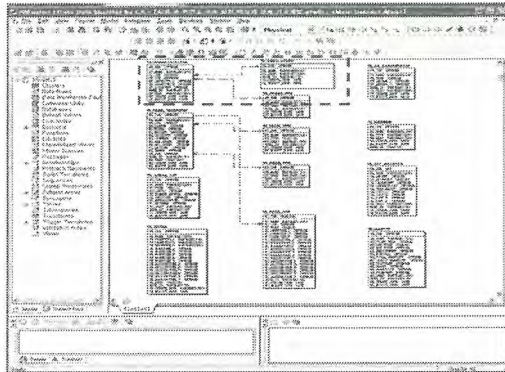


Fig. 1. logical/Physical modeling using ERwin

ERD작성 이후 실제 DBMS에 생성할 DB 테이블 정의서를 Fig 2에 나타냈다. 인프라 관리, 물량관리, 프로세스 관리, 시스템관리, 공통관리 및 시나리오 관리 테이블 등으로 구성되며, 각 속성에 대한 컬럼명, 변수 속성, 길이, 설명 등에 대한 정보를 담고 있다. ERD와 테이블 정의서는 설계단계의 기본적인 산출물에 해당한다.

속성명	인프라 관리	물량 관리	프로세스 관리	시스템 관리	공통 관리	시나리오 관리
SEQ	COLUMNNAME	TYPE	LEN	NULL	ATTRIBUTE	비고
1.	INF_ID	INT	3	NOT	인프라관리용, 기본번호	
2.	INF_NAME	VARCHAR	100	NOT	인프라관리용, 이름	
3.	INF_DESC	TEXT	2000	NOT	인프라관리용, 설명	
4.	INF_STATUS	INT	3	NOT	인프라관리용, 상태	

Fig. 2. Example of DB Table specification

2.2.2 Toad for Oracle 프로그램을 이용한 Oracle 서버 테이블 및 속성값 입력

본 연구에서는 데이터베이스관리시스템(DBMS)으로 공공기관에서 주로 사용하고 있는 Oracle Database 10g을 이용하였다. ERD 및 테이블 정의서를 기반으로한 DB 테이블 생성 및 각 속성 데이터 입력은 Fig 3에서 나타난 것과 Toad for Oracle 프로그램을 이용하였다.



Fig. 3. Creating Oracle DB Table using TOAD

3. 결론

사용후핵연료 수송방안 분석 프로그램 개발을 위한 요구사항 분석 및 설계를 위해 수송관련 구성요소 및 영향인자를 조사하고 예비 시나리오를 구성하였다. 이를 바탕으로 데이터 모델링 툴 등을 이용하여 DBMS상에 실제 DB 테이블을 생성하였다. 향후 수송방안분석 프로그램 개발 설계 단계의 소프트웨어 요구사항 정의서를 작성하고, 단위프로그램에 대한 프로그래밍작업을 수행할 예정이다.

4. 참고문헌

- [1] LG CNS Entru Consulting Partners의 물류혁신 동향(trends)과 사례-제조/유통기업의 수배송 혁신
- [2] 데이터베이스 모델링, Wellbook, 우철자
- [3] 물류데이터베이스 실무, 21세기사, 김진수

감마선 선량 측정을 이용한 사용후핵연료 집합체 연소도 분포 도출 연구

박세환, 신희성, 엄성호, 임혜인

한국원자력연구원, 305-353 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

ex-spark@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 연소도는 핵물질 안전 조치 및 핵연료의 이송, 저장시 반드시 필요한 핵임계안전성 측면에서 정확한 결정을 필요로 하고 있다. 특히 핵연료 집합체 축방향의 연소도 분포는 고연소도 핵연료의 경우 (> 30 GWD/tU) 핵임계 안정성 측면에서 고려되어야 한다. 본 연구에서는 핵연료 집합체의 제어봉(control rod) 내에 이온 챔버를 삽입하여 선량 분포를 측정하고 이를 이용하여 집합체의 평균 연소도를 도출 방안에 대하여 연구하였다.

2. 본론

2.1 감마선 측정

감마선 측정을 이용한 집합체 내 축방향 선량 분포는 이온 챔버를 이용하여 측정되었다. 제어봉 내에 한쪽 끝이 밀봉된 검출봉을 삽입하고 그 내부에 이온 챔버를 삽입한 후 이온 챔버의 위치를 이동시키면서 측정하였다. 측정 대상은 한국원자력연구원 내 조사후연구시설에 보관 중인 고리 1 호기에서 3 주기 연소된 OFA 집합체 (C15)를 대상으로 진행되었으며, 총 16개의 제어봉에 대하여 데이터를 획득하였다. 그림 1은 측정이 진행된 사용후핵연료 집합체를 나타내며, 자세한 실험 장치 및 측정 결과는 추후 발표할 예정이다.

2.2 연소도 분포 도출 연구

사용후핵연료의 연소도 분포를 결정하기 위하여 쓰이는 방식은 collimator를 장착한 감마선 측정을 수행하여 감마선 분포를 도출하고, 연소도 절대값은 화학분석으로 결정한다. 본 연구에서는 감마선 측정을 위하여 지름 12.83 mm 내 제어봉에 이온 챔버를 삽입하였으며, 이 경우 측정시 collimator를 두기가 불가능하다. 따라서 집합체 내의 에너지 감소가 허락되는 범위내에서 사용후핵연료 연료봉의 여러 영역에서 발생하는 감마선이 동시에 이온 챔버 측정치에 영향을 미치게

된다. 따라서 연소도 분포 결정을 위하여 추가 보정을 필요로 한다.

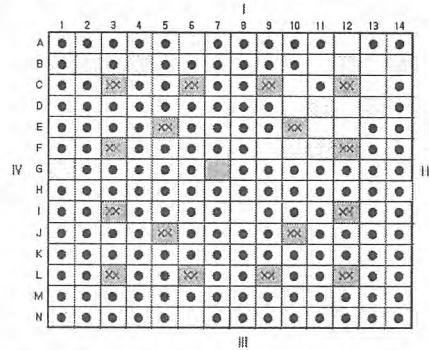


Fig. 1. Schematics of the Spent Fuel Assembly. The gamma dose profile of the assembly was measured with the ion chamber. xx marks means the measuring position, and closed circles means the spent fuel rods.

사용후핵연료에 남아 있는 대표적인 감마선 방출 핵종은 Cs-137으로, 연소도와 감마선 선량 사이에 선형적 관계가 있다고 알려져 있다. 이 경우 특정 위치 감마선 선량 γ_i 와 연소도 B_i 사이에는

$$\gamma_i = \sum_j \epsilon_{(i-j)} B_{(i-j)} \quad (1)$$

의 관계가 유지된다. 여기서, $\epsilon_{(i-j)}$ 는 각 지점에서 일어나는 발생한 감마선 방출량과 감마선이 이온 챔버 측정 위치에 도달하여 측정되는 검출 효율을 나타낸다. 이 때 근사 계산으로 연소도 $B_{(i-j)}$ 사이의 관계는 집합체에서 추출한 연료봉 대하여 측정된 감마선 스캔 분포값을 대입하였다. 특정 제어봉의 감마선 측정 위치에 대하여 주위를 둘러싸고 있는 핵연료봉은 1차적으로 가까운 영역, 2차적으로 가까운 영역, 3차적으로 가까운 영역 등으로 구분이 가능하다. 즉, 1차 영역에는 8개의 핵연료봉이 2차 영역에는 16개의 핵연료봉이 위치한다.

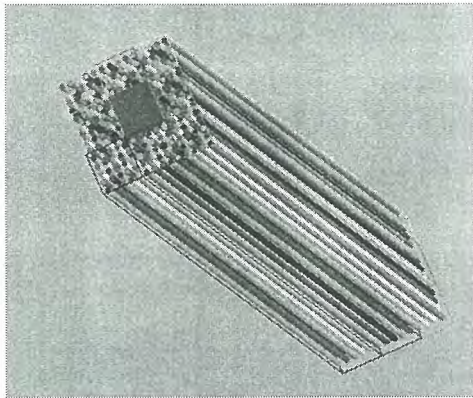


Fig. 2. Geometrical Description of the Spent Fuel Assembly simulated with MCNPX.

각 영역의 대표적 위치의 연료봉에 대하여 연소도와 검출기가 위치한 지점의 감마선 선량 간의 상관관계를 MCNP와 ORIGEN을 이용하여 구하였다. 즉, 연료봉은 화학 분석시 감마선 스캔을 이용하여 얻은 연소도 분포 (B)를 가지고 있다고 가정할 경우 연료봉 길이 방향으로 각 위치에서 측정되는 감마선 선량값 (γ)을 구하였다. 집합체 길이 방향에 대하여 각 지점에서 측정된 감마선 선량값에 B/γ_i 값을 곱하여 집합체 전체의 연소도 분포를 도출하였다. 이 때 각 영역의 연료봉이 측정 선량에 미치는 영향은 공표된 연료봉의 연소도를 이용하여 도출하였다.

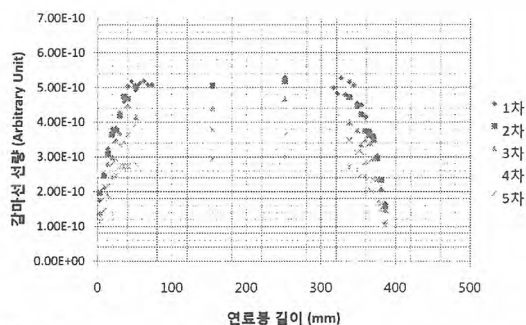


Fig. 3. Dose variation along the assembly axis, which was obtained from ORIGEN and MCNPX simulation.

3. 결론

사용후핵연료의 축방향 연소도 분포는 핵물질 안전 조치 및 핵임계 안전성 측면에서 정확한 측정이 필요하다. 본 연구에서는 집합체 제어봉에

감마선 측정용 이온 챔버를 삽입하여 그 분포를 측정한 후, 이를 이용하여 연소도 분포 도출을 위한 알고리즘을 개발하였다. 또한 연소도 분포 도출을 위하여 ORIGEN, MCNPX를 이용한 시뮬레이션을 수행하였다. 본 연구 결과는 핵물질 안전 조치 및 핵물질 관리 기술 발전에 기여할 것이 기대된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 원자력중장기연구개발사업 및 지식경제부 방사성폐기물관리기술사업의 지원으로 이루어졌습니다.

5. 참고문헌

- [1] H. Toubon, C. Riffard, M. Batifol, S. Pelletier, Burn-up Credit Applications for UO₂ and MOX Fuel Assemblies in AREVA/COGEMA, International Conference on Nuclear Criticality Safety, 2003.
- [2] International Atomic Energy Agency, Implementation of Burnup Credit in Spent Fuel Management Systems, IAEA-TECDOC-1013, 1997.

사용후핵연료 건식 중간저장시설의 안전등급 분류방안에 관한 고찰

정제학, 이윤근

한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 과학로 34

radwaste@kins.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 중간저장에는 부지 선정, 설계, 제작, 건설, 운영 및 해체단계 등이 포함되며, 이 중 설계단계에는 주요 구조물·계통 및 기기(SSCs)의 안전등급, 내진범주 및 품질등급을 분류하는 과정이 필수적이다. 이 논문에서는 국내에 도입될 가능성이 높을 것으로 예상되는 콘크리트 캐스크 방식 건식 중간저장시설의 주요 SSCs에 대한 안전등급 분류와 관련, 국내의 요건 및 적용사례 등을 고찰하고 그 적용방안을 제시하였다.

2. 본론

2.1 국내요건

원자력관계법령에서는 “안전에 중요한 구조물·계통 및 기기는 안전기능의 중요도에 상응하는 안전등급 및 규격에 따라 설계·제작·설치·시험 및 검사되어야 한다”고 규정하고 있으며, 발전용원자로의 안전등급을 1, 2 및 3과 비안전등급으로 분류하고 있다[1]. 위 규정들은 사용후핵연료 중간저장시설에 직접 적용되는 것은 아니지만, 원전 사용후핵연료 임시저장시설과 중간저장시설의 설계·안전특성의 유사성을 고려할 때, 중간저장시설에도 위 규정을 사안별로 준용할 수 있을 것이다.

한편, '08년 한국원자력안전기술원이 도출한 “사용후핵연료 중간저장시설의 안전성분석보고서 작성지침(안)”에서는 주요설계기준의 일환으로 안전중요도, 내진설계 고려사항 및 품질보증의 관점에서 설계시 채택한 SSCs의 등급 분류기준을 안전성분석보고서에 제시하도록 하고 있다.

2.2 건식 중간저장시설의 주요 안전특성

건식 중간저장시설의 안전기능은 격납, 책임제, 차폐, 열제거, 구조적건전성, 운영지원 등으로 분류할 수 있으며, 콘크리트 캐스크 시스템의 주요 구조물과 계통은 Fig. 1과 같이 요약할 수 있다.

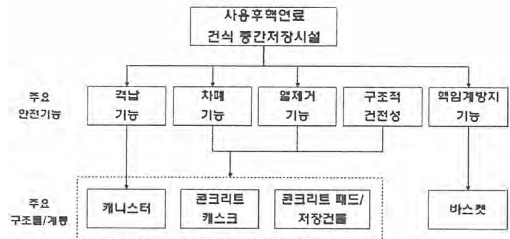


Fig. 1. Structures and systems important to safety at a concrete cask-type spent fuel interim storage

2.3 안전등급 분류방법

우선 개별 SSC가 전체 시설의 종합적인 안전특성에 기여하는 수준에 따라 주요 SSCs의 안전등급을 차등적으로 분류하는 성능/리스크기반 접근방법을 고려할 수 있다. 이 경우 정상, 비정상 및 사고조건에서 개별 SSC가 시설 안전제한치를 유지하는데 기여하는 수준을 정량적으로 평가해야 하며, ANSI/ANS-57.9에 제시된 설계사건(design event)을 기본 시나리오로 고려할 수 있다[2]. 그러나 이와 같은 정량적인 평가를 통해 SSCs의 안전등급을 부여하는 접근방법은 아직까지 폭 넓게 적용되지 못하고 있다.

실제 국내의 원전에서는 정량적인 평가 보다 안전기능에 대한 정성적인 평가기준에 따라 개별 SSC의 안전등급을 부여하는 방법이 널리 적용되고 있다. 미국 NRC는 중간저장시설의 SSCs에 대한 안전등급을 A(안전운전에 결정적인 역할을 하는 것), B(안전에 중요한 영향을 주는 것), C(안전성에 미치는 영향이 미미한 것) 등으로 정성적으로 구분하는 방안을 제시한 바 있다[3].

2.4 해외사례

Table 1은 NUREG/CR-6407에 제시된 콘크리트 건식 저장시스템의 주요 SSCs별 안전등급 분류방식과 실제 저장시스템(HI-STORM 100: Multi-Purpose Canister, 오버팩, 이송캐스크로 구성)에 적용된 안전등급 분류체계를 비교한 것이다[4].

Table 1. Safety classification of major SSCs at a concrete-shielded spent fuel dry storage system

기능	콘크리트 건식 저장시스템의 안전등급	
	NUREG/CR-6407	HI-STORM 100 적용사례
격납 기능	안전등급 A - 배수/배기/누설감지 - 포트 플러그 - 배수/배기포트 플러그 및 압력완화장치 밀봉 - 캐니스터 바닥/뚜껑 - 캐니스 몸체 - 캐니스터 뚜껑 밀봉 - 캐니스터 상단부 - 뚜껑 폐쇄장치 - 압력완화장치	안전등급 A MPC(헬, 바닥판, 뚜껑, 폐쇄링, 포트 덮개판)
임계 제어	안전등급 A - 바스켓 집합체 - 중성자흡수체	안전등급 A MPC(바스켓셀판, 중성자 흡수체)
차폐	안전등급 A - 감마선차폐체 - 캐니스터 상부 차폐플러그 안전등급 B - 중성자차폐체	안전등급 A - MPC(감마선차폐체, 캐니스터 상부차폐플러그) 안전등급 B - MPC(이중뚜껑) - 오버팩(방사형차폐체, 차폐 블록, 뚜껑차폐링, 차폐블록 몸체, 바닥차폐체, 뚜껑차폐체, 차폐블록, 받침플랫폼, 뚜껑의부밍, 베기차폐) 안전등급 C - MPC(배기/배수차폐블록) - 오버팩(감마선차폐교판/캡) 비안전등급 - MPC(천공플러그)
열 제거	비안전등급 온도조절기기	안전등급 B 오버팩(배기구수평/수직/ 측면, 열차폐체/링)
구조적 건전성	안전등급 B - 콘크리트기초/지붕 슬라브 - 콘크리트구조물접근 볼트 - 캐니스터 지지구조물 안전등급 C - 캐스크 장치 - 콘크리트 지지패드	안전등급 A - MPC(리복체, 바스켓지지대 [각판, 중간거울체 연결평판]) 안전등급 B - MPC(핵연료상/하단지지부 중판, 바닥판, 외벽, 내벽, 받침면, 받침판, 뚜껑바닥판, 뚜껑셀, 흡기구수평/수직판, 상판, 뚜껑상판, 방사형판, 뚜껑스티드/너트, 뚜껑와셔, 볼트앵커블록, 채널, 채널마운트, 기초바닥판, 기초지지블록, 기초차폐블록, 기초상판, 기초지지대, 뚜껑 내부밍, 뚜껑방사형보강판, 뚜껑폐쇄블트, 뚜껑요개판, 뚜껑전단밍) 안전등급 C - MPC(인양러그/바닥판, 배기구차폐블록지지대) 비안전등급 - MPC(꺼움체, 바스켓 지지대[평판], 뚜껑폐쇄 볼트취급장치)
운영 지원	안전등급 A - 인양러그/제결장치 및 고정장치 - 인양러그/제결장치 볼트 안전등급 B - 출입문인양러그, 차폐 출입문, 이송 캐스크 안전등급 C - 지붕슬라브인양장치, 보안 잠금아이어/밀봉	안전등급 B - 오버팩(뚜껑인양블록) 안전등급 C - MPC(배기/배수튜브, 배기/배수캡, 손상연료 용기) - 오버팩(온도감지장치, 뚜껑 스티드와셔) 비안전등급 - MPC(배기/배수캡 밀봉와셔/볼트, 배수포트 감소판, 배수관/안내관) - 오버팩(저장표지판, 배기 여과판, 배수관, 급/배기여과 프레임, 스크린, 도장, 뚜껑 베기덕트, 뚜껑스티드 / 지지대, 뚜껑 스티드캡) ※ 이송캐스크(HI-STAR 100)는 SSCs에 따라 A~비안전등급

2.5 안전등급 결정절차

주요 SSCs의 안전등급은 허가신청자가 안전성 분석보고서에 서술한 후 규제기관의 안전심사를 통해 확정되어야 한다. 따라서 Fig. 2에 도시한 바와 같이 정성적 분류기준에 따른 허가신청자의 SSC별 안전등급 초안에 대한 심사를 통해 필요 시 정량적 평가를 통해 확정하는 방안을 고려할 수 있다.

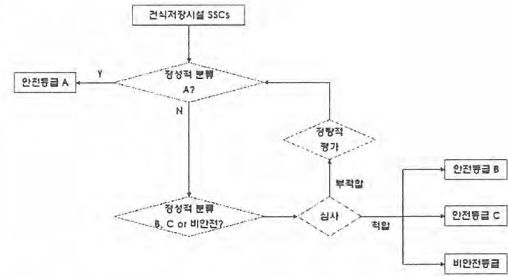


Fig. 2. Proposed stepwise process for determination of safety classes of major SSCs

3. 결론

아직까지 국내에 도입될 사용후핵연료 중간저장 시스템의 설계가 결정되지 않은 상태에서 주요 구조물·계통 및 기기의 표준 안전등급을 사전에 설정할 수는 없으나, 우선 정성적인 분류기준에 기초하여 개별 안전등급 초안을 제안하고 필요한 경우에 국한하여 개별 구조물·계통 및 기기가 시설의 안전제한치를 유지하는데 기여하는 수준을 정량적으로 평가하는 절차를 고려할 수 있다.

4. 참고문헌

- [1] 교육과학기술부, 원자력시설의 안전등급과 등급별 규격에 관한 규정 고시(과기.원자.015), 2008.
- [2] ANSI/ANS-57.9, Design Criteria for an Independent Spent Fuel Storage Installation (Dry Type), 2000.
- [3] US NRC, Classification of Transportation Packaging and Dry Spent Fuel Storage System Components According to Importance to Safety, NUREG/CR-6407, 1996.
- [4] Holtec International, Final Safety Analysis Report for the HI-STORM 100 Cask System, Rev. 5, 2007.

중간저장 시설 방식선정을 위한 사용후핵연료 발생 전망 분석

김태만, 최윤지, 조천형, 윤정현

한국방사성폐기물관리공단, 대전시 유성구 대덕대로 1045

tmkim@krmc.or.kr

1. 서론

우리나라의 사용후핵연료 수송·저장시스템의 개념 수립에 있어 우선적으로 수행되어야 할 것이 저장시설의 저장용량을 결정하는 것이다. 이를 위해서 현재 상용운전중인 원전의 사용후핵연료 발생량과 향후 건설예정인 원전에서의 발생량을 예측하는 것이 필수적이다. 특히, 제4차 전력수급 계획에 건설계획에 따른 전력수요 예측을 반영한 2070년까지의 상용원전 설비용량을 가정한 사용후핵연료 발생 전망에 대한 분석이 필요하다.

이에 본 연구에서는 국제원자력기구(IAEA)에서 제안하고 있는 사용후핵연료 발생전망 평가기법을 활용하여 국내 발생전망을 평가하고, 중간저장 시설의 수요 용량을 산정하여, 방식을 선정하기 위한 근거자료로 활용하고자 한다.

2. 본론

2.1 사용후핵연료 발생전망 평가 기법

상용원전에서 발생하는 사용후핵연료의 예상 발생량을 평가하는 방법은 다음과 같이 주요 세가지 기법이 가장 많이 사용된다.

2.1.1 핵연료 재장전 계획 이용법

이 방법은 원자로에서 연소된 핵연료를 재장전할 때 노심에서 교체·인출되는 사용후핵연료의 양을 기준으로 평가하는 방법이다. 이 방법을 이용할 경우 사용후핵연료 외에 기타 폐기물의 수량까지 함께 계산할 수 있으며, 원전 운영자의 재장전계획(재장전 일정, 재장전시 인출할 핵연료 수량 등)이 정확하다면 비교적 정량적인 예측이 가능하다.

2.1.2 연간발생량 이용법

과거 해당원전에서 연간 발생한 자료를 바탕으로 연간 평균 발생량을 산출하여 예측평가하는 방법이나, 장기적 예측에는 불확실성이 크다.

2.1.3 원전 설계·운전변수 이용법[1]

이 방법은 원전의 열효율 및 이용률, 핵연료의 초기농축도 및 방출연소도 등 각종 설계 및 운전 변수를 이용하여, 특정 원전에서 매년 평균적으로 발생하는 사용후핵연료의 수량을 예측하는 방법이다. 이 방법은 특정 국가에서 사용후핵연료의 중간저장 또는 처분시설의 용량 등을 사전에 예측하기 위한 목적으로 사용된 바 있으며, 주로 다수의 원전에서 장기적으로 발생하는 사용후핵연료의 수량을 추정하는데 사용되고 있다. 어떤 원전에서 매년 평균적으로 발생하는 사용후핵연료의 수량(톤/y)은 수식(1)과 같이 나타낼 수 있다.

$$UG_{SNF} = \frac{NC \cdot 365.25 \cdot CF}{\epsilon_{te} \cdot BU} \quad (1)$$

여기서, UG_{SNF} = 사용후핵연료의 연평균 발생량(MTU/y), NC = 원전 설비용량(MWe), ϵ_{te} = 원전의 열효율(MWe/MWth), CF = 원전 이용률, BU = 사용후핵연료 평균 방출연소도(MWth · d/MTU), 365.25 = 1년간 일수 환산계수(d/y)이다.

2022년 이후까지의 장기적인 원전 운용계획이 확정되지 않은 상황에서는 본 기법을 적용하는 것이 가장 타당할 것으로 판단하였으며, 이를 활용한 IAEA의 Nuclear Fuel Cycle Simulation System(NFCSS)을 시스템을 활용하였다.[2]

2.2 발생전망 평가를 위한 가정사항

본 발생량 전망평가에서 기본적으로 적용될 가정사항은 2009년~2022년까지의 4차 전력수급기본계획을 기반으로 수립하였다.[3] 본 기본계획에서는 폐로 계획없이 기존 20기와 신규건설 12기의 용량을 합하여 2022년 국내 원전 총발전량은 32,916MWe으로 제시하고 있다. 본 연구에서 2022년 이후는 최대전력 수요 연평균 1.9% 증가를 적용하였으며, 최대 전력설비 용량은 최대 전력수요 대비 12~24%증가가 수급안전 용량임을 감안하여 연평균 18% 증가를 적용하였다. 이에 2050년 총 전력설비 용량은 164,140MWe이며, 원전 설비비

중은 2022년 발전 설비 기준 33%를 적용하여 2050년 최대 원전설비용량은 133,447MWe 임을 가정하였다.

2.2.1 원전설비용량 가정사항

현재까지 수립된 가정사항을 바탕으로 다음과 같이 4가지 원전설비용량에 대한 세부가정 사항을 수립하였다.(Fig.1) 특히, 본 가정에서 원전의 설계수명은 고리1호기와 월성1호기는 50년(설계수명 30년, 10년씩 2회 계속운전), 그 외 원전은 60년(설계수명 40년, 2회 계속운전)을 가정하였다.

- 가정1 : 2050년까지 전체 원전수(32기)/발전량 동일(전원전 계속운전 가정)
- 가정2 : 2050년까지 전체 원전수(32기)/발전량 동일(수명종료 원전 폐로)
- 가정3 : 2050년까지 수명종료 원전에 대하여 1,400MW급 APR 신규원전으로 대체되어 가동, 전체 원전수는 동일하되 발전량은 증감
- 가정4 : 총전력설비의 33%를 요구하는 원전필요설비 충족, 폐로없이 계속운전 및 신규원전 지속 건설

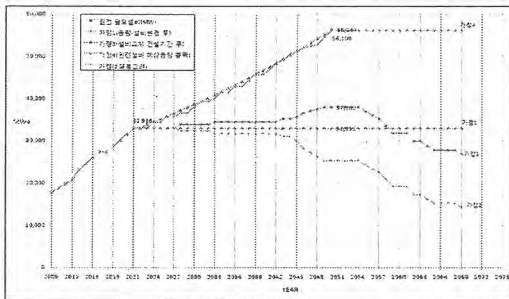


Fig. 2. Capacities of NPPs by assumptions

2.2.2 초기농축도/연소도, 이용율/효율 가정사항

2010년 이후 전 원전의 초기농축도와 방출연소도에 대한 가정은 PWR의 경우 4.5%, 55,000MWD/MTU로 설정하였으며, CANDU의 경우 0.7%, 7,200MWD/MTU이다. 이용율의 경우 전 원전 90%를 가정하였으며, 효율의 경우 PWR(35%), CANDU(33%)를 가정하였다.

2.3 발전전망 평가 및 결과

본 연구를 통한 2010년부터 2070년까지의 국내 상용원전에서 발생하는 사용후핵연료의 발생량은

시나리오별로 평가 하였다.(Table 1)

Table 1. Result of assumptions

단위 : MTU

가정	PWR	CANDU	TOTAL
가정1	29,106	23,437	52,543
가정2	25,628	16,421	42,049
가정3	30,908	17,358	48,266
가정4	40,282	17,358	57,640

3. 결론

본 연구에서는 사용후핵연료 중간저장시설의 설계용량을 설정하기 위해 향후 2010년부터 2070년까지의 원전설비용량과 이용율 등을 가정하여 발전전망을 평가하였다. 평가결과 가정2가 가장 낮게 평가되었으며, 가정4가 가장높게 평가 되었다. 이를 바탕으로 사용후핵연료 수송·저장시스템 개념설계를 위한 Ground Rule의 시설용량은 PWR 핵연료만을 고려하여 30,000MTU를 설정하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 지식경제부의 방폐물관리기술개발 중장기기획과제의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] International Symposium on Nuclear Fuel Cycle and Reactor Strategy: Adjusting to New Reality, Key Issue Papers, International Atomic Energy Agency (IAEA), Vienna, 1997.
- [2] Nuclear Fuel Cycle Simulation System, 2009, <http://www-nfcis.iaea.org>
- [3] 제4차 전력수급기본계획, 지식경제부, 2008

LSDTS 장치 차폐 예비 평가

노경용, 박창제, 이용덕, 이정원
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
ky-noh@kaeri.re.kr

1. 서론

민감 핵물질의 핵종별 분석을 위한 LSDTS 시스템은 ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Am 등과 같은 특별한 물질을 해석하기 위하여 디자인 하였다. 그러나 이 시스템은 높은 세기의 약 1×10^{12} neutrons/s 의 중성자를 방출한다. 본 연구에서의 예비 차폐 평가는 단순화된 모델로 중성자의 차폐를 실시하였으며, 이에 대해 MCNPX 코드를 이용한 몬테칼로 계산을 통해 다양한 차폐재 두께에 대한 민감도 평가를 수행하였다. 아울러 중성자에 대한 다단계 선원 평가방법을 도입하여 계산의 효율을 향상시켰다.

2. 본론

중성자 차폐 평가시 구형의 납을 일정 간격으로 나눈 후 각각의 단계에서 셀의 importance를 증가시켜 분산감소기법을 적용하였다. 그리고 기하학적인 모델 및 선원을 분리하여 SSW와 SSR 기능을 사용하여 크게 2단계로 나누어 계산을 하였다. Fig. 1은 중성자 차폐 평가를 위해 2단계로 나눈 MCNP 계산 모델을 보여주고 있다.

계산순서는 초기 중성자 선원을 모델 1의 원점에 위치시킨 후 외부면에서 F2 tally로 스펙트럼을 구하여 SSW로 그 결과를 WSSA 파일에 저장한다. 이 파일을 RSSA로 변경 후 입력으로 받아들여 모델 2의 원점에 다시 위치시켜 모델 2의 외부면에서 F2 tally로 스펙트럼을 구하였다.

2.1 콘크리트 제원에 따른 차폐 평가

기존의 구형의 모델 보다 실제에 가까운 입방체 모형을 대상으로 차폐 예비 평가를 수행하였다. 매질은 납으로 구성되어 있고 $100 \text{ cm} \times 100 \text{ cm} \times 100 \text{ cm}$ 의 규격으로 구성되어 있다.

최외각 콘크리트 차폐재에서 축방향으로 10등분을 나누어 Split Tally (FS)를 수행하였다. 일반 콘크리트와 헤비콘크리트를 이용하여 FS tally의 결과는 예상한 바와 같이 중성자 선원의 축방향 높이와 비슷

한 위치에 조사선량이 가장 높았으며 이 경우 24 cm의 일반 콘크리트가 필요하다는 것을 알 수 있다. 일반 콘크리트가 대신 밀도가 두 배 정도인 헤비콘크리트를 차폐재로 이용한 경우 일반 콘크리트보다는 두께별 외부 조사선량은 줄었으나 예상만큼 크게 줄지 않은 약 20 cm 정도가 필요한 것으로 나타났다. 이는 지수함수로 방사선량이 감소하고 콘크리트 내에 중성자 감속재의 영향이 밀도와 비례하지 않기 때문이다. Fig. 2는 일반콘크리트와 헤비콘크리트의 상호 비교를 나타내고 있다.

2.2 폴리에틸렌 두께별 방사선량

강한 중성자 선원을 효율적으로 차폐하기 위해 콘크리트를 포함한 다중 방어 개념을 도입하고자 중성자 차폐에 효과적인 폴리에틸렌 콘크리트 내벽에 첨가하여 차폐평가를 수행하였다. 폴리에틸렌은 최대 5 cm로 두고 평가하였다. 기준 선량을 $1 \times 10^{-4} \text{ mSv/h}$ 로 정하였을 경우 폴리에틸렌의 두께가 0 cm 인 경우는 일반콘크리트가 약 24cm 이상 되어야 하고, 폴리에틸렌의 두께가 2cm 인 경우는 일반콘크리트가 약 20cm 이상되어야 하며, 폴리에틸렌의 두께가 5cm로 증가한 경우 일반콘크리트는 약 15cm 정도로 줄일 수 있음을 확인하였다.

2.3 B4C 두께별 방사선량

중성자 다중 차폐 개념을 추가하여 폴리에틸렌에 중성자 흡수능이 우수한 B_4C 를 추가하는 예비 차폐평가를 수행하였다. B_4C 는 콘크리트와 폴리에틸렌 내벽에 위치하는 것으로 가정하였고 추가로 B-10이 천연상태에서는 20 wt%로 존재하는 것을 90 wt%로 농축하는 것도 같이 고려하여 평가하였다. Fig. 4.은 일반 B_4C 와 농축 B_4C 를 배치한 경우의 차폐 결과를 보여주고 있다. 예상한 바와 같이 농축 B_4C 를 이용한 경우 차폐효과가 우수함을 확인하였다.

3. 결론

대표적인 몬테칼로 코드인 MCNPX (version 2.5.0)을 이용하여 초기선원에서 중성자가 1×10^{12} 개가 나온다는 가정 하에 방사선량을 계산하였다. 중성자와 산란 기준 조사선량인 1×10^{-4} mSv/h 이하에 적합한 콘크리트의 두께를 외부 표면에서 축 방향으로 일정 간격으로 나누어 tally (FS 스플릿)로 최대 외부 조사선량을 평가하였다. 일반 콘크리트만으로 외부 차폐재로 구성한 경우 약 24 cm 가 필요하였고 헤비 콘크리트의 경우 약 20 cm 정도가 요구되었다. 폴리에틸렌을 내벽에 2cm 정도 배치한 경우 일반 콘크리트의 경우 약 4 cm 정도 줄어든 효과가 있었고 폴리에틸렌을 5cm 쌓았을 경우 약 9 cm 정도 감소 효과가 있었다. 그리고 B₄C를 내부에 배치한 경우 B-10을 농축한 경우 더욱 우수한 중성자 차폐 효과를 얻을 수 있었다.

3. 감사의 글

본 연구는 원자력연구원의 기본연구사업의 일환으로 수행되었습니다.

4. 참고문헌

- [1] Y.D. Lee, N.M. Abdurrahman, R.C. Block, D.R. Harris, and R.E. Slovacek, "Design of a Spent-Fuel Assay Device Using a Lead Spectrometer," Nucl. Sci. Eng., 131, 45 (1999).
- [2] D. Rochman, R.C. Haight, J.M. O'Donnel, A. Michaudon, S.A. Wender, D.J. Vieira, E.M. Bond, T.A. Bredeweg, A. Kronenberg, J.B. Wilhelmy, T. Ethvignot, T. Granier, M. Petit, and Y. Danon, "Characteristics of a Lead Slowing-Down Spectrometer Coupled to the LANSCE Accelerator," Nuclear Instruments and Methods in Physical Research A, 550, 397 (2005).
- [3] H. Krinninger, E. Ruppert, and H. Siefkes, "Operational Experience With the Automatic Lead-Spectrometer Facility for Nuclear Safeguards," Nucl. Instr. Methods, 117, 61 (1974).
- [4] N. Baltateanu, M. Jurba, V. Calian, G. Stoenescu, "Optimal Fast Neutron Sources Using Linear Electron Accelerators," Proceedings of EPAC 2000, pp.2591-2593,

Vienna, Austria (2000).

- [5] D.B. Pelowitz, MCNPX User's Manual, LA-CP-05-0369, Los Alamos National Laboratory, 2005.

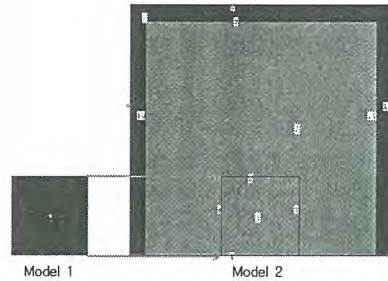


Fig. 1. Configuration of neutron shielding problem.

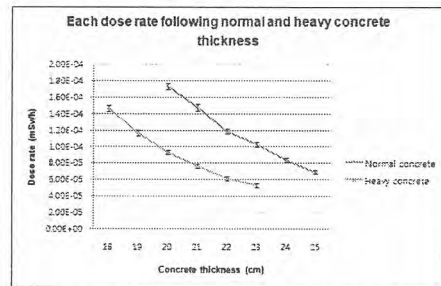


Fig. 2. Compare dose rate according to normal concrete and heavy concrete thickness.

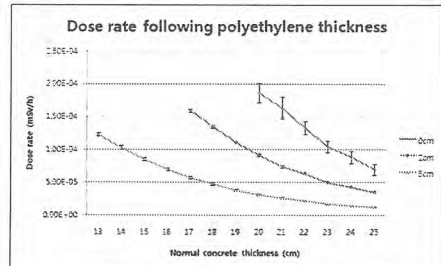


Fig. 3. Dose rate according to polyethylene thickness.

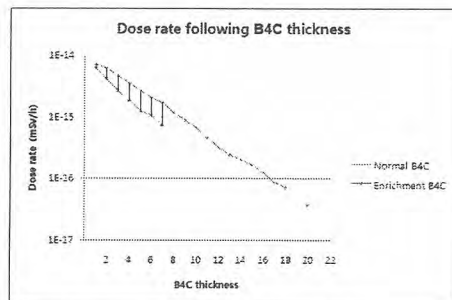


Fig. 4. Dose rate according to B₄C thickness.

KSC-1 수송용기 격납평가

방경석, 이주찬, 서중석, 민덕기, 서기석
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
nksbang@kaeri.re.kr

1. 서 론

사용후핵연료를 안전하게 운반하기 위한 운반용기는 교육과학기술부고시 제2008-69호 및 IAEA Safety Standard Series No. TS-R-1 등에서 규정하고 있는 조건들에 만족하여야 한다[1~2]. 이들 규정들에서는 B형 운반용기는 두 개의 격납경계를 가져야 한다고 규정하고 있다. 따라서, 원자력 발전소에서 방출되는 사용후핵연료 1다발을 원자력연구원으로 운반하기 위한 KSC-1 수송용기에 대해 NUREG/CR-6487에서 규정하고 있는 격납 해석방법에 따라 허용 누설률을 산출하여 격납평가를 수행하였다[3].

2. 정상조건에서의 격납

2.1 격납경계 설계기준

KSC-1 수송용기에 적재되어 운반되는 운반물로는 14×14 WH STD 1 Ass'y, 16×16 WH STD 1 Ass'y, 17×17 WH STD 1 Ass'y, 14×14 KNF OFA 1 Ass'y, 16×16 KNF SFA 1 Ass'y, 17×17 KNF V5H 1 Ass'y, 16ACCE7 12 fuel rods, 17ACE7 12 fuel rods, 17RFA fuel rods Guardian 12 fuel rods 및 PLUS7 12 fuel rods가 있으며, 이들 핵연료를 운반할 경우에 계산된 내부 cavity 온도 128.5 °C 및 내부압력 3.1 atm을 격납경계 설계기준으로 설정하였다.

2.2 허용누설률

방사능량은 전산코드 ORIGEN-2를 사용하여 계산을 수행하였으며, 격납평가는 총 방사능량이 5.25×10^4 TBq(1.42×10^6 Ci)로 가장 높은 KNF-V5H 사용후핵연료 1 Ass'y를 KSC-1 수송용기에 운반하는 경우에 대하여 수행하였다.

허용 방출률을 계산하기 위해서는 방사성 핵종의 종류에 따라 방출되는 분량을 적용하여 방출 제한치인 A_2 값을 구해야 하며, 방사성 동위원소 핵종의 방출 제한치인 A_2 value가 동일한 동위원소는 가장 큰 값을 갖는 방사성 동위원소를 대표

로 취하여 합산 후 처리하였다.

정상조건에 대한 방사성 동위원소 핵종의 방출 제한치인 등가 A_{2eq} 값은 아래 식(1)에 의해 $2.41 \text{ TBq}(6.50 \times 10^1 \text{ Ci})$ 로 계산되었으며,

$$A_{2eq} = \frac{1}{\sum F_i/A_2} = 2.41 \text{ TBq} \quad \dots\dots\dots (1)$$

방사능의 허용 방출률(R_N)은 식 (2)에 의해 $6.70 \times 10^{-10} \text{ TBq}(1.81 \times 10^{-8} \text{ Ci/s})$ 로 계산되었다.

$$R_N = A_{2eq} \times 10^{-6} \times \frac{1}{3600} \text{ TBq/s} \quad \dots\dots\dots (2)$$

허용 누설률은 단위 시간당 격납 경계로부터 누설되는 유체의 허용 체적이므로 단위 체적 당 방사능 농도로부터 결정된다.

KSC-1 수송용기의 cavity 체적은 $445,259 \text{ cm}^3$, 핵연료 1 Ass'y의 체적은 $76,645 \text{ cm}^3$, basket의 체적은 $89,906 \text{ cm}^3$ 이므로 자유체적(V)은 $278,708 \text{ cm}^3$ 이다. 따라서, 단위체적 당 방사능 농도(C_N)은 식 (3)로부터 $2.59 \times 10^{-4} \text{ Ci/cm}^3$ 로 계산되었다.

$$C_N = \frac{R_N}{V_N} \text{ TBq/m}^3 \quad \dots\dots\dots (3)$$

정상조건에서의 허용 누설률(L_N)은 식 (4)로부터 $6.98 \times 10^{-5} \text{ cm}^3/\text{sec}$ 로 계산되었다.

$$L_N = \frac{R_N}{C_N} \quad \dots\dots\dots (4)$$

2.3 공기/헬륨 기준 누설률

단위체적당 허용 누설률(L_N)은 운반용기의 압력 및 온도로부터 독립적이다. 따라서, 누설시험을 수행하기 위해서는 허용 누설률은 기체의 온도, 압력 및 누설 통로에 의존하는 공기 기준 누설률(Reference air leakage rate) 또는 헬륨 기준 누설률(Reference helium leak rate)로 변환되어야 한다. KSC-1 수송용기의 누설시험의 매체로는 공기 또는 헬륨을 사용하여 누설시험을 수행할 예정이다. 따라서 공기 기준 누설률 및 헬륨 기준 누설률을 산출하였다.

공기 또는 헬륨누설에서의 유체흐름은 상류 조건이므로 공기 기준 누설률(L_{Air}) 및 헬륨 기준 누

설률(L_{He})은 식 (5)에 의해 표 1과 같이 공기 기준 누설률은 3.34×10^{-5} ref · cm/sec, 헬륨 기준 누설률은 4.60×10^{-5} ref · cm/sec로 평가되었다.

$$L_{He} = (F_c + F_m) (P_u - P_d) (P_d/P_u) \text{ cm/s} \dots\dots\dots (5)$$

2.4 습식운반

KSC-1 수송용기를 습식으로 운반할 경우 액체상의 누설은 식(8)로부터 5.88×10^{-6} cm/sec로 평가되었으며, 액체상의 방사능 방출률은 법규 제한치인 $A_2 \times 10^{-6}$ Ci/hr 보다 작은 1.72×10^{-1} Ci/hr로 계산되었다.

$$L_{He} = F_c (P_u - P_d) \text{ cm/s} \dots\dots\dots (6)$$

습식운반 시 기체상의 누설은 식 (5)에 의해 8.05×10^{-5} cm/sec로 평가되었으며, 기체상의 방사능 방출률은 법규 제한치인 $A_2 \times 10^{-6}$ Ci/hr 보다 작은 1.65×10^1 Ci/hr로 계산되었다. 따라서, 액체상 및 기체상에 대한 방사능 방출률은 모두 법규 제한치에 비해 작기 때문에 KSC-1 수송용기는 습식으로 운반할 수 있다.

3. 사고조건에서의 격납

3.1 격납경계 설계기준

KSC-1 수송용기의 사고조건에서의 격납경계 설계기준은 운반사고조건에 경우에 계산된 내부 cavity 온도 210.0 °C 및 내부압력 39.5 atm을 격납경계 설계기준으로 설정하였다.

3.2 허용누설률

사고조건에 대한 방사성 동위원소 핵종의 방출 제한치인 등가 A_{2eq} 값은 아래 식(1)에 의해 4.07 TBq(1.10×10^2 Ci)로 계산되었으며,

방사능의 허용 방출률(R_A)은 식 (7)에 의해 6.73×10^{-6} TBq(1.82×10^{-4} Ci/s)로 계산되었다.

$$R_A = A_{2eq} \times \frac{1}{3600 \times 24 \times 7} \text{ TBq/s} \dots\dots\dots (7)$$

사고조건에서의 단위체적 당 방사능 농도(C_N)은 식 (3)로부터 2.9×10^{-2} Ci/cm³로 계산되었고, 허용 누설률(L_A)은 식 (4)로부터 6.28×10^{-3} cm/sec로 계산되었다.

3.3 공기/헬륨 기준 누설률

식 (5)에 의해 공기 기준 누설률은 표 2와 같이 2.47×10^{-4} ref · cm/sec, 헬륨 기준 누설률은 3.06×10^{-4} ref · cm/sec로 평가되었다.

4. 결 론

KSC-1 수송용기는 국내 · 외 운반용기 관련 법규에서 요구하고 있는 정상운반조건 하에서 방사능 방출률이 10^{-6} · A₂/hour 이하를 유지하여야 하며, 이 조건은 공기 기준 누설률인 3.46×10^{-5} ref · cm/sec 또는 헬륨 기준 누설률인 4.75×10^{-5} ref · cm/sec 이하로 유지함으로써 만족된다.

운반사고조건 하에서 방사능 방출률은 A₂/week 이하를 유지하여야 하며, 이 조건은 공기 기준 누설률인 2.47×10^{-4} ref · cm/sec 또는 헬륨 기준 누설률인 3.06×10^{-4} ref · cm/sec 이하로 유지함으로써 만족된다.

5. 참고문헌

- [1] 교육과학기술부 고시 제2008-69호, "방사성물질 등의 포장 및 운반에 관한 규정".
- [2] IAEA Safety Standard Series No. TS-R-1, "Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material", 2005 Ed.
- [3] NUREG/CR-6487, Containment Analysis for Type B Packages Used to Transport Various Contents, 1996.

Table 1. 정상조건에서의 허용 누설률 및 기준 누설률

NORMAL CONDITIONS OF TRANSPORT GAS SHIPMENT CALCULATED LEAK RATES			
Normal Operation Hole Size	Reference Leak Rate	Helium Test Leak Rate	
Air (Radioactive)	Air	Helium	
a (ring dia) 1/8 Centimeter	a (ring dia) 1/8 Centimeter	a (ring dia) 1/8 Centimeter	
Viscosity (cP) 0.0204 Centipoise	Viscosity (cP) 0.0183 Centipoise	Viscosity (cP) 0.0204 Centipoise	
D (hole diameter) 6.45E-04 Centimeter	D (hole diameter) 6.40E-04 Centimeter	D (hole diameter) 6.40E-04 inches	
Temperature 402 K	Temperature 320 K	Temperature 295 K	
Fc 4.57E-05	Fc 5.34E-05	Fc 5.23E-05	
Fm 4.54E-05	Fm 1.59E-05	Fm 4.28E-05	
Maximum Allowable Leak Rate 6.39E-05 cm/s	Reference Leak Rate 3.46E-05 cm/s	Helium Test Leak Rate 4.75E-05 cm/s	

Table 2. 사고조건에서의 허용 누설률 및 기준 누설률

HYPOTHETICAL ACCIDENT CALCULATED LEAK RATES			
Hypothetical Accident Hole Size	Reference Leak Rate	Helium Test Leak Rate	
Air	Air	Helium	
a (ring dia) 1/8 Centimeter	a (ring dia) 1/8 Centimeter	a (ring dia) 1/8 Centimeter	
Viscosity (cP) 0.0204 Centipoise	Viscosity (cP) 0.0183 Centipoise	Viscosity (cP) 0.0204 Centipoise	
D (hole diameter) 1.673E-03 inches	D (hole diameter) 1.673E-03 inches	D (hole diameter) 1.673E-03 inches	
Temperature 295 K	Temperature 295 K	Temperature 295 K	
Fc 3.19E-04	Fc 4.20E-04	Fc 4.11E-04	
Fm 2.77E-04	Fm 7.49E-05	Fm 2.01E-04	
Maximum Allowable Leak Rate 6.28E-03 cm/s	Reference Leak Rate 2.47E-04 cm/s	Helium Test Leak Rate 3.06E-04 cm/s	

다목적 핫셀운반용기 및 접속시스템 개발

최우석, 이상훈, 서기석, 김호동
 한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
wschoi@kaeri.re.kr

1. 서 론

한국원자력연구원에서는 서로 다른 목적으로 사용할 수 있는 3가지 종류의 핫셀 운반용기 개념설계를 완료하였다. 개념설계가 완료된 3가지 종류의 핫셀 운반용기에 대하여 개념도를 작성하였으며, 제작성 및 구조건전성 평가를 위한 축소모델을 제작하였다. 향후 PRIDE 및 ESPF에 적용을 위해 개발된 핫셀 운반시스템은 현재 운영되고 있는 운반시스템과는 다른 방식의 운반시스템이다. 따라서, 개발된 신규 핫셀 운반시스템은 현재 운영되고 있는 ACPF와의 호환성은 없었다. 그러나, 현재 운영되고 있는 운반시스템과의 호환 필요성이 제기됨에 따라서, 하나의 기본용기를 변형하여 여러 가지 목적으로 사용가능한 운반용기의 개발 필요성이 대두되었다. 서로 다른 복수의 용기를 각각 설계해야 하는 상황에서 운반용기의 본체를 공유하고 서로 다른 뚜껑을 교체 및 결합하여 각각의 목적에 따라 사용할 수 있는 용기를 개발하였다. 그리고 이를 일반 방사성물질 운반용기로도 사용할 수 있도록 확장하였다. 또한 개발된 운반용기의 접속시스템을 개발하였다.

2. 핫셀운반용기 및 접속시스템

개발된 3가지 핫셀 운반용기는 편의상 1) 회전개폐형 핫셀운반용기, 2) 상하개폐형 핫셀운반용기, 3) 일반 운반용기라 명명하였다. 각 용기의 개략도는 Fig. 1에 나타나 있다. 개발된 핫셀 운반용기의 설계는 다분야의 설계요건들을 기초로 하여 이루어졌다. 예를 들면, 하중나하장치를 구성하여 취두한 9 m 낙하높이에 대한 완충재질의 재료동특성 데이터, 충격완충체 거셋의 위상최적설계 결과, 충격완충체 1/6 축소모델을 이용한 완충구조 성능시험 등을 바탕으로 하여 충격완충체가 설계되었고, 차폐·임계해석, 열 해석, 구조해석 등 다분야의 해석 및 설계과정을 통해 최적화 평가가 이루어졌다. 3가지 종류의 운반용기에 대한 개

념설계를 완료하여 설계도면, 3차원 전산모델을 제작하였으며, 1/2 축소모델의 제작을 수행하였다.

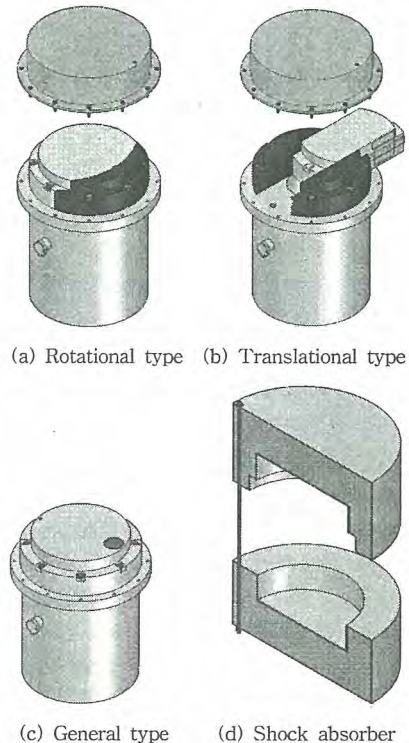


Fig. 1. Three different hotcell transport package and shock absorber

2.1 회전개폐형 핫셀운반용기

회전개폐형 핫셀운반용기의 뚜껑은 회전개폐장치를 이용하여 개폐된다. 이는 PRIDE 및 ESPF 시설에 적용할 예정으로 개발되었다. 회전개폐형 핫셀운반용기의 구조는 다음과 같다. 뚜껑은 회전뚜껑과 고정뚜껑으로 구성되며, 회전편을 중심으로 회전뚜껑이 회전하여 캐니스터의 내부이송로가 확보된다. 운반용기 뚜껑위에는 누설방지용 뚜껑이 존재하며 double O-ring이 가공되어 있다. 평상시에는 고정뚜껑과 회전뚜껑 사이에 위치한 잠금장치로 인해 회전뚜껑이 회전하지 못하지만,

운반용기가 대차위에 접속하여 핫셀 리어 도어에 부착되면 잠금장치의 버튼이 눌러져서 회전뚜껑의 잠금이 해제되며 회전이 가능하게 된다. 1차 격납경계는 운반용기 내부의 컨테이너가 되고, 2차 격납경계는 회전뚜껑 및 고정뚜껑을 감싸는 누설방지용 뚜껑이 되어 이중 격납을 유지한다. 운반용기의 이송을 위해 lift rig가 운반용기 중심부에 위치하며, 운반용기 상하부에는 낙하사고 시 충격흡수를 위한 충격완충체가 부착된다.

2.2 상하개폐형 핫셀운반용기

상하개폐형 핫셀 운반용기의 뚜껑은 회전개폐장치를 이용하여 개폐된다. 신규 핫셀용기를 개발함에 있어 기존에 사용되고 있던 Padirac 시스템의 리어도어와의 연계성이 고려된 운반용기 필요성이 대두되었다. Padirac 시스템의 접속 메카니즘은 sliding을 통한 개폐가 구현되는 시스템이다. 상하개폐형 핫셀운반용기의 구조는 다음과 같다. 운반용기 뚜껑에 기존 접속시스템 리어도어와의 호환을 위한 단차를 가공하였다. Sliding을 통해 상하 개폐되는 뚜껑을 제외하면 본체와 누설방지용 뚜껑은 “회전개폐형 핫셀 운반용기”의 뚜껑과 동일하다. 중앙부위에 위치한 뚜껑이 sliding을 통해 위로 밀려 올라가면 캐니스터의 내부이송경로가 확보된다. 평상시에는 sliding 뚜껑을 고정시키는 잠금장치로 인해 뚜껑이 고정된다. 운반용기가 대차 위에 접속하여 핫셀리어도어에 부착되면 잠금장치의 버튼이 눌러져서 sliding 뚜껑의 잠금이 해제된다. 1차 격납경계는 운반용기 내부의 컨테이너가 되고, 2차 격납경계는 누설방지용 뚜껑이 되어 이중 격납을 유지한다. 운반용기의 이송을 위해 lift rig가 운반용기 중심부에 위치한다. 운반용기 상하부에는 낙하사고 시 충격흡수를 위한 충격완충체가 부착된다.

2.3 일반 운반용기

일반 운반용기는 본체를 공유하고 뚜껑을 교체하여 일반적인 방사성물질을 운반하는 용기로 사용하기 위하여 설계되었다. 일반 운반용기는 격납경계가 “회전 개폐형 핫셀 운반용기” 및 “상하 개폐형 핫셀 운반용기”와 다르다. 일반 운반용기의 구조는 다음과 같다. double O-ring이 본체와 뚜껑 사이에 존재하여 이중 격납을 유지한다. 대신 누설방지용 뚜껑은 없다. double O-ring 사이의 누설시험용 포트가 가공되어 있다. 뚜껑은 본체에

볼트로 고정되며 내부 캐니스터는 없다. 운반용기의 이송을 위해 lift rig가 운반용기 중심부에 위치한다. 운반용기 상하부에는 낙하사고 시 충격흡수를 위한 충격완충체가 부착된다.

2.4 접속시스템

다목적 핫셀 운반용기 3종 가운데 회전형 핫셀 운반용기의 접속시스템을 개발하였다. 개발된 접속시스템은 회전형 개폐장치를 이용한 핫셀 접속시스템으로 개략도 및 축소모형을 Fig. 2에 나타내었다. 개발된 접속시스템은 4톤 중량 운반용기 취급가능 이송 대차(대차, 회전개폐장치, 정렬장치, 접속레일, 모터), 리어도어(원형리어도어, 지지로울러) 및 운반용기 취급장치로 구성되어 있다. 개발된 접속시스템은 뚜껑의 개폐 중에도 지속적으로 차폐가 유지되며, 개방 후 내부이송경로를 제외한 공간의 차폐가 유지된다. 또한, 작업자의 방사능 피폭 저감, 내부이송경로의 불연속부 최소화를 통한 용기 진동 및 충격 저감 등의 장점을 가진다. 개발된 접속시스템의 축소모형을 제작하여 제작성, 작동성을 검증하였다. 이송대차의 하단부에는 4개의 정렬 레버가 있어 운반용기 뚜껑 상부면과 리어도어가 접속할 때 정렬이 잘 될 수 있도록 6개의 자유도를 조절할 수 있다.

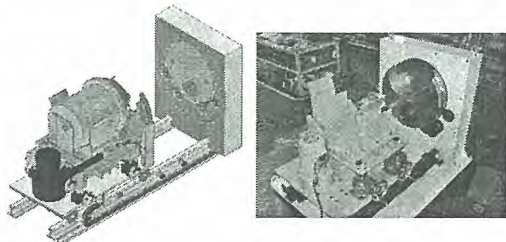


Fig. 2. Transport cart and connection system

3. 결론

신규 핫셀 운반용기 3종과 회전개폐형 핫셀운반용기의 접속시스템을 개발하였다. 개발된 운반용기 3종은 유한요소해석을 통해 건전성을 평가하였고 안전성 평가를 위한 시험을 수행할 예정이다. 1/2 축소 접속시스템이 제작되었고 작동성이 검증되었다. 개발된 다목적 운반용기 및 접속시스템은 각각 특허 출원 및 등록되었으며 향후 PRIDE 및 ESPF의 적용을 위해 인허가 과정을 진행 중이다.

사용후핵연료 수송용기의 과도화재 전산시물레이션 방안분석

이주완, 방경식, 서기석, 김형진*, 윤정현*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

*한국방사성폐기물관리공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

siclee@kaeri.re.kr

1. 서론

911 테러 이후 사용후핵연료 수송저장시스템에 대한 설계 외 중대사고(차량, 선박 및 비행기 충돌, 화재, 강진 등)의 영향에 대한 관심과 규제 측면에서의 요구가 강화되고 있는 추세이며, 국내에서도 2009년도부터 사용후핵연료 수송저장시스템의 중대사고 안전성평가에 관한 연구를 수행하고 있다. 본 연구의 목적은 사용후핵연료 수송저장시스템의 과도화재 전산시물레이션 방안분석을 통하여 중대사고 시나리오 및 전산시물레이션 방안을 도출하는데 있다.

2. 본론

2.1 과도화재 기술현황 분석

2001년 7월 18일 미국의 볼티모어 시내의 Howard Street 터널에서 인화성물질을 싣고 가던 화물열차에서 화재사고가 발생하였다[1]. NRC의 지원으로 미국의 기술표준원인 NIST(National Institute of Standard and Technology), CNWRA(Center for Nuclear Waste Regulatory Analyses), PNNL (Pacific Northwest National Laboratory) 등 3개 기관의 전문가로 연구팀을 구성하여 화재 원인 분석 및 전산 시물레이션을 수행하였다.

NIST에서 개발된 FDS(Fire Dynamic Simulator) 코드를 이용하여 터널화재조건에 대한 열환경을 예측하였다. 화재 시물레이션 결과 3시간 동안 화재가 지속되었으며, 열방출률, 즉 화재강도는 약 50 MW로 예측되었다. 3시간 동안 터널 내부의 화염 및 차량의 절반 길이에서의 최대온도는 약 1,000 ~ 1,100 °C, 3~4개 차량에 해당되는 터널 길이의 평균온도는 약 500 °C로 계산되었다.

PNNL에서는 FDS 결과를 ANSYS 및 COBRA-SFS 코드의 경계조건으로 고려하여 NRC로부터 인허가 승인된 3종(HI STAR-100, TN-68,

NAC-LWT)의 수송용기에 대한 열적 건전성을 평가하였다. 이들 수송용기는 볼티모어 터널화재 조건에서 crud와 같은 방사성물질의 미세한 누설이 발생하였으나 핵물질의 누설은 발생하지 않는 것으로 분석되었다.

2.2 과도화재 전산시물레이션 방안

연소해석을 포함한 화재 시물레이션을 위해서는 가연성 기체와 산소의 화학반응과 관련된 변수의 설정, 화재성장 조건의 설정, 가연물의 열적 경계조건의 설정, 가연성 고체 또는 액체의 화재시 열전달, 연소 특성치의 입력자료 등 불확실한 요소를 갖는 변수가 많다. 따라서 FDS를 이용한 연소해석은 해석결과에 대한 신뢰성을 충분히 확보하기 어려운 단점이 있으므로 화재성장곡선 및 화재강도를 고려한 터널화재 전산해석 방안을 분석하였다.

PIARC[2]은 터널설계를 목적으로 차량의 화재강도를 제시하고 있으며, 인화성 물질을 실은 화물트럭 1대의 화재강도가 20~30 MW이고 대형+대형차의 충돌에 의한 화재강도가 40 MW 이상이다. 따라서 수송용기를 실은 트럭의 충돌로 인한 화재사고에서는 20 ~ 50 MW 범위의 화재강도를 갖는다. 화재강도는 $Q = \alpha \cdot t^n = (t/k)^2$ 으로 정의되고 ultrafast 화재 성장속도에서 k는 75이고 α 는 0.1876이다. 따라서 위의 식으로부터 화재가 시작된 후 약 330초 이후에 20 MW, 460초 이후에 40 MW의 화재강도를 갖는다. 수송용기를 운반하는 대형 트랙터에 1,000 kg의 경유(연소열 $\Delta H_c = 45 \text{ MJ/kg}$)가 실려져 있을 경우 화재강도 $Q = m \cdot \Delta H_c / t$ 이므로 화재강도가 20 MW일 경우 연소시간(t)은 2,250초로 계산된다. 이와 같이 계산된 화재강도, 화재성장 속도와 연소시간은 터널화재 전산해석을 위한 입력자료로 사용된다.

터널화재 시물레이션을 위해서는 먼저 대상물체 즉, 터널 내에서의 운반차량, 화염의 영역, 터널(입출구, 바닥, 벽 및 천정)의 공간 구성이 정확

히 구현되어야 한다. 특히 터널 내 대류열전달 해석을 위하여 마감재의 마찰계수를 고려하여야 한다. 해석시간을 줄이고 보수적인 평가를 위하여 터널의 바닥, 벽 및 천정을 통한 열전달을 무시할 경우에는 마감재를 무시하고 단열 경계조건을 고려할 수 있다. 터널화재 시뮬레이션을 통하여 얻어진 화염의 온도분포를 경계조건으로 고려하여 수송용기의 온도분포를 계산한다.

2.3 터널화재 전산시물레이션

그림 1은 터널화재 전산해석 모델이며, 해석대상으로 선정된 터널은 길이 100 m, 폭 9.8 m, 높이 7.0 m의 2차선 터널이고, 터널의 중간 부위에 길이 10 m, 폭 2.75 m, 높이 1.0 m의 수송차량을 고려하였다. 수송차량 위에는 0.5 m 높이에 직경 2 m, 길이 5 m의 수송용기가 실린 것으로 가정하였으며, 수송차량 및 용기 주변을 화염영역으로 설정하였다. 차량 화재해석을 모델링하기 위하여 30 MW, 40 MW, 50 MW의 화재강도를 고려하였다.

FLUENT를 사용하여 3차원 유동해석을 수행하였다. 터널 내부의 유동은 난류영역이며, 난류모델은 $k-\epsilon$ 모델을 사용하였고 벽면근처의 처리는 standard wall function을 사용하였다. 대류항과 확산항의 이산화 방법으로는 2차 정확도를 갖는 SIMPLE 알고리즘을 사용하였다. 화염자체 및 터널 벽과 차량, 수송용기 표면에서의 복사를 고려하였으며, 복사열전달 방정식은 구분종좌법(Discrete Ordinates Model)을 사용하였다.

그림 2는 전산해석 결과로서 터널내부의 온도분포를 보여주고 있다. 표 1은 화재강도에 따른 터널내부 주요 부위의 온도를 나타내었다. 화재강도에 비례하여 터널내부의 온도가 증가하였다. 여기에서 계산된 온도는 과도화재 조건에서 수송용기의 열해석을 위한 입력자료로 사용될 예정이다.

3. 결론

화재성장곡선을 이용한 화염의 전파해석을 통하여 터널 내부의 온도분포 계산하고 이들 온도를 경계조건으로 고려하여 수송용기의 열해석을 수행하는 방안을 도출하였다. 또한, 실제 터널화재 조건에 대한 전산시물레이션을 통하여 터널

내부의 온도분포를 계산하였으며, 이 온도를 경계조건으로 주어 과도화재 조건에 대한 수송용기의 열해석을 수행할 예정이다. 향후에는 터널화재 이외의 저장시설 내 밀폐공간에 대한 과도화재 해석을 수행하고 실제 과도화재 시험을 수행하여 전산시물레이션을 검증할 예정이다.

4. 감사의 글

본 연구는 지식경제부의 “지식경제 기술혁신사업”의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

- [1] NISTIR 6902, “Numerical Simulation of the Howard Street Tunnel Fire, Baltimore, Maryland”, NIST, 2002.
- [2] PIARC, “Fire and Smoke Control in Road Tunnel”, World Road Association, Report No. 05.05.B, 1999.

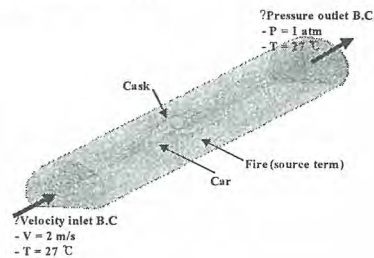


Fig. 1. Thermal model for tunnel fire.

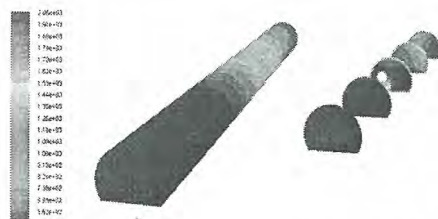


Fig. 2. Temperature contours for tunnel fire.

Table 1. Thermal Analysis Results for Tunnel Fire

	Calculated temperature (°C)		
	30 MW	40 MW	50 MW
Fire flame	834	1067	1388
Environment of cask	652	955	1207
Tunnel wall	297	455	647
Tunnel outlet	177	242	346

판형 용기의 삼중수소 열량계 성능

정동유, 정도연, 구대서, 정홍석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

cdy@kaeri.re.kr

1. 서론

삼중수소는 반감기 12.3 년의 방사성폐기물이지만, 동시에 핵융합연료인 소중한 자원이다. 한국은 미국, EU, 일본, 중국, 인도 및 러시아와 더불어 국제열핵융합실험로 (ITER) 프로젝트에 주도국으로 참여하여 핵융합 핵심 기술을 개발 중이다. 또한 우리나라의 경우 ITER 참여국 중 최대의 산업용 삼중수소 생산국이다[1-3]. ITER용 핵융합로에서는 많은 양의 중수소와 삼중수소를 연료로 사용하며 삼중수소는 급속 수소화 베드에 저장하였다가 핵융합로로 공급된다. 각 베드 내에 삼중수소의 충전량은 핵융합로의 운전 시나리오에 의해 수시로 변경되기 때문에 주기적으로 삼중수소 충전량의 측정이 요구된다. 삼중수소는 약 0.32W/g의 붕괴열을 발생하는데, ITER용 삼중수소 저장·공급 용기 내 잔존하는 삼중수소 충전량을 측정하기 위해 삼중수소 저장·공급 용기 내부에 He-loop를 설치하여 용기를 냉각하고 He에 흡수된 삼중수소 붕괴열을 측정하는 방법을 사용하고 있다. 이와 같은 측정방법은 삼중수소 저장용기의 해체 등의 작업이 필요 없이 삼중수소의 충전량을 측정할 수 있다[3]. 본 실험에서는 $\text{ZrCoH}_{1.0}$ (삼중수소 25 g)과 $\text{ZrCoH}_{1.2}$ (삼중수소 30 g)의 붕괴열을 모사하여 판형 ZrCoH_x bed의 in-bed 열량계 성능을 평가하였다.

2. 본론

2.1 실험장치

Fig. 1은 삼중수소 저장·공급 실험장치이다. 삼중수소 저장·공급 실험 장치는 수소저장 탱크, 매니폴드 및 펌프, 수소 흡탈장 모니터링 장치, 수소 흡탈장 저장용기 제어장치, 데이터 수집 장치, ZrCo bed, He-loop 순환 장치 등으로 구성되어 있다. Bed는 최대 삼중수소 70g 저장이 가능한 1:1 ZrCo SDS bed로 제작되었다. SDS bed는 1차 용기 내부에 3개의 트레이가 존재하고 각 트

레이에는 ZrCo 분말이 충전되어 있고 삼중수소 발열을 모사하기 위한 모사히터와 bed 내 잔존하는 삼중수소의 양을 측정할 수 있는 He-loop, 트레이 가열을 위한 cable형 히터, 1차 용기를 감싸고 있는 열차폐체와 2차 용기 등으로 구성되어 있다. 2차 용기는 진공 또는 He으로 채워져 있다. 열량 측정 시에는 열손실을 최소화하기 위해 진공을 유지하게 된다.

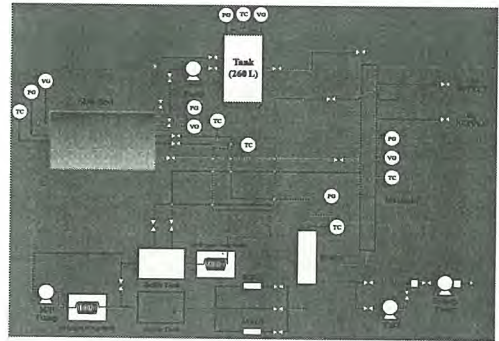


Fig. 1. Experimental apparatus for the evaluation of the SDS bed

2.2 실험방법

이번 실험에 적용된 조건에 대해 간략하게 Table 1에 나타내었다. 본 실험에서는 삼중수소 25 g, 30 g 충전량에 대한 in-bed 열량계 측정을 수행하였다. 모사히터의 input power를 각각 삼중수소 25 g에 해당하는 8 W와 삼중수소 30 g에 해당하는 9.6 W로 설정하였고 He 기체의 유속은 13 SLPM으로 제어하였다. 실험절차는 먼저 2차 용기에 He 기체를 760 torr까지 채우고 삼중수소의 동위원소인 수소를 정해진 양으로 1차 용기 내의 저장재 (ZrCo powder)에 흡장시킨 상태에서 모사히터를 흡장된 수소의 붕괴열에 해당하는 열량으로 가동하여 온도가 안정화 되었을 때 2차 용기의 He gas를 배출시키고 진공을 유지시킨다. 그 다음 He-loop에서 He 기체를 순환시켜 $\Delta T (T_{inlet} - T_{outlet})$ 를 측정한다.

Table 1. Accountancy condition

He gas circulation	Flow rate	13 SLPM
	Pressure	40 kPa
	Inlet temp.	303 K
	He purity	99.9999 %
Vacuum jackets (2nd Vessel)	Pressure	< 0.1 Pa, continuous evacuation
Decay heat simulation	Input power	8 W (Tritium 25 g)
		9.6 W (Tritium 30 g)

2.3 실험결과

Fig. 2, 3은 각각 삼중수소 25 g과 30 g 저장 상태의 경우를 모사하여 실험한 결과를 그래프로 나타낸 것이다. 열량계 가동 준비 단계와 열량계 가동 시간을 합쳐 총 140시간 동안 각각의 조건에 대해 실험을 실시하였다. ΔT 값은 삼중수소 25 g의 경우 17 ~ 18 °C, 삼중수소 30 g의 경우 19 ~ 25 °C로 측정되었다. 일정한 ΔT 값을 얻지 못한 이유는 He 기체의 불안정한 유입 온도 때문인 것으로 판단된다.

3. 결론

본 연구에서는 삼중수소 25 g과 30 g 저장량에 대해 in-bed 열량계 실험을 수행하였다. 위 결과에서 볼 수 있듯이 삼중수소 25 g과 30 g에 대해 실제 측정된 ΔT 의 값이 각각의 이론적인 ΔT 인 39.65 °C (삼중수소 25 g), 47.58 °C (삼중수소 30 g)와 차이가 나는 것을 알 수 있다. 본 실험에서 사용된 판형 bed의 경우 1차 용기와 2차 용기 사이는 진공에 의해 단열이 되고 1차 용기 외부에 열차폐체가 설치되어 있어 복사열을 대부분 차단하기 때문에 열손실이 거의 발생하지 않지만 1차 용기에서 외부로 연결된 관으로 열전도에 의한 열손실이 발생한다. 이것이 실제 측정값과 이론값의 차이를 일으키는 원인으로 판단된다. 따라서 이 부분에 대한 열손실을 최소화하고 He 유입 온도를 일정하게 제어할 수 있도록 설계한다면 보다 정밀하게 삼중수소 충전량을 측정할 수 있을 것이다.

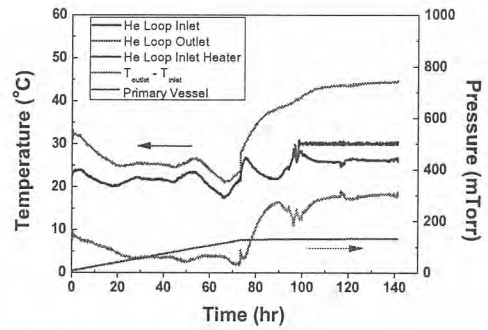


Fig. 2. Temperature variation during inventory (tritium 25 g) measurement

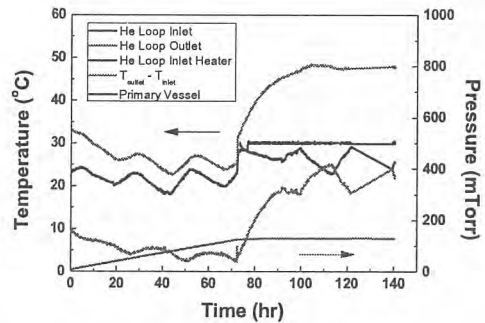


Fig. 3. Temperature variation during inventory (tritium 30 g) measurement

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 국제핵융합실험로 (ITER) 공동개발사업의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

- [1] Fusion Engineering and Design, Vol. 84, pp. 599 - 603, 2009
- [2] Fusion Technology, Vol. 28, pp. 1732, 1995
- [3] Fusion Technology, Vol. 28, pp. 1015, 1995

미국의 사용후핵연료 건식저장용기 인증현황

채경선, 박병목, 신경욱, 박장순, 전상환

세안기술(주), 서울시 금천구 가산동 481-10 벽산디지털밸리2차 910호

gschae7@sae-an.co.kr

1. 서론

요르단 연구용원자로와 UAE 상용원자로 수출등으로 인해 국가경제발전을 위한 국내 원자력산업계 및 관련기관의 기대와 열정이 뜨겁게 달아오르는 시기에 원자력수출국가의 이미지 제고를 위한 사용후핵연료관리를 위한 적극적인 정책 및 기술개발의 중요성도 강조되고 있다. 사용후핵연료관리에 관한 국가정책방향 설정에 따라 2016년경 포화예상되는 국내 가동중인 원자력발전소로부터 발생한 사용후핵연료를 중간저장하기 위한 사용후핵연료 저장시스템의 설계 및 건설·운영을 위한 사전준비와 기술개발이 이루어지고 있다. 사용후핵연료 습식저장방식에 비해 제작 및 관리비용이 저렴하고 안전성과 저장용량 확장 및 운영 용이성을 장점으로 하는 건식저장방식이 주요 국가에서 현실적인 대안으로 검토되고 있는데, 사용후핵연료의 안전성관리 측면에서 상대적으로 까다로운 경수로형 원자로가 대다수인 미국의 사용후핵연료 건식저장용기 인증현황을 조사하였다.

2. 본론

2.1 인허가 제도

미국의 사용후핵연료 중간저장시설의 인허가 체계는 10CFR72에 따라 부지별허가와 일반허가로 크게 구분할 수 있으며, 개별 캐스크에 대해서는 부합성인증서(Certificate of Compliance) 허가제도를 시행하고 있고, NRC는 사용후핵연료 저장시설의 안전성평가와 관련하여 사용후핵연료 독립저장시설(ISFSI)과 캐스크에 대하여 별도의 심사지침을 개발하여 적용하고 있는데, ISFSI시설에 대한 안전심사지침은 NUREG-1567[1]에서, 캐스크의 안전심사지침은 NUREG-1536(2009년 최근개정중)[2]에 제시하고 있다. 또한 기발간된 안전심사지침의 내용을 보완하거나 기존 지침에 제시되지 않은 사안에 대하여는 임시규제지침(Interim Staff Guidance)을 발간하고 있다.

2.2 인허가 현황

건식저장시스템별로 크게 볼트, 모듈, 콘크리트/금속 저장용기 방식으로 구분할 수 있는데, 1990년부터 최근까지 NRC로부터 부합성인증서로 인가받은 사용후핵연료 건식저장용기는 21종으로서 건식저장방식에 따라 Transnuclear Inc.사 NUH-OMS 모델형식의 모듈방식과 Holtec International사의 HI-STAR 100등과 같은 금속용기 방식, 그리고 가장 최근에 인가받은 NAC International Inc.사의 MAGNASTOR와 같은 콘크리트 저장 용기방식 등이 있는데, 그 현황을 Table 1.에 나타내었다.

Table 1. Dry Spent Fuel Storage Designs
: NRC Approved for General Use

C of C Issue Date	Storage Design Model	Vendor
08/17/1990	CASTOR V/21	General Nuclear Systems, Inc.
08/17/1990	NAC S/T NAC-C28 S/T	NAC International, Inc.
11/04/1993	TN-24	Transnuclear, Inc.
05/07/1993	VSC-24	BNG Fuel Solutions Co.
01/23/1995	NUHOMS-24P NUHOMS-52B NUHOMS-61BT NUHOMS-32PT NUHOMS-24PHB NUHOMS-24PTH	Transnuclear, Inc.
10/04/1999	HI-STAR 100	Holtec International
06/01/2000	HI-STORM 100	Holtec International
04/19/2000	TN-32	Transnuclear, Inc.
11/20/2000	NAC-UMS	NAC International, Inc.
04/10/2000	NAC-MPC	NAC International, Inc.
02/15/2001	FuelSolutions	BNG Fuel Solutions Co.
05/28/2000	TN-68	Transnuclear, Inc.
02/05/2003	Advanced NUHOMS-24PT1	Transnuclear, Inc.
01/10/2007	NUHOMS-HD	Transnuclear, Inc.
02/04/2009	MAGNASTOR	NAC International, Inc.

2.3 최근이슈

사용후핵연료 건식저장의 안전성확보 및 효율적인 최소 관리방안이 안전심사지침의 준수에 있다

고 가정하면 안전심사지침 및 임시규제지침의 체계와 내용을 명확히 파악하고 이해하며 실제로 적용하는 것이 중요하다. 그동안 발간된 Table 2.의 임시규제지침(ISG) 내용중 22개 항목에 대해 안전심사지침서 NUREG-1536에 반영하여 개정중인[2] 주요 내용으로서 재료에 대한 안전성 평가 항목의 추가 및 연소도 이득(Burnup Credit)을 적용하는 것과 모델링을 위한 전산프로그램의 적용 내용이 강화된 점을 들 수 있다.

Table 2. ISG issued to clarify or to address issues not discussed in a SRP

Staff Guidance (SFST-ISG-)	Topic
1, R2	Damaged Fuel
2	Fuel Retrieval(R1-Draft)
3	Post Accident Recovery and Compliance with 10 CFR 72.122(l)
4, R1	Cask Closure Weld Inspections
5, R1	Confinement Evaluation
6	Establishing Minimum Initial Enrichment for the Bounding Design Basis Fuel Assembly(s)
7	Potential Generic Issue Concerning Cask Heat Transfer in a Transportation Accident
8, R2	Burnup Credit in the Criticality Safety Analyses of PWR Spent Fuel in Transport and Storage Casks
9, R1	Storage of Components Associated with Fuel Assemblies
10, R1	Alternatives to the ASME Code
11, R3	Cladding Considerations for the Transportation and Storage of Spent Fuel
12, R1	Buckling of Irradiated Fuel Under Bottom End Drop Conditions
13	Real Individual
14	Supplemental Shielding
15	Materials Evaluation
16	Emergency Planning
17	Interim Storage of Greater Than Class C Waste
18, R1	The Design and Testing of Lid Welds on Austenitic Stainless Steel Canisters as the Confinement Boundary for Spent Fuel Storage
19	Moderator Exclusion Under Hypothetical Accident Conditions and Demonstrating Subcriticality of Spent Fuel Under the Requirements of 10 CFR 71.55(e)
20	Transportation Package Design Changes Authorized Under 10 CFR Part 71 Without Prior NRC Approval
21	Use of Computational Modeling Software
22	Potential Rod Splitting Due to Exposure to an Oxidizing Atmosphere During Short-Term Cask Loading Op. in LWR or Other Uranium Oxide Based Fuel
23 (Draft)	Application of ASTM Standard Practice C1671-07 when performing technical reviews of SF storage and transportation packaging licensing actions
25 (Draft)	Pressure Test and Helium Leakage Test of the Confinement Boundary for SF Storage Canister

임시규제지침(ISG)의 ISG-16(비상계획)이나 ISG-17(GTCC 폐기물의 중간저장) 등 몇가지는 개정 검토안에 반영되지 않았으나 안전심사지침을 기초로 하여 향후 국내 사용후핵연료 중간저장 안전심사 지침이 마련될 것으로 예상한다면 기술개발 방향은 국내여건을 반영한 충분한 검토와 인허가에 대비한 것으로 설정할 필요가 있다.

3. 결론

국내의 경우 아직 경수로형 사용후핵연료의 건식저장 경험은 없으나 중수로형 사용후핵연료의 건식저장은 월성원자력발전소 부지를 중심으로 상당한 기술축적과 인허가심사 및 사용인가 경험이 있고, 교육과학기술부 고시인 “사용후핵연료 중간저장시설의 위치에 관한 기술기준”, “사용후핵연료 중간저장시설의 부지특성보고서 작성지침” 및 “사용후핵연료 인도규정”과 같은 관련 법적 체계 또한 구비되었고, 경수로형 사용후핵연료 건식저장에 대한 연구개발이 활발히 진행되고 있으므로 원자력수출입국의 이미지 제고를 위한 사용후핵연료 관리를 위한 정책결정에 유연성을 제공할 수 있을 뿐만 아니라, 사용후핵연료 관리에 관한 공론화 등 대국민 수용성 확보에 도움이 될 것이다.

사용후핵연료 건식저장의 안전심사지침을 준수하면 안전성이 확보된다는 조건이면, 국내 경수로형 사용후핵연료 건식저장 기술개발을 촉진하고 가속화할 수 있는 방안으로서 기술개발단계에서부터 규제기관의 적극적인 참여로 건식저장시설 운영자에 대한 방향제시 뿐만 아니라 상호간 긴밀한 협조체계 및 정보교류 등이 가능할 때 이루어질 수 있을 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

- [1] U.S.NRC, Standard Review Plan for Spent Fuel Dry Storage Facilities, NUREG-1567, 2000
- [2] U.S.NRC, Standard Review Plan for Spent Fuel Dry Storage Systems at a General License Facility, NUREG-1536(R1A), 2009

Ru 동위원소 비 측정에서 나타나는 Mo 동중원소 영향 및 이의 보정

전영신, 김정석, 하영경, 한선호, 송규석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150 번지

vsieon@kaeri.re.kr

1. 서론

조사 후 핵연료 중 몰리브덴, 백금족원소들과 같이 루테튬(Ru)은 질산에 잘 녹지 않고 잔유물로 남아있어 필터 및 추출과정에 심각한 문제를 일으킨다. 사용 후 핵연료에서 이들의 거동을 알기위하여 정량분석은 필수이며, Ru 스파이크를 사용한 동위원소희석정량분석법이 적합한 방법으로 알려져 있다. 그러나 Ru은 높은 이온화 에너지(7.37 eV)를 갖기 때문에 동위원소 비를 정확하고 안정되게 측정하기가 쉽지 않다. 본 실험은 이온화효율을 높이기 위한 방법과 안정적 이온생성을 얻기 위한 실험, 그리고 레늄 필라멘트에 함유된 불순물들에 대한 동중원소 영향을 실험하였다. 특히 몰리브데늄(Mo)이 질량분석에 사용되는 필라멘트에 불순물로 포함되어 있으며 이는 baking system에서 고진공 고온에서 가열하여도 일정부분 없어지지 않아 Ru 동위원소 비 측정에 영향을 미친다. 따라서 Mo로부터 오는 동중원소 영향을 보정하는 방법으로 $^{94}\text{Mo}/^{99}\text{Ru}$ 를 측정하여 Ru동위원소 비 측정값을 보정하였으며 double filament를 사용하는 것 보다는 single filament를 사용하는 것이 더 안정적 이온 피크를 얻을 수 있었을 뿐만 아니라 Mo에 의한 동중원소 영향도 작았다. 또한 필라멘트 온도를 높이면 높일수록 동중원소 영향이 크을 알 수 있었다.

2. 실험

사용한 기기는 Finnigan MAT 262, 열 이온화 질량분석기를 사용하였으며, 두 종류의 레늄 필라멘트(ATES-프랑스, Thermo Electro Co.)를 별도의 진공, 가열시스템에서 5.5 A, 60 분 동안 baking하여 실험에 사용하였다. Ru mass(m/z)=96, 98, 99, 100, 101, 102, 104)에 대하여 바탕값 영향을 실험하였다. 이온생성효율을 높이기 위해 이온화 에너지를 낮추는 방법으로 보론, 바륨, 실리케이트 화합물 등을 첨가하거나 산화상태로 휘발되

는 것을 억제하기 위하여 환원제로 HI 또는 설탕 용액을 사용하였다. 또한 single filament와 double filament를 비교 실험하였으며 filament current(온도)에 따라 변화되는 Mo 이온 피크를 알아보았으며, $^{94}\text{Mo}/^{99}\text{Ru}$ 를 측정하여 Mo에 의한 동중원소 영향을 계산하는 지표로 삼았다.

3. 결과 및 토의

Baking을 시행한 필라멘트에 대하여 SEM 검출기를 사용하여 Ru 질량(m/z) 영역을 스캔 하였으며 이를 Fig. 1, 2에 보였다. 그림에서 볼 수 있듯이 불순물들로 Mo-94, 95, 96, 97, 98, 100 질량(m/z)피크 들이 작지 않게 나오는 것을 볼 수 있으며 이는 Ru-96, 98, 100 동위원소 비 측정에 심각한 동중원소 영향을 직접 미치게 된다. 본 실험에서 나타난 피크 중 Ru-100을 기준으로 Ru 동위원소 비 측정에 미치는 영향을 대략적으로 계산하였다. $m/z=100$ 에서 10000 CPS가 얻어졌으며 이는 Ru-100 측정값에 약 0.4% 정도 오차를 주는 것으로계산되었다.

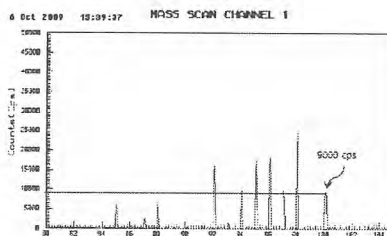


Fig. 1. Baked Re filament(Thermo Electro Co.) blank test for Ru isotope mass range(m/z).

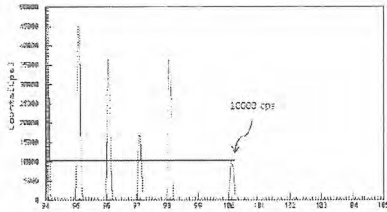


Fig. 2. Baked Re filament(ATES) blank test for Ru isotope mass range(m/z).

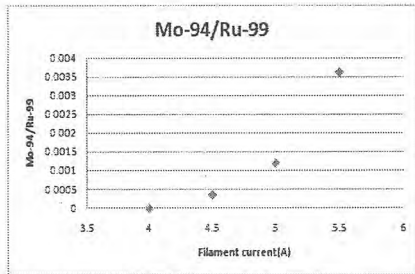


Fig. 3. Comparison of ratio($^{94}\text{Mo}/^{99}\text{Ru}$) depend on filament temperature.

Table 1. Ru isotope measurement and correction with $^{94}\text{Mo}/^{99}\text{Ru}$

Ru-Isotopes	Ref. V.	TIMS	
		Mea. V.	Corr. V.
96	0.434	0.610	0.427
98	0.148	0.409	0.145
99	1.000	1.000	-
100	0.992	1.098	0.992
101	1.339	1.349	-
102	2.488	2.478	-
104	1.472	1.475	-

Mo에 의한 동중원소 영향을 $^{94}\text{Mo}/^{99}\text{Ru}$ 비를 측정하여 Fig. 3에 보였으며 온도를 높일수록 Mo 영향이 크게 나타났다. 따라서 할 수 있는 한 낮은 온도에서 측정하는 것이 필라멘트로부터 오는 Mo 영향을 적게 받음을 알 수 있다. 또한 Ru 동위원소 비 측정에서 double filament 보다 single filament를 사용하는 것이 더 안정적 이온이 얻어졌으며 Mo로부터 오는 불순물 영향도 작음을 알 수 있었다. Table 1.에 Mo 불순물영향을 받은 측정값과 $^{94}\text{Mo}/^{99}\text{Ru}$ 를 측정하여 보정한 값을 나타내었다.

4. 참고문헌

- [1] K. Gunji, Z. Yoshida, T. Adachi, T. Komori, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters* 118(3), 225-233(1987).
- [2] M.A. El-Absy, M.A. El-Amir, M. Mostafa, A.A. Abdel Fattah, H. M. Aly, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 266(2), 295-305(2005).
- [3] Min Huang, Akimasa Masuda, *Anal. Chem.*, 69, 1135-1139(1997).
- [4] Min Huang, Yongzhong Liu, and Akimasa Masuda, *Anal. Chem.*, 68, 41-844(1996).
- [5] W. Smullek, R. K. Al-Dabbagh, K. Goroccek, M. Borkowski, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 121(2), 385-393(1988).
- [6] Petra Krystek, Klaus G. Heumann, *Fresenius J Anal. Chem.*, 364, 87-90(1999).

골드심 생태계 평가 모델 비교 검증 연구

이연명, 정종태

한국원자력연구원, 대전시 유성구 덕진동 150번지

ymlee@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원(KAERI)은 방사성폐기물처분장의 안전성 및 성능평가를 위해 처분장내 핵종 이동평가 모델 및 주변 생태계 피폭 선량 평가 모델을 지속적으로 개발하여 AMBER[1]와 GoldSim[2] 등 상용 프로그램 개발도구를 이용하여, 가상 입력 자료를 통한 템플릿 프로그램으로 개발해 오고 있다.[3,4] 이러한 템플릿 프로그램을 이용하면 부지 특성화에 따른 입력 자료를 통하여 실제 처분시스템에 대한 평가가 가능하게 된다. 2008년에 1차 공동연구로서 KAERI의 AMBER 및 GoldSim으로 개발된 생태계 모델과 템플릿 프로그램으로 일본의 원자력기구(JAEA)측의 AMBER모델과 상호 비교연구가 이루어진 이후, 2차 후속 공동연구로서 2009년에 양 측의 GoldSim 생태 모델에 대하여 보다 심도 있는 비교 연구가 진행되었다. JAEA측도 그동안 주력 사용하던 AMBER 생태계 모델과 별도로 우리와 같이 GoldSim 생태모델을 자력 개발 확보하게 됨에 따라 양측의 GoldSim 생태계 모델에 대한 상호 비교연구를 수행하기로 하여 양측 모델에 대한 골드심 프로그램 구현에 따른 신뢰도를 확보하기 위한 목적으로 하는 정량적 평가에 따른 비교 검증 연구가 수행된 것이다. 이 연구를 통하여 수행된 비교 검증 결과의 일부를 제시한다.

2. 본론 및 토의

KAERI와 JAEA는 각각 자국의 평가 대상 환경을 유지하는데 따라 비교 검증연구가 상당 부분 제한되었던 1차 검증 연구[5] 때와는 달리, 2차년도에는 가능한 한 상호 동일한 입력 자료를 공동으로 사용함으로써 개발된 프로그램 템플릿의 직접적인 비교 검증이 가능하게 되었다. 그림 1은 비교에 사용된 우리측 GoldSim 평가 템플릿 중 생태계 구획모델을 보여주고 있다. 유사한 입력자료와 동일한 시나리오 및 지질-생태계 접점(GBI)의 동일한 설정을 통한 평가 수행으로 얻은 최종 비교연구, 즉 농축피폭집단과 민물어업집단, 그리고 해수어업집단에 대해 양 기관의 생태계 평가 모델에 의한 피폭 선량 평가를 수행하여 거의 동일하게 일치하는 비교결과를 그림 2~4에서와 같이 얻을 수 있었다. 이에 따라 전체 피폭집단에 대한 피폭경로 설정 및 평가 모델을 분석하고 입력자료에 대한 비교를 철저히 수행하여 각각의 기관의 모델을 점검하였으며 결과적으로 두 기관 모두 완전히 상호 검증이 된 GoldSim 생태모델을 확보하게 되는 성과를 얻을 수 있었다. Tc-99, Se-79, Cs-135, 그리고 Np-237에 대한 양 기관의 비교 계산 결과를 요약하여 표 1~2에 따로 보였다. 표 1에는 피폭 선량을, 표 2에는 주요 구획에서 대표값으로서의 Cs-135 핵종의 질량 유출률을 나타내었는데, 두 결과로 부터 두 기관의 모델이 상호 상당히 일치하는 결과를 보이는 것을 알 수 있다. 한편 농축 피폭 집단의 최대 피폭 선량률은 다른 두경우의 피폭집단에 비해 높은 선량률을 보이고 있음을 알 수 있다. 비교를 위해 가정된 특정한 GBI를 통한 단위 핵종의 유출플럭스에 대한 농축피폭 집단에 대한 연간 피폭 선량률로서의 이 값은, 이 비교 연구를 위해 가정된 값을 사용하는 대신 향후 처분시스템이 개발되면서 부지특성조사 등을 통하여 측정된 실제 입력 자료를 사용하는 경우에 대해서, 처분 시스템에서의 생태계로의 핵종 유출에 대한 선량환산인자를 평가 도출하는데 이용될 수 있게 된다. 이러한 비교 검증연구를 통한 신뢰도 증진에 따라 KAERI

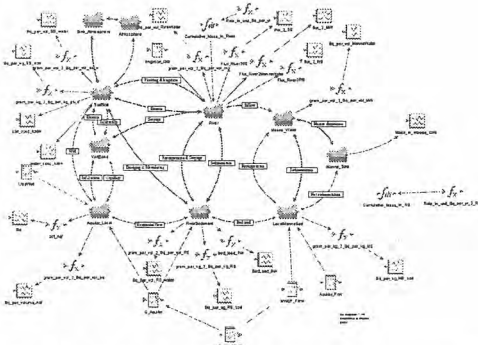


Fig. 1. A GoldSim model for biosphere assessment

에서 개발된 생태계 모델은 현재 건설중인 중저준위 처분장의 성능평가 등 실제 처분 시스템에 대한 평가와 설계 등에 보다 신뢰도가 높게 활용 할 수 있을 것으로 기대된다.

Table 1. Comparison of exposure rate

핵종	Np-237		Se-79		Cs-135		Tc-99	
모델	KAERI	JAEA	KAERI	JAEA	KAERI	JAEA	KAERI	JAEA
농작물복합단	1.456E-11	1.299E-11	2.470E-12	2.683E-12	1.342E-13	1.142E-13	1.206E-14	1.220E-14
민물어업집단	7.825E-12	7.612E-12	2.617E-14	2.615E-14	3.365E-14	2.886E-14	2.240E-15	2.229E-15
해양어업집단	1.532E-13	1.501E-13	2.799E-14	2.796E-14	3.583E-16	3.527E-16	2.539E-16	2.538E-16

Table 2. Maximum release rate of Cs-135 from each compartment [g/yr]

경로	KAERI	JAEA
inflow (River to Marine_water)	2.35E-08	2.35E-08
Bed load	9.74E-14	8.87E-14
Sedimentation(Marine_water to LocalMarineSed)	1.40E-12	1.40E-12
Resuspension(LocalMarineSed to Marine_water)	8.37E-13	8.33E-13
inflow (River to Marine_water)	2.35E-08	2.35E-08
Net sedimentation	6.54E-13	6.51E-13

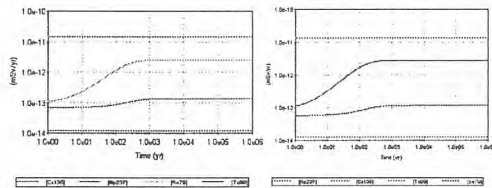


Fig. 2. Exposure dose rate to Farming exposure group (left: KAERI, right: JAEA)

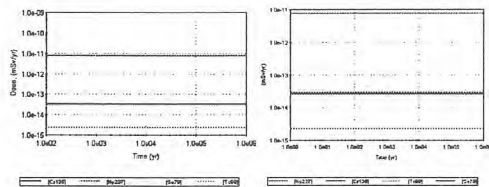
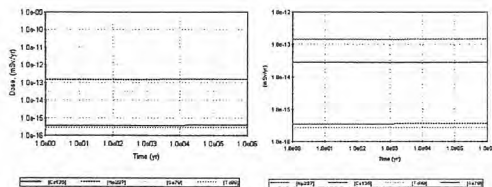


Fig. 3. Exposure dose rate to Freshwater exposure group (left: KAERI, right: JAEA)



사용후핵연료 운반 안전성 평가를 위한 사고 조건 설정

이수홍, 신상원, 이재민, 성기열*, 윤정현*

(주)에네시스, 대전시 유성구 구암동 328

*한국방사성폐기물관리공단, 대전시 유성구 대덕대로 1045

realsh@enesys.co.kr

1. 서론

원자력발전소에서 발생하는 사용후핵연료의 처리를 위해서 우리나라는 현재 관련 내용에 대한 공론화 및 기술 기반의 수립을 진행 중에 있다. 사용후핵연료 중간 저장시설 운영을 위해서는 사전에 관련 기술을 포함한 구체적인 방안의 설정이 필요하다. 이를 위해서는 사용후핵연료를 원자력발전소에서 중간 저장시설까지 운반할 때 안전성 평가를 위한 평가 체계의 구축이 필수적으로 필요하다. 국외의 경우 RADTRAN이나 INTERTRAN 등을 이용하여 사용후핵연료의 운반 안전성을 평가하고 있으나 해당 평가 도구는 육상 운반에 주안점을 두고 개발되어 우리나라에 가장 타당할 것으로 예상되는 해상 운반 체계에 그대로 적용시키기에는 무리가 있다. 특히 해상 사고 조건에 대한 평가는 극히 제한적으로만 가능하기 때문에 다양한 사고 조건에 대한 평가 체계를 구축하기 위해서는 육상 뿐만 아니라 해상 사고 조건에 대한 사전 설정이 필요하다. 이에 본 연구에서는 사용후핵연료 운반 중 발생 가능한 사고 조건에 대한 국외의 적용 사례를 분석하여 국내 환경에 적합한 사고 체계를 분류하였다.

2. 본론

2.1 국외 개발 운반 사고 평가 체계

현재 개발되어 적용되고 있는 대표적인 운반 안전성 평가 도구는 RADTRAN과 MARINRAD가 있다. RADTRAN은 육상 및 수상 운반 안전성 평가가 가능한 평가 도구로 트럭, 철도 및 선박을 이용한 운반 영향 평가가 가능하다. 그러나 트럭, 철도를 이용한 육상 운반에 대한 평가는 다양한 평가 입력 체계 및 사고 시나리오의 적용으로 적절한 평가가 가능하나 수상 운반은 큰 폭의 강이나 해안과 매우 인접한 해상 운반 조건에 대한 평가가 가능한 수준이며 평가 입력 체계 또한 매우 단순화 되어 있다. 특히 침몰에 의한 영향 평

가는 전혀 불가능하다.

MARINRAD는 해상에서 방사성물질의 이동에 따른 평가가 가능한 평가 도구로 해상 운반시 침몰 사고의 방사선적 영향 평가가 가능하다. 그러나 대양을 중심으로 평가 체계가 구축되어 있어 국내의 연안 및 근해에서의 운반 평가에 그대로 적용시키기에는 무리가 있다. 다만 RADTRAN에서 제시하지 못하는 침몰에 의한 사고 평가 체계를 다양하게 구분하여 평가가 가능하도록 하고 있다.

2.2 운반 영향 평가 체계 조건 설정

사용후핵연료의 운반 방법은 크게 육상과 해상으로 구분할 수 있다. 운반 위험도 평가를 위한 조건 설정은 정상 운반 조건과 사고 조건으로 구분이 가능하다. 정상 운반 조건은 출발지에서 사전에 계획된 경로를 방해 요인이 전무한 상태로 목표지까지 도착하는 조건이 된다. 이 경우 방사성 물질의 누출이 없기 때문에 운반 수단에 탑승한 승무원 및 경로 이동 중 근접 대상자에 대한 외부 피폭 영향만 평가하면 된다.

사고조건은 방사성물질의 누출 및 비누출 사고로 구분할 수 있다. 운반 수단의 기계적 고장 또는 정상적인 이동이 불가능한 환경적 요인의 발생이나 운반 수단 탑승자의 불예측한 조건에 따라 정상 경로를 이탈하거나 정지하는 경우가 해당된다. 이 경우도 정상 조건과 마찬가지로 방사성물질의 누출은 발생하지 않으므로 승무원 및 운반수단에 접근하는 대상자에 대하여만 영향 평가를 수행한다. 사고 조건 중 물리적 충격이나 화재에 의한 사고는 방사성물질의 누출이 발생할 수 있으므로 이 경우 각각의 사고 종류 및 규모에 따라 영향 대상 및 피폭 경로를 설정하여 사고에 의한 영향 평가 체계를 수립하여야 한다.

2.3 육상 운반 중 사고 조건

육상 운반 중 사고는 일반적으로 교통사고에 의한 물리적 충격이 가장 큰 원인이 된다. 해당 사

고는 운반 수단 및 타차량과의 사고가 있으며 전 복과 같은 운반 수단만의 사고로 구분이 된다. 물리적 충격에 의한 사고는 사용후핵연료 운반 용기의 파손에 의한 방사성 물질의 누출이 발생할 수 있으며 2차 사고인 화재로 연계될 수 있다. 화재 사고시에는 미세한 입자한 공기 중 부유가 발생하여 대기 조건에 따른 방사성물질의 이동에 대한 평가가 필요하다

2.4 해상 운반 중 사고 조건

해상 운반 중 사고 중 물리적 충격에 의한 사고 평가 및 화재에 의한 사고 평가는 육상과 동일하게 수행된다. 그러나 물리적 충격에 의한 선박의 파손으로 야기되는 침몰의 경우는 육상 운반에서 없는 조건으로 새로운 평가 방법이 수립되어야 한다. 선박 침몰에 의하여 방사성물질이 해상에 유출될 경우 방사성물질은 해류의 흐름에 따라 이동하게 되며 이동 중 해양 생물 및 해양에 입수한 피폭 대상자에게 직간접적인 영향을 주게 된다. 이러 경우 사고 조건 평가를 위하여 해양생태계의 영향 및 해류의 속도 그리고 피폭 대상자의 접근 형태 등이 고려되어야 한다.

2.5 운반 사고 조건의 수립

상기에서는 일반론적인 사고 조건 및 각 조건별 기본적 평가 항목을 제시하였다. 이런 제시된 내용을 토대로 육상 및 해상 운반에 공통적으로 적용이 가능한 사고 조건과 육상 및 해상 운반의 특수성에 의하여 구분하여 평가가 수행되어야 할 부분을 다음 그림과 같이 제시하였다.

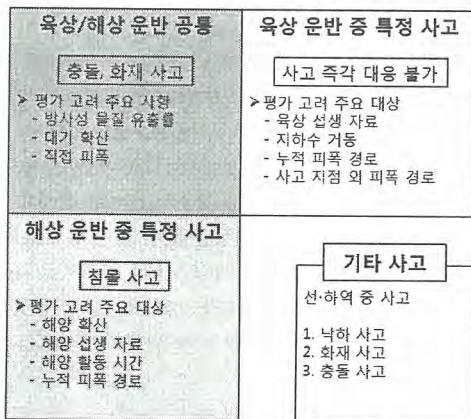


Fig. 1. 운반 중 사고 조건 설정

육상 운반 중 사고 발생시 사고 현장의 접근이 비교적 용이함으로 비상 조치 계획이 즉각적으로 수행될 수 있으나 불가피한 상황에 의하여 대응 조치가 지연될 경우 유출된 방사성 물질이 토양으로 유입되어 장기간적인 영향을 도출할 수 있다. 이 경우 섭생에 의한 장기 영향 평가가 적용되어야 한다.

3. 결론

본 연구에서는 사용후핵연료의 육상 및 해상 운반 조건에 따라 발생할 수 있는 사고 항목을 제시하였다. 대부분의 사고는 육상 및 해상에 대한 경로 특성과 구분없이 공통적인 사고 목록의 구축이 가능하지만 해상 운반 조건 중 침몰에 대한 평가는 독립된 사고 평가 체계의 구축이 필요하다. 특히 해상 침몰 사건에 대한 사고 평가는 육상 사고 조건 중 방사성 물질의 대기 방출 평가 시 대기확산인자에 따른 중·장거리의 평가가 필요한 것처럼 해류 흐름 등의 해양 확산에 따른 평가가 필요하다. 본 연구를 통하여 수립된 사고 목록 체계는 추후 사용후핵연료 운반 안전성 평가 체계 구축 및 평가 도구를 개발하는데 적용하여 적절한 운반 중 사고 평가를 수행할 수 있는 기반을 제공하였다.

4. 참고문헌

- [1] DOE/EM/NTP/HB-01, A resource handbook on DOE transportation risk assessment, DOE, 2002
- [2] SAND2000-1256, RADTRAN 5 technical manual, Sandia National Lab., 2000
- [3] SAND97-1130, Comments on a paper titled "the sea transport of vitrified high-level radioactive wastes: unresolved safety issues", Sandia National Lab., 1997
- [4] IAEA-TECDOC-1346, Input data for quantifying risks associated with the transport of radioactive material, 2003
- [5] SAND83-7104, User's guide to MARINRAD: model for assessing the consequences of release of radioactive material into the oceans, Sandia National Lab., 1983

사용후핵연료 해상수송 시나리오에 대한 안전성 평가

안동현, 황주호

경희대학교, 경기도 용인시 기흥구 서천동 1번지

adh9698@khu.ac.kr

1. 서론

현재 한국의 원자력발전소 운영 중 발생하는 사용후핵연료는 소내저장하고 있으며, 2016년 이후에는 저장용량이 포화될 것으로 예상하고 있다.[1] 포화상태에 이르게 되면 임시 저장중인 사용후핵연료를 소외로 운반해야 한다. 한국의 경우 2004년부터 지속적으로 사용후핵연료의 공론화가 이루어지고 있다. 차후 사용후핵연료 저장시설이 건설될 것을 가정한다면, 운반을 고려하여 작업자와 일반 주민들이 받는 피폭에 대한 선량평가가 이루어져야 한다. 이에 따라, 사용후핵연료의 해상수송을 예상하여 안전성 평가를 수행하는데 있어 정상수송과 사고조건 수송 평가가 수행되어야 한다. 수송 안전성 평가는 방사성 폐기물의 수송 위험도 평가 프로그램인 RADTRAN을 사용하였다. RADTRAN은 운송수단에 대한 각 모델을 적용하여 특정시나리오의 평가가 가능한 프로그램이다.

본 연구에서는 RADTRAN 5.6 프로그램을 이용하여 해상수송에 대한 피폭 선량 평가를 수행하고자 한다. 또한 입력자료의 설정변화로 평가 인자의 민감도를 분석하여, 해상 수송에 대해 중점적으로 고려할 부분을 제시하고자 한다.

2. 수송 시나리오 및 입력 인자

시나리오는 정상 수송과 사고조건 수송으로 구분하였다. 정상 수송은 영광원자력발전소에서 가상의 중간저장시설인 포항항까지의 경로를 가정하였다. 항해 중에서는 충돌, 화재 및 침몰 등의 사고 발생이 없으며, 유조선 금지항로를 고려하여 운송을 실시하였다.

영광에서 포항까지 연간 3회 운항으로 1회 운항시 표면선량률이 0.1 mSv/hr인 캐스크 12개 수송을 가정하였다. 영광에서 포항까지 운항경로는 765 km이며, 선박속도는 24 km/hr로 하며 운항시간은 31시간이며 임시정박은 없다고 가정하였다. 포항 인구밀도는 2007년 기준 451 명/km²로 설정하였다. Fig. 1.의 내곽점선은 유조선 금지구역

이며, 외곽점선은 영광에서 포항까지의 수송경로를 나타낸다.



Fig. 1. Route setting from Young-gwang to Po-hang[2]

수송선박은 사용후핵연료 전용수송선박 1척 운항으로 적재창의 길이 36 m, 승선인원 22명으로 가정하였다. 선원과 적재창 사이의 차폐는 없다고 가정하였다. 차폐인자는 민감도 분석을 위해 변환인자로 사용하였다.

화물 선적 및 하역 작업은 부두크레인을 이용한 Lift-on/Life-off 방식을 적용하였다. 작업인원수는 영광과 포항에서의 작업으로 구분하여 각각 2명 1개조로 가정하였다. 선적 및 하역 작업자와 수송용기의 거리는 10 m로 하며, 수송용기와 작업자의 거리를 변환 인자로 설정하였다. 전체 작업시간은 8시간으로 가정하였다.

사고 조건에서는 인위적 사고인 충돌과 화재로 인한 폭발 사고로 분류하였다. 포항항으로 근접이동 중 적재창의 손상으로 인한 방사선원의 누출을 가정하였다. 방사선 누출비율은 각각 100%로 가정하여 우선적으로 정상수송 시나리오로 안전성 평가를 수행하였다. 사고율은 2005년부터 2008년까지 해양사고횟수를 고려하여 8.30×10^{-6} accident/veh-km로 계산하였다. 2005년부터 2008년도에서 전체 선박 개수에 대한 사고시 사망을 가정하여 1회 사고당 치명율은 3.05×10^{-2} 로 계산하였다. 방사성물질의 누출비는 Sandia National Lab.에서 제시한 보고서 자료를 활용하였다.[3] 대기확산의 경우 사용자정의에 대하여 Pasquill 모

델을 사용하였다. 모델은 중립적인 대기상태를 가정하였으며, 거주주민의 피폭평가를 위하여 민감도 분석에 대한 변환인자로 설정하였다.

3. 결론

비사고 조건에서 승무원, 선적 및 하역 작업자, 거주자에 대한 평가는 다음 Table 1.에서 나타났다.

Table 1. Non-accident assessments for collective dose

비사고시 평가 대상	집단피폭선량(man-Sv)
승무원	6.55×10^{-2}
선적 및 하역 작업자	4.2×10^{-3}
거주자	5.4×10^{-3}

선적 및 하역 작업자의 집단피폭선량은 4.2×10^{-3} man-Sv이며 연간 평균피폭선량은 3.15 mSv이다. 개인 피폭선량한도가 5년간 100 mSv이므로, 안전하다고 할 수 있다.

비사고시 평가대상을 기준으로 각각의 변환인자에 따른 민감도 분석을 수행하였다.

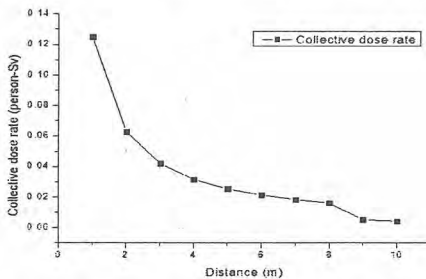


Fig. 2. Handling dose from distance alteration

Fig 2. 는 선적 및 하역 작업 중 작업자의 거리변화에 따른 집단피폭선량을 나타낸다. 거리가 가까워질수록 피폭정도는 커지며, 5 m에서 집단피폭선량은 2.54×10^{-2} man-Sv이고, 평균 개인피폭선량은 6.35 mSv를 나타낸다. 즉, 1년간 19.05 mSv, 5년간 95.5 mSv의 피폭을 받는다.

승무원의 변환인자에 대한 집단피폭선량은 Table 2. 에, 대기확산등급에 대한 거주자의 평균 피폭선량은 Table 3. 에 나타내었다. 사고 시나리오에서 대기확산등급에 따른 거주자의 집단선량은 비례하지만, 연간 평균 개인피폭선량은 큰 차이가 없었다.

Table 2. Crew's collective dose for an alteration of crew shielding factor

차폐	집단피폭선량(man-Sv)
0	2.58×10^{-6}
10%	2.32×10^{-6}
20%	2.06×10^{-6}
30%	1.81×10^{-6}
40%	1.55×10^{-6}
50%	1.29×10^{-6}
60%	1.03×10^{-6}
70%	7.74×10^{-7}
80%	5.16×10^{-7}
90%	2.58×10^{-7}
100%	0

Table 3. Dispersion conversion factor of pasquill level

대기확산 (level)	집단 피폭선량(man-Sv)	연간 개인 피폭선량(mSv)
A	2.65×10^{-1}	6.59×10^{-5}
B	2.14×10^{-1}	6.73×10^{-5}
C	1.64×10^{-1}	6.86×10^{-5}
D	1.24×10^{-1}	6.89×10^{-5}
E	8.72×10^{-2}	6.41×10^{-5}
F	6.55×10^{-2}	6.42×10^{-5}

선적 및 하역 작업자와 수송용기 사이의 거리는 법적기준인 5년간 100 mSv를 넘지 않는 범위 내에서 5m 이상에서 작업이 이루어져야한다. 승무원과 거주자는 일반인의 선량한도를 적용하였을 경우, 변환인자에 관계없이 연간 1 mSv의 1%이하로 평가되었다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력인력양성 과제로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

- [1] 지속가능발전위원회, 사용후핵연료의 관리체계 및 공론화방안 연구, pp.33-36, 2005
- [2] 원자력발전소 사후처리사업 비용평가 시스템 개발, 2009
- [3] Jeremy L. Sprung, Data and Methods for the Assessment of the Risks Associated with the Maritime Transport of Radioactive Materials Results of the SeaRAM Program Studies Volume 1, Sandia National Laboratory Report, SAND98-1171/1(1998)

MCNPX 코드를 이용한 감마선원과 차폐의 다양한 조건하에서 선량계산 프로그램 개발

김원직, 박재우

제주대학교, 제주도 제주시 아라1동

wonjiik2@jeju.ac.kr

1. 서론

우리나라에서는 원자력 산업과 의료산업 및 농업 분야 등에서 방사성동위원소의 이용 및 취급이 증대되고 있다. 이러한 방사성동위원소의 이용 및 취급이 증대됨에 따라, 취급자 및 방사선 작업장에 노출된 종사자들의 피폭 또한 증가될 것으로 예상된다. 체외피폭이 중요시 되는 방사성동위원소의 이용의 경우 방사선피폭을 절감하기 위해서 작업시간의 단축, 선원과의 거리, 차폐에 의한 제어가 요구되어 진다.

본 연구에서는 대표되는 선원의 형태로서 점선원과 실린더선원의 경우에 대하여 차폐체의 종류(콘크리트와 납)와 두께를 각각 다르게 설정하여 선원과의 거리에 대한 선량을 MCNPX 전산해석 코드로 계산하였다. MCNPX 계산값에 대한 유사성을 비교하기 위해, 제주대학교 방사선응용과학연구소의 ^{60}Co 선원을 이용하여 차폐조건을 달리 하며 선량을 측정하여 MCNPX 계산값과 비교하였다. 이러한 과정을 통해 확인된 MCNPX 계산값은 Fitting 과정을 통하여 각 경우에 대한 함수값을 산출하였다. 최종적으로 LabVIEW를 이용, 차폐체의 종류와 두께, 그리고 선원의 종류와 방사능 및 측정거리에 따라 달라지는 공기흡수선량의 값을 출력하는 선량계산 프로그램을 개발하였다.

2. 본론

2.1 개요

본 연구에서는 다양한 방사선 환경에서 원하는 지점에 선량을 측정하는 선량계산 프로그램을 개발하는데 목적이 있다. 체내피폭이 주의되는 방사성동위원소의 경우 그 흡입 메카니즘이 복잡하지만, 체외 피폭의 경우 작업시간의 단축과 차폐, 선원과의 거리로서 충분히 제어가 가능하다.

이 중에서 차폐의 경우에 차폐체의 종류 및 두께에 따라 측정지점에서의 선량은 큰 차이를 보

인다. 선량을 계산하는 방법에는 수기적 계산이나 실제로 실측하는 경우가 있으나 이러한 다양한 조건을 모두 실험하기란 시간적으로나 금전적으로 경제적이지 못하다. 따라서 본 연구에서는 MCNPX 전산해석코드를 이용하여 다양한 방사선장 환경을 설계하여 유효한 MCNPX 값을 구하고, 유사성을 비교하기 위해 제주대학교 방사선응용연구소에 있는 ^{60}Co 선원을 대상으로 MCNP X와 동일한 조건으로 설계한 실험에서의 실측값과 비교해 보았다. 유사성을 확인한 MCNPX값은 Origin에서 제공하는 Fitting 과정을 통하여 MCNPX값을 함수화 하였다. 구하여진 함수값은 LabVIEW에서 제공하는 Formula Node 라는 Structure를 이용하여 손쉽게 계산할 수 있다. 이 때, MCNPX값은 방사능과 거리를 고려하지 않았으므로, LabVIEW의 입력패널을 통해 입력이 가능하게 하고, Formula Node Structure를 통해 최종적으로 공기흡수선량을 출력하게 하였다.

2.2 결과

2.2.1 실험을 통한 선량 값과 MCNPX코드를 통한 선량 값의 정규화 분포

두께 16.5cm의 콘크리트 차폐체를 사용하였을 때 선량측정결과와 MCNPX 계산결과의 정규화 분포를 비교하였고, 두께 10cm의 납 차폐체를 사용하였을 때 선량측정결과와 MCNPX 계산결과의 정규화 분포를 비교하였더니, 선량측정결과와 MCNPX 계산결과의 정규화 분포가 유사한 형태임을 알 수 있었다. 따라서 MCNPX 계산결과를 신뢰할 수 있으므로 이 MCNPX 계산결과로 함수를 도출한다.

2.2.2 각 경우에 따른 함수값

[Table.1.]은 실린더 선원일 때 각 차폐체의 두께에 따른 함수값을 산출한 것이고, [Table. 2.]는 점선원일 때, 각 차폐체의 두께에 따른 함수값을 산출한 것이다.

Table 1. Cylinder source, each of shielding, calculate fuction value

Cylinder source					
concrete			lead		
T=5.5	Y ₀	3.21E-08	T=5	Y ₀	-2.44E-09
	A ₀	1.39E-06		A ₀	8.58E-08
	t ₁	40.94		t ₁	69.6
T=11	Y ₀	4.50E-08	T=10	Y ₀	1.75E-09
	A ₀	1.16E-06		A ₀	6.49E-07
	t ₁	28.24		t ₁	6.80
T=16.5	Y ₀	3.12E-08	T=15	Y ₀	3.01E-10
	A ₀	2.48E-06		A ₀	2.98E-07
	t ₁	16.88		t ₁	8.43
T=22	Y ₀	1.11E-08	T=20	Y ₀	1.03E-10
	A ₀	1.40E-06		A ₀	7.31E-08
	t ₁	20.40		t ₁	11.94
T=27.5	Y ₀	7.80E-09			
	A ₀	3.48E-06			
	t ₁	15.23			

Table 2. Point source, each of shielding, calculate fuction value

Point source					
concrete			lead		
T=5.5	Y ₀	4.34E-08	T=5	Y ₀	-2.43E-09
	A ₀	1.45E-06		A ₀	8.56E-08
	t ₁	38.43		t ₁	69.72
T=11	Y ₀	4.45E-08	T=10	Y ₀	1.75E-09
	A ₀	9.81E-07		A ₀	3.11E-07
	t ₁	28.07		t ₁	6.80
T=16.5	Y ₀	3.13E-08	T=15	Y ₀	3.02E-10
	A ₀	1.39E-06		A ₀	9.13E-08
	t ₁	16.76		t ₁	8.43
T=22	Y ₀	1.56E-08	T=20	Y ₀	1.04E-10
	A ₀	1.25E-06		A ₀	2.09E-08
	t ₁	15.31		t ₁	11.92
T=27.5	Y ₀	7.59E-09			
	A ₀	9.49E-07			
	t ₁	15.25			

이 산출 값들은

$$y = Y_0 + A_0 e^{-\frac{1}{t_1} x} \dots\dots\dots (1)$$

에 대입한다.

2.2.3 LabVIEW를 이용한 선량계산프로그램 제작
[Fig.1.]은 LabVIEW로 제작한 선량계산프로그램의 화면이다. 선원의 종류와 차폐체의 종류, 차폐체의 두께는 선택형패널로 구성, 현재 함수를 가지고 있는 조건에 대해서만 선택이 가능하게 하였고, 현재 방사능과 선원과의 거리에 대해서 다양한 방사선장의 접목이 가능하게 구성하였다. 방사능과 선원과의 거리에 대한 입력을 통해 최종적으로 공기흡수선량을 계산 할 수 있다.



Fig. 1. Dose rate calculation program made with LabVIEW

3. 결론

본 연구에서 MCNPX값과 실측값이 차폐체의 종류와 두께에 상관없이 모두 유사성을 가졌다. 하지만, 각 차폐체 두께에 대한 거리별 MCNPX 계산값을 비교했을 때, 콘크리트는 두께에 따른 분포를 쉽게 분석할 수 있었지만, 납의 경우 두께에 따르는 현상의 해석에 난해함을 가진다. 이는 실험 및 MCNPX 설계에서 콘크리트는 감마선에 대하여 반가층에 가까운 두께만큼 늘어난데 반해, 납의 경우 감마선에 대한 반가층의 약 5배에 해당하는 두께를 늘렸기 때문이라고 생각된다. 따라서 콘크리트와 같이 반가층에 가까운 크기만큼 차폐체를 증가시키면 차폐체의 두께에 따른 확실한 차이를 확인할 수 있을 것으로 생각된다.

본 연구에서는 ⁶⁰Co에 한정된 선원으로 차폐해석을 한 한계를 가지고 있다. 실제로 다양한 방사선장 환경에 사용되기 위해서 고려되지 못한 조건들을 추가하여 실제 작업장에서 사용에 제약을 없애야 할 것이다.

4. 감사의 글

이 연구는 교육과학기술부 한국연구재단 원자력인력양성사업 NtUss 원자력대학생논문연구회의 지원을 받아 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] 김용호, 碩士學位論文, “MCNPX 코드를 이용한 감마선 조사실의 방사선량 분포 계산”, 2008
- [2] Denise B. Pelowitz, editor, “MCNPX™-USER’S MANUAL (I)”, 2005
- [3] 박홍복, “LabVIEW7.0 입문”, p16-17, 2004

국내 원전의 액체 방사성유출물 배출 현황 및 특성평가

육대석, 정승영, 이아란, 이윤근

한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 구성동 19번지

dsyook@kins.re.kr

1. 서론

한국원자력안전기술원에서는 매 분기별로 원자력 관계사업자의 방사성폐기물 관련 안전정보를 접수받고 있다. 이러한 정보는 방사성폐기물 안전관리 통합정보 시스템(Waste Comprehensive Information Database, WACID)을 통하여 일반인에게도 제공되고 있으며, 제공되는 정보 중 원자력 이용시설의 운영 과정에서 환경으로 배출되는 방사성물질의 수량은 해당 시설의 운전성능과 환경부하에 대한 평가지표로 활용될 수 있다[1,2]. 이러한 이유로 현재까지 국내에서는 국내·외 원전의 방사성유출물 배출현황과 경향을 폐기물처리체통의 특성과 노형별로 분석한 결과를 제시하고 있으며[1,2,3,4], 본 연구에서는 이러한 연구의 일환으로 2003년부터 2009년까지의 액체 방사성유출물의 최신자료를 바탕으로 부지별, 호기별 및 폐기물처리 체통별 경향성을 분석하였다. 삼중수소의 경우, 액체 유출물의 대다수를 차지하지만 현재까지 뚜렷한 특이사항이 발견되지 않았으며 액체폐기물처리체통을 통하여 제거되기 어렵기[1] 때문에 금번 연구에서는 제외하였다.

2. 본론

2.1 부지별, 연도별 액체유출물 환경배출량

액체유출물을 통해 환경으로 배출되는 방사성물질은 주로 핵분열 및 방사화생성물과 삼중수소가 대부분을 차지하고 있다. 그림 1에서는 국내 원전의 부지별/연도별 방사성유출물의 환경배출량 중에서 삼중수소를 제외한 값을 도시하였다. 영광 부지의 경우, 2006년까지의 액체폐기물 배출량이 기타 부지의 경우와 비교하여 상대적으로 높은 경향성을 확인할 수 있다. 이를 개선하고자 영광 5,6호기는 원심분리기(전처리) 및 이온교환설비를 이용하여 액체폐기물을 처리하는 시설에 전처리 설비로 마이크로필터(MF) 및 역삼투압설비(RO)를 2006년 신규 설치하였다. 이후로 환경으로의 액체유출물 배출량이 감소하여 최근 3년간의 경향은 타 부지와 유의할 만한 차이를 보이지 않고

있다[3]. 또한, 울진 5,6호기의 경우에도 입자성물질의 제거성능 향상을 위해 전처리설비를 2008년 7월에 신규 설치함에 따라 유출물 감소 경향을 보이고 있다.

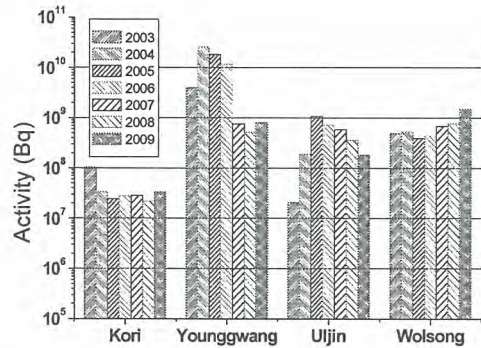


Fig. 1. Comparison of NPP site annual average liquid effluent data (based upon the annual data from 2003 to 2009)

고리 부지의 경우, 다른 경수로를 운영 중인 부지에 비하여 운영호기수와 열출력이 낮기 때문에 환경으로의 액체 유출물이 낮은 결과를 보인다.

2.2 호기별 액체유출물 환경배출량

각 발전소 별 열출력 및 폐기물 처리 체통 차이

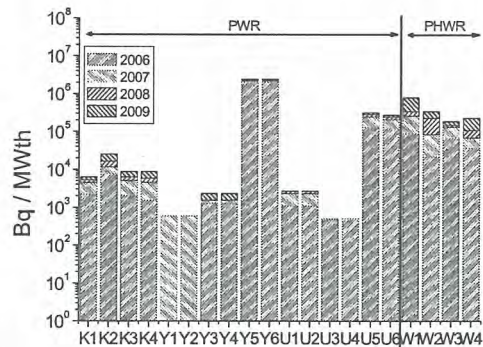


Fig. 2. Comparison of NPP's accumulated liquid effluent data (based upon the annual data from 2006 to 2009)

에 따른 상호비교를 위하여 각 발전소 호기별로 열출력당 액체 유출물 환경 배출량을 그림 2에 도시하였다. 각 호기별로 열출력(MW_{th})당 액체 유출물의 환경 배출량을 평가해 보면 액체폐기물 처리계통으로써 증발기를 채택하고 있는 가압경수로형 원전(고리1,3,4호기, 영광 1,2,3,4호기, 울진 1,2,3,4호기)에서 낮은 배출량을 유지하고 있음을 확인할 수 있다. 이온교환설비를 사용하는 가압중수로형 원전(월성1,2,3,4호기)는 영광 5,6호기 및 울진 5,6호기와 비슷한 수준의 환경 배출량을 보이고 있다. 액체 유출물의 환경 배출량은 노형별 차이보다 액체 폐기물 처리계통에 따른 차이가 주요한 원인임을 알 수 있다. 또한, 이미 기술한 바와 같이 고리 부지가 다른 부지에 비하여 부지별 액체 유출물 환경 배출량이 적은 이유는 적은 호기수와 낮은 열출력에 기인한 것으로 열출력당 액체 유출물 환경 배출량은 신규 원전에 비해 다소 높은 경향을 보이고 있음을 알 수 있다.

2.3 액체폐기물 처리 계통 성능 개선 효과

위에서 이미 기술한 바와 같이 원심분리기(전처리) 및 이온교환설비를 이용하여 액체폐기물을 처리하던 영광 5,6호기는 전처리 설비로 마이크로필터(MF) 및 역삼투압설비(RO)를 신규 설치한 2006년 이후로 환경으로의 액체폐기물 배출량이 감소하였고, 이를 정량적으로 확인하기 위하여 2003년부터 2009년까지의 삼중수소를 제외한 액체유출물의 배출량을 그림 3에 제시하였다.

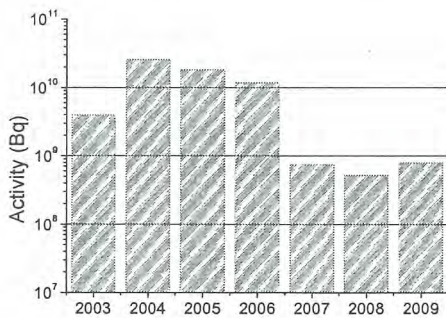


Fig. 3. Annual liquid effluent data in Younggwang 5,6. (based upon the annual data from 2003 to 2009)

그림에서와 같이 전처리 설비를 신규 교체한 영광 5,6호기는 2007년부터 환경으로 배출되는 액체 유출물이 연간 기준으로 1-order 정도 감소한 것

을 확인할 수 있다. 이러한 전처리 설비 개선은 울진 5,6호기에도 적용되었기 때문에 향후 2~3년간의 울진 액체폐기물 배출량 자료가 축적되면 처리계통 성능 개선 효과가 확인될 수 있을 것으로 기대된다.

3. 결론

본 연구에서는 삼중수소를 제외한 액체폐기물 처리 계통을 통하여 환경으로 배출되는 액체유출물을 각 발전소 부지, 호기별 및 열출력, 폐기물 처리 계통별로 경향성을 분석하여 배출량 특성을 확인하고자 하였다. 그 결과 고리 부지가 적은 호기수와 낮은 열출력으로 인하여 다른 부지와 달리 환경으로 배출되는 액체유출물의 양이 적음을 확인할 수 있었다. 또한, 호기별로 폐기물 처리계통에 따른 액체 유출물 배출량 평가를 통하여 증발기가 설치되어 있는 발전소가 역삼투압 및 이온교환수지가 설치되어 있는 발전소에 비하여 2~3 order 정도 낮은 수준을 유지하고 있음을 확인하였다. 또한, 액체폐기물 처리 계통의 전처리 설비를 개선함으로써 1 order 정도의 환경 배출량을 감소시킬 수 있음을 확인하였다.

4. 참고문헌

- [1] Jae Hak Cheong, et al., "Comparison of Domestic Nuclear Reactor's Liquid Effluent Data to Foreign PWRs". 한국원자력학회, 2004년 추계학술발표회, 2004.
- [2] Jae Hak Cheong, et al., "Preliminary Studies on the Comparison of Domestic PWRs' Gaseous Effluent Data to Foreign PWRs". 한국방사성폐기물학회, 2004년 추계학술발표회 논문요약집, 2004.
- [3] 우주희, 정승영, "국내원전의 방사성유출물 배출 현황과 경향분석". 한국방사성폐기물학회, 2008년 추계학술발표회 논문요약집, pp.391-392, 2008
- [4] Jae Hak Cheong, et al., "Statistical Analysis of Radioactive Effluent Data from Korean Pressurized Heavy Water Reactors - 1991 to 2008", 한국방사성폐기물학회, 2009년 추계학술발표회 논문요약집, pp.421-422, 2009

른 인공방사성핵종은 검출되지 않았으며, 방사성
 옥소도 전 지점 모두 검출하한치 미만으로 나타
 났다. 해수의 경우 ^{137}Cs 이 시설주변지역에서 1.61
 $\sim 2.81\text{mBq/L}$, 비교지점에서 1.72 $\sim 2.78\text{mBq/L}$, 하
 천토양의 경우 시설주변지역에서 $<0.270\sim 0.911\text{Bq/kg}$
 -dry , 비교지점에서 $<0.356\sim 1.440\text{Bq/kg-dry}$, 표
 층토양은 시설주변지역에서 $<0.327\sim 5.78\text{Bq/kg-dry}$,
 비교지점에서 1.07 $\sim 1.24\text{Bq/kg-dry}$ 로 측정되었다.

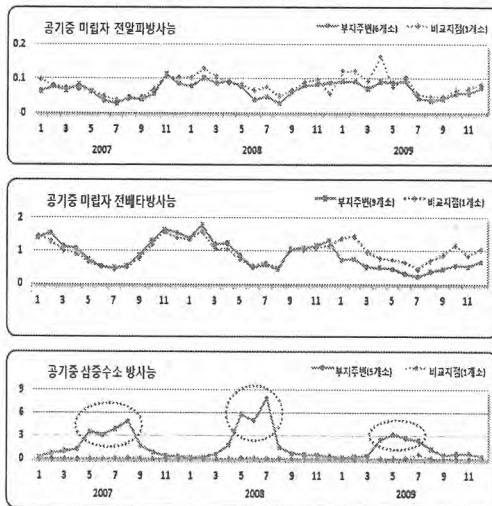


Fig. 2. Measurement results of the gross alpha and
 gross beta, ^3H activity(2007~2009)

삼중수소 방사능은 공기시료 등 육상 9종, 해수
 시료에 대하여 시료채취 및 측정을 수행하였다.
 식수에서 $<1.10\sim 24.5\text{Bq/L}$, 지하수에서 $<1.17\sim$
 114Bq/L , 지표수에서 $<0.973\sim 78.3\text{Bq/L}$, 빗물에서
 $<1.01\sim 448\text{Bq/L}$, 해수에서 $<0.970\sim 13.2\text{Bq/L}$, 우
 유시료에서는 조직자유수(TFWT) $<1.09\sim 14.0\text{Bq/L}$,
 조직결합수(OBT) $<0.09\sim 1.07\text{Bq/L}$ 의 범위이다.
 공기 중 삼중수소 방사능은 부지 내 2개소에서
 $0.0127\sim 15.7\text{Bq/m}^3$, 월성원전 감시지점 3개소에서
 $0.00675\sim 12.0\text{Bq/m}^3$, 비교지점 경주에서 $0.0116\sim$
 0.16Bq/m^3 의 분포를 나타냈다. 이는 중수로를 가
 동 중인 월성원전의 특성상 부지주변의 삼중수소
 방사능 영향이 비교지점보다 높은 것으로 판단되
 며, 특히 부지주변에서의 계절별 삼중수소 방사능
 측정값의 분포를 살펴보면, 여름철이 겨울철보다
 삼중수소 방사능측정값이 더 높은 것으로 분석이
 되었다. 이는 월성 원전과 공단과의 지리적인 특
 성상 여름철 동남풍의 영향으로 공기 중의 삼중
 수소가 월성원전에서 처분시설 부지 쪽으로 이동
 하기 때문인 것으로 판단된다.

^{14}C 방사능은 공기 중 시료에 대하여 부지주변 4
 개소의 3년간 전반기 평균 측정값이 0.260Bq/g-C ,
 비교지점(경주) 평균이 0.230Bq/g-C 로 평가되었
 으며, 그 밖의 시료에서는 지하수에서 $0.279\sim 0.289$
 Bq/g-C , 우유에서 $0.230\sim 0.240\text{Bq/g-C}$ 의 범위를
 나타냈다.

^{90}Sr 은 지하수, 표층토양 등 육상시료 6종과 해
 수, 어류 등 해양시료 4종에 대하여 시료채취 및
 분석을 수행하여, 해수에서 $0.712\sim 1.01\text{mBq/L}$, 지
 하수에서 $0.421\sim 0.843\text{mBq/L}$, 기타 우유 등에서
 $0.0058\sim 0.0081\text{Bq/L}$ 분포로 측정되었다.

지하수와 표층토양 시료에 대하여 수행한 U 방
 사능분석결과 ^{235}U 는 최소검출가능농도 미만이며,
 지하수에 대한 ^{234}U 및 ^{238}U 는 각각 $2.08\sim 2.59\text{mBq/L}$,
 $1.59\sim 1.99\text{mBq/L}$ 의 분포를 나타냈고 표층토양 시
 료인 경우 ^{234}U 는 $35.1\sim 43.5\text{Bq/kg-dry}$, ^{238}U 는
 $35.1\sim 41.6\text{Bq/kg-dry}$ 로 측정되었다.

3. 결론

2007년부터 2009년까지 처분시설 부지주변 환경
 방사능을 조사한 결과, 월성 원전과 비슷한 수준
 인 것으로 분석되었다. 자연방사성핵종은 시료의
 특성에 따라 핵종 및 농도의 차이가 있으나 거의
 모든 시료에서 ^{40}K 이 측정되었으며, 인공방사성핵
 종으로는 ^{137}Cs , ^{131}I , ^{90}Sr , ^3H (TFWT, OBT), ^{14}C ,
 $^{239+240}\text{Pu}$, ^{234}U , ^{238}U 등이 일부시료에서 미량 측정
 되었으나, 이는 국내 타 지역의 기저준위 수준과
 비슷한 결과를 나타낸다. 아직 국내에서 분석기술
 을 확보하지 못한 ^{99}Tc 와 ^{129}I 에 대해서는 원자력
 연구원과 분석용역을 체결하여 3년간('07~'09년)
 보관시료에 대한 분석을 수행 중에 있다. 추후 지
 속적인 환경조사를 통하여 처분시설의 환경영향
 평가 및 보다 다양한 기초자료를 확보할 수 있으
 리라 생각된다.

4. 참고문헌

- [1] 원자력이용시설 주변의 방사선환경조사 및 방
 사선환경영향평가에 관한 규정, 교육과학기술
 부 고시 제2009-37호.
- [2] 처분시설 부지주변 방사선환경조사계획서, 한
 국방사성폐기물관리공단, 2006.
- [3] 처분시설 부지주변 방사선환경조사보고서, 한
 국방사성폐기물관리공단, 2007~2009.